

相移法测量寿命的理论分析

李世芳 胡企铨 王平 林林
(中国科学院上海光学精密机械研究所)

提 要

本文从理论上分析了利用调制的单模激光场共振激发来测量原子或分子的寿命。结果表明: 感生荧光或共振荧光信号与调制信号间的相移主要来自三个过程: (1) 由原子的横向弛豫时间及激光线宽决定的激发过程; (2) 由激发能级及其他能级上粒子数衰减过程; (3) 与系统达到平衡态粒子数分布所需的弛豫时间有关的碰撞激发过程。讨论了在不同的情况下它们的影响, 并在分析中考虑了多普勒加宽的影响。
关键词: 相移法, 寿命, 多普勒加宽。

一、引 言

目前, 对原子或分子寿命测量大多是采用原子或分子系统对共振激发场的响应特性。应用较多的是系统对狄拉克 δ 函数激发的冲击响应特性, 这时系统表现出指数衰减行为^[1], 其衰减时间与激发态的寿命相联系。另一种方法是测量系统对正弦调制激发光的响应特性, 这时系统表现出“延时”现象, 或称相移。利用这一方法对原子或分子寿命进行测量的早期工作大多是采用单一频率调制的宽带光^[2]。理论分析表明, 这种情况下相移角 φ 可以表示成 $\text{tg}\varphi = -\Omega\tau$, 其中 Ω 为调制频率, τ 为激发态的寿命^[3]。激光的出现, 给实验工作带来了极大的方便。从此, 很多实验都应用了单色性很好的激光场^[4]。Lloyd Armstrong Jr. 和 Serge Feneuille^[5] 理论分析了强单色激光场与无多普勒加宽的原子共振作用时, 相干激发过程的影响, 指出强光场引起的拉比(Rabi)振荡效应将严重地影响测量结果, 其相移量可以表示为

$$\text{tg}\varphi = -2\omega\tau \frac{1 + (\omega\tau)^2 - \Omega_R^2}{1 + (\omega\tau)^2 + 2\Omega_R^2},$$

与非相干场激发时不同, 这里的相移量增加。上式中 Ω_R 为强场引起的拉比振荡频率。

近期有文献利用待测系统对激光场的模拍噪声的响应^[6]来进行类似的测量, 指出多频率调制, 并同时测量系统对这些频率的响应特征, 有利于测量精度的提高^[7]。放电气体中碰撞激发和消激发过程使得有可能利用相移方法测量高激发态原子的寿命, 但是碰撞过程使得两能级模型显得过于简单。本文发展了 Lloyd Armstrong Jr. 等人的理论, 考虑了这些效应对测量结果的影响。

二、理论模型

设激发场具有洛伦茨(Lorentz)线型的单模激光束, 并以角频率 Ω 振幅调制, 即

$$\left. \begin{aligned} \mathbf{E} &= \mathbf{e}_i E_0(t) (1 + m \cos \Omega t) \exp(j\omega t), \quad \text{或} \quad \mathbf{E} = \mathbf{e}_i \mathcal{E}(t) \exp(j\omega t), \\ \langle E_0(t+\tau) E_0(t) \rangle &= \frac{2I}{\epsilon_0 c} \exp(-\tau \Delta\nu_L), \end{aligned} \right\} \quad (1)$$

式中 $\Delta\nu_L$ 为激光的线宽。 $\langle \rangle$ 表示对涨落求系综平均。 ϵ_0 为真空中的介电常数, m 为调制度, \mathbf{e}_i 为激光的偏振单位矢量, $\mathcal{E}(t)$ 为激光场的慢变振幅, 对于原子或分子系统, 用与文献 [8] 相似的模型。按宇称将原子能级分成两类, 一类下标用英文字母表示其粒子数写成 n_i , 另一类下标用希腊字母表示其粒子数写成 n_α 。考虑激光场的单色性, 激光场耦合的两个能级(下标为 i_0 和 α_0) 用半经典的密度矩阵方法描述。其失相速率 Γ 一般地还与碰撞过程等有关。各能级上粒子数的改变, 主要由于自发辐射过程(A), 光激发过程(BI)中性原子间碰撞过程(αn), 以及与电子间碰撞(τn_e) 转移过程*。其中, 碰撞过程的贡献与扰体密度(气体密度 n 或电子密度 n_e) 成正比。对于能级 i_0, α_0 有密度矩阵运动方程:

$$jdt\rho = [H, \rho] + j(dt\rho)_{BC}, \quad (2)$$

式中 $j = \sqrt{-1}$, $(dt\rho)_{BC}$ 为 $dt\rho$ 的辐射及碰撞项。对于其他能级有速率方程^[8]

$$\left. \begin{aligned} dt \begin{bmatrix} n_i \\ n_\alpha \end{bmatrix} &= \begin{bmatrix} S_{ij} & A_{i\beta} + S_{i\beta} \\ A_{\alpha j} + S_{\alpha j} & S_{\alpha\beta} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} n_j \\ n_\beta \end{bmatrix}, & (i \neq i_0, \alpha \neq \alpha_0) \\ S_{\alpha\beta} &= \tau_{\alpha\beta} n_e + \alpha_{\alpha\beta} n, \quad \alpha \neq \beta, \quad \alpha, \beta = i, \alpha \\ S_{ii} &= -\sum_{\beta} (A_{\beta i} + S_{\beta i}) - \sum_{j \neq i} S_{ji}, \\ S_{\alpha\alpha} &= -\sum_j (A_{j\alpha} + S_{j\alpha}) - \sum_{\beta \neq \alpha} S_{\beta\alpha}, \end{aligned} \right\} \quad (3)$$

式中 $S_{\alpha\beta}$, S_{ii} 和 $S_{\alpha\alpha}$ 分别为碰撞、转移速率和表观衰减速率, 记激光作用的两能级间的跃迁偶极矩为 μ 。由于 $H = H_0 - \mu \cdot \mathbf{E}$, 从而(2)式改写为^[9]

$$\left. \begin{aligned} jdt\rho_{i\alpha} &= j(S_{ij}n_j + S_{i\alpha}r_\alpha) + j(S_{i_0\beta}n_\beta + S_{i_0i}\rho_{i_0}) + (\mu \cdot \boldsymbol{\epsilon} \rho_{i_0i} - H \cdot O.), \\ jdt\rho_{i_0\alpha} &= -j\Gamma\rho_{i_0\alpha} + \mu \cdot \boldsymbol{\epsilon} (r_\alpha - \rho_{i_0}) + (\omega - \omega_0)\rho_{i_0\alpha}, \\ jdt\rho_{\alpha\alpha} &= j(S_{\alpha\beta}n_\beta + S_{\alpha i_0}\rho_{i_0}) + j(S_{\alpha j}n_j + S_{\alpha\alpha}r_\alpha) - (\mu \cdot \boldsymbol{\epsilon} r_{\alpha i_0} - H \cdot O.). \end{aligned} \right\} \quad (4)$$

假定在时间 $(1/\Gamma)$ 内 $(\rho_{i_0} - r_\alpha)$ 的变化很小, 或 $I \ll I_s$ (I_s 为饱和光强), 则可对(4)式中第一式积分, 并将 $(\rho_{i_0} - r_\alpha)$ 从积分号中提出, 然后代入(4)式中第一式和第二式得

$$\left. \begin{aligned} dt\rho_{i\alpha} &= -\frac{2(\boldsymbol{\epsilon}_i \cdot \boldsymbol{\mu} \boldsymbol{\mu}^* \cdot \boldsymbol{\epsilon}_i^*)}{\epsilon_0 c (\Gamma + \Delta\nu_L)} I (\rho_{i_0} - r_\alpha) \operatorname{Re} \left\{ (1 + m \cos \Omega_0 t) \left[\frac{1}{1 + \delta^2} + m^* \left(\frac{1}{1 + (\delta - \Delta)^2} \right) \right. \right. \\ &\quad \left. \left. + \frac{1}{1 + (\delta + \Delta)^2} \right) \cos \Omega_0 t + m^* \left(\frac{\Delta + \delta}{1 + (\delta + \Delta)^2} + \frac{\Delta - \delta}{1 + (\delta - \Delta)^2} \right) \sin \Omega_0 t \right] \right\} + c. c. \end{aligned} \right\} \quad (5)$$

$$\delta = (\omega - \omega_0) / (\Gamma + \Delta\nu_L), \quad \Delta = \Omega_0 / (\Gamma + \Delta\nu_L),$$

式中 $c. c.$ 是碰撞及自发辐射项, m^* 为 m 的复数共轭。对于 $dt\rho_{\alpha\alpha}$ 也有类似的结果。(5)式具有速率方程的形式。它将与(3)式一起构成讨论的基本方程。

三、几种特殊情况下系统运动方程的简化

考虑各能级上所有速度分量上的粒子数总和, 则可以对(5)式进行速度分布积分。并借助于等离子体色散函数

* 后面括号中表示该过程的速率。

$$Z(\omega) = Z_R + iZ_I = \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\Gamma + \Delta\nu_L}{(\Gamma + \Delta\nu_L) - i(\omega - \omega')} \exp\left[-\frac{(\omega' - \omega_0)^2}{\Delta\nu_D^2}\right] d\omega', \quad (6)$$

式中 Z_R, Z_I 为实数。最后得

$$\begin{aligned} d^2\rho_{ik} = & -\frac{4}{\epsilon_0 c} \left(\epsilon_L \cdot \mu \mu^* \cdot \epsilon_L^* \left[\frac{Z_R}{\Gamma + \Delta\nu_L} I \right] \operatorname{Re} \left\{ (1 + m \cos \Omega_0 t) \left[1 + \mathfrak{M}' \cos(\Omega_0 t) \right. \right. \right. \\ & \left. \left. \left. - \operatorname{tg}^{-1} \frac{Z_I^+ - Z_I^-}{Z_R^+ + Z_R^-} \right] \right\} (\rho_{ik} - \rho_{is}) + c.c. \right. \\ & Z_R = Z_R(\omega_L), \quad Z_R^\pm = Z_R(\omega_L \pm \Omega_0), \\ & \left. \mathfrak{M}' = m^* \frac{1}{2Z_R} [(Z_R^+ + Z_R^-)^2 + (Z_I^+ - Z_I^-)^2]^{1/2}, \right\} \quad (7) \end{aligned}$$

式中 $c.c.$ 是指碰撞项, Re 表示取实部。

1. 宽带激发场情况

虽然用洛仑茨线型并不能很好地描述多模激光场或宽带光源。但是,我们将看到它所得的结果仍是合理的。对宽带激光场 $\Delta\nu_L \gg \Delta\nu_D, \Delta\nu_N$, 其中 $\Delta\nu_D$ 为气体的多普勒加宽, $\Delta\nu_N = |S_{ik}|$ 为均匀加宽。则 $\Delta, \delta \approx 0$, (5) 式变成

$$d^2\rho_{ik} = -\frac{4}{\epsilon_0 c} (\epsilon_L \cdot \mu \mu^* \cdot \epsilon_L^*) I(\omega) |1 + m \cos \Omega_0 t|^2 (\rho_{ik} - \rho_{is}) + c.c., \quad (8)$$

式中 $I(\omega) = [I/(\Gamma + \Delta\nu_L)] \approx (I/\Delta\nu_L)$ 为激发场的谱功率, $c.c.$ 为碰撞项。这个方程与速率方程的形式完全一致。

2. 无多普勒加宽的情况 ($\Delta\nu_D \ll \Delta\nu_L + \Gamma$)

在此情况下, $Z(\omega) = \{(\Gamma + \Delta\nu_L)/[(\Gamma + \Delta\nu_L) - i(\omega - \omega_0)]\}$ 。对于严格共振 $\omega_L = \omega_0$, 则 $Z = 1, Z^\pm = [(1 \pm j\Delta)/(1 + \Delta^2)]$, 于是(7)式变成

$$\begin{aligned} d^2\rho_{ik} = & -\frac{4}{\epsilon_0 c} (\epsilon_L \cdot \mu \mu^* \cdot \epsilon_L^*) \frac{I}{\Gamma + \Delta\nu_L} \operatorname{Re} \left\{ (1 + m \cos \Omega_0 t) \right. \\ & \left. \left[1 + \frac{m^*}{\sqrt{1 + \Delta^2}} \cos(\Omega_0 t - \operatorname{tg}^{-1} \Delta) \right] \right\} (\rho_{ik} - \rho_{is}) + c.c., \quad (9) \end{aligned}$$

式中 $c.c.$ 为自发辐射与碰撞项的贡献, Re 表示取实部。从(9)式与(8)式比较可知, 激发态粒子的改变是通过 $\rho_{ik} \xleftrightarrow{\quad} \rho_{i,ms} \xleftrightarrow{\quad} \rho_{is}$ 过程。由于存在相干记忆时间 $(\Gamma + \Delta\nu_L)^{-1}$, 使得粒子数的改变并不象速率方程预言的那样跟随光场的变化而出现一定的相移。我们称这种相移为激发相移, 记为 φ_{es} 。

在实验中, 常用两种调制方法。其一是小信号调制, 即 $|m| \ll 1$; 另一种是完全调制, 即 $|m^2|I$ 为有限量, $(1/|m|) \ll 1$ 。

(1) 小信号调制

(7)式中的 m^2 项可以忽略不计。而有

$$\begin{aligned} \operatorname{Re}(1 + m \cos \Omega_0 t) \left[1 + m' \cos \Omega_0 t - \operatorname{tg}^{-1} \frac{Z_I^+ - Z_I^-}{Z_R^+ + Z_R^-} \right] & \approx [1 + \mathfrak{M} \cos(\Omega_0 t + \varphi_{es})], \\ \mathfrak{M} = \operatorname{Re}(m) \frac{1}{2Z_R} [(2Z_R + Z_R^+ + Z_R^-)^2 + (Z_I^+ - Z_I^-)^2]^{1/2}, \\ \varphi_{es} = -\operatorname{tg}^{-1} \frac{Z_I^+ - Z_I^-}{2Z_R + Z_R^+ + Z_R^-}. \end{aligned} \quad (10)$$

(2) 完全调制

$$\left. \begin{aligned} & \operatorname{Re}(1+m \cos \Omega_0 t) \left[1 + \mathfrak{M}' \cos \left(\Omega_0 t - \operatorname{tg}^{-1} \frac{Z_I - Z_{\bar{I}}}{Z_R^+ + Z_{\bar{R}}} \right) \right] \\ & - \frac{|m|^2 (Z_R^+ + Z_{\bar{R}})}{4Z_R} [1 + \mathfrak{M} \cos(2\Omega_0 t + \varphi_{ee})], \\ & \mathfrak{M} = \frac{[(Z_R^+ + Z_{\bar{R}})^2 + (Z_I^+ - Z_{\bar{I}})^2]^{1/2}}{Z_R^+ + Z_{\bar{R}}}, \\ & \varphi_{ee} = -\operatorname{tg}^{-1} \frac{Z_I^+ - Z_{\bar{I}}}{Z_R^+ + Z_{\bar{R}}}. \end{aligned} \right\} \quad (11)$$

综上所述我们可以得到系统的运动方程: (将 $\rho_{i\alpha} \rightarrow n_{i\alpha}$, $f_{\alpha} \rightarrow n_{\alpha}$)

$$\left. \begin{aligned} \frac{d}{dt} \begin{bmatrix} n_i \\ n_{\alpha} \end{bmatrix} &= \begin{bmatrix} S_{ij} & A_{i\beta} + S_{i\beta} \\ A_{\alpha j} + S_{\alpha j} & S_{\alpha\beta} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} n_j \\ n_{\beta} \end{bmatrix} + BI \begin{bmatrix} -\delta_{ii} \delta_{ij} & \delta_{ii} \delta_{i\alpha} \\ \delta_{ji} \delta_{\alpha\alpha} & -\delta_{\alpha\beta} \delta_{\alpha\alpha} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} n_j \\ n_{\beta} \end{bmatrix} M(t), \\ M(t) &= 1 + \mathfrak{M} \cos(\Omega t + \varphi_{ee}), \\ \mathfrak{M} &= \begin{cases} \frac{m}{2Z_R} [(2Z_R + Z_R^+ + Z_{\bar{R}})^2 + (Z_R^+ - Z_{\bar{R}})^2]^{1/2}, & \text{(对小信号情况)} \\ \frac{1}{Z_R^+ + Z_{\bar{R}}} [(Z_R^+ + Z_{\bar{R}})^2 + (Z_I^+ - Z_{\bar{I}})^2]^{1/2}, & \text{(对完全调制情况)} \end{cases} \\ B = \frac{2}{\epsilon_0} (\epsilon_i \cdot \mu \mu^* \cdot \epsilon_i^*) \frac{2Z_R}{\Gamma + \Delta\nu_L} \begin{cases} 1, & \text{(对小信号情况)} \\ \frac{1}{4} \frac{Z_R^+ + Z_{\bar{R}}}{Z_R} m^2, & \text{(对完全调制情况)} \end{cases} \\ \Omega = \begin{cases} \Omega_0, & \text{(对小信号情况)} \\ 2\Omega_0, & \text{(对完全调制情况)} \end{cases} \end{aligned} \right\} \quad (12)$$

式中 φ_{ee} 由(10)式(11)式确定。

四、运动方程的求解

在求解方程组(12)时,不难发现,由于粒子数守恒使得右边第一项行列式为零。将任意能级 g 上的粒子数表示成 $n_g = n - \sum_{i, \alpha \neq g} (n_i + n_{\alpha})$ 代入后消除这一约束,对求解方程是有利的,这里 n 为总粒子数。这样的代入导致(12)式作如下的变换

$$S_{\alpha\alpha} \rightarrow (S_{\alpha\alpha} - S_{\alpha g}). \quad (\alpha, b = i, \alpha \neq g) \quad (13)$$

此外, (12)式加上泵浦项 $W_{\alpha} = S_{\alpha g} n$ 。于是得到在无激光作用时 ($I=0$), 系统的稳态粒子数 (n_i^0 与 n_{α}^0) 分布为

$$\begin{bmatrix} n_i^0 \\ n_{\alpha}^0 \end{bmatrix} = - \begin{bmatrix} S_{ij} & A_{i\alpha} + S_{i\alpha} \\ A_{\alpha i} + S_{\alpha i} & S_{\alpha\alpha} \end{bmatrix}^{-1} \begin{bmatrix} W_j \\ W_{\beta} \end{bmatrix}. \quad (14)$$

将(12)式的时间作平移 $t' = t + t_0$, $t_0 = (\varphi_{ee}/\Omega)$, 然后再作傅里叶变换。由于已假定 $I\mathfrak{M} \ll I_s$, 故变换后的方程可作级数解 $\mathcal{F}(\omega) = \sum_n \lambda^n \mathcal{F}^{(n)}(\omega)$ 。于是得

$$\left. \begin{aligned} \sum_{\alpha} (i\omega - A) \mathcal{F}^{(\alpha)}(\omega) \lambda^{\alpha} &= BI \delta \left\{ n^0 \delta(\omega) + \frac{1}{2} n^0 \mathfrak{M} \lambda [\delta(\omega - \Omega) + \delta(\omega + \Omega)] \right. \\ &\quad \left. + \frac{1}{2} \mathfrak{M} \sum_{\alpha} \lambda^{\alpha+1} [\mathcal{F}^{(\alpha)}(\omega - \Omega) + \mathcal{F}^{(\alpha)}(\omega + \Omega)] \right\}, \\ A &= \begin{bmatrix} S_{ij} & A_{i\beta} + S_{i\beta} \\ A_{\alpha j} + S_{\alpha j} & S_{\alpha\beta} \end{bmatrix}, \quad n^0 = \begin{bmatrix} n_{\alpha}^0 \\ n_{\beta}^0 \end{bmatrix}, \\ \delta &= \begin{bmatrix} \delta_{i\alpha} \\ \delta_{\alpha\beta} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} -\delta_{i\alpha} \delta_{\alpha\beta} \\ \mathcal{F}(\omega) = \mathcal{F} \begin{bmatrix} n_{\alpha} - n_{\alpha}^0 \\ n_{\beta} - n_{\beta}^0 \end{bmatrix} \end{bmatrix}. \end{aligned} \right\} \quad (15)$$

$(n_{\alpha} - n_{\alpha}^0)$, $(n_{\beta} - n_{\beta}^0)$ 为由于激光作用使粒子数发生的改变量, 矢量 $\mathcal{F}(\omega)$ 表示它的傅里叶变换。由此方程可以解得 $\omega = \pm\Omega$ 的谱成分, 它可以表示为

$$\left. \begin{aligned} \mathcal{F}(\omega) &= \mathfrak{M} BI [\delta(\omega - \Omega) + \delta(\omega + \Omega)] F(\omega), \\ F(\omega) &= (i\omega - A)^{-1} \delta n^0 = F^*(-\omega). \end{aligned} \right\} \quad (16)$$

若 $(1/\tau_{\alpha\alpha}) = |S_{\alpha\alpha}| \gg |S_{\alpha\beta}|$, $\alpha \neq \beta$, $a, b = i, \alpha$, 则 $F(\omega)$ 可以利用公式 $(C + D)^{-1} \approx C^{-1} - C^{-1}DC^{-1}$, $(C \gg D)$ 作近似计算。对 (16) 式作逆傅里叶变换得到粒子数变化的基频成分。特别对激光作用的上能级 α_0 有

$$\left. \begin{aligned} \Delta n_{\alpha_0} &= \mathfrak{M} BI (n_{\alpha_0} - n_{\alpha_0}^0) \frac{\tau_{\alpha_0}}{\sqrt{1 + (\Omega\tau_{\alpha_0})^2}} \cdot \frac{[(1 + S_{\alpha_0 i} \tau_{\alpha_0})^2 + (\Omega\tau_{\alpha_0})^2]^{1/2}}{\sqrt{1 + \Omega^2 \tau_{\alpha_0}^2}} \cos(\Omega t + \varphi), \\ \varphi &= \varphi_{ce} + \varphi_{\alpha_0} + \varphi_{i\alpha_0}, \quad \varphi_{\alpha_0} = -\text{tg}^{-1} \Omega\tau_{\alpha_0}, \\ \varphi_{i\alpha_0} &= -\text{tg}^{-1} \frac{S_{\alpha_0 i} \Omega\tau_{\alpha_0}^2}{1 + \Omega^2 \tau_{\alpha_0}^2 + S_{\alpha_0 i} \tau_{\alpha_0}}. \end{aligned} \right\} \quad (17)$$

φ_{α_0} 是由于上能级粒子数衰减的有限时间产生的相移, 这部分与早期用非相干光激发计算所得到的结果^[3]相同。对于理想情况下, 无碰撞和无多普勒加宽的小信号调制情况, 利用 (9)、(10) 式可得总相移 φ 为

$$\text{tg } \varphi = -\frac{\Delta + \Omega\tau_{\alpha_0} (2 + \Delta^2)}{2 + \Delta^2 - \Omega\Delta\tau_{\alpha_0}}. \quad (18)$$

如果假设 $\Gamma + \Delta\nu_L \approx \Gamma = (\tau_{\alpha_0}^{-1}/2)$, 则 (18) 式变成 $\text{tg } \varphi = -2\Omega\tau_{\alpha_0}$, 这是 Lloyd Armstrong Jr. 等人的结果。(18) 式表示的相移是较为复杂的。为了说明横向弛豫时间与激光线宽等相干作用中的失相过程对测量的影响, 不难从 (18) 式得到相对横向弛豫时间 $T_c = [(\Gamma + \Delta\nu_L)\tau_{\alpha_0}]^{-1}$ 与测量误差之间的关系。图 1 给出了这一关系。图 1 中横坐标对应于相对横向弛豫时间, 纵坐标对应于相对误差 ξ , 且定义为 $\xi = [(\tau_{\alpha_0} - \tau'_{\alpha_0})/\tau_{\alpha_0}]$, 其中 $\tau'_{\alpha_0} = (\text{tg } \varphi / \Omega_0)$ 由 φ 值确定的寿命, τ_{α_0} 可认为是原子的真实寿命。

对于理想情况 $\Delta\nu_L = 0$, $\Gamma = (1/2\tau_{\alpha_0})$, 对应于 $T_c = 2$ 。当激发光完全无相干性, 即 $\Delta\nu_L \rightarrow \infty$ 时, $T_c = 0$ 。由图 1 可知, 从完全非相干激发过渡到理想情况, 计算得到的寿命 τ'_{α_0} 与真实寿命 τ_{α_0} 可能相差一倍, 并总是偏小。例如, 设原子寿命为 10^{-7} sec, 如果用单模激光作为激发光

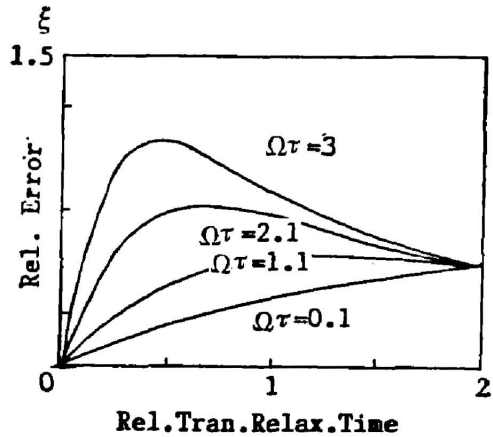


Fig. 1 The relationship between the relative error ξ and the process of phase lassing under various modulation frequencies Ω

源, 设 $\Delta\nu_L = 5 \text{ MHz}$, $\Gamma = (1/2\tau_{\text{sp}}) = 5 \text{ MHz}$, 则 $\tau_c = 1$ 在调制频率 $\Omega = 1 \text{ MHz}$ 时, $\xi \approx 33\%$; $\Omega = 11 \text{ MHz}$ 时, $\xi \approx 53\%$, $\Omega = 21 \text{ MHz}$ 时, $\xi \approx 73\%$ 。如果用多模激光场, $\Delta\nu_L \sim 1 \text{ GHz}$, $\tau_c \sim 1\%$, 此时 $\Omega = 1 \text{ MHz}$ 时, $\xi \sim 0.5\%$, $\Omega = 11 \text{ MHz}$ 时, $\xi \sim 1\%$ 。以上都是比较典型的实验数据范围。由于用单模激光场作为激发源很难消除碰撞失相过程, 即是 $\Gamma > (1/2\tau_{\text{sp}})$ 的影响, 这就说明用多模激光场对于测量原子寿命是有益的。然而用单模激光场就可以突出失相过程的贡献, 在得知 τ_{sp} 的情况下, 如果用线宽 $\Delta\nu_L \ll (1/\tau_{\text{sp}})$ 的激光作为激发源可望从图 1 中由 τ_{sp} 和 ξ 值确定 Γ 。同时, 从图 1 看出, 当 τ_c 接近 2 时, 相对误差 ξ 值与所用调制频率关系很小, 这对测量是有利的。

图 1 没有考虑多普勒效应与碰撞项 φ_{coll} 。 φ_{coll} 项通常是很小的 ($\varphi_{\text{coll}} \sim S_{\text{coll}}$), 其影响通常为百分之几的量级。如果考虑多普勒效应, 需要对等离子体色散函数作计算, 其结果是使相对误差值减小。

五、结 束 语

从本文的分析可以看出, 利用相移法测量原子寿命需要注意各种因素的影响, 针对具体的实验情况消除这些因素的干扰。考虑激光线宽及其他各种非相干性的影响, 我们得到了在分析这些效应时, 相移角 φ 与寿命 τ_{sp} 的普遍关系式。而 Birks 等人的结果和 Lloyd Armstrong Jr. 等人的结果是其两种极端情况。从而提出了一种测量原子相干作用过程中的失相速率的方法。所得结果有待进一步的实验给予验证。

参 考 文 献

- [1] P. Hannaford, R. M. Lowe; *Opt. Engng.*, 1983, **22**, No. 5 (Oct), 532~544.
- [2] E. A. Bailey, G. K. Rollefson; *J. Chem. Phys.*, 1953, **21**, 1315~1322.
- [3] W. H. Birks, W. A. Little; *Proc. Phys. Soc.*, 1953, **A66**, 921928.
- [4] William J. Tango, Richard N. Zare; *J. Chem. Phys.*, 1976, **53**, No. 8 (Oct), 3094~3100.
- [5] Lloyd Armstrong Jr, Sergio Fehenuille; *J. Phys. (B)*, 1975, **8**, No. 4 (Apr), 546~551.
- [6] G. M. Hieftje, G. R. Haugen *et al.*; *Appl. Phys. Lett.*, 1977, **30**, No. 9, 463~466.
- [7] Frank V. Bright *et al.*; *Appl. Spectrosc.*, 1986, **40**, No. 5, 683~687.
- [8] 李世芳, 殷立峰等; 《光学学报》, 1986, **6**, No. 8 (Aug), 695~703.

Theoretical mode of lifetime measurement by phase shift method

LI SHIFANG, HU QIQUAN, WANG PING, AND LIN LIN
(*Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Academia Sinica*)

(Received 5 June 1987; revised 14 September 1987)

Abstract

The lifetime of atoms and molecules can be measured by using modulated resonant single-mode laser field. A theoretical mode for this method is presented. It is shown that the laser induced fluorescence, a resonance fluorescence is modulated at the same frequency, but phase shift from the exciting laser. The phase shift is mainly due to three processes (1) coherent excitation process characterized by transverse relaxation rate and line width of the laser, (2) population damping process characterized by the decay time of excited levels and other populated levels, (3) collision process characterized by the relaxation time by which the system to be in equilibrium state. The effect of these processes on measurement result is discussed. The Doppler broadening is considered also.

Key words: phase shift method; lifetime; doppler broadening effect.