

# 应用双光子共振非简并四波混频测量 Ba 原子里德伯态\*

孙 江<sup>1)†</sup> 左战春<sup>2)</sup> 郭庆林<sup>1)</sup> 王英龙<sup>1)</sup> 怀素芳<sup>1)</sup> 王 颖<sup>1)</sup> 傅盘铭<sup>2)</sup>

1) 河北大学物理科学与技术学院, 保定 071002)

2) 中国科学院物理研究所光物理实验室, 北京 100080)

(2004 年 10 月 27 日收到, 2005 年 5 月 17 日收到修改稿)

使用具有中间态的双光子共振非简并四波混频(NFWM)测量了 Ba 原子  $J = 0$  和  $J = 2$  的偶宇称里德伯线系, 与现代实验方法不同, 本方法是纯光学的方法, 其光路简单, 检测的是相干光, 而不是电子或离子信号. 当用窄带宽的激光时, 本技术对里德伯能级的窄光谱结构可以获得消多普勒的分辨率.

关键词: 四波混频, 里德伯态

PACC: 4265M, 2930

## 1. 引 言

里德伯态是原子或分子中电子跃迁到主量子数  $n$  较高的轨道上所形成的高激发电子态. 在过去的 20 多年里, 人们对 Ba 原子里德伯态进行了大量的研究, 通过多通道量子亏损理论(MQDT)对实验数据进行了成功的分析<sup>[1-4]</sup>. 然而与更轻的碱土原子相比, 由于 Ba 原子包括了大量的低于第一电离限的双激发能级, 不能忽视自旋-轨道相互作用, Ba 原子的束缚态光谱更加复杂. 精确测量 Ba 原子里德伯态对改善描述 Ba 原子束缚态光谱的 MQDT 具有重要意义<sup>[4]</sup>. 由于里德伯态的能级寿命很长, 利用里德伯态发出的荧光来直接探测里德伯态是很困难的, 现代实验技术大多通过利用激光产生特定的里德伯态, 然后经电场电离、光电离或碰撞电离来探测电子或离子信号来研究里德伯态. 这些检测方法都不是纯光学方法.

在高分辨率激光光谱学中, 具有共振增强的四波混频(FWM)是一种用途很广的光谱学技术, 其中的共振增强非简并四波混频(NFWM)具有优秀的空间信号分辨率, 可自由选择相互作用体积和简单的光路, 并且可以在很宽的频率范围(几百到上千的波数)内实现相位匹配的优点, 而明显的优于其他的四

波混频光谱学<sup>[5-8]</sup>. 拉曼增强 NFWM 已经被用于从时域和频域来研究分子材料中的振动. 基于极化干涉, 人们提出了一种消多普勒的激光光谱学, 叫做超快调制光谱学, 可以用来测量原子系统的能级<sup>[9, 10]</sup>. 此外, 近来我们还提出了一种可以在频域测量超快纵向时间的光谱学——瑞利型非简并四波混频<sup>[11, 12]</sup>.

本文将具有共振中间态的双光子共振非简并四波混频应用于原子的高激发态的研究, 测量了 Ba 原子的偶宇称  $J = 0$  和  $J = 2$  的里德伯线系. 我们采用的双光子共振非简并四波混频方法, 是纯光学的方法, 其光路简单, 检测的是相干光, 而不是电子或离子信号. 当用窄带宽的激光时, 本技术对里德伯能级的窄光谱结构可以获得消多普勒的分辨率.

## 2. 理 论

具有共振中间态的双光子共振非简并四波混频是一个有三束入射光参加作用的三阶非线性过程. 如图 1(a)所示, 光束 2 和 2' 具有相同的频率  $\omega_2$  并成一个很小的夹角  $\theta$ , 光束 1 具有频率  $\omega_1$  沿与光束 2 几乎相反的方向入射到样品上.

考虑一个如图 1(b)所示的级联三能级系统, 基态  $|0\rangle$  和中间态  $|1\rangle$  之间, 中间态  $|1\rangle$  和激发态  $|2\rangle$  之

\* 国家自然科学基金(批准号: 30374113)资助的课题.

†E-mail: hdsunjiang@126.com

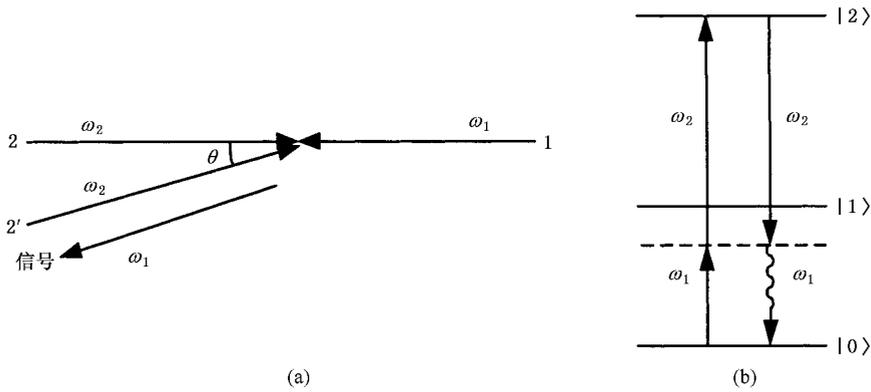


图 1 具有共振中间态的双光子共振非简并四波混频

间分别通过共振频率  $\Omega_1, \Omega_2$  耦合, 基态  $|0\rangle$  与激发态  $|2\rangle$  之间的跃迁是偶极禁戒的. 如果  $\omega_1 \approx \Omega_1, \omega_2 \approx \Omega_2$ , 则光束 1 引起  $|0\rangle$  到  $|1\rangle$  的跃迁, 光束 2 引起  $|1\rangle$  到  $|2\rangle$  的跃迁. 在双光子共振 NFWM 中, 光束 1, 2 通过双光子跃迁感生基态  $|0\rangle$  和激发态  $|2\rangle$  态之间的相干. 这个双光子相干可以通过光束 2' 来进行探测, 产生频率为  $\omega_1$  沿光束 2' 几乎相反的方向传播的 NFWM 信号光.

该级联三能级系统相互作用的哈密顿量为

$$H = \hbar\Delta_1 |1\rangle\langle 0| + \hbar(\Delta_1 + \Delta_2) |2\rangle\langle 1| - (\mu_1 E_1 |1\rangle\langle 0| + \mu_2 E_2 |2\rangle\langle 1| + \text{H.c.}) \quad (1)$$

式中  $\Delta_1 = \Omega_1 - \omega_1, \Delta_2 = \Omega_2 - \omega_2$ , 为原子的偶极跃迁频率与入射光频率的失谐量,  $E_1 = \epsilon_1 e^{ik_1 \cdot r}, E_2 = \epsilon_2 e^{ik_2 \cdot r} + \epsilon_2' e^{ik_2' \cdot r}$  为频率分别为  $\omega_1, \omega_2$  的激光束的场强, 其中  $k_1, k_2, k_2'$  和  $\epsilon_1, \epsilon_2, \epsilon_2'$  分别为光束 1, 2, 2' 的波矢和振幅.  $\mu_1, \mu_2$  分别为  $|0\rangle$  和  $|1\rangle, |1\rangle$  和  $|2\rangle$  间的跃迁偶极矩阵元.

引起双光子共振非简并四波混频的非线性极化强度正比于密度矩阵的非对角矩阵元  $\rho_{10}$ , 为求得  $\rho_{10}$ , 我们需要求解密度矩阵方程

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} = -\frac{i}{\hbar} [H, \rho] + \left( \frac{d\rho}{dt} \right)_{\text{relax}} \quad (2)$$

设定  $\epsilon_1, \epsilon_2$  和  $\epsilon_2'$  很弱, 从而可以使用微扰理论来研究, 非对角矩阵元  $\rho_{10}$  可以通过下面的微扰链计算:

$$\rho_{00}^{(0)} \rightarrow \rho_{10}^{(1)} \rightarrow \rho_{20}^{(2)} \rightarrow \rho_{10}^{(3)} \quad (3)$$

定义耦合系数  $G_1 = \mu_1 \epsilon / \hbar, G_2 = \mu_2 \epsilon_2 / \hbar, G_2' = \mu_2 \epsilon_2' / \hbar, \Gamma_{n0}$  为能级  $|n\rangle$  和  $|0\rangle$  之间的横向弛豫速率. 由于原子系统最初处于基态  $|0\rangle$ , 有  $\rho_{00}^{(0)} = 1$ , 由光束 1 引起的矩阵元  $\rho_{10}$  满足

$$\frac{\partial \rho_{10}}{\partial t} = -(i\Delta_1 + \Gamma_{10}) \rho_{10} + iG_1 e^{ik_1 \cdot r} \rho_{00}^{(0)} \quad (4)$$

在稳态条件下 (4) 式的解为  $\rho_{10}^{(1)} = \frac{iG_1 e^{ik_1 \cdot r}}{i\Delta_1 + \Gamma_{10}}$ . 接着, 光束 2 感生出原子相干  $\rho_{20}$ , 满足

$$\frac{\partial \rho_{20}}{\partial t} = -[i(\Delta_1 + \Delta_2) + \Gamma_{20}] \rho_{20} + iG_2 e^{ik_2 \cdot r} \rho_{10}^{(1)} \quad (5)$$

稳态条件下, 有

$$\rho_{20}^{(2)} = \frac{iG_2 e^{ik_2 \cdot r} \rho_{10}^{(1)}}{i(\Delta_1 + \Delta_2) + \Gamma_{20}} \quad (6)$$

最后, 双光子相干  $\rho_{10}^{(2)}$  被光束 2' 探测, 通过

$$\frac{\partial \rho_{10}}{\partial t} = -(i\Delta_1 + \Gamma_{10}) \rho_{10} + (G_2')^* e^{-ik_2' \cdot r} \rho_{20}^{(2)} \quad (7)$$

可以求出  $\rho_{10}^{(3)} = \frac{(G_2')^* e^{-ik_2' \cdot r} \rho_{20}^{(2)}}{i\Delta_1 + \Gamma_{10}}$ . 于是有

$$\rho_{10}^{(3)}(\mathbf{r}) = -i \frac{G_1 G_2 (G_2')^* e^{i(k_1 + k_2 - k_2') \cdot \mathbf{r}}}{(i\Delta_1 + \Gamma_{10}) [i(\Delta_1 + \Delta_2) + \Gamma_{20}]} \quad (8)$$

由 (8) 式可以看出 NFWM 信号沿  $k_1 + k_2 - k_2'$  的方向传播. NFWM 信号的强度  $I$  正比于  $|\rho_{10}^{(3)}(\mathbf{r})|^2$ , 即

$$I \propto \frac{1}{(\Gamma_{10}^2 + \Delta_1^2) [(\Gamma_{20}^2 + (\Delta_1 + \Delta_2)^2)]} \quad (9)$$

上式表明双光子共振处 NFWM 频谱为洛伦兹线形, 线宽 (FWHM) 为  $2\Gamma_{20}$ .

### 3. 实 验

使用具有共振中间态的双光子共振非简并四波混频研究 Ba 原子的里德伯态的实验如图 2 所示, 选取 Ba 原子的基态  $6s^2 \ ^1S_0$  作为  $|0\rangle$ , 中间态  $6s6p \ ^1P_1$  作为  $|1\rangle$ , 里德伯态 ( $6sns \ ^1S_0, 6snd \ ^1D_2$  和  $6snd \ ^3D_2$ ) 作为  $|2\rangle$ , 组成了图 1(b) 所示的三能级系统. 在氩缓冲气体压强  $P = 133 \text{ Pa}$  的条件下, 将放在样品炉中

的金属钡加热到  $660\text{ }^{\circ}\text{C}$ , 使之产生蒸气. 使用 Quanta-Ray ND-YAG 激光器的二次谐波和三次谐波抽运两台染料激光器  $\text{Laser}_1$  和  $\text{Laser}_2$ , 产生频率为  $\omega_1$  和  $\omega_2$  的激光束  $L_1$  和  $L_2$ . 将  $\text{Laser}_1$  的输出波长调谐到  $\lambda_1 = 553.5\text{ nm}$ , 此为  $6s^2\text{ }^1\text{S}_0 - 6s6p\text{ }^1\text{P}_1$  的跃迁对应的波长,  $\text{Laser}_2$  可以从  $\lambda_2 = 417\text{ nm}$  连续调谐到  $\lambda_2 = 436\text{ nm}$ , 用它驱动  $6s6p\text{ }^1\text{P}_1$  到里德伯态的跃迁. 激光束  $L_1$  和  $L_2$  是垂直向上的线偏振光, 其线宽为  $0.007\text{ nm}$ , 脉冲宽度为  $5\text{ ns}$ .  $L_1$  经过全反镜  $M_1, M_2$  和  $M_3$  反射后为光束 1 进入热管炉.  $L_2$  被半透半反镜  $M_5$  分成两束, 其中一束经过一个延时器后作为光束 2 进入热管炉, 另一束光作为光束 2' 进入热管炉. 光束 1 和光束 2 的方向几乎相反, 光束 2 和光束 2' 成一个大约  $0.5^{\circ}$  的夹角在热管炉中部交叉, 汇聚成直径大约  $2.0\text{ mm}$  的一点. 具有频率  $\omega_1$  的四波混频信号光是与入射光相同方向的线偏振光. 它沿与光束 2' 几乎相反的方向传播, 通过镜  $M_8$  透射后被光电二极管探测, 然后引入信号平均器 boxcar 做数据平均. 用一台计算机做数据处理和控制步进马达以改变  $\text{Laser}_2$  的激光输出波长.

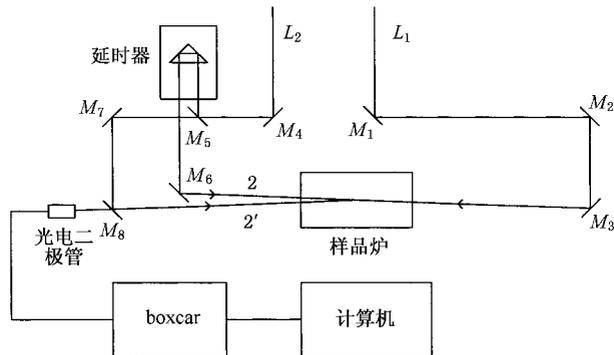
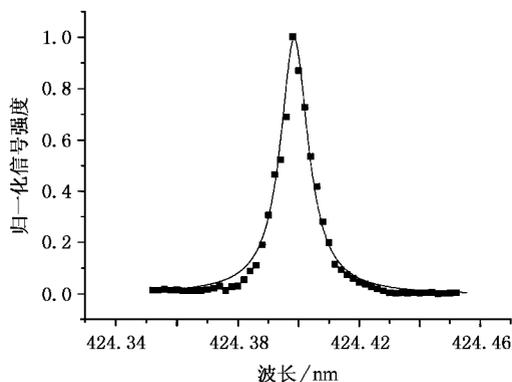
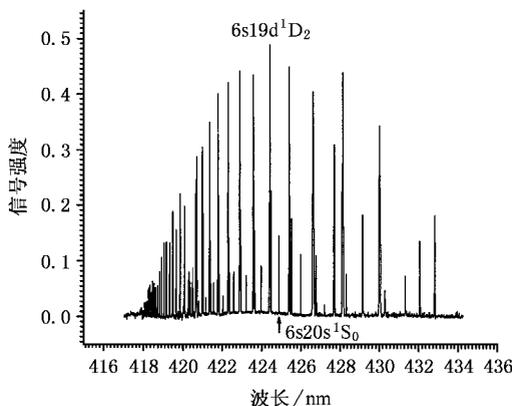


图2 实验装置

首先固定  $\lambda_1 \approx 553.5\text{ nm}$ , 扫描  $\omega_2$  来研究里德伯态的双光子共振非简并四波混频频谱. 为了避免在  $6s^2\text{ }^1\text{S}_0 - 6s6p\text{ }^1\text{P}_1$  共振跃迁频率处的强吸收, 我们将染料激光器  $\text{Laser}_1$  的输出波长从精确共振位置偏调了  $0.04\text{ nm}$ . 图 3 为得到的 Ba 原子里德伯态  $6s19d\text{ }^1\text{D}_2$  的四波混频频谱. 在我们的实验中, 由于光束 1 和光束 2 是反向共线传播, 可以部分的消除多普勒效应. 另一方面, 由于我们使用的是多模激光器, 需要考虑激光线宽对四波混频信号的影响. 根据文献 [13] (9) 式应替换为  $\Gamma'_{10} = \Gamma_{10} + \alpha_1$  和  $\Gamma'_{20} = \Gamma_{20} + \alpha_1 + \alpha_2$ , 其中  $\alpha_1, \alpha_2$  为激光  $L_1$  和  $L_2$  的线宽. 通过数

值拟合双光子共振 NFWM 谱线(图 3 中的实线), 得到  $\Gamma'_{20} = 0.3\text{ cm}^{-1}$ , 由于里德伯态  $6s19d\text{ }^1\text{D}_2$  寿命是  $\mu\text{s}$  量级,  $\Gamma'_{20}$  的值主要来源于激光的线宽.

图3 Ba 原子  $6s19d\text{ }^1\text{D}_2$  里德伯态的双光子共振 NFWM 谱(实线为理论曲线, 拟合得到的线宽为  $\Gamma'_{20} = 0.30\text{ cm}^{-1}$ )图4 NFWM 信号强度对  $\text{Laser}_2$  输出波长  $\lambda_2$  的关系曲线

我们在第二个染料激光器  $\text{Laser}_2$  的整个可调频率范围内扫描了  $\omega_2$ . 图 4 为 NFWM 信号强度对  $\text{Laser}_2$  输出波长  $\lambda_2$  的关系曲线. 图 4 中的 NFWM 光谱显示了 Ba 原子对应于偶宇称  $J=0$  的  $6s n s\text{ }^1\text{S}_0$  ( $n = 16 - 31$ ),  $J=2$  的  $6s n d\text{ }^1\text{D}_2$  ( $n = 14 - 36$ ) 和  $6s n d\text{ }^3\text{D}_2$  ( $n = 15 - 29$ ) 里德伯线系. 图中全部谱线的包络线反映了  $\text{Laser}_2$  激光器中染料的荧光谱的形状. 值得注意的是, 由于相位匹配可以在很宽的频率范围内实现, 所以在整个扫描过程中不需要对光路配置进行调整.

表 1 和表 2 分别给出了通过本方法测到的里德伯线系能级的能量. 我们所使用的双光子共振非简并四波混频方法是一种可以消除多普勒效应的高分辨率光谱学方法, 但是, 在本次实验中, 我们所使用

的染料激光器的最小扫描波数间隔大致为  $0.22\text{cm}^{-1}$ , 它决定了我们实验设备测量的不确定范

围大致为  $0.22\text{cm}^{-1}$ , 在这个范围内, 我们得到的数据和文献 [2] 给出的结果基本一致.

表 1 双光子共振非简并四波混频测得的 Ba 原子  $J=0$  的里德伯态的能量

能级	实验值/ $\text{cm}^{-1}$	能级	实验值/ $\text{cm}^{-1}$
6s16s $^1S_0$	41244.85	6s24s $^1S_0$	41755.02
6s17s $^1S_0$	41362.24	6s25s $^1S_0$	41781.36
5d7d $^3P_0$	41441.35	6s26s $^1S_0$	41803.92
6s18s $^1S_0$	41467.66	6s27s $^1S_0$	41823.81
6s19s $^1S_0$	41535.12	6s28s $^1S_0$	41841.24
6s20s $^1S_0$	41595.98	6s29s $^1S_0$	41856.43
6s21s $^1S_0$	41646.45	6s30s $^1S_0$	41870.27
6s22s $^1S_0$	41688.64	6s31s $^1S_0$	41882.31
6s23s $^1S_0$	41724.48		

表 2 双光子共振非简并四波混频测得的 Ba 原子  $J=2$  的里德伯态的能量

能级	实验值/ $\text{cm}^{-1}$	能级	实验值/ $\text{cm}^{-1}$
6s14d $^1D_2$	41164.39	6s24d $^1D_2$	41792.64
5d7d $^3F_2$	41204.55	6s25d $^3D_2$	41812.05
6s15d $^3D_2$	41300.42	6s25d $^1D_2$	41813.63
6s15d $^1D_2$	41315.58	6s26d $^3D_2$	41829.47
6s16d $^3D_2$	41407.46	6s26d $^1D_2$	41831.95
6s16d $^1D_2$	41417.84	5d7d $^1D_2$	41841.7
6s17d $^3D_2$	41492.38	6s27d $^3D_2$	41848.27
6s17d $^1D_2$	41500.63	6s27d $^1D_2$	41852.12
6s18d $^3D_2$	41560.97	6s28d $^3D_2$	41862.78
6s18d $^1D_2$	41567.16	6s28d $^3D_2$	41864.59
6s19d $^3D_2$	41617.74	5d7d $^3P_2$	41868.00
6s19d $^1D_2$	41622.41	6s29d $^3D_2$	41875.49
6s20d $^3D_2$	41664.73	6s29d $^1D_2$	41877.09
6s20d $^1D_2$	41668.53	6s30d $^1D_2$	41888.22
6s21d $^3D_2$	41704.3	6s31d $^1D_2$	41898.23
6s21d $^1D_2$	41707.22	6s32d $^1D_2$	41907.34
6s22d $^3D_2$	41737.72	6s33d $^1D_2$	41915.59
6s22d $^1D_2$	41740.19	6s34d $^1D_2$	41923.17
6s23d $^3D_2$	41766.27	6s35d $^1D_2$	41928.82
6s23d $^1D_2$	41768.3	6s36d $^1D_2$	41936.15
6s24d $^3D_2$	41790.83		

## 4. 结 论

里德伯电子的轨道半径很大, 导致里德伯态和基态或低激发态的重叠较小, 偶极耦合较弱, 所以里德伯态的辐射寿命很长(和主量子数  $n$  的三次方成正比). 用里德伯态跃迁发出的荧光来探测里德伯态是困难的. 现代实验技术通过利用激光产生特定的里德伯态, 然后经电场电离、光电离或碰撞电离来探测电子或离子信号进行检测, 测量的是布居, 因而可以测到纵向弛豫. 在双光子共振非简并四波混频中, 频率分别为  $\omega_1$  和  $\omega_2$  的光束 1 和光束 2 感生出基态  $|0\rangle$  和里德伯态  $|2\rangle$  之间的一个原子相干, 这个相干被频率为  $\omega_2$  的光束 2' 探测, 产生的信号光不是里德伯态跃迁产生的荧光, 而是两个强耦合态  $|1\rangle$  和  $|0\rangle$  之间跃迁产生的相干辐射——四波混频信号. 该方法测量的是能态间的相干, 信号是具有良好方向性的相干光, 因而可以测到横向弛豫.

本文将具有中间态的双光子共振非简并四波混频应用于 Ba 原子的里德伯系列的测量. 对比于现代实验技术, 我们所采用的方法具有显著的特点. 第一, 非简并四波混频对位相匹配条件要求不严格, 可以在很大的频率范围内实现位相匹配, 从而在整个扫描过程中不需要对光路进行调节. 第二, 信号是相干光, 易于检测. 中间态的共振增强可以将信号强度提高几个数量级. 第三, 该方法是纯光学方法, 所采用的光路配置简单, 易于实现. 第四, 当使用窄带激光器时, 双光子共振非简并四波混频可以获得消多普勒的高分辨率. 这是因为在我们所采取的光路配置中, 只有沿  $z$  轴具有速度  $v \approx \Delta_1/k_1$  的原子群对四波混频信号有贡献.

[1] Rubbmark J R, Borgstrom S A, Bockasten K 1977 *J. Phys.* B **10** 421  
 [2] Aymar M, Camus P, Dieulin M *et al* 1978 *Phys. Rev. A* **18** 2173  
 [3] Aymar M, Robaux O 1979 *J. Phys.* B **12** 531  
 [4] Lü J, Dai C, Xu Y *et al* 2001 *Chin. Phys. Lett.* **18** 1192  
 [5] Saha S K, Hellwarth R W 1983 *Phys. Rev. A.* **27** 919  
 [6] Yu Z, Lu H, Ye P *et al* 1987 *Opt. Commun.* **61** 287  
 [7] Sun J, Zuo Zh, Mi X *et al* 2005 *Chin. Phys. Sin.* **54** 149 (in Chinese) [孙江、左战春、米辛等 2005 物理学报 **54** 149]

[8] Jiang Y, Cui Y P, Pang S M 1999 *Chin. Phys. Sin.* **48** 673 (in Chinese) [蒋雁、崔一平、庞叔鸣 1999 物理学报 **48** 673]  
 [9] Fu P, Yu Z, Mi X *et al* 1994 *Phys. Rev. A* **50** 698  
 [10] Fu P, Wang Y, Jiang Q *et al* 2001 *J. Opt. Soc. Am. B* **18** 370  
 [11] Fu P, Jiang Q, Mi X *et al* 2002 *Phys. Rev. Lett.* **88** 113902  
 [12] Sun J, Jiang Q, Mi X *et al* 2004 *Chin. Phys. Sin.* **53** 450 (in Chinese) [孙江、姜谦、米辛等 2004 物理学报 **53** 450]  
 [13] Petch J C, Keitel C H, Knight P L *et al* 1996 *Phys. Rev. A* **53** 543

# Observation of Rydberg series of neutral barium by two-photon resonant nondegenerate four-wave mixing<sup>\*</sup>

Sun Jiang<sup>1)†</sup> Zuo Zhan-Chun<sup>2)</sup> Guo Qing-Lin<sup>1)</sup> Wang Ying-Long<sup>1)</sup> Huai Su-Fang<sup>1)</sup> Wang Ying<sup>1)</sup> Fu Pan-Ming<sup>2)</sup>

<sup>1)</sup> *Physical Science & Technology College, Hebei University, Baoding 071002, China*

<sup>2)</sup> *Laboratory of Optical Physics, Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100080, China*

( Received 27 October 2004 ; revised manuscript received 17 May 2005 )

## Abstract

We have applied two-photon resonant nondegenerate four-wave mixing ( NFWM ) with a resonant intermediate state to measure the energy levels of the Ba even-parity  $J = 0$  and  $J = 2$  series. Differing from other experiment techniques, our method is a pure optical technique. Instead of detecting electrons or ions, the signal here is a coherent light. Two-photon resonant NFWM is a Doppler-free spectroscopy when the incident laser beams have narrow bandwidths.

**Keywords** : four-wave mixing, Rydberg state

**PACC** : 4265M, 2930

---

<sup>\*</sup> Project supported by the National Natural Science Foundation of China ( Grant No. 10374113 ).

<sup>†</sup> E-mail: [hdsunjiang@126.com](mailto:hdsunjiang@126.com)