

薄原子蒸汽膜的双光子光谱及 Dicke 窄化*

李院院¹⁾ 白晋涛²⁾ 张贵忠³⁾ 周 瑜³⁾ 张彦鹏⁴⁾ 甘琛利⁴⁾

1) 宁夏师范学院物理与信息技术系, 固原 756000)

2) 西北大学光子学与光子技术研究所, 光电子技术陕西省重点实验室, 西安 710069)

3) 天津大学精密仪器与光电子工程学院, 天津 300072)

4) 西安交通大学电子科学与技术系, 西安 710049)

(2006 年 3 月 30 日收到; 2006 年 7 月 31 日收到修改稿)

薄原子蒸汽膜的单光子 Dicke 窄化吸收光谱可以拓展到双光子情形, 以级联三能级系统为例, 从理论上得到了亚多普勒结构的双光子吸收光谱, 其线型表现出和单光子过程相似的与膜厚和探测光波长的比值 (L/λ) 相关的周期性. 当 $L/\lambda = (2n + 1)/2$ (膜厚为半波长的奇数倍) 时, 吸收谱线窄化现象明显. 当 $L/\lambda = 2n$ (膜厚为半波长的偶数倍) 时, 单光子情形的谱线窄化现象消失, 而双光子情形的谱线仍表现为亚多普勒结构, 尤其在异侧入射的情形下, 可以获得极窄的双光子谱线结构. 这种结构来自原子与腔壁碰撞的消激发效应和双光子过程的抽运-探测机制的贡献.

关键词: 薄原子蒸汽膜, 双光子光谱, Dicke 窄化

PACC: 0765, 6890

1. 引 言

自 1955 年 Dicke 等发现用半波长厚的蒸汽腔获得 Dicke 窄化光谱^[1]以来, 研究薄原子蒸汽光谱成为一个十分有趣的课题^[2-10]. Sarkisyan 等与 Ducloy 领导的研究小组合作, 成功制作了局部膜厚可达纳米量级 (20—1000 nm) 的薄腔, 观测到了亚多普勒结构的光谱, 并对薄膜蒸汽光谱的特性及腔内原子与腔壁的范德瓦耳斯 (vdW) 相互作用势进行了一系列与膜厚有关的研究^[2,4]. 当膜的厚度接近或小于入射波的波长时, 其光谱线型表现出与 L/λ (膜厚与入射波长的比值) 相关的周期性及不对称特性^[2-4]. 最近, Sarkisyan 等^[5]又成功制作了膜厚在 150—1800 nm 范围可调的薄 Rb 蒸汽腔, 再次从实验上得到了与 L/λ 有关的周期性吸收光谱和荧光光谱. 这种亚多普勒结构的吸收 (透射) 光谱、选择反射、频率调制光谱成为研究囚禁于电介腔中原子的一些奇异特性以及激发态原子与腔壁相互作用机制的有力工具^[2-10]. 以前的讨论大多限于单光子情形, 本文将以前级联三能级系统为例从理论上讨论薄原子蒸汽膜的双光子吸收光谱.

2. 理 论

我们考虑的样品是囚禁于厚度为 L 的超薄样品室中的原子蒸汽. 在图 1 所示级联三能级系统的能级位形图中, $|1\rangle$ 为基态, $|2\rangle, |3\rangle$ 分别为中间态及激发态. ω_{21}, ω_{32} 分别对应于 $|1\rangle - |2\rangle$ 及 $|2\rangle - |3\rangle$ 之间的跃迁频率. 抽运光 E_p 及探测光 E_d 的频率分别为 ω_p 及 ω_d , 失谐因子分别为

$$\Delta_p = \omega_p - \omega_{32},$$

$$\Delta_d = \omega_d - \omega_{21}.$$

原子的密度矩阵方程可写为

$$\left[\frac{\partial}{\partial t} + v \frac{\partial}{\partial z} \right] \rho = - \frac{i}{\hbar} [H, \rho] - \Gamma \rho, \quad (1)$$

式中 $\rho(v, z, t)$ 为密度矩阵元; H 为哈密顿算符, 其对角元分别对应于能级 $|1\rangle, |2\rangle, |3\rangle$ 的能量 E_1, E_2, E_3 , 而其非对角元则对应于原子与入射场的相互作用势,

$$H_{21} = - \frac{\hbar \Omega_d}{2} \exp[-i(\omega_d t - k_d z)], \quad (2a)$$

$$H_{32} = - \frac{\hbar \Omega_p}{2} \exp[-i(\omega_p t - k_p z)], \quad (2b)$$

* 宁夏回族自治区高等学校科学研究基金 (批准号: 2005153) 资助的课题.

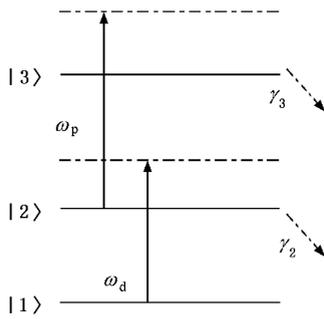


图 1 级联三能级系统的能级位形图

$$H_{12} = H_{21}^*, \quad (2c)$$

$$H_{31} = H_{13}^* = 0. \quad (2d)$$

这里 k_p 和 k_d 分别为抽运光和探测光的波矢, Rabi 频率 Ω_d, Ω_p 分别定义为

$$\Omega_d = 2\mu_{21} E_d / \hbar,$$

$$\Omega_p = 2\mu_{32} E_p / \hbar,$$

其中 μ_{21}, μ_{32} 分别对应跃迁 $|1\rangle \rightarrow |2\rangle$ 及 $|2\rangle \rightarrow |3\rangle$ 的偶极跃迁矩阵元.

假定原子蒸汽十分稀薄, 以平均热速率 v 自由飞行原子的飞行时间远大于原子在样室两壁之间的飞行时间 $\tau = L/v$, 原子与壁发生非弹性碰撞之后马上回到基态. 因此 (1) 式中的弛豫项 $\Gamma\rho$ 可表示为

$$-(\Gamma\rho)_{11} = \gamma_2 \rho_{22}, \quad (3a)$$

$$-(\Gamma\rho)_{22} = -\gamma_2 \rho_{22} + \gamma_3 \rho_{33}, \quad (3b)$$

$$-(\Gamma\rho)_{33} = -\gamma_3 \rho_{33}, \quad (3c)$$

$$-(\Gamma\rho)_{21} = -\gamma_{21} \rho_{21}, \quad (3d)$$

$$-(\Gamma\rho)_{32} = -\gamma_{32} \rho_{32}, \quad (3e)$$

$$-(\Gamma\rho)_{31} = -\gamma_{31} \rho_{31}. \quad (3f)$$

这里衰变率

$$\gamma_{ij} = (\gamma_i + \gamma_j)/2,$$

其中 $\gamma_i (\gamma_j)$ 指能级 $|i\rangle (|j\rangle)$ ($i, j = 1, 2, 3$) 的衰变率.

我们引入密度矩阵元 $\sigma(v, t)$ 并做如下变换:

$$\rho_{32} = \sigma_{32} \exp[-i(\omega_p t - k_p z)], \quad (4a)$$

$$\rho_{21} = \sigma_{21} \exp[-i(\omega_d t - k_d z)], \quad (4b)$$

$$\rho_{31} = \sigma_{31} \exp\{-i[(\omega_p + \omega_d)t - (k_p + k_d)z]\}, \quad (4c)$$

$$\rho_{23} = \rho_{32}^*, \quad (4d)$$

$$\rho_{12} = \rho_{21}^*,$$

$$\rho_{31} = \rho_{13}^*.$$

变换中我们假设抽运光和探测光同侧法向入射, 对于异侧入射的情形只要将 k_p 取相反符号即可.

联立 (1)–(4) 式可得如下 Bloch 方程:

$$\frac{\partial \sigma_{32}}{\partial t} = \frac{i\Omega_p}{2}(\sigma_{22} - \sigma_{33}) - \frac{i\Omega_d}{2}\sigma_{31} - \Lambda_{32}\sigma_{32} \quad (5a)$$

$$\frac{\partial \sigma_{21}}{\partial t} = \frac{i\Omega_d}{2}(\sigma_{11} - \sigma_{22}) + \frac{i\Omega_p}{2}\sigma_{31} - \Lambda_{21}\sigma_{21} \quad (5b)$$

$$\frac{\partial \sigma_{31}}{\partial t} = \frac{i\Omega_p}{2}\sigma_{21} - \frac{i\Omega_d}{2}\sigma_{32} - \Lambda_{31}\sigma_{31}, \quad (5c)$$

式中

$$\Lambda_{32} = \gamma_{32} - i(\Delta_p - k_p v),$$

$$\Lambda_{21} = \gamma_{21} - i(\Delta_d - k_d v),$$

$$\Lambda_{31} = \gamma_{31} - i(\Delta_p + \Delta_d - k_p v - k_d v).$$

在弱探测光情形下, 可做 $\Omega_d \ll \Omega_p$ 及 $\sigma_{11} \approx 1, \sigma_{22} \approx \sigma_{33} \approx 0$ 近似, 由方程 (5) 的初始条件 $\sigma_{32}(t=0) = \sigma_{31}(t=0) = \sigma_{21}(t=0) = 0$ 及拉普拉斯变换可得

$$\sigma_{21}(v, s) = \frac{i\Omega_p}{2s(s + \Lambda_{21})} + \frac{i(s + \Lambda_{32})\Omega_p^2 \Omega_d}{8s(s + \Lambda_{21}) \left\{ -\frac{1}{4}(s + \Lambda_{32})\Omega_p^2 + (s + \Lambda_{21}) \left[-\frac{1}{4}(s + \Lambda_{31}) \right] (s + \Lambda_{32}) \right\}}. \quad (6)$$

对 (6) 式应用拉普拉斯逆变换有

$$\sigma_{21}(v, t) = B [D_1 \exp(-\Gamma_1 t) + D_2 \exp(-\Gamma_2 t) - 4\Lambda\Lambda_{31}], \quad (7)$$

式中

$$B = -i\Omega_d [2\Lambda(4\Lambda_{21}\Lambda_{31} + \Omega_p^2)],$$

$$D_1 = 2\Lambda\Lambda_{31} - 2\Lambda_{31}(\Lambda_{21} - \Lambda_{31}) - \Omega_p^2,$$

$$D_2 = 2\Lambda\Lambda_{31} + 2\Lambda_{31}(\Lambda_{21} - \Lambda_{31}) + \Omega_p^2,$$

$$\Gamma_1 = (\Lambda + \Lambda_{21} + \Lambda_{31})/2,$$

$$\Gamma_2 = (\Lambda_{21} + \Lambda_{31} - \Lambda)/2,$$

$$\Lambda = \sqrt{(\Lambda_{21} - \Lambda_{31})^2 - \Omega_p^2}.$$

探测光 $E_d(z)$ 遵从麦克斯韦方程

$$\frac{dE_d}{dz} = 2i\pi k_d P_d. \quad (8)$$

这里极化强度 P_d 定义为

$$P_d = N\mu_{21} \int_{-\infty}^{+\infty} dv \sigma_{21} W(v),$$

式中 N 为原子密度, $W(v)$ 为麦克斯韦-玻尔兹曼速率分布函数,

$$W(v) = (u\sqrt{\pi})^{-1} \exp[-(v/u)^2],$$

其中 $u = \sqrt{2k_B T/m}$ 是原子的最可几速率, k_B 为玻尔兹曼常数, m 和 T 分别是原子质量和蒸汽温度.

令

$$\alpha = 4\pi k_d \ln(P_d/E_d),$$

则蒸汽膜的吸收系数 A 可写为^[10]

$$A = \int_0^L \alpha(z) dz = 4\pi N \mu_{21} \left[\int_{-\infty}^0 W(v) dv \int_0^L k_d dz \ln(\sigma_{21}^-/E_d) + \int_0^{\infty} W(v) dv \int_0^L k_d dz \ln(\sigma_{21}^+/E_d) \right], \quad (9)$$

式中 σ_{21}^+ 及 σ_{21}^- 分别表示 v 与 k_d 方向一致 ($v > 0$) 及相反 ($v < 0$) 的原子的密度矩阵元.

联立 (7) (9) 式, 并注意到 $v > 0$ 时 $t = z/v$, $v < 0$ 时 $t = (z - L)/v$ (9) 式对 z 积分可得

$$A = 4\pi N \mu_{21} \left[\int_{-\infty}^0 k_d W(v) dv \ln(BF^-/E_d) + \int_0^{\infty} k_d W(v) dv \ln(BF^+/E_d) \right]. \quad (10)$$

这里,

$$F^- = D_1 u \{ \exp(\Gamma_1 L/v) - 1 \} \Gamma_1 + D_2 u \{ \exp(\Gamma_2 L/v) - 1 \} \Gamma_2 - 4\Lambda_{21} \Lambda_{31} L, \\ F^+ = D_1 u \{ 1 - \exp(-\Gamma_1 L/v) \} \Gamma_1 + D_2 u \{ 1 - \exp(-\Gamma_2 L/v) \} \Gamma_2 - 4\Lambda_{21} \Lambda_{31} L.$$

考虑到 $v < 0$ 时, $v = -|v|$, 因此可将 (10) 式写为

$$A = S_1 + S_2 + S_3, \quad (11)$$

式中

$$S_1 = 4\pi N \mu_{21} \int_{-\infty}^{\infty} k_d W(v) dv \times \ln(-4B\Lambda_{21}\Lambda_{31}L/E_d), \\ S_2 = 4\pi N \mu_{21} \int_{-\infty}^{\infty} k_d W(v) dv \times \text{Im} \left[B \sum_i (D_i |v| / \Gamma_i) E_d \right], \\ S_3 = 4\pi N \mu_{21} \int_{-\infty}^{\infty} k_d W(v) dv \times \text{Im} \left[B \sum_i -D_i |v| / \Gamma_i \times \exp(-\Gamma_i L / |v|) E_d \right] \quad (i = 1, 2).$$

S_1 表示与膜的厚度有关的多普勒增宽的吸收, L 增

大时, 吸收也随之增强. S_2 与膜厚无关, 而与原子和光场相互作用的瞬态机制有关. S_3 则表示与膜厚有关的衰减项, 取决于原子与腔壁碰撞的机制, 是谱线窄化的主要原因.

3. 数值结果

图 2、图 3 分别为抽运光和探测光从膜同侧及异侧入射时对应 $L/\lambda = 0.25, 0.5, 1, 1.25, 1.5, 2.5$ 的吸收谱线, 所选参数为 $\Omega_p = 0.1ku$, $k_d u = 10\gamma_{21}$, $= 100\gamma_{31}$, $k_p \approx k_d$. 与单光子情形相似, 吸收谱线也表现出和膜厚与探测光波长的比值 (L/λ) 相关的周

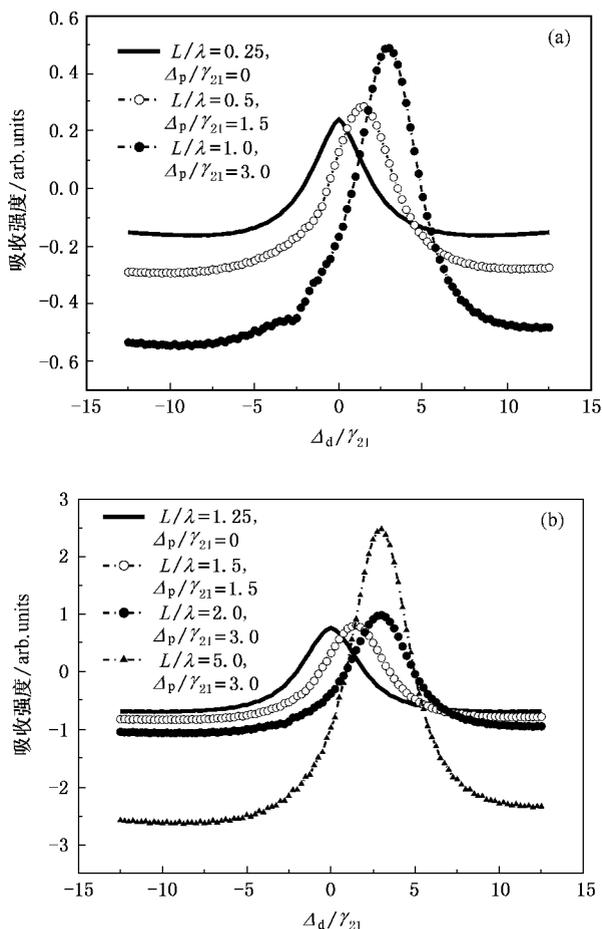


图 2 抽运光和探测光同侧入射时对应不同 L/λ 的谱线 (a) $L/\lambda = 0.25, 0.5, 1$ (b) $L/\lambda = 1.25, 1.5, 2.5$

期性. 这种周期性来自于原子在腔内与激发场的相互作用的瞬态机制及原子与壁的碰撞机制导致的消激发行为. 使原子激发的共振光与腔壁处的电磁场在 $L/\lambda = (2n + 1)/2$ 时相位匹配, 而在 $L/\lambda = 2n/2$ 时相位失配. 弱探测光时, 这种失配出现在线型的中

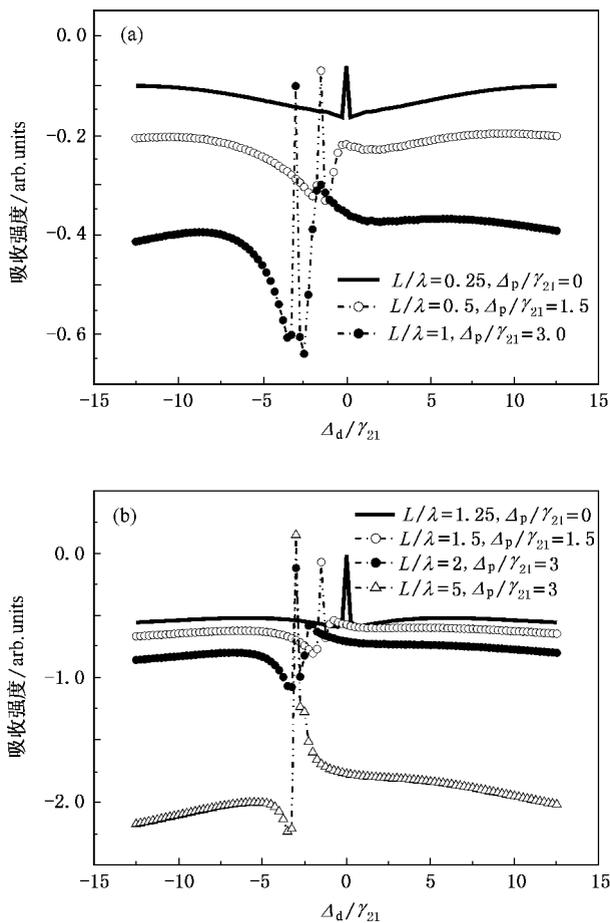


图3 抽运光和探测光异侧入射时对应不同 L/λ 的谱线 (a) $L/\lambda = 0.25, 0.5, 1$ (b) $L/\lambda = 1.25, 1.5, 2, 5$

央而与原子的速率无关,原因是飞行于两腔壁间的原子只能以多普勒频移量 kv 的概率在 L/v 时间内加速.因而当 $L/\lambda = (2n+1)/2$ 时腔内相干场增强,线型中央的幅度增大从而使谱线窄化,而在 $L/\lambda =$

$2n/2$ 时光场相消干涉,则窄化现象减弱或消失.另外,可以将腔中的原子分为两组,其中一组沿法向运动,由于与壁的碰撞致使其速率较小,另一组是沿接近平行于腔壁方向自由飞行的原子.这两组原子对多普勒增宽的贡献都被削弱,相当于慢速原子的贡献增强,因此可以认为谱线窄化的原因还来自于慢速原子的贡献.在异侧入射的情形下,可以获得极窄的谱线结构,因为在这种情形下参与吸收的原子的多普勒频移为零.我们也注意到当膜厚为四分之一波长的奇数倍时,其线型是吸收线型,而当膜厚为半波长的整数倍时,线型不是单纯的吸收线型,而同时具有与膜中不同位置光场分布有关的空间色散的一些特征.

4. 结 论

薄原子蒸汽膜的吸收谱线与很多因素(如膜的厚度、原子和光场相互作用的瞬态机制、原子与腔壁的碰撞机制等)有关.和单光子过程一样,双光子光谱也表现为与 L/λ 相关的周期性.在单光子情形下不能出现的 Dicke 窄化现象可以在分步激发的双光子光谱中出现.我们也注意到双光子光谱在更多情形下表现为亚多普勒结构,特别是当两束光从膜的异侧入射时,由于参与吸收的原子产生的多普勒频移为零,其线宽远小于同侧入射时的谱线宽度.这种高分辨率的光谱对于研究单光子过程不能实现的激发态原子、里德伯态原子的特性及其与腔壁的碰撞机制、电磁诱导透明、慢光效应等现象以及测量原子与介质表面的相互作用势等具有重要意义.

- [1] Romer R H, Dicke R H 1955 *Phys. Rev.* **99** 532
 [2] Hamdi I, Todorov P, Yaroviski A *et al* 2005 *Laser Phys.* **15** 987
 [3] Dutier G, Saliel S, Bloch D *et al* 2003 *J. Opt. Soc. Am. B* **20** 793
 [4] Sarkisyan D, Bloch D, Papoyan A *et al* 2001 *Opt. Commun.* **200** 201
 [5] Sarkisyan D, Varzhapetyan T, Sarkisyan A *et al* 2004 *Phys. Rev.*

A **69** 065802

- [6] Li Y Y, Zhang Y P, Gan C L 2005 *Chin. Opt. Lett.* **3** 672
 [7] Li Y Y, Zhou Y, Zhang G Z 2006 *Chin. Phys.* **15** 985
 [8] Ma W G, Dong L, Yin W B *et al* 2005 *Chin. Phys.* **14** 709
 [9] Zhao Y T, Zhao J M, Huang T *et al* 2004 *Chin. Phys.* **13** 1414
 [10] Petrosyan D, Malakyan Y P 2000 *Phys. Rev. A* **61** 053820



Two-photon spectroscopy and Dicke narrowing of a thin atomic vapor film^{*}

Li Yuan-Yuan¹⁾ Bai Jin-Tao²⁾ Zhang Gui-Zhong³⁾ Zhou Yu³⁾ Zhang Yan-Peng⁴⁾ Gan Chen-Li⁴⁾

1) Department of Physics and Information Technology, Ningxia Normal University, Guyuan 756000, China)

2) Institute of Photonics and Photonic Technology, Key Laboratory of Photoelectronic Technology of Shaanxi Province, Northwest University, Xi'an 710069, China)

3) College of Precision Instrument and Optoelectronics Engineering, Tianjin University, Tianjin 300072, China)

4) Department of Electronic Science and Technology, Xi'an Jiaotong University, Xi'an 710049, China)

(Received 30 March 2006 : revised manuscript received 31 July 2006)

Abstract

One-photon Dicke-narrowing absorption spectroscopy from a thin atomic vapor film can be extended to the two-photon case, in which the sub-Doppler absorption structures are obtained in a cascade three-level system. The periodic line shapes of two-photon spectroscopy are similar to one-photon case. It is found that Dicke-narrowing is apparent when $L/\lambda = (2n + 1)/2$ (n an integer, L the film thickness, and λ the wavelength of the probe field) in the case of one-photon process, and this feature is maintained in the case of two-photon process but not in the one-photon process when $L/\lambda = 2n/2$. Due to the contribution of atom-wall collision in the cell and the pump-probe scheme, a very narrow structure can be obtained when the pump and the probe fields are in counter-propagation regime.

Keywords : thin atomic vapor film, two-photon spectroscopy, Dicke-narrowing

PACC : 0765, 6890