

消多普勒三光子共振六波混频^{*}

左战春¹⁾ 孙 江²⁾ 吴令安¹⁾ 傅盘铭^{1)†}

1) 中国科学院物理研究所光物理实验室, 北京 100080)

2) 河北大学物理系, 保定 071002)

(2005 年 5 月 10 日收到, 2005 年 8 月 18 日收到修改稿)

研究多普勒系统中的位相共轭三光子共振六波混频(SWM), 得到当入射激光为窄带线宽时, SWM 频谱是消多普勒的, 因此可成为一种研究原子或分子高激发态和高角动量态的高分辨相干非线性光谱学. 本方法还具有位相匹配条件不严格, 有良好的空间分辨率, 光路配置简单等优点.

关键词: 六波混频, 多普勒效应

PACC: 4256M, 4250V

1. 引 言

非线性光混频一直是人们研究的热点问题. 由于非线性极化率呈现介质的共振频率, 所以基于混频建立的非线性光谱学能够提供与物质结构相关的动力学信息^[1]. 例如, 相干反斯托克斯散射(CARS)是一种研究分子振动和转动模式的四波混频方法(FWM). 近年来我们组发展了多种共振增强非简并四波混频(NFWM)方法. 例如, 基于介质中极化干涉原理的超快调制光谱学, 可用于测量消多普勒精度的原子能级^[2]. 另外, 我们提出瑞利型 NFWM^[3], 可在频域中测量物质的超快纵向弛豫时间, 如果配合时间延迟技术, 这种方法甚至可应用于吸收介质中^[4].

高阶混频效应已经在很多实验中得到证实. Gibson 等^[5]通过六波混频(SWM)方法得到超紫外红外辐射. Trebino 和 Rahn^[6]在钠中观察到钠原子基态超精细结构的次谐波共振, 这个结果已经在非线性极化率 $\chi^{(n)}$ ($n \geq 5$) 的高阶过程中得到解释. Tominaga 和 Yoshihara^[7]在 CDCl_3 和 CHCl_3 的飞秒 SWM 中直接观察到第一谐波带的振动移相. Steffen 和 Duppen^[8]研究了在 CS_2 和苯的飞秒非简并 SWM 实验中的分子间隙的运动并发现脉冲受激 SWM 可得到相干核运动移相的新信息, 但在 FWM 实验中不

可得到. 最近, Kang 等^[9]报道了相干 Rb 原子中的共振 SWM 实验.

在高分辨率激光光谱学中, 适当配置的消多普勒加宽的共振混频技术能测量出均匀加宽和线形, 以及探索均匀加宽的各种物理机理, 还可以研究那些小于多普勒宽度, 但大于均匀加宽的能级移动和分裂, 例如碰撞效应、兰姆移动、里德堡态的量子亏损、转动分裂的测量、塞曼和斯塔克效应、超精细分裂、同位素移动等等. Dilorenzofilho 等^[10]在 SF_6 中利用四波混频得到了消多普勒线形, 我们小组^[2]分析了多普勒加宽系统中具有位相共轭配置的超快调制光谱学, 可以获得消多普勒的精度. 最近, 我们小组^[11, 12]又指出在双光子共振非简并四波混频(NFWM)中如果入射激光线宽较窄时, 可得到消多普勒光谱.

实现高阶混频效应的困难之一是非线性阶数越高, 实现位相匹配的条件越复杂, 而信号强度也将下降几个数量级. 最近我们在 Na 原子和 Ba 原子中实现了一种新的位相共轭三光子共振 SWM^[13]. 与其他 SWM 方法比较, 位相共轭三光子共振 SWM 的位相匹配条件并不严格, 在很大的扫频范围内都可实现(几百至几千 cm^{-1}), 而且还具有可自由选择相互作用区, 信号有良好的空间分辨率, 光路配置简单易于操作等优点. 本文将进一步讨论多普勒效应的影响,

^{*} 国家自然科学基金(批准号 10374113 和 60178013)资助的课题.

[†] E-mail: pmfu@aphy.iphy.ac.cn

将证实位相共轭三光子共振 SWM 可以得到消多普勒光谱, 这不失为一种研究原子或分子高激发态和高角动量态的有效光谱学工具.

2. 基本理论

三光子共振 SWM 是一个五阶非线性过程, 其中包括 4 束入射激光. 激光束 3 和 3' 有相同的频率 ω_3 , 在它们之间有一个很小的夹角 θ_1 . 束 1 的频率为 ω_1 , 沿与光束 3 几乎相反的方向传播, 光束 2 以 ω_2 的频率沿束 3 方向入射到样品上(图 1(a)).

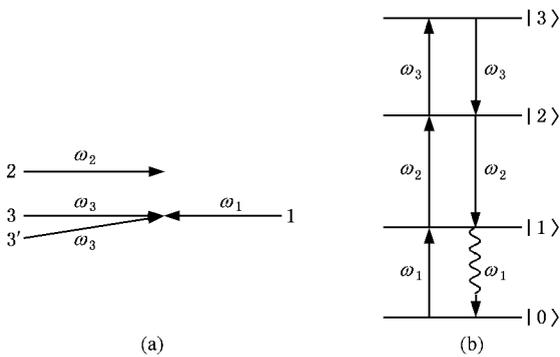


图 1 三光子共振 SWM 原理图

我们考虑一个级联四能级系统. 如图 1(b)所示, 态 $|0\rangle$ 和 $|1\rangle$, 态 $|1\rangle$ 和 $|2\rangle$, 态 $|2\rangle$ 和 $|3\rangle$ 之间分别以偶极跃迁频率 $\Omega_1, \Omega_2, \Omega_3$ 和偶极跃迁矩阵元 μ_1, μ_2, μ_3 耦合. 当 $\omega_1 \approx \Omega_1, \omega_2 \approx \Omega_2, \omega_3 \approx \Omega_3$ 时, 光束 1 2 3 分别引起 $|0\rangle \rightarrow |1\rangle, |1\rangle \rightarrow |2\rangle, |2\rangle \rightarrow |3\rangle$ 的跃迁. 原子与光束 1 2 3 同时作用将驱动三光子共振跃迁, 从而感生 $|0\rangle$ 和 $|3\rangle$ 态之间的原子相干. 这种三光子相干由光束 3' 和束 2 探测, 产生频率为 ω_1 , 几乎沿光束 3' 相反方向传播的 SWM 信号. 令 $\Delta_1 = \Omega_1 - \omega_1, \Delta_2 = \Omega_2 - \omega_2, \Delta_3 = \Omega_3 - \omega_3$ 分别表示原子的偶极跃迁频率与入射光频率的失谐量, 有效哈密顿量经正则变换后为

$$H = \hbar\Delta_1|1\rangle\langle 1| + \hbar(\Delta_1 + \Delta_2)|2\rangle\langle 2| + \hbar(\Delta_1 + \Delta_2 + \Delta_3)|3\rangle\langle 3| - (\mu_1 E_1|1\rangle\langle 0| + \mu_2 E_2|2\rangle\langle 1| + \mu_3 E_3|3\rangle\langle 2| + \text{H.c.}), \quad (1)$$

式中

$$E_1(\mathbf{r}, t) = A_1(\mathbf{r}, t)e^{-i\omega_1 t},$$

$$E_2(\mathbf{r}, t) = A_2(\mathbf{r}, t)e^{-i\omega_2 t},$$

$$E_3(\mathbf{r}, t) = A_3(\mathbf{r}, t)e^{-i\omega_3 t} + A'_3(\mathbf{r}, t)e^{-i\omega_3 t}$$

为频率分别为 $\omega_1, \omega_2, \omega_3$ 的激光束的场强, 其中 A_1

$(\mathbf{r}, t) = \epsilon_1 e^{i\mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{r}}, A_2(\mathbf{r}, t) = \epsilon_2 e^{i\mathbf{k}_2 \cdot \mathbf{r}}, A_3(\mathbf{r}, t) = \epsilon_3 e^{i\mathbf{k}_3 \cdot \mathbf{r}}, A'_3(\mathbf{r}, t) = \epsilon'_3 e^{i\mathbf{k}'_3 \cdot \mathbf{r}}$; $\mathbf{k}_1, \mathbf{k}_2, \mathbf{k}_3, \mathbf{k}'_3$ 和 $\epsilon_1, \epsilon_2, \epsilon_3, \epsilon'_3$ 分别为光束 1 2 3 3' 的波矢和振幅.

三光子共振 SWM 的非线性极化正比于密度矩阵的非对角矩阵元 ρ_{10} , 为求得 ρ_{10} , 需要求解密度矩阵方程

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

根据如下的微扰链:

$$\begin{aligned} \rho_{00}^{(0)} &\rightarrow \rho_{10}^{(1)} \rightarrow \rho_{20}^{(2)} \rightarrow \\ \rho_{30}^{(3)} &\rightarrow \rho_{20}^{(4)} \rightarrow \rho_{10}^{(5)} \end{aligned} \quad (3)$$

设原子系统最初处于基态 $|0\rangle$, 有 $\rho_{00}^{(0)} = 1$, 得到

$$\begin{aligned} \rho_{10}^{(5)} &= \left(\frac{i\mu_1}{\hbar}\right) \left(\frac{i\mu_2}{\hbar}\right)^2 \left(\frac{i\mu_3}{\hbar}\right)^2 e^{-i\omega_1 t} \\ &\times \int_0^\infty dt_5 \int_0^\infty dt_4 \int_0^\infty dt_3 \int_0^\infty dt_2 \int_0^\infty dt_1 \\ &\times A_1(\mathbf{r}, t - t_1 - t_2 - t_3 - t_4 - t_5) \\ &\times A_2(\mathbf{r}, t - t_2 - t_3 - t_4 - t_5) \\ &\times A_3(\mathbf{r}, t - t_3 - t_4 - t_5) [A'_3(\mathbf{r}, t - t_4 - t_5)]^* \\ &\times A_2(\mathbf{r}, t - t_5)^* e^{-i(\Delta_1 + \Gamma_{10})t_1 + i\omega_1 t_5} \\ &\times e^{-i(\Delta_1 + \Delta_2 + \Gamma_{20})t_2 + i\omega_2 t_4} e^{-i(\Delta_1 + \Delta_2 + \Delta_3 + \Gamma_{30})t_3}, \end{aligned} \quad (4)$$

其中 Γ_{n0} 为能级 $|n\rangle$ 和 $|0\rangle$ 之间的横向弛豫速率, $\Gamma_{n0} = \frac{1}{2}\gamma_n + \gamma_{n0}^{\text{col}}$, γ_n 和 γ_{n0}^{col} 分别为原子自发辐射项和碰撞展宽项. 因为在气体系统中, $\mathbf{r}(t') = \mathbf{r}(t) - (t - t')\mathbf{v}$, 所以式中

$$\begin{aligned} &A_1(\mathbf{r}, t - t_1 - t_2 - t_3 - t_4 - t_5) \\ &\times A_2(\mathbf{r}, t - t_2 - t_3 - t_4 - t_5) \\ &\times A_3(\mathbf{r}, t - t_3 - t_4 - t_5) [A'_3(\mathbf{r}, t - t_4 - t_5)]^* \\ &\times [A_2(\mathbf{r}, t - t_5)]^* \\ &= \epsilon_1 \epsilon_2^2 \epsilon_3 (\epsilon'_3)^* e^{i(\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_3 - \mathbf{k}'_3) \cdot \mathbf{r}} \\ &\times e^{-i\mathbf{v} \cdot (\mathbf{k}_1 t_1 + (\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2) t_2 + (\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 + \mathbf{k}_3) t_3 + (\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 + \mathbf{k}_3 - \mathbf{k}'_3) t_4 + (\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_3 - \mathbf{k}'_3) t_5}]. \end{aligned} \quad (5)$$

考虑到多普勒效应, 相应于三光子共振 SWM 信号的非线性极化强度 P_T 可通过对速度分布函数 $W(\mathbf{v})$ 求积分给出, 即

$$P_T = N\mu_1 \int_{-\infty}^{\infty} d\mathbf{v} W(\mathbf{v}) \rho_{10}^{(5)}(\mathbf{v}), \quad (6)$$

这里 N 是原子密度, 对多普勒增宽系统, 我们有

$$W(\mathbf{v}) = \frac{1}{\sqrt{\pi}u} \exp[-(\mathbf{v}/u)^2], \quad (7)$$

这里 $u = \sqrt{2kT/m}$, m 为原子质量, k 为玻尔兹曼常

数, T 为绝对温度. 在本文实验中, 光束 3 和光束 3' 间的交叉角很小 (1° 左右), 光束 1 沿着光束 3 的反方向传播, 光束 2 与光束 3 同向, 因此 $\mathbf{k}^1 = -k_1 \mathbf{z}$, $\mathbf{k}_2 = k_2 \mathbf{z}$, $\mathbf{k}_3 = k_3 \mathbf{z}$, $\mathbf{k}'_3 \approx k_3 \mathbf{z}$. 我们定义耦合系数 $G_1 = \mu_1 \epsilon_1 / \hbar$, $G_2 = \mu_2 \epsilon_2 / \hbar$, $G_3 = \mu_3 \epsilon_3 / \hbar$, $G'_3 = \mu_3 \epsilon'_3 / \hbar$ 和 $\xi_2 = k_2 / k_1$, $\xi_3 = k_3 / k_1$, 可得到极化强度的结果

$$P_T = \frac{1}{\sqrt{\pi}u} \mathcal{S}(\mathbf{r}) e^{-i\omega_1 t} \int_{-\infty}^{+\infty} d\nu e^{-\left(\frac{\nu}{u}\right)^2}$$

$$\begin{aligned} & \times \int_0^\infty dt_5 \int_0^\infty dt_4 \int_0^\infty dt_3 \int_0^\infty dt_2 \int_0^\infty dt_1 \\ & \times e^{-i(\Delta_1 - k_1 \nu) \nu + \Gamma_{10} \nu} e^{-i(\Delta_1 + \Delta_2 - k_1(1 - \xi_2) \nu) \nu + \Gamma_{20} \nu} \\ & \times e^{-i(\Delta_1 + \Delta_2 + \Delta_3) - k_1(1 - \xi_2 - \xi_3) \nu + \Gamma_{30} \nu} \\ & \times e^{-i(\Delta_1 + \Delta_2 - k_1(1 - \xi_2) \nu) \nu + \Gamma_{20} \nu} \\ & \times e^{-i(\Delta_1 - k_1 \nu) \nu + \Gamma_{10} \nu} \end{aligned} \quad (8)$$

这里, $\mathcal{S}(\mathbf{r}) = i\mu_1 N G_1 |G_2|^2 G_3 (G'_3)^* \exp[i(\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_3 - \mathbf{k}'_3) \cdot \mathbf{r}]$. 先对时间积分, 最终计算得到稳态解为

$$\begin{aligned} P_T \cong & \frac{1}{\sqrt{\pi}u} \mathcal{S}(\mathbf{r}) e^{-i\omega_1 t} \int_{-\infty}^{+\infty} d\nu \frac{e^{-\left(\frac{\nu}{u}\right)^2}}{[\mathcal{I}(\Delta_1 - k_1 \nu) + \Gamma_{10}] \{\mathcal{I}[\Delta_1 + \Delta_2 - k_1(1 - \xi_2) \nu] + \Gamma_{20}\}^2} \\ & \times \frac{1}{\{\mathcal{I}[\Delta_1 + \Delta_2 + \Delta_3] - k_1(1 - \xi_2 - \xi_3) \nu] + \Gamma_{30}\}^2} \end{aligned} \quad (9)$$

SWM 信号的强度 $I \propto |P_T|^2$. 由上式可见, SWM 信号沿着 $\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_3 - \mathbf{k}'_3$ 的方向传播, 与束 2 的方向无关.

在极端多普勒条件下 (即 $k_1 u \gg 1$) (8) 式对速度的积分可以写成

$$\begin{aligned} & \frac{1}{\sqrt{\pi}u} \int_{-\infty}^{+\infty} d\nu e^{-\left(\frac{\nu}{u}\right)^2} e^{ik_1[\nu t_1 + t_5 - (\xi_2 - 1)\nu t_2 + t_4] - (\xi_2 + \xi_3 - 1)\nu t_3} \\ & = \frac{2\sqrt{\pi}}{k_1 u} \delta[\nu t_1 + t_5 - (\xi_2 - 1)\nu t_2 + t_4 - (\xi_2 + \xi_3 - 1)\nu t_3] \end{aligned} \quad (10)$$

通过一系列计算得出

$$\begin{aligned} P_T = & \frac{2\sqrt{\pi}(\xi_2 + \xi_3 - 1)}{k_1 u} \mathcal{S}(\mathbf{r}) e^{-i\omega_1 t} \frac{1}{\{\mathcal{I}[\Gamma_{10}(\xi_2 + \xi_3 - 1) + \Gamma_{30}] + \mathcal{I}[\Delta_1(\xi_2 + \xi_3) + \Delta_2 + \Delta_3]\}^2} \\ & \times \frac{1}{\{\mathcal{I}[\Gamma_{20}(\xi_2 + \xi_3 - 1) - \Gamma_{30}(\xi_2 - 1)] + \mathcal{I}[(\Delta_1 + \Delta_2)\xi_3 - \Delta_3(\xi_2 - 1)]\}^2} \end{aligned} \quad (11)$$

所以在极端多普勒条件下的信号强度为

$$\begin{aligned} I \propto & \frac{1}{\{\mathcal{I}[\Gamma_{10}(\xi_2 + \xi_3 - 1) + \Gamma_{30}] + \mathcal{I}[\Delta_1(\xi_2 + \xi_3) + \Delta_2 + \Delta_3]\}^2} \\ & \times \frac{1}{\{\mathcal{I}[\Gamma_{20}(\xi_2 + \xi_3 - 1) - \Gamma_{30}(\xi_2 - 1)] + \mathcal{I}[(\Delta_1 + \Delta_2)\xi_3 - \Delta_3(\xi_2 - 1)]\}^2} \end{aligned} \quad (12)$$

3. 数值计算

SWM 存在三光子共振跃迁, 因此可以作为一种相干光谱学手段来研究原子或分子的高激发态. 为了得到原子的光谱信息, 图 2 给出当 ω_1, ω_2 固定时, 三光子共振 SWM 信号和失谐量 $\Delta_3/k_1 u$ 之间的依赖关系. 这里所取的参数为 $\frac{\Gamma_{10}}{k_1 u} = \frac{\Gamma_{20}}{k_1 u} = \frac{\Gamma_{30}}{k_1 u} = 0.02$, $\xi_2 = \xi_3 = 1.2$. 首先考虑 ω_1 在多普勒线宽范围内调谐的情况, 即 $|\Delta_1| \leq k_1 u$. 图 2(a) $\Delta_1/k_1 u = \Delta_2/k_1 u = 0$ (b) $\Delta_1/k_1 u = -1, \Delta_2/k_1 u = 1.2$. 其中, 实线为考虑多普勒增宽效应的情况, 而虚线为未考虑多

普勒效应的情况. 可以看出在这种情况下 SWM 谱为消多普勒的, 这是因为只有沿 z 轴具有速度 $\nu \approx \Delta_1/k_1$ 的原子能与光束 1 共振, 这群原子进一步与光束 2, 3 相互作用并对 SWM 信号有贡献. 由 (9) 式, 双光子共振和三光子共振的条件分别为 $\Delta_2 = -\Delta_1 + k_1(1 - \xi_2)\nu$ 和 $\Delta_3 = -(\Delta_1 + \Delta_2) + k_1(1 - \xi_2 - \xi_3)\nu$. 因此, 当 $\Delta_1/k_1 u = \Delta_2/k_1 u = 0$ 时 (图 2(a)), SWM 的共振峰出现在 $\Delta_3/k_1 u = 0$. 而当 $\Delta_1/k_1 u = -1$ 时 (图 2(b)), 双光子共振的条件为 $\Delta_2/k_1 u = 1.2$, 而 SWM 的共振峰则出现在 $\Delta_3/k_1 u = 1.2$ 即 $\Delta_3/\Gamma_{30} = 60$ 的位置. 由于 SWM 谱为消多普勒的, 因此 SWM 是研究原子高激发态光谱的有效手段.

其次, 考虑 ω_1 在多普勒线宽范围外调谐, 即

$|\Delta_1| \gg k_1 u$ 的情况. 图 2(c) 为 $\Delta_1/k_1 u = -10, \Delta_2/k_1 u = 10$ 的 SWM 频谱. 与 $|\Delta_1| \leq k_1 u$ 不同的是此时所有原子都对 SWM 有贡献, 因此消多普勒现象消失, 频谱呈现多普勒增宽. 一个有趣的现象是当 ω_1 调谐在单光子 $|0 \rightarrow |1$ 跃迁多普勒增宽边缘上时, 上述两种不同机理可以同时存在. 图 2(d) 为 $\Delta_1/k_1 u = -2.8, \Delta_2/k_1 u = 2.8$ 的 SWM 频谱. 可以看到除了在 $\Delta_3 = -\xi_3 \Delta_1$ 有一窄的消多普勒线外, 还存在一个很宽的多普勒增宽线. 这里, 由于频率牵引^[14], 多普勒展宽线并没有精确出现在 $\Delta_3 = -(\Delta_1 + \Delta_2)$ 位置. 另外, 我们还发现两条谱线存在明显的干涉, 这

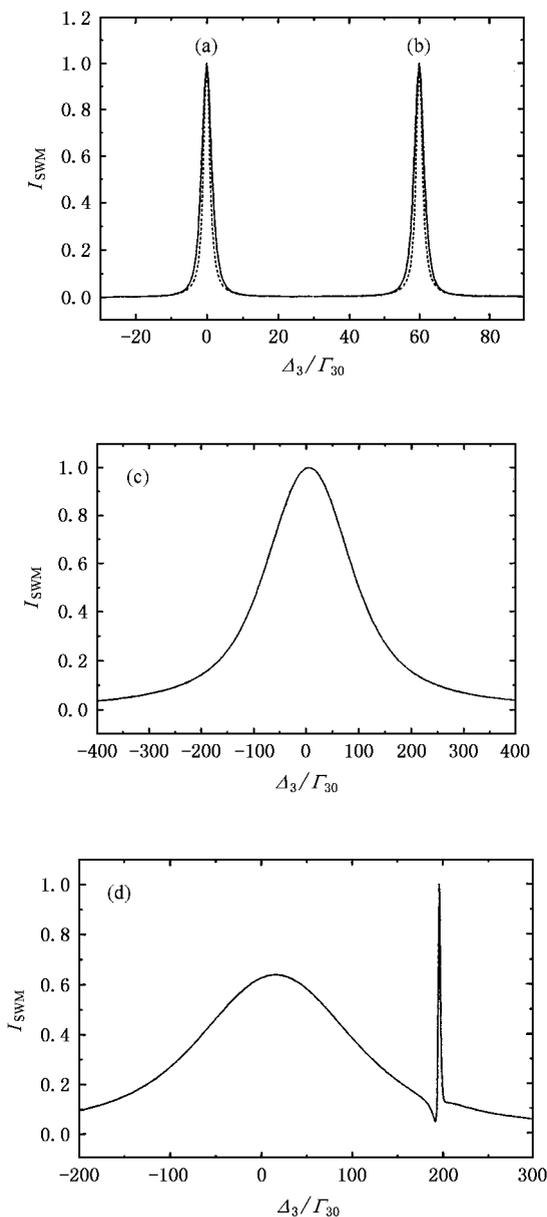


图 2 SWM 信号强度 I_{SWM} 随频率失谐量 Δ_3/Γ_{30} 的变化

是来源于两种机理感生的非线性极化之间的干涉.

如前所述, SWM 存在多重共振, 它反映在固定 ω_1 和 ω_3 扫描 ω_2 的频谱上. 图 3 给出 SWM 信号强度随 Δ_2/Γ_{20} 的变化. 所取的参数为 $\xi_2 = \xi_3 = 0.9, \Gamma_{10}/k_1 u = \Gamma_{20}/k_1 u = \Gamma_{30}/k_1 u = 0.2, \Delta_1/k_1 u = 0, \Delta_3/\Gamma_{30} = 0$ (实线), ξ (虚线), 10 (点线) 和 15 (点虚线). 可以看到当 Δ_3 存在失谐时, SWM 频谱出现双峰, 其中 $\Delta_2 \approx 0$ 的峰对应于双光子共振 (图 4(a)), 而出现在 $\Delta_2 \approx -\Delta_3$ 的峰则对应于三光子共振 (图 4(b)). 当 $\Delta_3/\Gamma_{30} = 0$ 时, 来源于双光子共振和三光子共振的峰重合, 因此 SWM 频谱呈现单峰. 另外, 由于频率牵引^[13], 双光子共振和三光子共振的峰并不精确出现在 $\Delta_2 = 0$ 和 $\Delta_2 = -\Delta_3$ 的位置上. 这种现象当两个峰靠近时表现得更明显.

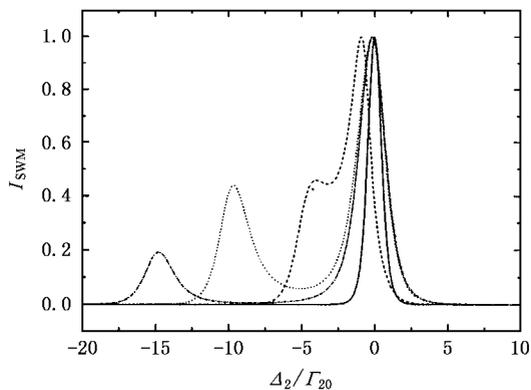


图 3 SWM 信号强度 I_{SWM} 随频率失谐量 Δ_2/Γ_{20} 变化的谱 ($\Delta_3/\Gamma_{30} = 0$ (实线), ξ (虚线), 10 (点线) 和 15 (点虚线))

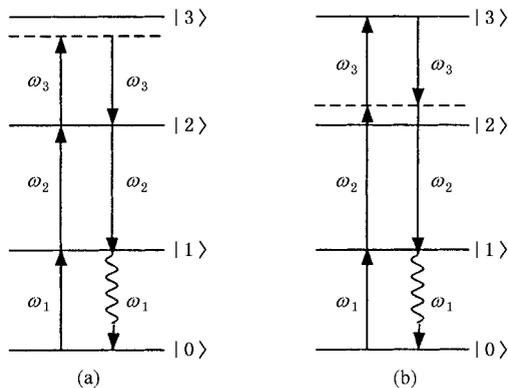


图 4 SWM 的 (a) 双光子共振条件和 (b) 三光子共振条件

4. 结 论

目前,研究原子或分子高激发态主要采用多光子电离或激光感生荧光等方法.本文提出一种新的高阶相干光谱学方法,即三光子共振 SWM.此技术是消多普勒的,因此可以测量原子的横向弛豫速率,以及能级的精细或超精细结构.虽然本文研究的为级联型四能级系统,但可应用于其他多能级系统如

折叠四能级系统,因而 SWM 是一种研究高激发原子态或高阶动量原子态的精确有效手段.与其他高阶混频效应比较,三光子共振 SWM 的位相匹配条件为 $k_s = k_1 + k_3 - k'_3$,只依赖于 k_1, k_3, k'_3 ,而且并不很严格,有很长的相干长度,因而很容易产生信号.另外,由于涉及到原子跃迁频率的多光子共振,所以产生 SWM 信号的效率是很高的,加上信号为相干光,方向性好,因此测量灵敏度高.

- [1] Shen Y R 1984 *The Principles of Nonlinear Optics* (New York : John Wiley & Sons)
- [2] Fu P , Wang Y , Jiang Q , Mi X , Yu Z 2001 *J. Opt. Soc. Am. B* **18** 370
- [3] Fu P , Jiang Q , Mi X , Yu Z 2002 *Phys. Rev. Lett.* **88** 113902
- [4] Sun J , Jiang Q , Yu Z , Mi X , Fu P 2003 *Opt. Commun.* **223** 187
- [5] Gibson G , Luk T S , McPherson A , Rhodes C K 1991 *Phys. Rev. A* **43** 371
- [6] Trebino R , Rahn L A 1987 *Opt. Lett.* **12** 912
- [7] Tominaga K , Yoshihara K 1996 *Phys. Rev. Lett.* **76** 987
- [8] Steffen T , Duppen K 1996 *Phys. Rev. Lett.* **76** 1224
- [9] Kang H , Hernandez G , Zhu Y 2004 *Phys. Rev. Lett.* **93** 073601
- [10] Dilonzofilho O , Deoliveira P C , Leite Jrr 1991 *Opt. Lett.* **16** 657
- [11] Sun J , Zuo Z , Mi X , Yu Z , Jiang Q , Wang Y , Wu L , Fu P 2004 *Phys. Rev. A* **70** 053820
- [12] Sun J *et al* 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 149 (in Chinese) [孙 江 等 2005 *物理学报* **54** 149]
- [13] Zuo Z , Sun J , Mi X , Yu Z , Jiang Q , Wu L , Fu P 2005 *Chinese Phys. Lett.* **22** 1664
- [14] Bjorkholm J E , Liao P E 1976 *Phys. Rev. A* **14** 751

Doppler-free three-photon resonant six-wave mixing^{*}

Zuo Zhan-Chun¹⁾ Sun Jiang²⁾ Wu Ling-An¹⁾ Fu Pan-Ming^{1)†}

1) (*Laboratory of Optical Physics , Institute of Physics , Chinese Academy of Sciences , Beijing 100080 , China*)

2) (*Department of Physics , Hebei University , Baoding 071002 , China*)

(Received 10 May 2005 ; revised manuscript received 18 August 2005)

Abstract

We study the three-photon resonant six-wave mixing (SWM) with phase-conjugation geometry in Doppler system. The theoretical calculation indicates that the signal spectrum is Doppler-free when the laser line width is narrow. This technique provides a new spectroscopic tool for studying the highly excited atomic or molecular states with high resolution. It has advantages of uncritical phase matching condition , excellent spatial signal resolution and simple optical alignment.

Keywords : six-wave mixing , Doppler effect

PACC : 4256M , 4250V

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 10374113 , 60178013).

[†] E-mail : pmfu@aphy. iphy. ac. cn