

# 双光子共振非简并四波混频测量 Ba 原子里德伯态的碰撞展宽和频移\*

孙江<sup>1)†</sup> 孙娟<sup>2)</sup> 王颖<sup>1)</sup> 苏红新<sup>1)</sup>

1) (河北大学物理科学与技术学院, 保定 071002)

2) (河北大学数学与计算机学院, 保定 071002)

(2011 年 11 月 3 日收到; 2011 年 12 月 18 日收到修改稿)

采用双光子共振非简并四波混频测量了 Ar 缓冲气压引起的 Ba 原子里德伯  $6snd\ ^1D_2$  谱线系的碰撞展宽和频移, 计算了  $n = 16-33$  的碰撞展宽截面和频移截面. 本方法是一种纯光学的测量技术, 当采用窄带激光器时可以获得里德伯态的消多普勒光谱. 与传统实验方法测量到的里德伯态纵向弛豫的碰撞展宽不同, 本方法可以研究碰撞引起的两能态间横向弛豫的展宽.

**关键词:** 四波混频, 碰撞展宽, 里德伯态

**PACS:** 42.65.Hw, 32.80.Rm, 32.70.Jz

## 1 引言

至今为止, 人们对缓冲气体引起的原子谱线的展宽和频移进行了大量的研究, 研究成果在天文学、等离子体学、原子物理学和气体电子学等领域得到了广泛的应用<sup>[1-4]</sup>. 处于里德伯态的电子和原子实的间距大, 可以简化碰撞理论, 因此对于碱金属和碱土金属里德伯态光谱的展宽和频移的研究尤为重要<sup>[5-8]</sup>. 近十几年来, 激光冷却和俘获研究的飞速发展, 使里德伯气体的谱线展宽研究再次成为热点. 里德伯原子具有大偶极矩阵元和长寿命, 可以产生较长时间的原子相干, 因此对于量子信息过程的研究具有重要意义<sup>[9]</sup>. 由于里德伯态的长寿命, 通过测量里德伯态发出的荧光来直接研究里德伯态难于实现. 现代实验技术利用激光激发来产生特定的里德伯态, 之后采用电场电离、光电离或碰撞电离的方法使里德伯原子电离, 通过探测电子或离子信号来研究里德伯态.

在高分辨率激光光谱学中, 多波混频是一种用

途很广的光谱学技术. 由于非线性极化率反映了介质的共振频率, 各种基于多波混频的非线性光谱学能够揭示物质结构相关的丰富的动力学信息<sup>[10]</sup>. 近年来, 我们发展了多种不同类型的多波混频技术, 将其应用于物质结构的研究. 例如, 我们提出的瑞利型非简并四波混频 (NFWM)<sup>[11,12]</sup> 可以在频率领域测量物质的超快纵向弛豫时间, 这种技术中物质超快过程的时间分辨率不再受激光脉冲宽度的限制, 我们采用脉冲宽度为 5 ns 的激光束测量到了 CS<sub>2</sub> 液体中 17 ps 和 220 fs 的弛豫过程; 研究了缀饰原子系统中的双光子共振 NFWM, 发现通过加入耦合光在系统中引入了量子干涉, 它可以成为一种全新的消多普勒高分辨 Aulter-Townes 光谱学, 以测量两个高激发态间的跃迁偶极矩阵元<sup>[13]</sup>; 提出了一种相位共轭的高分辨共振多波混频的新光谱学方法<sup>[14]</sup>, 此方法可以研究任意阶数的混频效应, 从而具有更大的普遍性.

在多波混频技术中, 共振增强的 NFWM 具有空间信号分辨率优秀、光路简单和相互作用体积可自由选择的优点, 并且相位匹配条件可以在很宽

\* 国家自然科学基金青年科学基金 (批准号: 10804025)、河北省自然科学基金 (批准号: A2009000147) 和河北省自然科学基金基地专项 (批准号: 08B006, 08B008) 资助的课题.

† E-mail: hdsunjiang@163.com

的频率范围 ( $10^2$ — $10^3$  波数) 内实现. 因此, 共振增强的 NFWM 光谱学技术明显优于其他的四波混频光谱学. 不久前, 我们将双光子共振 NFWM 应用于原子高激发态的研究, 测量了 Ba 原子的里德伯谱线系的 NFWM 光谱 [15]. 本文将具有共振中间态的双光子共振 NFWM 应用原子里德伯态的弹性碰撞展宽和频移的研究, 测量了 Ba 原子的  $6snd\ ^1D_2$  ( $n = 16$ — $33$ ) 谱线系的碰撞展宽截面和频移截面. 本文采用的双光子共振 NFWM 方法是一种纯光学的方法, 该方法光路简单, 检测的信号是相干光, 而不是离子或电子信号. 尤为重要的是, 不同于现代实验技术所测量的里德伯态的纵向弛豫展宽, 本技术可以研究里德伯态和基态间的横向弛豫的碰撞展宽.

## 2 实验

双光子共振 NFWM 的光路如图 1(a) 所示, 光束 1 和光束 2 分别以频率  $\omega_1$  和  $\omega_2$  反向入射到样品上, 光束 2' 以频率  $\omega_2$  沿与光束 2 成很小夹角  $\theta$  的方向入射. 在如图 1(b) 所示的级联三能级系统中, 基态  $|0\rangle$  和中间态  $|1\rangle$  之间, 中间态  $|1\rangle$  和激发态  $|2\rangle$  之间的共振频率和偶极跃迁矩阵元分别为  $\Omega_1, \Omega_2$  和  $\mu_1, \mu_2$ .  $|0\rangle$  态和  $|2\rangle$  态间的跃迁为偶极禁戒. 当入射光束满足条件  $\omega_1 \approx \Omega_1, \omega_2 \approx \Omega_2$  时, 光束 1 和光束 2 分别引起  $|0\rangle \rightarrow |1\rangle$  和  $|1\rangle \rightarrow |2\rangle$  的跃迁. 通过这个双光子跃迁, 光束 1 和光束 2 感生出  $|0\rangle$  和  $|2\rangle$  态间的相干. 在双光子共振 NFWM 中, 光束 2' 对这个双光子相干进行探测, 最终产生了沿着与光束 2' 几乎相反方向传播的频率为  $\omega_1$  的 NFWM 信号光.

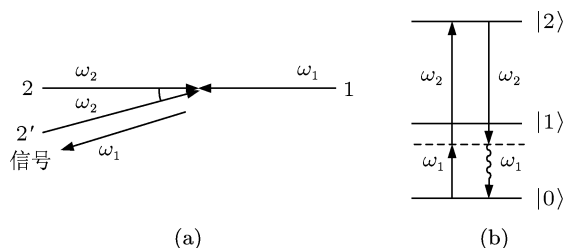


图 1 双光子共振 NFWM 原理图 (a) 光路图; (b) 能级结构图

在具体实验中, 选取 Ba 原子的基态  $6s^2\ ^1S_0$  作为  $|0\rangle$  态, 第一激发态  $6s6p\ ^1P_1$  作为中间态  $|1\rangle$ , 里德伯态  $6snd\ ^1D_2$  作为态  $|2\rangle$ , 组成级联三能级系统. 在一定压强的 Ar 气作为缓冲气体的条件下, 将金

属 Ba 放入样品炉中加热到 933.15 K, 使其产生蒸气. 使用 Quanta-Ray ND-YAG 激光器的二次谐波和三次谐波来抽运两台染料激光器, 分别产生频率为  $\omega_1$  的光束 1 和频率为  $\omega_2$  的光束 2, 2'. 把光束 1 的输出波长调谐到  $6s^2\ ^1S_0$ — $6s6p\ ^1P_1$  的跃迁对应的波长 553.5 nm 附近. 为了避免在  $6s^2\ ^1S_0$ — $6s6p\ ^1P_1$  的共振跃迁波长处的强吸收, 光束 1 的波长从精确共振位置偏调了 0.028 nm. 光束 2 和光束 2' 为同一台染料激光器产生的光束经过半透半反镜后分成的两束激光, 输出波长可以在 418—435 nm 间连续调谐, 驱动中间态  $6s6p\ ^1P_1$  到里德伯态  $6snd\ ^1D_2$  ( $n = 16$ — $33$ ) 的跃迁. 所有的入射光束都是垂直偏振的线偏振光, 线宽为 0.007 nm, 脉冲宽度 5 ns. 光束 2 和 2' 以  $\theta \approx 0.5^\circ$  的夹角在热管炉的中部交叉, 和光束 1 一起会聚成直径大约为 2.0 mm 的一点. 三束入射光与 Ba 原子相互作用, 产生了频率为  $\omega_1$ , 沿着与光束 2' 几乎相反方向传播的垂直线偏振光. 这个 NFWM 信号被光电二极管探测后, 引入信号平均器 boxcar 进行数据平均. 用计算机控制步进马达以改变染料激光器的输出波长并进行数据处理.

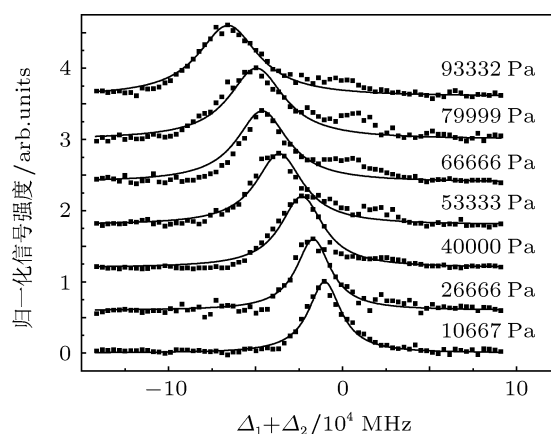


图 2 不同 Ar 缓冲气压下的 Ba 原子  $6s16d\ ^1D_2$  态的 NFWM 谱线

属 Ba 放入样品炉中加热到 933.15 K, 使其产生蒸气. 使用 Quanta-Ray ND-YAG 激光器的二次谐波和三次谐波来抽运两台染料激光器, 分别产生频率为  $\omega_1$  的光束 1 和频率为  $\omega_2$  的光束 2, 2'. 把光束 1 的输出波长调谐到  $6s^2\ ^1S_0$ — $6s6p\ ^1P_1$  的跃迁对应的波长 553.5 nm 附近. 为了避免在  $6s^2\ ^1S_0$ — $6s6p\ ^1P_1$  的共振跃迁波长处的强吸收, 光束 1 的波长从精确共振位置偏调了 0.028 nm. 光束 2 和光束 2' 为同一台染料激光器产生的光束经过半透半反镜后分成的两束激光, 输出波长可以在 418—435 nm 间连续调谐, 驱动中间态  $6s6p\ ^1P_1$  到里德伯态  $6snd\ ^1D_2$  ( $n = 16$ — $33$ ) 的跃迁. 所有的入射光束都是垂直偏振的线偏振光, 线宽为 0.007 nm, 脉冲宽度 5 ns. 光束 2 和 2' 以  $\theta \approx 0.5^\circ$  的夹角在热管炉的中部交叉, 和光束 1 一起会聚成直径大约为 2.0 mm 的一点. 三束入射光与 Ba 原子相互作用, 产生了频率为  $\omega_1$ , 沿着与光束 2' 几乎相反方向传播的垂直线偏振光. 这个 NFWM 信号被光电二极管探测后, 引入信号平均器 boxcar 进行数据平均. 用计算机控制步进马达以改变染料激光器的输出波长并进行数据处理.

图 2 为不同 Ar 缓冲气压下的  $6s16d\ ^1D_2$  态的 NFWM 光谱. 可以发现, 随着缓冲气压的增加, NFWM 谱线出现了展宽, 并且共振频率发生了红移. 在高缓冲气压条件下, 谱线的线形由碰撞展宽决定, 因此可以忽略多普勒效应. 这时双光子共振 NFWM 的信号强度为  $I(\Delta_2) \propto \frac{1}{[\Delta_1 + \Delta_2]^2 + \Gamma_{20}'^2}$ , 式中  $\Delta_1 = \Omega_1 - \omega_1, \Delta_2 = \Omega_2 - \omega_2$  表示原子的偶极跃迁频率和入射光频率间的失谐量.  $\Gamma_{20}' = \Gamma_{20} + (\delta\omega_1 + \delta\omega_2)/2$  是 NFWM 谱

线的半高半宽 (HWHM), 其中的  $\delta\omega_1$  和  $\delta\omega_2$  是激光束 1 和 2 的线宽,  $\Gamma_{20}$  是态  $|2\rangle$  和态  $|0\rangle$  间的横向弛豫速率, 可表达为  $\Gamma_{20} = \frac{1}{2}\gamma_2 + \gamma_{20}^{\text{col}}$ , 这里  $\gamma_2$  和  $\gamma_{20}^{\text{col}}$  分别是能级 2 的自发辐射弛豫速率和态  $|2\rangle$ — $|0\rangle$  间碰撞引起的弛豫速率. 图 2 中还可以看到, 随着 Ar 缓冲气压的增加, NFWM 信号峰的右侧开始隆起形成一个卫星峰, 这个峰是由 Ar 原子和 Ba 原子碰撞引起的 Ba 原子  $6s6p\ ^1P_1$  能级再分布现象产生的.

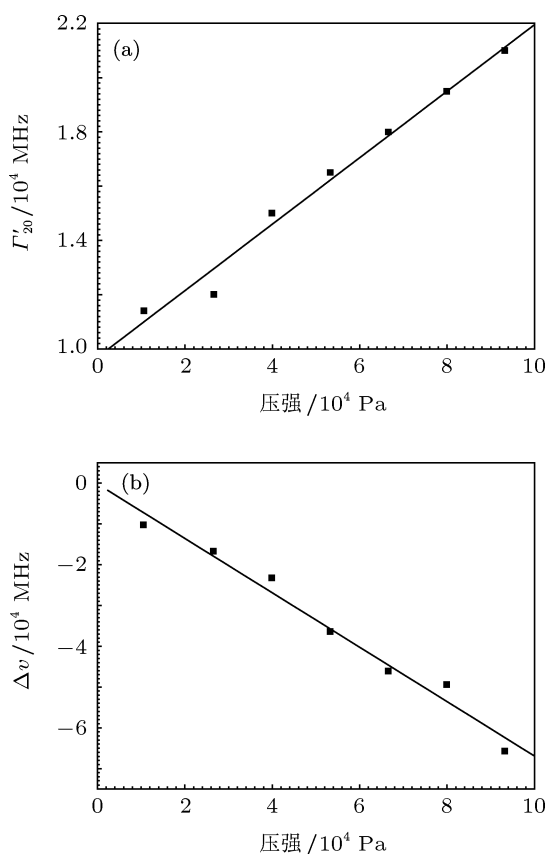


图 3 Ba 原子的  $6s^2\ ^1S_0$ — $6s16d\ ^1D_2$  跃迁的 NFWM 谱线随压强变化关系 (a)  $\Gamma'_{20}$  随压强变化曲线; (b) 峰值频移  $\Delta\nu$  随压强的变化曲线

假设当高缓冲气压时, 谱线的 HWHM  $\Gamma'_{20}$  和峰值频移  $\Delta\nu$  都与 Ar 缓冲气压的压强成线性关系, 即  $\Gamma'_{20} = \Gamma'_{20}^{(0)} + \eta_r p$  和  $\Delta\nu = \eta_s p$ , 式中的  $\eta_r$  和  $\eta_s$  分别为碰撞展宽系数和频移系数.  $\Gamma'_{20}$  和  $\Delta\nu$  随压强变化的关系曲线如图 3 所示. 通过对数据进行最小均方拟合 (图 3 中的实线), 可以得到  $\eta_r = 0.123\ \text{MHz/Pa}$  和  $\eta_s = -0.667\ \text{MHz/Pa}$ . 负的频移系数表明当双光子跃迁时, Ar 原子碰撞使 Ba 原子的  $6s16d\ ^1D_2$  态向基态方向发生了移动.

本文还测量了不同 Ar 缓冲气压下  $6s^2\ ^1S_0$ — $6snd\ ^1D_2$  ( $n = 16$ — $33$ ) 跃迁的双光子共振 NFWM 光谱. 随着主量子数  $n$  的增加, 相邻的两个  $6snd$

$^1D_2$  态间的间隔变得越来越小, 高缓冲气压下的非弹性碰撞对 NFWM 谱线的展宽和频移的影响不可忽略, 因此对于  $6s16d\ ^1D_2$ — $6s25d\ ^1D_2$  态, 本文采用的 Ar 缓冲气压为  $10664$ — $93310\ \text{Pa}$ , 而当研究  $6s26d\ ^1D_2$ — $6s33d\ ^1D_2$  态时, Ar 缓冲气压的范围是  $10664$ — $53333\ \text{Pa}$ . 为了去除温度对碰撞展宽速率和频移速率的影响, 利用公式<sup>[3]</sup>  $\sigma_r = \sqrt{\frac{\pi^3 \mu k_B T}{8}} \eta_r$  和  $\sigma_s = \sqrt{\frac{\pi^3 \mu k_B T}{2}} \eta_s$ , 将碰撞展宽系数和频移系数转换为碰撞展宽截面  $\sigma_r$  和频移截面  $\sigma_s$ , 其中  $\mu$  为 Ba 和 Ar 的约化质量,  $k_B$  是玻尔兹曼常数,  $T$  为热管炉内的绝对温度. 表 1 为温度  $933.15\ \text{K}$  时, 测量到的 Ba 原子里德伯线系  $6snd\ ^1D_2$  ( $n = 16$ — $33$ ) 的 NFWM 谱线的  $\eta_r$ ,  $\eta_s$ ,  $\sigma_r$  和  $\sigma_s$ . 这些数据反映了 Ba 和 Ar 原子相互作用势.

表 1 温度为  $933.15\ \text{K}$  时, 测量到的 Ba 原子里德伯线系  $6snd\ ^1D_2$  ( $n = 16$ — $33$ ) 的 NFWM 谱线的  $\eta_r$  和  $\eta_s$ , 以及碰撞展宽截面  $\sigma_r$  和频移截面  $\sigma_s$

$n$	$\eta_s/\text{MHz}\cdot\text{Pa}^{-1}$	$\sigma_s/10^{-14}\ \text{cm}^2$	$\eta_r/\text{MHz}\cdot\text{Pa}^{-1}$	$\sigma_r/10^{-13}\ \text{cm}^2$
16	0.123	6.23	-0.667	-6.75
17	0.0715	3.62	-0.598	-6.05
18	0.0743	3.76	-0.249	-2.52
19	0.107	5.42	-0.551	-5.58
20	0.0997	5.05	-0.739	-7.48
21	0.0993	5.03	-0.740	-7.49
22	0.0996	5.04	-0.657	-6.65
23	0.0841	4.26	-0.763	-7.72
24	0.114	5.77	-1.01	-10.2
25	0.0815	4.13	-1.03	-10.4
26	0.175	8.86	-1.04	-10.5
27	0.0528	2.67	-0.663	-6.71
28	0.139	7.04	-0.554	-5.61
29	0.109	5.52	-0.390	-3.95
30	0.124	6.28	-0.462	-4.68
31	0.0822	4.16	-0.639	-6.47
32	0.0819	4.15	-0.457	-4.63
33	0.0843	4.27	-0.592	-5.99

### 3 结论

目前研究里德伯态碰撞展宽和频移的方法, 基本上都是利用反向传播的两束光入射到样品上来实现消多普勒的双光子激发, 使原子跃迁到里德伯态, 之后采取电场电离后检测离子的方法获得原子里德伯态的光谱. 此类方法测量到的谱线线宽反映了里德伯态的纵向弛豫速率, 因此现代实验技术测量的谱线碰撞展宽是纵向弛豫随缓冲气体粒子数密度的变化情况. 对比于传统测量技术, 本文

采用的双光子共振 NFWM 技术具有以下优点. 首先, 此技术是纯光学的方法, 检测的信号是具有良好的方向性的相干光, 具有光路简单、灵敏度高的优点; 其次, 当采用窄带宽的激光器时, 此技术可以消除多普勒效应. 这是由于如果  $\omega_1$  在  $|0\rangle$  到  $|1\rangle$  跃迁的多普勒线宽内, 那么只有某一特定速度的原子可

以被激发而对信号产生贡献; 最后, 尤为重要, NFWM 谱线的线宽是由横向弛豫  $T_{20}$  引起的, 因此本文方法可以研究缓冲气体的碰撞对  $|2\rangle$  和  $|0\rangle$  态间的原子相干  $\rho_{20}$  的影响. 双光子共振 NFWM 技术可以获得两个能态间的退相干信息, 因此特别适用于里德伯原子在量子信息过程方面的特性研究.

- 
- [1] Holtgrave J C, Wolf P J 2005 *Phys. Rev. A* **72** 012711
- [2] Oretto P J, Jau Y Y, Post A B, Kuzma N N, Happer W 2004 *Phys. Rev. A* **69** 042716
- [3] Chan Y C, Gelbwachs J A 1992 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **25** 3601
- [4] Shi D H, Zhang J P, Sun J F, Liu Y F, Zhu Z L 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** 7646 (in Chinese) [施德恒, 张金平, 孙金锋, 刘玉芳, 朱遵略 2009 物理学报 **58** 7646]
- [5] Kilian S, Markus R, Thomas A, Luis G M, Matthias W 2004 *Phys. Rev. Lett.* **93** 163001
- [6] Kaulakys B 1984 *J. Phys. B: At. Mol. Phys.* **17** 4485
- [7] Sun J Q, Matthias E, Heber K D, West P J, Güdde J 1991 *Phys. Rev. A* **43** 5956
- [8] Thompson D C, Kammermayer E, Stoicheff B P, Weinberger E 1987 *Phys. Rev. A* **36** 2134
- [9] Sun B, Robicheaux F 2008 *Phys. Rev. A* **78** 040701
- [10] Yang Y M, Xu Q M, Zhang Y P 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** 290 (in Chinese) [杨永明, 许启明, 张彦鹏 2009 物理学报 **58** 290]
- [11] Fu P M, Jiang Q, Mi X, Yu Z H 2002 *Phys. Rev. Lett.* **88** 113902
- [12] Sun J, Jiang Q, Yu Z H, Mi X, Fu P M 2003 *Opt. Commun.* **223** 187
- [13] Sun J, Zuo Z C, Mi X, Yu Z H, Jiang Q, Wang Y B, Wu L A, Fu P M 2004 *Phys. Rev. A* **70** 053820
- [14] Zuo Z C, Sun J, Liu X, Jiang Q, Fu G S, Wu L A, Fu P M 2006 *Phys. Rev. Lett.* **97** 193904
- [15] Sun J, Zuo Z C, Guo Q L, Wang Y L, Huai S F, Wang Y, Fu P M 2006 *Acta Phys. Sin.* **55** 221 (in Chinese) [孙江, 左战春, 郭庆林, 王英龙, 怀素芳, 王颖, 傅盘铭 2006 物理学报 **55** 221]

# Measurement of the argon-gas-induced broadening and shifting of the barium Rydberg levels by two-photon resonant nondegenerate four-wave mixing\*

Sun Jiang<sup>1)†</sup> Sun Juan<sup>2)</sup> Wang Ying<sup>1)</sup> Su Hong-Xin<sup>1)</sup>

1) (College of Physical Science and Technology, Hebei University, Baoding 071002, China)

2) (College of Mathematics and Computer Science, Hebei University, Baoding 071002, China)

(Received 3 November 2011; revised manuscript received 18 December 2011)

## Abstract

We apply two-photon resonant nondegenerate four-wave mixing with a resonant intermediate state for observing the broadening and the shifting of the barium Rydberg  $6snd\ ^1D_2$  series by collision with argon. The collision broadenings and the collision shifting cross sections are measured for  $n = 16-33$ . This technique is a purely optical means, and can achieve Doppler-free resolution of narrow spectral structures of Rydberg levels when the incident lasers have narrow bandwidths. Different from other experimental methods of studying the pressure dependence of the longitudinal relaxation rate of Rydberg states, our method is to investigate the pressure dependence of the transverse relaxation rate of the transition.

**Keywords:** four-wave mixing, collision-induced broadening, Rydberg state

**PACS:** 42.65.Hw, 32.80.Rm, 32.70.Jz

---

\* Project supported by the Young Scientists Fund of the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 10804025) and the Natural Science Foundation of Hebei Province, China (Grant Nos. A2009000147, 08B006, 08B008).

† E-mail: hdsunjiang@163.com