

应用双非简并四波混频理论研究原子的碰撞效应

孙江 常晓阳 张素恒 熊志强

Theoretical study of atom collision by two-nondegenerate four-wave mixing

Sun Jiang Chang Xiao-Yang Zhang Su-Heng Xiong Zhi-Qiang

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 65, 154206 (2016) DOI: 10.7498/aps.65.154206

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.154206>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2016/V65/I15>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

非均匀激光场中氢分子离子高次谐波的增强

Enhancement of high-order harmonic generation from H_2^+ in near plasmon-enhanced laser field

物理学报.2016, 65(12): 123201 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.123201>

红外激光场中共振结构原子对极紫外光脉冲的压缩效应

Compression of extreme ultraviolet pulse for atom with resonant structure exposed to an infrared laser field

物理学报.2016, 65(10): 103202 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.103202>

调制激光场中 Rydberg 原子的电磁感应透明

Electromagnetically induced transparency of Rydberg atoms in modulated laser fields

物理学报.2016, 65(10): 103201 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.103201>

氢负离子在少周期激光场中解离时的干涉效应

Interference effect in the photodetachment from H ion in a few-cycle laser pulse

物理学报.2016, 65(8): 083202 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.083202>

激光驱动晶体发射高次谐波的特性研究

Study of high-order harmonic generation in crystals exposed to laser fields

物理学报.2016, 65(6): 063201 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.063201>

应用双非简并四波混频理论研究原子的碰撞效应*

孙江† 常晓阳 张素恒 熊志强

(河北大学物理科学与技术学院, 保定 071002)

(2015年12月14日收到; 2016年5月25日收到修改稿)

在已有实验的基础上, 提出了由双光子共振非简并四波混频和碰撞再构非简并四波混频组成用于研究原子碰撞效应的双非简并四波混频理论. 分析了缓冲气压、温度、共振失谐和碰撞展宽系数对双非简并四波混频谱线的影响. 在由基态、中间态和激发态组成的级联三能级系统中, 双非简并四波混频可同时研究碰撞引起的激发态谱线展宽和碰撞引起的中间态能级再分布现象. 与测量纵向弛豫碰撞展宽的传统实验方法不同, 本文方法是一种纯光学的相干测量技术, 可以同时测量激发态与基态间的横向弛豫 T_{20} 和中间态与基态间的横向弛豫 T_{21} 的碰撞展宽.

关键词: 四波混频, 碰撞展宽, 碰撞再构

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

DOI: 10.7498/aps.65.154206

1 引言

碰撞效应是许多研究领域的基础, 通过对原子分子碰撞过程的研究, 可以观测和分析原子、分子的内部结构, 还可以展开对原子核等基本粒子的研究. 近年来, 随着量子信息与量子计算和冷原子技术的飞速发展, 关于原子高激发态碰撞效应和碰撞引起的能级再分布现象(碰撞再构)的研究再次吸引了许多研究人员的兴趣^[1-4]. 里德堡原子寿命很长, 可以作为量子态的优秀载体, 所以研究缓冲气体碰撞引起的原子里德堡态谱线的展宽和频移, 对于量子信息和量子计算有重要意义. 目前研究里德堡态碰撞效应的方法都是通过消多普勒的双光子跃迁, 将原子激发到里德堡态, 之后加电场使里德堡原子电离, 再通过检测电离后的电子或离子的方法来获得里德堡态的光谱^[5]. 碰撞引起的能级再分布现象在激光制冷和原子俘获方面具有重要的应用潜力^[6,7]. 例如 Vogl 和 Martin^[6] 利用铷原子和氩气碰撞引起的能级再分布效应实现了 66 K 低温的激光制冷, 并且制冷气体的密度比传统的多普勒

制冷高出十个数量级.

共振增强的非简并四波混频(NFWM)是一种具有广泛用途的高分辨激光光谱技术. 近年来人们发展了多种不同类型的非简并四波混频技术, 对物质结构的各种动力学信息进行研究. 例如, 傅盘铭课题组^[8,9]提出的瑞利型非简并四波混频可以不受激光脉冲宽度的限制, 在频域测量物质超快过程的弛豫时间. 我们课题组在一个级联的四能级原子系统的顶能级和次项能级间加入强耦合光场, 从而在双光子共振非简并四波混频中引入了量子干涉效应, 使其成为一种全新的可测量两个高激发态间跃迁矩阵元的消多普勒效应的高分辨激光光谱学工具^[10]. 我们还将双光子共振非简并四波混频应用于原子里德堡态的测量和研究^[11]. 与通过检测离子或电子信号来测量原子里德堡态的传统技术不同, 双光子共振 NFWM 是一种纯光学的方法, 该方法的光路简单, 检测的信号是相干光.

最近, 我们进一步采用双光子共振非简并四波混频研究了钡原子里德堡态的碰撞展宽^[12]. 不同于只能测量里德堡态纵向弛豫的现代实验技术, 双光子共振 NFWM 能够测量里德堡态和基态间的

* 国家自然科学基金青年科学基金(批准号: 10804025, 11204062)资助的课题.

† 通信作者. E-mail: hdsunjiang@163.com

横向弛豫. 在量子信息和量子计算研究中, 横向弛豫用来描述两个量子态基间原子相干的退相干. 因此在量子信息与量子计算领域, 双光子共振 NFWM 技术比传统测量技术更适合研究碰撞引起的里德堡原子的退相干信息, 在测量中发现, 当保持适当的激光和基态与中间态间的共振频率失谐时, 存在着另一种非简并四波混频过程^[13,14]. 该非简并四波混频是由碰撞引起的中间态的能级再分布现象引起的, 我们称之为碰撞再构非简并四波混频. 在由基态、中间态和激发态组成的级联三能级系统中, 选取里德堡态作为激发态, 碰撞再构 NFWM 不仅可以用来研究碰撞引起的中间态的能级再分布现象, 还可以测量中间态和里德堡态间的横向弛豫及退相干信息.

在以上的实验基础上, 本文提出了由双光子共振非简并四波混频和碰撞再构非简并四波混频组成的用于研究原子碰撞效应的双非简并四波混频理论. 采用双非简并四波混频技术可以研究中间态和激发态的碰撞展宽和频移, 研究碰撞引起的中间态的再分布现象, 获得基态与中间态、基态与激发态间的横向弛豫及碰撞引起的其退相干信息.

2 基本理论

用于研究原子碰撞效应的双非简并四波混频的光路如图 1(a) 所示. 光束 2 和 2' 具有相同的频率 ω_2 , 两束光间的夹角 θ 很小. 光束 1 的频率为 ω_1 , 沿与光束 2 相反的方向入射到样品上. 考虑一个如图 1(b) 和图 1(c) 所示的级联三能级系统, 该系统中的基态 $|0\rangle$ 和中间态 $|1\rangle$ 之间、中间态 $|1\rangle$ 和激发态 $|2\rangle$ 之间分别通过共振频率 Ω_1, Ω_2 耦合, 基态 $|0\rangle$ 与激发态 $|2\rangle$ 之间的跃迁是偶极禁戒的. 当入射光的频率 $\omega_1 \approx \Omega_1, \omega_2 \approx \Omega_2$ 时, 在图 1(b) 中存在一个双光子共振非简并四波混频过程, 即光束 1 和光束 2 分别引起 $|0\rangle \rightarrow |1\rangle$ 和 $|1\rangle \rightarrow |2\rangle$ 的双光子跃迁, 从而感生出 $|0\rangle$ 和 $|2\rangle$ 态间的原子相干, 光束 2' 对这个原子相干进行探测, 最终产生了沿着与光束 2' 几乎相反方向传播的频率为 ω_1 的双光子共振 NFWM 信号光. 为了研究样品原子 A 激发态的碰撞效应, 需要在样品室中加入缓冲气体 B 来控制压强. 当缓冲气压较高时, 还存在着如图 1(c) 所示的碰撞引起的能级再分布过程(碰撞再构)^[6,7]: 在样品原子和缓冲气体原子碰撞过程中, 可以将其看成

是一个原子 A-B 组成的准分子, 这时样品原子 A 的 $|0\rangle$ 态和 $|1\rangle$ 态转变为相应的分子能级, 它们间的共振频率随着 A-B 原子间距的变化而改变, 当这两个分子态间的共振频率为 ω_1 时, 光束 1 可以激发原子 A 跃迁到由 $|1\rangle$ 态所形成的分子态上. 碰撞结束后, 受到激发的样品原子 A 由相应的分子态转变到 $|1\rangle$ 态, 形成了 $|1\rangle$ 态上的原子布居. 这时存在着另一个由碰撞再构引起的非简并四波混频过程: 光束 2 驱动态 $|1\rangle$ 和态 $|2\rangle$ 态之间的跃迁, 光束 2' 驱动态 $|2\rangle$ 到态 $|1\rangle$ 之间的跃迁, 从而形成了一个原子布居栅. 光束 1 被这个原子布居栅散射, 产生了沿与光束 2' 几乎相反方向传播的频率为 ω_1 的 NFWM 信号光. 我们将这个非简并四波混频称为碰撞再构非简并四波混频. 碰撞再构 NFWM 和双光子共振 NFWM 的信号光的传播方向相同, 因此最终测量到的信号是这两个四波混频信号光的强度叠加.

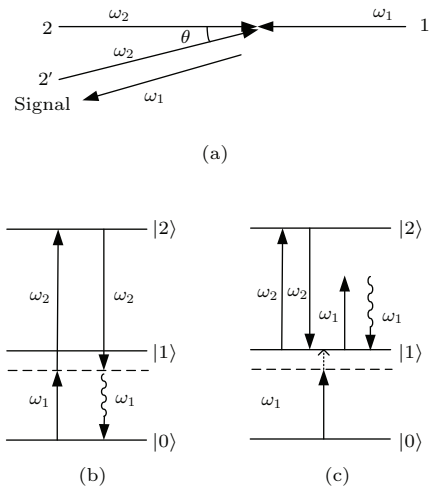


图 1 双非简并四波混频原理图 (a) 光路图; (b) 双光子共振非简并四波混频原理图; (c) 碰撞再构非简并四波混频原理图

Fig. 1. Schematic of two NFWM: (a) Optical pathway diagram; (b) energy-level diagram for two-photon resonant NFWM; (c) energy-level diagram for collisional redistribution NFWM.

本文的双非简并四波混频模型修正了文献^[14]中的模型错误. 文献 14 的碰撞再构 NFWM 模型中, 光束 1 被原子布居栅的散射是原子由 $|1\rangle$ 态向 $|0\rangle$ 态方向跃迁引起的散射. 其信号光的方向为 $\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}'_2 - \mathbf{k}_1$, 与双光子共振 NFWM 方向不同, 不能被同一个探测器检测. 本文的碰撞再构 NFWM 模型中(图 1(c)), 光束 1 被原子布居栅的散射是原子由 $|1\rangle$ 态向 $|2\rangle$ 态方向跃迁引起的散射, 其信号光的方向为 $\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 - \mathbf{k}'_2$, 与双光子共振 NFWM 信号光的传播方向重合.

该级联三能级系统相互作用的哈密顿量为

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

式中: $\Delta_1 = \Omega_1 - \omega_1$, $\Delta_2 = \Omega_2 - \omega_2$ 为原子的偶极跃迁频率 Ω_i 与入射光频率 ω_i ($i = 1, 2$) 的失谐量; $E_1 = \varepsilon_1 e^{i\mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{r}}$, $E_2 = \varepsilon_2 e^{i\mathbf{k}_2 \cdot \mathbf{r}} + \varepsilon'_2 e^{i\mathbf{k}'_2 \cdot \mathbf{r}}$ 为频率分别为 ω_1 , ω_2 的激光束的场强, 其中 \mathbf{k}_1 , \mathbf{k}_2 , \mathbf{k}'_2 和 ε_1 , ε_2 , ε'_2 分别为光束 1, 2, 2' 的波矢和振幅; μ_1 , μ_2 分别为 $|0\rangle$ 和 $|1\rangle$, $|1\rangle$ 和 $|2\rangle$ 间的跃迁偶极矩阵元. 双光子共振 NFWM 的非线性极化强度正比于密度矩阵的非对角矩阵元 ρ_{10} , 对于起始于能级 $|0\rangle$ 的双光子共振非简并四波混频, 通过求解密度矩阵方程

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

利用该 NFWM 过程的微扰链 $\rho_{00}^{(0)} \rightarrow \rho_{10}^{(1)} \rightarrow \rho_{20}^{(2)} \rightarrow \rho_{10}^{(3)}$, 可得到非对角矩阵元 $\rho_{10}^{(3)}$ 的表达式:

$$\rho_{10}^{(3)} = -i \frac{G_1 G_2 (G'_2) * e^{i(\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 - \mathbf{k}'_2)}}{(i\Delta_1 + \Gamma_{10})^2 \{i(\Delta_1 + \Delta_2) + \Gamma_{20}\}} \rho_{00}^{(0)}, \quad (3)$$

式中 $G_1 = \mu_1 \varepsilon_1 / \hbar$, $G_2 = \mu_2 \varepsilon_2 / \hbar$, $G'_2 = \mu_2 \varepsilon'_2 / \hbar$ 为耦合系数, Γ_{n0} 为能级 $|n\rangle$ 和 $|0\rangle$ 之间的横向弛豫速率. NFWM 信号的强度 I_e 正比于 $|\rho_{10}^{(3)}|^2$, 即

$$I_e \propto \frac{1}{(\Delta_1^2 + \Gamma_{10}^2)^2 [(\Delta_1 + \Delta_2)^2 + \Gamma_{20}^2]} \left| \rho_{00}^{(0)} \right|^2, \quad (4)$$

$\rho_{00}^{(0)}$ 是密度矩阵的对角矩阵元, 反映了 $|0\rangle$ 态中的原子参与双光子跃迁的概率. 对于起始于能级 $|1\rangle$ 的碰撞再构非简并四波混频, 通过求解密度矩阵 (2) 式, 利用该 NFWM 过程的微扰链 $\rho_{11}^{(0)} \rightarrow \rho_{21}^{(1)} \rightarrow \rho_{11}^{(2)} \rightarrow \rho_{21}^{(3)}$, 可得到非对角矩阵元 $\rho_{21}^{(3)}$

$$\rho_{21}^{(3)} = -i \frac{G_1 G_2 (G'_2) \cdot e^{i(\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 - \mathbf{k}'_2)}}{\Gamma_{11} (i\Delta_{21} + \Gamma_{21}) (i\Delta_2 + \Gamma_{21})} \rho_{11}^{(0)}, \quad (5)$$

则其信号强度 I_n 的表达式为

$$I_n \propto \frac{1}{\Gamma_{11}^2 (\Delta_{21}^2 + \Gamma_{21}^2) [\Delta_2^2 + \Gamma_{21}^2]} \left| \rho_{11}^{(0)} \right|^2, \quad (6)$$

式中 $\Delta_{21} = \Omega_2 - \omega_1$, Γ_{11} 为能级 $|1\rangle$ 的弛豫速率, Γ_{21} 为能级 $|2\rangle$ 和 $|1\rangle$ 之间的横向弛豫速率. $\rho_{11}^{(0)}$ 是密度矩阵的对角矩阵元, 反映了该四波混频过程初始时原子处于 $|1\rangle$ 态的概率. 由于样品原子 A 在 $|1\rangle$ 态的布居是由缓冲气体原子 B 和样品原子 A 的碰撞引起的, 样品原子处于 $|1\rangle$ 态的概率 $\rho_{11}^{(0)}$ 和

缓冲气体的压强 P 成正比关系. 假设碰撞再构所需的能量由缓冲气体原子提供, 则只有动能满足 $\frac{1}{2}mv^2 \geq |\hbar\Delta_1|$ 的缓冲气体原子才能够使能级 $|1\rangle$ 实现布居. 其中 m 为缓冲气体的原子质量, v 是缓冲气体的原子运动速率. 即

$$\rho_{11} \propto p \int_{v_0}^{\infty} W(v) dv, \quad (7)$$

这里 $v_0 = \sqrt{2|\hbar\Delta_1|/m}$, $W(v)$ 是速度分布函数, 我们有

$$W(v) = \frac{1}{\sqrt{\pi}u} \exp[-(v/u)^2], \quad (8)$$

式中 $u = \sqrt{2KT/m} = 128.95\sqrt{T/m_r}$, m_r 为缓冲气体的相对原子质量, K 为玻尔兹曼常数, T 为绝对温度. 假设在缓冲气体条件下, 弛豫速率和缓冲气压的压强成线性关系, 即 $\Gamma_{10} = \Gamma_{10}^{(0)} + \eta_{r10}P$, $\Gamma_{11} = \Gamma_{11}^{(0)} + \eta_{r11}P$, $\Gamma_{20} = \Gamma_{20}^{(0)} + \eta_{r20}P$, $\Gamma_{21} = \Gamma_{21}^{(0)} + \eta_{r21}P$. 式中的 η_{rij} 为能级 $|i\rangle$, $|j\rangle$ 间的碰撞展宽系数. 当缓冲气压不太高时, 碰撞引起的能级再分布现象对双光子跃迁的影响很小, 因此可以用双光子共振 NFWM 信号的最大值来归一化. 同时考虑到一般情况下 $\Delta_{21} \gg \Gamma_{21}$, 则双四波混频的归一化信号强度可以表示为

$$I = \frac{\Gamma_{20}^2}{[(\Delta_1 + \Delta_2)^2 + \Gamma_{20}^2]} + A \frac{\Gamma_{20}^2 (\Gamma_{10}^2 + \Delta_1^2)^2 \left(p \int_{v_0}^{\infty} W(v) dv \right)^2}{\Gamma_{11}^2 \Delta_{21}^2 (\Delta_2^2 + \Gamma_{21}^2)}, \quad (9)$$

式中的 A 为比例系数.

3 数据分析与讨论

在建立了研究原子碰撞效应的双非简并四波混频理论模型后, 我们来研究各参量对双非简并四波混频谱线的影响.

首先, 考虑缓冲气体压强对谱线的影响. 图 2 为 $A/\Delta_{21}^2 = 3.0 \times 10^7$, $\Gamma_{10}^{(0)}/\Gamma_{20}^{(0)} = \Gamma_{21}^{(0)}/\Gamma_{20}^{(0)} = \Gamma_{11}^{(0)}/\Gamma_{20}^{(0)} = 1$, $T = 300$ K, $\eta_{r20} = \eta_{r21} = \eta_{r10} = \eta_{r11} = 1.0 \times 10^5$ 时的双 NFWM 信号强度与失谐 Δ_2 的关系曲线. 其中图 2(a) $\Delta_1/\Gamma_{20}^{(0)} = -10$ 和图 2(b) $\Delta_1/\Gamma_{20}^{(0)} = 10$, 其缓冲气压为 $p/\Gamma_{20}^{(0)} = 0.01$ (黑实线), 3 (绿虚线), 5 (蓝点线), 8 (红虚点线) $\times 10^{-6}$, 图 2(c) $\Delta_1/\Gamma_{20}^{(0)} = 10$, 缓冲气压为 $p/\Gamma_{20}^{(0)} = 1$ (黑实线), 10 (绿虚线),

30 (蓝点线), 50 (红虚点线) $\times 10^{-6}$. 图2中有两个非简并四波混频信号峰, 其中图2(b)和图2(c)在

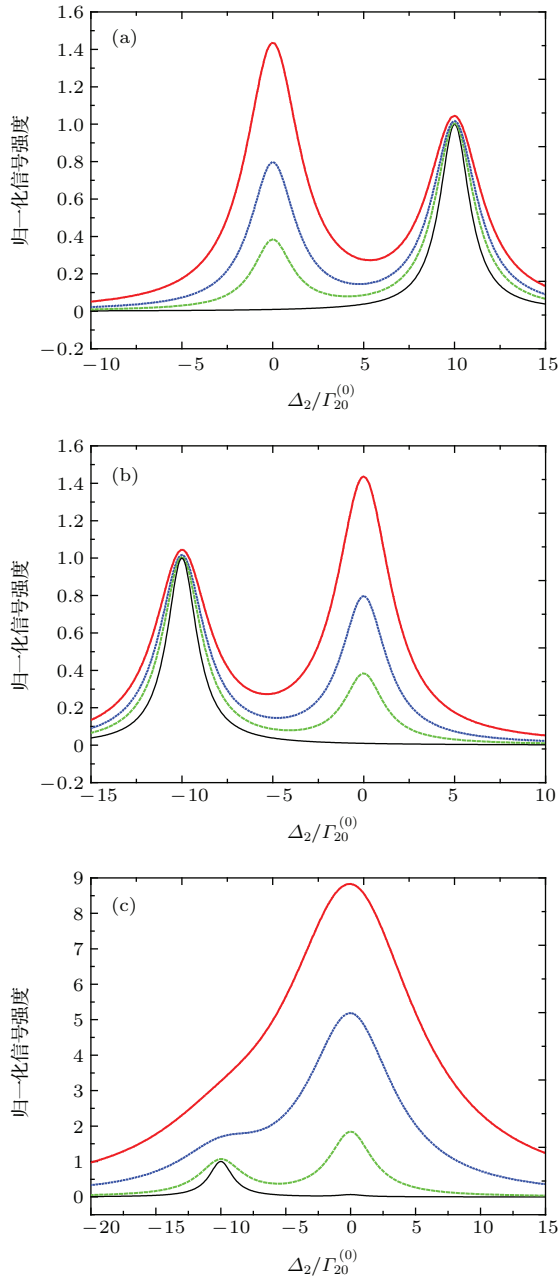


图2 (网刊彩色) 不同缓冲气压下的双 NFWM 信号强度与失谐 Δ_2 的关系曲线 (a) $\Delta_1/\Gamma_{20}^{(0)} = -10$; (b) $\Delta_1/\Gamma_{20}^{(0)} = 10$, $p/\Gamma_{20}^{(0)} = 0.01$ (黑实线), 3(绿虚线), 5(蓝点线), 8(红虚点线) $\times 10^{-6}$; (c) $\Delta_1/\Gamma_{20}^{(0)} = 10$, $p/\Gamma_{20}^{(0)} = 1$ (黑实线), 10(绿虚线), 30(蓝点线), 50(红虚点线) $\times 10^{-6}$

Fig.2. (color online) Two NFWM signal intensity versus the frequency detuning Δ_2 in the presence of different buffer gas pressure for: (a) $\Delta_1/\Gamma_{20}^{(0)} = -10$; (b) $\Delta_1/\Gamma_{20}^{(0)} = 10$, $p/\Gamma_{20}^{(0)} = 0.01$ (black solid curve), 3 (green dashed curve), 5 (blue dotted curve), 8 (red dot-dashed curve) $\times 10^{-6}$; (c) $\Delta_1/\Gamma_{20}^{(0)} = 10$, $p/\Gamma_{20}^{(0)} = 1$ (black solid curve), 10 (green dashed curve), 30 (blue dotted curve), 50 (red dot-dashed curve) $\times 10^{-6}$.

$\Delta_1/\Gamma_{20}^{(0)} = -10$ 位置处, 图2(a)在 $\Delta_1/\Gamma_{20}^{(0)} = 10$ 位置处的信号峰为双光子共振 NFWM 信号峰 (共振条件为 $\Delta_1 + \Delta_2 = 0$). 图2(a), (b) 和 (c) 中 $\Delta_1/\Gamma_{20}^{(0)} = 0$ 处的信号峰为碰撞再构 NFWM 信号峰 (共振条件为 $\Delta_2 = 0$). 在低缓冲气压下, 原子 A-B 间的碰撞频率低, 碰撞再构引起原子 A 在能级 $|1\rangle$ 上的布居很少, 因此碰撞再构 NFWM 信号难以观测, 如图2中的黑实线所示. 当缓冲气压较高时, 随着原子 A-B 间的碰撞频率增加, A 在能级 $|1\rangle$ 上的布居原子密度开始增加, 以至可以超过参与双光子共振 NFWM 的基态原子密度, 从而使碰撞再构 NFWM 的峰值强度出现、增加并超过双光子共振 NFWM 的峰值强度, 如图2(a)和图2(b)中的绿虚线、蓝点线、红虚点线所示. 当缓冲气压足够高时, 由于碰撞引起的能级再分布效应, 大量的原子 A 被激发到 $|1\rangle$ 态上, 将影响到参与双光子跃迁的 $|0\rangle$ 态原子密度, 使碰撞再构四波混频的谱线覆盖双光子共振四波混频的谱线, 如图2(c)所示.

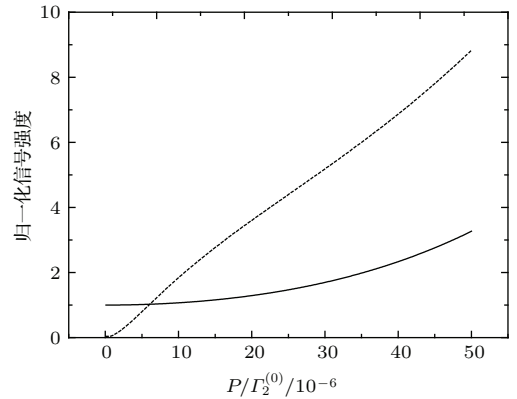


图3 双光子共振 NFWM 共振频率处信号强度 (实线) 和碰撞再构 NFWM 对应谱线峰值 (虚线) 随缓冲气压的变化

Fig. 3. Pressure-dependence of the two photon resonant NFWM signal intensity at exact two-photon resonance (solid curve) and the collisional redistribution NFWM signal intensity maximum (dashed curve).

图3为双非简并四波混频信号的峰值随缓冲气压变化曲线. 其中 $\Delta_1/\Gamma_{20}^{(0)} = 10$, $A/\Delta_{21}^2 = 3.0 \times 10^7$, $T = 300$ K, $\eta_{r20} = \eta_{r21} = \eta_{r10} = \eta_{r11} = 1.0 \times 10^5$, $\Gamma_{10}^{(0)}/\Gamma_{20}^{(0)} = \Gamma_{21}^{(0)}/\Gamma_{20}^{(0)} = \Gamma_{11}^{(0)}/\Gamma_{20}^{(0)} = 1$, 实线为双光子共振 NFWM 共振频率处的信号强度随缓冲气压的变化曲线, 虚线为碰撞再构 NFWM 谱线峰值随缓冲气压的变化曲线. 图3表明. 当缓冲气压增加时, 碰撞再构 NFWM 信号相应增加 (虚线), 并且对双光子共振 NFWM 谱线的影响越

来越大,直到覆盖了双光子共振NFWM谱线.该图只适应缓冲气压不太高的情况,当缓冲气压足够高时,碰撞再构引起的 $|1\rangle$ 态上的原子布居将达到饱和,不再随压强 P 的增加而线性增加,从而碰撞再构NFWM信号将不再增强.

其次,考虑失谐 Δ_1 对双非简并四波混频谱线的影响.图4为 $A/\Delta_{21}^2 = 3.0 \times 10^7$, $T = 300$ K, $\eta_{r20} = \eta_{r21} = \eta_{r10} = \eta_{r11} = 1.0 \times 10^5$, $p/\Gamma_{20}^{(0)} = 8 \times 10^{-6}$, $\Gamma_{10}^{(0)}/\Gamma_{20}^{(0)} = \Gamma_{21}^{(0)}/\Gamma_{20}^{(0)} = \Gamma_{11}^{(0)}/\Gamma_{20}^{(0)} = 1$, $\Delta_1/\Gamma_{20}^{(0)} = 3$ (黑实线), 6(绿虚线), 10(蓝点线), 15(红虚点线)时的双NFWM信号强度与失谐 Δ_2 的关系曲线.如图4中黑实线所示,在确定的缓冲气压下,当 Δ_1 失谐较小时,双光子共振NFWM由于受到 $|1\rangle$ 态的共振增强,其信号强度远大于碰撞再构NFWM,并且两个非简并四波混频的峰值位置 $\Delta_2 = -\Delta_1$ 和 $\Delta_2 = 0$ 比较接近,所以这两个非简并四波混频的信号相加后,碰撞再构NFWM的谱线难以分辨.随着失谐 Δ_1 的增加,双光子共振NFWM的信号由于逐渐远离能级 $|1\rangle$ 的共振而迅速减弱,并且两个NFWM谱线的峰值也彼此分开,碰撞再构NFWM的峰值信号强度相对双光子共振NFWM的峰值信号强度逐渐增加,继而超过,如图4中的绿虚线、蓝点线和红虚点线所示.图5为 $A/\Delta_{21}^2 = 3.0 \times 10^7$, $p/\Gamma_{20}^{(0)} = 8 \times 10^{-6}$, $\eta_{r20} = \eta_{r21} = \eta_{r10} = \eta_{r11} = 1.0 \times 10^5$, $T = 300$ K, $\Gamma_{10}^{(0)}/\Gamma_{20}^{(0)} = \Gamma_{21}^{(0)}/\Gamma_{20}^{(0)} = \Gamma_{11}^{(0)}/\Gamma_{20}^{(0)} = 1$ 时,碰撞再构NFWM和双光子共振NFWM的峰值信号强度随失谐 Δ_1 变化曲线.此处,将 $\Delta_1/\Gamma_{20}^{(0)} = 5$ 时的双光子共振NFWM的峰值强度归为一.考虑到 $\Delta_{21} = \Omega_2 - \omega_1 = \Omega_2 - \Omega_1 + \Delta_1$,一般情况下, $\Omega_2 - \Omega_1 \gg \Delta_1$,可将 Δ_{21} 视为常数.图5显示随着失谐 Δ_1 的增加,双光子共振NFWM的峰值快速减小,而碰撞再构NFWM的峰值减小到一定数值后其减小速率变得很缓慢.其中双光子共振NFWM信号减弱是由于 $|1\rangle$ 态对NFWM的共振增强作用随失谐 Δ_1 增加而迅速减小引起的,碰撞再构NFWM信号减弱是由于碰撞再构引起的 $|1\rangle$ 态原子布居随失谐 Δ_1 变化引起的.当失谐 Δ_1 较大时,双光子共振NFWM被碰撞再构NFWM谱线覆盖,可以忽略不计.这时双非简并四波混频退化为碰撞再构NFWM,它依然可以用来研究碰撞引起的 $|1\rangle$ 态再分布现象及横向弛豫 Γ_{21} 的退相干信息.

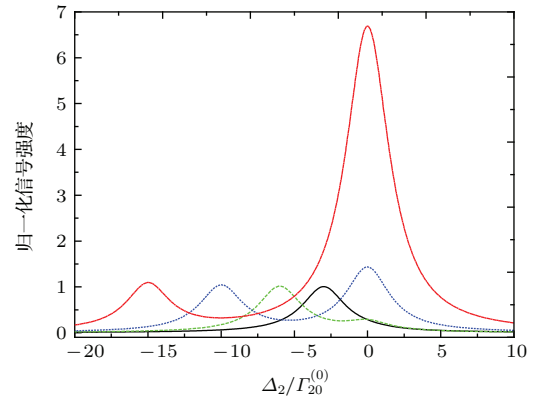


图4 (网刊彩色)不同失谐 Δ_1 下的双NFWM信号强度与失谐 Δ_2 的关系.其中 $\Delta_1/\Gamma_{20}^{(0)} = 3$ (黑实线), 6 (绿虚线), 10 (蓝点线), 15 (红虚点线)

Fig. 4. (color online) Two NFWM signal intensity versus the frequency detuning Δ_2 in the presence of different detuning Δ_1 when $\Delta_1/\Gamma_{20}^{(0)} = 3$ (black solid curve), 5 (green dashed curve), 10 (blue dotted curve), 20 (red dot-dashed curve).

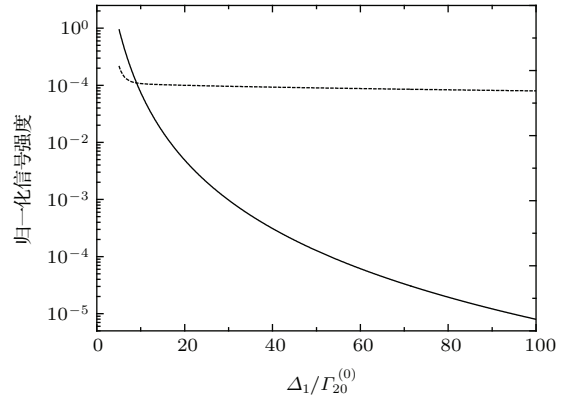


图5 双光子共振NFWM(实线)和碰撞再构NFWM(虚线)的信号峰值随失谐 Δ_1 变化曲线

Fig. 5. Δ_1 -dependence of the maximum of two photon resonant NFWM signal intensity (solid curve) and collisional redistribution NFWM signal intensity (dashed curve).

接下来,研究温度对双非简并四波混频谱线的影响.图6为 $\Delta_1/\Gamma_{20}^{(0)} = 10$, $p/\Gamma_{20}^{(0)} = 8 \times 10^{-6}$, $\eta_{r20} = \eta_{r21} = \eta_{r10} = \eta_{r11} = 1.0 \times 10^5$, $A/\Delta_{21}^2 = 3.0 \times 10^7$, $\Gamma_{10}^{(0)}/\Gamma_{20}^{(0)} = \Gamma_{21}^{(0)}/\Gamma_{20}^{(0)} = \Gamma_{11}^{(0)}/\Gamma_{20}^{(0)} = 1$, $T = 100$ K(黑实线), 300 K(绿虚线), 1000 K(蓝点线), 2000 K(红虚点线)时的双NFWM信号强度与失谐 Δ_2 的关系曲线.从图中可以看到温度对用来研究碰撞引起的能级再分布现象的非简并四波混频谱线影响很小.当绝对温度由100 K变化为2000 K时,对应的碰撞再构非简并四波混频信号只有小幅增加.

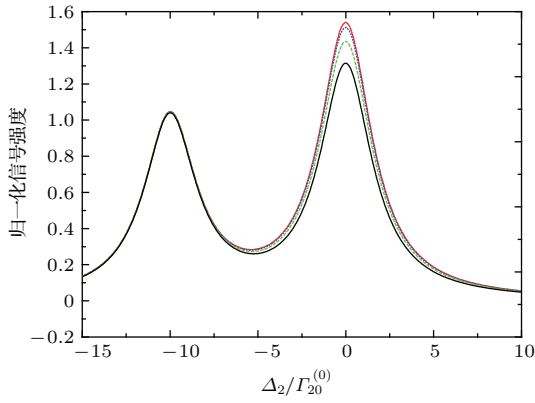


图6 (网刊彩色) 不同温度下的双NFWM信号强度与失谐 Δ_2 的关系 其中温度 $T = 100$ K (黑实线), 300 K (绿虚线), 1000 K (蓝点线), 2000 K (红虚点线)

Fig. 6. (color online) Two NFWM signal intensity versus the frequency detuning Δ_2 in the presence of different temperature for $T = 100$ K (black solid curve), 300 K (green dashed curve), 1000 K (blue dotted curve) and 2000 K (red dot-dashed curve).

最后, 研究碰撞展宽系数对双四波混频谱线的影响. 图7为 $A/\Delta_{21}^2 = 3.0 \times 10^7$, $p/\Gamma_{20}^{(0)} =$

8×10^{-6} , $\Gamma_{10}^{(0)}/\Gamma_{20}^{(0)} = \Gamma_{21}^{(0)}/\Gamma_{20}^{(0)} = \Gamma_{11}^{(0)}/\Gamma_{20}^{(0)} = 1$, $T = 300$ K, (a) η_{r11} , (b) η_{r10} , (c) η_{r21} 和 (d) η_{r20} 都取值为 0.5 (黑实线), 1 (绿虚线), 2 (蓝点线), 4 (红虚点线) $\times 10^5$ 时的双NFWM信号强度与失谐 Δ_2 的关系曲线. 在图7的各图中, 其余的碰撞展宽系数均取 1×10^5 . 图7显示, 只有碰撞展宽系数 η_{r20} 引起了双光子共振NFWM谱线的展宽(图7(d)), 而 η_{r11} , η_{r10} 和 η_{r21} 对双光子共振NFWM没有影响(图7(a), (b), (c)). 这是由于双光子共振NFWM的谱线线宽(FWHM)为 $2\Gamma_{20}$, 与横向弛豫 Γ_{11} , Γ_{10} 和 Γ_{21} 无关. 同样碰撞再构NFWM的谱线线宽为 $2\Gamma_{21}$, 其谱线的碰撞展宽是由碰撞展宽系数 η_{r21} 决定. 但是由于我们采用同条件下的双光子共振NFWM信号最大值来进行归一化((8)式), 碰撞展宽系数 η_{r11} , η_{r10} , η_{r21} 和 η_{r20} 都对碰撞再构NFWM谱线有影响. 图7(a)表明, 碰撞展宽系数 η_{r11} 不会影响双光子共振NFWM和碰撞再构NFWM谱线的线宽. 由于 Γ_{11}^2 作为一个系数出现在碰撞再构

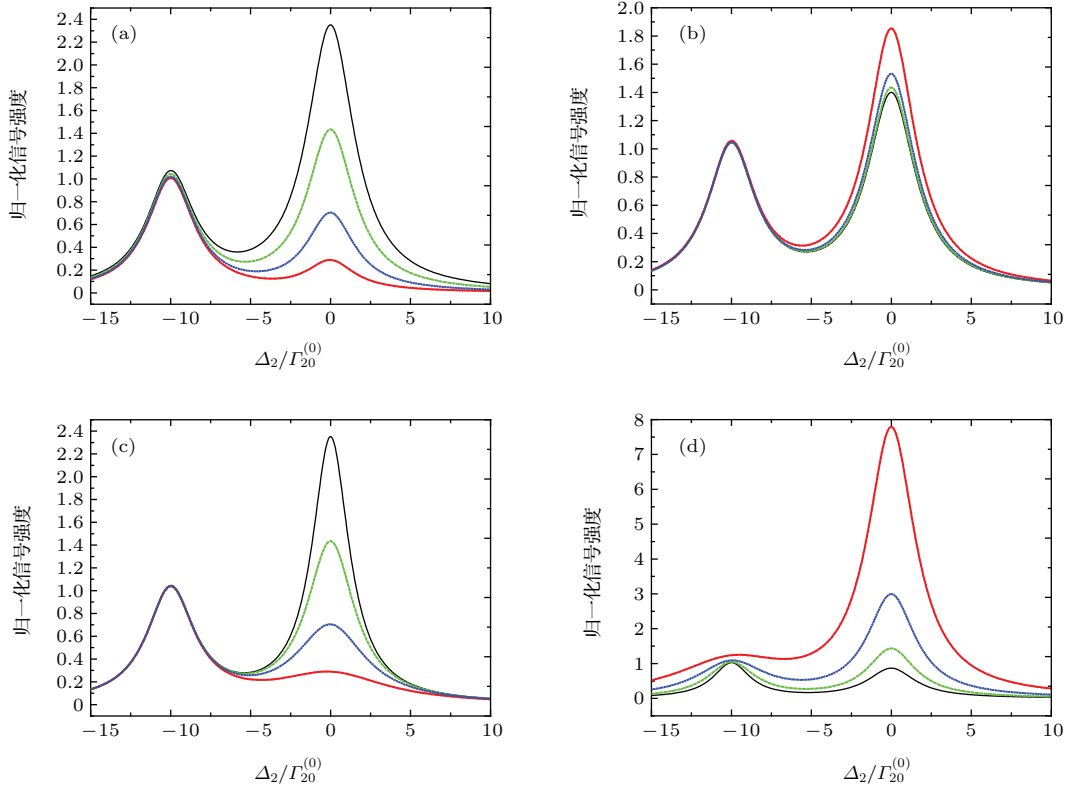


图7 (网刊彩色) 不同碰撞展宽系数下的双NFWM信号强度与失谐 Δ_2 的关系 (a) η_{r11} ; (b) η_{r10} ; (c) η_{r21} 和 (d) η_{r20} 都取值为 0.5 (黑实线), 1 (绿虚线), 2 (蓝点线), 4 (红虚点线) $\times 10^5$

Fig. 7. (color online) Two NFWM signal intensity versus the frequency detuning Δ_2 in the presence of different pressure-broadening rate coefficient when (a) $\eta_{r11} = 0.5$ (black solid curve), 1 (green dashed curve), 2 (blue dotted curve), 4 (red dot-dashed curve), (b) $\eta_{r10} = 0.5$ (solid curve), 1 (dashed curve), 2 (dotted curve), 4 (dot-dashed curve), (c) $\eta_{r21} = 0.5$ (solid curve), 1 (dashed curve), 2 (dotted curve), 4 (dot-dashed curve), (d) $\eta_{r20} = 0.5$ (solid curve), 1 (dashed curve), 2 (dotted curve), 4 (dot-dashed curve).

NFWM信号强度表达式的分母, η_{r11} 的增加将减弱碰撞再构NFWM的信号强度和其对双光子共振NFWM处信号强度的叠加. 图7(b)表明, 碰撞展宽系数 η_{r10} 可以小幅影响碰撞再构NFWM信号相对双光子共振NFWM信号的强度. 随着 η_{r10} 的增加, 碰撞再构NFWM信号有一定的增强. 图7(c)表明, 碰撞展宽系数 η_{r21} 对碰撞再构NFWM信号强度有明显的抑制作用. 随着 η_{r21} 的增加, 碰撞再构NFWM的信号明显减弱. 同时, 碰撞再构NFWM谱线的线宽相应增加. 图7(d)表明, 碰撞展宽系数 η_{r20} 对碰撞再构NFWM信号有明显的增强作用. 随着 η_{r20} 的增加, 碰撞再构NFWM谱线迅速增加. 同时, 双光子共振NFWM谱线由于和碰撞再构NFWM信号强度的叠加而获得了整体的增强.

4 结 论

用于研究原子碰撞效应的双共振非简并四波混频具有以下特点: 首先, 双共振非简并四波混频是一种纯光学的全相干光谱学技术, 具有光路简单、信号强而且方向性好、使用窄带激光器时可消除多普勒效应、相位匹配易于实现等特点. 采用该技术研究原子高激发态的碰撞效应, 明显优于采用光电离、碰撞电离和场电离的传统测量技术. 其次, 当研究里德堡态时, 传统测量技术所测量到的谱线线宽为里德堡态的纵向弛豫速率, 表述的是该里德堡态和各个允许跃迁的能级间弛豫速率之和. 在量子信息和量子计算中, 描述作为量子态态基的两个能态间的相干的横向弛豫更为重要. 双NFWM谱线的半线宽是横向弛豫 Γ_{20} 和 Γ_{21} , 而且其谱线的碰撞展宽可以同时获得碰撞对 $|2\rangle$ 与 $|0\rangle$ 态间的原子相干 ρ_{20} 和 $|2\rangle$ 与 $|1\rangle$ 态间的原子相干 ρ_{21} 的破坏情况. 从而该技术在量子信息和量子计算方面有重要的应用价值. 第三, 传统技术研究碰撞引起的能级再分布现象的方法是采用一束具有一定共振失谐的激光入射, 之后测量碰撞引起的再分布能级跃迁辐射时发出的荧光. 该方法为非相干测量技术, 检测的信号弱, 适用于低激发态能级的碰撞再构研究. 而我们采用的双共振非简并四波混频方法是全相干光谱学技术, 检测的是相干光, 信号强、方向性好, 高激发态和低激发态的碰撞再构研究都适

用(选取其作为中间态). 并且本方法以双光子共振NFWM的峰值作为参考进行归一, 可以研究缓冲气压、温度、激光共振失谐, 各碰撞展宽系数等参数对碰撞再构现象的影响.

总之, 基于以往我们获得的实验结果基础上, 本文提出了用于研究原子碰撞效应的由双光子共振非简并四波混频和碰撞再构非简并四波混频组成的双共振非简并四波混频理论, 并分析了缓冲气压、温度、光束1共振失谐 Δ_1 、各个碰撞展宽系数对双共振非简并四波混频谱线的影响. 双非简并四波混频技术可以获得丰富的原子结构信息. 在由基态 $|0\rangle$ 、中间态 $|1\rangle$ 和激发态 $|2\rangle$ 组成的三能级系统中, 双非简并四波混频可以研究由基态与激发态间的相干 ρ_{20} 及其退相干信息 η_{20} 和由中间态与高激发态间的相干 ρ_{21} 及其退相干信息 η_{21} , 研究碰撞引起的中间态的能级再分布效应. 具有光路结构简单, 测量信息丰富的优点, 可以成为一种有效的研究原子碰撞效应的相干光谱学工具.

参考文献

- [1] Holtgrave J C, Wolf P J 2005 *Phys. Rev. A* **72** 012711
- [2] Oreto P J, Jau Y Y, Post A B, Kuzma N N, Happer W 2004 *Phys. Rev. A* **69** 042716
- [3] Sun B, Robicheaux F 2008 *Phys. Rev. A* **78** 040701
- [4] Xin T, Dieter W, Stefan W 2011 *Phys. Rev. A* **83** 023415
- [5] Chan Y C, Gelbwachs J A 1992 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **25** 3601
- [6] Vogl U, Martin W 2009 *Nature* **461** 70
- [7] Ni S Y, Goetz W, Meijer H A J, Andersen N 1996 *J. Phys. D* **38** 303
- [8] Fu P M, Jiang Q, Mi X, Yu Z H 2002 *Phys. Rev. Lett.* **88** 113902
- [9] Sun J, Jiang Q, Yu Z H, Mi X, Fu P M 2003 *Opt. Commun.* **223** 187
- [10] 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
- [11] 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]
- [12] Sun J, Sun J, Wang Y, Su H X 2012 *Acta Phys. Sin.* **61** 114214 (in Chinese) [孙江, 孙娟, 王颖, 苏红新 2012 物理学报 **61** 114214]
- [13] Sun J, Sun J, Wang Y, Su H X 2012 *Acta Phys. Sin.* **61** 124205 (in Chinese) [孙江, 刘鹏, 孙娟, 苏红新, 王颖 2012 物理学报 **61** 124205]
- [14] Sun J, Xiong Z Q, Sun J, Wang Y, Su H X 2012 *Chin. Phys. B* **21** 064215

Theoretical study of atom collision by two-nondegenerate four-wave mixing*

Sun Jiang[†] Chang Xiao-Yang Zhang Su-Heng Xiong Zhi-Qiang

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

(Received 14 December 2015; revised manuscript received 25 May 2016)

Abstract

In recent years, the collisional redistribution of radiation and collision-induced broadening of Rydberg atomic spectral lines by buffer gas perturbation have aroused the renewed interest. Rydberg atoms having a large dipole moment and long lifetime can interact with each other coherently for relatively long time, which makes them a potential candidate for quantum information processing. Besides, collisional redistribution has an important potential application in laser cooling and trapping.

Based on previous experimental data, in this paper, two-nondegenerate four-wave mixing (NFWM) for studying atom collision, composed of two-photon resonant NFWM and collisional redistribution NFWM, is reported. The spectrum variation of the two-NFWM affected by the pressure, temperature, detuning and collision-broadening rate coefficient is analyzed.

The principle of two-NFWM involving three incident beams is explained as follows. Consider two-NFWM in a $|0\rangle$ - $|1\rangle$ - $|2\rangle$ cascade three-level system, where states between $|0\rangle$ and $|1\rangle$ and between $|1\rangle$ and $|2\rangle$ are coupled by resonant frequencies Ω_1 and Ω_2 , respectively. Beam 1 with frequency ω_1 propagates along the direction opposite to the direction of beam 2, beams 2 and 2' have the same frequency ω_2 , and between their directions there exists a small angle. Assuming that $\omega_1 \approx \Omega_1$ and $\omega_2 \approx \Omega_2$ so that ω_1 drives the transition from $|0\rangle$ to $|1\rangle$ while ω_2 drives the transition from $|1\rangle$ to $|2\rangle$, the simultaneous interactions of atoms with beams 1 and 2 will induce atomic coherence between $|0\rangle$ and $|2\rangle$ through two-photon excitation. This coherence is probed by beam 2', and as a result a two-photon resonant NFWM signal of frequency ω_1 is generated in the direction almost opposite to the direction of beam 2'. To avoid strong absorption at the resonant frequency of transition from $|0\rangle$ to $|1\rangle$, here the wavelength of beam 1 is detuned from the exact resonance. An atom population of level $|1\rangle$ caused by collisional redistribution can be induced when a certain buffer gas pressure is imposed. The collisional redistribution NFWM process also exists in this case. Beam 2 drives the transition from $|1\rangle$ to $|2\rangle$ to induce an atomic coherence which is probed by beam 2' for giving rise to an atomic population grating. A collisional redistribution NFWM signal propagating along the same direction as the two-photon resonant NFWM signal is generated when beam 1 is scattered by the grating. Much information about atomic collisions can be obtained by analyzing the two NFWM signals.

In a cascade three-level system composed of ground state, intermediate state and Rydberg state, and the two-NFWM can be used to investigate not only the broadening and shifting of the Rydberg level but also the collisional redistribution of the intermediate state. Unlike other experiments studying the pressure dependence of the longitudinal relaxation rate of atom states, this technique is a purely optical coherent means, and can measure the transverse relaxation rate T_{20} between Rydberg state and ground state as well as the pressure dependence of the transverse relaxation rate T_{21} between Rydberg state and intermediate state.

Keywords: four-wave mixing, collision-induced broadening, collisional redistribution

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

DOI: 10.7498/aps.65.154206

* Project support by the Young Scientists Fund of the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 10804025, 11204062),

† Corresponding author. E-mail: hdsunjiang@163.com