

钠蒸汽中的三波光差频

夏宗炬 邹英华

(北京大学物理系)

1988年4月28日收到

本文对各向同性介质中电四极矩跃迁共振增强的三波光差频过程进行了研究。在考虑原子电四极矩相互作用后,推导了二阶非线性极化率,并探讨了碰撞感生的二阶非线性光学过程出现的可能性。实验是在钠蒸汽中利用 $3s \rightarrow 4d$ 电四极矩跃迁完成的。实验结果与理论预言相符合。

一、引 言

各向同性介质在电偶极矩近似下只具有奇阶非线性光学效应。若干年来,气态介质中非线性光学现象的研究多集中于最低奇阶即三阶非线性效应。非线性频率变换、简并和非简并四波混频、非线性光学吸收和光场感生折射率变化等基本的三阶非线性过程的规律不断被揭示出来^[1],并在许多方面开辟了应用前景。对于偶阶非线性效应研究的报道相应要少得多。为了在各向同性介质中观察到偶阶非线性光学现象,一般的做法是人为地破坏介质的中心对称性,如在气态介质中外加电场或光场电离后出现的电场可感生出二次谐波就是一个典型的例子。另一个做法是沈元壤及其合作者^[2]在1976年提出来的。他们在考虑电四极矩跃迁的情况下对各向同性介质中的三波和频进行了理论和实验研究,推导了存在电四极矩跃迁时各向同性介质中二阶非线性极化率的表达式,并在钠蒸汽中实现了电四极矩共振增强的三波和频。他们的研究表明,在非共线情况下适当选择入射光场的偏振方向,各向同性介质中的二阶非线性效应和三阶非线性效应一样,也是不难观察到的。他们建议用金属蒸汽中的三波和频来产生紫外相干辐射,而用三波差频来获得红外相干辐射^[3]。十年过去了,在这方面开展的工作并不多。就我们所知,电四极矩跃迁共振增强的三波差频实验还未曾有报道。

本文报道钠蒸汽中利用 $3s \rightarrow 4d$ 电四极矩跃迁共振增强的三波差频的理论和实验研究。在推导电四极矩跃迁共振增强的二阶非线性极化率时,我们考虑了碰撞过程导致的特殊效应,探讨了碰撞感生二阶非线性光学过程出现的可能性。

二、理 论

图1是以钠原子的有关能级为例,表示出一个典型的三能级系统。其中 $3s \rightarrow 4d$ 是电偶极禁阻,但可以出现电四极矩跃迁。假定两个入射单色平面波为

$$\begin{aligned} E(\omega_1, \mathbf{k}_1) &= \frac{1}{2} \lambda_1 E_1 \exp(-i\omega_1 t + i\mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{r}) + \text{c.c.}, \\ E(\omega_2, \mathbf{k}_2) &= \frac{1}{2} \lambda_2 E_2 \exp(-i\omega_2 t + i\mathbf{k}_2 \cdot \mathbf{r}) + \text{c.c.}, \end{aligned} \quad (1)$$

考虑电四极矩的存在,它们与原子相互作用的哈密顿量为

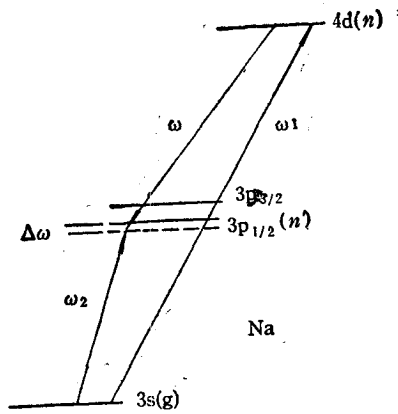


图 1 钠原子的部分能级和四极矩共振三波差频过程

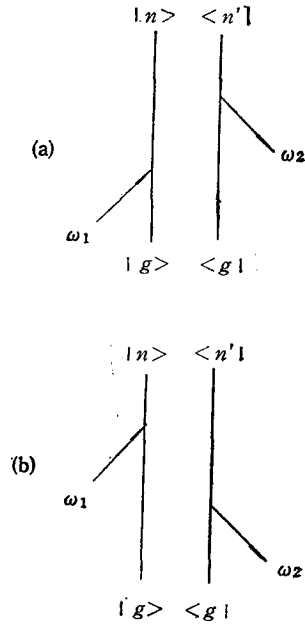


图 2 双边 Feynman 图

$$\mathcal{H}' = \sum_{n=1,2} \mathcal{H}'_n = - \sum_{n=1,2} (e\mathbf{r} + i\mathbf{k}_n \cdot \mathbf{q}) \cdot \mathbf{E}(\omega_n, \mathbf{k}_n). \quad (2)$$

式中 $\mathbf{q}$ 为原子的电四极矩张量。

从密度矩阵运动方程 (Liouville 方程) 的微扰解法可以得到二阶非线性电极化强度矢量^[4]为 $\mathbf{P}^{(2)}(\omega_1 - \omega_2) = \chi^{(2)}(\omega_1 - \omega_2) : \mathbf{E}(\omega_1, \mathbf{k}_1) \mathbf{E}(\omega_2, \mathbf{k}_2)$. (3)

也可采用双边 Feynman 图^[5]直接求出二阶非线性极化率 $\chi^{(2)}(\omega_1 - \omega_2)$. 图 2 表示与图 1 相对应的 Feynman 图的两个通道, 它们表示 ω_1 和 ω_2 两个光子作用的两个可能的次序. 由 Feynman 图的有关简单法则, 马上可求得两个通道所对应的二阶非线性极化率分别为

$$\frac{Ne^3}{2\hbar^2} \cdot \frac{(-i\mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{r}\mathbf{r})_{ng}(\mathbf{r})_{gn'}(\mathbf{r})_{nn'}}{(\omega_{ng} - \omega_1 - i\Gamma_{ng})(\omega_{n'n} + \omega_1 - \omega_2 + i\Gamma_{n'n})} \quad \text{[图 2(a)]}$$

$$\text{和} \quad \frac{Ne^3}{2\hbar^2} \cdot \frac{(-i\mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{r}\mathbf{r})_{ng}(\mathbf{r})_{gn'}(\mathbf{r})_{nn'}}{(\omega_{n'g} - \omega_2 + \Gamma_{n'g})(\omega_{nn'} + \omega_2 - \omega_1 - i\Gamma_{nn'})} \quad \text{[图 2(b)]}$$

这里的 $(\mathbf{r})_{gn'}$ 和 $(\mathbf{r})_{nn'}$ 分别为基态 $|g\rangle$ 与 $|n'\rangle$ 态或 $|n\rangle$ 态与 $|n'\rangle$ 态相联系的电偶极矩矩阵元, $(-i\mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{r}\mathbf{r})_{ng}$ 为 $|g\rangle$ 态与 $|n\rangle$ 态之间的电四极矩跃迁矩阵元. Γ_{ng}

$\Gamma_{nn'}$ 和 $\Gamma_{n'g}$ 分别为相应能级间的阻尼常数. $\Gamma = \frac{1}{2} \nu_{ip}^{-1} + c_0 P$, P 为缓冲气体压强, 而 c_0 为相应光学相干的压力增宽系数.

由两个通道的结果叠加得到差频过程的非线性极化率为

$$\begin{aligned} \chi^{(2)}(\omega_1 - \omega_2) = & \frac{Ne^3}{2\hbar^2} \cdot \frac{(-i\mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{r}\mathbf{r})_{ng}(\mathbf{r})_{nn'}(\mathbf{r})_{gn'}}{(\omega_{nn'} - \omega_1 + \omega_2 - i\Gamma_{nn'})} \\ & \cdot \left(\frac{1}{\omega_{n'g} - \omega_2 + i\Gamma_{n'g}} - \frac{1}{\omega_{ng} - \omega_1 - i\Gamma_{ng}} \right). \end{aligned} \quad (4)$$

现在分析两个通道的干涉效应。方程(4)中两项的相干叠加得

$$\mathcal{V}^{(2)}(\omega_1 - \omega_2) = \frac{Ne^3}{2\hbar^2} \cdot \frac{(-i\mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{r}\mathbf{r})_{ng}(\mathbf{r})_{nn'}(\mathbf{r})_{gn'}}{(\omega_{n'g} - \omega_2 + i\Gamma_{n'g})(\omega_{ng} - \omega_1 - i\Gamma_{ng})} \cdot \left(1 + i \frac{\Gamma_{nn'} - \Gamma_{ng} - \Gamma_{n'g}}{\omega_{nn'} - \omega_1 + \omega_2 - i\Gamma_{nn'}}\right). \quad (5)$$

当缓冲气体压强等于零时,阻尼常数只有自发辐射的贡献,于是有

$$\Gamma_{nn'} - \Gamma_{ng} - \Gamma_{n'g} = 0. \quad (6)$$

极化率表达式方程(4)中的两项退化为一项,激发态 $|n\rangle$ 和 $|n'\rangle$ 间的共振增强不再出现,这反映了两个通道间的相消干涉。当缓冲气压不等于零时,由于缓冲气体原子与金属蒸汽原子之间的碰撞破坏了上述的相消干涉,激发态之间的共振增强就显示出来。这种“额外”的共振可以认为是碰撞感生出来的,因而称之为碰撞感生额外共振。Bloembergen 在研究三极化率普遍表达式时首先提出了碰撞感生相干性的概念^[6], 并首先在四波混频实验中观察到了碰撞感生的额外共振^[7]。如今,碰撞感生的非线性光学过程已成为一个活跃的研究领域^[8]。

为了进一步讨论电四极矩跃迁共振增强的三波差频效应,先要对入射波的偏振和波矢做适当的考虑。引入电四极矩极化张量 $\chi_{ij}^{(2)}(\omega_1 - \omega_2)$, 有

$$\mathcal{X}^{(2)}(\omega_1 - \omega_2) = \chi_{ij}^{(2)}(\omega_1 - \omega_2)(-i\mathbf{k}_i). \quad (7)$$

从而可将三波差频非线性极化强度矢量表达式(3)改写为

$$\mathbf{P}^{(2)}(\omega_1 - \omega_2) = \mathcal{X}^{(2)}(\omega_1 - \omega_2):(-i\mathbf{k}_1)\mathbf{E}(\omega_1, \mathbf{k}_1)\mathbf{E}(\omega_2, \mathbf{k}_2). \quad (8)$$

电四极矩极化率是四秩张量。假定入射光 $(\omega_1, \mathbf{k}_1)$ 和 $(\omega_2, \mathbf{k}_2)$ 是沿 z 轴传播, 则 $\mathbf{P}^{(2)}(\omega_1 - \omega_2)$ 的横向分量即 X 或 Y 方向的分量才能激发出电磁波。这样在各向同性的光学介质中,在三波差频效应中起作用的电四极矩极化率张量元只有四个,即 $(\chi_{ij}^{(2)})_{xzzx}$, $(\chi_{ij}^{(2)})_{yzyz}$, $(\chi_{ij}^{(2)})_{xzxz}$ 和 $(\chi_{ij}^{(2)})_{yzyz}$, 而且它们彼此相等。这就说明了在共线情形下是不可能观察到电四极矩跃迁共振三波差频效应的。只有入射光 $(\omega_1, \mathbf{k}_1)$ 或 $(\omega_2, \mathbf{k}_2)$ 中至少有一个其电场矢量在 z 轴上有分量才能观察到这种效应。一个可能的安排是: 让 $(\omega_1, \mathbf{k}_1)$ 和 $(\omega_2, \mathbf{k}_2)$ 两束入射光以一个小的交叉角 θ 重叠在非线性介质内, 令 $(\omega_2, \mathbf{k}_2)$ 的线偏振方向落在 $\mathbf{k}_1$ 和 $\mathbf{k}_2$ 组成的平面内, 而 $(\omega_1, \mathbf{k}_1)$ 的线偏振方向平行于 $\mathbf{k}_1 \times \mathbf{k}_2$ 的方向(令其为 Y 方向)。三波差频效应的信号光 $(\omega, \mathbf{k})$ 其光强将正比于 $|(\chi_{ij}^{(2)})_{xzxz}(-i\mathbf{k}_1)|^2$, 且其偏振方向将与入射光 $(\omega_1, \mathbf{k}_1)$ 的偏振方向相同。为了实现相位匹配 $\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2 - \mathbf{k} = 0$, 要求对介质的色散加以考虑。在碱金属蒸汽中,反常色散主要出现在 D_1D_2 线附近, 对频率为 ω 的光波的折射率在钠蒸汽的情况下为

$$\Delta n(\omega) = n(\omega) - 1 = 2\pi N \sum_{3p_{1/2}, 3p_{3/2}} \frac{|\langle 3s | \chi | 3p \rangle|^2}{E_{3p} - \hbar\omega}. \quad (9)$$

式中 N 为钠原子密度, E_{3p} 为钠原子 $3p_{1/2}$ 或 $3p_{3/2}$ 态的能量值, $\langle 3s | \chi | 3p \rangle$ 为由 $3s_{1/2}$ 到 $3p_{1/2}$ 或 $3p_{3/2}$ 的跃迁矩阵元。以钠蒸汽中 $3s \rightarrow 4d$ 电四极矩共振三波差频为例, 作为初级近似可以忽略 ω_1 和 ω 的反常色散, 于是入射光 $(\omega_2, \mathbf{k}_2)$ 频率在 D_1 线的长波边可以实现非共线相位匹配。当 θ 角一定时可以计算出相位匹配条件下钠原子密度与调偏量 $\Delta\omega = \omega_2 - \omega_{3s_{1/2} \rightarrow 3p_{1/2}}$ 的函数关系。计算时所用的能级数值和跃迁矩阵元可在有关的文献^[9,10]中

找到。

下面讨论三波差频实验中的共振增强效应。由(5)式及(6)式可知,当缓冲气体压强为零时,可利用 $(\omega_{n'g} - \omega_2 + i\Gamma_{n'g})$ 和 $(\omega_{ng} - \omega_1 - i\Gamma_{ng})$ 两个共振增强因子,其中 $|n\rangle \leftrightarrow |g\rangle$ 跃迁是电四极矩跃迁,其线宽在饱和出现前应为 $|n\rangle$ 态的自发辐射寿命,当实验中采用的激光器线宽比之大得多时,应为提供入射光 $(\omega_1, \mathbf{k}_1)$ 的激光器的线宽。 $|n'\rangle \leftrightarrow |g\rangle$ 为电偶极跃迁,但由上面的讨论可知,当调谐 ω_1 时,三波差频光强的峰值将出现在由相位匹配条件决定的调偏量 $\omega_2 - \omega_{n'g}$ 处而不是 $\omega_2 - \omega_{ng} = 0$ 处。当缓冲气体压强不等于零时,除上述两个共振增强因子外,还将出现碰撞感生的额外共振,即由因子 $(\omega_{nn'} - \omega_1 + \omega_2 - i\Gamma_{nn'})$ 决定的共振。共振的峰值将随缓冲气压的升高而加大。但简单的计算可知,当缓冲气压较高、阻尼系数中自发辐射的贡献可以忽略时,这一额外共振的峰值将与缓冲气压无关。由于共振线宽仍与缓冲气压成正比,所以额外共振的积分强度将与缓冲气压成正比。由钠蒸汽有关能级的压力增宽系数数据^[1]可推算出额外共振的峰值最大可达“本底”的 1.95 倍。可以推测,若要观察到此额外共振,入射光 $(\omega_1, \mathbf{k}_1)$ 和 $(\omega_2, \mathbf{k}_2)$ 的强度需要足够高,使得缓冲气压等于零时的 ω_1 调偏量 $\omega_1 - \omega_{ng}$ 与满足相位匹配要求时的 ω_1 调偏量 $\omega_1 - \omega_{n'g}$ 相等的情况下仍有可能观测到三波差频光输出。

三、实 验

1. 装置

我们选择钠蒸汽做为实验研究的对象,是因为钠原子的参数比较清楚,便于进行计算,从而把实验结果与理论预言相比较。钠样品制备容易,而且它的有关能级可以与最通用的若丹明 B 染料激光波长相配合。

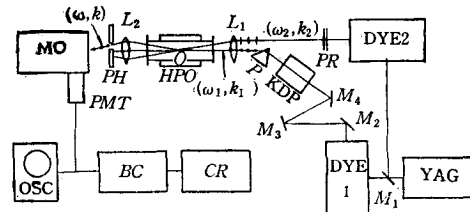


图3 实验装置

图3表示整个实验装置所应包含的仪器设备和它们的布局。DYE1 是一台染料激光器, YAG 是它的泵浦源,二者构成一套完整的系统(型号为 DATACHROM-5000, 法国 Quantel 公司生产)。YAG 是一台掺钕钇铝石榴石脉冲激光器,用做染料激光器泵浦光的 532nm 光脉冲能量最大可达 350mJ, 脉冲重复频率为 10 次/s。DYE1 用若丹明 B 为工作物质,在工作波长 578.7nm 处输出脉冲能量为 20mJ, 脉宽为 10ns, 线宽约为 0.1cm^{-1} 。DYE1 的输出经 KDP 晶体倍频后提供水平偏振的入射光 $(\omega_1, \mathbf{k}_1)$, 它的波长在钠原子 $3s \rightarrow 4d$ 电四极矩共振跃迁波长 ($\approx 289.4\text{nm}$) 附近,能量为 1—2mJ。DYE-2 是一台自制的染料激光器,采用了双光栅 Littrow 结构,其中一块光栅以掠入射方式工作,另一块光栅则通过其倾角的改变来调谐输出波长。从 YAG 分出一束 532nm 激光对 DYE2 进行泵浦,染料也是若丹明 B。在工作波长 589.6nm 处的脉冲能量为 1mJ,脉宽为

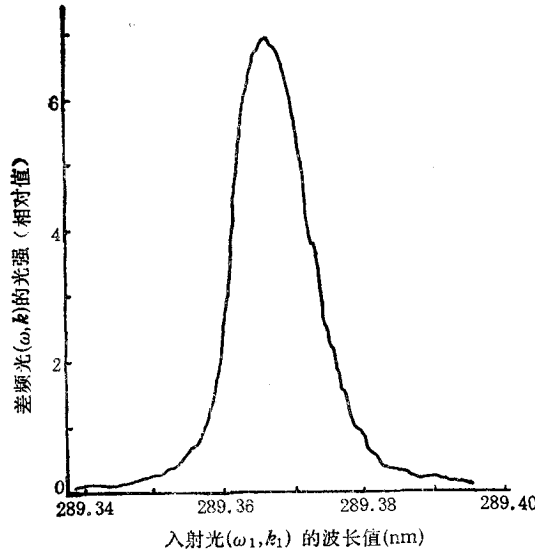
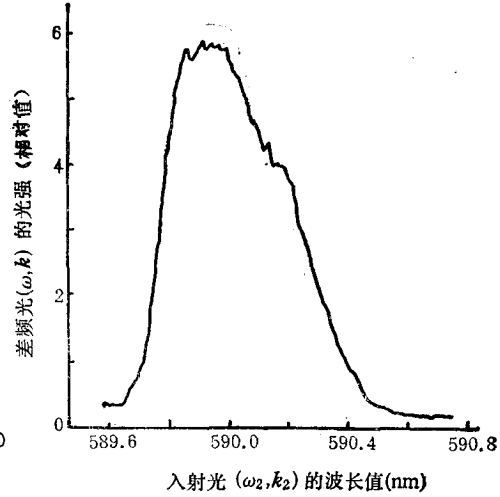
10ns, 线宽约为 0.3cm^{-1} . DYE2 的输出经过偏振旋转器 PR 后用做为另一束入射光 $(\omega_2, \mathbf{k}_2)$, 偏振方向垂直. 全反射镜 M_2, M_3 和 M_4 构成一个光学延迟器, 以保证 $(\omega_1, \mathbf{k}_1)$ 和 $(\omega_2, \mathbf{k}_2)$ 两束光的光脉冲能够同时到达热管炉的中心 O . 石英棱镜 P 的作用是把倍频后得到的 $(\omega_1, \mathbf{k}_1)$ 光束与剩余的基频光束分开, 并使 $(\omega_1, \mathbf{k}_1)$ 光束偏转到与光束 $(\omega_2, \mathbf{k}_2)$ 平行的方向. HPO 是一只热管炉^[12], 长为 40cm, 内径为 2cm. 炉内除金属钠之外还充有纯 He 做为缓冲气体, 其压力在 40—170 Torr 范围内, 按实验的需要而变化. 炉温由精密恒温控制器加以控制, 并在 300—500℃ 范围内可调. 炉的两端各是一片石英窗口. L_1 为石英透镜, 焦距 $f_1 = 23\text{cm}$. 由于光束 $(\omega_1, \mathbf{k}_1)$ 和 $(\omega_2, \mathbf{k}_2)$ 相互平行, 并且平行于热管炉的轴线, 所以经 L_1 后它们同时会聚并交叉在透镜的焦点 O 上, O 点同时也是热管炉的中心, O 点附近的区域便是三波混频的作用区. 改变两束入射光之间的距离但仍保持与原来平行的方向即可改变它们在 O 点的交叉角 θ , 以达到非共线相位匹配的要求. 在我们的实验中, 两束入射光之间的距离为 6cm, 相当于 $\theta = 26\text{mrad}$. L_2 亦为石英透镜, 焦距 $f_2 = 6\text{cm}$, 它使 O 点成像于单色仪的入射狭缝上. PH 为一小孔光阑, 直径为 1mm, 用它挡去剩余的入射光和大部分背景光, 而只让根据相位匹配要求三波差频光应出现的方向上的光束通过. MO 是一台 0.5m 长的光栅单色仪. PMT 为光电倍增管. 差频光信号由 PMT 输出后同时送到监视示波器 OSC 和 Boxcar 积分器 BC 上, 最后由记录仪 CR 记录下来. Boxcar 积分器是美国 EG&G 公司的产品, 主机为 162 型, 闸门积分器插件为 165 型. 实验中选取的闸门宽度为 20ns. 示波器和 Boxcar 积分器均由 YAG 激光器给出的脉冲信号同步地触发.

2. 结果

利用上述装置我们观察到了钠蒸汽中电四极矩跃迁共振增强的三波差频现象. 所产生的差频光波长在 568.0nm 附近, 并与两束入射光保持 $\omega = \omega_1 - \omega_2$ 的关系. 如果 $(\omega_1, \mathbf{k}_1)$ 为水平偏振, $(\omega_2, \mathbf{k}_2)$ 为垂直偏振, 则差频光 $(\omega, \mathbf{k})$ 为水平偏振. 当转动偏振旋转器 PR 使 $(\omega_2, \mathbf{k}_2)$ 在垂直方向(即 $\mathbf{k}_1$ 和 $\mathbf{k}_2$ 构成的平面内)的分量减小时, 差频光的光强也随之减小. 当最后 $(\omega_2, \mathbf{k}_2)$ 的偏振方向与 $(\omega_1, \mathbf{k}_1)$ 相同时就观察不到差频光输出. 这些结果与电四极矩跃迁共振增强的三波差频理论研究是一致的.

图 4 是当入射光 $(\omega_2, \mathbf{k}_2)$ 的波长固定在 589.6nm 处测得的差频光 $(\omega, \mathbf{k})$ 相对强度相对于入射光 $(\omega_1, \mathbf{k}_1)$ 波长的调谐曲线. 其峰值出现在钠 $3s \rightarrow 4d$ 电四极矩跃迁共振波长 289.365nm 处. 热管炉的温度为 422℃, He 缓冲气压为 50Torr. 这条曲线明显地显示出了电四极矩跃迁共振的增强效应. 由图 4 可见, 曲线的 FWHM 约为 0.01nm(或 1.2cm^{-1}). 当 $(\omega_1, \mathbf{k}_1)$ 的光强降低时, 可以观察到更窄的共振增强调谐曲线, 这表明图 4 显示的线宽除染料激光器的线宽贡献之外, 还包含有电四极矩跃迁饱和效应的贡献在内.

将 $(\omega_1, \mathbf{k}_1)$ 的波长固定在电四极矩跃迁峰值点 (289.365nm) 处, 而在钠原子 D_1 线的波长附近改变 $(\omega_2, \mathbf{k}_2)$ 的波长, 可以发现只有在 D_1 线的长波边才能观察到三波差频光输出. 正如前面所讨论的那样, 这反映了相位匹配的要求. 图 5 显示了三波差频光强与入射光 $(\omega_2, \mathbf{k}_2)$ 波长的关系. 由图 5 可见, 当 $(\omega_2, \mathbf{k}_2)$ 的波长在 D_1 线长波边失调 0.05—0.85nm 的范围内都能观察到三波差频光输出. 在炉温为 422℃ 时, 差频光强峰值出现在调偏 0.3nm 附近, 这相当于 $\Delta\omega = -9\text{cm}^{-1}$.

图4 差频光强相对入射光 $(\omega_1, \mathbf{k}_1)$ 波长的调谐曲线图5 差频光强相对入射光 $(\omega_2, \mathbf{k}_2)$ 波长的调谐曲线

入射光 $(\omega_2, \mathbf{k}_2)$ 的最佳调偏量与热管炉温度也即钠原子的密度有关, 这是因为如(9)式所表明的那样, 钠蒸汽的折射率不仅与波长有关, 而且与钠原子的密度 N 有关. 图6表示三波差频光强与热管炉温度的关系. 实际上图5和图6一样, 都体现了三波差频的相位匹配关系. 当 $(\omega_2, \mathbf{k}_2)$ 调偏量为 0.3nm 时, 最佳炉温为 422°C , 相应的钠原子密度为 $N = 8.5 \times 10^{15}/\text{cm}^3$.

当 $\mathbf{k}_1$ 和 $\mathbf{k}_2$ 之间的夹角 θ 一定(在我们的实验中, $\theta \simeq 26\text{mrad}$) 的条件下, 为了获得最大的三波差频光强, 根据相位匹配要求, 钠原子密度越高, 入射光 $(\omega_2, \mathbf{k}_2)$ 的调偏量将越大. 图7表示当 $\theta \simeq 26\text{mrad}$ 时满足相位匹配条件的 $(\omega_2, \mathbf{k}_2)$ 调偏量与钠原子密度的关系. 图7中钠原子密度由热管炉温度计算得到. 图7中曲线为理论计算结果, 计算时利用(9)式, 有关的能级数值和跃迁几率由文献[9,10]中可以查到. 图中空心圆点表示实验数据. 由图7可见实验数据与理论曲线符合得相当好, 出现微小的偏离其主要原因是炉温的测量值与钠蒸汽的实际温度之间多少有一些差别, 此外 $\mathbf{k}_1$ 和 $\mathbf{k}_2$ 之间夹角的测量精度也不够高.

我们曾试图观察碰撞感生的额外共振, 但是没有观察到. 正如前面分析的那样, 这种共振将出现在入射光 $(\omega_1, \mathbf{k}_1)$ 对 $3s \rightarrow 4d$ 四极矩跃迁的调偏量 $(\omega_1 - \omega_{3s \rightarrow 4d})$ 和 $(\omega_2, \mathbf{k}_2)$ 对钠 D_1 线的调偏量 $(\Delta\omega = \omega_2 - \omega_{3s \rightarrow 3p_{1/2}})$ 相等的条件下. 由图4可见, $(\omega_1, \mathbf{k}_1)$ 允许的最大调偏量小于图5所示的 $(\omega_2, \mathbf{k}_2)$ 的最小调偏量, 以致上述条件得不到满足. 换言之, 在 $(\omega_1, \mathbf{k}_1)$ 与 $(\omega_2, \mathbf{k}_2)$ 具有相同调偏量的情况下, 三波差频信号已经如此微弱, 以致即使存在碰撞感生的额外共振也观察不到它. 我们尝试减小 $(\omega_2, \mathbf{k}_2)$ 的调偏量, 但根据相位匹配要求, 炉温也应相应降低, 三波差频信号随之减小. 我们相信, 提高两束入射光的强度, 以提高三波差频信号的强度是观察碰撞感生额外共振的首要前提.

进一步的实验工作还在进行之中.

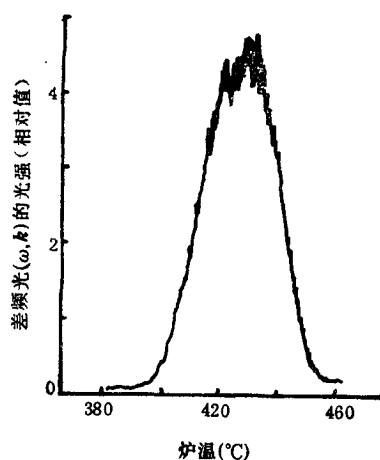
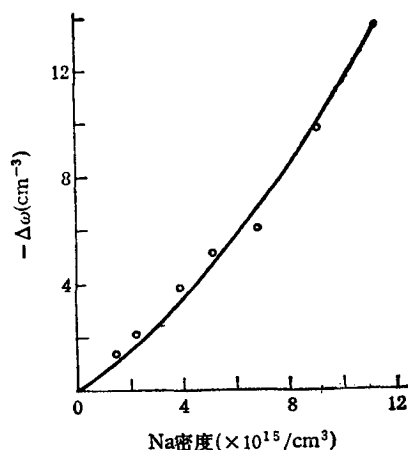


图6 差频光强与热管炉温度的关系

图7 满足相位匹配条件的 (ω_2, k_2) 调偏量与钠原子密度的关系

- [1] Y. R. Shen, *The Principles of Nonlinear Optics* (John Wiley & Sons, 1984).
- [2] D. S. Bethune, R. W. Smith and Y. R. Shen, *Phys. Rev. Lett.*, **37**(1976), 431.
- [3] D. S. Bethune, R. W. Smith and Y. R. Shen, *Phys. Rev.*, **A17**(1978), 277.
- [4] Y. R. Shen, *The Principles of Nonlinear Optics*, Chapter 2.
- [5] J. Druet, B. Attal, T. K. Gustafson and J. P. Taran, *Phys. Rev.*, **A18**(1978), 1529;
S. Y. Yee and T. K. Gustafson, *Phys. Rev.*, **A18**(1978), 1597.
- [6] N. Bloembergen, in *Laser Spectroscopy IV* (Springer, Berlin, 1979) p. 340.
- [7] Y. Prior, A. R. Bogdan, M. Dagenais and N. Bloembergen, *Phys. Rev. Lett.*, **46**(1981), 111.
- [8] G. Grynberg, *Collision-induced Processes in Nonlinear Optics*, Published on 8th International Conference on Spectral Line Shape (Williamsburg, June, 1986).
- [9] E. Moore, *Atomic Energy Levels*, Vols 1—3, (Washington, D. C.: NBS, 1958).
- [10] H. Eicher, *IEEE J. Quantum Electronics*, **QE-11**(1975), 121.
- [11] N. Allard and J. Kielkopf, *Rev. Mod. Phys.*, **54**(1980), 1103.
- [12] 邹英华, 夏宗炬, 王永达, *激光*, **7**(1980), 20.

THREE-WAVE DIFFERENCE-FREQUENCY GENERATION IN SODIUM VAPOR

XIA ZONG-JU ZOU YING-HUA

(Department of Physics, Peking University)

ABSTRACT

Electric quadrupole transition enhanced three-wave difference-frequency generation in isotropic medium is investigated. Taking account of the contribution of electric quadrupole interaction, we derive the second-order nonlinear susceptibility. We also discuss the possibility of observation of collision induced second-order nonlinear optical processes. The experiments are performed with $3s \rightarrow 4d$ electric quadrupole transition in sodium vapor. The experimental results agree with theoretical predictions.