

鹼金屬蒸汽中的非線性光學

陸懋宏

自從雷射發明以後，非線性光學獲得了迅速的發展。1961年由FRANKEN等人⁽¹⁾首先利用非線性晶體產生二次諧波，為非線性光學的發展樹立了新的里程碑。1963年MAKER等人⁽²⁾發表了利用晶體、玻璃和液體產生三次諧波。1967年NEW和WARD⁽³⁾發表了利用會聚的紅寶石雷射在氣體中產生三次諧波。此後許多人利用金屬蒸汽作為介質來研究非線性光學的一些過程。

由于鹼金屬具有類氫的原子結構，激發態也比較簡單，利用量子力學計算一些非線性參數也比較容易。利用雷射來研究鹼性金屬蒸汽的非線性光學現象無論在實驗上還是在理論上都引起了相當大的興趣。根據電磁理論，電場在介質中所引起的極化在電偶極近似下可表示為：

$$\vec{P} = \epsilon_0 (\chi^{(1)} : \vec{E} + \chi^{(2)} : \vec{E} \vec{E} + \chi^{(3)} : \vec{E} \vec{E} \vec{E} + \dots) \quad (1)$$

其中 $\vec{E}$ 為介質中之電場，定義為：

$$\vec{E} = \frac{1}{2} \sum_j [\vec{E}(\omega_j) e^{i\omega_j t} + \vec{E}^*(\omega_j) e^{-i\omega_j t}] \quad (2)$$

ϵ_0 是真空介電常數，和 χ 是介質的極化率。 χ 是一個張量，它的上標表示它的級數。(1)式的右方括號中是張量 χ 和電場向量 $\vec{E}$ 的乘積。第一項為線性極化。第二項以後的各項為非線性極化項，在通常弱電場情況，非線性極化項相對於線性項都十分小，可以忽略不計。當電場愈來愈大時，非線性就愈來愈明顯。雷物理會刊(十二卷六期) 1990年

射光束所提供的強電場為觀察非線性極化項創造了條件。非線性極化項中最容易觀察到的是 $\chi^{(2)}$ ，隨著 $\chi^{(\ell)}$ 級數 ℓ 的增加， $\chi^{(\ell)}$ 值迅速減小。但是由對稱性的考慮，如果介質具有中心對稱，則 $\chi^{(2n)} = 0$ ，其中 n 為正整數。即所有偶數級的極化率為零。對於鹼金屬蒸汽，由于具有中心對稱性，能觀察到的非線性極化項最低級將是 $\chi^{(3)}$ 。也就是所產生的極化將正比于電場的三次方。在一般情況下， $\chi^{(3)}$ 要比 $\chi^{(2)}$ 小很多，很難被觀察到。由於鹼金屬蒸汽中，二級極化率 $\chi^{(2)}$ 為零，而三級極化率 $\chi^{(3)}$ 在通常情況下又十分小。因此即使採用相當大功率的雷射也很難觀察到非線性極化。例如對應於三次諧波產生的三級極化率 $\chi^{(3)}$ ，根據量子理論可以表示成：

$$\chi^{(3)}(-3\omega, \omega, \omega, \omega) = \frac{N}{\epsilon_0 \hbar^3} \sum_{a,b,c} \rho(g) \left[\frac{\langle g|z|a\rangle \langle a|z|b\rangle \langle b|z|c\rangle \langle c|z|g\rangle}{(\Omega_{ag}-\omega)(\Omega_{bg}-2\omega)(\Omega_{cg}-3\omega)} + \frac{\langle g|z|a\rangle \langle a|z|b\rangle \langle b|z|c\rangle \langle c|z|g\rangle}{(\Omega_{ag}-\omega)(\Omega_{bg}-2\omega)(\Omega_{cg}+\omega)} + \frac{\langle g|z|a\rangle \langle a|z|b\rangle \langle b|z|c\rangle \langle c|z|g\rangle}{(\Omega_{ag}-\omega)(\Omega_{bg}+2\omega)(\Omega_{cg}+\omega)} + \frac{\langle g|z|a\rangle \langle a|z|b\rangle \langle b|z|c\rangle \langle c|z|g\rangle}{(\Omega_{ag}+3\omega)(\Omega_{bg}+2\omega)(\Omega_{cg}+\omega)} \right] \quad (3)$$

這裡 N 是原子或分子的密度， $\hbar = \frac{h}{2\pi}$ ，其中 h 是PLANCK常數， $\rho(g)$ 表示原子處於基態的幾率，

$\Omega_{ij} = \frac{E_i - E_j}{\hbar}$ 是兩能級 i 和 j 之間能量差所對應的

的角頻率。上式中當入射光頻率 ω 和它的兩倍頻 2ω 及三倍頻率 3ω 偏離原子能級間共振頻率甚遠時，所給出的 $\chi^{(3)}$ 將十分小。如果 ω ， 2ω 和 3ω 中一個與原子允許躍遷的共振頻率接近或相等時，(3)式等號右方括號中的能量分母就可能趨近於零，從而使(3)式成為無窮大。由於原子能級具有一定的寬度，因此在十分接近於共振時，(3)式分母必須加上一虛數的阻尼項，以表示能級之寬度，使得(3)式不可能成為無窮大。但在共振或接近共振時， $\chi^{(3)}$ 將會比遠離共振時大許多數量級。這種共振增強或接近共振增強，使得原來因為太小而無法觀察到的非線性極化現象成為相當容易被觀察到。正因為利用共振方法可以大大提高非線性極化率，利用鹼金屬蒸汽就有可能觀察到高級非線性極化的現象。

本實驗室近幾年來，利用鹼金屬蒸汽，特別是鉀蒸汽，作為非線性介質，採用雙光子共振的方法來增強非線性極化率，從而觀察到一系列非線性光學的現象。下面我們將具體介紹某些實驗結果。

一、實驗裝置：

圖(1)是一個用於多波混合測量的實驗裝置示意圖

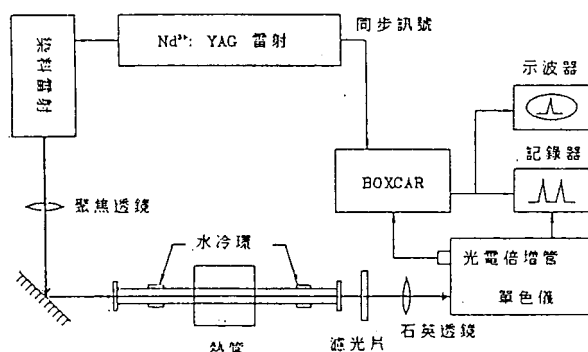


圖 1 多波混合實驗裝置示意圖

。利用一脈衝 Nd^{+3} : YAG 雷射，經倍頻 (552nm) 後激勵一脈衝染料雷射。利用適當的染料就可以獲得所需要的波長來激發鹼金屬原子的雙光子共振。染料雷射的波長可以調諧，其輸出線寬為 0.25 cm^{-1} 。每一脈衝的最大輸出能量隨染料和波長而變化，通常在 60mJ，脈衝的時寬為 25 ns，重複頻率為 10Hz。

在實驗中所需要的鹼金屬蒸汽是由熱管⁽⁴⁾ (heat pipe) 所產生。所用的鹼金屬樣品置於不銹鋼的熱管當中，在抽真空後充入適當量的惰性氣體（如氮氣、氬氣等）作為緩衝氣體。熱管密封後加熱至一定的溫度，管內即產生一定密度的鹼金屬蒸汽。為了防止鹼金屬蒸汽在接觸溫度較低的窗口而凝結在窗口上影響雷射光的通過，在管的兩端都裝有相當長度的水冷套，使得鹼金屬蒸汽在未達到窗口前就已凝結在管壁上。這樣在管內接近窗口的溫度較低處由緩衝氣體形成了一個阻擋層，來阻止鹼金屬蒸汽接近窗口，防止窗口被沾污。為了使得凝結在水冷套附近管壁上液態鹼金屬能迅速回到管中央，在管壁置一層不銹鋼絲網，利用毛細管作用，使金屬蒸汽在管壁液化後立即吸向管中心，形成一個循環。熱管的壽命取決於在整個建立過程中的清潔處理，熱管的真空密封度，溫度的控制以及緩衝氣體氣壓是否匹配等因素。在正常情況下，熱管可以工作幾周。

雷射和鹼金屬蒸汽相互作用後產生的光譜，由單色儀進行分譜，再由光電倍增管進行測量。由於非線性參量過程所產生的光為前向輻射，幾乎同雷射光相重疊，而非線性極化所輻射的光束強度要比雷射光小許多數量級，因此消除雷射光對測量的影響是光譜測量成功的關鍵。這裡採用適當的吸收濾光片，對雷射波長衰減達 10^{-5} 以上，以保證對非線性光信號的測量不受干擾。有時需要測量與雷射光反向的輻射信號，這時雷射光的干擾將不存在。

此外，在實驗中為了對鹼金屬蒸汽在雷射作用下的狀態有所瞭解，我們通常在熱管中平行於管壁插入一細的不銹鋼棒，此鋼棒與熱管相互絕緣。當棒相對

物理會刊 (十二卷六期) 1990 年

管壁加一負電壓後，就構成了一個二級管，可用來非常靈敏地測量鹼金屬蒸汽在雷射光作用下所產生的離化電流。

二、多波混合過程：

數個相同或不相同頻率的光波，在同非線性介質相互作用，而產生和頻或差頻，形成一個新頻率的光波。根據非線性光學理論，新頻率光波要能夠顯著地形成必須滿足兩個條件：

$$\omega_r = \sum_j \omega_j \tag{4}$$

和

$$\vec{k}_r = \sum_j \vec{k}_j \tag{5}$$

這裡 ω_j 和 $\vec{k}_j$ 分別是入射光波的頻率和波矢（wave vector）， ω_r 和 $\vec{k}_r$ 是產生的和頻或差頻的頻率和波矢。如果把光波耦合看成是光子的相互作用，(4)和(5)式就可看成是光子相互作用過程中能量和動量守恒。如果考慮入射波為共線的情況，利用 $k_i = \frac{\omega_i}{c} = n_i$ ，(5)式可寫成：

$$n_r \omega_r = \sum_j n_j \omega_j \tag{6}$$

顯然由於條件(4)和(5)的限制，並不是所有存在波的任意組合都能產生足夠大的新電磁波，也就是說，只有能滿足上述條件的那些非線性極化才能被觀察到。

利用脈衝染料雷射來激發鉀蒸汽，圖(2)是鉀原子的能級圖。當波長調諧至 $4S - 8S^{(3)}$ ， $4S - 7S$ ， $4S - 6D$ 和 $4S - 5D$ 雙光子共振時⁽⁶⁾，我們在 300 - 370 nm 波長範圍內分別測量到 27，23，28 和 18 條譜線，這些譜線經分析確定來自於：(1)四波混合，兩個雷射光子和一個紅外光子耦合， $\omega_r = 2\omega_P \pm \omega_{IR}$ ；和(2)六波混合，兩個光子和三個紅外光子耦合， $\omega_r = 2\omega_P \pm \omega_{IR} \pm \omega'_{IR} \pm \omega''_{IR}$ 。由於鉀蒸汽具有中心對稱，所有偶數非線性極化率為零。因此，上面兩過程分別對應於 $\chi^{(3)}$ 和 $\chi^{(5)}$ 。在過程中參與的大量不同波長的紅外光波是來自於高激發態向低態的躍遷所形成的輻射。這些輻射的產生機構包括光泵受激物理會刊（十二卷六期）1990 年

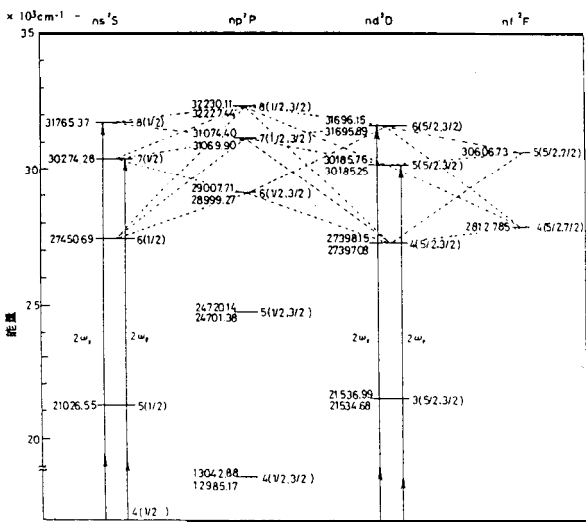


圖 2 鉀原子能級圖。圖中虛線表示產生紅外光子的躍遷。

輻射（OPSE），受激電子態 Raman 散射（SERS），放大自發輻射（ASE）等。這些過程中產生的紅外光子與雷射光子在介質中耦合形成了三級和五級非線性極化，可表示為：

$$\vec{P}^{(3)}(\omega_r) = \epsilon_0 \chi^{(3)}(-\omega_r; \omega_\ell, \omega_\ell, \pm \omega_{IR}) : \vec{E}_\ell \vec{E}_\ell \vec{E}_{IR}^{(*)} \tag{7}$$

和 $\vec{P}^{(5)}(\omega_r) =$

$$\epsilon_0 \chi^{(5)}(-\omega_r; \omega_\ell, \omega_\ell, \pm \omega_R, \pm \omega'_{IR}, \pm \omega''_{IR}) :$$

$$\vec{E}_\ell \vec{E}_\ell \vec{E}_{IR}^{(*)} \vec{E}_{IR}^{(*)} \vec{E}_{IR}^{(*)} \tag{8}$$

其中 $\vec{E}_\ell$ 和 $\vec{E}_{IR}$ 分別是雷射光電場和紅外光電場，頻率 ω 前的正或負號對應於光子的吸收或發射。共軛場對應於光子發射。在平面波近似下，非線性極化所產生的輻射強度可表示成

$$I^{(n)}(\omega_r) = \frac{\omega_r^2}{8\epsilon_0 c n_r} |P^{(n)}(\omega_r)|^2 L^2 \text{sinc}^2(\Delta k L/2) \tag{9}$$

這裡函數 $\text{sinc} x = \frac{\sin x}{x}$ ，L 是介質和光相互作用長度

，c 是真空光速，和 $P^{(n)}(\omega_r)$ 表示頻率為 ω_r 的 n 級極化。 Δk 表示相失配，定義為：

$$\Delta k = | \vec{k}_r - \sum \vec{k}_i | \tag{10}$$

當 $\Delta k = 0$ 時，即滿足在相互作用中光子動量守恒時， $\text{sinc} \frac{\Delta k L}{2} = 1$ ，這時稱為相匹配。在相匹配條件下，(9)式給出最大的信號強度輸出。隨著 Δk 的增加，非線性極化的輻射強度迅速消失。在正常情況下，折射率常隨著波長的增加而減少，利用共線的平行光束，按照(6)來達到相匹配是有困難的。在實驗中採用適當的會聚雷射光束，以提供相匹配所要求的角度。

在本實驗中參與多波混合的光子，除雷射光是外加輻射場外，其它紅外光子均来自于鉀原子在雷射激發下引起之輻射，因此這些紅外光子隨著雷射光的傳播而獲得增益，可表示為：

$$E_{IR}(z) = E_{IR}(0) e^{1/2 g_{IR} z - i k_{IR} z} \tag{11}$$

這裡假定雷射沿 z 方向傳播和 g_{IR} 是紅外光場的增益係數。如果略去雷射光通過鉀蒸汽所引起的衰減，這在絕大多數情況是一個十分好的近似，雷射光強度可認為是一常數。同時略去所產生紫外光被再吸收的可能性，我們就可以得到多波混合所產生的輻射功率滿足：

$$I_r \sim \frac{1}{[(\sum g_{IR})^2 + 4(\Delta k)^2]} \tag{12}$$

這裡 $\sum g_{IR}$ 是對所有參與混頻的紅外光子增益求和。由上式可以看到，當 $\sum g_{IR} \gg |\Delta k|$ 時，相失配的影響就可以忽略不計。這說明，即是採用共線混頻，雖然不能滿足相匹配要求，依然能觀察到許多混頻所產生的譜線。

我們把鉀蒸汽 $4S - 6D$ 雙光子共振激發所產生的譜線列于表 1，表中第一列是實驗所測得的波長（空氣波長）。第二列是所測得這些譜線的相對強度，這裡我們把波長為 344.65nm 的譜線強度定為 1000，表中第四列中列出各譜線的多波混合過程，對於每一個參與的光子都被標明是由哪兩個能級之間躍遷所產生。根據這些過程，由鉀原子能級的數據（見圖 2），我們可求得理論上的波長，並置於表中第三列。表

的最後兩列給出了在譜線產生過程中共振增強的影響，這包含嚴格共振增強和接近共振增強。嚴格共振對非線性極化高級項的增強影響最大。對於接近共振增強的大小取決于過程偏離共振的大小。在表最後一列我們也給出了每一近共振與嚴格共振之間的偏差值。

在圖 3 中，我們畫出了三條譜線的四波混合產生過程。圖中可以看到，產生波長 344.6nm 譜線的過

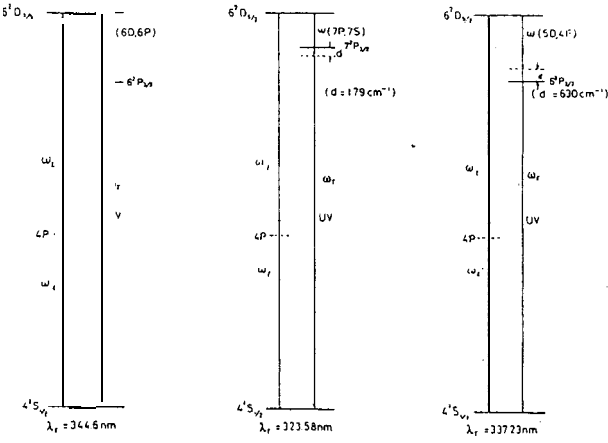


圖 3 典型的四波混合過程示意圖。圖中 ω_L 表示雷射光子。 ω_r 是最終產生的光子。 $\omega(7P, 7S)$ 表示由躍遷 $7P \rightarrow 4S$ 所產生的紅外光子。 d 表示與共振的偏差。

程：兩個雷射光子和一個來自對應于 $6D \rightarrow 6P$ 躍遷的光子耦合而產生。此過程中受到雙重共振增強，一個是雷射形成的 $4S - 6D$ 雙光子共振，另一個是 $6D - 6P$ 共振。此兩度共振增強使 344.6 nm 譜線具有十分高的強度，相對強度達到 1000。但是該波長的光也將遭到鉀原子基態的重新吸收，這將使得譜線強度的增加受到限制。譜線 323.58nm 的產生是由兩個雷射光子和一個來自對應于 $7P \rightarrow 7S$ 躍遷的光子耦合而產生。此過程由一個共振和一個接近共振所增強。在接近與 $7^2P_{3/2}$ 能級共振時其偏差為 179 cm^{-1} 。該譜線的相對強度為 396，要比 344.6 nm 譜線弱得多。337.23nm 譜線的產生機構類似于 323.58nm 譜線，只是在接近與 $6^2P_{3/2}$ 能級共振偏差為 630 cm^{-1}

表 1 在 $4^2S_{1/2} - 6^2D_{5/2}$ 雙光子共振下，在 300 — 400 nm 波段所測得的譜線波長，相對強度和產生機構及其特徵。這裡所得到波長為空氣波長。

$2\omega_1$ (6D, 4S)		激發波長 = 630.83 (nm)		特徵	
實驗值 λ (nm)	相對強度	理論值 λ (nm)	耦合機構	共振	近共振
308.58	141	308.62	$2\omega_1 - \omega(6D, 5F) - \omega(7P, 5D) + \omega(4D, 5P)$	二重	二重, $d_1=105.3\text{cm}^{-1}, d_2=64\text{cm}^{-1}$
309.38	147	309.35	$2\omega_1 + \omega(6D, 7P)$	一重	一重, $d=13.4\text{cm}^{-1}$
313.05	171	313.02	$2\omega_1 - \omega(6D, 6P) - \omega(4D, 4P) + \omega(7S, 4P)$	二重	一重, $d=285.6\text{cm}^{-1}$
317.35	225	317.35	$2\omega_1 - \omega(6D, 6P) - \omega(5D, 6P) + \omega(7P, 4D)$	二重	一重, $d=31.6\text{cm}^{-1}$
319.40	384	319.42	$2\omega_1 - \omega(6D, 5F) + \omega(6S, 5P) - \omega(5D, 4F)$	二重	二重, $d_1=217.4\text{cm}^{-1}, d_2=222.7\text{cm}^{-1}$
321.71	6480		$2\omega_1 - \omega(6D, 7P)$	二重	
323.58	396	323.58	$2\omega_1 - \omega(7P, 7S)$	一重	一重, $d=179\text{cm}^{-1}$
330.48	192	330.49	$2\omega_1 - \omega(6D, 7P) - \omega(6P, 6S) + \omega(4F, 4D)$	二重	一重, $d=40.2\text{cm}^{-1}$
337.15	180	337.14	$2\omega_1 - \omega(6D, 7P) + \omega(7S, 6P) - \omega(4D, 5P)$	二重	一重, $d=248.8\text{cm}^{-1}$
337.23	132	337.28	$2\omega_1 - \omega(5D, 4F)$	一重	
338.64	144	338.64	$2\omega_1 - \omega(6D, 7P) + \omega(5D, 6P) - \omega(6S, 5P)$	一重	二重, $d_1=67.2\text{cm}^{-1}, d_2=42.6\text{cm}^{-1}$
339.20	214	339.20	$2\omega_1 - \omega(6D, 6P) - \omega(6D, 7P) + \omega(6D, 5F)$	二重	一重, $d=87.5\text{cm}^{-1}$
340.22	144	340.22	$2\omega_1 - \omega(6D, 7P) - \omega(7P, 7S) - \omega(7P, 5D)$	三重	
344.66	1000		$2\omega_1 - \omega(6D, 6P)$	二重	
345.92	195	345.92	$2\omega_1 - 2\omega(6D, 7P) - \omega(6P, 6S)$	二重	二重, $d_1=179.5\text{cm}^{-1}, d_2=94.2\text{cm}^{-1}$
348.00	270	348.00	$2\omega_1 - \omega(6D, 7P) + \omega(5F, 4D) - \omega(7S, 5P)$	二重	二重, $d_1=49.3\text{cm}^{-1}, d_2=270.2\text{cm}^{-1}$
348.12	234	348.12	$2\omega_1 - \omega(6D, 7P) - \omega(7P, 7S) - \omega(6P, 6S)$	三重	一重, $d=282\text{cm}^{-1}$
348.80	123	348.78	$2\omega_1 - \omega(6D, 7P) - \omega(7P, 7S) - \omega(6P, 4D)$	三重	一重, $d=335.7\text{cm}^{-1}$
352.40	138	352.40	$2\omega_1 - \omega(6D, 6P) - \omega(6D, 6P) + \omega(5D, 4F)$	二重	
353.40	132	353.41	$2\omega_1 - \omega(6D, 5F) - \omega(5F, 4D) + \omega(7P, 5D)$	三重	
357.40	23	357.42	$2\omega_1 - \omega(6D, 7P) - \omega(6P, 6S) - \omega(6P, 6S)$	二重	
358.71	120	358.71	$2\omega_1 - \omega(6D, 7P) - \omega(7P, 6S) + \omega(5F, 5D)$	一重	
359.40	111	359.39	$2\omega_1 - \omega(6D, 7P) - \omega(7P, 4D) + \omega(5F, 5D)$	三重	
365.14	123	365.14	$2\omega_1 - \omega(6D, 6P) + \omega(6P, 6S) - \omega(5P, 3D)$	二重	一重, $d=290.8\text{cm}^{-1}$
365.45	147	365.45	$2\omega_1 - \omega(6D, 6P) - \omega(5F, 4D) + \omega(6P, 6S)$	三重	一重, $d=290.8\text{cm}^{-1}$
369.48	96	369.49	$2\omega_1 - \omega(6D, 5F) + \omega(7P, 7S) - \omega(6S, 5P)$	二重	
369.74	105	363.8,	$2\omega_1 - \omega(6D, 7P) - \omega(7P, 6S) - \omega(5F, 5D)$	一重	
315.42	25	S.H.G			

，此偏差顯然大于 323.58nm 譜線的偏差，因而譜線強度降為 132，從理論上考慮譜線強度時，除了考慮在極化率表示式中能量分母的影響外，也還必須考慮參與混頻的光波強度和矩陣元之大小。在這裡除了雷射光為外加場外，所有參與的光場都是由鉀蒸汽本身受激產生。因此，參與的光場強度是不同的。

在圖 4 中描繪了三個六波混合耦合過程示意圖。

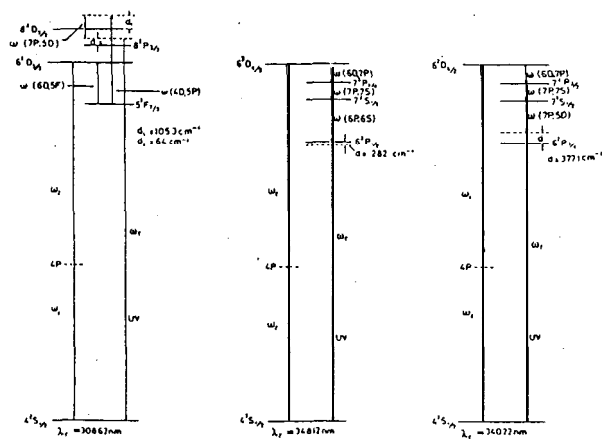


圖 4 典型的六波混合過程示意圖。符號表示的意義與圖 3 相同。

在圖中可以看到，對應於 308.62nm 譜線的產生機構中受到兩重共振和二重接近共振的增強。在 348.12 nm 和 340.22 nm 譜線的產生機構中都受到三重共振和一個接近共振的增強過程。產生參與光波的原子躍遷也標示于圖中。六波混合對應於五級極化率 $\chi^{(5)}$ 。在通常情況下非常小，再加上相匹配的要求，幾乎無法被觀察到。在鉀蒸汽中，由於共振和接近共振的增強，使得五級非線性極化被清楚地觀察到。

事實上，在分析譜線的產生機構時，我們發現其過程並非是唯一的。一根譜線在測量誤差範圍內可以由不同的光子耦合過程產生。在圖 5 中描繪了產生的兩個不同過程。我們選擇非線性極化級數較低，在接近共振增強時偏差最小，和所要求的相匹配角最小的過程列于表中。

我們對所觀察的四波混合和六波混合過程中角度相匹配進行了計算。圖 6 給出兩類角度相匹配的幾何結構。在相匹配角計算所需的折射率由 Sellmeier 公式求得：

$$n(\bar{\nu}) = 1 + \frac{N\tau_e}{2\pi} \sum_{\alpha \geq 4} \frac{f_{\alpha P}}{\bar{\nu}_{\alpha P} - \bar{\nu}^2} \tag{13}$$

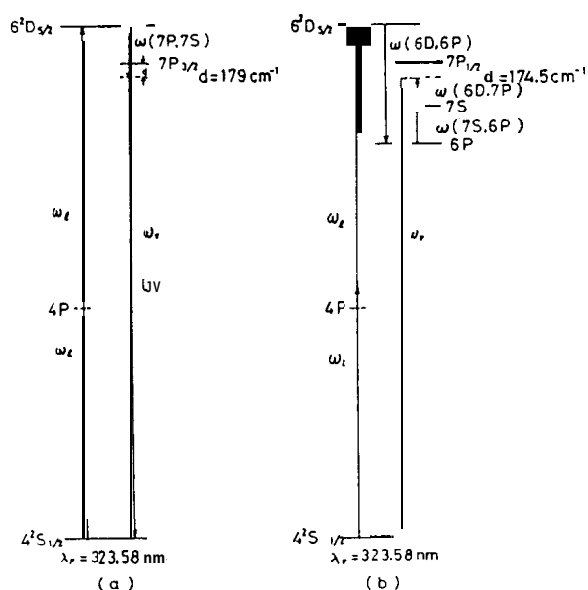


圖 5 對應於產生 323.58nm 譜線的兩個可能過程。
(a)為四波混合過程， $\omega_r = 2\omega_l - \omega(7P_{3/2} - 7S)$ 。
(b)為六波混合過程， $\omega_r = 2\omega_l - \omega(6D_{5/2}, 6P_{3/2}) + \omega(6D_{5/2}, 7P_{3/2}) + \omega(7S, 6P_{3/2})$ 。

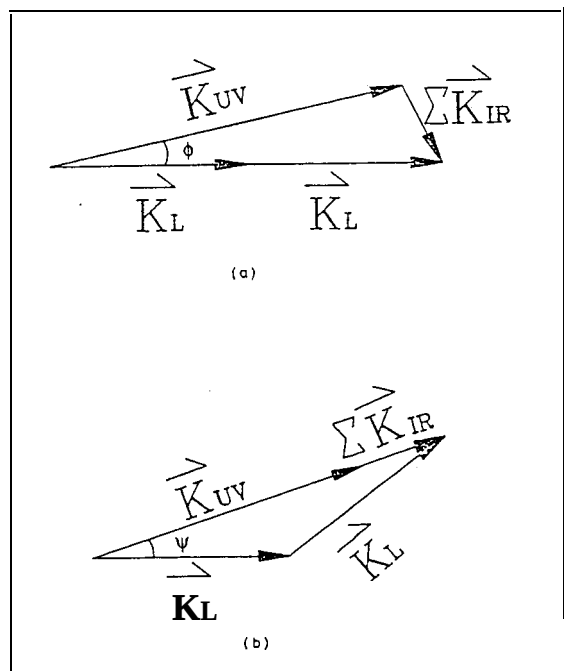


圖 6 角度相匹配的兩種模式。(a)兩雷射波共線耦合，
(b)和頻產生的紫外波與參與的紅外光波共線。

其中 $\tau_e = 2.818 \times 10^{-13} \text{ cm}$ ； $\bar{\nu}_{nP}$ 是鉀原子 nP 態的能量，以波數 (cm^{-1}) 來表示； $N \approx 10^{16} / \text{cm}^3$ 是鉀蒸汽在 350 °C 時的原子濃度； f_{nP} 表示鉀原子 4 S 態到 nP 態的振子強度 (oscillator strength)。在上式對所有主量子數 $n \geq 4$ 的 P 態求和。按照圖(6)所示的兩類角度相匹配模式求得各譜線的相匹配角，列于表 2。由表中可看到所有的相匹配角都在 10mrad 以下，在實驗中採用會聚的雷射光束，很容易滿足所要求的角度相匹配條件。在表 2 中未列入 321.71 nm 和 344.66 nm 兩條譜線。這兩條譜線分別同 7 P 和 6 P 能級共振，根據(3)式其折射率成為無窮大。事實上，在嚴格共振時，折射率將沒有意義。

表 2 在 $4^2S_{1/2} - 6^2D_{5/2}$ 雙光子共振小，按圖 6 中兩種模式所計算的相位匹配角

實驗值 (nm)		相匹配角 (mrad)	
λ		ψ	ϕ
308.68		2.9	
309.38		1.8	
313.05		1.8	
317.35		0.5	
319.40		1.5	
323.58		0.9	
330.48		2.8	
337.15			5.4
337.23		5.6	
338.64		1.3	
339.20		2.4	
340.22			3.8
345.92		1.7	
348.00			1.6
348.12		2.2	
348.80			10.1
352.40			0.4
353.40		4.5	
357.40		5.5	
358.71			5.5
359.40			4.7
365.14		2.1	
365.45		0.5	
369.48		4.2	
369.74		9.4	

三、二次諧波的產生：

在鹼金屬蒸汽中三次諧波的產生是一個典型的四波混合過程，在共振增強的條件下，很容易被觀察到。但是二次諧波產生通常是被認為是一個三波混合過程
物理會刊（十二卷六期）1990 年

程，由二級極化率 $\chi^{(2)}$ 所產生。顯然在具有中心對稱的鹼金屬蒸汽中，由於 $\chi^{(2)}=0$ ，使得三波混合產生二次諧波在理論上是不可能的。但出乎意料地，1987年Mossberg⁽⁷⁾等人首先在鉈(Tl)蒸汽中觀察到了二次諧波，稍後在銻⁽⁸⁾，鋇⁽⁹⁾，鋰⁽¹⁰⁾，汞⁽¹¹⁾，鈉⁽¹²⁾和鉀^(13,14,15)中都觀察到了二次諧波。下面我們以鉀蒸汽為例來說明我們所測得的一些結果。

利用可調諸染料雷射，當波長分別調至 $4S-nS$ ($n=6-9$) $4S-nP$ ($n=5-8$)和 $4S-nD$ ($n=3-7$)雙光子共振時，我們觀察到了對應于每一個雙光子共振時所產生的二次諧波。所測得結果示於圖7和圖8。從圖中可以看出二次諧波的信號相當明顯。特別在 $4S-3D$ 雙光子共振時，二次諧波信號非常強。根據量子理論，在 $4S-nS$ 和 $4S-nD$ 雙光子共振時可以產生原子態的躍遷，分別形成 nS 和 nD 激發態。如果二次諧波來自受激原子的輻射，則對受激的 nD 態可以產生四極輻射⁽¹⁶⁾。但是 $nS-4S$ 的四極輻射躍遷是不可能的。因此用四極輻射無法解釋 $4S-nS$ 雙光子共振所產生的二次諧波。

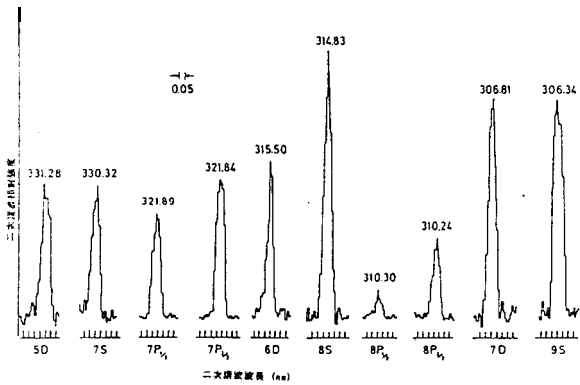


圖7 對應於 $4S-nS$ ($n=7, 8, 9$)， $4S-nP$ ($n=7, 8$)和 $4S-nD$ ($n=5, 6, 7$)雙光子共振所產生的二次諧波。系統譜響應的影響未作修正⁽¹⁴⁾。

特別有趣的是在 $4S-nP$ 雙光子共振時也能產生二次諧波。而 $4S-nP$ 雙光子躍遷在偶極近似下是被禁戒的。也就是說，盡管 $4S-nP$ 在雙光子共振下，物理會刊(十二卷六期)1990年

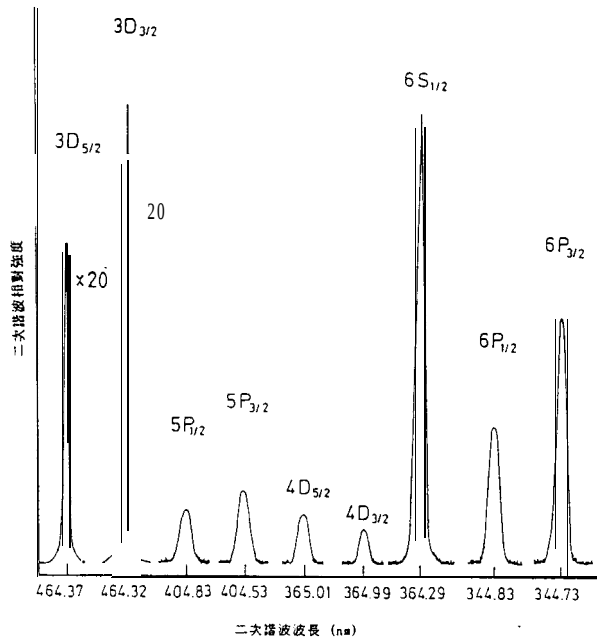


圖8 當雷射波長調至 $4S-6S$ ， $4S-nP$ ($n=5, 6$)和 $4S-nD$ ($n=3, 4$)時所測得的二次諧波。系統譜響應的影響已作修正⁽¹⁵⁾。

原子在理論上並未被激發至 nP 態。因此可以認為二次諧波是由波的混合而產生。當然這種情況下所產生的二次諧波將會被鉀原子吸收，形成 $4S-nP$ 偶極躍遷。

爲了來探討二次諧波的產生機構，我們測量了當雷射波長偏離共振時二次諧波的變化。同時我們也測量了在相同條件下，蒸汽中離化電流的大小。部份結果示於圖9。離化電流的測量能十分靈敏地反映被光子激發的原子激發態的數量。這些激發態在熱運動的碰撞下而離化，形成離化電流。事實上，在強的雷射光作用下，即使在不共振的情況下，鉀蒸汽也會產生多光子離化。這種離化產生的電流形成了離化電流測量中的直流背景，在一定波長範圍內它與波長的變化無關。

由圖9可以看出，當波長偏離共振相當遠時，二次諧波依然可以產生。而從離化電流譜可以清楚看到對應于 $4S-nS$ 和 $4S-nD$ 雙光子共振時的尖銳峯值

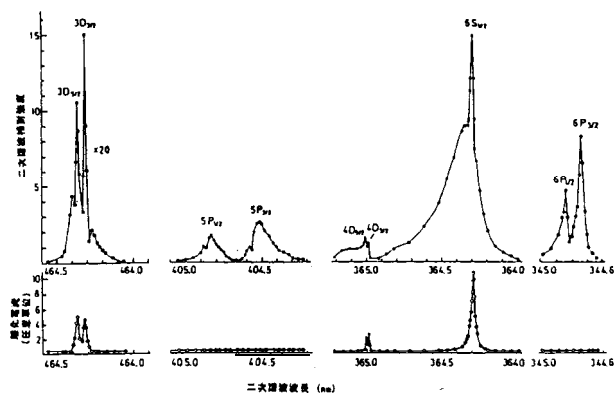


圖 9 當雷射波長在 $4S-6S$, $4S-nP$ ($n=5, 6$) 和 $4S-nD$ ($n=3, 4$) 附近調諧時，二次諧波強度和對應的離化電流隨雷射波長的變化。鉀蒸汽濃度為 $1.4 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ 和雷射束強度為 $1.7 \times 10^8 \text{ W/cm}^2$ ⁽¹⁵⁾。

。它說明峯值所在處存在大量被雙光子激發的原子，但隨著波長偏離雙光子共振，被激發的原子迅速減少。但是這時二次諧波依然有相當大的信號。當 $4S-nP$ 雙光子共振時，離化電流沒有任何共振峯的出現，這也證明了在 $4S-nP$ 雙光子共振時並不產生原子的實際激發。二次諧波的產生純粹是一個參量過程。

自從金屬蒸汽中觀察到二次諧波產生後，在理論上提出了幾種模型來介釋二次諧波的產生。這些模型基本上分成兩大類。第一類模型把二次諧波產生解釋為 ℓ -混合過程⁽¹⁵⁾，即角動量混合過程。在此模型中，原子在雙光子共振下被激發到 nS 或 nD 態，然後通過碰撞瞬間形成 $S-P$ 態或 $D-P$ 態的複合體，然後通過 P 態偶極輻射形成二次諧波。在此模型中，二次諧波產生成為一個原子能態躍遷和相互碰撞的過程。但是它必須解釋如何能保證碰撞後產生的光波與入射光波保持同調。同時它也必須介釋在低激發態， S 和 P 態間能量相差頗大，如何能在碰撞中看成簡併而形成混合態。關於碰撞後同調性問題，最近 Elci 等人⁽¹⁷⁾ 試圖在理論上作了解釋。第二類模型把二次諧波產生解釋為四波混合過程^(7, 10, 16) 在此模型中把二次

諧波產生看成是由 $\chi^{(3)}$ 所產生。在此過程中除了雷射光波外，還有一個由雷射導致金屬蒸汽離化而形成的靜電場。雖然對於靜電場的產生有一些不同的觀點，但二次諧波產生是一個四波混合參量過程是共同肯定的。作者也通過大量實驗和理論計算⁽¹⁵⁾，證明用 $\chi^{(3)}$ 模型來解釋在各向同性鹼金屬蒸汽中二次諧波的產生是正確的。

上面以鉀蒸汽為例敘述了鹼金屬蒸汽中的一些非線性光學現象。最近我們利用鉀蒸汽在 $4S-3D$ 雙光子共振條件下，在 $300-600 \text{ nm}$ 波長範圍內測得了五十條譜線⁽¹⁸⁾。從圖 2 鉀能級分佈可看到， $3D$ 態下面只有一個 $4P$ 激發態。這麼多譜線顯然來自於各種過程，其中我們觀察到碰撞參與的多波混合過程，分子參與的多波混合過程，激發態轉移過程等，在這裡就不再敘述。

參考文獻

1. P. a. Franken, A. E. Hill, C. W. Peters and G. Weinreich, *phys. Rev. Lett.* 7, 118 (1961).
2. P. D. Maker, R. W. Terhune, and C. M. Savage, *Proceedings of the Third International Conference on Quantum Electronics*, Paris, 1963, edited by F. Grivet and N. Bloembergen (Columbia University Press, New York, 1964) p. 1559; F. D. Maker and R. W. Terhune, *Phys. Rev.* 137, A801 (1965).
3. G. H. C. New and J. F. Ward, *Phys. Rev. Lett.* 19, 556 (1967); J. F. Ward and G. H. C. New, *Phys. Rev.* 185, A57 (1969).
4. C. R. Vidal and J. Cooper, *J. Appl. phys.* 40, 3370 (1969).
5. P. L. Zhang, Y. C. Wang, and A. L. Schawlow, *J. Opt. Soc. Am. B* 1, 9 (1984).
6. M. H. Lu, K. W. Lin, and J. H. Tsai, *Chinese J. Phys.* 26, 1 (1988).
7. T. Mossberg, A. Hlusberg, and S. R. Hartmann, *Opt. Commun.* 25, 121 (1978).
8. W. Jamroz, P. E. LaRocque, and B. P. Stoicheff, *Opt. Lett.* 7, 148 (1982).
9. J. Heinrich and W. Behmenburg, *Appl. Phys.* 23, 333 (1980).
10. J. Okada, Y. Fukuda, and M. Matsuoka, *J. Phys. Soc. Japan* 50, 1301 (1981).
11. J. Bokor, R. R. Freeman, R. L. Panock, and J. C. White, *Opt. Lett.* 6, 182 (1981).
12. K. Miyazaki, T. Sato, and H. Kashiwagi, *Phys. Rev. Lett.* 43, 1154 (1979); S. G. Dinev, *J. Phys. B* 21, 1111 (1988).

物理會刊（十二卷六期）1990 年



- 13. S. G. Dinev, Opt. Quan. Elec. 20, 113 (1988); S. G. Dinev, J. Phys. B21, 1681 (1988).
- 14. M. H. Lu and J. H. Tsai, Chinese J. Phys. 27, 14 (1989).
- 15. M. H. Lu and J. H. Tsai, J. Phys. B23, 921 (1990).
- 16. D. S. Bethune, Phys. Rev. 23, A3139(1981).
- 17. E. Elci and D. Depatie, Phys. Rev. Lett. 60, 688 (1988).
- 18. J. M. Tsai and M. H. Lu, Appl. Phys. B51 (1990) to be published.

(陸懋宏，現任教於交通大學光電所教授)

稿 約

本會刊係雙月刊，內容計有評論、讀者來函、物理教學及技術改進、物理新知、物理專文、物理消息、會議預告及學會消息等各專欄，歡迎所有物理界人士踴躍投稿，來稿請寄「台北市羅斯福路四段台灣大學內中研院原分所 316 室詹淑敏小姐」收即可。