UMSFS 能级差测量精度的研究*

张彦鹏 甘琛利 唐天同 朱京平
(西安交通大学电信学院 西安 710049)
傅盘铭
(中国科学院物理所 北京 100080)

提要 研究了四能级系统的超快调制光谱(UMSFS)中泵浦光为窄带或宽带的情形,发现它们对能级差的测量都可以达到消除多普勒增宽的精度。在符合拍频条件时,能级差可以超出激光线宽,其测量精度可达到与激光线宽同一数量级。

关键词 双光子吸收,时间延迟,四波混频

传统的各种量子拍频技术曾用来进行能级测量[1],但其要求激光线宽必须大于能级分裂,DeBeer 等提出的超快调制光谱学(UMS)[2],能级分裂在频域可大大超过入射光线宽。两能级差可达上百纳米。DeBeer 的 UMS 在单光子简并 FWM 过程中采用的自衍射几何配制,是不能消除多普勒增宽的,傅等相继提出的相位共轭超快调制光谱学(PCUMS)和级联三能级系统超快调制光谱学(UMSCTS)[3~5],用相位共轭几何配制取代 DeBeer 的 UMS 中自衍射几何配制,由于中间态是共振或近共振情形,可达到消除多普勒增宽的精度[6]。本文主要讨论四能级系统的 UMS 对能级差的测量精度。

1 理 论

我们来考虑一个由基态$|0\rangle$,中间态$|1\rangle$和激发态$|2\rangle$,$|3\rangle$构成的四能级系统如图 1,光束的几何配制如图 2 所示,光束 2,3 中包含两种频率 ω_2, ω_3,光束 1 的频率为 ω_1,让激光频率 ω_1, ω_2, ω_3 分别趋近于$|0\rangle$到$|1\rangle$,$|1\rangle$到$|2\rangle$,$|1\rangle$到$|3\rangle$的跃迁频率 Ω_1, Ω_2, Ω_3。首先,让光束 1,2 发生 $\omega_1+\omega_2$ 双光子过程,光束 3(ω_2) 探测后,可产生频率为 ω_1 的非简并四波混频(NDFWM)信号,同样,让光束 1,2 发生 $\omega_1+\omega_3$ 的双光子过程,光束 3(ω_3) 探测后,也可产生频率为 ω_1 的 NDFWM 信号,光束 4 中的两个双光子 NDFWM 信号在探测器上形成拍频信号。

在相位共轭的几何配制中,光束 2,3 在样品上形成了一个很小的夹角,另一方面光束 1 和光束 4 几乎各自沿光束 2 和光束 3 的相反方向前进。让光束 3 通过一光学延时器,则光束 2,3 存在着相对时延 τ,我们感兴趣的是拍频信号与时延 τ 的关系,可建立如下复电场

$$E_{P1}=\varepsilon_1\exp[i(\vec{k}_1\cdot\vec{r}-\omega_1 t)]$$

$$E_{P2}=\varepsilon_2 u_2(t)\exp[i(\vec{k}_2\cdot\vec{r}-\omega_2 t)]+\varepsilon_3 u_3(t)\exp[i(\vec{k}_3\cdot\vec{r}-\omega_3 t)]$$

* 西安交通大学面向 21 世纪教研基金资助项目。
收稿日期: 1997-12-08; 收到修改稿日期: 1998-02-23

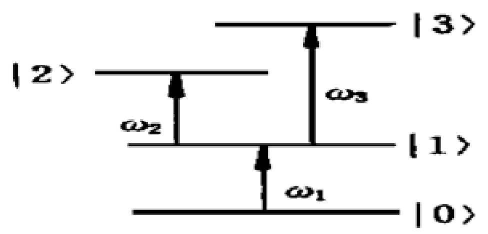

图 1 能级位形图

Fig. 1 Four-level configuration to be treated in UMSFS

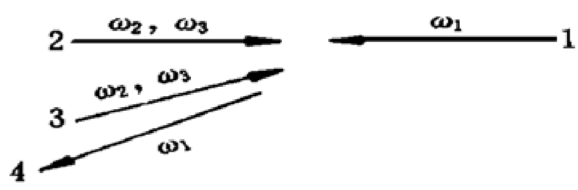

图 2 几何配制图

Fig. 2 Schematic diagram of the geometry of UMSFS

$$E_{P3}=\varepsilon_2' u_2(t-\tau)\exp[i(\vec{k}_2'\cdot\vec{r}-\omega_2 t+\omega_2\tau)]+\varepsilon_3' u_3(t-\tau)\exp[i(\vec{k}_3'\cdot\vec{r}-\omega_3 t+\omega_3\tau)]$$

$\varepsilon_i, k_i(\varepsilon_i', k_i')$ 分别为 ω_i 分量的光场振幅和光波矢量, $u_i(t)$ 为描述光场相位和振幅涨落的无量纲统计因子。

根据光与四能级系统相互作用的物理机制可得如下微扰链

(Ⅰ) $$\rho_{00}^{(0)}\xrightarrow{\varepsilon_1}\rho_{10}^{(1)}\xrightarrow{\varepsilon_2}\rho_{20}^{(2)}\xrightarrow{(\varepsilon_2')^*}\rho_{10}^{(3)}$$

(Ⅱ) $$\rho_{00}^{(0)}\xrightarrow{\varepsilon_1}\rho_{10}^{(1)}\xrightarrow{\varepsilon_3}\rho_{30}^{(2)}\xrightarrow{(\varepsilon_3')^*}\rho_{10}^{(3)}$$

链(Ⅰ),(Ⅱ)对应两个双光子共振非简并 FWM 过程, FWM 信号与三阶非对角密度矩阵元 $\rho_{10}^{(3)}$ 有关, 它们分别具有波矢 $\vec{k}_1+\vec{k}_2-\vec{k}_2'$ 和 $\vec{k}_1+\vec{k}_3-\vec{k}_3'$。

在激光线宽远小于光学跃迁均匀增宽的情形下, 即 $\alpha_2\ll\Gamma_{20}$, $\alpha_3\ll\Gamma_{30}$, 有 FWM 信号强度为

$$I(\tau)\propto|B_1|^2\exp(-2\alpha_2|\tau|)+|\eta B_2|^2\exp(-2\alpha_3|\tau|)+\exp[-(\alpha_2+\alpha_3)|\tau|]\times\{\eta B_1^* B_2\exp[-i(\omega_3-\omega_2)\tau]+\eta^* B_1 B_2^*\exp[i(\omega_3-\omega_2)\tau]\} \quad (1)$$

式中,

$$B_1=\int_{-\infty}^{\infty}\mathrm{d}\vec{v}w(\vec{v})\frac{1}{\{\Gamma_{10}+i[\Delta_1+\vec{v}\cdot(\vec{k}_1+\vec{k}_2-\vec{k}_2')]\}}\cdot\frac{1}{\Gamma_{10}+i(\vec{v}\cdot\vec{k}_1+\Delta_1)}\times\frac{1}{\Gamma_{20}+i(\vec{v}\cdot\vec{k}_1+\vec{v}\cdot\vec{k}_2+\Delta_2+\Delta_1)} \quad (2)$$

$$B_2=\int_{-\infty}^{\infty}\mathrm{d}\vec{v}w(\vec{v})\frac{1}{\Gamma_{10}+i[\Delta_1+\vec{v}\cdot(\vec{k}_1+\vec{k}_3-\vec{k}_3')]}\cdot\frac{1}{\Gamma_{10}+i(\Delta_1+\vec{v}\cdot\vec{k}_1)}\times\frac{1}{\Gamma_{30}+i(\vec{v}\cdot\vec{k}_1+\vec{v}\cdot\vec{k}_3+\Delta_3+\Delta_1)} \quad (3)$$

$$\eta=\frac{\mu_3^2}{\mu_2^2}\left|\frac{\varepsilon_3(\varepsilon_3')^*}{\varepsilon_2(\varepsilon_2')^*}\right|\exp\{-i[(\vec{k}_2-\vec{k}_2')-(\vec{k}_3-\vec{k}_3')]\cdot\vec{r}\}$$

μ_1, μ_2, μ_3 分别为 $|0\rangle$ 到 $|1\rangle$, $|1\rangle$ 到 $|2\rangle$, $|1\rangle$ 到 $|3\rangle$ 的跃迁偶极矩阵元。Γ_{10}, Γ_{20}, Γ_{30} 分别为 $|0\rangle$ 到 $|1\rangle$, $|0\rangle$ 到 $|2\rangle$, $|0\rangle$ 到 $|3\rangle$ 的横向弛豫率。$\Delta_1=\Omega_1-\omega_1$, $\Delta_2=\Omega_2-\omega_2$, $\Delta_3=\Omega_3-\omega_3$, $\Omega_1=(E_1-E_0)/\hbar$, $\Omega_2=(E_2-E_1)/\hbar$, $\Omega_3=(E_3-E_1)/\hbar$, Δ_1, Δ_2, Δ_3 为共振失谐因子。$\alpha_i=\delta\omega_i/2$, $\delta\omega_i$ 为频率为 ω_i 的激光线宽。

而 B_1 和 B_2 的积分是很困难的, 如果忽略多普勒效应, 则有

$$B_1=\frac{1}{(\Gamma_{10}+i\Delta_1)^2}\cdot\frac{1}{\Gamma_{20}+i(\Delta_2+\Delta_1)} \qquad B_2=\frac{1}{(\Gamma_{10}+i\Delta_1)^2}\cdot\frac{1}{\Gamma_{30}+i(\Delta_3+\Delta_1)}$$

(1) 式表明了在窄带情形下, FWM 信号强度以频率 $\omega_3-\omega_2$ 呈阻尼振荡, 衰变率为 $\alpha_2+\alpha_3$。

下面用另一种方法来分析信号强度, 在多普勒极限情形下, 首先考虑一下泵浦光为窄带的情形, 即 $\alpha_2 \ll \Gamma_{20}$, $\alpha_3 \ll \Gamma_{30}$

$$I(\tau) \propto \frac{(\xi_1-1)^2\exp(-2\alpha_2|\tau|)}{[(\Gamma_{20}^a-\Gamma_{10})^2+(\Delta_2^a)^2]^2}+\frac{|\eta|^2(\xi_2-1)^2\exp(-2\alpha_3|\tau|)}{[(\Gamma_{30}^a-\Gamma_{10})^2+(\Delta_3^a)^2]^2}+\exp[-(\alpha_2+\alpha_3)|\tau|]\times$$
$$\{q\exp[-i(\omega_3-\omega_2)\tau]+q^*\exp[i(\omega_3-\omega_2)\tau]\} \tag{4}$$

其中 $$q=\frac{\eta(\xi_1-1)(\xi_2-1)}{[(\Gamma_{20}^a-\Gamma_{10}-i\Delta_2^a)]^2[(\Gamma_{30}^a-\Gamma_{10})+i\Delta_3^a]^2},\quad \xi_1=k_2/k_1,\ \xi_2=k_3/k_1$$

$$\Gamma_{20}^a=\Gamma_{20}+\xi_1\Gamma_{10},\quad \Delta_2^a=\Delta_2+\xi_1\Delta_1,\quad \Gamma_{30}^a=\Gamma_{30}+\xi_2\Gamma_{10},\quad \Delta_3^a=\Delta_3+\xi_2\Delta_1$$

(4) 式与(1) 式结果完全类似, 当延时 τ 改变时, FWM 信号强度以频率 $\omega_3-\omega_2$ 呈阻尼振荡, 衰变率为 $\alpha_2+\alpha_3$, 它反映了外部激光的特性。

现在来考虑泵浦光为宽带的情形下, 即 $\alpha \gg \Gamma_{20}$, $\alpha_3 \gg \Gamma_{30}$, FWM 信号强度迅速上升到最大值后, 然后主要以系统的横向弛豫时间决定的时间常数进行衰变, 假定 $\tau \gg \alpha_2^{-1}, \alpha_3^{-1}$, 则

$$I(\tau) \propto \left|\frac{\alpha_2(\xi_1-1)\tau}{\alpha_2^2+(\Delta_2^a)^2}\right|^2\exp[-2(\Gamma_{20}^a-\Gamma_{10})|\tau|]+|\eta|^2\left|\frac{\alpha_3(\xi_2-1)\tau}{\alpha_3^2+(\Delta_3^a)^2}\right|^2\exp[-2(\Gamma_{30}^a-\Gamma_{10})|\tau|]$$
$$+\left|\frac{\alpha_2(\xi_1-1)}{\alpha_2^2+(\Delta_2^a)^2}\right|\left|\frac{\alpha_3(\xi_2-1)\tau}{\alpha_3^2+(\Delta_3^a)^2}\right|\tau^2\exp[-(\Gamma_{20}^a+\Gamma_{30}^a-2\Gamma_{10})|\tau|]\times$$
$$\{\eta\exp[-i(\Omega_3-\Omega_2)\tau-i(\xi_2-\xi_1)\Delta_1\tau]+\eta^*\exp[i(\Omega_3-\Omega_2)\tau+i(\xi_2-\xi_1)\Delta_1\tau]\} \tag{5}$$

(5) 式表明信号的衰变率为 $\Gamma_{20}^a+\Gamma_{30}^a-2\Gamma_{10}$, 调制频率$(\Omega_3-\Omega_2)+(\xi_2-\xi_1)\Delta_1$, 都直接反映了原子的能级结构。

如果在激光场中不考虑扰动因子 $u_i(t)$, 即所有光束均为单色, 可建立复电场如下

$$E_{p1}=\varepsilon_1\exp[i(\vec{k}_1\cdot\vec{r}-\omega_1 t)]$$
$$E_{p2}=\varepsilon_2\exp[i(\vec{k}_2\cdot\vec{r}-\omega_2 t)]+\varepsilon_3\exp[i(\vec{k}_3\cdot\vec{r}-\omega_3 t)]$$
$$E_{p3}=\varepsilon_2'\exp[i(\vec{k}_2'\cdot\vec{r}-\omega_2 t+\omega_2\tau)]+\varepsilon_3'\exp[i(\vec{k}_3'\cdot\vec{r}-\omega_3 t+\omega_3\tau)]$$

信号强度变为

$$I(\tau)\propto|B_1|^2+|\eta B_2|^2+\eta B_1^*B_2\exp[-i(\omega_3-\omega_2)\tau]+\eta^*B_1B_2^*\exp[-i(\omega_3-\omega_2)\tau] \tag{6}$$

在多普勒极限情形下, $B_1=(\xi_1-1)/(\Gamma_{20}^a-\Gamma_{10}+i\Delta_2^a)$, $B_2=(\xi_2-1)/(\Gamma_{30}^a-\Gamma_{10}+i\Delta_3^a)$。(6) 式信号以$(\omega_3-\omega_2)$ 为频率呈等幅振荡, 可见不考虑统计因子 $u_i(t)$ 时, 也可得到拍频信号表达式, 而且在这种情况下, 无须再考虑激光的线宽与能级系统均匀增宽的比值, 使推导过程大大简化, 但它无法直接反映原子系统的能级结构。

2 能级差测量

由前面推导可看出, 如果|1⟩到|2⟩态的能级分裂为已知, 通过四能级系统的 UMS, 就可以推出|1⟩到|3⟩的能级分裂, 因此可对高位能级一些信息进行研究, 首先来考虑一下激光线宽远小于光学跃迁的均匀增宽, 在这种情形下, FWM 信号的调制频率与系统的能级无关, 仅取决于外来激光特性, 因此在测量能级差时, 一定要使激光频率 ω_2 和 ω_3 分别调谐到 Ω_2 和 Ω_3, 使信号的调制频率 $\omega_3-\omega_2$ 等于能级差 $\Omega_3-\Omega_2$, 而频差 $\omega_3-\omega_2$ 的测量精度可以通过增加时间延迟范围来提高, 由于调制信号的衰变率 $\alpha_2+\alpha_3$ 由激光线宽决定, 那么决定最大时延范围的衰减时间常数与激光线宽存在着反比关系, 所以, 调制频率的测量可达到与激光线宽同一数量级的精度, 如果在这种情形下, 用四能级系统的 UMS 测量能级差, 其精度主要取决于把 ω_2 和 ω_3 分别调谐到 Ω_2 和 Ω_3 的准确程度。

为了消除能级分裂的多普勒增宽, 我们采用相位共轭的几何配制, 区别于 DeBeer 的自衍射几何配制。

在第一个双光子共振的 NDFWM 中, 光束 1 由频率 ω_1 组成, 光束 2, 3 都由频率 ω_2 组成, 据 (2) 式, 可得外来脉冲与原子同时相互作用的条件是 $\Delta_1 + \vec{v}\cdot(\vec{k}_1 + \vec{k}_2 - \vec{k}_2') = 0$, $\vec{v}\cdot\vec{k}_1 + \Delta_1 = 0$, $\vec{v}\cdot\vec{k}_1 + \vec{v}\cdot\vec{k}_2 + \Delta_2 + \Delta_1 = 0$, 由于光束 2, 3 夹角很小, 故有 $\vec{k}_2 \approx \vec{k}_2'$。这样, 当 $\Delta_1 = 0$ 时, 只有那些速度符合 $\vec{v}\cdot\vec{k}_1 = 0$ 的原子才对共轭信号产生贡献, Δ_2 也为零时, 只有那些速度符合 $\vec{v}\cdot\vec{k}_2 = 0$ 的原子对共轭信号产生贡献, 既然只有特定速率的原子才能对信号产生贡献, 因此可在 $\Delta_1 = 0$, $\Delta_2 = 0$ 时, 获得消除多普勒增宽的高分辨率光谱, 其情形类似于有中间态共振的双光子吸收光谱。

同理, 据 (3) 式可知, 在第二个双光子共振的 NDFWM 中, 在 $\Delta_1 = 0$, $\Delta_3 = 0$ 时也可获得消除多普勒增宽的高分辨率光谱, 如果以上观点在多普勒极限 ($k_1 u \to \infty$) 情形下, 可以得出更明确的结论, 我们来考虑一下 (4) 式, 它包含三个部分:

第一个双光子过程的自相干强度 $$I_1 = \frac{(\xi_1 - 1)^2 \exp(-2\alpha_2|\tau|)}{[(\Gamma_{20}^a - \Gamma_{10})^2 + (\Delta_2^a)^2]^2}$$

第二个双光子过程的自相干强度 $$I_2 = \frac{|\eta|^2 (\xi_2 - 1)^2 \exp(-2\alpha_3|\tau|)}{[(\Gamma_{30}^a - \Gamma_{10})^2 + (\Delta_3^a)^2]^2}$$

两双光子过程间的互相干强度 $$I_3 = \exp[-(\alpha_2 + \alpha_3)|\tau|]\{q\exp[-i(\omega_3 - \omega_2)\tau] + q^*\exp[i(\omega_3 - \omega_2)\tau]\}$$

在窄带时要测量能级分裂, 主要是使 $\omega_3 - \omega_2$ 调谐到 $\Omega_3 - \Omega_2$, 即分别完成两双光子共振的 NDFWM 实验, 使 $\Delta_2 = 0$, $\Delta_3 = 0$。在双光子实验 1 中, $\Delta_1 = \Delta_2 = 0$ 时信号强度达峰值。当 $\Delta_1 = 0$, $\Delta_2 = \pm(\sqrt{2} - 1)^{1/2}(\Gamma_{20}^a - \Gamma_{10})$ 信号达半峰值, 则线宽为 $2(\sqrt{2} - 1)^{1/2}(\Gamma_{20}^a - \Gamma_{10})$, 也就是信号的失谐范围。同理在双光子实验 2 中, $\Delta_1 = \Delta_3 = 0$ 时信号达峰值, 当 $\Delta_1 = 0$, $\Delta_3 = \pm(\sqrt{2} - 1)^{1/2}(\Gamma_{30}^a - \Gamma_{10})$ 时达半峰值, 则线宽为 $2(\sqrt{2} - 1)^{1/2}(\Gamma_{30}^a - \Gamma_{10})$。$\Delta_1 = 0$ 可通过完成一简并四波混频(DFWM) 或饱和吸收光谱实验, 使 ω_1 调谐到多普勒轮廓的中央 ($\omega_1 = \Omega_1$)。故窄带时对能级差测量的总体精度取决于光学跃迁的均匀增宽, 同时为了提高测量精度必须测量尽可能多的调制周期。

泵浦光为宽带非相干光时, 即 $\alpha \gg \Gamma_{20}$, $\alpha \gg \Gamma_{30}$, 对应于相干瞬态光谱中的和频三能级光子回波, 利用了双光子间极化拍频, 故可直接反映能级系统的特性。(5) 式中, FWM 信号频率 $\Omega_3 - \Omega_2 + (\xi_2 - \xi_1)\Delta_1$ 呈阻尼振荡, 衰变率 $\Gamma_{20}^a + \Gamma_{30}^a - 2\Gamma_{10}$, 因此调制频率测量精度为 $\pi(\Gamma_{20}^a + \Gamma_{30}^a - 2\Gamma_{10})$。$\Delta_1$ 调谐为零时, 调制频率为 $\Omega_3 - \Omega_2$。区别于窄带时的 $\omega_3 - \omega_2$。故宽带时对能级差测量的总体精度也取决于光学跃迁的均匀增宽, 可得到消除多普勒的测量精度。

3 结 论

在 Na 蒸气中完成了 UMSFS 实验, 见图 3 和图 4, 从傅里叶图谱知调制频率 $\omega_3 - \omega_2 = 2.545 \times 10^{14}\ s^{-1}$, 它是 $3P_{3/2}$ 到 $5S_{1/2}$ 和 $3P_{3/2}$ 到 $4D_{3/2,5/2}$ 共振跃迁频率间的极化拍频结果。在 Na 的四能级系统中, $3S$ 为基态, $3P$ 为中间态, $5S$ 和 $4D$ 为激发态。三台染料激光器的波长分别为 589.0 nm, 616.0 nm, 568.8 nm 分别和 $3S_{1/2}$ 到 $3P_{3/2}$, $3P_{3/2}$ 到 $5S_{1/2}$, $3P_{3/2}$ 到 $4D_{3/2,5/2}$ 的跃迁相对应。

因此, 无论在窄带或宽带, 用四能级系统的 UMS 测量能级差的总体精度取决于光学跃迁

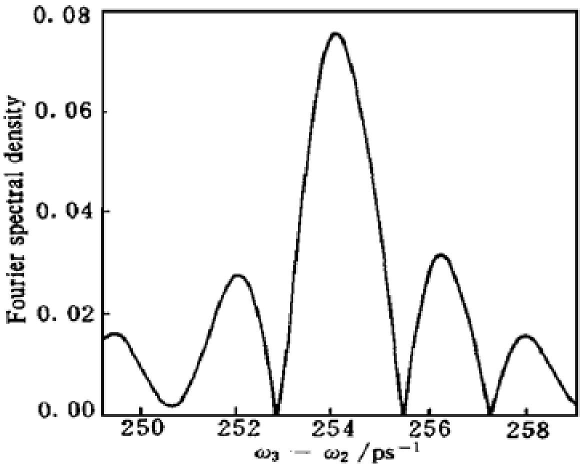

图 3　延时 τ 在 - 5 ps~ 5 ps 范围内变化的 UMSFS 傅里叶图谱

Fig. 3　Fourier spectrum of the UMSFS data in which τ is varied for a range of 10 ps

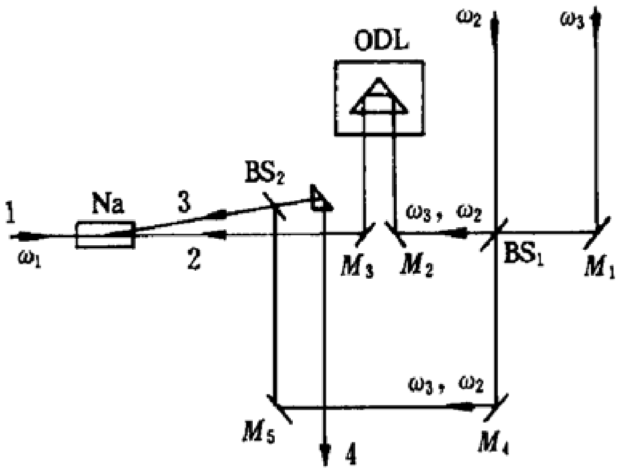

图 4　实验配制

BS: 分束片; *M*: 平面反射镜: ODL: 光学延时器

Fig. 4　Experimental setup

BS: beam spilitter; *M*: mirrors; ODL: optical delay line

的均匀线宽。同时为了提高测量精度必须测量尽可能多的调制周期。

参 考 文 献

1　M. D. Levenson. Introduction to Nonlinear Laser Spectroscopy. New York: Academic Press, 1982. 90~ 201

2　D. DeBeer, V. G. Van Wagenen, R. Beach *et al.*. Ultrafast modulation spectroscopy. *Phys. Rev. Lett.*, 1986, **56**(11): 1128~ 1131

3　P. M. Fu, Z. H. Yu, X. Mi *et al.*. Doppler-free ultrafast modulation spectroscopy with phase-conjugation geometry. *Phys. Rev. A*, 1994, **50**(1): 698~ 708

4　P. M. Fu, X. Mi, Z. H. Yu *et al.*. Ultrafast modulation spectroscopy in a cascade three-levelsystem. *Phys. Rev. A*, 1995, **52**(6): 4867~ 4870

5　Mi Xin, Yu Zuhe, Jiang Qian *et al.*. Polarization beats in a cascade three-level system. *Chin. Phys. Lett.*, 1995, **12**(11): 669~ 672

6　J. E. Bjorkholm, P. F. Liao. Line shape and strength of two-photon absorption in an atomic vapor with a resonant or nearly resonant intermediate state. *Phys. Rev. A*, 1976, **14**(2): 751~ 760

Study of the Accuracy for the Energy-level Difference Measurement in UMSFS

Zhang Yanpeng　Gan Chenli　Tang Tiantong　Zhu Jingpin　Fu Panming[1]

Xi' an Jiaotong University, Xi' an 710049

[1]*Institute of Physics, The Chinese Academy of Sciences, Beijing* 100080

Abstract　The ultrafast modulation spectroscopy of a four-level system (UMSFS) has been studied in which the linewidths of the pump beams are either narrow or broad and it was found that for both cases a Doppler-free precision in the measurement of the energy-level difference can be achieved. In the condition that a beating occurs, the energy-level difference could exceed the laser linewidth, and the measurement accuracy could reach the same order of magnitude as the laser linewidth.

Key words　two-photon absorption, time-delay, four-wave mixing