

V 型三能级系统中极化拍频的不对称特性*

张彦鹏 张 禄 吴洪才

(西安交通大学电子科学与技术系 西安 710049)

提要 在抽运光为窄带或宽带的情形下,对 V 型三能级系统中极化拍频的不对称特性进行了研究,发现这种不对称特性是由于光学元件色散所导致的零延时的漂移引起的。

关键词 极化拍频, 不对称, 四波混频

1 引 言

利用时延双频四波混频(FWM)技术研究物质的超快弛豫过程和对能级分裂的测量是近年来国际上热门的课题,1980年 R. Eichler 等提出了 FWM 信号强度与自相干函数的平方成正比的自相干理论,1985年 R. Beach 又首先在时延四波混频实验中发现了混频信号不对称的特性^[1]。后来,傅盘铭等又用自相干函数理论研究了两个非相干光源之间的拍频^[2],并分别在抽运光为高斯线型和洛仑兹线型两种情况下,通过信号强度与含两个频率分量光场的相关函数解释了时延激光感生双光栅(TDLIDG)实验中的不对称现象。本文分别在窄带和宽带非相干光时研究了 V 型三能级系统中由于元件色散造成两个自相干过程零延时之间的偏差,并解释由此偏差造成的调制信号不对称的现象。

2 理 论

V 型三能级系统(如图 1)中,|0>为基态,|1>,|2>为激发态。抽运光的几何配制如图 2 所示,光束 1,2 分别包含 ω_1, ω_2 两个频率分量,它们分别接近于 |0> 到 |1>, |0> 到 |2> 的共振频率 Ω_1, Ω_2 , 光束 3 频率 ω_3 , 我们假定 ω_3 接近 $\Omega_1, \omega_1, \omega_2$ 将感生出 |0> 到 |1> 及 |2> 的基态布局

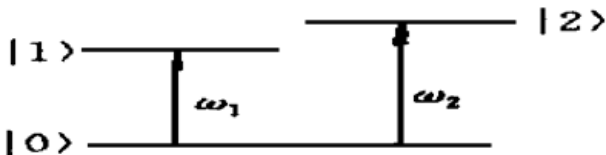


图 1 V 型三能级位形图

Fig. 1 V-type three-level configuration



图 2 几何配制图

Fig. 2 Schematic diagram of the geometry

栅,探测光束 3 被此二布局栅衍射后,产生了频率为 ω_3 的简并四波混频(DFWM)信号和非简

* 国家自然科学基金(批准号:69978019)资助项目。

收稿日期:1998-11-30;收到修改稿日期:1999-02-01

并四波混频(NDFWM)信号,光束 4 中 DFWM 和 NDFWM 信号在探测器上形成拍频信号。

在相位共轭配制中,光束 1,2 在样品上形成很小夹角,光束 3,4 几乎沿 1,2 的反方向。我们只对与延时 τ 有关的信号感兴趣,故可建立复电场如下

$$E_{P_1} = A_1(\vec{r}, t) \exp(-i\omega_1 t) + A_2(\vec{r}, t) \exp(-i\omega_2 t) = \epsilon_1 u_1(t) \exp[i(\vec{k}_1 \cdot \vec{r} - \omega_1 t)] + \epsilon_2 u_2(t) \exp[i(\vec{k}_2 \cdot \vec{r} - \omega_2 t)] \quad (1)$$

$$E_{P_2} = A_1'(\vec{r}, t) \exp(-i\omega_1 t) + A_2'(\vec{r}, t) \exp(-i\omega_2 t) = \epsilon_1' u_1(t - \tau) \exp[i(\vec{k}_1' \cdot \vec{r} - \omega_1 t + \omega_1 \tau)] + \epsilon_2' u_2(t - \tau - \delta\tau) \exp[i(\vec{k}_2' \cdot \vec{r} - \omega_2 t + \omega_2 \tau + \omega_2 \delta\tau)] \quad (2)$$

$$E_{P_3} = A_3(r, t) \exp(-i\omega_3 t) = \epsilon_3 \exp[i(k_3 \cdot r - \omega_3 t)] \quad (3)$$

式中, $\epsilon_i, \vec{k}_i (\epsilon_i', \vec{k}_i')$ 分别为 ω_i 分量的光场振幅和光波矢量, $u_i(t)$ 是描述光场相位和振幅涨落的无量纲因子, τ 为光束 1,2 之间的时延, $\delta\tau$ 为两自相干过程间零延时的偏差(假设 $\delta\tau > 0$)。

根据光与 V 型三能级系统相互作用的物理机制,可得如下微扰链

$$\begin{aligned} (\bar{\bar{)}} \quad & \rho_{00}^{(0)} \xrightarrow{\omega_1} \rho_{10}^{(1)} \xrightarrow{-\omega_1} \rho_{00}^{(2)} \xrightarrow{\omega_3} \rho_{10}^{(3)} \\ (\bar{\bar{)}} \quad & \rho_{00}^{(0)} \xrightarrow{-\omega_1} (\rho_{10}^{(1)})^* \xrightarrow{\omega_1} \rho_{00}^{(2)} \xrightarrow{\omega_3} \rho_{10}^{(3)} \\ (\bar{\bar{)}} \quad & \rho_{00}^{(0)} \xrightarrow{\omega_2} \rho_{20}^{(1)} \xrightarrow{-\omega_2} \rho_{00}^{(2)} \xrightarrow{\omega_3} \rho_{10}^{(3)} \\ (\bar{\bar{)}} \quad & \rho_{00}^{(0)} \xrightarrow{-\omega_2} (\rho_{20}^{(1)})^* \xrightarrow{\omega_2} \rho_{00}^{(2)} \xrightarrow{\omega_3} \rho_{10}^{(3)} \\ (\bar{\bar{)}} \quad & \rho_{00}^{(0)} \xrightarrow{\omega_1} \rho_{10}^{(1)} \xrightarrow{-\omega_1} \rho_{11}^{(2)} \xrightarrow{\omega_3} \rho_{10}^{(3)} \\ (\bar{\bar{)}} \quad & \rho_{00}^{(0)} \xrightarrow{-\omega_1} (\rho_{10}^{(1)})^* \xrightarrow{\omega_1} \rho_{11}^{(2)} \xrightarrow{\omega_3} \rho_{10}^{(3)} \end{aligned}$$

($\bar{\bar{}}$), ($\bar{\bar{}}$), ($\bar{\bar{}}$), ($\bar{\bar{}}$) 对应于单光子 DFWM 过程, ($\bar{\bar{}}$), ($\bar{\bar{}}$) 对应于单光子 NDFWM 过程。

在多普勒增宽系统中,利用密度矩阵动力学方程,可求解以上微扰链得六个非对角密度矩阵元 $\rho_{ij}^{(3)}$ 。对于相位共轭 FWM 信号的非线性极化强度有

$$P^{(3)} = N \mu_1 \int_{-\infty}^{\infty} d\vec{v} w(\vec{v}) \rho_{ij}^{(3)}(\vec{v}) \quad (4)$$

N 为原子个数,对于多普勒增宽系统, $w(\vec{v}) = \frac{1}{\sqrt{\pi} u} \exp[-(\vec{v}/u)^2]$ 。FWM 信号正比于 $P^{(3)}$ 绝对值平方的平均值。FWM 信号强度与六阶相干函数有关,而我们采用相位共轭几何配制且只关心与 τ 有关的信号,假定抽运光 1,2 是多模热源的混沌统计模式,这样 $I(\tau) \propto |R^{(3)}|^2$ 仅包含二阶相干函数,若抽运光为洛仑兹线型,则

$$\langle u_i(t_1) u_i^*(t_2) \rangle = \exp(-\alpha_i |t_1 - t_2|) \quad (i = 1, 2) \quad (5)$$

式中, $\alpha_i = \frac{1}{2} \delta\omega_i$, $\delta\omega_i$ 为 ω_i 的激光线宽。

我们可得极化强度平均值为 $\langle R^{(3)} \rangle$ 。

2.1 窄带情形

考虑一下激光为窄带时的情形,即($\alpha_1 \ll \Gamma_{10}, \alpha_2 \ll \Gamma_{20}$),有信号强度为

$$\begin{aligned} I(\tau) \propto |R^{(3)}|^2 \propto |B_1|^2 \exp(-2\alpha_1 |\tau|) + |\eta B_2|^2 \exp(-2\alpha_2 |\tau + \delta\tau|) + \\ \exp(-\alpha_1 |\tau|) \exp(-\alpha_2 |\tau + \delta\tau|) \times \\ \{ \eta B_1^* B_2 \exp[-i(\omega_2 - \omega_1)\tau - i\omega_2 \delta\tau] + \eta^* B_1 B_2^* \exp[i(\omega_2 - \omega_1)\tau + i\omega_2 \delta\tau] \} \quad (6) \end{aligned}$$

如果忽略多普勒效应时, $B_1 = \left[\frac{1}{\Gamma_0} + \frac{1}{\Gamma_1} \right] \frac{1}{(\Gamma_{10} + i\Delta_3)(\Gamma_{10}^2 + \Delta_1^2)}$, $B_2 = \frac{1}{\Gamma_0(\Gamma_{20} + i\Delta_3)(\Gamma_{20}^2 + \Delta_2^2)}$, $\eta \approx \left[\frac{N_2}{N_1} \right]^2 \cdot \frac{\epsilon_2(\epsilon_2')^*}{\epsilon_1(\epsilon_1')^*}$, $\Delta_1 = \Omega_1 - \omega_1$, $\Delta_2 = \Omega_2 - \omega_2$, $\Delta_3 = \Omega_1 - \omega_3$, Γ_0, Γ_1 为 $|0\rangle, |1\rangle$ 的纵向弛豫率; Γ_{10}, Γ_{20} 是 $|0\rangle$ 到 $|1\rangle, |0\rangle$ 到 $|2\rangle$ 的横向弛豫率. N_1, N_2 分别为 $|0\rangle$ 到 $|1\rangle, |0\rangle$ 到 $|2\rangle$ 的跃迁偶极矩. 式(6)表明, 在窄带时, 信号强度以 $\omega_2 - \omega_1$ 为频率呈现阻尼振荡, 反映了激光特性而与能级结构无关. 且信号关于 $\tau = 0$ 不对称.

2.2 多普勒极限情形

现用另一种方法来分析信号强度. 在多普勒极限情形下(即 $k_{3u} \rightarrow \infty$), 有

$$\int_{-\infty}^{\infty} d\vec{v} w(\vec{v}) \exp[-i\theta(\vec{v})] \approx \frac{2\sqrt{\pi}}{k_{3u}} \delta(t_3 - \xi_1 t_1) \quad (7)$$

$$\int_{-\infty}^{\infty} d\vec{v} w(\vec{v}) \exp[-i\theta(\vec{v})] \approx \frac{2\sqrt{\pi}}{k_{3u}} \delta(t_3 + \xi_1 t_1) \quad (8)$$

$$\int_{-\infty}^{\infty} d\vec{v} w(\vec{v}) \exp[-i\theta(\vec{v})] \approx \frac{2\sqrt{\pi}}{k_{3u}} \delta(t_3 - \xi_2 t_2) \quad (9)$$

$$\int_{-\infty}^{\infty} d\vec{v} w(\vec{v}) \exp[-i\theta(\vec{v})] \approx \frac{2\sqrt{\pi}}{k_{3u}} \delta(t_3 + \xi_2 t_2) \quad (10)$$

式中, $\xi_1 = k_1/k_3$, $\xi_2 = k_2/k_3$, $\theta(\vec{v}) = \vec{v} \cdot [\vec{k}_1(t_1 + t_2 + t_3) - \vec{k}_1'(t_2 + t_3) - \vec{k}_{3t_3}]$, $\theta(\vec{v}) = \vec{v} \cdot [-\vec{k}_1'(t_1 + t_2 + t_3) + \vec{k}_1(t_2 + t_3) + \vec{k}_{3t_3}]$, $\theta(\vec{v}) = \vec{v} \cdot [\vec{k}_2(t_1 + t_2 + t_3) - \vec{k}_2'(t_2 + t_3) + \vec{k}_{3t_3}]$, $\theta(\vec{v}) = \vec{v} \cdot [-\vec{k}_2'(t_1 + t_2 + t_3) + \vec{k}_2(t_2 + t_3) + \vec{k}_{3t_3}]$.

利用(7) ~ (10) 式, 假定 $\delta\tau > 0$ 时, 可得极化强度平均值.

下面分别从抽运光为窄带和宽带考虑信号强度:

当抽运光为窄带时($\alpha_1 \ll \Gamma_{10}, \alpha_2 \ll \Gamma_{20}$), 此时不论 τ 取何值均有

$$I(\tau) \propto \left[\frac{1}{\Gamma_0} + \frac{1}{\Gamma_1} \right]^2 \frac{\exp(-2\alpha_1|\tau|)}{(\Gamma_{10}^a)^2 + (\Delta_1^a)^2} + |\eta|^2 \left[\frac{1}{\Gamma_0} \right]^2 \frac{\exp(-2\alpha_2|\tau + \delta\tau|)}{(\Gamma_{20}^a)^2 + (\Delta_2^a)^2} + \left[\frac{1}{\Gamma_0} + \frac{1}{\Gamma_1} \right] \frac{1}{\Gamma_0} \exp(-\alpha_1|\tau|) \exp(-\alpha_2|\tau + \delta\tau|) \times \{q \exp[-i(\omega_2 - \omega_1)\tau - i\omega_2\delta\tau] + q^* \exp[i(\omega_2 - \omega_1)\tau + i\omega_2\delta\tau]\} \quad (11)$$

式中, $q = \frac{\eta}{(\Gamma_{10}^a - i\Delta_1^a)(\Gamma_{20}^a + i\Delta_2^a)}$, $\Gamma_{10}^a = \Gamma_{10} + \xi_1\Gamma_{10}$, $\Gamma_{20}^a = \Gamma_{20} + \xi_2\Gamma_{10}$, $\Delta_1^a = \Delta_1 + \xi_1\Delta_3$, $\Delta_2^a = \Delta_2 + \xi_2\Delta_3$, 此时结果与(6) 式结果类似, 反映了激光的特性, 而与能级结构无关. 信号关于 $\tau = 0$ 不对称.

下面考虑宽带情形($\alpha_1 \gg \Gamma_{10}, \alpha_2 \gg \Gamma_{20}$), 若假定 $\tau \gg \alpha_1^{-1}, \tau \gg \alpha_2^{-1}$ 有

1) $\tau > 0$ 时

$$I(\tau) \propto \left[\frac{1}{\Gamma_0} + \frac{1}{\Gamma_1} \right]^2 \left[\frac{\alpha_1}{(\alpha_1)^2 + (\Delta_1^a)^2} \right]^2 \exp[-2(\Gamma_{10}^a)|\tau|] + |\eta|^2 \left[\frac{1}{\Gamma_0} \right]^2 \left[\frac{\alpha_2}{(\alpha_2)^2 + (\Delta_2^a)^2} \right]^2 \exp(-2\Gamma_{20}^a|\tau + \delta\tau|) + \left[\frac{1}{\Gamma_0} + \frac{1}{\Gamma_1} \right] \frac{1}{\Gamma_0} \left[\frac{\alpha_2}{\alpha_2^2 + (\Delta_2^a)^2} \right] \left[\frac{\alpha_1}{\alpha_1^2 + (\Delta_1^a)^2} \right] \exp(-\Gamma_{10}^a|\tau|) \exp(-\Gamma_{20}^a|\tau + \delta\tau|) \times \{ \eta \exp[-i(\Omega_2 - \Omega_1)\tau - i(\xi_2 - \xi_1)\Delta_3\tau - i(\Omega_2 + \xi_2\Delta_3)\delta\tau] + \}$$

$$\eta^* \exp[i(\Omega_2 - \Omega_1)\tau + i(\xi_2 - \xi_1)\Delta_3\tau + i(\Omega_2 + \xi_2\Delta_3)\delta\tau] \quad (12)$$

此时表明宽带 $\tau > 0$ 时,反映了能级的结构,信号峰值左移。

2) $-\delta\tau < \tau < 0$ 时

$$I(\tau) \propto \frac{1}{(\Gamma_0)^2} |\eta|^2 \left[\frac{\alpha_2}{\alpha_2^2 + (\Delta_2^a)^2} \right]^2 \exp[-2(\Gamma_{20}^a) |\tau + \delta\tau|] \quad (13)$$

拍频信号变为第二个单光子非简并四波混频过程的自相干强度。

3) 当 $\tau < -\delta\tau$ 时

$$I(\tau) \propto \left[\frac{1}{\Gamma_0} + \frac{1}{\Gamma_1} \right]^2 \frac{\exp(-2\alpha_1|\tau|)}{(\alpha_1)^2 + (\Delta_1^a)^2} + |\eta|^2 \left[\frac{1}{\Gamma_0} \right]^2 \frac{\exp(-2\alpha_2|\tau + \delta\tau|)}{(\alpha_2)^2 + (\Delta_2^a)^2} + \left[\frac{1}{\Gamma_0} + \frac{1}{\Gamma_1} \right] \frac{1}{\Gamma_0} \exp(-\alpha_1|\tau|) \exp(-\alpha_2|\tau + \delta\tau|) \times \{q' \exp[-i(\omega_2 - \omega_1)\tau - i\omega_2\delta\tau] + (q')^* \exp[i(\omega_2 - \omega_1)\tau + i\omega_2\delta\tau]\} \quad (14)$$

式中, $q' = \frac{\eta}{(\alpha_2 + i\Delta_2^a)(\alpha_1 - i\Delta_1^a)}$ 。

由于 $\tau < -\delta\tau$ 时,抽运光 1, 2 中相位相关子脉冲时间上发生了重叠,抽运光 1, 2 变为互相干,故类似于窄带情形^[3]。

3 实验与结论

我们在以 3S 为基态, 3P 为激发态的钠蒸气 V 型三能级系统中完成了双频时延四波混频实验,让脉宽为 6 ns, 线宽为 0.1 nm 的两台染料激光器波长 589 nm, 589.6 nm 分别对应于 3S_{1/2} 到 3P_{3/2}, 3S_{1/2} 到 3P_{1/2} 的偶极跃迁。得拍频信号周期 1.9 ps(见图 3)。调制频率为 3.26 ps⁻¹。

图 4(a), (b) 分别对应于抽运光 1, 2 仅含 ω_1 分量的第一个单光子 DFWM 自相干过程, 抽运光 1, 2 仅含 ω_2 分量的第二个单光子 NDFWM 自相干过程。从图中可以看出, 第一个自相干过程的信号强度关于 $\tau = 0$ 对称, 对应于(6) 式的第一个自相干项。而第二个自相干过程的信号强度应该是关于 $\tau = -\delta\tau$ 对称, 对应于(6) 式中的第二个自相干项, 但由于 $\delta\tau$ 大约为 0.1 ps, 不对称性在图 4(b) 中不明显。如果激光线宽为宽带情形, 此现象将更为明显。由于两光源自相关零延时的偏差将导致拍频信号强度峰值左移(如图 3 所示), 如果取(6) 式中零延时的偏差 $\delta\tau = 0.1$ ps, 激光线宽 $\delta\lambda_1 = \delta\lambda_2 = 0.1$ nm, 与 τ 无关的系数 $B_1 = B_2 = 1, \eta = 2$ 时, 图 3 中所得到的理论曲线与实验曲线基本相符, 圆点为理论值。

在 V 型三能级系统极化拍频实验中, 由于不对称光路的元件色散导致两个自相干过程零延时存在偏差, 致使信号强度峰值左移, 且随着频差 $\omega_2 - \omega_1$ 的增加, 零延时的偏差 $\delta\tau$ 将增加。其次, 激光线宽越宽, 不对称现象也将更明显。但由(6) 式的傅里叶变换可知, 其调制频率的测量并不受影响。也就是采用相位共轭几何配制, 容许有一定机械振动、光学元件的畸变及其他

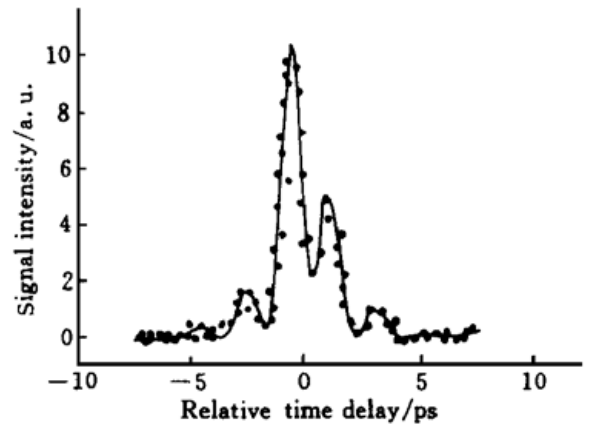


图 3 拍频信号随延时的变化

Fig. 3 Beats signal intensity versus relative time delay

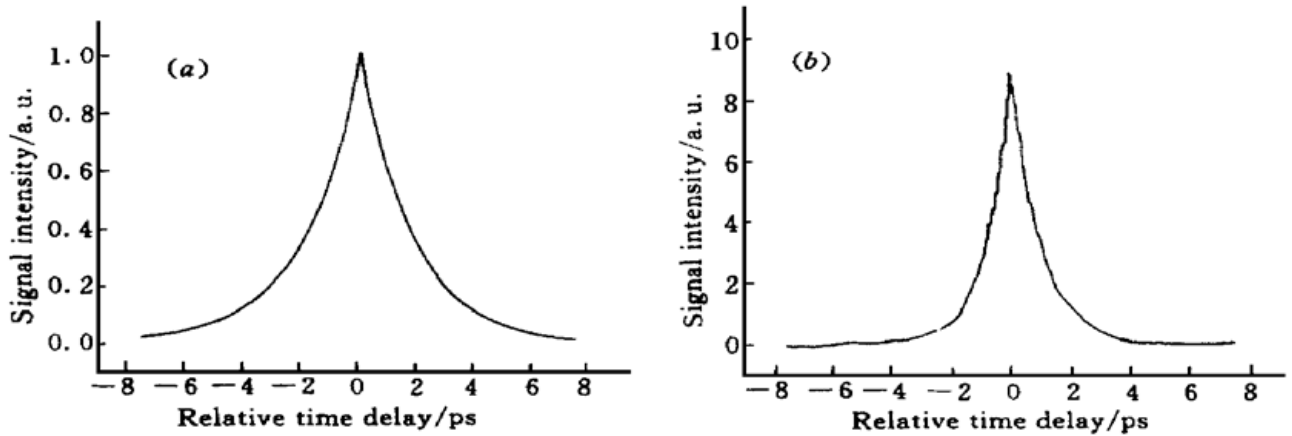


图 4 抽运光仅含 $\omega_1(a)$ 和 $\omega_2(b)$ 时 FWM 信号随延时的变化

Fig. 4 FWM signal intensity versus relative time delay when pump beams consist of only $\omega_1(a)$ and $\omega_2(b)$

微扰,而不影响测量精度。

参 考 文 献

- 1 R. Beach, D. DeBeer, S. R. Hartmann. Time-delayed four-wave mixing using intense incoherent light. *Phys. Rev. A*, 1985, **32**(6): 3467~ 3474
- 2 X. Mi, Z. Yu, Q. Jiang *et al.*. Time-delayed laser-induced double gratings with broadband lights. *Opt. Comm.*, 1995, **116**(4, 5, 6): 443~ 448
- 3 Panming Fu, Xin Mi, Zuhe Yu *et al.*. Ultrafast modulation spectroscopy in a cascade three-level system. *Phys. Rev. A*, 1995, **52**(6): 4867~ 4870

The Asymmetric Behavior of the Polarization Beats Signal in a V-shape Three-level System

Zhang Yanpeng Zhang Lu Wu Hongcai

(Department of Electronic Science and Technology, Xi'an Jiaotong University, Xi'an 710049)

Abstract The asymmetric behavior of the polarization beats in a V-type three-level system has been studied when the pump beams have either narrowband or broadband linewidth. The asymmetry is considered as a result of the drift of the zero time delay due to the dispersion of the optical components.

Key words polarization beats, asymmetry, four-wave-mixing