

四能级系统的极化拍频

张彦鹏 唐天同

(西安交通大学电信学院光电子与物理电子工程系, 西安 710049)

傅盘铭

(中国科学院物理研究所, 北京 100081)

摘 要 利用双光子与双光子过程间的干涉研究了四能级系统的超快调制光谱学(UMS), 同时论证了用四能级系统的超快调制光谱学测量能级差可以达到消除多普勒增宽的可能性。

关键词 双光子吸收, 时间延迟, 四波混频。

1 引 言

DeBeer 在国际上首次提出了超快调制光谱学^[1], 最近傅盘铭提出的相位共轭超快调制光谱学(PCUMS)是一种同时具有时间领域和频率领域优点的可消除多普勒增宽的高分辨率光谱学^[2~4], 傅等人从理论上研究了准二能级系统和级联三能级系统, 并且在实验上分别完成了单光子与单光子的拍频和单光子与双光子的拍频。本文讨论四能级系统的超快调制光谱学, 它是一个起源于两个双光子相干过程的极化拍频现象。

2 理 论

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 所示, 光束的几何配置如图 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 的非简并四波混频信号, 光束 4 中的两个双光子非简并四波混频信号在探测器上形成拍频信号。

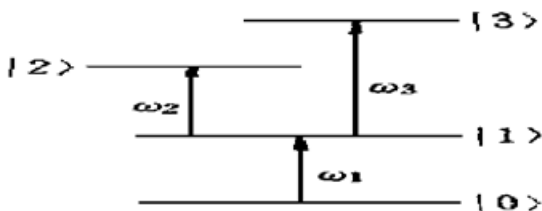


Fig. 1 Energy-level diagram

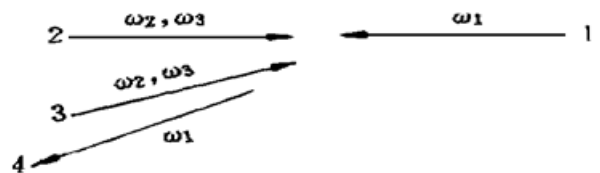


Fig. 2 Geometric description

在相位共轭的几何配置中, 光束 2、3 在样品上形成了一很小的夹角, 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 , 感兴趣的便是拍频信号与时延 τ 的关系, 可建立如下复电场:

$$\begin{aligned} E_{P1} &= \epsilon_1 \exp [i(\mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{r} - \omega_1 t)] \\ E_{P2} &= \epsilon_2 u_2(t) \exp [i(\mathbf{k}_2 \cdot \mathbf{r} - \omega_2 t)] + \epsilon_3 u_3(t) \exp [i(\mathbf{k}_3 \cdot \mathbf{r} - \omega_3 t)] \\ E_{P3} &= \epsilon_2' u_2(t - \tau) \exp [i(\mathbf{k}_2' \cdot \mathbf{r} - \omega_2 t + \omega_2 \tau)] + \\ &\quad \epsilon_3' u_3(t - \tau) \exp [i(\mathbf{k}_3' \cdot \mathbf{r} - \omega_3 t + \omega_3 \tau)] \end{aligned}$$

(ϵ_i 、 \mathbf{k}_i 、 ϵ_i' 、 \mathbf{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:

$$\begin{aligned} (\bar{\gamma}) \quad & \rho_{00}^{(0)} \xrightarrow{\epsilon_1} \rho_{10}^{(1)} \xrightarrow{\epsilon_2} \rho_{20}^{(2)} \xrightarrow{(\epsilon_2')^*} \rho_{10}^{(3)} \\ (\bar{\gamma}) \quad & \rho_{00}^{(0)} \xrightarrow{\epsilon_1} \rho_{10}^{(1)} \xrightarrow{\epsilon_3} \rho_{30}^{(2)} \xrightarrow{(\epsilon_3')^*} \rho_{10}^{(3)} \end{aligned}$$

在一个多普勒增宽系统中, 利用密度矩阵动力学方程

$$\frac{\partial p(t)}{\partial t} = \frac{1}{i\hbar} [H_0 + H_1(t), p(t)] + \left[\frac{\partial p(t)}{\partial t} \right]_{\text{random}}$$

求解以上微扰链可得两个三阶非对角密度矩阵元 $\rho_{10}^{(3)}$, 分别具有波矢 $\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_2'$ 和 $\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_3 - \mathbf{k}_3'$

$$\begin{aligned} \rho(\bar{\gamma})_{(v, t)} &= \frac{-i\mu_1\mu_2^2}{h^3} \epsilon_1 \epsilon_2 (\epsilon_2')^* \exp \{i[(\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_2') \cdot \mathbf{r} - \omega_1 t - \omega_2 \tau]\} \int_0^\infty dt_3 \int_0^\infty dt_2 \int_0^\infty dt_1 \times \\ &\quad \exp \{-i\mathbf{v} \cdot [\mathbf{k}_1(t_1 + t_2 + t_3) + \mathbf{k}_2(t_2 + t_3) - \mathbf{k}_2' t_3]\} \times \\ &\quad \exp [-(\Gamma_{10} + i\Delta_1)t_3] \exp [-(\Gamma_{20} + i\Delta_2 + i\Delta_1)t_2] \times \\ &\quad \exp [-(\Gamma_{10} + i\Delta_1)t_1] u_2(t - t_2 - t_3) u_2^*(t - t_3 - \tau) \end{aligned} \quad (1)$$

$$\begin{aligned} \rho(\bar{\gamma})_{(v, t)} &= \frac{-i\mu_1\mu_3^2}{h^3} \epsilon_1 \epsilon_3 (\epsilon_3')^* \exp \{i[(\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_3 - \mathbf{k}_3') \cdot \mathbf{r} - \omega_1 t - \omega_3 \tau]\} \int_0^\infty dt_3 \int_0^\infty dt_2 \int_0^\infty dt_1 \times \\ &\quad \exp \{-i\mathbf{v} \cdot [\mathbf{k}_1(t_1 + t_2 + t_3) + \mathbf{k}_3(t_2 + t_3) - \mathbf{k}_3' t_3]\} \times \\ &\quad \exp [-(\Gamma_{10} + i\Delta_1)t_3] \exp [-(\Gamma_{30} + i\Delta_3 + i\Delta_1)t_2] \times \\ &\quad \exp [-(\Gamma_{10} + i\Delta_1)t_1] u_2(t - t_2 - t_3) u_2^*(t - t_3 - \tau) \end{aligned} \quad (2)$$

式中, v 为气体系统中的原子速度, μ_1 、 μ_2 、 μ_3 分别是 $|0\rangle$ 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} 分别是 $|0\rangle$ 到 $|1\rangle$ 、 $|0\rangle$ 到 $|2\rangle$ 、 $|0\rangle$ 到 $|3\rangle$ 的横向驰豫率。 Δ_1 、 Δ_2 、 Δ_3 为共振失谐因子。

$$\begin{aligned} \Delta_1 &= \Omega_1 - \omega_1, & \Delta_2 &= \Omega_2 - \omega_2, & \Delta_3 &= \Omega_3 - \omega_3, \\ \Omega_1 &= \frac{E_1 - E_0}{\hbar}, & \Omega_2 &= \frac{E_2 - E_1}{\hbar}, & \Omega_3 &= \frac{E_3 - E_1}{\hbar}, \end{aligned}$$

对于相位共轭四波混频信号的非线性极化强度有

$$P^{(3)} = N \mu_1 \int_{-\infty}^{\infty} dv W(v) \rho_{10}^{(3)}(v)$$

N 为原子个数, $W(v)$ 为速度分布函数, 对于多普勒增宽系统

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

其中 $u = \sqrt{2k_B T/m}$, m 为原子质量, k_B 为玻尔兹曼常数, T 绝对温度。四波混频信号正比于 $P^{(3)}$ 绝对值平方的平均值。由于超快调制光谱学是自衍射几何配置, 它的四波混频信号强度与外场的六阶相干函数有关, 而本文采用的是相位共轭几何配置, 光束 1 沿光束 2 相反方向前进, 它与光束 2、3 间不存在时延上的关联, 即 $\langle u_i(t) u_i^*(t) \rangle = 1$ 。故它的四波混频信号强度只与外场的四阶相干函数有关。因为仅对与时间延迟 τ 有关的信号感兴趣, 可以假定泵浦光 2、3 是多模热源的混沌统计模式, 这样四波混频信号强度近似地与 $|P^{(3)}|^2$ 成正比, 仅包含二阶相干函数, 泵浦光若为洛仑兹线型, 可得

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

式中 $\alpha = \delta\omega/2$, $\delta\omega$ 是频率为 ω 的激光线宽。利用此式, 可得极化强度的统计平均值:

$$\langle P^{(3)} \rangle = P^{(1)} + P^{(11)}$$

式中

$$\begin{aligned} P^{(1)}(v, t) = & \frac{-iN\mu_1^2\mu_2^2}{\hbar^3} \epsilon_1 \epsilon_2 (\epsilon_2')^* \exp[i(\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_2') \cdot \mathbf{r}] \exp[-i(\omega_1 t + \omega_2 \tau)] \times \\ & \int_{-\infty}^{\infty} dv W(v) \int_0^{\infty} dt_3 \int_0^{\infty} dt_2 \int_0^{\infty} dt_1 \exp\{-iv \cdot [\mathbf{k}_1(t_1 + t_2 + t_3) + \mathbf{k}_2(t_2 + t_3) - \mathbf{k}_2' t_3]\} \times \\ & \exp[-(\Gamma_{10} + i\Delta_1)t_3] \exp[-(\Gamma_{20} + i\Delta_2 + i\Delta_1)t_2] \times \\ & \exp[-(\Gamma_{10} + i\Delta_1)t_1] \exp(-\alpha |t_2 - \tau|) \end{aligned} \quad (3)$$

$$\begin{aligned} P^{(11)}(v, t) = & \frac{-iN\mu_1^2\mu_3^2}{\hbar^3} \epsilon_1 \epsilon_3 (\epsilon_3')^* \exp[i(\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_3 - \mathbf{k}_3') \cdot \mathbf{r}] \exp[-i(\omega_1 t + \omega_3 \tau)] \times \\ & \int_{-\infty}^{\infty} dv W(v) \int_0^{\infty} dt_3 \int_0^{\infty} dt_2 \int_0^{\infty} dt_1 \exp\{-iv \cdot [\mathbf{k}_1(t_1 + t_2 + t_3) + \mathbf{k}_3(t_2 + t_3) - \mathbf{k}_3' t_3]\} \times \\ & \exp[-(\Gamma_{10} + i\Delta_1)t_3] \exp[-(\Gamma_{30} + i\Delta_3 + i\Delta_1)t_2] \times \\ & \exp[-(\Gamma_{10} + i\Delta_1)t_1] \exp(-\alpha_3 |t_2 - \tau|) \end{aligned} \quad (4)$$

分别对 t_1 、 t_2 、 t_3 积分, 可求得极化强度。为了简便起见, 考虑激光线宽远小于光学跃迁均匀增宽的情形, 即 $\alpha_2 \ll \Gamma_{20}$, $\alpha_3 \ll \Gamma_{30}$ 。有拍频信号强度 $I(\tau)$ 为

$$\begin{aligned} I(\tau) \propto & |B_1|^2 \exp(-2\alpha_2 |\tau|) + |\eta B_2|^2 \exp(-2\alpha_3 |\tau|) + \exp[-(\alpha_2 + \alpha_3) |\tau|] \times \\ & \{\eta^* B_1^* B_2 \exp[-i(\omega_3 - \omega_2) \tau] + \eta B_1 B_2^* \exp[i(\omega_3 - \omega_2) \tau]\} \end{aligned} \quad (5)$$

此式表明了, 在窄带情形下, 四波混频信号强度以频率 $\omega_3 - \omega_2$ 呈阻尼振荡, 衰变率为 $\alpha_2 + \alpha_3$ 。其中,

$$\begin{aligned} B_1 = & \int_{-\infty}^{\infty} dv W(v) \frac{1}{\{\Gamma_{10} + i[\Delta_1 + v \cdot (\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_2')]\}} \cdot \frac{1}{[\Gamma_{10} + i(v \cdot \mathbf{k}_1 + \Delta_1)]} \times \\ & \frac{1}{\Gamma_{20} + i(v \cdot \mathbf{k}_1 + v \cdot \mathbf{k}_2 + \Delta_2 + \Delta_1)} \end{aligned} \quad (6)$$

$$B_2 = \int_{-\infty}^{\infty} dv W(v) \frac{1}{\Gamma_{10} + i[\Delta_1 + v(\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_3 - \mathbf{k}'_3)]} \cdot \frac{1}{\Gamma_{10} + i(\Delta_1 + v \cdot \mathbf{k}_1)} \times$$

$$\frac{1}{\Gamma_{30} + i(v \cdot \mathbf{k}_1 + v \cdot \mathbf{k}_3 + \Delta_3 + \Delta_1)} \quad (7)$$

$$\eta = \frac{\mu_3^2}{\mu_2^2} \left[\frac{\epsilon_3(\epsilon'_3)}{\epsilon_2(\epsilon'_2)^*} \right] \exp \{ - i[(\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}'_2) - (\mathbf{k}_3 - \mathbf{k}'_3)] \cdot \mathbf{r} \}$$

其中 η 与 ω_3 和 ω_2 的光强和相位因子有关, 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

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

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

下面用另一种方法来分析信号强度, 在多普勒极限情形下(即 $k_{1u} \rightarrow \infty$) 有

$$\int_{-\infty}^{\infty} dv W(v) \exp \{ - iv \cdot [\mathbf{k}_1(t_1 + t_2 + t_3) + \mathbf{k}_2(t_2 + t_3) - \mathbf{k}'_2 t_3] \} \xrightarrow{k_{1u} \rightarrow \infty}$$

$$\frac{2\sqrt{\pi}}{k_{1u}} \delta(t_1 + t_2 + t_3 - \xi_1 t_2) \quad (8)$$

$$\int_{-\infty}^{\infty} dv W(v) \exp \{ - iv \cdot [\mathbf{k}_1(t_1 + t_2 + t_3) + \mathbf{k}_3(t_2 + t_3) - \mathbf{k}'_3 t_3] \} \xrightarrow{k_{1u} \rightarrow \infty}$$

$$\frac{2\sqrt{\pi}}{k_{1u}} \delta(t_1 + t_2 + t_3 - \xi_2 t_2) \quad (9)$$

式中 $\xi_1 = \frac{k_2}{k_1} > 1$, $\xi_2 = \frac{k_3}{k_1} > 1$ 。

将(8)、(9)两式代入极化强度表达式(3)、(4)中, 有

1) $\tau > 0$ 时

$$P^{(3)} = P^{(I)} + P^{(II)} =$$

$$\left(\frac{2\sqrt{\pi}}{k_{1u}} \right) \left(\frac{-iN\mu_1^2\mu_2^2}{\hbar^3} \right) \epsilon_1 \epsilon_2 (\epsilon'_2)^* \exp [i(\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 - \mathbf{k}'_2) \cdot \mathbf{r}] \exp [-i(\omega_1 t + \omega_2 \tau)] \times$$

$$(\xi_1 - 1) \left\{ \frac{\exp(-\alpha_2 |\tau|)}{(\Gamma_{20}^a - \Gamma_{10} - \alpha_2 + i\Delta_2^a)^2} + \exp[-(\Gamma_{20}^a - \Gamma_{10} + i\Delta_2^a) |\tau|] \right\} \times$$

$$\left[\frac{-\tau - 1/(\Gamma_{20}^a - \Gamma_{10} - \alpha_2 + i\Delta_2^a)}{\Gamma_{20}^a - \Gamma_{10} - \alpha_2 + i\Delta_2^a} + \frac{\tau + 1/(\Gamma_{20}^a - \Gamma_{10} + \alpha_2 + i\Delta_2^a)}{\Gamma_{20}^a - \Gamma_{10} + \alpha_2 + i\Delta_2^a} \right] +$$

$$\left(\frac{2\sqrt{\pi}}{k_{1u}} \right) \left(\frac{-iN\mu_1^2\mu_3^2}{\hbar^3} \right) \epsilon_1 \epsilon_3 (\epsilon'_3)^* \exp [i(\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_3 - \mathbf{k}'_3) \cdot \mathbf{r}] \times$$

$$\exp [-i(\omega_1 t + \omega_3 \tau)] (\xi_2 - 1) \left\{ \frac{\exp(-\alpha_3 |\tau|)}{(\Gamma_{30}^a - \Gamma_{10} - \alpha_3 + i\Delta_3^a)^2} + \right.$$

$$\exp[-(\Gamma_{30}^a - \Gamma_{10} + i\Delta_3^a) |\tau|] \left[\frac{-\tau - 1/(\Gamma_{30}^a - \Gamma_{10} - \alpha_3 + i\Delta_3^a)}{\Gamma_{30}^a - \Gamma_{10} - \alpha_3 + i\Delta_3^a} + \right.$$

$$\left. \left. \frac{\tau + 1/(\Gamma_{30}^a - \Gamma_{10} + \alpha_3 + i\Delta_3^a)}{\Gamma_{30}^a - \Gamma_{10} + \alpha_3 + i\Delta_3^a} \right] \right\} \quad (10)$$

式中

$$\begin{aligned}\Gamma_{20}^a &= \Gamma_{20} + \xi_1 \Gamma_{10}, & \Delta_2^a &= \Delta_2 + \xi_1 \Delta_1, \\ \Gamma_{30}^a &= \Gamma_{30} + \xi_2 \Gamma_{10}, & \Delta_3^a &= \Delta_3 + \xi_2 \Delta_1.\end{aligned}$$

(10) 式表明, $\tau > 0$ 时, 四波混频信号强度的调制频率因子为

$$\begin{aligned}\omega_3 - \omega_2, & \quad (\Omega_3 - \omega_2) + \xi_2 \Delta_1, \\ (\omega_3 - \Omega_2) - \xi_1 \Delta_1, & \quad (\Omega_3 - \Omega_2) + (\xi_2 - \xi_1) \Delta_1,\end{aligned}$$

它们反映的是外界激光与四能级系统的总体特征。

2) $\tau < 0$ 时:

$$P^{(3)} = P^{(\uparrow)} + P^{(\downarrow)} =$$

$$\begin{aligned}& \left(\frac{2\sqrt{\pi}}{k_{1u}} \right) \left(\frac{-iN\mu_1\mu_2^2}{\hbar^3} \right) \epsilon_1 \epsilon_2 (\epsilon_2')^* \exp[-i(\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_2') \cdot \mathbf{r}] \exp[-i(\omega_1 t + \omega_2 \tau)] \times \\ & (\xi_1 - 1) \exp(-\alpha_2 |\tau|) \frac{1}{(\Gamma_{20}^a - \Gamma_{10} + \alpha_2 + i\Delta_2^a)^2} + \left(\frac{2\sqrt{\pi}}{k_{1u}} \right) \left(\frac{-iN\mu_1\mu_3^2}{\hbar^3} \right) \epsilon_1 \epsilon_3 (\epsilon_3')^* \times \\ & \exp[-i(\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_3 - \mathbf{k}_3') \cdot \mathbf{r}] \exp[-i(\omega_1 t + \omega_3 \tau)] (\xi_2 - 1) \times \\ & \exp(-\alpha_3 |\tau|) \frac{1}{(\Gamma_{30}^a - \Gamma_{10} + \alpha_3 + i\Delta_3^a)^2}\end{aligned}\quad (11)$$

从(11)式则看出, $\tau < 0$ 时四波混频信号强度的时间特性主要反映的是外部激光的特征, 即调制的频率和衰变率都是由外来激光决定。

下面根据泵光线宽与光学跃迁均匀增宽比值的不同情况来考虑四波混频信号强度。

首先考虑泵光为窄带的情形, 即 $\alpha_2 \ll \Gamma_{20}$, $\alpha_3 \ll \Gamma_{30}$ 。这种情形下, 无论 $\tau > 0$ 或 $\tau < 0$, $I(\tau)$ 有着相同的表达式。

$$\begin{aligned}I(\tau) \propto & \frac{(\xi_1 - 1)^2 \exp(-2\alpha_2 |\tau|)}{[(\Gamma_{20}^a - \Gamma_{10})^2 + (\Delta_2^a)^2]^2} + \frac{|\eta|^2 (\xi_2 - 1)^2 \exp(-2\alpha_3 |\tau|)}{[(\Gamma_{30}^a - \Gamma_{10})^2 + (\Delta_3^a)^2]^2} + \\ & \exp[-(\alpha_2 + \alpha_3) |\tau|] \{q \exp[-i(\omega_3 - \omega_2) \tau] + q^* \exp[i(\omega_3 - \omega_2) \tau]\}\end{aligned}\quad (12)$$

其中

$$q = \frac{\eta(\xi_1 - 1)(\xi_2 - 1)}{[(\Gamma_{20}^a - \Gamma_{10}) - i\Delta_2^a]^2 [(\Gamma_{30}^a - \Gamma_{10}) + i\Delta_3^a]^2}$$

(12) 式与(5)式结果完全类似, 当延时 τ 改变时, 四波混频信号强度以频率 $\omega_3 - \omega_2$ 呈阻尼振荡, 衰变率为 $\alpha_2 + \alpha_3$, 它反映了外部激光的特性。

再考虑泵光为宽带的情形, 即 $\alpha_2 \gg \Gamma_{20}$, $\alpha_3 \gg \Gamma_{30}$ 。

1) $\tau > 0$ 时

这种情形下, 四波混频信号强度迅速上升到最大值后, 然后主要以系统的横向驰豫时间决定的时间常数进行衰变, 假定 $\tau \gg \alpha_2^{-1}$, α_3^{-1} 。则:

$$\begin{aligned}I(\tau) \propto & \left[\frac{\alpha_2(\xi_1 - 1)\tau}{\alpha_2^2 + (\Delta_2^a)^2} \right]^2 \exp[-2(\Gamma_{20}^a - \Gamma_{10})\tau] + \\ & |\eta|^2 \left[\frac{\alpha_3(\xi_2 - 1)\tau}{\alpha_3^2 + (\Delta_3^a)^2} \right]^2 \exp[-2(\Gamma_{30}^a - \Gamma_{10})\tau] + \\ & \left[\frac{\alpha_2(\xi_1 - 1)}{\alpha_2^2 + (\Delta_2^a)^2} \right] \left[\frac{\alpha_3(\xi_2 - 1)\tau}{\alpha_3^2 + (\Delta_3^a)^2} \right]^2 \exp[-(\Gamma_{20}^a + \Gamma_{30}^a - 2\Gamma_{10})\tau] \times \\ & \{ \eta \exp[-i(\Omega_3 - \Omega_2)\tau - i(\xi_2 - \xi_1)\Delta_1\tau] + \\ & \eta^* \exp[i(\Omega_3 - \Omega_2)\tau + i(\xi_2 - \xi_1)\Delta_1\tau] \}\end{aligned}\quad (13)$$

(13) 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。

2) $\tau < 0$ 时

$$I(\tau) \propto \frac{(\xi_1 - 1)^2 \exp(-2\alpha_2|\tau|)}{(\alpha_2 + \Delta_2^a)^2} + \frac{|\eta|^2(\xi_2 - 1)^2 \exp(-2\alpha_3|\tau|)}{(\alpha_3 + \Delta_3^a)^2} + \exp[-(\alpha_2 + \alpha_3)|\tau|] \{q' \exp[-i(\omega_3 - \omega_2)\tau + (q')^* \exp[i(\omega_3 - \omega_2)\tau]]\} \quad (14)$$

$$q' = \frac{(\xi_1 - 1)(\xi_2 - 1)\eta}{(\alpha_2 - i\Delta_2^a)^2(\alpha_3 - i\Delta_3^a)^2}$$

因为 $\tau < 0$ 时, 相位相关的子脉冲在时间上发生了重叠, 即二者是相干的, 类似于窄带情形。

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

$$E_{p1} = \epsilon_1 \exp[i(\mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{r} - \omega_1 t)]$$

$$E_{p2} = \epsilon_2 \exp[i(\mathbf{k}_2 \cdot \mathbf{r} - \omega_2 t)] + \epsilon_3 \exp[i(\mathbf{k}_3 \cdot \mathbf{r} - \omega_3 t)]$$

$$E_{p3} = \epsilon_2' \exp[i(\mathbf{k}_2' \cdot \mathbf{r} - \omega_2 t + \omega_2 \tau)] + \epsilon_3' \exp[i(\mathbf{k}_3' \cdot \mathbf{r} - \omega_3 t + \omega_3 \tau)]$$

信号强度变为

$$I(\tau) \propto |B_1|^2 + |\eta B_2|^2 + \eta B_1^* B_2 \exp[-i(\omega_3 - \omega_2)\tau] + \eta^* B_1 B_2^* \exp[-i(\omega_3 - \omega_2)\tau] \quad (15)$$

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, 但它的局限性便在于无法直接反映原子系统的能级结构。

3 讨论和结论

传统消除多普勒增宽的光谱很多, 如频率领域的饱和吸收光谱, 双光子吸收光谱, 它们的光谱分辨率取决于激光的线宽而与脉冲宽度无关, 因此可用窄带连续激光源, 但它们在测量能级分裂时需准确定标。另一方面, 如时间领域中的量子拍频、光子回波等, 它的时间分辨率取决于激光脉冲宽度与激光的线宽无关, 因此不可用连续激光源, 而它在测量能级分裂时不需要准确定标, 能级分裂可以直接从信号的调制中获得, 用四能级系统的超快调制光谱学与其它消除多普勒增宽的高分辨光谱学进行比较时发现, 当激光为窄带或宽带非相干光时, 分别对应双光子吸收光谱学与和频三能级光子回波。但它同时具有频率领域及时间领域高分辨率的优点。首先与双光子吸收光谱学不同的是能级分裂可直接从混频调制周期得到, 因此入射光频率不需要准确定标。其次, 与一般的和频三能级光子回波不同, 它的分辨率不由脉宽决定, 因此甚至可以用连续激光得到超快的调制信号。

传统的量子拍频在测量能级分裂时, 要求激光线宽必须大于能级分裂^[5]。而四能级系统的超快调制光谱学由于信号调制周期可以得到飞秒量级, 因此所测能级分裂可以大大超过入射光线宽。两能级差可达上百纳米。DeBeer 的超快调制光谱学, 在单光子简并四波混频过程中采用的自衍射几何配置, 是不能消除多普勒增宽的; 四能级系统的超快调制光谱学, 在双光子非简并四波混频中, 由于中间态是共振或近共振情形, 故可消除多普勒增宽^[6]。如果|1>到|2>的能级分裂知道, 利用四能级系统的超快调制光谱学, 就可以推出|1>到|3>的能级分裂, 因此可对高位激发态的一些信息进行研究。例如在以 3S 为基态、3P 为中间态、5S 和 4D 为激发态的钠蒸气的四能级系统中, 让三台染料激光器的波长 589 nm、616 nm、568.8 nm

分别对应于 $3S_{1/2}$ 到 $3P_{3/2}$ 、 $3P_{3/2}$ 到 $5S_{1/2}$ 、 $3P_{3/2}$ 到 $4D_{3/2, 5/2}$ 的跃迁, 其调制周期 $T = 2\pi|\omega_3 - \omega_2|^{-1} = 24.74 \text{ fs}$ 。

本文从理论上研究了四能级系统的超快调制光谱学, 表明被调制的四波混频信号随延时 τ 的变化呈阻尼振荡, 窄带时, 振荡频率 $\omega_3 - \omega_2$, 衰变率 $\alpha_2 + \alpha_3$; 宽带时, $\tau > 0$, 振荡频率 $(\Omega_3 - \Omega_2) + (\xi_2 - \xi_1)\Delta_1$, 衰变率 $(\Gamma_{20}^a + \Gamma_{30}^a - 2\Gamma_{10})$; $\tau < 0$, 类似于窄带情形, 当不考虑扰动因子 $u_i(t)$ 时, 四波混频信号随延时 τ 的变化呈等幅振荡, 频率为 $\omega_3 - \omega_2$, 还得到了用四能级系统的超快调制光谱学测量能级差总体精度取决于光学跃迁的均匀线宽的结论。

参 考 文 献

- [1] DeBeer D, Van Wagenen V G, Beach R *et al.*. Ultrafast modulation spectroscopy. *Phys. Rev. Lett.*, 1986, **56**(11) : 1128~ 1131
- [2] Fu Panming, Yu Zuhe, Mi Xin *et al.*. Doppler-free ultrafast modulation spectroscopy with phase-conjugation geometry. *Phys. Rev. (A)*, 1994, **50**(1) : 698~ 708
- [3] Fu Panming, Mi Xin, Yu Zuhe *et al.*. Ultrafast modulation spectroscopy in a cascade three-level system. *Phys. Rev. (A)*, 1995, **52**(6) : 4867~ 4870
- [4] Mi Xin, Yu Zuhe, Jiang Qian *et al.*. Polarization beats in a cascade three-level system. *Chin. Phys. Lett.*, 1995, **12**(11) : 669~ 672
- [5] Levenson M D. *Introduction to Nonlinear Laser Spectroscopy*, New York: Academic Press, 1982. 90~ 201
- [6] Bjorkholm J E, Liao P F. 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

Polarization Beats in a Four-Level System

Zhang Yanpeng Tang Tiantong
(Xi'an Jiaotong University, Xi'an 710049)

Fu Panming

(Institute of Physics, The Chinese Academy of Sciences, Beijing 100081)

(Received 3 December 1997; revised 12 March 1998)

Abstract Based on the interference between two-photon and two-photon processes, we have studied the ultrafast modulation spectroscopy (UMS) in a four-level system. The possibility of using UMS in a four-level system to measure the energy difference with Doppler-free precision has been demonstrated.

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