

V 型三能级系统中五阶极化拍频的理论研究*

张彦鹏 卢克清 唐天同

(西安交通大学电子科学与技术系, 西安 710049)

傅盘铭

(中国科学院物理研究所, 北京 100080)

摘 要 从理论上研究了由于五阶极化强度间的干涉所导致的 V 型三能级系统相位共轭超快调制光谱学, 考虑了抽运光束为窄带线宽或宽带线宽的情形。发现能级分裂的测量精度决定于光学跃迁的均匀增宽, 即这种技术在测量能级分裂时可得到消除多普勒增宽的精度。

关键词 极化拍频, 双光子, 六波混频, 布居栅, 光子回波。

1 引 言

利用各种技术对物质超快过程的研究一直是个热点。频域内的高分辨率光谱技术是一种间接的、结果不唯一的方法, 其光谱分辨率取决于激光线宽。在时域中, 利用逐渐成熟的超短脉冲技术可研究亚皮秒甚至飞秒时域内的超快弛豫过程, 时间分辨率取决于激光脉宽, 但其仍然存在着系统复杂、昂贵、受变换极限的限制以及群速色散等问题。Morita 提出利用易获得的纳秒非相干光测量物质的相位弛豫时间 T_2 和集居数弛豫时间 T_1 。时间分辨率决定于非相干光的相干时间。若非相干光的频谱足够宽的话, 时间分辨率可达到皮秒甚至飞秒量级。但需要激光线宽大于能级分裂^[1], 因此只能研究超精细或精细支能级结构。DeBeer 提出的窄带光源超快调制光谱学, 虽然其对能级分裂的测量不受激光线宽的限制, 但由于其采用自衍射几何配置, 不能消除多普勒增宽^[2]。而相位共轭几何配置情形下的飞秒极化拍频是一种三阶非线性过程^[3], 它对能级分裂的测量与激光线宽和多普勒增宽无关, 总体精度仅取决于光学跃迁均匀增宽, 能级分裂也不受激光线宽的限制。本文报道了相位共轭几何配置情形下 V 型三能级系统中的五阶飞秒极化拍频^[4]。

2 理 论

V 型三能级系统的能级位形图(如图 1)中, $|0\rangle$ 为基态, $|1\rangle$ 、 $|2\rangle$ 为激发态。抽运光的相位共轭几何配置如图 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 $|0\rangle$ 到 $|1\rangle$ 、 $|0\rangle$ 到 $|2\rangle$ 的共振频率 Ω_1 、 Ω_2 , 假定光束 3 的频率 ω_3 接近于 Ω_1 。光束 1、2 中间有一

* 国家自然科学基金(69978019)和西安交通大学科学基金(9804)资助项目。

收稿日期: 1998-10-05; 收到修改稿日期: 1998-12-01

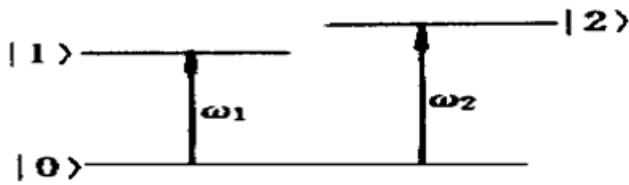


Fig. 1 V-type three-level configuration

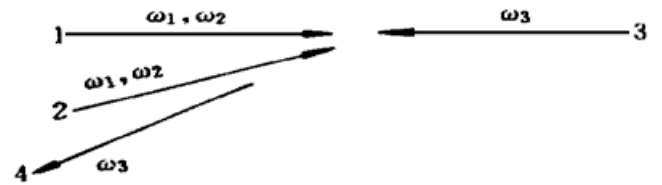


Fig. 2 Schematic diagram of the geometry of the various beams

很小的夹角。在三阶非线性过程中, ω_1 、 ω_2 将感生出 $|0\rangle$ 到 $|1\rangle$ 及 $|2\rangle$ 的基态布居栅, 探测光束 3 被此二布居栅一级衍射后, 频率为 ω_3 的四波混频(FWM)信号出射方向沿 $\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}'_1 + \mathbf{k}_3$ 和 $\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}'_2 + \mathbf{k}_3$, 二者几乎沿同一方向, 相位共轭几何配置情形下的三阶飞秒极化拍频的详细讨论见有关文献^[3]。抽运光较强时, 可发生五阶非线性过程。频率为 ω_3 的六波混频(SWM)信号(二级衍射)出射方向沿 $2\mathbf{k}_1 - 2\mathbf{k}'_1 + \mathbf{k}_3$ 、 $2\mathbf{k}_2 - 2\mathbf{k}'_2 + \mathbf{k}_3$ 和 $\mathbf{k}_3 + \mathbf{k}_1 - \mathbf{k}'_1 + \mathbf{k}_2 - \mathbf{k}'_2$, 三者几乎沿同一方向。挡掉三阶极化拍频的信号, 就可在光束 4 方向上获得五阶极化拍频信号。

光束 3、4 的方向几乎分别与光束 1、2 相反, 所有入射光束都具有相同方向的线偏振, 假定抽运光 3 为单色光, 则可建立复电场如下:

$$\begin{aligned} E_{P1} &= A_1(\mathbf{r}, t) \exp(-i\omega_1 t) + A_2(\mathbf{r}, t) \exp(-i\omega_2 t) = \\ &\quad \epsilon_1 u_1(t) \exp[i(\mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{r} - \omega_1 t)] + \epsilon_2 u_2(t) \exp[i(\mathbf{k}_2 \cdot \mathbf{r} - \omega_2 t)], \\ E_{P2} &= A'_1(\mathbf{r}, t) \exp(-i\omega_1 t) + A'_2(\mathbf{r}, t) \exp(-i\omega_2 t) = \\ &\quad \epsilon'_1 u_1(t - \tau) \exp[i(\mathbf{k}'_1 \cdot \mathbf{r} - \omega_1 t + \omega_1 \tau)] + \epsilon'_2 u_2(t - \tau) \exp[i(\mathbf{k}'_2 \cdot \mathbf{r} - \omega_2 t + \omega_2 \tau)], \\ E_{P3} &= A_3(\mathbf{r}, t) \exp(-i\omega_3 t) = \epsilon_3 \exp[i(\mathbf{k}_3 \cdot \mathbf{r} - \omega_3 t)], \end{aligned}$$

式中, ϵ_i 、 ϵ'_i 分别是光束 1 和 2 中频率成份 ω_i ($i = 1, 2$) 的常数场振幅, ϵ_3 是光束 3 的常数场振幅。 \mathbf{k}_1 、 \mathbf{k}_2 是光束 1 中 ω_i ($i = 1, 2$) 频率成份的波矢量, \mathbf{k}'_1 、 \mathbf{k}'_2 是光束 2 中 ω_i ($i = 1, 2$) 频率成份的波矢量, A_1 、 A_2 是光束 1 中 ω_i ($i = 1, 2$) 频率成份的复振幅, A_3 是光束 3 中 ω_3 频率成份的复振幅, A'_1 、 A'_2 是光束 2 中 ω_i ($i = 1, 2$) 频率成分的复振幅, $u_i(t)$ 是描述光场相位和振幅涨落的无量纲扰动因子, τ 为光束 1、2 之间的相对时间延迟。

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:

$$\begin{aligned} \text{(I)} \quad & \rho_{00}^{(0)} \xrightarrow{A_1} \rho_{10}^{(1)} \xrightarrow{(A'_1)^*} \rho_{00}^{(2)} \xrightarrow{A_1} \rho_{10}^{(3)} \xrightarrow{(A'_1)^*} \rho_{00}^{(4)} \xrightarrow{A_3} \rho_{10}^{(5)}, \\ \text{(II)} \quad & \rho_{00}^{(0)} \xrightarrow{A_1} \rho_{10}^{(1)} \xrightarrow{(A'_1)^*} \rho_{11}^{(2)} \xrightarrow{A_1} \rho_{10}^{(3)} \xrightarrow{(A'_1)^*} \rho_{11}^{(4)} \xrightarrow{A_3} \rho_{10}^{(5)}, \\ \text{(III)} \quad & \rho_{00}^{(0)} \xrightarrow{A_1} \rho_{10}^{(1)} \xrightarrow{(A'_1)^*} \rho_{00}^{(2)} \xrightarrow{A_2} \rho_{20}^{(3)} \xrightarrow{(A'_2)^*} \rho_{00}^{(4)} \xrightarrow{A_3} \rho_{10}^{(5)}, \\ \text{(IV)} \quad & \rho_{00}^{(0)} \xrightarrow{A_2} \rho_{20}^{(1)} \xrightarrow{(A'_2)^*} \rho_{00}^{(2)} \xrightarrow{A_1} \rho_{10}^{(3)} \xrightarrow{(A'_1)^*} \rho_{00}^{(4)} \xrightarrow{A_3} \rho_{10}^{(5)}, \\ \text{(V)} \quad & \rho_{00}^{(0)} \xrightarrow{A_2} \rho_{20}^{(1)} \xrightarrow{(A'_2)^*} \rho_{00}^{(2)} \xrightarrow{A_2} \rho_{20}^{(3)} \xrightarrow{(A'_2)^*} \rho_{00}^{(4)} \xrightarrow{A_3} \rho_{10}^{(5)}, \\ \text{(VI)} \quad & \rho_{00}^{(0)} \xrightarrow{A_2} \rho_{20}^{(1)} \xrightarrow{(A'_2)^*} \rho_{22}^{(2)} \xrightarrow{A_2} \rho_{20}^{(3)} \xrightarrow{(A'_2)^*} \rho_{00}^{(4)} \xrightarrow{A_3} \rho_{10}^{(5)}, \end{aligned}$$

式中 A_1^* 、 A_2^* 、 A_3^* 分别是 A_1 、 A_2 、 A_3 的复共轭。每个微扰链中, 第一个复振幅与第二个复振幅、第三个复振幅与第四个复振幅之间可以交换。

微扰链(I)和(II)分别是与基态布居栅和激发态($|1\rangle$)布居栅对应的单光子简并六波混频(DSWM)过程, 微扰链(III)、(IV)、(V)是与基态布居栅对应的单光子非简并六波混频(NDSWM)过程, 微扰链(VI)对应单光子非简并六波混频过程。本文仅关心调制频率为

$\omega_2 - \omega_1$ 的信号, 故可有两种拍频方式, (I)、(II)、(III)、(IV) 拍和(III)、(IV)、(V)、(VI) 拍。

假定热平衡状态下原子处于基态, 即 $\rho_{00}^{(0)} = 1$ 。利用密度矩阵动力学方程, 可求解以上微扰链。

在多普勒增宽系统中, 极化强度为

$$P^{(5)} = N \mu_1 \int_{-\infty}^{+\infty} d\mathbf{v} w(\mathbf{v}) \rho_{10}^{(5)}(\mathbf{v}),$$

式中 $w(\mathbf{v}) = \left(\frac{1}{\sqrt{\pi}\psi}\right) \exp[-(\frac{\mathbf{v}}{\psi})^2]$, $\psi = \sqrt{\frac{2k_B T}{m}}$, \mathbf{v} 为原子速度, N 为原子个数, m 为原子质量, k_B 为玻尔兹曼常数, T 为绝对温度。在任意变量的随机过程中拍频信号正比于 $P^{(5)}$ 绝对值平方的平均值。若采用 DeBeer 的自衍射几何配置, 拍频信号强度将与十阶相干函数有关, 由于采用相位共轭几何配置, 拍频信号强度仅与八阶相干函数有关, 假定抽运光 1、2 是多模热源的混沌统计模式, 遵从高斯统计规律, 而本文只关心与 τ 有关的信号, 信号强度 $I(\tau) \propto |R^{(5)}|^2$, 式中仅包含二阶相干函数; 若抽运光为洛伦兹线型, 则

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

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

由此可得极化强度的统计平均值 $R^{(5)}$, 拍频信号强度为 $I(\tau) \propto |R^{(5)}|^2$ 。

2.1 窄带情形

抽运光为窄带情形, 即激光线宽远小于跃迁的均匀线宽 ($\alpha_1 \ll \Gamma_{10}$, $\alpha_2 \ll \Gamma_{20}$)。在忽略多普勒效应时, 由第一种拍频方式得

$$I(\tau) \propto |B_1|^2 \exp(-4\alpha_1 |\tau|) + |\eta B_2|^2 \exp[-2(\alpha_1 + \alpha_2) |\tau|] + \exp[-(3\alpha_1 + \alpha_2) |\tau|] \times \{ \eta B_1^* B_2 \exp[-i(\omega_2 - \omega_1) \tau] + \eta^* B_1 B_2^* \exp[i(\omega_2 - \omega_1) \tau] \}; \quad (1)$$

由第二种拍频方式得

$$I(\tau) \propto |B_2|^2 \exp[-2(\alpha_1 + \alpha_2) |\tau|] + |\eta B_3|^2 \exp(-4\alpha_2 |\tau|) + \exp[-(\alpha_1 + 3\alpha_2) |\tau|] \times \{ \eta B_2^* B_3 \exp[-i(\omega_2 - \omega_1) \tau] + \eta^* B_2 B_3^* \exp[i(\omega_2 - \omega_1) \tau] \}. \quad (2)$$

式中

$$B_1 = \left(\frac{1}{\Gamma_0} + \frac{1}{\Gamma_1}\right) \frac{4(\Gamma_{10})^2}{\Gamma_0(\Gamma_{10} + i\Delta_3)[(\Gamma_{10})^2 + (\Delta_1)^2]},$$

$$B_2 = \frac{8\Gamma_{10}\Gamma_{20}}{(\Gamma_0)^2(\Gamma_{10} + i\Delta_3)[(\Gamma_{10})^2 + (\Delta_1)^2][(\Gamma_{20})^2 + (\Delta_2)^2]},$$

$$B_3 = \left(\frac{1}{\Gamma_0} + \frac{1}{\Gamma_1}\right) \frac{4(\Gamma_{20})^2}{\Gamma_0(\Gamma_{10} + i\Delta_3)[(\Gamma_{20})^2 + (\Delta_2)^2]},$$

$$\eta \approx \frac{\mu_2^2}{\mu_1^2} \left[\frac{\epsilon_2(\epsilon_2^*)}{\epsilon_1(\epsilon_1^*)} \right],$$

这里 μ_1 、 μ_2 分别为 $|0\rangle$ 到 $|1\rangle$ 、 $|0\rangle$ 到 $|2\rangle$ 的跃迁偶极矩阵元, Γ_0 、 Γ_1 、 Γ_2 分别为 $|0\rangle$ 、 $|1\rangle$ 、 $|2\rangle$ 态的纵向弛豫率, Γ_{10} 、 Γ_{20} 为 $|0\rangle$ 到 $|1\rangle$ 、 $|0\rangle$ 到 $|2\rangle$ 的横向弛豫率, $\Delta_1 = \Omega_1 - \omega_1$ 、 $\Delta_2 = \Omega_2 - \omega_2$ 、 $\Delta_3 = \Omega_1 - \omega_3$, 带* 的量是不带* 的量的复共轭。

(1) 式、(2) 式表明了窄带情形下, 拍频信号呈现阻尼振荡, 调制频率为 $\omega_2 - \omega_1$, 衰变

率为 $3\alpha_1 + \alpha_2$ 和 $\alpha_1 + 3\alpha_2$, 反映了外部激光的特性而与能级系统无关, 调制频率的测量精度为 $\pi(3\alpha_1 + \alpha_2)$ 和 $\pi(\alpha_1 + 3\alpha_2)$ 。能级分裂的测量精度取决于把 ω_1 和 ω_2 分别调谐到 Ω_1 和 Ω_2 的好坏, 这种情况对应于饱和吸收光谱学中单光子共振六波混频^[3], 能级分裂测量的总体精度仅取决于光学跃迁均匀增宽, 因此测量能级分裂 $\Omega_2 - \Omega_1$ 时可得到消除多普勒增宽的精度。

2.2 多普勒增宽极限情形

下面用另一种方法来分析五阶非线性极化强度。在多普勒增宽极限情形下(即 $k_3u \rightarrow \infty$) 先对速度进行积分得到拍频信号强度。下面分别从抽运光为窄带和宽带考虑信号强度。

2.2.1 抽运光为窄带时 ($\alpha_1 \ll \Gamma_{10}$, $\alpha_2 \ll \Gamma_{20}$) 的情形

由第一种拍频方式得

$$I(\tau) \propto |B_4|^2 \exp(-4\alpha_1|\tau|) + |\eta B_5|^2 \exp[-2(\alpha_1 + \alpha_2)|\tau|] + \exp[-(3\alpha_1 + \alpha_2)|\tau|] \times \{ \eta B_4^* B_5 \exp[-i(\omega_2 - \omega_1)\tau] + \eta^* B_4 B_5^* \exp[i(\omega_2 - \omega_1)\tau] \}; \quad (3)$$

由第二种拍频方式得

$$I(\tau) \propto |B_5|^2 \exp[-2(\alpha_1 + \alpha_2)|\tau|] + |\eta B_6|^2 \exp(-4\alpha_2|\tau|) + \exp[-(\alpha_1 + 3\alpha_2)|\tau|] \times \{ \eta B_5^* B_6 \exp[-i(\omega_2 - \omega_1)\tau] + \eta^* B_5 B_6^* \exp[i(\omega_2 - \omega_1)\tau] \}. \quad (4)$$

式中

1) $\tau > 0$ 时

$$B_4 = \left(\frac{1}{\Gamma_0^2} + \frac{1}{\Gamma_1^2} \right) \left[\frac{1}{(\Gamma_{10}^a + i\Delta_1^a)^2} + \frac{2}{(1 - \xi_1)\Gamma_{10} - i\Delta_2^a} \left(\frac{1}{2\Gamma_{10}} + \frac{1}{\Gamma_{10}^a + i\Delta_1^a} \right) \right],$$

$$B_5 = \frac{2}{\Gamma_0^2} \left[\frac{1}{(\Gamma_{10}^a + i\Delta_1^a)(\Gamma_{20}^a + i\Delta_2^a)} + \frac{1}{(1 - \xi_1)\Gamma_{10} - i\Delta_1^a} \left(\frac{1}{\Gamma_{20}^a + i\Delta_2^a} + \frac{1}{c_1\Gamma_{10} + \Gamma_{20} - ic_1\Delta_1 + i\Delta_2} \right) + \frac{1}{\Gamma_{20} - \xi_2\Gamma_{10} - i\Delta_2^a} \left(\frac{1}{\Gamma_{10}^a + i\Delta_1^a} + \frac{1}{c_2\Gamma_{20} + \Gamma_{10} + i\Delta_1 - ic_2\Delta_2} \right) \right],$$

$$B_6 = \left(\frac{1}{\Gamma_0^2} + \frac{1}{\Gamma_2^2} \right) \left[\frac{1}{(\Gamma_{20}^a + i\Delta_2^a)^2} + \frac{2}{\Gamma_{20} - \xi_2\Gamma_{10} - i\Delta_2^a} \left(\frac{1}{2\Gamma_{20}} + \frac{1}{\Gamma_{20}^a + i\Delta_2^a} \right) \right];$$

2) $\tau < 0$ 时

$$B_4 = \left(\frac{1}{\Gamma_0^2} + \frac{1}{\Gamma_1^2} \right) \left[\frac{1}{(\Gamma_{10}^a + i\Delta_1^a)^2} + \frac{1}{\Gamma_{10}(\Gamma_{10}^a + i\Delta_1^a)} \right],$$

$$B_5 = \frac{2}{\Gamma_0^2} \left[\frac{1}{(\Gamma_{10}^a + i\Delta_1^a)(\Gamma_{20}^a + i\Delta_2^a)} + \frac{1}{(\Gamma_{10}^a + i\Delta_1^a)(c_1\Gamma_{10} + \Gamma_{20} + ic_1\Delta_1 - i\Delta_2)} + \frac{1}{(\Gamma_{20}^a + i\Delta_2^a)(\Gamma_{10} + c_2\Gamma_{20} - i\Delta_1 + ic_2\Delta_2)} \right],$$

$$B_6 = \left(\frac{1}{\Gamma_0^2} + \frac{1}{\Gamma_1^2} \right) \left[\frac{1}{(\Gamma_{20}^a + i\Delta_2^a)^2} + \frac{1}{\Gamma_0(\Gamma_{20}^a + i\Delta_2^a)} \right].$$

这里

$$\Gamma_{10}^a = \Gamma_{10} + \xi_1\Gamma_{10}, \quad \Gamma_{20}^a = \Gamma_{20} + \xi_2\Gamma_{10},$$

$$\Delta_1^a = \Delta_1 + \xi_1\Delta_3, \quad \Delta_2^a = \Delta_2 + \xi_2\Delta_3,$$

$$\xi_1 = \frac{k_1}{k_3}, \quad \xi_2 = \frac{k_2}{k_3},$$

$$c_1 = \frac{k_2}{k_1}, \quad c_2 = \frac{k_1}{k_2}.$$

(3) 式、(4) 式的结果分别与(1)式、(2)式类似, 反映了激光的特性, 而与能级结构无关, 一般来说信号关于 $\tau = 0$ 不对称。

2.2.2 抽运光为宽带 ($\alpha_1 \gg \Gamma_{10}$, $\alpha_2 \gg \Gamma_{20}$) 时的情形,

假定 $\tau \gg \alpha_1^{-1}$, $\tau \gg \alpha_2^{-1}$, 有

1) $\tau > 0$ 时

由第一种拍频方式得

$$I(\tau) \propto |q_1|^2 \exp[-4\Gamma_{10}^a |\tau|] + |\eta q_2|^2 \exp[-2(\Gamma_{10}^a + \Gamma_{20}^a) |\tau|] + \exp[-(3\Gamma_{10}^a + \Gamma_{20}^a) |\tau|] \{q_1^* \eta q_2 \exp[-i(\Omega_2 - \Omega_1)\tau - i(\xi_2 - \xi_1)\Delta_3 \tau] + q_1 \eta^* q_2^* \exp[i(\Omega_2 - \Omega_1)\tau + i(\xi_2 - \xi_1)\Delta_3 \tau]\}; \quad (5)$$

由第二种拍频方式得

$$I(\tau) \propto |q_2|^2 \exp[-2(\Gamma_{10}^a + \Gamma_{20}^a) |\tau|] + |\eta q_3|^2 \exp[-4\Gamma_{20}^a |\tau|] + \exp[-(\Gamma_{10}^a + 3\Gamma_{20}^a) |\tau|] \{q_2^* \eta q_3 \exp[-i(\Omega_2 - \Omega_1)\tau - i(\xi_2 - \xi_1)\Delta_3 \tau] + q_2 \eta^* q_3^* \exp[i(\Omega_2 - \Omega_1)\tau + i(\xi_2 - \xi_1)\Delta_3 \tau]\}. \quad (6)$$

式中

$$q_1 = \left(\frac{1}{\Gamma_0^2} + \frac{1}{\Gamma_1^2}\right) \frac{4\alpha_1^2}{[(\Delta_1^a)^2 + \alpha_1^2]^2},$$

$$q_2 = \frac{8\alpha_1\alpha_2}{\Gamma_0^2[(\Delta_1^a)^2 + \alpha_1^2][(\Delta_2^a)^2 + \alpha_2^2]},$$

$$q_3 = \frac{4}{\Gamma_0} \left(\frac{1}{\Gamma_0} + \frac{1}{\Gamma_1}\right) \left[\frac{\alpha_2}{(\Delta_2^a)^2 + \alpha_2^2}\right]^2.$$

由(5)、(6)式可以看出, 宽带 $\tau > 0$ 时, 对应于相干瞬态光谱学^[1], 存在着偶极矩的自由演化效应。拍频信号直接反映了能级的结构, 而与外部激光特性无关。调谐 $\Delta_3 = 0$, 拍频信号的调制频率就是能级分裂。能级分裂 $\Omega_2 - \Omega_1$ 测量的总体精度为 $\pi(3\Gamma_{10}^a + \Gamma_{20}^a)$ 或 $\pi(\Gamma_{10}^a + 3\Gamma_{20}^a)$, 仅取决于光学跃迁的均匀增宽, 而与激光线宽和多普勒增宽无关。

2) $\tau < 0$ 时

由第一种拍频方式得

$$I(\tau) \propto |C_1|^2 \exp(-4\alpha_1 |\tau|) + |\eta C_2|^2 \exp[-2(\alpha_1 + \alpha_2) |\tau|] + \exp[-(3\alpha_1 + a_2) |\tau|] \times \{\eta C_1^* C_2 \exp[-i(\omega_2 - \omega_1)\tau] + \eta^* C_1 C_2^* \exp[i(\omega_2 - \omega_1)\tau]\}; \quad (7)$$

由第二种拍频方式得

$$I(\tau) \propto |C_3|^2 \exp[-2(\alpha_1 + \alpha_2) |\tau|] + |\eta C_4|^2 \exp(-4\alpha_2 |\tau|) + \exp[-(\alpha_1 + 3a_2) |\tau|] \times \{\eta C_3^* C_4 \exp[-i(\omega_2 - \omega_1)\tau] + \eta^* C_3 C_4^* \exp[i(\omega_2 - \omega_1)\tau]\}. \quad (8)$$

式中

$$C_1 = \left(\frac{1}{\Gamma_0^2} + \frac{1}{\Gamma_1^2}\right) \left[\frac{1}{(\Delta_1^a)^2 + (\Gamma_{10}^a)^2}\right]^2, \quad C_2 = \frac{2}{\Gamma_0^2(i\Delta_1^a + \Gamma_{10}^a)(i\Delta_2^a + \Gamma_{20}^a)},$$

$$C_3 = \frac{2}{\Gamma_0^2(i\Delta_1^a + \alpha_1)(i\Delta_2^a + \alpha_2)}, \quad C_4 = \frac{1}{\Gamma_0} \left(\frac{1}{\Gamma_0} + \frac{1}{\Gamma_2}\right) \left(\frac{1}{i\Delta_2^a + \alpha_2}\right)^2.$$

由于 $\tau < 0$ 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, 信号的时间特性与窄带的情形(1)、(2)式类似。

2.3 光子回波法研究宽带情形

由相位匹配条件 $2k_1 - 2k_1' + k_3$ 、 $2k_2 - 2k_2' + k_3$ 和 $k_3 + k_1 - k_1' + k_2 - k_2'$ 可知, (I) 至 (VI) 链中均可发生光子回波^[5]。在多普勒极限增宽情形下 ($k_{3u} \rightarrow \infty$), 抽运光为宽带光时,

$$\exp(-\alpha_i |t - \tau|) \approx \left(\frac{2}{\alpha_i}\right) \delta(t - \tau) \quad i = 1, 2,$$

可得极化强度的平均值 $\langle P^{(5)} \rangle$ 。

1) $\tau > 0$ 时

(I)、(II)、(III)、(IV) 之间的拍频为

$$\langle P^{(5)} \rangle = P^{(I)} + P^{(II)} + P^{(III)} + P^{(IV)},$$

$$\begin{aligned} I(\tau) \propto & \frac{1}{\alpha_i^4} \left(\frac{1}{\Gamma_0^2} + \frac{1}{\Gamma_1^2} \right)^2 \exp[-4(\Gamma_{10}^a) |\tau|] + |\eta|^2 \frac{1}{[(\Gamma_0)^2 \alpha_1 \alpha_2]^2} \times \\ & \exp[-2(\Gamma_{10}^a + \Gamma_{20}^a) |\tau|] + \frac{1}{\alpha_1^3 \alpha_2 (\Gamma_0)^2} \left(\frac{1}{\Gamma_0^2} + \frac{1}{\Gamma_1^2} \right) \times \\ & \exp[-(3\Gamma_{10}^a + \Gamma_{20}^a) |\tau|] \{ \eta \exp[-i(\Omega_2 - \Omega_1)\tau - i(\xi_2 - \xi_1)\Delta_3 \tau] + \eta^* \times \\ & \exp[i(\Omega_2 - \Omega_1)\tau + i(\xi_2 - \xi_1)\Delta_3 \tau] \}, \end{aligned} \quad (9)$$

此时与(5)式结果完全类似。

(III)、(IV)、(V)、(VI) 之间的拍频为

$$\langle P^{(5)} \rangle = P^{(III)} + P^{(IV)} + P^{(V)} + P^{(VI)},$$

$$\begin{aligned} I(\tau) \propto & \frac{1}{(\Gamma_0^2 \alpha_1 \alpha_2)^2} \exp[-2(\Gamma_{10}^a + \Gamma_{20}^a) |\tau|] + |\eta|^2 \frac{1}{\Gamma_0^2 \alpha_2^4} \left(\frac{1}{\Gamma_0} + \frac{1}{\Gamma_2} \right)^2 \times \\ & \exp[-4\Gamma_{20}^a |\tau|] + \frac{1}{\Gamma_0^3 \alpha_1 \alpha_2^3} \left(\frac{1}{\Gamma_0} + \frac{1}{\Gamma_2} \right) \times \\ & \exp[-(\Gamma_{10}^a + 3\Gamma_{20}^a) |\tau|] \{ \eta \exp[-i(\Omega_2 - \Omega_1)\tau - i(\xi_2 - \xi_1)\Delta_3 \tau] + \\ & \eta^* \exp[i(\Omega_2 - \Omega_1)\tau + i(\xi_2 - \xi_1)\Delta_3 \tau] \}, \end{aligned} \quad (10)$$

此时与(6)式结果完全类似。

2) $\tau < 0$ 时,

$$\exp(-\alpha_i |t - \tau|) \approx \left(\frac{2}{\alpha_i}\right) \delta(t - \tau) \approx 0,$$

故(I)至(VI)均不发生光子回波。此时由于相关子脉冲时间上发生重叠, 光束 1、2 间变为相互相干, 信号的时间特性与窄带的情形类似。

3 讨论与结论

本文从理论上分析了在多普勒增宽系统中相位共轭几何配置情形下 V 型三能级系统中的五阶飞秒极化拍频效应。

极化拍频是非线性物质中激发的宏观极化强度干涉的结果, 区别于波函数振幅干涉引起的量子拍频。作者在三阶极化拍频实验中发现的双峰现象^[3], 是由强场和原子系统共振作用时五阶非线性效应引起的。对一些高非线性效应的材料如半导体、多聚物和一些特殊玻璃, 五阶极化拍频效应就尤为重要。

采用相位共轭几何配置情形下的五阶飞秒极化拍频技术测量能级分裂时, 无论抽运光为窄带或宽带其对能级分裂测量的总体精度仅取决于光学跃迁的均匀增宽, 而与激光线宽和多普勒增宽无关。在多普勒增宽系统(如钠蒸气)中, 用纳秒脉宽激光器可得到皮秒甚至飞秒量级的时间分辨率。且容许有一定的机械振动, 光学元件的畸变及其它微扰, 而不影响能级分裂的测量精度。

参 考 文 献

- [1] Morita N, Yajima T. Ultrahigh-time-resolution coherent transient spectroscopy with incoherent light. *Phys. Rev.*, 1984, **30**(5) : 2525~ 2535
- [2] DeBeer D, Van Wagenen L G, Beach R *et al.*. Ultrafast modulation spectroscopy. *Phys. Rev. Lett.*, 1986, **56**(11) : 1128~ 1131
- [3] Fu Panming, Mi Xin, Yu Zuhe *et al.*. Ultrafast modulation spectroscopy in a cascade three-level system. *Phys. Rev.*, 1995, **52**(6) : 4867~ 4870
- [4] Ma H, de Araujo C B. Interference between third- and fifth-order polarizations in semiconductor doped glasses. *Phys. Rev. Lett.*, 1993, **71**(22) : 3649~ 3652
- [5] Mossberg T W, Kachru R, Hartmann S R *et al.*. Echoes in gaseous media: A generalized theory of rephasing phenomena. *Phys. Rev.*, 1979, **20**(10) : 1976~ 1996

Theoretical Study of Fifth-Order Polarization Beat Frequency in a V-Type Three-Level System*

Zhang Yanpeng Lu Keqing Tang Tiantong

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

Fu Panming

(Institute of Physics, The Chinese Academy of Sciences, Beijing 100080)

(Received 5 October 1998; revised 1 December 1998)

Abstract The phase-conjugate ultrafast modulation spectroscopy is studied theoretically due to the interference between fifth-order optical polarization in a V-type three-level system, and considered the cases that the pump beams have either narrowband or broadband linewidth. It is found that the accuracy of the energy-level splitting measurement is determined by the homogeneous linewidths of the optical transitions. It means that this technique can achieve Doppler-free precision in the measurement of energy level splitting.

Key words polarization beat frequency, two-photon, six-wave mixing, population grating, photon echo.

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China under Grant No. 69978019 and the Science Foundation of Xi'an Jiaotong University under Grant No. 9804