

文章编号: 0253-2239(2006)06-0953-8

# 阿秒和频相位共轭极化拍频的不对称色锁 二阶相干控制\*

余孝军<sup>1</sup> 葛 浩<sup>1</sup> 甘琛利<sup>2</sup> 严祥安<sup>1</sup> 姜 彤<sup>1</sup> 杜 凯<sup>1</sup>

傅 鑫<sup>1</sup> 刘书一<sup>1</sup> 宋建平<sup>1</sup> 张彦鹏<sup>1\*\*</sup>

(<sup>1</sup> 西安交通大学电子科学与技术系, 西安 710049)  
(<sup>2</sup> 北德克萨斯大学物理系, 美国)

**摘要:** 研究了级联三能级系统中孪生色锁随机光场的相位共轭阿秒和频极化拍频(ASPB)不对称新效应。从理论上分析了自关联单光子简并四波混频(DFWM)和双光子非简并四波混频(NDFWM)信号辐射场与物质间不对等效应、混合型太赫兹失谐振荡特性,及双光子非简并共振四波混频信号的延时不对称性;同时也分析了由于干涉计两臂不平衡色散效应引起的阿秒和频极化拍频信号的延时不对称性,即阿秒和频极化拍频信号的最大值相对于零延时有一个小偏移,结果表明该不对称性并这不影响阿秒和频极化拍频零差探测两偶极禁戒跃迁能级分裂的总体精度。阿秒和频极化拍频作为一种消除多普勒增宽的超快调制过程,从理论上说它可以扩展到任何两偶极禁戒跃迁能级系统。

**关键词:** 光电子学;阿秒和频;四波混频;极化拍频

中图分类号: O437 文献标识码: A

## Asymmetric Second-Order Color-Locking Coherent Control of Phase-Conjugated Attosecond Sum-Frequency Polarization Beats

Yu Xiaojun<sup>1</sup> Ge Hao<sup>1</sup> Gan Chenli<sup>2</sup> Yan Xiang'an<sup>1</sup> Jiang Tong<sup>1</sup>

Du Kai<sup>1</sup> Fu Xin<sup>1</sup> Liu Shuyi<sup>1</sup> Song Jianping<sup>1</sup> Zhang Yanpeng<sup>1</sup>

(<sup>1</sup> Department of Electronic Science and Technology, Xian Jiaotong University, Xian 710049)  
(<sup>2</sup> Department of Physics, University of North Texas, Denton, TX 7603-14277, USA)

**Abstract:** The new effects of phase-conjugation asymmetric attosecond sum-frequency polarization beat (ASPB) of twin composite color-locking stochastic fields in cascade three-level system are investigated. The radiation field-matter asymmetric effects and hybrid detuning terahertz oscillation property of self-correlation single-photon degenerate four-wave mixing signal (DFWM) and two-photon nondegenerate four-wave mixing signal (NDFWM), and time-delay asymmetry of two-photon non-degenerate resonant four-wave mixing theoretically are analyzed; the time-delay asymmetry of polarization beat signal caused by the unbalanced dispersion effects between the two arms of Michelson interferometer, which is the phenomenon that the maximum of the polarization beat signal shifts from zero time delay, is also studied. But this asymmetry does not affect the total precision of homodyne detected ASPB signal when detecting the energy-splitting of two transition-forbidden excited states. As a Doppler-free attosecond ultrafast coherent modulation process, ASPB can be intrinsically extended to any two dipolar forbidden energy-level systems.

**Key words:** optoelectronics; attosecond sum-frequency; four-wave mixing (FWM); polarization beats

### 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<sup>[1~9]</sup>。频域内的高分辨力光谱技术是一种间接的,结果不唯一的方法,其光谱分辨力取决于激光线

\* 国家自然科学基金(60308002)、全国博士学位论文作者专项基金(200339)、教育部科学技术研究重点项目(105156)和高等学校博士学科点专项科研基金(20050698017)资助课题。

作者简介: 余孝军(1983~),男,河南信阳人,西安交通大学电信学院物理电子学硕士研究生,主要从事超快非线性激光光谱学的研究。E-mail: ldsj1314@stu.xjtu.edu.cn

\*\* 通信联系人。ypzhang@mail.xjtu.edu.cn

收稿日期: 2005-06-02; 收到修改稿日期: 2005-10-28

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,时间分辨力取决于激光脉宽,但是仍然存在着系统复杂、昂贵、傅里叶变换极限的限制以及群速色散等问题。美国 Albrecht 和 Ulness 研究小组对液体拉曼分子振动能级体系中的光物理和光化学中的超快动力学过程进行了大量的理论和实验工作<sup>[1,2]</sup>,指出基于不同激光源的研究特性可以从快速移动的波包角度来区别,非变换限制的宽带(噪声)光和变换限制的飞秒光脉冲间的基本差别是后者在其光谱范围内相位是相零干的(相锁的),而噪声光在其光谱范围内相位是随机的(但仍然是色锁的)。但他们在两种激光源的随机涨落对信号的影响方面研究甚少。DeBeer 等提出的窄带光源超快调制光谱学<sup>[3]</sup>,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。最近,基于宏观极化强度之间干涉的极化拍频引起人们广泛关注<sup>[8~12]</sup>,它和波函数几率幅干涉的量子拍频相干控制有着密切的关系。这种超快调制极化拍频的突出特点是能级分裂可以不受激光线宽的限制,并且超快调制并不是实时的,而是两孪生色锁双频噪声光源或相锁飞秒相干光脉冲间延迟的函数。Bjorkholm 和 Liao 也在具有共振或近共振中间态的双光子吸收中讨论了类似的情形<sup>[4]</sup>。在相位共轭几何配置情形下阿秒和频极化拍频是一种三阶非线性过程<sup>[8]</sup>,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,因此对基于四波混频过程间的极化拍频进行系统的研究,为使该技术成为高分辨力激光光谱学的新方法奠定坚实的理论及实验基础。国内的一些专家也利用四波混频及延时技术进行了相关研究<sup>[5~7]</sup>。

本文获得了在相位共轭几何配置情形下,考虑两个激光源自相关零延时的偏差,满足多普勒极限增宽条件的、阿秒和频极化拍频的二阶随机关联场在阿秒量级的分析近似解,在利用阿秒和频极化拍频新技术对超快调制频率  $\Omega_2 + \Omega_1$  能级和的测量中,我们能获得消除多普勒增宽的高精确度。

## 2 基本原理

级联三能级系统中  $|0\rangle$  为基态,  $|1\rangle$  为中间态,  $|2\rangle$  为激发态,如图 1 所示。在此级联三能级系统中进行双频时延四波混频(FWM)实验。光束 1 和 2 包含两个频率  $\omega_1$ 、 $\omega_2$ ,它们分别接近于  $|0\rangle$  到  $|1\rangle$ ,  $|1\rangle$  到  $|2\rangle$  共振频率  $\Omega_1$ 、 $\Omega_2$ ,光束 3 频率为  $\omega_3$ ,假定  $\omega_3$  接近  $\Omega_1$ ,那么  $\omega_1$  ( $\omega_3$ ) 和  $\omega_2$  将分别激发  $|0\rangle$  到  $|1\rangle$ ,  $|1\rangle$  到  $|2\rangle$  的跃迁。

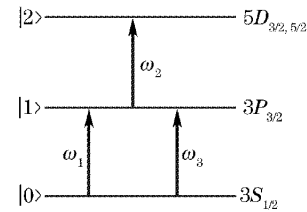


图 1 级联三能级位形图

Fig. 1 Cascade three-level configuration

实验中光束相位共轭几何配置图如图 2 所示。双频时延四波混频包含两个过程:第一,孪生光束 1 和 2 的频率均为  $\omega_1$ ,在  $|0\rangle$  态和  $|1\rangle$  态之间形成布居栅,输入频率为  $\omega_3$  的光束 3 进行探测,产生单光子共振并四波混频(DFWM),信号光(光束 4)频率为  $\omega_3$ 。第二,光束 1 和光束 2 的  $\omega_1$  与  $\omega_2$  将在  $|0\rangle$  和  $|2\rangle$  之间形成相干,由频率为  $\omega_2$  光束 2 探测,产生具有共振中间态的双光子非简并四波混频(NDFWM)信号,信号光频率也为  $\omega_3$ 。

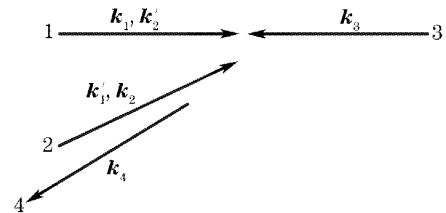


图 2 相位共轭几何配置

Fig. 2 Phase-conjugated schematic diagram of the geometry

在相位共轭几何配置图中,光束 3,4 的方向几乎分别与抽运光 1,2 相反,所有入射光束都具有相同方向的线偏振,假定探测光 3 为单色光,因此三束光的复电场如下:

$$E_{p1} = A_1(\mathbf{r}, t) \exp(-i\omega_1 t) + A'_2(\mathbf{r}, t) \exp(-i\omega_2 t) = \epsilon_1 u_1(t) \exp[i(\mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{r} - \omega_1 t)] + \epsilon'_2 u_2[t - (\tau - \delta\tau)] \exp\{i[\mathbf{k}'_2 \cdot \mathbf{r} - \omega_2 t + \omega_2(\tau - \delta\tau)]\}, \quad (1)$$

$$E_{p2} = A'_1(\mathbf{r}, t) \exp(-i\omega_1 t) + A_2(\mathbf{r}, t) \exp(-i\omega_2 t) = \epsilon'_1 u_1(t - \tau) \exp[i(\mathbf{k}'_1 \cdot \mathbf{r} - \omega_1 t + \omega_1 \tau)] + \epsilon_2 u_2(t) \exp[i(\mathbf{k}_2 \cdot \mathbf{r} - \omega_2 t)], \quad (2)$$

$$E_{p3} = A_3(\mathbf{r}, t) \exp(-i\omega_3 t) = \epsilon_3 u_3(t) \exp[i(\mathbf{k}_3 \cdot \mathbf{r} - \omega_3 t)], \quad (3)$$

式中  $\epsilon_i, \mathbf{k}_i, A_i (\epsilon'_i, \mathbf{k}'_i, A'_i)$  分别为  $\omega_i$  分量的光场振幅, 光波矢量和光场复振幅。  $u_i(t)$  是描述光场相位和振幅涨落的无量纲统计因子。对于双频抽运光束 1 和 2, 光束 1 中的  $\omega_2$  和光束 2 中的  $\omega_1$  均被高精度的延时器延迟了时间  $\tau$ , 而两自相干过程本身由于不平衡色散效应产生了零延时偏差  $\delta\tau$  (设  $\delta\tau > 0$ )。

根据光与级联三能级系统相互作用的物理机制, 可得如下微扰链:

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

光与物质相互作用过程中, 相同频率光束形成的栅称为静态栅, 而不同频率光束形成的栅称动态栅。考虑微扰链时, 实际符合条件的微扰链有很多, 但是我们只考虑对生成信号贡献较大的小角度静态栅, 而其他的大角度静态栅、小角度动态栅、大角度动态栅则对出射信号贡献不大, 所以不予考虑。微扰链 (I)~(IV) 对应于  $|0\rangle$  态和  $|1\rangle$  态布居栅的单光子简并四波混频过程, (V) 对应于  $|0\rangle$  态和  $|2\rangle$  态之间相干双光子非简并四波混频过程, 这两个过程入射光束形成小角度静态栅, 对出射信号贡献较大, 因此总的三阶极化强度  $P^{(3)} = P^{(I)} + P^{(II)} + P^{(III)} + P^{(IV)} + P^{(V)}$ , 对应的三阶总极化强度随机平均为  $\langle P^{(3)} \rangle = \langle P^{(I)} \rangle +$

$$\langle P^{(II)} \rangle + \langle P^{(III)} \rangle + \langle P^{(IV)} \rangle + \langle P^{(V)} \rangle.$$

### 3 阿秒和频极化拍频的二阶统计关联

对于满足相位匹配的宏观系统, 阿秒和频极化拍频信号由一个原子的  $P^{(3)}$  与另一个原子的  $[P^{(3)}]^*$  乘积形成的所有原子对的总和得到<sup>[1,2,8~14]</sup>。在所有任意变量的随机过程中, 阿秒和频极化拍频信号强度正比于  $P^{(3)}$  绝对值平方的平均值, 即  $I \propto \langle |P^{(3)}|^2 \rangle$ , 该随机平均过程在相位共轭几何配置中, 仅与二阶和四阶相干函数有关; 而若采用自衍射几何配置, 超快调制频谱过程将与六阶相干函数有关。

#### 3.1 二阶随机平均

在二阶随机平均情况下, 阿秒和频极化拍频信号强度可以用极化随机平均的绝对值平方近似描述, 即  $I(\tau) \propto |\langle P^{(3)} \rangle|^2$ , 式中仅包含二阶相干函数  $u_i(t)$ <sup>[9]</sup>。若噪声光为洛仑兹线型, 则

$$\langle u_i(t_1) u_i^*(t_2) \rangle = \exp(-\alpha_i |t_1 - t_2|), \quad (4)$$

$$(i = 1, 2)$$

式中噪声光的自相关衰减量  $\alpha_i = \frac{1}{2} \delta\omega_i$ ,  $\delta\omega_i$  为  $\omega_i$  激光半峰全宽, 上式是由激光线形决定的二阶相干函数形式, 是三种不同马尔可文随机模型<sup>[6~14]</sup> 的共同特性。将式 (4) 代入极化强度的随机平均, 然后在多普勒增宽系统中讨论阿秒和频极化拍频。对所得的极化强度随机平均表达式中的  $t_1, t_2, t_3$  积分可以获得

$\tau > 0$

$$\langle P^{(I)} \rangle + \langle P^{(II)} \rangle + \langle P^{(III)} \rangle + \langle P^{(IV)} \rangle = S_1(\mathbf{r}) \exp(-i\omega_3 t) \int_{-\infty}^{+\infty} d\mathbf{v} w(\mathbf{v}) \frac{L_1(\mathbf{v}) + L_2(\mathbf{v})}{\Gamma_{10} - \alpha_1 + i(\Delta_1 + \mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{v})} \times \left\{ \frac{[2\Gamma_{10} + i(\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}'_1) \cdot \mathbf{v}] \exp(-\alpha_1 |\tau| - i\omega_1 \tau)}{\Gamma_{10} + \alpha_1 - i(\Delta_1 + \mathbf{k}'_1 \cdot \mathbf{v})} - \frac{2\alpha_1 \exp[-\Gamma_{10} |\tau| - i(\Omega_1 + \mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{v}) \tau]}{\Gamma_{10} + \alpha_1 + i(\Delta_1 + \mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{v})} \right\}, \quad (5)$$

$\tau < 0$

$$\langle P^{(I)} \rangle + \langle P^{(II)} \rangle + \langle P^{(III)} \rangle + \langle P^{(IV)} \rangle = S_1(\mathbf{r}) \exp(-i\omega_3 t) \int_{-\infty}^{+\infty} d\mathbf{v} w(\mathbf{v}) \frac{L_1(\mathbf{v}) + L_2(\mathbf{v})}{\Gamma_{10} - \alpha_1 - i(\Delta_1 + \mathbf{k}'_1 \cdot \mathbf{v})} \times \left\{ \frac{[2\Gamma_{10} + i(\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}'_1) \cdot \mathbf{v}] \exp(-\alpha_1 |\tau| - i\omega_1 \tau)}{\Gamma_{10} + \alpha_1 + i(\Delta_1 + \mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{v})} - \frac{2\alpha_1 \exp[-\Gamma_{10} |\tau| - i(\Omega_1 + \mathbf{k}'_1 \cdot \mathbf{v}) \tau]}{\Gamma_{10} + \alpha_1 - i(\Delta_1 + \mathbf{k}'_1 \cdot \mathbf{v})} \right\}, \quad (6)$$

$\tau > \delta\tau$

$$\langle P^{(V)} \rangle = S_2(\mathbf{r}) \exp(-i\omega_3 t) \int_{-\infty}^{+\infty} d\mathbf{v} w(\mathbf{v}) \frac{L_3(\mathbf{v}) \exp[-\alpha_2 |\tau - \delta\tau| + i\omega_2 (\tau - \delta\tau)]}{\Gamma_{20} + \alpha_2 + i[\Delta_2 + \Delta_3 + (\mathbf{k}'_2 + \mathbf{k}_3) \cdot \mathbf{v}]}, \quad (7)$$

$\tau < \delta\tau$

$$\langle P^{(V)} \rangle = S_2(\mathbf{r}) \exp(-i\omega_3 t) \int_{-\infty}^{+\infty} d\mathbf{v} w(\mathbf{v}) \frac{L_3(\mathbf{v})}{\Gamma_{20} - \alpha_2 + i[\Delta_2 + \Delta_3 + (\mathbf{k}'_2 + \mathbf{k}_3) \cdot \mathbf{v}]} \times \left\{ \exp[-\alpha_2 |\tau - \delta\tau| + i\omega_2 (\tau - \delta\tau)] - \frac{2\alpha_2 \exp\{-\Gamma_{20} |\tau - \delta\tau| + i[\Omega_2 + \Delta_3 + (\mathbf{k}'_2 + \mathbf{k}_3) \cdot \mathbf{v}] (\tau - \delta\tau)\}}{\Gamma_{20} + \alpha_2 + i[\Delta_2 + \Delta_3 + (\mathbf{k}'_2 + \mathbf{k}_3) \cdot \mathbf{v}]} \right\}, \quad (8)$$

式中

$$L_1(\nu) = \frac{1}{[\Gamma_0 + i(\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}'_1) \cdot \nu] \{ \Gamma_{10} + i[\Delta_3 + (\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}'_1 + \mathbf{k}_3) \cdot \nu] \}}, \quad (9)$$

$$L_2(\nu) = \frac{1}{[\Gamma_1 + i(\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}'_1) \cdot \nu] \{ \Gamma_{10} + i[\Delta_3 + (\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}'_1 + \mathbf{k}_3) \cdot \nu] \}}, \quad (10)$$

$$L_3(\nu) = \frac{1}{[\Gamma_{10} + i(\Delta_3 + \mathbf{k}_3 \cdot \nu)] \{ \Gamma_{10} + i[\Delta_3 + (\mathbf{k}'_3 - \mathbf{k}_2 + \mathbf{k}_3) \cdot \nu] \}}, \quad (11)$$

式中  $S_1(\mathbf{r})$  和  $S_2(\mathbf{r})$ <sup>[13]</sup>,  $\mu_1(\mu_2)$  分别为  $|0\rangle$  到  $|1\rangle$  ( $|1\rangle$  到  $|2\rangle$ ) 的跃迁偶极矩;  $\Gamma_0(\Gamma_1)$  为基态  $|0\rangle$  (中间态  $|1\rangle$ ) 的纵向弛豫率;  $\Gamma_{10}(\Gamma_{20})$  是基态  $|0\rangle$  到中间态  $|1\rangle$  (基态  $|0\rangle$  到激发态  $|2\rangle$ ) 的横向弛豫率;  $\Delta_i$  为共振失谐, 并且  $\Delta_1 = \Omega_1 - \omega_1$ ,  $\Delta_2 = \Omega_2 - \omega_2$ ,  $\Delta_3 = \Omega_1 - \omega_3$ 。

一般地, 宽带双光子非简并四波混频信号的时域变化比较复杂, 关于  $\tau = 0$  是不对称的。但是在激光线宽远小于跃迁的均匀线宽 ( $\alpha_1 \ll \Gamma_{10}$ ,  $\alpha_2 \ll \Gamma_{20}$ ) 时, 该非简并四波混频过程就简化了。在窄带情形下,  $\alpha_1 \ll \Gamma_{10}$ ,  $\alpha_2 \ll \Gamma_{20}$ ,  $\Gamma_{10}|\tau| \gg 1$ ,  $\Gamma_{20}|\tau| \gg 1$ , 无论  $\tau > 0$  还是  $\tau < 0$  都有

$$\langle P^{(3)} \rangle = S_1(\mathbf{r}) \exp(-i\omega_3 t) \{ B_1 \exp(-\alpha_1 |\tau| - i\omega_1 \tau) + \eta B_2 \exp(-\alpha_2 |\tau - \delta\tau| - i[\Delta\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - \omega_2(\tau - \delta\tau)]) \}, \quad (12)$$

这里, 非简并四波混频和简并四波混频过程的拉比频率之比为因子  $\eta$ ; 空间调制因子为  $\Delta\mathbf{k} = (\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}'_1) - (\mathbf{k}'_2 - \mathbf{k}_2)$ ;  $\eta, B_1, B_2$  都是与  $\tau$  无关的参量,  $B_1, B_2$  和激光线宽及跃迁弛豫率有关。

在图 2 所示的双光子非简并四波混频实验中, 光束 1 和光束 2 的夹角很小并且光束 1 沿着光束 3 的相反方向传播。因此, 可以做出下列近似:  $\mathbf{k}_1 \approx k_1 \mathbf{z}$ ,  $\mathbf{k}'_1 \approx k_1 \mathbf{z}$ ,  $\mathbf{k}_2 \approx k_2 \mathbf{z}$ ,  $\mathbf{k}'_2 \approx k_2 \mathbf{z}$  及  $\mathbf{k}_3 \approx -k_3 \mathbf{z}$ 。首先考虑  $\omega_1$  调节  $|0\rangle$  到  $|1\rangle$  跃迁在多普勒线宽内的情况, 即  $|\Delta_1| \leq k_1 \cdot \nu$ , 这时, 仅有速度沿着  $z$  方向的原子与光束 3 共振 (发生碰撞), 原子速度为  $v \approx \Delta_1 / k_1$ , 由 (12) 式知, 该组原子进一步与光束 1 相干并影响双光子非简并四波混频信号。由双光子跃迁条件,  $(\omega_1 + k_1 v) + (\omega_2 - k_2 v) = \Omega_1 + \Omega_2$ , 即  $\Delta_1 + \Delta_2 = k_1(1 - \xi_2)v$ , 得到  $\Delta_1 + \Delta_2 = (1 - \xi_2)\Delta_1$ , 可以看出在

满足双光子跃迁条件下, 消除多普勒增宽的非简并四波混频光谱峰值出现在  $\Delta_1 = 0$  处, 也正因为仅仅具有特定速度的原子才对非简并四波混频信号有贡献, 所以非简并四波混频光谱才是消多普勒效应的。这种情况对于多普勒增宽极限情形也是适用的。正如在后面讨论的 [(17) 式的第二项], 在多普勒增宽极限情形下, 消多普勒半峰全宽近似等于  $2(\sqrt{2} - 1)^{1/2} \Gamma_{20}^0$ 。对于非共振多普勒增宽的非简并四波混频, 当频率为  $\omega_1$  的场调节单光子从  $|0\rangle$  到  $|1\rangle$  跃迁时, 在多普勒展宽线的翼处非简并四波混频信号在  $\Delta_1 + \Delta_2 = 0$  时产生共振。

依照 (12) 式, 与  $\tau$  有关的阿秒和频极化拍频信号强度 (在二阶随机关联  $|\langle P^{(3)} \rangle|^2$  中, 与  $\tau$  无关的阿秒和频极化拍频不存在) 为

$$I(\tau, \mathbf{r}) \propto |\langle P^{(3)} \rangle|^2 \propto |B_1|^2 \exp(-2\alpha_1 |\tau|) + |\eta B_2|^2 \exp(-2\alpha_2 |\tau - \delta\tau|) + \exp(-\alpha_1 |\tau| - \alpha_2 |\tau - \delta\tau|) \times \{ B_1^* \eta B_2 \exp\{-i[\Delta\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - \omega_1 \tau - \omega_2(\tau - \delta\tau)]\} + B_1 \eta^* B_2^* \exp\{i[\Delta\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - \omega_1 \tau - \omega_2(\tau - \delta\tau)]\} \}. \quad (13)$$

(13) 式表明, 在窄带情形下, 无论  $\tau < 0$  还是  $\tau > 0$ , 阿秒和频极化拍频信号都呈现阻尼振荡, 调制频率为  $\omega_2 + \omega_1$ , 衰变率为  $\alpha_1 + \alpha_2$ , 反映外部激光的特性与能级系统无关, 且调制频率的测量精度由激光线宽决定 [例如  $\pi(\alpha_1 + \sigma_2)$ ], 能级和  $\Omega_2 + \Omega_1$  的测量精度取决于把激光场频率  $\omega_1$  和  $\omega_2$  分别调谐到能级分裂  $\Omega_1$  和  $\Omega_2$  的好坏, 单光子共振简并四波混频光谱能够在  $\Delta_1 = \Delta_3 = 0$  时提供一个消除多普勒增宽的峰值频谱<sup>[6~9]</sup>。所以当激光场频率  $\omega_1$  被调谐到多普勒轮廓的中心时,  $\omega_2$  也被调谐到  $\Omega_2$ , 达到消除多普勒增宽的

精度。对于 (13) 式阿秒和频极化拍频信号强度, 取  $\Omega_2 + \Omega_1 = 6.393 \text{ fs}^{-1}$ ,  $r = 0$ ,  $\eta = 0.5$ ,  $\xi_2 = 1$ ,  $\Delta_i = 0$ ,  $\Gamma_{10}^0 = 1.74 \times 10^{-4} \text{ fs}^{-1}$ ,  $\Gamma_{20}^0 = 1.754 \times 10^{-4} \text{ fs}^{-1}$ ,  $\Gamma_0 = 5.7 \times 10^{-8} \text{ fs}^{-1}$ ,  $\Gamma_1 = 5.882 \times 10^{-8} \text{ fs}^{-1}$ , 图 3(a) 取  $\delta\tau = -3.3 \text{ fs}$  时, 改变激光线宽  $\alpha_1 = 0.271 \text{ fs}^{-1}$ ,  $\alpha_2 = 0.272 \text{ fs}^{-1}$  (点线),  $\alpha_1 = 0.406 \text{ fs}^{-1}$ ,  $\alpha_2 = 0.407 \text{ fs}^{-1}$  (虚线),  $\alpha_1 = 0.542 \text{ fs}^{-1}$ ,  $\alpha_2 = 0.543 \text{ fs}^{-1}$  (实线), 影响的只是信号强度大小; 同样的, 在图 3(b) 中取  $\alpha_1 = 0.406 \text{ fs}^{-1}$ ,  $\alpha_2 = 0.407 \text{ fs}^{-1}$  时, 改变延时偏差  $\delta\tau$ ,  $\alpha_1 = 0.406 \text{ fs}^{-1}$ ,  $\alpha_2 = 0.407 \text{ fs}^{-1}$ ,  $\delta\tau = 0$  (点线),  $\delta\tau =$

$-1.5$  fs(虚线),  $\delta\tau = -3.3$  fs(实线)。发现信号最大值相对  $\tau=0$  有一个如图 3 示的偏差。

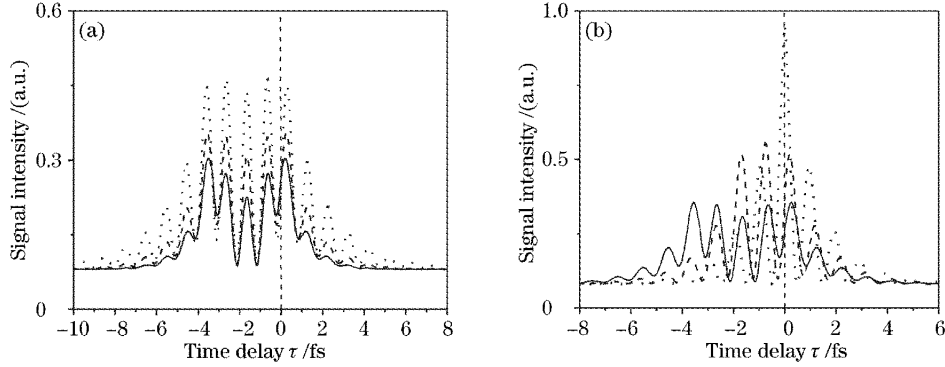


图 3 阿秒和频极化拍频信号强度随时间延迟  $\tau$  的关系曲线

Fig. 3 ASPB signal intensity versus time delay

然而在(5)式~(8)式中,当激光线宽和跃迁的均匀线宽可比时,单光子共振项[因子  $\exp(-\Gamma_{10}|\tau| - i\Omega_1\tau)$ ]反映了单光子共振并四波混频的自由演化]和双光子共振项[因子  $\exp[-\Gamma_{20}|\tau - \delta\tau| + i\Omega_2(\tau - \delta\tau)]$ ]反映了双光子相干共振非简并四波混频的自由演化]就变得重要了。当激光源为宽带时(即  $\alpha_1 \gg$

$\Gamma_{10}, \alpha_2 \gg \Gamma_{20}$ , 非均匀增宽占优势),阿秒和频极化拍频拍频信号很快上升到最大值,然后再随着时间衰减,并且该衰减由原子系统横向弛豫时间所决定。虽然宽带时阿秒和频极化拍频信号调制比较复杂,但对(12)式做信号末端近似  $\alpha_1 \gg \Gamma_{10}, \alpha_2 \gg \Gamma_{20}, \alpha_1|\tau| \gg 1$  后可得阿秒和频极化拍频信号强度:

$$I(\tau, \mathbf{r}) \propto |\langle P^{(3)} \rangle|^2 \propto |B_3|^2 \exp(-2\Gamma_{10}|\tau|) + |\eta B_4|^2 \exp(-2\alpha_2|\tau - \delta\tau|) + \exp(-\Gamma_{10}|\tau| - \alpha_2|\tau - \delta\tau|) \times (B_3^* \eta B_4 \exp\{-i[\Delta\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - \Omega_1\tau - \omega_2(\tau - \delta\tau)]\} + B_3 \eta^* B_4^* \exp\{i[\Delta\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - \Omega_1\tau - \omega_2(\tau - \delta\tau)]\}). \quad (14)$$

同样地,对(8)式做信号末端近似  $\alpha_1|\tau| \gg 1, \alpha_2|\tau| \gg 1$  后,可得阿秒和频极化拍频信号强度:

$$I(\tau, \mathbf{r}) \propto |\langle P^{(3)} \rangle|^2 \propto |B_5|^2 \exp(-2\Gamma_{10}|\tau|) + |\eta B_6|^2 \exp(-2\Gamma_{20}|\tau - \delta\tau|) + \exp(-\Gamma_{10}|\tau| - \Gamma_{20}|\tau - \delta\tau|) \times (B_5^* \eta B_6 \exp\{-i[\Delta\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - (\Omega_2 + \Delta_3)(\tau - \delta\tau) - \Omega_1\tau]\} + B_5 \eta^* B_6^* \exp\{i[\Delta\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - (\Omega_2 + \Delta_3)(\tau - \delta\tau) - \Omega_1\tau]\}). \quad (15)$$

由(14)式或(15)式可以看出,当  $\alpha_2|\tau| \gg 1$  或  $\alpha_1|\tau| \gg 1$  时,阿秒和频极化拍频信号呈现阻尼振荡,调制频率分别为  $\Omega_2 + \Omega_1$  或  $\omega_2 + \Omega_1$ ,衰变率分别为  $\Gamma_{10} + \Gamma_{20}$  或  $\Gamma_{10} + \alpha_2$ 。当光束 3 的频率被调谐到多普勒轮廓的中心( $\Delta_3 = 0$ )时,则(14)式的调制频率直接响应于级联三能级系统中共振频率间的和频极化拍频,它的测量可近似到  $\pi(\Gamma_{10} + \Gamma_{20})$  的精度。由(15)式对调制频率  $\omega_2 + \Omega_1$  的测量也可得到  $\pi(\Gamma_{10} + \alpha_2)$  的精度。在这种情形下,用阿秒和频极化拍频测量  $\Omega_2 + \Omega_1$  的精度取决于把  $\omega_2$  调谐到  $\Omega_2$  的好坏。再次强调的是,在宽带激光情形下,阿秒和频极化拍频是消除多普勒增宽精度的光谱,并且在(15)式中,由孪生系综随机光场产生的交叉关联[衰减因子为

$\exp(-\Gamma_{10}|\tau| - \alpha_2|\tau - \delta\tau|)$ ],在时间尺度上明显短于由单色随机光场产生的自关联[衰减因子为  $\exp(-2\Gamma_{10}|\tau|)$ ]。

### 3.2 在多普勒增宽极限情形下的二阶随机平均

为了使分析更加简化,采用在多普勒增宽极限情形的二阶相干下来计算和讨论。在多普勒增宽极限情形下(即  $k_3 u \rightarrow \infty$ ),将二阶相干近似结果带入极化强度的表达式中,由于  $\delta$  函数的性质可知  $t_1, t_3 > 0$  时,  $P^{(II)} = P^{(IV)} = P^{(VI)} = 0$ 。首先考虑在激光线宽远小于跃迁的均匀线宽情形( $\alpha_1 \ll \Gamma_{10}$  和  $\alpha_2 \ll \Gamma_{20}$ )。在均匀增宽占优势的极限条件下,做信号末端近似( $\Gamma_{10}|\tau| \gg 1, \Gamma_{20}|\tau| \gg 1$ )后,无论  $\tau > 0$  还是  $\tau < 0$  都可以得到总的三阶极化强度的随机平均:

$$\langle P^{(3)} \rangle = \frac{2\sqrt{\pi}}{k_3 u} S_1(\mathbf{r}) \exp(-i\omega_3 t) \left\{ \frac{\exp(-\alpha_1 |\tau| - i\omega_1 \tau)}{\Gamma_{10}^a + i\Delta_1^a} \left( \frac{1}{\Gamma_0} + \frac{1}{\Gamma_1} \right) + \frac{\eta(\xi_2 - 1)^2 \exp[-\alpha_2 |\tau - \delta\tau| - i\Delta\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} + i\omega_2(\tau - \delta\tau)]}{(\Gamma_{20}^a + i\Delta_2^a)^2} \right\}. \quad (16)$$

这里  $\Gamma_{10}^a = \Gamma_{10} + \xi_1 \Gamma_{10}$ ,  $\Delta_1^a = \Delta_1 + \xi_1 \Delta_3$ ,  $\Gamma_{20}^a = \Gamma_{20} + (\xi_2 - 1)\Gamma_{10}$ ,  $\Delta_2^a = \Delta_2 + \xi_2 \Delta_3$ , 并且假设  $\xi_2 > 1$ ,  $\xi_1 = k_1/k_2$ ,  $\xi_2 = k_2/k_3$ 。(16) 式表明, 对于前半部分的简并四波混频频谱在  $\Delta_1 = 0$  时线宽为  $2\Gamma_{10}^a$ ; 当保持光束 3 的频率  $\omega_1$  不变时, 调节光束 1 和 2 中的  $\omega_2$  可以得到非简并四波混频信号强度峰值将会出现在  $\Delta_2^a = 0$  处, 并且频谱线宽为  $2\Gamma_{20}^a$ 。因此, 虽然在光束 1 和 2 是单色时, 阿秒和频极化拍频信号调制频率的测量是高精度的, 但是在多普勒增宽系统中, 阿秒和频极化拍频的整体测量精度则是由光学跃迁的均匀线宽决定。

由上面极化强度表达式可以得到阿秒和频极化拍频二阶随机平均的信号强度:

$$I(\tau, \mathbf{r}) \propto |\langle P^{(3)} \rangle|^2 \propto \frac{\exp(-2\alpha_1 |\tau|)}{(\Gamma_{10}^a)^2 + (\Delta_1^a)^2} \left( \frac{1}{\Gamma_0} + \frac{1}{\Gamma_1} \right)^2 + \frac{(\xi_2 - 1)^4 |\eta|^2 \exp(-2\alpha_2 |\tau - \delta\tau|)}{[(\Gamma_{20}^a)^2 + (\Delta_2^a)^2]^2} + (\xi_2 - 1)^2 \exp(-\alpha_1 |\tau| - \alpha_2 |\tau - \delta\tau|) \times (q \exp\{-i[\Delta\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - \omega_1 \tau - \omega_2(\tau - \delta\tau)]\} + q^* \exp\{i[\Delta\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - \omega_1 \tau - \omega_2(\tau - \delta\tau)]\}), \quad (17)$$

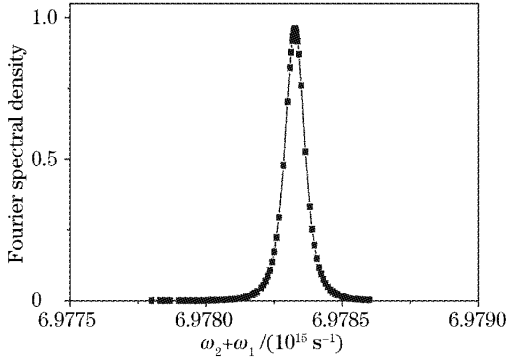


图 4 (17) 式得到的阿秒和频极化拍频的傅里叶谱线  
Fig. 4 Fourier spectrum of ASPB given by Eq. (17)

这里  $q$  都是与  $\tau$  无关的参量<sup>[13]</sup>, 因此单光子简并四波混频信号[(11) 式的第一项]在  $\Delta_1^a = 0$ , 线宽为  $2\Gamma_{10}^a$  处共振。同样地, 双光子非简并四波混频信号[(17) 式的第二项]在  $\Delta_2^a = 0$ , 线宽为  $2(\sqrt{2} - 1)^{1/2} \Gamma_{20}^a$  处共振。再次强调的是在窄带激光情形下, 阿秒和频极化拍频是消除多普勒增宽精度的光谱。这种结果和(13)式一致, 二阶相关阿秒和频极化拍频信号强度也随着  $\tau$  的变化以频率  $\omega_2 + \omega_1$  进行调制。级联三能级系统阿秒和频极化拍频信号的调制周期为  $2\pi/|\Omega_2 + \Omega_1| = 900$  as, 调制频率为  $\Omega_2 + \Omega_1 = 6.97833 \times 10^{15} \text{ s}^{-1}$ , 该频率相应于  $3S_{1/2} - 3P_{3/2}$ ,  $3P_{3/2} - 5D_{3/2,5/2}$  两个共振跃迁之间的拍频, 从图 4 的傅里叶变换频谱上可以清楚看出, 傅里叶变换中取  $\alpha_1 = 2.715 \times 10^{-5} \text{ fs}^{-1}$ ,  $\alpha_2 =$

$3.793 \times 10^{-5} \text{ fs}^{-1}$ ,  $\omega_2 + \omega_1 = 6.978 \text{ fs}^{-1}$ ,  $\mathbf{r} = 0$ ,  $\delta\tau = 0$ ,  $B_i = 0.4$ ,  $|\tau| \leq 150 \text{ fs}$ ,  $\eta = 1$ 。

现在考虑当激光源为宽带(即  $\alpha_1 \gg \Gamma_{10}$ ,  $\alpha_2 \gg \Gamma_{20}$ )时, 二阶阿秒和频极化拍频信号强度随时间的变化。在这种情形下, 阿秒和频极化拍频信号很快上升到最大值, 然后再随着时间衰减, 而该衰减由原子系统横向弛豫时间决定。虽然阿秒和频极化拍频信号调制在通常情况下比较复杂, 但是对所得信号做末端近似  $\alpha_1 |\tau| \gg 1$ ,  $\alpha_2 |\tau| \gg 1$ , 后可得

$$1) \tau < 0, \alpha_1 \gg \Gamma_{10}^a, \alpha_2 \gg \Gamma_{20}^a, \alpha_2 |\tau| \gg 1$$

$$I(\tau, \mathbf{r}) \propto |\langle P^{(3)} \rangle|^2 \propto |B_7|^2 \exp(-2\alpha_1 |\tau|) + |\eta B_8|^2 \exp(-2\Gamma_{20}^a |\tau - \delta\tau|) + \exp(-\alpha_1 |\tau| - \Gamma_{20}^a |\tau - \delta\tau|) (B_7^* \eta B_8 \exp\{-i[\Delta\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - \omega_1 \tau - (\Omega_2 + \xi_2 \Delta_3)(\tau - \delta\tau)]\} + B_7 \eta^* B_8^* \exp\{i[\Delta\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - \omega_1 \tau - (\Omega_2 + \xi_2 \Delta_3)(\tau - \delta\tau)]\}), \quad (18)$$

$$2) 0 < \tau < \delta\tau, \alpha_1 \gg \Gamma_{10}^a, \alpha_2 \gg \Gamma_{20}^a, \alpha_2 |\tau| \gg 1, \alpha_1 |\tau| \gg 1$$

$$I(\tau, \mathbf{r}) \propto |\langle P^{(3)} \rangle|^2 \propto |B_9|^2 \exp(-2\Gamma_{10}^a |\tau|) + |\eta B_{10}|^2 \exp(-2\Gamma_{20}^a |\tau - \delta\tau|) + \exp(-\Gamma_{10}^a |\tau| - \Gamma_{20}^a |\tau - \delta\tau|) (B_9^* \eta B_{10} \exp\{-i[\Delta\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - (\Omega_1 + \xi_1 \Delta_3)\tau - (\Omega_{21} + \xi_2 \Delta_3)(\tau - \delta\tau)]\} + B_9 \eta^* B_{10}^* \exp\{i[\Delta\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - (\Omega_1 + \xi_1 \Delta_3)\tau - (\Omega_{21} + \xi_2 \Delta_3)(\tau - \delta\tau)]\}). \quad (19)$$

$$3) \tau > \delta\tau, \alpha_1 \gg \Gamma_{10}^a, \alpha_2 \gg \Gamma_{20}^a, \alpha_1 |\tau| \gg 1$$

$$I(\tau, \mathbf{r}) \propto |\langle P^{(3)} \rangle|^2 \propto |B_{11}|^2 \exp(-2\Gamma_{10}^a |\tau|) + |\eta B_{12}|^2 \exp(-2\alpha_2 |\tau - \delta\tau|) + \exp(-\Gamma_{10}^a |\tau| - \alpha_2 |\tau - \delta\tau|) (B_{11}^* \eta B_{12} \exp\{-i[\Delta\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - \omega_2(\tau - \delta\tau) - (\Omega_1 + \xi_1 \Delta_3)\tau]\} +$$

$$B_{11} \eta^* B_{12} \exp\{i[\Delta \mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - \omega_2(\tau - \delta\tau) - (\Omega_1 + \xi_1 \Delta_3)\tau]\}. \quad (20)$$

(18)式和(20)式都包括三项。在(18)式中,含有因子  $\exp(-2\alpha_1 |\tau|)$  的第一项是单光子非共振简并四波混频自关联项,含有因子  $\exp(-2\Gamma_{20} |\tau - \delta\tau|)$  的第二项是双光子共振非简并四波混频的自关联项,而第三项则是单光子简并四波混频和双光子共振非简并四波混频的交叉关联项;在(20)式中,含有因子  $\exp(-2\Gamma_{10} |\tau|)$  的第一项是单光子共振简并四波混频自关联项,含有因子  $\exp(-2\alpha_2 |\tau - \delta\tau|)$  的第二项是双光子非共振非简并四波混频的自关联项,而第三项则是单光子共振简并四波混频和双光子非共振非简并四波混频的交叉关联项。(18)式和(20)式允许共振和非共振项交叉干涉,并分别达到调制频率  $\Omega_2 + \omega_1$  和  $\omega_2 + \Omega_1$ 。与单光子共振简并四波混频非均匀展宽系统的失相和复相过程不同的是,当抽运光为宽带线宽时,双光子共振非简并四波混频自关联信号的最大值在  $\tau=0$  处有一个如图 5 所示的小偏移,自关联信号参量为  $\Gamma_{20}=0.38 \text{ fs}^{-1}$ ,  $\Gamma_1=1.45 \times 10^{-5} \text{ fs}^{-1}$ ,  $\xi_i=1.5$ ,  $\Delta_i=0$ ,  $\delta\tau=0$ ,  $B_i=0.4$ ,  $\eta=1$ 。

### 3.3 多普勒增宽和宽带极限情形下的二阶随机平均

用宽带非变换限定噪声光研究阿秒和频极化拍频的物理机制一直是个热点<sup>[9~16]</sup>,近来该工作主要聚焦于用非相干光源研究各种超快现象。孪生光束 1 和 2 具有宽带线宽,可近似看作为一系列相位不相干的、持续时间为  $\tau_c$  的短脉冲( $\tau_c$  是激光器相干时间)<sup>[9]</sup>。由于相位匹配条件  $\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}'_1 + \mathbf{k}_3$  和  $\mathbf{k}'_2 - \mathbf{k}_2 + \mathbf{k}_3$  已知,三脉冲受激光子回波发生于微扰链(I),(III),(V)<sup>[9~14]</sup>。宽带极限( $\tau_c \approx 0$ )响应于“白色”噪声,该噪声由  $\delta$  函数的相关时间所决定,通常有不变的光谱。因此二阶相关函数可由  $\delta$  函数近似为

$$\langle u_1(t_1) u_i^*(t_2) \rangle = \exp(-\alpha_i |t_1 - t_2|) \approx \frac{2}{\alpha_i} \delta(t_1 - t_2). \quad (21)$$

在多普勒增宽极限( $k_3 u \rightarrow \infty$ )和激光源宽带极限( $a_i \rightarrow \infty$ )近似情形下,把  $\delta$  函数近似结果带入极化强度表达式中,可得

$$\langle P^{(I)} \rangle = \frac{4\sqrt{\pi}}{k_3 u \alpha_1} S_1(\mathbf{r}) \exp[-i(\omega_3 t + \omega_1 \tau)] \int_0^\infty dt_3 \int_0^\infty dt_2 \int_0^\infty dt_1 \delta(t_3 - \xi_1 t_1) \delta(t_1 - \tau) \times \exp[-(\Gamma_{10} + i\Delta_3)t_3 - \Gamma_0 t_2 - (\Gamma_{10} + i\Delta_1)t_1], \quad (22)$$

$$\langle P^{(III)} \rangle = \frac{4\sqrt{\pi}}{k_3 u \alpha_1} S_1(\mathbf{r}) \exp[-i(\omega_3 t + \omega_1 \tau)] \int_0^\infty dt_3 \int_0^\infty dt_2 \int_0^\infty dt_1 \delta(t_3 - \xi_1 t_1) \delta(t_1 - \tau) \times \exp[-(\Gamma_{10} + i\Delta_3)t_3 - \Gamma_1 t_2 - (\Gamma_{10} + i\Delta_1)t_1], \quad (23)$$

$$\langle P^{(V)} \rangle = \frac{4\sqrt{\pi}}{k_3 u \alpha_2} S_2(\mathbf{r}) \exp\{-i[\omega_3 t - \omega_2(\tau - \delta\tau)]\} \int_0^\infty dt_3 \int_0^\infty dt_2 \int_0^\infty dt_1 \delta[t_3 + t_1 - (\xi_1 - 1)t_2] \delta(t_2 + \tau - \delta\tau) \times \exp[-(\Gamma_{10} + i\Delta_3)(t_1 + t_3) - (\Gamma_{20} + i\Delta_2 + i\Delta_3)t_2]. \quad (24)$$

由于阿秒和频极化拍频的单光子非简并四波混频与飞秒差频极化拍频中单光子情形类似<sup>[9~14]</sup>,所以这里主要考虑阿秒和频极化拍频的单光子非简并四波混频过程。对于(24)式极化强度解释为:在  $t - t_1 - t_2 - t_3$  时刻,由  $A_3$  引起的光学极化在旋转坐标

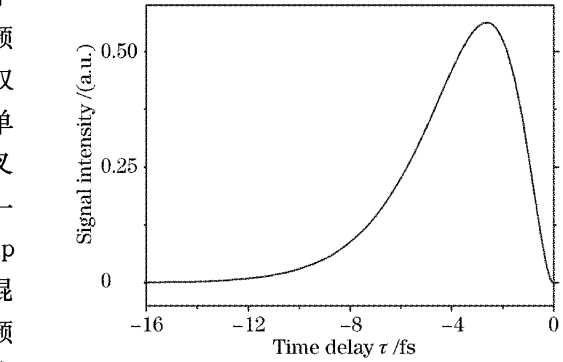


图 5 当光束 1 和 2 只包含  $\omega_2$  频率分量时双光子共振非简并四波混频自关联信号与时间延迟  $\tau$  的关系曲线  
Fig. 5 Two-photon resonant NDFWM auto-correlation signal versus relative time delay when beams 1 and 2 consist of only  $\omega_2$  frequency component

的一个时间间隔  $t_1$  内显示出衰减振荡(衰减率为  $\Gamma_{10}$ , 频率为  $\Delta_3$ ),然后在  $t - t_2 - t_3$  时刻与  $A'_2$  相作用,该作用结果诱发了  $|0\rangle$  和  $|2\rangle$  之间双光子相干。双光子相干经过时间间隔  $t_2$  的衰减振荡(衰减率为  $\Gamma_{20}$ , 频率为  $\Delta_2 + \Delta_3$ )后,光束 2 在  $t - t_3$  时刻探测双光

子相干并引起极化,此极化再对非简并四波混频信号起作用。我们感兴趣的是非简并四波混频信号在光束 2 加入之后  $t_3$  时刻的情况。光学极化又在时间间隔  $t_3$  内产生衰减振荡(衰减率为  $\Gamma_{10}$ , 频率为  $\Delta_3$ )。由非均匀增宽系统中共振频率的分布规律可知:在  $t-t_1-t_2-t_3$  时刻,由  $A_3$  作用产生的偶极子不久将相互失相。光束 2 的作用使得失相的偶极子开始重新复相,产生和频三能级光子回波<sup>[9~14]</sup>。由(24)式得,当  $t_1+t_2=(\xi_2-1)t_2$  时,和频三能级光子回波发生在时刻  $t$ 。因为  $t_3 \geq 0$ , 所以  $t_1 \leq (\xi_2-1)t_2$ 。而与延时  $\tau$  有关的非简并四波混频信号仅仅是由光束中那些相位相关的子脉冲产生。光束 1 和 2 间的延时等于  $\tau$ , 光束 1 和 2 中相位相关子脉冲间的间隔  $t_2$  等于  $-\tau$ 。总的三阶极化是不同时刻产生的极化的累加。因为在这种情况下和频三能级光子回波发生在  $t_1 \leq (\xi_2-1)t_2$ , 或  $t_1 \leq (\xi_2-1)\tau$  时刻, (24) 式中  $t_1$  的积分应从 0 到  $(\xi_2-1)\tau$ 。积分边界增加  $|\tau|$  导致了共振四波混频信号起初的增加[(18)式的第二项]。随后,双光子相干衰减成为主流,结果非简并四波混频信号随着  $|\tau|$  的增加而衰减。这不同于非相干光三脉冲受激光子回波的简并四波混频信号,该信号最大值发生在  $\tau \approx 0$  时刻[(20)式的第一项]。

而对于光子回波下的阿秒和频极化拍频信号强度,则与多普勒增宽极限情形下宽带近似的结果相同,双光子共振非简并四波混频信号的最大值相对  $\tau = 0$  处有一个如图 5 示的小偏移。

## 4 结 论

基于单光子与双光子过程的相位共轭二阶极化干涉,从理论上研究了级联三能级系统在阿秒量级的不对称和频极化拍频过程,考虑了抽运光束为窄带线宽及宽带线宽的情形。发现测得的不对称阿秒和频极化拍频信号对任意带宽的马尔可文随机光场的统计特征非常敏感,该信号在测量偶极禁界跃迁两激发态之间的能级和时,并不受激光线宽的限制,而测量的总体精度仅取决于光学跃迁的均匀增宽,而且可以达到消除多普勒增宽。在窄带情形下,场关联对阿秒和频极化拍频信号影响很弱;在宽带情形下,阿秒和频极化拍频信号则表现出共振-非共振交叉关联。阿秒和频极化拍频的优点是,如果基态  $|0\rangle$  和激发态  $|2\rangle$  的能级间隔足够宽的话,就能够获得 900 as 超快调制周期。

## 参 考 文 献

- 1 D. B. Turner, D. J. Ulness. Factorized time correlation diagram analysis of Raman induced Kerr effects spectroscopy using noisy light[J]. *J. Chem. Phys.*, 2003, **119**(20): 10745~10752
- 2 T. F. Schulz, P. P. Aung, L. R. Weisel *et al.*. Complete cancellation of noise via color-locking in nearly degenerate four-wave-mixing using noisy light[J]. *J. Opt. Soc. Am. B*, 2005, **22**(5): 1052~1061
- 3 D. DeBeer, L. G. Van Wagment, R. Beach *et al.*. Ultrafast modulation spectroscopy[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 1986, **56**(11): 1128~1131
- 4 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[J]. *Phys. Rev.*, 1976, **14**(2): 751~760
- 5 Hu Zhenhua, Huang Dexiu. Theory of delayed-time non-degenerate four-wave mixing semiconductor optical amplifier[J]. *Acta Optica Sinica*, 2004, **24**(8): 1062~1066 (in Chinese)  
胡振华,黄德修. 半导体光放大器的非简并时延四波混频理论[J]. *光学学报*, 2004, **24**(8): 1062~1066
- 6 Hu Zhenhua, Huang Dexiu, Sun Junqiang *et al.*. Study of ultrafast process of semiconductor optical amplifier by four wave mixing withincoherent light[J]. *Acta Optica Sinica*, 2003, **23**(8): 897~901 (in Chinese)  
胡振华,黄德修,孙军强等. 非相干光四波混频研究半导体放大器超快过程[J]. *光学学报*, 2003, **23**(8): 897~901
- 7 Lu Keqing, Zhu Xiangping, Zhao Wei *et al.*. Low-amplitude vector screening solitons[J]. *Chin. Opt. Lett.*, 2004, **2**(8): 483~485
- 8 Zhang Yanpeng, Wang Pengfei, Zhang Lu *et al.*. Theoretical research of fifth-order polarization beats in cascade-three level system[J]. *Acta Photonica Sinica*, 2000, **29**(1): 34~39 (in Chinese)  
张彦鹏,王鹏飞,张 禄等. 级联三能级系统中五阶极化拍频的理论研究[J]. *光子学报*, 2000, **29**(1): 34~39
- 9 Zhang Yanpeng, Wu Hongcai, Lu Keqing *et al.*. Interference effects in different fifth-order polarizations with broadband noisy light[J]. *Chin. Phys.*, 2001, **10**(3): 206~213
- 10 Zhang Yanpeng, Tang Tiantong, Sun Liqun *et al.*. Effects of fourth-order coherence on ultrafast modulation spectroscopy[J]. *Phys. Rev. (A)*, 2000, **61**(2): 023809~023817
- 11 Zhang Yanpeng, Sun Liqun, Tang Tiantong *et al.*. Effects of field-correlation on polarization beats[J]. *Phys. Rev. (A)*, 2000, **61**(5): 053819~053826
- 12 Zhang Yanpeng, Sun Liqun, Tang Tiantong *et al.*. Fourth-order interference on polarization beats in a four-level system[J]. *J. Opt. Soc. Am. B*, 2000, **17**(5): 690~696
- 13 Zhang Yanpeng, C. B. de Araujo, E. E. Eyler. Higher-order correlation on polarization beats in Markovian stochastic fields [J]. *Phys. Rev. A*, 2001, **63**(4): 043802~043813
- 14 Zhang Yanpeng, Gan Chenli, Shahid Munir Farooqi *et al.*. Four-level polarization beats with broadband noisy light[J]. *J. Opt. Soc. Am. B*, 2002, **19**(5): 1204~1215
- 15 Zhang Yanpeng, Gan Chenli, Song Jianping *et al.*. Attosecond sum-frequency Raman-enhanced polarization beats using twin phase-sensitive color locking noisy lights[J]. *J. Opt. Soc. Am. B*, 2005, **22**(3): 694~711
- 16 Song Jianping, Feng Yu, Gan Chenli *et al.*. Fifth-order attosecond polarization beats using twin color-locked noisy lights in cascade three-level system with Doppler-free approach[J]. *Chin. Opt. Lett.*, 2005, **3**(4): 230~233