

# Na<sub>2</sub> 中由一对耦合能级相干叠加导致的双光子吸收的干涉增强效应\*

张衍亮<sup>1)</sup> 江 丽<sup>1)</sup> 钮月萍<sup>2)</sup> 孙真荣<sup>1)</sup> 丁良恩<sup>1)</sup> 王祖赓<sup>1)</sup>

<sup>1)</sup> 华东师范大学物理系, 光谱学与波谱学教育部重点实验室, 上海 200062)

<sup>2)</sup> 陕西师范大学, 物理学与信息技术学院, 西安 710062)

(2002 年 5 月 22 日收到, 2002 年 6 月 26 日收到修改稿)

在中间共振增强能级是一对波函数叠加的耦合能级的钠分子菱形四能级系统中, 实验观察了由该两耦合能级的相干叠加作用所导致的不等频双光子吸收的干涉增强效应, 并运用密度矩阵方程对这一实验现象进行了计算, 其结果与实验符合得很好.

关键词: 干涉增强, 双光子吸收, 菱形四能级系统, 耦合能级

PACC: 4250, 3000

## 1. 引 言

近来, 由于在提高二阶极化率和双光子无反转激光等方面的潜在应用, 在包含有两波函数叠加的一对中间共振增强能级的菱形四能级系统中的双光子吸收增强和减弱的量子干涉效应引起了人们的注意. Agarwal 等人<sup>[1]</sup>理论研究了铷原子中由强耦合场与  $5P_{3/2}—5D_{3/2}$  共振作用产生波函数相互叠加的两缀饰中间能级  $|+\rangle = \sqrt{2}/2|5D_{3/2}\rangle + \sqrt{2}/2|5P_{3/2}\rangle$  和  $|-\rangle = \sqrt{2}/2|5D_{3/2}\rangle - \sqrt{2}/2|5P_{3/2}\rangle$  以及与下能级  $5S_{1/2}$  和上能级  $7S_{1/2}$  所构成的菱形四能级的双光子吸收的干涉减弱. 后来, Gao 等人<sup>[2]</sup>实验观察了钠原子中包含强耦合场作用下产生的中间叠加能级的菱形四能级中的双光子吸收干涉减弱的现象. 最近, 在铷原子的菱形四能级体系中观察到了双光子吸收干涉增强效应<sup>[3]</sup>. 但以上研究都局限在原子能级体系, 而且需要用一耦合场控制菱形四能级系统的形成, 这就增加了实验的复杂性.

由于自旋-轨道耦合的作用, 钠分子中分别属于单重和三重态的两个具有相同转动量子数  $J$  的能级将形成一对耦合能级. 它们不仅相互靠得很近, 而且共享波函数, 可以作为中间共振增强能级, 构成菱

形、Y 形等能级系统, 并且已从理论和实验上进行了研究<sup>[4-6]</sup>. 其中, 我们已实验观察了由中间能级  $A^1\Sigma_u^+(22, 12)—b^3\Pi_u(26, 12)$  的耦合而导致菱形四能级中等频双光子吸收线型的变异现象<sup>[4]</sup>, 但由于在等频双光子实验中只使用了一个激光器, 所以无法仔细研究中间能级的耦合对双光子吸收的干涉影响.

本工作使用了两台激光器, 实验观察了  $A^1\Sigma_u^+(22, 12)—b^3\Pi_u(26, 12)$  这一对耦合能级作为中间共振增强能级的菱形四能级系统(如图 1 所示)中的不等频双光子吸收干涉增强现象, 发现当激光频率分别与这对耦合能级位置的失谐超过一个多普勒宽度时, 双光子吸收信号仍存在, 而且最大吸收并不对应于激光频率分别调谐到与这一对耦合能级共振的位置, 而是在这一对耦合能级的中间位置.

## 2. 能级系统和实验结果

图 1 是本实验涉及的由一对中间波函数叠加的耦合能级构成的菱形四能级系统, 其双光子吸收过程可通过高位能态  $2^3\Pi_g$  到低位能态  $a^3\Sigma_u^+$  辐射的紫外荧光观察. 所使用的中间耦合能级  $A^1\Sigma_u^+(22, 12)—b^3\Pi_u(26, 12)$  以及上下能级已由文献 4 确定.

\* 国家自然科学基金(批准号: 10074015)和上海市重点学科资助的课题.

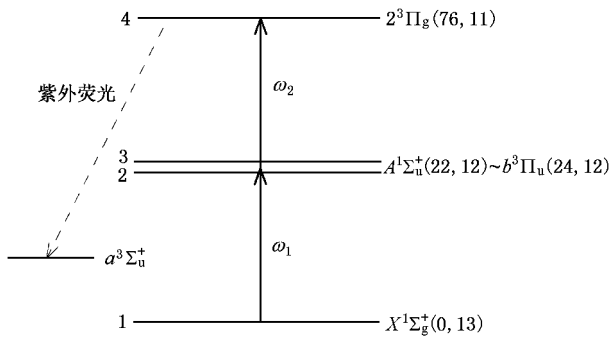


图 1 具有中间两耦合共振增强能级的菱形能级系统及不等频双光子激光

消多普勒加宽双光子光谱的实验装置如图 2 所示. 温度为 773K 的钠分子气体在十字形热管炉中产生. 固体激光器 Verdi 抽运的 Coherent 899-29 和 599-21 染料激光器的输出光分别作为抽运光和探测光反向传输, 并经过两个焦距均为 127mm 的透镜在十字形热管炉中心聚焦. 碘谱作为测量抽运光和探测光的频率标尺(精度为  $0.0001\text{cm}^{-1}$ ), F-P 腔监测 599-21 的激光模式. 经过双光子吸收后的上能级发出的紫外荧光信号通过附有紫外带通滤光片的光电倍增管沿垂直于光传输的方向进行探测, 并传送到积分时间为 0.3s 的锁相放大器进行放大, 最后由计算机系统处理.

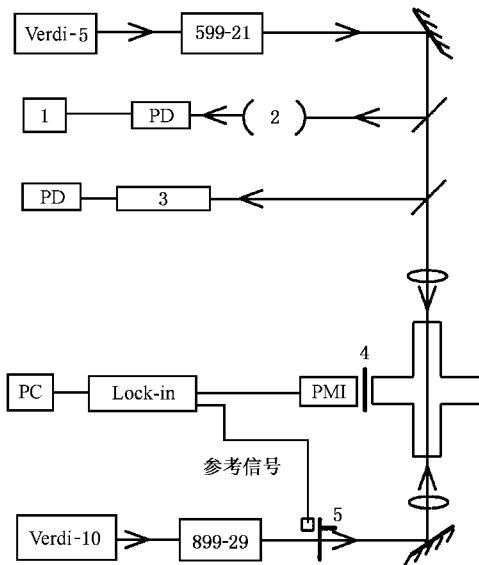


图 2 消多普勒加宽不等频双光子吸收实验装置图 1 为示波器 2 为 F-P 腔, 3 为碘池, 4 为紫外带通滤光片, 5 为斩波器

实验中, 抽运光频率  $\omega_1$  分别固定在基态  $X^1\Sigma_g^+$

(0, 13) 到中间两能级  $A^1\Sigma_g^+(22, 12) - b^3\Pi_u(26, 12)$  跃迁的不同失谐处, 而探测光频率  $\omega_2$  分别调谐到 ( $\omega_1 + \omega_2$ ) 等于  $X^1\Sigma_g^+(0, 13) - 2^3\Pi_g(76, 11)$  的能级间隔, 从而实现不等频双光子跃迁, 并可测到来自于上能级发出的紫外辐射信号. 图 3 (实心正方形) 示出了对应于不同中间能级失谐的双光子吸收(即紫外辐射)强度图. 为了对比, 我们特意观察了只有一个中间能级的梯形三能级系统中双光子吸收强度随激光频率相对于中间能级失谐变化的情况, 其能级系统采用  $X^1\Sigma_g^+(1, 19) - A^1\Sigma_u^+(21, 20) - 1^1\Sigma_g^+(19, 19)$ <sup>[7]</sup>, 实验结果如图 4 所示.

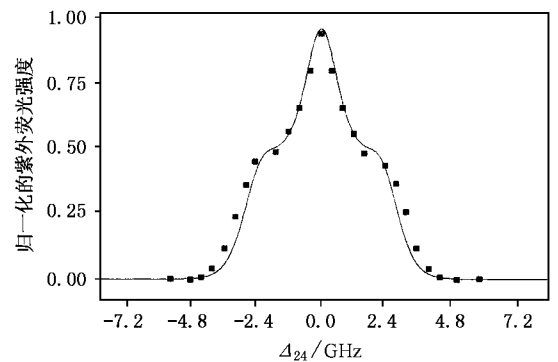


图 3 菱形四能级系统双光子吸收曲线随失谐量(相对于两中间耦合能级的中心位置)的变化曲线(方块为实验测量结果, 实线为理论计算结果, 实验中  $\Delta_{12} + \Delta_{24} = 0$ )

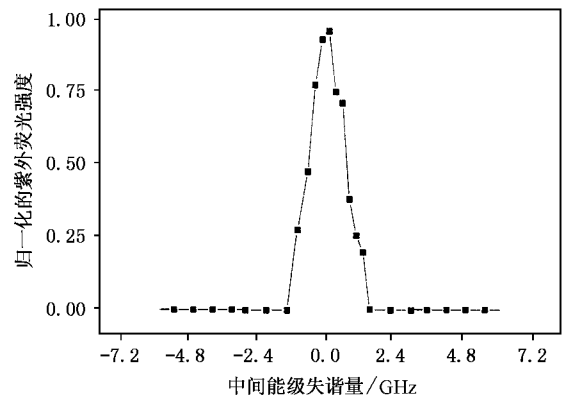


图 4 梯形三能级系统中双光子吸收随激光频率对中间能级失谐的变化曲线

显然, 当中间增强能级的失谐超过多普勒宽度 (1.7GHz) 时, 梯形三能级系统中双光子吸收的信号已经减至为零, 而对于菱形四能级系统而言, 情况有明显不同, 特别是当失谐对应于两耦合能级中间位置时, 具有最强的双光子吸收信号.

### 3. 理论分析

所使用的密度矩阵方程组为

$$\begin{aligned} & \hbar \left( \frac{\partial}{\partial t} + v \frac{\partial}{\partial z} \right) \rho_{ij} - (\omega_i - \omega_j) \rho_{ij} + i r_{ij} p_{ij} \\ & = i \Lambda_{ij} - \sum_{k=1}^4 (\Omega_{ik} \rho_{kj} - \rho_{ik} \Omega_{kj}), \end{aligned} \quad (1)$$

其中  $i, j = 1, 2, 3$  和 4 分别对应于能级 1, 2, 3 和 4;  $\Lambda_i = \Lambda_{ij}$  ( $i = j$ ) 为能级  $i$  的初始热布居,  $\gamma_{ij} = (\gamma_i + \gamma_j) \chi \gamma_i$  是能级  $i$  的衰减速率,  $\Omega_{ij}$  代表光场作用在能级  $i$  和  $j$  之间跃迁的拉比频率, 且  $\Omega_{ij} = \Omega_{ji}$ . 在偶极近似下, 有  $\Omega_{12}, \Omega_{34} \neq 0$  和  $\Omega_{14}, \Omega_{23} = 0$ , 而中间一对耦合能级因波函数叠加, 而使  $\Omega_{13}, \Omega_{24} \neq 0$ .

显然, 由双光子与上述菱形能级系统相互作用而产生布居  $\rho_{44}$  的主要跃迁可分别表述为

$$\begin{aligned} & \rho_{11}^{(0)} \xrightarrow{\omega_1} \rho_{12}^{(1)}, \rho_{13}^{(1)} \xrightarrow{\omega_2} \rho_{14}^{(2)} \xrightarrow{\omega_1} \rho_{24}^{(3)}, \\ & \rho_{34}^{(3)} \xrightarrow{\omega_2} \rho'_{44}{}^{(4)}, \end{aligned} \quad (2)$$

$$\begin{aligned} & \rho_{11}^{(0)} \xrightarrow{\omega_1} \rho_{12}^{(1)}, \rho_{13}^{(1)} \xrightarrow{\omega_1} \rho_{22}^{(2)}, \rho_{33}^{(2)} \xrightarrow{\omega_2} \rho_{24}^{(3)}, \\ & \rho_{34}^{(3)} \xrightarrow{\omega_2} \rho''_{44}{}^{(4)}, \end{aligned} \quad (3)$$

$$\begin{aligned} & \rho_{11}^{(0)} \xrightarrow{\omega_1} \rho_{12}^{(1)}, \rho_{13}^{(1)} \xrightarrow{\omega_1} \rho_{23}^{(2)}, \rho_{32}^{(2)} \xrightarrow{\omega_2} \rho_{24}^{(3)}, \\ & \rho_{34}^{(3)} \xrightarrow{\omega_2} \rho'''_{44}{}^{(4)}, \end{aligned} \quad (4)$$

其中矩阵元右上方数字代表阶次. 在稳态条件下, 应用旋转波近似和慢变振幅近似, 可以分别得到上面三个跃迁途径的表达式以及所对应的上能级布居

$$\begin{aligned} \rho'_{44}{}^{(4)} & = \frac{1}{\gamma_{44}} \text{Im} \left[ \frac{\Omega_{12}^2}{\Delta_{14}(\Delta_{24} + \omega_{23}/2)} \right. \\ & \times \left( \frac{\Omega_{24}^2}{(\Delta_{12} - \omega_{23}/2)} + \frac{\Omega_{13}\Omega_{24}\Omega_{34}}{(\Delta_{13} - \omega_{23}/2)\Omega_{12}} \right) \Big] \\ & + \frac{1}{\gamma_{44}} \text{Im} \left[ \frac{\Omega_{13}^2}{\Delta_{14}(\Delta_{34} + \omega_{23}/2)} \right. \\ & \times \left( \frac{\Omega_{34}^2}{(\Delta_{13} - \omega_{23}/2)} + \frac{\Omega_{12}\Omega_{34}\Omega_{24}}{(\Delta_{12} - \omega_{23}/2)\Omega_{13}} \right) \Big], \end{aligned} \quad (5)$$

$$\begin{aligned} \rho''_{44}{}^{(4)} & = \frac{1}{\gamma_{44}} \left( \frac{4\Omega_{34}^2\Omega_{13}^2\gamma_{13}\gamma_{34}}{|\Delta_{34} + \omega_{23}/2|^2 |\Delta_{13} - \omega_{23}/2|^2 \gamma_3} \right. \\ & \left. + \frac{4\Omega_{24}^2\Omega_{12}^2\gamma_{12}\gamma_{24}}{|\Delta_{24} + \omega_{23}/2|^2 |\Delta_{12} - \omega_{23}/2|^2 \gamma_2} \right) \end{aligned} \quad (6)$$

$$\rho'''_{44}{}^{(4)} = \frac{\Omega_{24}\Omega_{34}\Omega_{13}\Omega_{12}}{\gamma_{44}}$$

$$\begin{aligned} & \times \text{Im} \left( \frac{1}{(\Delta_{21} - \omega_{23}/2) \chi (\Delta_{13} - \omega_{23}/2) \chi (\Delta_{24} + \omega_{23}/2)} \right) \\ & + \frac{\Omega_{24}\Omega_{34}\Omega_{13}\Omega_{12}}{\gamma_{44}} \end{aligned}$$

$$\times \text{Im} \left( \frac{1}{(\Delta_{31} - \omega_{23}/2) \chi (\Delta_{12} - \omega_{23}/2) \Delta_{24}} \right), \quad (7)$$

$$\rho_{44} = \rho'_{44}{}^{(4)} + \rho''_{44}{}^{(4)} + \rho'''_{44}{}^{(4)}. \quad (8)$$

其中

$$\Delta_{12} = \omega_{12} - \omega_1 + k_1 v + i\gamma_{12} + \omega_{23}/2,$$

$$\Delta_{34} = \omega_{34} - \omega_2 - k_2 v + i\gamma_{34} - \omega_{23}/2, \quad (9)$$

$$\Delta_{13} = \omega_{13} - \omega_1 + k_1 v + i\gamma_{13} + \omega_{23}/2,$$

$$\Delta_{24} = \omega_{24} - \omega_2 - k_2 v + i\gamma_{24} - \omega_{23}/2, \quad (10)$$

即失谐量  $\Delta_{ij}$  均相对于两耦合能级之间的中间位置计量 ( $\Delta_{ij}$  和  $\Delta_{ji}$  互为共轭). 上述三个跃迁途径分别属于: 1) 梯形三能级双光子激发; 2) 梯形三能级两步激发; 3) 四能级相干增强激发. 在前两个激发过程中, 两个近共振中间能级分别独立地起增强作用, 因而可视为具有同样上下能级的两个梯形三能级系统. 其中, 双光子激发过程是系统的一个中间能级沟通上下能级以和频偶极振荡方式激发, 从而使上能级产生布居; 两步激发过程是系统先吸收一个光子导致中间能级布居, 然后再吸收一个光子从而使上能级布居. 而四能级相干增强激发则是在具有一对中间耦合能级的四能级系统中出现的一种独特的相干激发过程, 表征量子干涉的密度矩阵非对角元  $\rho_{23}$  和  $\rho_{32}$  不为零, 从而对上能级的布居产生贡献.

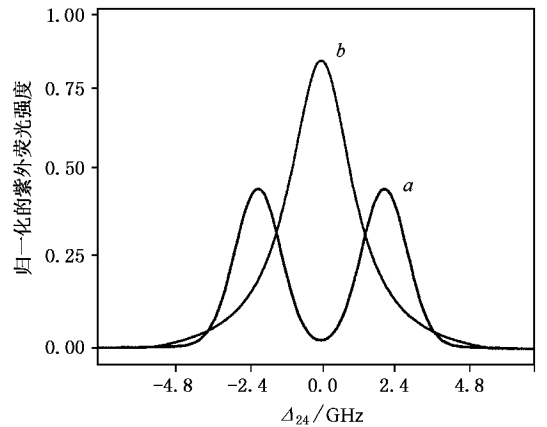


图5 曲线  $a$  为梯形三能级系统双光子吸收与两步激发机制产生的能级 4 布居; 曲线  $b$  为四能级系统相干激发机制产生的能级 4 布居 ( $\Omega_{12} = \Omega_{13} = 0.5\text{GHz}$ ,  $\Omega_{24} = \Omega_{34} = 0.25\text{GHz}$ ,  $\gamma_2 = \gamma_3 = \gamma_4 = 0.05\text{GHz}$ )

我们分别计算了上述三个激发途径对上能级的

布居贡献  $\rho'_{44}{}^{(4)}$ ,  $\rho''_{44}{}^{(4)}$  和  $\rho'''_{44}{}^{(4)}$ . 图 5 中的  $a$  和  $b$  两条曲线分别示出了对  $(\rho'_{44}{}^{(4)} + \rho''_{44}{}^{(4)})$  和  $\rho'''_{44}{}^{(4)}$  的计算结果. 曲线  $a$  清楚地表明: 当激光场分别与两个中间能级精确共振时, 双光子跃迁的信号较强, 而当失谐超过多普勒宽度时, 信号迅速降至为零. 这与图 4 示出的梯形能级系统中双光子吸收的实验结果一致. 曲线  $b$  则突出地表明: 当激光场调谐到两个耦合能级中间位置时,  $\rho'''_{44}{}^{(4)}$  最大.

图 3 中的实线即为图 5 中  $a$  和  $b$  两条曲线的叠

加. 可以看到, 实验结果与计算结果相符.

## 4. 结 论

本文实验观察了中间共振增强能级是一对波函数叠加的耦合能级的菱形四能级系统中双光子吸收的量子干涉现象. 实验发现, 自旋-轨道耦合作用对双光子吸收有干涉增强作用. 运用密度矩阵方程对该干涉增强进行了计算, 计算结果与实验结果相符.

- [ 1 ] Agarwal G S and Harshawardhan W 1997 *Phys. Rev. Lett.* **77** 1030  
 [ 2 ] Gao J Y, Yang S H *et al* 2000 *Phys. Rev. A* **61** 023401  
 [ 3 ] Mulchan N, Ducreay D G, Pina R, Yan M and Zhu Y F 2000 *J. Opt. Soc. Am. B* **17** 820  
 Yan M, Rickey E G and Zhu Y F 2001 *Phys. Rev. A* **64** 043807

- [ 4 ] Wang W S *et al* 2000 *J. Phys. B: At. Mol. Phys.* **B 33** 2117  
 [ 5 ] Deng L, Wang W S *et al* 1999 *Acta Phys. Sin. (Over. Ed.)* **8** 583  
 [ 6 ] Deng L, Wang W S *et al* 2001 *Chin. Phys.* **10** 27  
 [ 7 ] Morgan G P, Xia H R and Schawlow A L 1982 *J. Opt. Soc. Am. B* **72** 315

# Interference enhancement of two-photon absorption caused by a pair of coherent superposition levels in $\text{Na}_2$ \*

Zhang Yan-Liang<sup>1)</sup> Jiang Li<sup>1)</sup> Niu Yue-Ping<sup>2)</sup> Sun Zhen-Rong<sup>1)</sup> Ding Liang-En<sup>1)</sup> Wang Zu-Geng<sup>1)</sup>

<sup>1)</sup> *Key Laboratory for Optics and Magnetic Resonance Spectroscopy, Department of Physics, East China Normal University, Shanghai 200062, China*

<sup>2)</sup> *College of Physics and Information Technology, Shaanxi Normal University, Xi'an 710062, China*

(Received 22 May 2002; revised manuscript received 26 June 2002)

## Abstract

In the sodium dimer rhomb-type four-level system with a pair of coherent superposition levels, the interference enhancement of two-photon absorption caused by coherent superposition of the coupling levels is experimentally observed. The calculated results using density matrix equation are in good agreement with the experimental results.

**Keywords**: interference enhancement, two-photon absorption, rhomb-type four-level system, coupling level

**PACC**: 4250, 3000

\* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 10074015) and by the Shanghai Priority Academic Discipline, China.