

引入量子干涉的双光子共振非简并四波混频^{*}

孙 江[†] 左战春 米 辛 俞祖和 吴令安 傅盘铭

(中国科学院物理研究所光物理实验室, 北京 100080)

(2004 年 4 月 14 日收到, 2004 年 6 月 8 日收到修改稿)

研究了级联四能级系统中双光子共振非简并四波混频(NFWM)由于加入耦合光场而产生的量子干涉效应,发现在强耦合作用下 NFWM 频谱呈现 AT 劈裂,它反映的是两个缀饰态的能级.量子干涉还使 NFWM 信号被抑制或增强.此方法牵涉到三光子共振,因此可以成为研究原子或分子高激发态的有效光谱学工具.

关键词:四波混频,量子干涉

PACC:4265M,2930

1. 引 言

近年来,人们对原子相干对非线性光学效应的影响进行了大量的研究^[1-7].例如,利用电磁感应透明(EIT)可以在保持共振受激辐射的同时,提供光的透明传播,从而实现在不需要严格相位匹配条件下,提高频率转换效率^[3].EIT还便于在偶极禁戒跃迁中实现最大的相干制备,所形成的位相相干原子系综可以充当一个本地振荡器,与入射光场作用产生和频与差频谱.例如,Jain等^[4]利用EIT在Pb原子中感生最大原子相干,使蓝光到紫外光的转换效率达到40%;Merriam等^[5]报道了在双 Λ 系统的Pb原子蒸气中,233nm紫外光向186nm真空紫外光的转换效率可超过30%.将这一思想推广到强失谐拉曼系统中,可以有效地形成了多级拉曼边带并产生亚飞秒光脉冲^[6].

双光子过程中的量子干涉也吸引了越来越多的研究兴趣,Agarwal和Harshwardhan^[8]提出在一个梯形四能级系统中,通过耦合中间能级到一个高激发态,可以有选择的增强或抑制双光子激发.Gao^[9]和Yan^[10]分别报道了在钠和冷铷原子中的双光子吸收的抑制,Qi^[11]在Li₂中观测到由耦合场引起的Autler-Townes(AT)劈裂.

共振增强四波混频是研究原子和分子动力学及其能级结构的有效光谱学工具^[12-16].拉曼增强非简

并四波混频(NFWM)已经被用于研究分子的振动模^[13,14],而瑞利型NFWM可用于测量比激光脉冲宽度更短的物质纵向弛豫时间^[15,16].最近,我们将量子干涉的概念应用于双光子共振NFWM,在Ba的双光子共振NFWM实验中,通过加入耦合场耦合里德伯态6s19d和自电离态6p19d,发现四波混频信号可以被抑制或增强^[17].本文将进一步对级联四能级系统中双光子共振NFWM由于加入耦合场而产生的量子干涉效应进行系统的理论研究,指出使四波混频信号抑制或增强的物理机理.我们还发现在强耦合作用下,四波混频频谱产生AT劈裂,它反映的是两个缀饰态的能级.由于此方法牵涉到三光子共振,因此可以成为研究原子或分子高激发态的有效光谱学工具,特别是应用本方法可以测量到由于寿命很长而难以使用荧光方法测量的两个原子高激发态间的跃迁偶极矩阵元.

2. 基本理论

结合量子干涉的双光子共振NFWM本质上是一个有五个光子参与的非线性过程.其中包括4束入射激光.激光束2和束2'有相同的频率 ω_2 ,在它们之间有一个很小的夹角 θ .束1的频率为 ω_1 ,沿与束2相反的方向传播,束3为耦合光场,它以 ω_3 的频率入射到样品上(图1(a)).

^{*} 国家自然科学基金(批准号:10174096,10374113)资助的课题.

[†] E-mail: sunj@aphy.iphy.ac.cn; 电话: 03127535321.

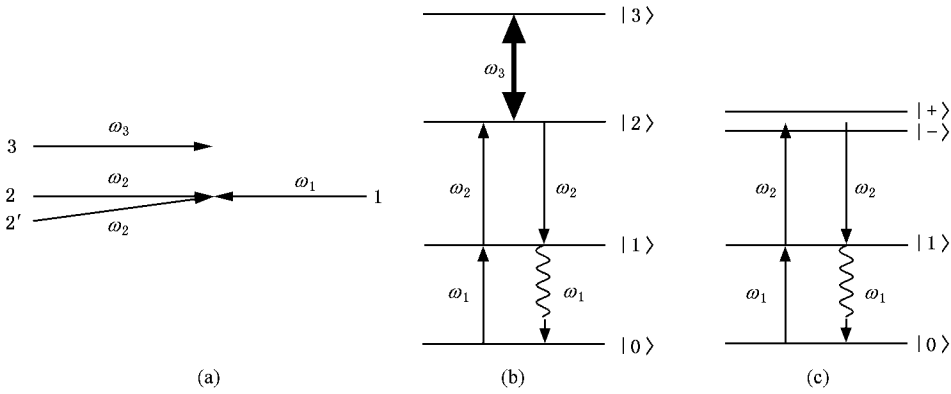


图 1 引入量子干涉的双光子共振 NFWM 原理图



我们考虑一个级联四能级系统. 如图 1(b)所示. 态 $|0\rangle$ 和 $|1\rangle$, 态 $|1\rangle$ 和 $|2\rangle$, 态 $|2\rangle$ 和 $|3\rangle$ 分别以偶极跃迁频率 $\Omega_1, \Omega_2, \Omega_3$ 耦合. 先考虑由 $|0\rangle - |1\rangle - |2\rangle$ 组成的级联三能级系统中的双光子共振非简并四波混频. 当 $\omega_1 \approx \Omega_1, \omega_2 \approx \Omega_2$ 时, 光束 1 引起 $|0\rangle$ 到 $|1\rangle$ 的跃迁, 光束 2 引起 $|1\rangle$ 到 $|2\rangle$ 的跃迁. 在双光子共振 NFWM 中, 光束 1, 2 感生 $|0\rangle$ 和 $|2\rangle$ 态之间的相干. 双光子相干可以通过光束 2' 来进行探测, 产生频率为 ω_1 沿光束 2' 的相反方向传播的 NFWM 信号光. 为了研究量子干涉, 使用频率 $\omega_3 \approx \Omega_3$ 的光束 3 驱动 $|2\rangle$ 到 $|3\rangle$ 的跃迁, 从而感生 $|0\rangle$ 和 $|3\rangle$ 态之间的相干. 我们研究这个原子相干对四波混频信号的影响.

对于我们考虑的四能级系统, 相互作用的哈密顿算符为

$$H = \hbar\Delta_1 |1\rangle\langle 1| + \hbar(\Delta_1 + \Delta_2) |2\rangle\langle 2| + \hbar(\Delta_1 + \Delta_2 + \Delta_3) |3\rangle\langle 3| - (\mu_1 E_1 |1\rangle\langle 0| + \mu_2 E_2 |2\rangle\langle 1| + \mu_3 E_3 |3\rangle\langle 2| + \text{H.c.}), \quad (1)$$

式中 $\Delta_i = \Omega_i - \omega_i (i = 1, 2, 3)$ 为原子的偶极跃迁频率与入射光频率的失谐量, $E_1 = \epsilon_1 e^{ik_1 \cdot r}, E_2 = \epsilon_2 e^{ik_2 \cdot r} + \epsilon'_2 e^{ik'_2 \cdot r}, E_3 = \epsilon_3 e^{ik_3 \cdot r}$, 为频率分别为 $\omega_1, \omega_2, \omega_3$ 的激光束的场强, 其中 k_1, k_2, k'_2, k_3 和 $\epsilon_1, \epsilon_2, \epsilon'_2, \epsilon_3$ 分别为光束 1, 2, 2', 3 的波矢和振幅.

μ_1, μ_2, μ_3 分别为 $|0\rangle$ 和 $|1\rangle, |1\rangle$ 和 $|2\rangle, |2\rangle$ 和 $|3\rangle$ 间的跃迁偶极矩矩阵元. 密度矩阵方程可以写为

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} = -\frac{i}{\hbar} [H, \rho] + \left(\frac{d\rho}{dt}\right)_{\text{relax}}. \quad (2)$$

我们设定 ϵ_1, ϵ_2 很弱, 而耦合光场 ϵ_3 可以为任意强度. 定义耦合系数 $G_1 = \mu_1 \epsilon_1 / \hbar, G_2 = \mu_2 \epsilon_2 / \hbar, G'_2 = \mu_2 \epsilon'_2 / \hbar, G_3 = \mu_3 \epsilon_3 / \hbar$. Γ_{n0} 为能级 $|n\rangle$ 和 $|0\rangle$ 之间的横向弛豫速率. 由于原子系统最初处于基态 $|0\rangle$, 有 $\rho_{00}^{(0)} = 1$, 由光束 1 引起的矩阵元 ρ_{10} 满足

$$\frac{\partial \rho_{10}}{\partial t} = -(i\Delta_1 + \Gamma_{10})\rho_{10} + iG_1 e^{ik_1 \cdot r} \rho_{00}^{(0)}. \quad (3)$$

在稳态条件下 (3) 式的解为 $\rho_{10}^{(1)} = iG_1 e^{ik_1 \cdot r} / (i\Delta_1 + \Gamma_{10})$. 接着, 光束 2 感生出原子相干 ρ_{20} , 这里考虑到耦合场, 我们必须同时解方程组

$$\begin{aligned} \frac{\partial \rho_{20}}{\partial t} = & -[(i\Delta_1 + \Delta_2) + \Gamma_{20}]\rho_{20} \\ & + iG_3 e^{ik_3 \cdot r} \rho_{30} + iG_2 e^{ik_2 \cdot r} \rho_{10}^{(1)}, \end{aligned} \quad (4)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial \rho_{30}}{\partial t} = & iG_3^* e^{-ik_3 \cdot r} \rho_{20} \\ & - [(i\Delta_1 + \Delta_2 + \Delta_3) + \Gamma_{30}]\rho_{30}. \end{aligned}$$

稳态条件下, 有

$$\rho_{20}^{(2)} = \frac{iG_2 e^{ik_2 \cdot r} [(i\Delta_1 + \Delta_2) + \Gamma_{20}]\rho_{10}^{(1)}}{[(i\Delta_1 + \Delta_2) + \Gamma_{20}][(i\Delta_1 + \Delta_2 + \Delta_3) + \Gamma_{30}] + |G_3|^2}. \quad (5)$$

最后, 双光子相干 $\rho_{10}^{(2)}$ 被光束 2' 探测, 通过式

$$\frac{\partial \rho_{10}}{\partial t} = -(i\Delta_1 + \Gamma_{10})\rho_{10} + (G'_2)^* e^{-ik'_2 \cdot r} \rho_{20}^{(2)} \quad (6)$$

可以求出 $\rho_{10}^{(3)} = (G'_2)^* e^{-ik'_2 \cdot r} \rho_{20}^{(2)} / (i\Delta_1 + \Gamma_{10})$. 于是有

$$\rho_{10}^{(3)}(\mathbf{r}) = -i \frac{G_1 G_2 (G'_2)^* [(i\Delta_1 + \Delta_2) + \Gamma_{20}]\rho_{10}^{(1)} e^{i(k_1 + k_2 - k'_2) \cdot r}}{(i\Delta_1 + \Gamma_{10}) [(i\Delta_1 + \Delta_2) + \Gamma_{20}][(i\Delta_1 + \Delta_2 + \Delta_3) + \Gamma_{30}] + |G_3|^2}. \quad (7)$$

NFWM 信号的强度 I 正比于 $|\rho_{10}^{(3)}(\mathbf{r})|^2$, 即

$$I \propto |\rho_{10}^{(3)}(\mathbf{r})|^2. \quad (8)$$

由 (7) 式可以看出 NFWM 信号沿 $\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 - \mathbf{k}'_2$ 的方向传播, 而与耦合场 \mathbf{k}_3 的方向无关.

令 $\Delta_3 = 0, \Delta = \Delta_1 + \Delta_2$ 通过求解

$$\frac{\partial \mathcal{K}(\Delta)}{\partial \Delta} = 0, \quad (9)$$

可以看到当 G_3 满足 $G_3^2 > \Gamma_{30}(\Gamma_{20} + \Gamma_{30})\{1 + \Gamma_{30}^2/(\Gamma_{20} + \Gamma_{30})^2\}^{1/2} - 1$ 时, 在 NFWM 频谱的 $\Delta_1 + \Delta_2 = 0$ 处会出现一个下凹. 然后随着 G_3 的增加, NFWM 频谱进一步分裂为两个分离的峰, 这就是 AT 分裂. AT 分裂的两个峰之间的频率差为 $\Delta_{AT} = 2\{G_3[\Gamma_{30}^2 + 2\Gamma_{30}(\Gamma_{20} + \Gamma_{30})]^{1/2} - \Gamma_{30}^2\}^{1/2}$, 当满足 $G_3 \gg \Gamma_{20}, \Gamma_{30}$ 时, 两个峰之间的频率差可表达为 $\Delta_{AT} \approx 2G_3$.

AT 分裂也可以通过缀饰态模型得到解释, 如图 1(c) 所示, 能级 $|2\rangle$ 和 $|3\rangle$ 间的强耦合场产生了缀饰态 $|+\rangle$ 和 $|-\rangle$, 通过求解方程

$$H'|_{\pm} = \lambda_{\pm}|_{\pm}, \quad (10)$$

式中 $H' = \hbar\Delta_3|3\rangle\langle 3| - (\mu_3 E_3|3\rangle\langle 2| + \text{H.c.})$, 可以获得缀饰态的本征值

$$\lambda_{\pm} = \frac{\Delta_3}{2} \pm \frac{1}{2} \sqrt{\Delta_3^2 + 4|G_3|^2} \quad \Delta_3 > 0 \quad (11)$$

AT 分裂的两个峰分别对应着双光子共振非简并四波混频通道: $\rho_{00}^{(0)} \rightarrow \rho_{10}^{(1)} \rightarrow \rho_{-0}^{(2)} \rightarrow \rho_{10}^{(3)}$ 和 $\rho_{00}^{(0)} \rightarrow \rho_{10}^{(1)} \rightarrow \rho_{+0}^{(2)} \rightarrow \rho_{10}^{(3)}$, 两峰的间距为 $\Delta_{AT} = |\lambda_+ - \lambda_-| = \sqrt{\Delta_3^2 + 4|G_3|^2}$, 当 $\Delta_3 = 0$ 时, $\Delta_{AT} = 2G_3$.

3. 数值结果

在建立了本系统的理论模型后, 我们首先研究加入耦合场后, NFWM 信号和双光子共振的失谐量 $(\Delta_1 + \Delta_2)\Gamma_{20}$ 之间的依赖关系. 图 2 为 $\Delta_3/\Gamma_{30} = 0, \Gamma_{20}/\Gamma_{30} = 1, G_3/\Gamma_{30} = \alpha$ (实线), 1α (虚线), 1α (点线) 和 2α (点虚线) 时的双光子共振 NFWM 频谱. 这里将 $G_3/\Gamma_{30} = 0$ 时 NFWM 信号强度的最大值归一为 1. 如图所示, 随着 G_3 的增加, 在 NFWM 频谱的 $\Delta_1 + \Delta_2 = 0$ 处先出现一个下凹, 并进一步分裂为两个分离的峰 (AT 分裂). 当满足 $G_3 \gg \Gamma_{20}, \Gamma_{30}$ 时, 两个峰之间的频率差可表达为 $2G_3$.

接下来, 研究谱线的线宽. 由方程 (7) 可以证明当不存在耦合场时, NFWM 频谱的线宽 (FWHM) 为 $2\Gamma_{20}$, 而当耦合场引起谱分裂, 并满足 $G_3 \gg \Gamma_{20}, \Gamma_{30}$

时, 分裂形成的峰的线宽变为 $\delta\omega_{AT}(\text{FWHM}) \approx \Gamma_{20} + \Gamma_{30}$. 图 3 给出了 AT 分裂随耦合场 G_3 之间的变化关系, 其中 $\Gamma_{30}/\Gamma_{20} = 0.5$ (实线), 1α (虚线), 1α (点线) 和 5 (点虚线).

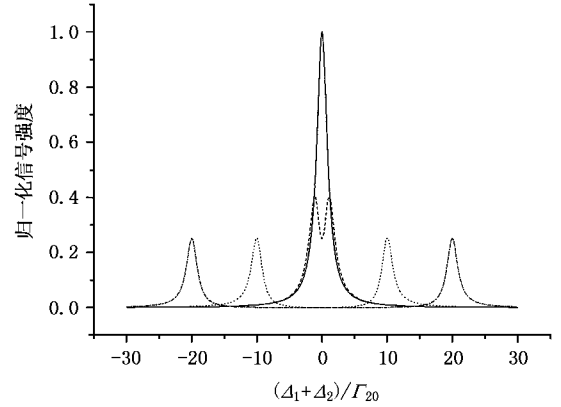


图 2 加入耦合场的双光子共振 NFWM 谱 其中 $\Delta_3/\Gamma_{30} = 0, \Gamma_{20}/\Gamma_{30} = 1, G_3/\Gamma_{30} = \alpha$ (实线), 1α (虚线), 1α (点线) 和 2α (点虚线)

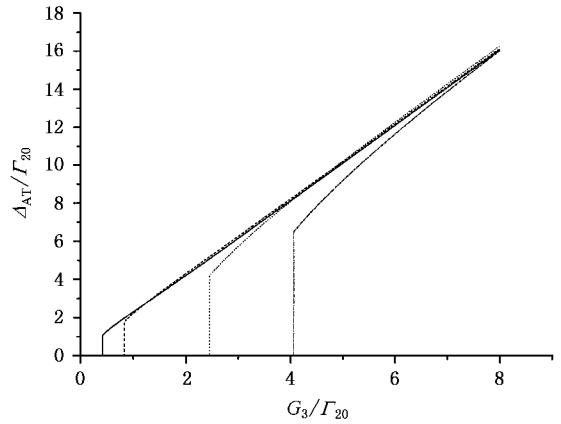


图 3 不同 Γ_{30} 对应的 AT 分裂随 G_3 的变化曲线 其中 $\Gamma_{30}/\Gamma_{20} = 0.5$ (实线), 1α (虚线), 1α (点线) 和 5 (点虚线)

接下来考虑耦合场的频率偏离共振 ($\Delta_3 \neq 0$) 时的情况, 图 4 为 $\Delta_3/\Gamma_{30} = 5, G_3/\Gamma_{30} = \alpha$ (实线), 1α (虚线), 1α (点线) 和 2α (点虚线) 时的 NFWM 信号强度随频率失谐量 $(\Delta_1 + \Delta_2)\Gamma_{20}$ 的变化曲线. 不同于共振时的情况, 该 NFWM 频谱上分裂成的双峰是不对称的, 这种不对称随着 G_3/Γ_{30} 的增加而变得越来越不明显.

我们固定双光子共振失谐量 $\Delta_1 + \Delta_2$, 研究扫描 Δ_3 得到的 NFWM 频谱. 图 5(a) 给出双光子共振时 NFWM 信号强度随失谐量 Δ_3 的变化曲线. 计算使用的参数为 $(\Delta_1 + \Delta_2)\Gamma_{20} = 0, \Gamma_{30}/\Gamma_{20} = 1, G_3/\Gamma_{30}$

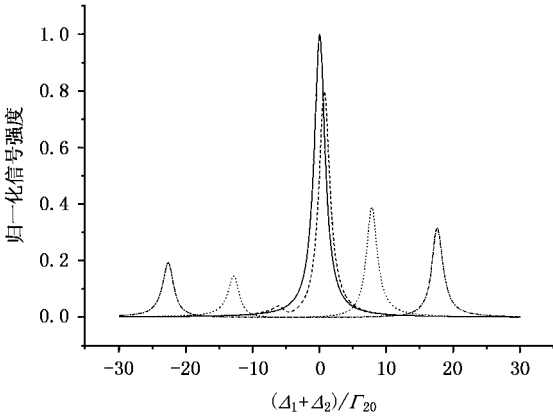


图 4 NFWM 信号强度随频率失谐量 $(\Delta_1 + \Delta_2) \Gamma_{20}$ 变化的谱线 (其中 $\Delta_3/\Gamma_{30} = 5, G_3/\Gamma_{30} = 1$ (实线), 0.5 (虚线), 0.2 (点线), 0 (点虚线))

$= 0.2$ (实线), 0.5 (虚线), 1 (点线) 和 2 (点虚线). 这里, 将无耦合场时的信号强度归一为 1. 图中表明当扫描耦合场频率使其通过共振位置时, NFWM 的信号受到抑制. 我们定义谱线中心凹陷的深度为 $F = [K(\omega_3 \rightarrow \infty) - K(\omega_3 = \Omega_3)] / K(\omega_3 \rightarrow \infty)$, 则可以得出 $F = 1 - [\Gamma_{20} \Gamma_{30} / (G_3^2 + \Gamma_{20} \Gamma_{30})]$, 图 5 (b) 给出了 F 随 $G_3^2/\Gamma_{20} \Gamma_{30}$ 变化的关系曲线. 凹陷的线宽 (FWHM) 为 $\delta\omega = 2(G_3 + \Gamma_{30})$, 当 ϵ_3 很小时 (满足条件 $G_3^2 \ll \Gamma_{20} \Gamma_{30}$), 凹陷线宽变为 $2\Gamma_{30}$.

当 $\Delta_1 + \Delta_2 \neq 0$ 时, 加入耦合场不仅能够抑制, 而且还能够增强 NFWM 的信号. 图 6 为不同的双光子共振失谐时, NFWM 信号强度随 Δ_3/Γ_{30} 的关系曲线. 其中 (a) $G_3/\Gamma_{30} = 5, \Gamma_{20}/\Gamma_{30} = 1$ ($\Delta_1 + \Delta_2) \Gamma_{20} = -3$ (实线), -5 (虚线), -7 (点线) 和 -10 (点虚线) (b) $G_3/\Gamma_{30} = 0.5, \Gamma_{20}/\Gamma_{30} = 1$ ($\Delta_1 + \Delta_2) \Gamma_{20} = 0$ (实线), -0.5 (虚线), -1 (点线) 和 -2 (点虚线). 首先考虑 G_3/Γ_{30} 很大时 (图 6 (a)) 的情况. 在缀饰态模型中, 当失谐量 $\Delta_1 + \Delta_2$ 很大时, 如果不加入耦合场 (即 $G_3 = 0$) 则 NFWM 信号非常微弱, 但是加入耦合场后, 当满足条件 $\Omega_1 + \Omega_2 + \lambda_-(\lambda_+) = \omega_1 + \omega_2$ 或 $\Delta_3 = [|G_3|^2 - (\Delta_1 + \Delta_2)^2] / (\Delta_1 + \Delta_2)$ 时, 强耦合场将引起其中一个缀饰态产生共振激发. 例如当 $G_3/\Gamma_{30} = 50$ 时, NFWM 信号在 $(\Delta_1 + \Delta_2)/\Gamma_{30} = -50$ 处被增强了 650 倍 (图 6 (a) 中的虚线).

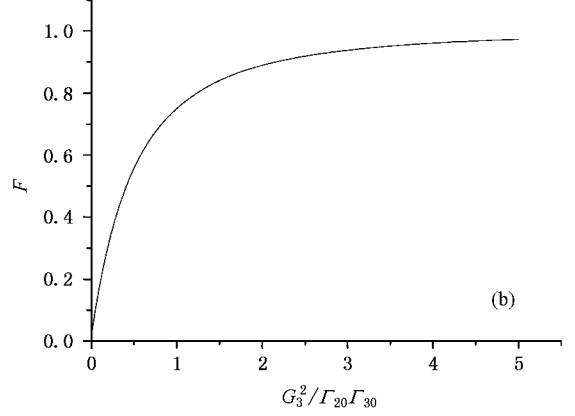
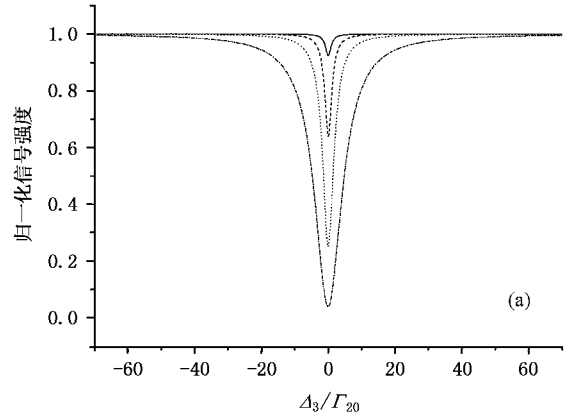


图 5 (a) 双光子共振 $\Delta_1 + \Delta_2 = 0$ 时 NFWM 信号强度随失谐量 Δ_3 的变化曲线 (其中 $\Gamma_{30}/\Gamma_{20} = 1, G_3/\Gamma_{30} = 0.2$ (实线), 0.5 (虚线), 1 (点线) 和 2 (点虚线)) (b) F 随 $G_3^2/\Gamma_{20} \Gamma_{30}$ 变化的关系曲线

现在, 我们考虑当耦合光场弱到不足以产生 NFWM 频谱 AT 分裂的情况, 令人感兴趣的是, 这时的 NFWM 信号依然可以获得增强 (如图 6 (b) 所示). 考虑条件 $|G_3|^2 \ll \Gamma_{20} \Gamma_{30}$, 根据 (7) 式, 可以得到

$$\rho_{10}(r) = -i \frac{G_1 G_2 (G_2^*) * e^{(k_1 + k_2 - k_2) r}}{(i\Delta_1 + \Gamma_{10}) \Gamma_{20} [(\Delta_1 + \Delta_2) + \Gamma_{20}]} \times \left(1 - \frac{|G_3|^2}{[(\Delta_1 + \Delta_2) + \Gamma_{20}] [(\Delta_1 + \Delta_2 + \Delta_3) + \Gamma_{30}]} \right), \quad (12)$$

该式的第一项对应的是双光子共振 NFWM, 第二项对应的是一个微扰链为 $\rho_{00}^{(0)} \rightarrow \rho_{10}^{(1)} \rightarrow \rho_{20}^{(2)} \rightarrow \rho_{30}^{(3)} \rightarrow \rho_{20}^{(4)} \rightarrow \rho_{10}^{(5)}$ 的三光子共振六波混频. 来自四波混频和六波混频的信号是不可区分的, 从而导致了它们之间的量子干涉. 由 (12) 式, 可以得到信号强度为

$$K(\Delta_3) \propto 1 - \frac{2 |G_3|^2 [\Gamma_{20} \Gamma_{30} - (\Delta_1 + \Delta_2)(\Delta_1 + \Delta_2 + \Delta_3)]}{[(\Delta_1 + \Delta_2)^2 + \Gamma_{20}^2] [(\Delta_1 + \Delta_2 + \Delta_3)^2 + \Gamma_{30}^2]}. \quad (13)$$

(13)式表明在双光子共振(即 $\Delta_1 + \Delta_2 = 0$)时, NFWM 谱线中出现了一个线宽为 $2\Gamma_{30}$ 的凹陷,并且当满足条件 $(\Delta_1 + \Delta_2 \mp (\Delta_1 + \Delta_2 + \Delta_3)) > \Gamma_{20}\Gamma_{30}$ 时, NFWM 信号强度可以得到增强.因此在弱耦合场条件下,信号的增强和抑制可以看做是由四波混频和六波混频间的量子干涉引起的.

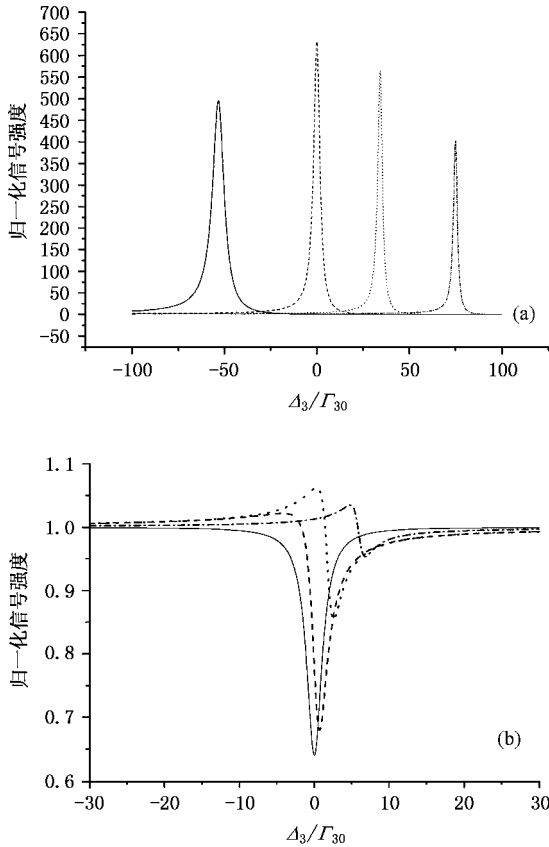


图 6 (a)不同的双光子共振失谐时的 Δ_3 -NFWM 信号强度关系曲线(其中 $G_3/\Gamma_{30} = 50, \Gamma_{20}/\Gamma_{30} = 1$ ($\Delta_1 + \Delta_2$) $\Gamma_{20} = -30$ (实线), -5 (虚线), -7 (点线)和 -10 (点虚线)) (b)不同的双光子共振失谐时的 Δ_3 -NFWM 信号强度关系曲线(其中 $G_3/\Gamma_{30} = 0.5, \Gamma_{20}/\Gamma_{30} = 1$ ($\Delta_1 + \Delta_2$) $\Gamma_{20} = 0$ (实线), -0.5 (虚线), -2 (点线)和 -6 (点虚线))

4. 结 论

至今为止, EIT 的研究绝大多数集中在两个方面. 第一方面是研究如何利用量子干涉来调制原子的线性光学效应, 它包括电磁感应透明、折射率的增加和光群速减慢等. 第二方面是考虑在三阶非线性效应中, 令其中的一束入射光足够强到可以产生透明或最大原子相干, 从而获得高的频率转换效率. 不

同于以前的研究, 我们是在三阶非线性效应中另加入一个耦合场, 并研究其产生的效应. 当耦合场弱到微扰理论可以成立时, 该现象对应于一个五阶非线性效应.

引入量子干涉的双光子共振 NFWM 为我们提供了一个有效的光谱学工具. 首先, 由于此方法涉及在级联四能级系统中的三光子共振激发, 因此, 用它研究高激发态具有极高的灵敏度. 其次, 当入射激光具有窄线宽时, 此技术是消多普勒的, 这是因为如果 ω_1 在 $|0\rangle$ 至 $|1\rangle$ 跃迁的多普勒线宽内, 则只有某一速度的原子能被激发而对信号有贡献. 为简便起见, 我们考虑 $|G_3|^2 \ll \Gamma_{20}\Gamma_{30}$ 时的情况. 在双光子共振 ($\Delta_1 + \Delta_2 = 0$) 时, NFWM 信号强度为

$$I(\omega_3) \propto \left(1 - \frac{\Gamma_{30}}{\Gamma_{20}}\right) \frac{|G_3|^2}{(\omega_3 - \Omega_3)^2 + \Gamma_{30}^2} \quad (14)$$

这样, 通过 ω_3 与 NFWM 信号的依赖关系, 可以直接得到共振频率 Ω_3 和弛豫速率 Γ_{30} . 我们的方法还可以用来直接测量高激发态 $|2\rangle$ 和 $|3\rangle$ 间的跃迁偶极矩矩阵元 μ_{32} , 如图 2 所示, 当满足条件 $G_3 \gg \Gamma_{20}\Gamma_{30}$ 时, 对于 $\Delta_3 = 0$ 的情况 NFWM 频谱的 AT 分裂可以表达为 $\Delta_{AT} \approx 2G_3$. 所以, 通过精确测出耦合光场的光斑尺寸和能量, 就可以根据 $G_3 = \mu_{32}\epsilon_3/\hbar$ 得到 μ_{32} . 即使耦合场很弱, 不足以产生明显的 AT 分裂, 我们依然可以测得跃迁偶极矩矩阵元 μ_{32} . 如图 5(a) 所示, 在 $\Delta_3 = 0$ 处, NFWM 频谱出现一个深度为 $1 - [\Gamma_{20}\Gamma_{30}/(G_3^2 + \Gamma_{20}\Gamma_{30})]$ 线宽为 $2(\Gamma_{30} + G_3^2/\Gamma_{20})$ 的凹陷. 其中 Γ_{20} 可以通过未加入耦合场时的双光子共振 NFWM 频谱直接获得, 因此 Γ_{30} 和 G_3 可以通过拟合 ω_3 与 NFWM 信号依赖关系的实验结果获得. 这种方法只适用于 $|G_3|^2 \ll \Gamma_{20}\Gamma_{30}$ 的情况, 因为如图 5(b) 所示, 当 $|G_3|^2/\Gamma_{20}\Gamma_{30} > 1$ 时, 凹陷深度将变得饱和.

传统上, 跃迁偶极矩矩阵元是通过测量荧光谱的强度和寿命而获得的, 这种方法不仅费时而且容易产生系统误差. 近来, Qi 和他的合作者^[11]提出在一个多普勒增宽的级联三能级系统中, 最上能级的荧光激发谱中的 AT 分裂可以作为测量跃迁偶极矩矩阵元的手段. 和他们的方法相比较, 我们的方法具有以下优点: 首先, 我们测量的信号是具有良好方向性的相干光. 其次, 在我们的方法中耦合场可以远低于饱和值, 因而可以研究具有很小跃迁偶极矩矩阵元的跃迁. 最后, 尤为重要是我们的方法可以测量能级 $|2\rangle$ — $|3\rangle$ 间由于能级 $|2\rangle$ 和 $|3\rangle$ 的寿命很长而难以

用荧光方法测量的跃迁偶极矩矩阵元,这是因为在光束 \mathcal{L}' 的作用下能级 $|2\rangle$ 跃迁回 $|1\rangle$,而 NFWM 信号来自 $|1\rangle \rightarrow |0\rangle$ 间的强耦合跃迁.

- [1] Xiao M *et al* 1995 *Phys. Rev. Lett.* **74** 666
 [2] Kasapi A *et al* 1995 *Phys. Rev. Lett.* **74** 2447
 [3] Zhang G Z *et al* 1993 *Phys. Rev. Lett.* **71** 3099
 [4] Jain M *et al* 1996 *Phys. Rev. Lett.* **77** 4326
 [5] Merriam A J *et al* 2000 *Phys. Rev. Lett.* **84** 5308
 [6] Harris A E and Sokolov A V 1998 *Phys. Rev. Lett.* **81** 2894
 [7] Li Y F *et al* 2003 *Acta. Phys. Sin.* **52** 547 (in Chinese) [李永放等 2003 物理学报 **52** 547]
 [8] Agarwal G S *et al* 1996 *Phys. Rev. Lett.* **77** 1039
 [9] Gao J Y *et al* 2000 *Phys. Rev. A* **61** 023401
 [10] Yan M *et al* 2001 *Phys. Rev. A* **64** 023807
 [11] Qi J *et al* 2002 *Phys. Rev. Lett.* **88** 173003
 [12] Jiang Y *et al* 1999 *Acta. Phys. Sin.* **48** 673 (in Chinese) [蒋雁等 1999 物理学报 **48** 673]
 [13] Mi X *et al* 1993 *Phys. Rev. A* **48** 3203
 [14] Yu Z *et al* 1997 *Phys. Rev. A* **55** 2334
 [15] Fu P, Jiang Q, Mi X and Yu Z 2002 *Phys. Rev. Lett.* **88** 113902
 [16] Sun J *et al* 2004 *Acta Phys. Sin.* **53** 450 (in Chinese) [孙江等 2004 物理学报 **53** 450]
 [17] Sun J *et al* 2004 *Chin. Phys. Lett.* **21** 306

Two-photon resonant nondegenerate four-wave mixing via quantum interference *

Sun Jiang Zuo Zhan-Chun Mi Xin Yu Zu-He Wu Ling-An Fu Pan-Ming

(Laboratory of Optical Physics, Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100080, China)

(Received 14 April 2004; revised manuscript received 8 June 2004)

Abstract

We study the quantum interference in two-photon resonant nondegenerate four-wave mixing (NFWM) in a dressed cascade four-level system in which the two upper levels are coupled by a strong laser field. We find that in the presence of a strong coupling field, two-photon resonant NFWM spectrum exhibits Autler-Townes splitting, which reflects the levels of the dressed states. It also leads to either suppression or enhancement of the NFWM signal. This scheme involves the resonant three-photon excitation, therefore, provides a new spectroscopic tool for studying highly excited atomic states with high sensitivity.

Keywords: four-wave mixing, quantum interference

PACC: 4265M, 2930

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant. Nos. 10174096, 10374113).