

# 阿秒极化拍的 V 型三能级对称二阶相干理论\*

甘琛利<sup>1)</sup> 张彦鹏<sup>2)</sup> 冯 宇<sup>2)</sup> 余孝军<sup>2)</sup> 汪 杰<sup>2)</sup>  
李创社<sup>2)</sup> 宋建平<sup>2)</sup> 卢克清<sup>3)</sup> 侯 洵<sup>2,3)</sup>

<sup>1)</sup> 西安市农业学校, 西安 710077)

<sup>2)</sup> 西安交通大学电子科学与技术系, 西安 710049)

<sup>3)</sup> 中国科学院西安光学精密机械研究所瞬态光学技术国家重点实验室, 西安 710068)

(2004 年 4 月 1 日收到, 2004 年 7 月 19 日收到修改稿)

基于两单光子过程的相位共轭二阶极化干涉, 从理论上研究了 V 型三能级系统在阿秒量级的对称和频极化拍频(SFPB), 考虑了抽运光束为窄带线宽或宽带线宽的情形, 发现测得的信号对任意带宽的马可夫随机光场的统计特征非常敏感, 其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, 仅取决于光学跃迁均匀增宽, 而且可以得到消除多普勒增宽的测量精度. 在窄带情形下, 场关联对 SFPB 信号影响很弱. 在宽带情形下, SFPB 信号表现出共振-非共振交叉关联. SFPB 作为一种阿秒超快调制过程, 从理论上说它可以扩展到任何和频能级系统.

关键词: 阿秒, 和频, 极化拍, 二阶相干

PACC: 4265, 3280

## 1. 引 言

噪声光提供了一种可用于探测原子和分子的动力学过程的独特技术手段, 其兼有传统的频域窄带光谱和时域飞秒超短脉冲光谱的特点. 而这三种方法显著的区别在于拥有不同的激发源. 连续光波技术利用窄带激光源. 这种激发源的单频特性能够被直接用于探测样品的频谱特性. 其缺点是全部时间分辨率特征被丢失, 即不能进行直接的时间测量. 而时间信息必须通过频谱信息的分析来获得. 超短脉冲技术和连续光波技术形成强烈的反差, 因为在超短脉冲技术中<sup>[1,2]</sup>, 在激光光源的频谱中有许多频率成分出现, 必须通过锁相的方式促成这些频率成分产生一个短脉冲. 即所有的频率成分之间必须有精确的位相关系, 超短脉冲才能完美的应用于直接的时间测量. 但负面的结果是精确分辨的频谱信息必须通过时间信息的分析来确定. 而锁相的要求造成直接探测样品频谱能力的丧失. (粗略的光谱探测是可能的, 因为真实的超短脉冲激光并不具有无限宽

的频谱范围) 这些频谱信息通常以量子拍频的方式出现. 在有很多振荡出现时, 该方式可以变得十分复杂. 噪声光具有和超短脉冲激光类似的频谱, 重要的区别是它是完全非锁相的<sup>[3-5]</sup>. 即每一频率成分的位相是互相独立的. 因此每一频率成分充当一个独立的连续光波源. 这表明噪声光来自单频连续光波源的无关联叠加. 这种随机叠加形成了拥有时间随机函数光场. 从本质上讲噪声光是色锁的, 因为它的每一种频率成分都是自相关联的, 而该频率成分和其他频率成分是不关联的. 色锁使噪声光比起超短脉冲激光具有更直接的探测精细频谱特征的能力(每一量子态的探测, 是独立的, 不相干的), 比连续光波源具有更直接的探测时间特征的能力. 其缺点是无须进行频谱特征还是时间特征的直接探测都离不开大量的数据分析. 因此从某种意义上说, 噪声光是一种介于连续光波源和超短脉冲激光之间的中间体<sup>[6-11]</sup>.

本文首次获得了在相位共轭几何配置情形下, 不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、V 型三能级阿秒量级的对称和

\* 国家自然科学基金(批准号 60308002), 全国博士学位论文作者专项资金(批准号 200339)资助的课题.

频极化拍频(SFPB)的二阶马可夫随机关联场在阿秒量级的解析近似解.

## 2. 基本原理

SFPB 是一种极化拍频现象,起源于两个单光子过程之间的干涉,由时延关联涨落孪生光场在多普勒增宽系统中同时感生.我们来考虑一个 V 型三能级系统.在其能级位形图(如图 1)中,  $|0\rangle$  为基态,  $|1\rangle, |2\rangle$  为激发态.基态  $|0\rangle$  和激发态  $|1\rangle$  之间,基态  $|0\rangle$  和激发态  $|2\rangle$  之间发生偶极跃迁,共振频率为  $\Omega_1$  和  $\Omega_2$ ,而激发态  $|1\rangle$  与激发态  $|2\rangle$  之间为偶极禁戒.抽运光的相位共轭几何配置如图 2 所示.在这个 V 型三能级系统中进行双频时延四波混频(FWM)实验.光束 1 和 2 分别由两个频率成分  $\omega_1, \omega_2$  组成,光束 3 频率为  $\omega_1$ .设想使得  $\omega_1 \approx \Omega_1, \omega_3 \approx \Omega_1, \omega_2 \approx \Omega_2$ ,因此  $\omega_1, \omega_3$  和  $\omega_2$  将会驱使从  $|0\rangle$  到  $|1\rangle$  态,  $|0\rangle$  到  $|2\rangle$  态的跃迁.这个双频时延 FWM 包含两个过程.第一,光束 1 和 2 的  $\omega_1$  频率成分引起  $|0\rangle$  和  $|1\rangle$  态的布居栅,由具有频率为  $\omega_1$  的光束 3 进行探测.这就是单光子共振简并 FWM(DFWM),信号光(光束 4)具有的频率为  $\omega_1$ .第二,光束 1 和 2 的  $\omega_2$  频率成分引起  $|0\rangle$  和  $|2\rangle$  态的布居栅,由光束 3 进行探测.这是单光子共振非简并 FWM(NDFWM),信号频率也等于  $\omega_1$ .

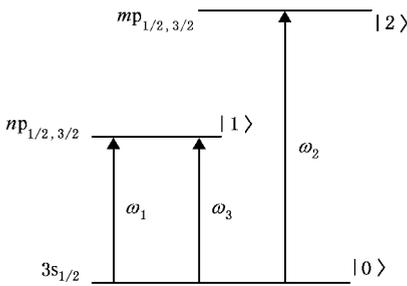


图 1 钠原子和频极化拍频的能级位形图

光束 3 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 为准单色光,故可建立光束 1, 2, 3 的复电场如下:

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

$$E_{p2} = A'_1(\mathbf{r}, t) \exp(-i\omega_1 t) + A_2(\mathbf{r}, t) \exp(-i\omega_2 t)$$

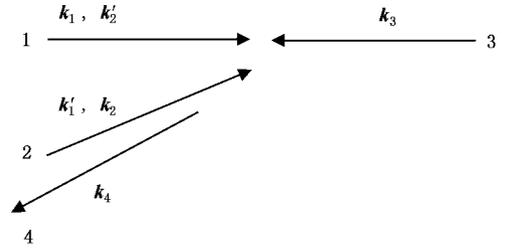


图 2 和频极化拍频的相位共轭几何配置

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

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

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扰动因子,阿秒和频极化拍通过 Michelson 干涉仪高精度(小于 500as)延迟器光束 1 中的  $\omega_2$  和光束 2 中的  $\omega_1$  均被延迟时间  $\tau$  (而在飞秒差频极化拍中双频光束 2 相对于双频光束 1 被延迟  $\tau$ ).

根据光与 V 型三能级系统相互作用的物理机理,可得如下微扰链:

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

式中  $\rho_{jk}^{(i)}$  为  $i$  阶密度矩阵元,微扰链 (I) — (IV) 和 (V) — (VI) 分别是与基态布居栅和激发态  $|1\rangle$  布居栅对应的单光子 DFWM 过程以及与基态布居栅和激发态  $|2\rangle$  对应的单光子 NDFWM 过程.

一般地, SFPB 信号强度被认为由以下五种情形贡献: 1) 共振-共振, 非共振-非共振或者共振-非共振三种类型的与  $\tau$  无关的自关联项; 2) 单纯的共振与  $\tau$  有关的自关联项; 3) 单纯的非共振与  $\tau$  有关的自关联项; 4) 共振-非共振的与  $\tau$  有关的自关联项; 5) 共振-共振, 非共振-非共振或者共振-非共振三种类型的与  $\tau$  有关的交叉关联项. 由于超短飞秒脉冲激发的零差探测, 非谐波影响被取消(源于相位信息

的丢失)<sup>3-5]</sup>. 而且不像外差法信号, 所有使得零差信号复杂化的交叉项不出现. 因此必须引入另一个(谐波)拉曼共振来区分直接的和级联的情形. 相反地, 在噪声光干涉法测量实验中, 大量的谐波共振产生了新的频率成分和交叉项, 然而不能区分直接的和级联的情形. 在非均匀性缺乏的情形下, 对角谐波的出现让这些路径变得可区分.

### 3. SFPB 的二阶统计关联

对于相位匹配的宏观系统, SFPB 信号由来自一个原子的  $P^{(3)}$  (拥有时间变量  $t$ ) 与来自其他地方的另一个原子的  $(P^{(3)})^*$  (拥有时间变量  $s$ ) 的乘积得到(所有这样的原子对的总和)<sup>3-11]</sup>. 在整个任意变量的随机过程中 SFPB 拍频信号正比于  $P^{(3)}$  绝对值平方的平均值即  $|P^{(3)}|^2$ , 该过程在相位共轭几何配置中仅与四阶和二阶相干函数有关, 若采用自衍射几何配置, 超快调制频谱将与六阶相干函数有关.

#### 3.1. 二阶随机平均

在这种情况下, 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, 而我们只关心与  $\tau$  有关的信号, SFPB 信号强度可以用极化随机平均的绝对值平方近似描述  $I(\tau) \propto |P^{(3)}|^2$ , 式中仅包含二阶相干函数  $u_i(t)$ <sup>6]</sup>. 若噪声光为洛伦兹线型, 则

$$u_i(t_1)u_i^*(t_2) = \exp(-\alpha_i |t_1 - t_2|) \quad (i = 1, 2). \quad (4)$$

式中, 噪声光的自相关衰减量  $\alpha_i = \frac{1}{2} \delta\omega_i, \delta\omega_i$  为  $\omega_i$  的激光线宽. 由激光线型决定的二阶相干函数的形式如(4)式, 是三种不同马可夫随机模型<sup>[7-11]</sup>的普遍特征. 把(4)式代入极化强度的随机平均中可得

$$P^{(3)} = P^{(I)} + P^{(II)} + P^{(III)} + P^{(IV)} + P^{(V)} + P^{(VI)},$$

此处

$$P^{(I)} = S_1(\mathbf{r}) \exp[-i(\omega_3 t + \omega_1 \tau)] \int_{-\infty}^{+\infty} d\nu u(\nu) \times \int_0^\infty dt_3 \int_0^\infty dt_2 \int_0^\infty dt_1 \exp[-i\theta_{II}(\nu)] \times H_3(t_3) H_2(t_2) H_1(t_1) \exp(-\alpha_1 |t_1 - \tau|), \quad (5)$$

$$P^{(II)} = S_1(\mathbf{r}) \exp[-i(\omega_3 t + \omega_1 \tau)] \int_{-\infty}^{+\infty} d\nu u(\nu)$$

$$\times \int_0^\infty dt_3 \int_0^\infty dt_2 \int_0^\infty dt_1 \exp[-i\theta_{II}(\nu)] \times H_3(t_3) H_2(t_2) H_1(t_1) \exp(-\alpha_1 |t_1 + \tau|), \quad (6)$$

$$P^{(III)} = S_1(\mathbf{r}) \exp[-i(\omega_3 t + \omega_1 \tau)] \int_{-\infty}^{+\infty} d\nu u(\nu) \times \int_0^\infty dt_3 \int_0^\infty dt_2 \int_0^\infty dt_1 \exp[-i\theta_{II}(\nu)] \times H_3(t_3) H_2(t_2) H_1(t_1) \exp(-\alpha_1 |t_1 - \tau|), \quad (7)$$

$$P^{(IV)} = S_1(\mathbf{r}) \exp[-i(\omega_3 t + \omega_1 \tau)] \int_{-\infty}^{+\infty} d\nu u(\nu) \times \int_0^\infty dt_3 \int_0^\infty dt_2 \int_0^\infty dt_1 \exp[-i\theta_{II}(\nu)] \times H_3(t_3) H_2(t_2) H_1(t_1) \exp(-\alpha_1 |t_1 + \tau|), \quad (8)$$

$$P^{(V)} = S_2(\mathbf{r}) \exp[-i(\omega_3 t - \omega_1 \tau)] \int_{-\infty}^{+\infty} d\nu u(\nu) \times \int_0^\infty dt_3 \int_0^\infty dt_2 \int_0^\infty dt_1 \exp[-i\theta_{III}(\nu)] \times H_3(t_3) H_2(t_2) H_4(t_1) \exp(-\alpha_2 |t_1 + \tau|), \quad (9)$$

$$P^{(VI)} = S_2(\mathbf{r}) \exp[-i(\omega_3 t - \omega_2 \tau)] \int_{-\infty}^{+\infty} d\nu u(\nu) \times \int_0^\infty dt_3 \int_0^\infty dt_2 \int_0^\infty dt_1 \exp[-i\theta_{III}(\nu)] \times H_3(t_3) H_2(t_2) H_4(t_1) \exp(-\alpha_2 |t_1 - \tau|). \quad (10)$$

这里  $H_1(t) = \exp[-(\Gamma_{10} + i\Delta_1)t]$ ,  $H_2(t) = \exp(-\Gamma_0 t)$ ,  $H_3(t) = \exp[-(\Gamma_{10} + i\Delta_3)t]$ ,  $H_4(t) = \exp[-(\Gamma_{20} + i\Delta_2)t]$ ,  $H_5(t) = \exp(-\Gamma_1 t)$ ;  $\mu_1, \mu_2$  分别为  $|0\rangle$  到  $|1\rangle$ ,  $|0\rangle$  到  $|2\rangle$  的跃迁偶极矩阵元,  $\Gamma_0, \Gamma_1, \Gamma_2$  分别为  $|0\rangle, |1\rangle, |2\rangle$  态的纵向弛豫率,  $\Gamma_{10}, \Gamma_{20}$  为  $|0\rangle$  到  $|1\rangle, |0\rangle$  到  $|2\rangle$  的横向弛豫率,  $\Delta_1 = \Omega_1 - \omega_1, \Delta_2 = \Omega_2 - \omega_2, \Delta_3 = \Omega_1 - \omega_3$ ;

$$S_1(\mathbf{r}) = -i\hbar N \left(\frac{\mu_1}{\hbar}\right)^4 \epsilon_1(\epsilon'_1)^* \epsilon_3 \times \exp[i(\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}'_1 + \mathbf{k}_3) \cdot \mathbf{r}],$$

$$S_2(\mathbf{r}) = \frac{-iN\mu_1^2 \mu_2^2}{\hbar^3} \epsilon'_2(\epsilon_2)^* \epsilon_1 \times \exp[i(\mathbf{k}'_2 - \mathbf{k}_2 + \mathbf{k}_3) \cdot \mathbf{r}].$$

我们在多普勒增宽系统中讨论 SFPB. 对(5)–(10)式中的  $t_1, t_2, t_3$  积分可以获得:

$$1) \tau > 0$$

$$\begin{aligned}
P^{(3)} = & S_1(\mathbf{r}) \exp(-i\omega_3 t) \int_{-\infty}^{+\infty} d\nu u(\nu) \frac{L_1(\nu) + L_3(\nu)}{\Gamma_{10} - \alpha_1 + \mathfrak{I}(\Delta_1 + \mathbf{k}_1 \cdot \nu)} \\
& \times \left\{ \frac{[2\Gamma_{10} + \mathfrak{I}(\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}'_1) \cdot \nu] \exp(-\alpha_1 |\tau| - i\omega_1 \tau)}{\Gamma_{10} + \alpha_1 - \mathfrak{I}(\Delta_1 + \mathbf{k}'_1 \cdot \nu)} - \frac{2\alpha_1 \exp[-\Gamma_{10} |\tau| - \mathfrak{I}(\Omega_1 + \mathbf{k}_1 \cdot \nu) \tau]}{\Gamma_{10} + \alpha_1 + \mathfrak{I}(\Delta_1 + \mathbf{k}_1 \cdot \nu)} \right\} \\
& + S_2(\mathbf{r}) \exp(-i\omega_3 t) \int_{-\infty}^{+\infty} d\nu u(\nu) L_2(\nu) \left\{ \frac{[2\Gamma_{20} + \mathfrak{I}(\mathbf{k}'_2 - \mathbf{k}_2) \cdot \nu] \exp(-\alpha_2 |\tau| + i\omega_2 \tau)}{[\Gamma_{20} + \alpha_2 + \mathfrak{I}(\Delta_2 + \mathbf{k}'_2 \cdot \nu)] [\Gamma_{20} - \alpha_2 - \mathfrak{I}(\Delta_2 + \mathbf{k}_2 \cdot \nu)]} \right. \\
& \left. - \frac{2\alpha_2 \exp[-\Gamma_{20} |\tau| + \mathfrak{I}(\Omega_2 + \mathbf{k}_2 \cdot \nu) \tau]}{[\Gamma_{20} - \mathfrak{I}(\Delta_2 + \mathbf{k}_2 \cdot \nu)]^2 - \alpha_2^2} \right\}, \quad (11)
\end{aligned}$$

2)  $\tau < 0$

$$\begin{aligned}
P^{(3)} = & S_1(\mathbf{r}) \exp(-i\omega_3 t) \int_{-\infty}^{+\infty} d\nu u(\nu) \frac{L_1(\nu) + L_3(\nu)}{\Gamma_{10} - \alpha_1 - \mathfrak{I}(\Delta_1 + \mathbf{k}'_1 \cdot \nu)} \\
& \times \left\{ \frac{[2\Gamma_{10} + \mathfrak{I}(\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}'_1) \cdot \nu] \exp(-\alpha_1 |\tau| - i\omega_1 \tau)}{\Gamma_{10} + \alpha_1 + \mathfrak{I}(\Delta_1 + \mathbf{k}_1 \cdot \nu)} - \frac{2\alpha_1 \exp[-\Gamma_{10} |\tau| - \mathfrak{I}(\Omega_1 + \mathbf{k}'_1 \cdot \nu) \tau]}{\Gamma_{10} + \alpha_1 - \mathfrak{I}(\Delta_1 + \mathbf{k}'_1 \cdot \nu)} \right\} \\
& + S_2(\mathbf{r}) \exp(-i\omega_3 t) \int_{-\infty}^{+\infty} d\nu u(\nu) L_2(\nu) \left\{ \frac{[2\Gamma_{20} + \mathfrak{I}(\mathbf{k}'_2 - \mathbf{k}_2) \cdot \nu] \exp(-\alpha_2 |\tau| + i\omega_2 \tau)}{[\Gamma_{20} - \alpha_2 + \mathfrak{I}(\Delta_2 + \mathbf{k}'_2 \cdot \nu)] [\Gamma_{20} + \alpha_2 - \mathfrak{I}(\Delta_2 + \mathbf{k}_2 \cdot \nu)]} \right. \\
& \left. - \frac{2\alpha_2 \exp[-\Gamma_{20} |\tau| + \mathfrak{I}(\Omega_2 + \mathbf{k}'_2 \cdot \nu) \tau]}{[\Gamma_{20} + \mathfrak{I}(\Delta_2 + \mathbf{k}'_2 \cdot \nu)]^2 - \alpha_2^2} \right\}. \quad (12)
\end{aligned}$$

式中

$$L_1(\nu) = \frac{1}{[\Gamma_0 + \mathfrak{I}(\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}'_1) \cdot \nu] \{ \Gamma_{10} + [\Delta_3 + (\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}'_1 + \mathbf{k}_3) \cdot \nu] \}}, \quad (13)$$

$$L_2(\nu) = \frac{1}{[\Gamma_0 + \mathfrak{I}(\mathbf{k}'_2 - \mathbf{k}_2) \cdot \nu] \{ \Gamma_{20} + [\Delta_3 + (\mathbf{k}'_2 - \mathbf{k}_2 + \mathbf{k}_3) \cdot \nu] \}}, \quad (14)$$

$$L_3(\nu) = \frac{1}{[\Gamma_1 + \mathfrak{I}(\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}'_1) \cdot \nu] \{ \Gamma_{10} + [\Delta_3 + (\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}'_1 + \mathbf{k}_3) \cdot \nu] \}}. \quad (15)$$

一般地, 宽带单光子共振 DFWM 和 NDFWM 的时间行为是复杂的, 关于  $\tau = 0$  是不平衡的. 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, 这种行为变得简化了. 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

$$\begin{aligned}
P^{(3)} = & S_1(\mathbf{r}) \exp(-i\omega_3 t) [B_1 \exp(-\alpha_1 |\tau| - i\omega_1 \tau) \\
& + \eta B_2 \exp(-\alpha_2 |\tau| - i\Delta \mathbf{k} \cdot \mathbf{r} + \omega_2 \tau)]. \quad (16)
\end{aligned}$$

式中

$$\begin{aligned}
B_1 = & \int_{-\infty}^{+\infty} d\nu u(\nu) \\
& \times \frac{[2\Gamma_{10} + \mathfrak{I}(\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}'_1) \cdot \nu] [L_1(\nu) + L_3(\nu)]}{[\Gamma_{10} + \mathfrak{I}(\Delta_1 + \mathbf{k}_1 \cdot \nu)] [\Gamma_{10} - \mathfrak{I}(\Delta_1 + \mathbf{k}'_1 \cdot \nu)]}, \quad (17)
\end{aligned}$$

$$B_2 = \int_{-\infty}^{+\infty} d\nu u(\nu)$$

$$\begin{aligned}
& \times \frac{[2\Gamma_{20} + \mathfrak{I}(\mathbf{k}'_2 - \mathbf{k}_2) \cdot \nu] L_2(\nu)}{[\Gamma_{20} + \mathfrak{I}(\Delta_2 + \mathbf{k}'_2 \cdot \nu)] [\Gamma_{20} - \mathfrak{I}(\Delta_2 + \mathbf{k}_2 \cdot \nu)]}. \quad (18)
\end{aligned}$$

这里, NDFWM 和 DFWM 过程的 Rabi 频率之比

$$\eta = \frac{\mu_2^2}{\mu_1^2} \left[ \frac{\varepsilon'_2(\varepsilon_2)^*}{\varepsilon_1(\varepsilon'_1)^*} \right];$$

空间调制因子  $\Delta \mathbf{k} = (\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}'_1) - (\mathbf{k}'_2 - \mathbf{k}_2)$ ;  $B_i$ ,  $\eta$ ,  $B_1$ ,  $B_2$  分别为与  $\tau$  无关的参数,  $B_i$  主要和激光线宽和跃迁弛豫率有关.

在典型的四波混频实验中, 光束 1 和光束 2 的夹角很小并且光束 3 沿着光束 1 的相反方向传播. 因此, 恰当的做出下列近似:  $\mathbf{k}_3 \approx -\mathbf{k}_3 z$ ,  $\mathbf{k}_1 \approx \mathbf{k}_1 z$ ,  $\mathbf{k}'_1 \approx \mathbf{k}_1 z$ ,  $\mathbf{k}_2 \approx \mathbf{k}_2 z$  和  $\mathbf{k}'_2 \approx \mathbf{k}_2 z$ . 按照 (13), (15) 和 (17) 式, 原子和三束激光同时发生作用的条件是  $\Delta_1 + \mathbf{k}_1 \cdot \nu \approx 0$ ,  $\Delta_1 + \mathbf{k}'_1 \cdot \nu \approx 0$ ,  $\Delta_1 + (\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}'_1 + \mathbf{k}_3) \cdot \nu = \Delta_1 - \mathbf{k}'_1 \cdot \nu \approx 0$ . 因为  $\mathbf{k}_1 \approx \mathbf{k}'_1$ , 只有那些速度满足  $\mathbf{k}_1 \cdot \nu \approx 0$  的原子才对共扼信号的产生有贡献. 因此, 作为饱和和吸收光谱情形, 消除多普勒增宽的简并四波混频光谱峰值将出现在  $\Delta_1 = 0$  处. 然后保持光束

3 的频率  $\omega_1$  不变, 利用孪生光束 1 和 2 中的  $\omega_2$  频率成分, 做非简并四波混频实验<sup>[6-11]</sup>. 因为只有那些速度满足  $k_1 \cdot v \approx 0$  的原子团才和光束 3 发生相互作用, 由 (14) 和 (18) 式可知光束 1 和 2 与该原子团发生相互作用的条件是  $\Delta_2 = 0$ . 我们再次强调的是非简并四波混频频谱是消多普勒效应的, 因为仅有那些具有特定速度的原子才对非简并四波混频信号有贡献. 上面的观点在多普勒增宽极限情形下也是适用的. 正如我们在后面讨论的 ((22) 式的第一项或第二项) 在 DFWM 或 NDFWM 过程, 消多普勒线宽 (四波混频光谱) 分别近似等于  $2\Gamma_{10}^a$  和  $2\Gamma_{20}^a$ . 在忽略多普勒效应时, 有

$$B_1 \approx \frac{2\Gamma_{10}(\Gamma_0 + \Gamma_1)}{(\Gamma_{10} + i\Delta_3)(\Gamma_{10}^2 + \Delta_1^2)\Gamma_0\Gamma_1},$$

$$B_2 \approx \frac{2\Gamma_{20}}{(\Gamma_{20} + i\Delta_3)(\Gamma_{20}^2 + \Delta_2^2)\Gamma_0}.$$

依照 (16) 式和  $\tau$  有关的 SFPB 信号强度 (在二阶随机关联  $|P^{(3)}|^2$  中, 和  $\tau$  无关的 SFPB 不存在) 等于

$$\begin{aligned} & \langle (\tau, \mathbf{r}) \rangle \propto |P^{(3)}|^2 \propto |B_1|^2 \exp(-2\alpha_1|\tau|) \\ & + |\eta B_2|^2 \exp(-2\alpha_2|\tau|) + \exp(-\alpha_1|\tau| - \alpha_2|\tau|) \\ & \times \{B_1^* \eta B_2 \exp[-i(\Delta \mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - (\omega_2 + \omega_1)\tau)] \\ & + B_1 \eta^* B_2^* \exp[i(\Delta \mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - (\omega_2 + \omega_1)\tau)]\}. \end{aligned} \quad (19)$$

上式表明了窄带情形下, 无论  $\tau > 0$  还是  $\tau < 0$ , SFPB 信号呈现阻尼振荡, 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由激光线宽决定 (例如  $\pi(\alpha_1 + \alpha_2)$ ). 能级和  $\Omega_2 + \Omega_1$  的测量精度取决于把  $\omega_1$  和  $\omega_2$  分别调谐到  $\Omega_1$  和  $\Omega_2$  的好坏. 单光子共振 DFWM 光谱能够在  $\Delta_3 = 0$  提供一个消除多普勒增宽的峰值频谱<sup>[6-11]</sup>. 当  $\omega_3$  被调谐到多普勒轮廓的中心时, 就像上面所讨论的,  $\omega_2$  也能够被调谐到  $\Omega_2$ , 得到消除多普勒增宽的精度.

然而在 (11) (12) 式中, 当激光线宽和跃迁的均匀线宽可比时, 单光子共振条件 (因子  $\exp(-\Gamma_{10} \times |\tau| - i\Omega_1 \tau)$  和  $\exp(-\Gamma_{20} |\tau| + i\Omega_2 \tau)$ ) 分别反映了单光子相干共振 DFWM 和 NDFWM 的自由演化) 变得重要. 当激光源为宽带时,  $\alpha_1 \gg \Gamma_{10}$ ,  $\alpha_2 \gg \Gamma_{20}$  (即非均匀增宽占优势情形), SFPB 拍频信号很快上升到最大值, 然后随着时间常数衰减的行为由原子系统横向弛豫时间决定. 虽然 SFPB 信号调制通常是复杂的, 但是对 (11) (12) 式做信号末端近似

$\alpha_1 |\tau| \gg 1$ ,  $\alpha_2 |\tau| \gg 1$  后可得

$$\begin{aligned} & \langle (\tau, \mathbf{r}) \rangle \propto |P^{(3)}|^2 \propto |B_3|^2 \exp(-2\Gamma_{10}|\tau|) \\ & + |\eta B_4|^2 \exp(-2\Gamma_{20}|\tau|) + \exp(-\Gamma_{10}|\tau| - \Gamma_{20}|\tau|) \\ & \times \{B_3^* \eta B_4 \exp[-i(\Delta \mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - (\Omega_2 + \Omega_1)\tau)] \\ & + B_3 \eta^* B_4^* \exp[i(\Delta \mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - (\Omega_2 + \Omega_1)\tau)]\}. \end{aligned} \quad (20)$$

进一步简化, 忽略多普勒效应, 可得

$$B_3 \approx \frac{2\alpha_1(\Gamma_0 + \Gamma_1)}{(\Gamma_{10} + i\Delta_3)(\alpha_1^2 + \Delta_1^2)\Gamma_0\Gamma_1},$$

$$B_4 \approx \frac{2\alpha_2}{(\Gamma_{20} + i\Delta_3)(\alpha_2^2 + \Delta_2^2)\Gamma_0}.$$

根据 (20) 式, SFPB 信号呈现阻尼振荡, 调制频率为  $\Omega_2 + \Omega_1$ , 衰变率为  $\Gamma_{10} + \Gamma_{20}$ . 因此对直接响应于和频 V 型三能级系统共振频率的调制频率的测量可近似得到  $\pi(\Gamma_{10} + \Gamma_{20})$  的精度.

### 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, 我们用另一种方法来分析总极化强度. 在多普勒增宽极限情形下 (即  $k_3 u \rightarrow \infty$ ) 我们把 (4) 式代入 (5) (10) 式, 可得三阶极化强度的随机平均  $P^{(3)} = P^{(I)} + P^{(III)} + P^{(V)}$ . 因为  $\delta$  函数的特性, 当  $t_1, t_3 > 0$  时, 有  $P^{(II)} = P^{(IV)} = P^{(VI)} = 0$ . 首先考虑在激光线宽远小于跃迁的均匀线宽情形 ( $\alpha_1 \ll \Gamma_{10}^a$ ,  $\alpha_2 \ll \Gamma_{20}^a$ ), 在均匀增宽占优势极限条件下, 做信号末端近似 ( $\Gamma_{10}^a |\tau| \gg 1$ ,  $\Gamma_{20}^a |\tau| \gg 1$ ) 后, 无论  $\tau > 0$  还是  $\tau < 0$  我们有

$$\begin{aligned} P^{(3)} & = \frac{2\sqrt{\pi}}{k_3 u} S_1(\mathbf{r}) \exp(-i\omega_3 t) \\ & \times \left[ \frac{\exp(-\alpha_1|\tau| - i\omega_1 \tau)}{(\Gamma_{10}^a + i\Delta_1^a)} \left( \frac{1}{\Gamma_0} + \frac{1}{\Gamma_1} \right) \right. \\ & \left. + \frac{\eta \exp(-\alpha_2|\tau| - i\Delta \mathbf{k} \cdot \mathbf{r} + i\omega_2 \tau)}{(\Gamma_{20}^a + i\Delta_2^a)\Gamma_0} \right]. \end{aligned} \quad (21)$$

这里  $\Gamma_{10}^a = \Gamma_{10} + \xi_1 \Gamma_{10}$ ,  $\Delta_1^a = \Delta_1 + \xi_1 \Delta_3$ ,  $\Gamma_{20}^a = \Gamma_{20} + \xi_2 \Gamma_{10}$ , 和  $\Delta_2^a = \Delta_2 + \xi_2 \Delta_3$ . (21) 式表明对于 DFWM 激光源频率  $\omega_1$ , DFWM 频谱在  $\Delta_1 = 0$  有一个线宽  $2\Gamma_{10}^a$ . 然后保持光束 3 的频率  $\omega_1$  不变, 利用孪生光束 1 和 2 中的  $\omega_2$  频率成分, NDFWM 信号强度峰值将出现在  $\Delta_2 = 0$  处, 带有线宽  $2\Gamma_{20}^a$  (图 3). 因此, 虽然在孪生光束 1 和 2 几乎是单色时, 对 SFPB 信号的调制频率的测量是高精度的, 但是在多普勒增宽系统中, SFPB 的整体测量精度由光学跃迁的均匀线宽决定.

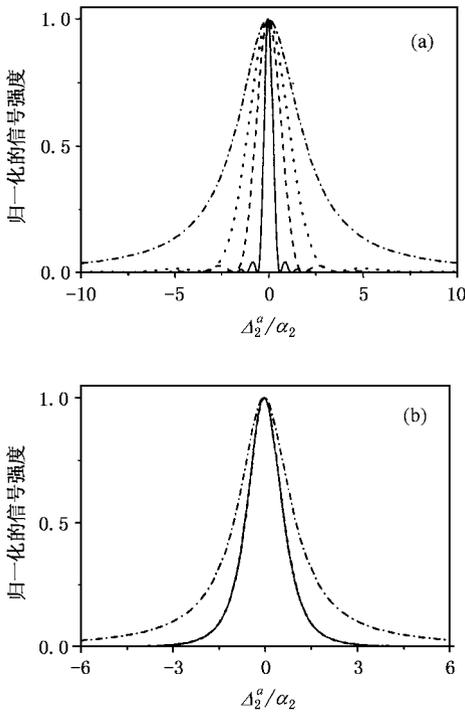


图 3 单光子 NDFWM 信号强度与  $\Delta_2^a/\alpha_2$  的归一化关系曲线  
 (a)  $\alpha_2/\Gamma_{20}^a = 1, \Gamma_0/\Gamma_{10}^a = 10^{-4}, \Gamma_1/\Gamma_{10}^a = 3.35 \times 10^{-4}$ ; (b)  $\alpha_2/\Gamma_{20}^a = 100, \Gamma_0/\Gamma_{10}^a = 10^{-4}, \Gamma_1/\Gamma_{10}^a = 3.35 \times 10^{-4}, \Gamma_{20}^a \tau = \alpha$  (短线-点曲线), 1.5 (点曲线), 3 (短线曲线), 10 (实线曲线)

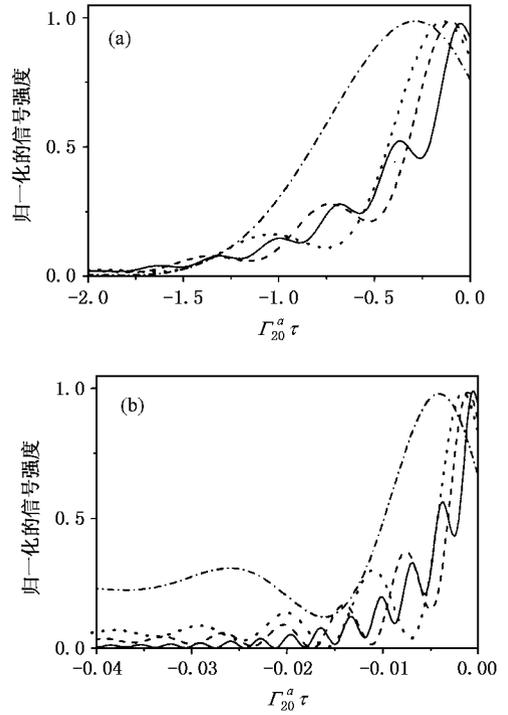


图 4 单光子 NDFWM 信号强度与  $\Gamma_{20}^a \tau$  的归一化关系曲线  
 (a)  $\alpha_2/\Gamma_{20}^a = 1, \Gamma_0/\Gamma_{10}^a = 10^{-4}$  (b)  $\alpha_2/\Gamma_{20}^a = 100, \Gamma_0/\Gamma_{10}^a = 10^{-4}, \Delta_2^a/\alpha_2 = \alpha$  (短线-点曲线), 7 (点曲线), 10 (短线曲线), 20 (实线曲线)

SFPB 信号强度的二阶关联为

$$\begin{aligned}
 \mathcal{K}(\tau, \mathbf{r}) \propto |P^{(3)}|^2 \propto & \frac{(\Gamma_0 + \Gamma_1) \exp(-2\alpha_1 |\tau|)}{[(\Gamma_{10}^a)^2 + (\Delta_1^a)^2] \Gamma_0^2 \Gamma_1^2} \\
 & + \frac{|\eta|^2 \exp(-2\alpha_2 |\tau|)}{[(\Gamma_{20}^a)^2 + (\Delta_2^a)^2] \Gamma_0^2} + \exp(-\alpha_1 |\tau| - \alpha_2 |\tau|) \\
 & \times \{B_5 \exp[-i(\Delta \mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - (\omega_2 + \omega_1)\tau)] \\
 & + B_5^* \exp[i(\Delta \mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - (\omega_2 + \omega_1)\tau)]\}. \quad (22)
 \end{aligned}$$

式中  $B_5 = \frac{\eta(\Gamma_0 + \Gamma_1)}{(\Gamma_{10}^a - i\Delta_1^a)(\Gamma_{20}^a + i\Delta_2^a)\Gamma_0^2 \Gamma_1^2}$ .

因此单光子 DFWM 信号((22)式的第一项)在  $\Delta_1^a = 0$  线宽为  $2\Gamma_{10}^a$  处共振. 同样地, 单光子 NDFWM 信号((22)式的第二项)在  $\Delta_2^a = 0$  线宽为  $2\Gamma_{20}^a$  处共振(图 4 和图 5). 我们再次强调的是在窄带激光情形下 SFPB 是消除多普勒增宽精度的光谱. 这种结果和(19)式是一致的, 二阶相关 SFPB 信号强度也随着  $\tau$  的变化以频率  $\omega_2 + \omega_1$  进行调制. V 型三能级系统阿秒和频极化拍信号的调制周期为  $2\pi/|\Omega_2 + \Omega_1| = 982.837 \text{ as}$ , 调制频率为  $\Omega_2 + \Omega_1 = 6.39291 \times 10^{15} \text{ s}^{-1}$ (图 6)它相应于  $3S_{1/2} - nP_{1/2}, 3S_{1/2} - nP_{3/2}$  两个共振跃迁之间的拍频.

现在我们考虑当激光源为宽带即  $\alpha_1 \gg \Gamma_{10}, \alpha_2 \gg \Gamma_{20}$  时二阶 SFPB 信号强度的时间行为. 在这种情形下, SFPB 信号很快上升到最大值, 然后随着时间常数衰减的行为由原子系统横向弛豫时间决定. 虽然 SFPB 信号调制通常是复杂的, 但是我们对信号做末端近似  $\alpha_1 |\tau| \gg 1, \alpha_2 |\tau| \gg 1$  后, 可得

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

$$\begin{aligned}
 P^{(3)} = & \frac{2\sqrt{\pi}}{k_3 u} S_1(\mathbf{r}) \exp(-i\omega_3 t) \\
 & \times \{B_7 \exp(-\alpha_1 |\tau| - i\omega_1 \tau) \\
 & + \eta B_8 \exp[-\Gamma_{20}^a |\tau| - i\Delta \mathbf{k} \cdot \mathbf{r} \\
 & + i(\Omega_2 + \xi_2 \Delta_3)\tau]\}, \quad (23)
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 \mathcal{K}(\tau, \mathbf{r}) \propto |P^{(3)}|^2 \propto & B_7^2 \exp(-2\alpha_1 |\tau|) \\
 & + |\eta B_8|^2 \exp(-2\Gamma_{20}^a |\tau|) + \exp[-(\alpha_1 + \Gamma_{20}^a) |\tau|] \\
 & \times \{B_7^* \eta B_8 \exp[-i(\Delta \mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - (\Omega_2 + \omega_1 + \xi_2 \Delta_3)\tau)] \\
 & + B_7 \eta^* B_8^* \exp[i(\Delta \mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - (\Omega_2 + \omega_1 + \xi_2 \Delta_3)\tau)]\}, \quad (24)
 \end{aligned}$$

$$B_6 = \frac{\Gamma_0 + \Gamma_1}{(\alpha_1 + i\Delta_1^a)\Gamma_0 \Gamma_1}, \quad B_7 = \frac{2\alpha_2}{[\alpha_2^2 + (\Delta_2^a)^2] \Gamma_0}$$

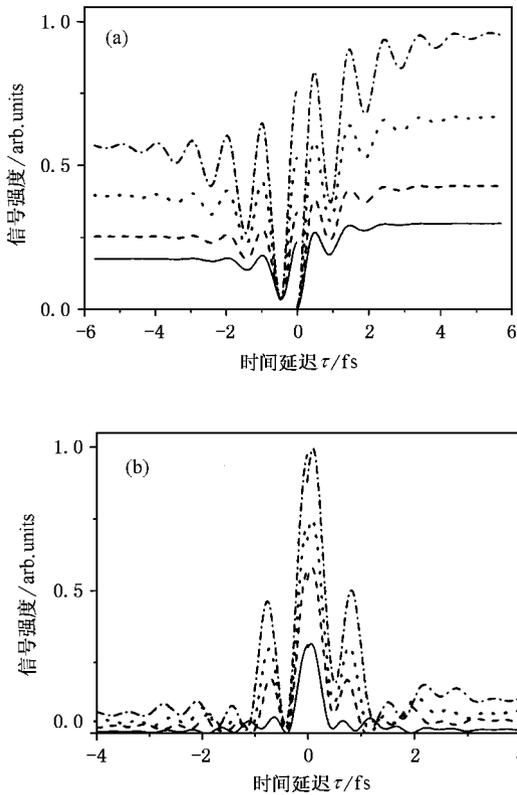


图5 二阶关联 SFPB 信号强度与时间延迟  $\tau$  的归一化关系曲线 ( $\Gamma_0/\Gamma_{20}^a = 10^{-4}$ ,  $\Gamma_1/\Gamma_{20}^a = 3.35 \times 10^{-4}$ ,  $\Gamma_{10}^a/\Gamma_{20}^a = 0.9$ ,  $\omega_1/\Gamma_{20}^a = 18210.6$ ,  $\omega_2/\Gamma_{20}^a = 18229$ ,  $\eta = 1$ ) (a) 当  $\Delta_1^a/\alpha_1 = \Delta_2^a/\alpha_2 = 0$ ,  $\alpha_1/\Gamma_{20}^a = \alpha_2/\Gamma_{20}^a = 5000$  (短线-点曲线),  $6000$  (点曲线),  $7500$  (短线曲线),  $9000$  (实线曲线); (b) 当  $\alpha_1/\Gamma_{20}^a = \alpha_2/\Gamma_{20}^a = 6000$ ,  $\Delta_1^a/\alpha_1 = \Delta_2^a/\alpha_2 = \alpha$  (短线-点曲线),  $3.5$  (点曲线),  $4$  (短线曲线),  $5.5$  (实线曲线)

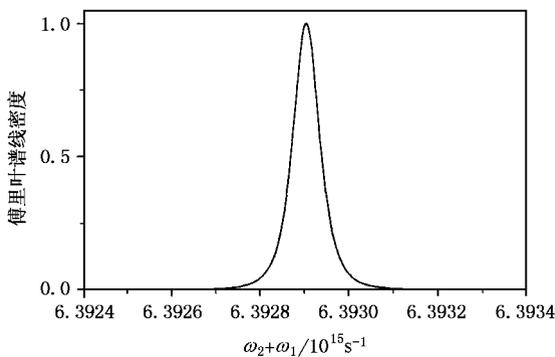


图6 基于(22)式 SFPB 的傅里叶谱线  $\alpha_1 = 2.709 \times 10^{-5} \text{ fs}^{-1}$ ,  $\alpha_2 = 2.715 \times 10^{-5} \text{ fs}^{-1}$ ,  $\Gamma_{10}^a = 1.74 \times 10^{-4} \text{ fs}^{-1}$ ,  $\Gamma_{20}^a = 1.754 \times 10^{-4} \text{ fs}^{-1}$ ,  $\Gamma_0 = 5.7 \times 10^{-8} \text{ fs}^{-1}$ ,  $\Gamma_1 = 5.882 \times 10^{-8} \text{ fs}^{-1}$ ,  $\omega_2 + \omega_1 = 6.393 \text{ fs}^{-1}$ ,  $r = 0$ ,  $\xi_1 = 1$ ,  $|\tau| \leq 450 \text{ fs}$ ,  $\eta = 0.5$

$$\begin{aligned}
 & P^{(3)} \\
 &= \frac{2\sqrt{\pi}}{k_3 u} S_1(\mathbf{r}) \exp(-i\omega_3 t) \\
 &\quad \times \{ \eta B_{10} \exp[-\alpha_2 |\tau| + i\omega_2 \tau - i\Delta \mathbf{k} \cdot \mathbf{r}] \\
 &\quad + B_9 \exp[-\Gamma_{10}^a |\tau| - (\Omega_1 + \xi_1 \Delta_3) \tau] \} \quad (25) \\
 & I(\tau, \mathbf{r}) \propto |P^{(3)}|^2 \propto |B_9|^2 \exp(-2\Gamma_{10}^a |\tau|) \\
 &\quad + |\eta B_{10}|^2 \exp(-2\alpha_2 |\tau|) + \exp[-(\Gamma_{10}^a + \alpha_2) |\tau|] \\
 &\quad \times \{ B_9^* \eta B_{10} \exp[-(\Delta \mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - (\omega_2 + \Omega_1 + \xi_1 \Delta_3) \tau)] \\
 &\quad + B_9 \eta^* B_{10}^* \exp[(\Delta \mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - (\omega_2 + \Omega_1 + \xi_1 \Delta_3) \tau)] \}, \quad (26)
 \end{aligned}$$

$$B_8 = \frac{2\alpha_1(\Gamma_0 + \Gamma_1)}{[\alpha_1^2 + (\Delta_1^a)^2] \Gamma_0 \Gamma_1}, \quad B_9 = \frac{1}{(\alpha_2 + i\Delta_2^a) \Gamma_0}.$$

(24) 式或(26) 式都包括三项. 在(24) 式中, 含有因子  $\exp(-2\alpha_1 |\tau|)$  的第一项和含有因子  $\exp(-2\Gamma_{20}^a |\tau|)$  的第二项分别是单光子非共振 DFWM 和单光子共振 NDFWM 的自关联项, 然而第三项  $\exp[-\chi(\alpha_1 + \Gamma_{20}^a) |\tau|]$  是单光子非共振 DFWM 和单光子共振 NDFWM 的交叉关联项; 在(26) 式中, 含有因子  $\exp(-2\Gamma_{10}^a |\tau|)$  的第一项和含有因子  $\exp(-2\alpha_2 |\tau|)$  的第二项分别是单光子共振 DFWM 和单光子非共振 NDFWM 的自关联项, 然而第三项  $\exp[-\chi(\alpha_2 + \Gamma_{10}^a) |\tau|]$  是单光子共振 DFWM 和单光子非共振 NDFWM 的交叉关联项. (24) 和(26) 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  $\omega_2 + \Omega_1$ . 令我们感兴趣的是在共振和非共振过程的这种交叉干涉显著地不同于在飞秒 DFPP 过程<sup>[7-11]</sup>. Ulness 研究小组已在分子液体中直接观察到共振-非共振交叉项对噪声光的相干拉曼散射的贡献.

### 3.3. 多普勒增宽和宽带极限情形下的二阶随机平均

利用宽带非变换限定的噪声光研究 SFPB 的物理机理一直是个热点<sup>[3-11]</sup>, 近来该工作主要聚焦在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, 以至于它们可被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>[6]</sup>. 由于相位匹配条件  $k_1 - k'_1 + k_3$  和  $k'_2 - k_2 + k_3$  已知, 三脉冲受激光子回波发生在微扰链 (I), (III) (V)<sup>[6-11]</sup>. 宽带极限 ( $\tau_c \approx 0$ ) 对应于“白色”噪声, 该噪声由  $\delta$  函数的相关时间所刻画, 通常拥有不变的光谱. 因此二阶相关函数(4) 式被  $\delta$  函

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

数近似为

$$u_i(t_1)u_i^*(t_2) = \exp(-\alpha_i |t_1 - t_2|) \approx \frac{2}{\alpha_i} \delta(t_1 - t_2). \quad (27)$$

在多普勒增宽极限 ( $k_3 u \rightarrow \infty$ ) 和激光源宽频极限 ( $\alpha_i \rightarrow \infty$ ) 近似情形下, 把 (27) 式代入 (5)–(10) 式有

$$P^{(I)} = \frac{4\sqrt{\pi}}{k_3 u \alpha_1} S_1(\mathbf{r}) \exp[-i(\omega_3 t + \omega_1 \tau)] \times \int_0^\infty dt_3 \int_0^\infty dt_2 \int_0^\infty dt_1 \delta(t_3 - \xi_1 t_1) \delta(t_1 - \tau) \times \exp[-(\Gamma_{10} + i\Delta_3)t_3 - \Gamma_0 t_2 - (\Gamma_{10} + i\Delta_1)t_1], \quad (28)$$

$$P^{(II)} = \frac{4\sqrt{\pi}}{k_3 u \alpha_1} S_1(\mathbf{r}) \exp[-i(\omega_3 t + \omega_1 \tau)] \times \int_0^\infty dt_3 \int_0^\infty dt_2 \int_0^\infty dt_1 \delta(t_3 - \xi_1 t_1) \delta(t_1 - \tau) \times \exp[-(\Gamma_{10} + i\Delta_3)t_3 - \Gamma_1 t_2 - (\Gamma_{10} + i\Delta_1)t_1], \quad (29)$$

$$P^{(V)} = \frac{4\sqrt{\pi}}{k_3 u \alpha_1} S_2(\mathbf{r}) \exp[-i(\omega_3 t - \omega_2 \tau)] \times \int_0^\infty dt_3 \int_0^\infty dt_2 \int_0^\infty dt_1 \delta(t_3 - \xi_2 t_1) \delta(t_1 + \tau) \times \exp[-(\Gamma_{10} + i\Delta_3)t_3 - \Gamma_0 t_2 - (\Gamma_{20} + i\Delta_2)t_1]. \quad (30)$$

由于 SFPB 的单光子 DFWM 类似与 FDPB 中的情形<sup>[6–11]</sup>, 这里我们主要关心 SFPB 的单光子 NDFWM. (30) 式解释为在时间  $t - t_1 - t_2 - t_3$  由  $A'_2$  引起的光学极化在旋转坐标的一个时间间隔  $t_1$  展示出衰减振荡, 衰减率为  $\Gamma_{20}$ , 频率为  $\Delta_2$ . 然后在  $t - t_2 - t_3$  时刻与  $A_2$  相作用, 作为结果, 诱发  $|0\rangle$  的基态布局栅. 该基态布局栅展示出衰减振荡, 衰减率为  $\Gamma_0$ . 在时间  $t_2$  以后光束 3 在  $t - t_3$  时刻探测基态布局栅并且引起极化, 此极化对单光子 NDFWM 信号起作用. 在  $t$  时刻感兴趣的是 NDFWM 信号在光束 3 之后  $t_3$  间隔的情况. 光学极化又在时间间隔  $t_3$  展示出衰减振荡, 衰减率为  $\Gamma_{10}$ , 频率为  $\Delta_1$ . 由非均匀增宽系统中共振频率的分布规律知, 在  $t - t_1 - t_2 - t_3$  时刻由  $A'_2$  作用产生的偶极子不久将相互失相. 光束 2 的作用使失相的偶极子开始重新复相, 产生三脉冲受激光子回波<sup>[6–11]</sup>. 由 (30) 式可得当  $t_3 = \xi_2 t_1$  时, 光子回波发生在  $t$  时刻. 我们考虑孪生光束 1 和 2 具有宽带线宽, 以至于它们可被看作为一系

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. 而与延时  $\tau$  有关的 NDFWM 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  $\tau$  近似等于光束 2 和 3 中相位相关子脉冲间的间隔  $t_2$ . 总的极化是不同时刻诱导的极化的累加 (总和). 共振单光子 NDFWM 信号的最大值发生在  $\tau \approx 0$ .

SFPB 信号强度为:

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

$$P^{(3)} = \frac{2\sqrt{\pi}}{k_3 u} S_1(\mathbf{r}) \exp(-i\omega_3 t) \times \{B_7 \exp(-\alpha_1 |\tau| - i\omega_1 \tau) + \eta B_8 \exp[-\Gamma_{20}^a |\tau| - i\Delta \mathbf{k} \cdot \mathbf{r} + i(\Omega_2 + \xi_2 \Delta_3)\tau]\}, \quad (31)$$

$$I(\tau, \mathbf{r}) \propto |P^{(3)}|^2 \propto |B_7|^2 \exp(-2\alpha_1 |\tau|) + |\eta B_8|^2 \exp(-2\Gamma_{20}^a |\tau|) + \exp[-(\alpha_1 + \Gamma_{20}^a) |\tau|] \times \{B_7^* \eta B_8 \exp[-i(\Delta \mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - (\Omega_2 + \omega_1 + \xi_2 \Delta_3)\tau)] + B_7 \eta^* B_8^* \exp[i(\Delta \mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - (\Omega_2 + \omega_1 + \xi_2 \Delta_3)\tau)]\}, \quad (32)$$

$$B_{10} = \frac{\Gamma_0 + \Gamma_1}{(\alpha_1 + i\Delta_1^a)\Gamma_0 \Gamma_1}, \quad B_{11} = \frac{2}{\alpha_2 \Gamma_0}.$$

$$2) \tau > 0: \alpha_1 \gg \Gamma_{10}^a, \alpha_2 \gg \Gamma_{20}^a, \alpha_1 \rightarrow \infty$$

$$P^{(3)} = \frac{2\sqrt{\pi}}{k_3 u} S_1(\mathbf{r}) \exp(-i\omega_3 t) \times \{B_{10} \exp(-\alpha_2 |\tau| + i\omega_2 \tau - i\Delta \mathbf{k} \cdot \mathbf{r}) + B_9 \exp[-\Gamma_{10}^a |\tau| - i(\Omega_1 + \xi_1 \Delta_3)\tau]\} \quad (33)$$

$$I(\tau, \mathbf{r}) \propto |P^{(3)}|^2 \propto |B_9|^2 \exp(-2\Gamma_{10}^a |\tau|) + |\eta B_{10}|^2 \exp(-2\alpha_2 |\tau|) + \exp[-(\Gamma_{10}^a + \alpha_2) |\tau|] \times \{B_9^* \eta B_{10} \exp[-i(\Delta \mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - (\omega_2 + \Omega_1 + \xi_1 \Delta_3)\tau)] + B_9 \eta^* B_{10}^* \exp[i(\Delta \mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - (\omega_2 + \Omega_1 + \xi_1 \Delta_3)\tau)]\}, \quad (34)$$

$$B_{12} = \frac{\chi(\Gamma_0 + \Gamma_1)}{\alpha_2 \Gamma_0 \Gamma_1}, \quad B_{13} = \frac{1}{(\alpha_2 + i\Delta_2^a)\Gamma_0}.$$

(32)(34) 式和 (24)(26) 式的关系基本一致.

## 4. 结 论

总之, 本文系统分析了在孪生随机光场中相位共轭几何配置情形下 V 型三能级系统中的对称和频阿秒极化拍频这种新的效应. 零差探测的 SFPB 信号表现出共振-非共振交叉关联. DFWM (或

NDFWM)信号展现出混合辐射-物质失谐的 THz 阻尼振荡.这种技术在测量偶极禁止跃迁的两激发态之间能级和时可以获得消除多普勒增宽的测量精

度.作为一种阿秒超快调制过程,从理论上说它可以扩展到任何和频能级系统.

- 
- [ 1 ] Morgner U , Kartner F X , Cho S H , Chen Y , Haus H A , Fujimoto J G , Ippen E P , Scheuer V , Angelow G and Tschudi T 1999 *Opt. Lett.* **24** 411
- [ 2 ] Drescher M , Hentschel M , Kienberger R , Uiberacker M , Yakovlev V , Scrinzi A , Westerwalbesloh Th , Kleineberg U , Heinzmann U and Krausz F 2002 *Nature* **419** 803
- [ 3 ] Turner D B and Ulness D J 2003 *J. Chem. Phys.* **119** 10745
- [ 4 ] Ulness D J 2003 *J. Phys. Chem.* **107** 8111
- [ 5 ] DeMott D C , Ulness D J and Albrecht A C 1997 *Phys. Rev. A* **55** 761
- [ 6 ] Zhang Y P , Wu H C , Lu K Q , Hou X and Araújo C B de 2001 *Chin. Phys.* **10** 206
- [ 7 ] Zhang Y P , Sun L Q , Tang T T and Fu P M 2000 *Phys. Rev. A* **61** 053819
- [ 8 ] Zhang Y P , Sun L Q , Tang T T and Fu P M 2000 *J. Opt. Soc. Am. B* **17** 690
- [ 9 ] Zhang Y P , Tang T T , Sun L Q and Fu P M 2000 *Phys. Rev. A* **61** 023809
- [ 10 ] Zhang Y P , Araújo C B de and Eyley E E 2001 *Phys. Rev. A* **63** 043802
- [ 11 ] Zhang Y P , Gan C L , Farooqi S M , Lu K Q , Hou X and Tang T T 2002 *J. Opt. Soc. Am. B* **19** 1204

# V type three-level symmetric second-order coherence theory of attosecond polarization beats <sup>\*</sup>

Gan Chen-Li<sup>1)</sup> Zhang Yan-Peng<sup>2)</sup> Feng Yu<sup>2)</sup> Yu Xiao-Jun<sup>2)</sup> Wang Jie<sup>2)</sup>

Li Chuang-She<sup>2)</sup> Song Jian-Ping<sup>2)</sup> Lu Ke-Qing<sup>3)</sup> Hou Xun<sup>2B)</sup>

<sup>1)</sup>Xi 'an Agriculture School ,Xi 'an 710077 , China )

<sup>2)</sup>Department of Electronic Science and Technology , Xi 'an Jiaotong University , Xi 'an 710049 , China )

<sup>3)</sup>State Key Laboratory of Transient Optics and Technology , Xi 'an Institute of Optics and Precision Mechanics , Chinese Academy of Sciences , Xi 'an 710068 , China )

( Received 1 April 2004 ; revised manuscript received 19 July 2004 )

## Abstract

Based on the phase-conjugate polarization interference between two one-photon processes , we have studied theoretically the symmetric sum-frequency polarization beat ( SFPB ) of V type three-level system in attosecond scale in the case of arbitrary bandwidth or broadband linewidth laser . The homodyne detected SFPB signal is shown to be particularly sensitive to the statistical properties of the Markovian stochastic light fields with arbitrary bandwidth . We have found that the accuracy in the measurement of the energy-level sum of two excited states which are dipolar forbidden transition to each other is determined by the homogeneous linewidths of the optical transitions and exceeds the laser linewidth . A Doppler-free precision in the measurement of the energy-level sum can be achieved with an arbitrary bandwidth . The field correlation has weakly influence on the SFPB signal when the laser has a narrow bandwidth . When the laser has a broadband linewidth , the SFPB signal shows resonant-nonresonant cross correlation . As an attosecond ultrafast modulation process , SFPB can be extended intrinsically to any sum-frequency of energy-levels .

**Keywords** : attosecond , sum-frequency , polarization beats , second-order coherence

**PACC** : 4265 , 3280

<sup>\*</sup> Project supported by the National Natural Science Foundation of China ( Grant No. 60308002 ) and the Foundation for the Author of National Excellent Doctoral Dissertation of China ( Grant No. 200339 ) .