

四能级系统中五阶极化拍频的理论研究^{*}

张彦鹏 唐天同 李 实 孙立群

(西安交通大学光电子学系, 西安 710049)

(1998 年 9 月 29 日收到; 1998 年 12 月 14 日收到修改稿)

研究了四能级系统中基于五阶极化的拍频效应, 考虑了抽运光束为窄带线宽或宽带线宽的情形. 发现其对能级分裂的测量精度决定于光学跃迁的均匀增宽. 也就是说, 这种技术在测量与基态是偶极禁戒跃迁的两激发态之间的能级分裂时, 可得到消除多普勒增宽的精度.

PACC: 4265; 3290

1 引 言

利用各种技术对超快现象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, 不常采用. 而时域的方法倍受青睐. 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, 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 等^[1]提出利用易获得的纳秒非相干光测量物质的位相弛豫时间 T_2 和集居数弛豫时间 T_1 , 其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. 相位共轭几何配制情形下的飞秒极化拍频是一种三阶非线性过程^[2], 它对能级分裂的测量与激光线宽和多普勒增宽无关, 其总体精度仅取决于光学跃迁均匀增宽.

本文报道了相位共轭几何配制情形下的五阶飞秒极化拍频^[3]. 这种技术在测量与基态是偶极禁戒跃迁的两激发态之间的能级分裂时, 可得到消除多普勒增宽的测量精度.

2 理 论

在四能级系统中(如图 1), $|0\rangle$ 为基态, $|1\rangle$ 为中间态, $|2\rangle, |3\rangle$ 为激发态. 抽运光的相位共轭几何配制如图 2 所示, 光束 1 的频率为 ω_1 , 光束 2, 3 分别包含两个频率 ω_2, ω_3 . ω_1, ω_2 和 ω_3 分别对应于从 $|0\rangle$ 到 $|1\rangle$, $|1\rangle$ 到 $|2\rangle$ 和 $|1\rangle$ 到 $|3\rangle$ 的跃迁频率 Ω_1, Ω_2 和 Ω_3 . 光束 2, 3 中间有一很小的夹角. 所有入射光束都具有相同方向的线偏振. 在三阶非线性过程中, 频率为 ω_1 的双光子四波混频(FWM)信号出射方向沿 $\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 - \mathbf{k}'_2$ 和 $\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_3 - \mathbf{k}'_3$, 相位共轭几何配制情形下的三阶飞秒极化拍频的详细讨论见文献[2]. 抽运光较强时, 可发生五阶非线性过程. 频率为 ω_1 双光子六波混频(SWM)出射方向沿 $\mathbf{k}_1 + 2\mathbf{k}_2 - 2\mathbf{k}'_2, \mathbf{k}_1$

^{*} 西安交通大学科学基金(批准号: 9804)资助的课题.

+ $2k_3 - 2k'_3$ 和 $k_1 + k_2 - k'_2 + k_3 - k'_3$. 不考虑此方向上的其他级联效应. 若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.

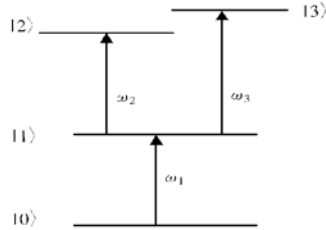


图 1 四能级位形图

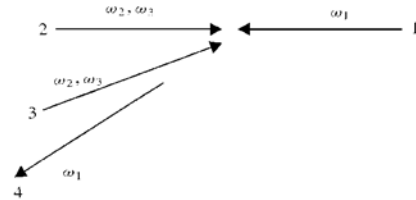


图 2 几何配制图

光束 1, 4 的方向几乎分别与光束 2, 3 相反, 且我们只考虑与延时 τ 有关的信号, 假定抽运光 1 为单色光, 故可建立抽运光 1, 2, 3 的复电场如下:

$$E_{P_1} = \varepsilon_1 \exp[i(\mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{r} - \omega_1 t)],$$

$$E_{P_2} = \varepsilon_2 u_2(t) \exp[i(\mathbf{k}_2 \cdot \mathbf{r} - \omega_2 t)] + \varepsilon_3 u_3(t) \exp[i(\mathbf{k}_3 \cdot \mathbf{r} - \omega_3 t)],$$

$$E_{P_3} = \varepsilon'_2 u_2(t - \tau) \exp[i(\mathbf{k}'_2 \cdot \mathbf{r} - \omega_2 t + \omega_2 \tau)] + \varepsilon'_3 u_3(t - \tau) \exp[i(\mathbf{k}'_3 \cdot \mathbf{r} - \omega_3 t + \omega_3 \tau)],$$

式中 $\varepsilon_i, \mathbf{k}_i$ ($\varepsilon'_i, \mathbf{k}'_i$) 分别为 ω_i 分量的光场振幅和光波矢量. $u_i(t)$ 是描述光场相位和振幅涨落的无量纲因子, τ 为光束 2, 3 之间的相对时间延迟.

根据光与四能级系统相互作用的物理机制, 可得如下微扰链:

$$\begin{aligned} \text{(I)} & \rho_{00}^{(0)} \xrightarrow{\varepsilon_1} \rho_{10}^{(1)} \xrightarrow{\varepsilon_2} \rho_{20}^{(2)} \xrightarrow{(\varepsilon'_2)^*} \rho_{10}^{(3)} \xrightarrow{\varepsilon_2} \rho_{20}^{(4)} \xrightarrow{(\varepsilon'_2)^*} \rho_{10}^{(5)}, \\ \text{(II)} & \rho_{00}^{(0)} \xrightarrow{\varepsilon_1} \rho_{10}^{(1)} \xrightarrow{\varepsilon_2} \rho_{20}^{(2)} \xrightarrow{(\varepsilon'_2)^*} \rho_{10}^{(3)} \xrightarrow{\varepsilon_3} \rho_{30}^{(4)} \xrightarrow{(\varepsilon'_3)^*} \rho_{10}^{(5)}, \\ \text{(III)} & \rho_{00}^{(0)} \xrightarrow{\varepsilon_1} \rho_{10}^{(1)} \xrightarrow{\varepsilon_3} \rho_{30}^{(2)} \xrightarrow{(\varepsilon'_3)^*} \rho_{10}^{(3)} \xrightarrow{\varepsilon_2} \rho_{20}^{(4)} \xrightarrow{(\varepsilon'_2)^*} \rho_{10}^{(5)}, \\ \text{(IV)} & \rho_{00}^{(0)} \xrightarrow{\varepsilon_1} \rho_{10}^{(1)} \xrightarrow{\varepsilon_3} \rho_{30}^{(2)} \xrightarrow{(\varepsilon'_3)^*} \rho_{10}^{(3)} \xrightarrow{\varepsilon_3} \rho_{30}^{(4)} \xrightarrow{(\varepsilon'_3)^*} \rho_{10}^{(5)}. \end{aligned}$$

这四个微扰链对应于四个双光子六波混频过程, 我们仅关心调制频率 $\omega_3 - \omega_2$ 的信号. 故可有两种拍频方式, (I), (II), (III) 过程间拍和 (II), (III), (IV) 过程间拍.

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, 五阶极化强度为

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

式中 $w(v) = \frac{1}{\sqrt{\pi}u} \exp[-(v/u)^2]$, $u = \sqrt{2k_B T/m}$, v 为原子速度, N 为原子个数, m 为原子质量, k_B 为玻耳兹曼常量, 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. 由于采用相位共轭几何配制, 拍频信号强度仅与八阶相干函数有关, 假定抽运光 2, 3 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

τ 有关的信号, 信号强度 $I(\tau) \propto |\langle P^{(5)} \rangle|^2$, 式中仅包含二阶相干函数, 若抽运光为洛仑兹线型, 则

$$\langle u_i(t_1) u_i^*(t_2) \rangle = \exp(-\alpha_i |t_1 - t_2|) \quad i = 2, 3,$$

式中 $\alpha_i = \frac{1}{2} \delta \omega_i$, $\delta \omega_i$ 为 ω_i 的激光线宽. 我们可得极化强度的统计平均值 $\langle P^{(5)} \rangle$, 拍频信号强度为 $I(\tau) \propto |\langle P^{(5)} \rangle|^2$.

2.1 抽运光为窄带情形 ($\alpha_2 \ll \Gamma_{20}$, $\alpha_3 \ll \Gamma_{30}$)

在忽略多普勒效应时, 由第一种拍频方式得到

$$I(\tau) \propto |B_1|^2 \exp(-4\alpha_2 |\tau|) + |\eta B_2|^2 \exp[-2(\alpha_2 + \alpha_3) |\tau|] + \exp[-(3\alpha_2 + \alpha_3) |\tau|] \times \{ \eta B_1^* B_2 \exp[-i(\omega_3 - \omega_2) \tau] + \eta^* B_1 B_2^* \exp[i(\omega_3 - \omega_2) \tau] \}. \quad (1)$$

由第二种拍频方式得到

$$I(\tau) \propto |B_2|^2 \exp[-2(\alpha_2 + \alpha_3) |\tau|] + |\eta B_3|^2 \exp(-4\alpha_3 |\tau|) + \exp[-(\alpha_2 + 3\alpha_3) |\tau|] \times \{ \eta B_2^* B_3 \exp[-i(\omega_3 - \omega_2) \tau] + \eta^* B_2 B_3^* \exp[i(\omega_3 - \omega_2) \tau] \}, \quad (2)$$

式中

$$B_1 = \frac{1}{(\Gamma_{10} + i\Delta_1)^3} \frac{1}{[\Gamma_{20} + i(\Delta_2 + \Delta_1)]^2},$$

$$B_2 = \frac{1}{(\Gamma_{10} + i\Delta_1)^3} \frac{2}{(\Gamma_{20} + i\Delta_2 + i\Delta_1)(\Gamma_{30} + i\Delta_3 + i\Delta_1)},$$

$$B_3 = \frac{1}{(\Gamma_{10} + i\Delta_1)^3} \frac{1}{[\Gamma_{30} + i(\Delta_3 + \Delta_1)]^2},$$

$$\eta = \frac{S_2(\mathbf{r})}{S_1(\mathbf{r})} \approx \frac{\mu_3^2}{\mu_2^2} \left| \frac{\epsilon_3(\epsilon_3^*)}{\epsilon_2(\epsilon_2^*)} \right|.$$

这里 μ_1, μ_2, μ_3 分别为 $|0\rangle$ 到 $|1\rangle, |1\rangle$ 到 $|2\rangle, |1\rangle$ 到 $|3\rangle$ 的跃迁偶极矩阵元; $\Gamma_{10}, \Gamma_{20}, \Gamma_{30}$ 为 $|0\rangle$ 到 $|1\rangle, |0\rangle$ 到 $|2\rangle, |0\rangle$ 到 $|3\rangle$ 的横向弛豫率; $\Delta_1 = \Omega_1 - \omega_1, \Delta_2 = \Omega_2 - \omega_2, \Delta_3 = \Omega_3 - \omega_3$.

(1), (2) 式表明, 在窄带情形下, 拍频信号呈现阻尼振荡, 调制频率为 $\omega_3 - \omega_2$, 衰变率为 $3\alpha_2 + \alpha_3$ 和 $\alpha_2 + 3\alpha_3$, 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 $\pi(3\alpha_2 + \alpha_3)$ 和 $\pi(\alpha_2 + 3\alpha_3)$. 能级分裂的测量精度取决于把 ω_3 和 ω_2 分别调谐到 Ω_3 和 Ω_2 的好坏, 这种情况对应于饱和吸收光谱学中的双光子共振 SWM^[2], 因此测量能级分裂 $\Omega_3 - \Omega_2$ 时, 可得到消除多普勒增宽的测量精度.

2.2 多普勒增宽极限情形 (即 $k_1 u \rightarrow \infty$)

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 $k_1 u \rightarrow \infty$) 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 (我们假定 $\xi_1 = k_2/k_1 > 1, \xi_2 = k_3/k_1 > 1$).

a) 抽运光为窄带情形 ($\alpha_2 \ll \Gamma_{20}, \alpha_3 \ll \Gamma_{30}$) 当抽运光为窄带时 ($\alpha_2 \ll \Gamma_{20}, \alpha_3 \ll \Gamma_{30}$), 不论 τ 取何值, 都有由第一种拍频方式都得到

$$I(\tau) \propto |B_4|^2 \exp(-4\alpha_2|\tau|) + |\eta B_5|^2 \exp[-2(\alpha_2 + \alpha_3)|\tau|] + \exp[-(3\alpha_2 + \alpha_3)|\tau|] \times \{\eta B_4^* B_5 \exp[-i(\omega_3 - \omega_2)\tau] + \eta^* B_4 B_5^* \exp[i(\omega_3 - \omega_2)\tau]\}, \quad (3)$$

由第二种拍频方式都有

$$I(\tau) \propto |B_5|^2 \exp[-2(\alpha_2 + \alpha_3)|\tau|] + |\eta B_6|^2 \exp(-4\alpha_3|\tau|) + \exp[-(\alpha_2 + 3\alpha_3)|\tau|] \times \{\eta B_5^* B_6 \exp[-i(\omega_3 - \omega_2)\tau] + \eta^* B_5 B_6^* \exp[i(\omega_3 - \omega_2)\tau]\}, \quad (4)$$

式中

$$B_5 = \frac{(\xi_2 - 1)^2}{(\Gamma_{20}^a + i\Delta_2^a)(\Gamma_{30}^a + i\Delta_3^a)^3} + \frac{(\xi_1 - 1)(\xi_2 - 1)}{(\Gamma_{20}^a + i\Delta_2^a)^2(\Gamma_{30}^a + i\Delta_3^a)^2} + \frac{(\xi_1 - 1)^2}{(\Gamma_{20}^a + i\Delta_2^a)^3(\Gamma_{30}^a + i\Delta_3^a)},$$

$$B_4 = \frac{3(\xi_1 - 1)^2}{(\Gamma_{20}^a + i\Delta_2^a)^4}, \quad B_6 = \frac{3(\xi_2 - 1)^2}{(\Gamma_{30}^a + i\Delta_3^a)^4},$$

其中 $\Gamma_{20}^a = \Gamma_{20} + (\xi_1 - 1)\Gamma_{10}$, $\Delta_2^a = \Delta_2 + \xi_1\Delta_1$, $\Gamma_{30}^a = \Gamma_{30} + (\xi_2 - 1)\Gamma_{10}$, $\Delta_3^a = \Delta_3 + \xi_2\Delta_1$.

(3), (4) 式结果与 (1), (2) 式结果类似, 反映了激光的特性, 而与能级结构无关.

b) 宽带情形 ($\alpha_2 \gg \Gamma_{20}$, $\alpha_3 \gg \Gamma_{30}$) 下面考虑宽带情形 ($\alpha_2 \gg \Gamma_{20}$, $\alpha_3 \gg \Gamma_{30}$), 且假定 $\tau \gg \alpha_2^{-1}$, $\tau \gg \alpha_3^{-1}$ 有

1) $\tau > 0$ 时

由第一种拍频方式得到

$$I(\tau) \propto |q_1|^2 \exp[-4\Gamma_{20}^a\tau] + 4|\eta q_2|^2 \times \exp[-2(\Gamma_{30}^a + \Gamma_{20}^a)\tau] + 2\exp[-(3\Gamma_{20}^a + \Gamma_{30}^a)\tau] \times \{q_1^* \eta q_2 \exp[-i(\omega_3 - \omega_2)\tau - i(\xi_2 - \xi_1)\Delta_1\tau] + q_1 \eta^* q_2^* \exp[i(\omega_3 - \omega_2)\tau + i(\xi_2 - \xi_1)\Delta_1\tau]\}, \quad (5)$$

由第二种拍频方式得到

$$I(\tau) \propto 4|q_2|^2 \exp[-2(\Gamma_{20}^a + \Gamma_{30}^a)\tau] + |\eta q_3|^2 \exp[-4\Gamma_{30}^a\tau] + 2\exp[-(\Gamma_{20}^a + 3\Gamma_{30}^a)\tau] \times \{q_2^* \eta q_3 \exp[-i(\omega_3 - \omega_2)\tau - i(\xi_2 - \xi_1)\Delta_1\tau] + q_2 \eta^* q_3^* \exp[i(\omega_3 - \omega_2)\tau + i(\xi_2 - \xi_1)\Delta_1\tau]\}, \quad (6)$$

式中

$$q_1 = \left\{ \frac{4\alpha_2}{(\Delta_2^a)^2 + \alpha_2^2} \left[\frac{2\alpha_2\tau^2}{(\Delta_2^a)^2 + \alpha_2^2} - \frac{4i\Delta_2^a\alpha_2\tau}{[(\Delta_2^a)^2 + \alpha_2^2]^2} + \frac{2}{(i\Delta_2^a + \alpha_2)^3} - \frac{2}{(i\Delta_2^a - \alpha_2)^3} \right] + \left[\frac{4\alpha_2\tau}{(\Delta_2^a)^2 + \alpha_2^2} + \frac{4i\Delta_2^a\alpha_2}{[(\Delta_2^a)^2 + \alpha_2^2]^2} \right]^2 \frac{(\xi_1 - 1)^2}{2} \right\},$$

$$q_2 = \frac{2\alpha_2(\xi_2 - 1)^2}{(\Delta_2^a)^2 + \alpha_2^2} \left[\frac{2\alpha_3\tau^2}{(\Delta_3^a)^2 + \alpha_3^2} - \frac{4i\Delta_3^a\alpha_3\tau}{[(\Delta_3^a)^2 + \alpha_3^2]^2} + \frac{2}{(i\Delta_3^a + \alpha_3)^3} - \frac{2}{(i\Delta_3^a - \alpha_3)^3} \right] + 2(\xi_1 - 1)(\xi_2 - 1) \left[\frac{4\alpha_2\tau}{(\Delta_2^a)^2 + \alpha_2^2} - \frac{4i\Delta_2^a\alpha_2}{[(\Delta_2^a)^2 + \alpha_2^2]^2} \right] \left[\frac{4\alpha_3\tau}{(\Delta_3^a)^2 + \alpha_3^2} - \frac{4i\Delta_3^a\alpha_3}{[(\Delta_3^a)^2 + \alpha_3^2]^2} \right] + \frac{2\alpha_3(\xi_1 - 1)^2}{(\Delta_3^a)^2 + \alpha_3^2} \left[\frac{2\alpha_2\tau^2}{(\Delta_2^a)^2 + \alpha_2^2} - \frac{4i\Delta_2^a\alpha_2\tau}{[(\Delta_2^a)^2 + \alpha_2^2]^2} + \frac{2}{(i\Delta_2^a + \alpha_2)^3} - \frac{2}{(i\Delta_2^a - \alpha_2)^3} \right],$$

$$q_3 = \left\{ \frac{4\alpha_3}{(\Delta_3^a)^2 + \alpha_3^2} \left[\frac{2\alpha_3\tau^2}{(\Delta_3^a)^2 + \alpha_3^2} - \frac{4i\Delta_3^a\alpha_3\tau}{[(\Delta_3^a)^2 + \alpha_3^2]^2} + \frac{2}{(i\Delta_3^a + \alpha_3)^3} - \frac{2}{(i\Delta_3^a - \alpha_3)^3} \right] \right\}$$

$$+ \left[\frac{4\alpha_3 \tau}{(\Delta_3^a)^2 + \alpha_3^2} - \frac{4i\Delta_3^a \alpha_3}{[(\Delta_3^a)^2 + \alpha_3^2]^2} \right]^2 \frac{(\xi_1 - 1)^2}{2}.$$

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和双光子的相干效应. 拍频信号直接反映了能级的结构, 而与外部激光特性无关. 通过完成简并六波混频或饱和吸收光谱学实验, 调谐 $\Delta_1 = 0$, 能级差 $\Omega_3 - \Omega_2$ 测量的总体精度为 $\pi(3\Gamma_{20}^a + \Gamma_{30}^a)$ 或 $\pi(\Gamma_{20}^a + 3\Gamma_{30}^a)$, 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到

$$I(\tau) \propto |C_1|^2 \exp(-4\alpha_2 |\tau|) + |\eta C_2|^2 \exp[-2(\alpha_2 + \alpha_3) |\tau|] + \exp[-(3\alpha_2 + \alpha_3) |\tau|] \times \{ \eta C_1^* C_2 \exp[-i(\omega_3 - \omega_2)\tau] + \eta^* C_1 C_2^* \exp[i(\omega_3 - \omega_2)\tau] \}, \quad (7)$$

由第二种拍频方式得到

$$I(\tau) \propto |C_2|^2 \exp[-2(\alpha_2 + \alpha_3) |\tau|] + |\eta C_3|^2 \exp(-4\alpha_3 |\tau|) + \exp[-(\alpha_2 + 3\alpha_3) |\tau|] \times \{ \eta C_2^* C_3 \exp[-i(\omega_3 - \omega_2)\tau] + \eta^* C_2 C_3^* \exp[i(\omega_3 - \omega_2)\tau] \}, \quad (8)$$

式中

$$C_2 = \frac{2(\xi_2 - 1)^2}{(\alpha_2 + i\Delta_2^a)(\alpha_3 + i\Delta_3^a)^3} + \frac{2(\xi_1 - 1)(\xi_2 - 1)}{(\alpha_2 + i\Delta_2^a)^2(\alpha_3 + i\Delta_3^a)^2} + \frac{2(\xi_1 - 1)^2}{(\alpha_3 + i\Delta_3^a)(\alpha_2 + i\Delta_2^a)^3},$$

$$C_1 = \frac{3(\xi_1 - 1)^2}{(i\Delta_2^a - \alpha_2)^4}, \quad C_3 = \frac{3(\xi_2 - 1)^2}{(\alpha_3 + i\Delta_3^a)^4}.$$

由于 $\tau < 0$ 时, 抽运光 2, 3 中相位相关子脉冲时间上发生了重叠, 抽运光 2, 3 变相为互相干, 故类似于窄带情形(1), (2)式.

2.3 光子回波法讨论宽带情形

由相位匹配条件 $\mathbf{k}_1 + 2\mathbf{k}_2 - 2\mathbf{k}'_2$, $\mathbf{k}_1 + 2\mathbf{k}_3 - 2\mathbf{k}'_3$ 和 $\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 - \mathbf{k}'_2 + \mathbf{k}_3 - \mathbf{k}'_3$ 知, 链(I), (II), (III)和(IV)中均可发生光子回波.

在多普勒极限增宽情形下($k_1 u \rightarrow \infty$), 假定 $\xi_1 > 1$, $\xi_2 > 1$ 时

$$\int_{-\infty}^{+\infty} dv w(v) \exp[-i\theta_I(v)] \approx \frac{2\sqrt{\pi}}{k_1 u} \delta(t_1 + t_2 + t_3 + t_4 + t_5 - \xi_1 t_2 - \xi_1 t_4),$$

$$\int_{-\infty}^{+\infty} dv w(v) \exp[-i\theta_{II}(v)] \approx \frac{2\sqrt{\pi}}{k_1 u} \delta(t_1 + t_2 + t_3 + t_4 + t_5 - \xi_1 t_2 - \xi_2 t_4),$$

$$\int_{-\infty}^{+\infty} dv w(v) \exp[-i\theta_{III}(v)] \approx \frac{2\sqrt{\pi}}{k_1 u} \delta(t_1 + t_2 + t_3 + t_4 + t_5 - \xi_2 t_2 - \xi_1 t_4),$$

$$\int_{-\infty}^{+\infty} dv w(v) \exp[-i\theta_{IV}(v)] \approx \frac{2\sqrt{\pi}}{k_1 u} \delta(t_1 + t_2 + t_3 + t_4 + t_5 - \xi_2 t_2 - \xi_2 t_4),$$

式中

$$\theta_I(v) = v \cdot [\mathbf{k}_1(t_1 + t_2 + t_3 + t_4 + t_5) + \mathbf{k}_2(t_2 + t_3 + t_4 + t_5) - \mathbf{k}'_2(t_3 + t_4 + t_5) + \mathbf{k}_2(t_4 + t_5) - \mathbf{k}'_2 t_5],$$

$$\begin{aligned}
\theta_{II}(v) &= v \cdot [k_1(t_1 + t_2 + t_3 + t_4 + t_5) + k_2(t_2 + t_3 + t_4 + t_5) \\
&\quad - k'_2(t_3 + t_4 + t_5) + k_3(t_4 + t_5) - k'_3 t_5], \\
\theta_{III}(v) &= v \cdot [k_1(t_1 + t_2 + t_3 + t_4 + t_5) + k_3(t_2 + t_3 + t_4 + t_5) \\
&\quad - k'_3(t_3 + t_4 + t_5) + k_2(t_4 + t_5) - k'_2 t_5], \\
\theta_{IV}(v) &= v \cdot [k_1(t_1 + t_2 + t_3 + t_4 + t_5) + k_3(t_2 + t_3 + t_4 + t_5) \\
&\quad - k'_3(t_3 + t_4 + t_5) + k_3(t_4 + t_5) - k'_3 t_5].
\end{aligned}$$

由于抽运光为宽带光, 所以可做如下近似:

$$\exp(-\alpha_i |t - \tau|) \approx \frac{2}{\alpha_i} \delta(t - \tau) \quad i = 2, 3.$$

a) $\tau > 0$ 时, 完成积分得到

$$\begin{aligned}
P^{(I)} &\propto s_1(\mathbf{r}) \exp(-i\omega_1 t) (\xi_1 - 1)^2 \tau^2 \exp[-2(\Gamma_{20}^a | \tau | + i\Omega_2 \tau + i\xi_1 \Delta_1 \tau)], \\
P^{(II)} &\propto s_2(\mathbf{r}) \exp(-i\omega_1 t) (\xi_1 - 1) (\xi_2 - 1) \tau^2 \\
&\quad \times \exp[-(\Gamma_{20}^a + \Gamma_{30}^a) | \tau | + i(\Omega_2 + \Omega_3) \tau + i(\xi_1 + \xi_2) \Delta_1 \tau], \\
P^{(III)} &\propto s_2(\mathbf{r}) \exp(-i\omega_1 t) (\xi_1 - 1) (\xi_2 - 1) \tau^2 \\
&\quad \times \exp[-(\Gamma_{20}^a + \Gamma_{30}^a) | \tau | + i(\Omega_2 + \Omega_3) \tau + i(\xi_1 + \xi_2) \Delta_1 \tau], \\
P^{(IV)} &\propto s_3(\mathbf{r}) \exp(-i\omega_1 t) (\xi_2 - 1)^2 \tau^2 \exp[-2(\Gamma_{30}^a | \tau | + i\Omega_3 \tau + i\xi_2 \Delta_1 \tau)],
\end{aligned}$$

式中

$$\begin{aligned}
s_1(\mathbf{r}) &= -i\hbar V \left[\frac{\mu_1}{\hbar} \right]^2 \left[\frac{\mu_2}{\hbar} \right]^4 \varepsilon_1 \varepsilon_2^* (\varepsilon_2')^* J^2 \exp[i(\mathbf{k}_1 + 2\mathbf{k}_2 - 2\mathbf{k}_2') \cdot \mathbf{r}], \\
s_2(\mathbf{r}) &= -i\hbar V \left[\frac{\mu_1}{\hbar} \right]^2 \left[\frac{\mu_2}{\hbar} \right]^2 \left[\frac{\mu_3}{\hbar} \right]^2 \varepsilon_1 \varepsilon_2 (\varepsilon_2')^* \varepsilon_3 (\varepsilon_3')^* \exp[i(\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_2' + \mathbf{k}_3 - \mathbf{k}_3') \cdot \mathbf{r}], \\
s_3(\mathbf{r}) &= -i\hbar V \left[\frac{\mu_1}{\hbar} \right]^2 \left[\frac{\mu_3}{\hbar} \right]^4 \varepsilon_1 \varepsilon_3^* (\varepsilon_3')^* J^2 \exp[i(\mathbf{k}_1 + 2\mathbf{k}_3 - 2\mathbf{k}_3') \cdot \mathbf{r}].
\end{aligned}$$

所以(I), (II)和(III)之间的拍频为

$$\begin{aligned}
\langle P^{(5)} \rangle &= P^{(I)} + P^{(II)} + P^{(III)}, \\
I(\tau) &\propto [(\xi_1 - 1) \tau]^4 \exp[-4(\Gamma_{20}^a | \tau | + | \eta |^2 [2(\xi_1 - 1) (\xi_2 - 1) \tau^2]^2 \\
&\quad \times \exp[-2(\Gamma_{30}^a + \Gamma_{20}^a) | \tau | + 2(\xi_1 - 1)^3 (\xi_2 - 1) \tau^4 \exp[-(3\Gamma_{20}^a + \Gamma_{30}^a) | \tau |] \\
&\quad \times \{ \eta \exp[-i(\Omega_3 - \Omega_2) \tau - i(\xi_2 - \xi_1) \Delta_1 \tau] \\
&\quad + \eta^* \exp[i(\Omega_3 - \Omega_2) \tau + i(\xi_2 - \xi_1) \Delta_1 \tau] \}.
\end{aligned} \quad (9)$$

此时与(5)式结果完全类似.

(II), (III)和(IV)之间的拍频为

$$\begin{aligned}
\langle P^{(5)} \rangle &= P^{(II)} + P^{(III)} + P^{(IV)}, \\
I(\tau) &\propto [2(\xi_1 - 1) (\xi_2 - 1) \tau]^2 \exp[-2(\Gamma_{20}^a + \Gamma_{30}^a) | \tau | + | \eta |^2 [(\xi_2 - 1) \tau]^4 \\
&\quad \times \exp[-4\Gamma_{30}^a | \tau | + 2(\xi_1 - 1) (\xi_2 - 1)^3 \tau^4 \exp[-(\Gamma_{20}^a + 3\Gamma_{30}^a) | \tau |] \\
&\quad \times \{ \eta \exp[-i(\Omega_3 - \Omega_2) \tau - i(\xi_2 - \xi_1) \Delta_1 \tau] \\
&\quad + \eta^* \exp[i(\Omega_3 - \Omega_2) \tau + i(\xi_2 - \xi_1) \Delta_1 \tau] \}.
\end{aligned} \quad (10)$$

此时与(6)式结果完全类似.

b) $\tau < 0$ 时, $\exp(-\alpha_i |t - \tau|) \approx \frac{2}{\alpha_i} \delta(t - \tau) \approx 0$, 故(I), (II), (III) 和(IV) 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 2, 3 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

本文分析了在多普勒增宽系统中相位共轭几何配制情形下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干涉的结果, 区别于波函数振幅干涉引起的量子拍频. 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, 五阶极化拍频效应尤为重要^[3]. 利用相位共轭几何配制情形下的五阶飞秒极化拍频技术测量能级分裂时, 其总体精度仅取决于光学跃迁均匀增宽, 与激光线宽和多普勒增宽无关, 而且容许有一定的机械振动、光学元件的畸变及其他微扰.

[1] N. Morita and T. Yajima, *Phys. Rev.*, **A30**(1984), 2525.

[2] P. M. Fu, X. Mi, Z. H. Yu, Q. Jiang, Y. P. Zhang and X. F. Li, *Phys. Rev.*, **A52**(1995), 4867.

[3] H. Ma and Cid B. de Araujo, *Phys. Rev. Lett.*, **71**(1993), 3649.

THEORETICAL STUDY OF THE FIFTH-ORDER POLARIZATION BEATS IN A FOUR-LEVEL SYSTEM*

ZHANG YAN-PENG TANG TIAN-TONG LI SHI SUN LI-QUN

(Department of Optoelectronics, Xi'an Jiaotong University, Xi'an 710049)

(Received 29 September 1998; revised manuscript received 14 December 1998)

ABSTRACT

We have studied theoretically a beat effect in a four-level system due to fifth-order optical polarization, and considered the cases that the pump beams have either narrowband or broadband linewidth. We have found that the accuracy for the energy-level splitting measurement is determined by the homogeneous linewidths of the optical transitions. That is to say, this technique can achieve Doppler-free precision in the measurement of the energy level splitting between two excited states which are dipolar forbidden from the ground state.

PACC: 4265; 3290

* Project supported by the Science Foundation of Xi'an Jiaotong University (Grant No. 9804), China.