

利用相位共轭极化拍频光谱术测量 原子能级差与激光绝对频率*

张彦鹏 甘琛利 朱京平 唐天同

(西安交通大学光电子系, 西安 710049)

傅盘铭

(中国科学院物理研究所, 北京 100080)

(1998 年 11 月 30 日收到; 1999 年 1 月 12 日收到修改稿)

研究了级联三能级系统中的相位共轭极化拍频光谱术. 发现其对能级差的测量精度决定于光学跃迁的均匀增宽. 在符合拍频条件时, 两独立光源拍频的频差可以超出激光线宽, 激光绝对频率的测量精度可达到与激光线宽同一量级.

PACC: 4265; 3290

1 引 言

激光的绝对频率和原子能级差测量在光谱学中具有重要的应用前景. 迄今为止, 最精确的方法是将待测频率的激光与已知频率的参考光在探测器上直接拍频^[1]. 通过测量拍频频率可以得到待测光的频率. 此方法要求激光为单模而且频率稳定. 其次, 由于探测器响应速率的限制, 两束激光的频率需在几个 GHz 之内. 由于目前只有少数激光光源可以用于参考光, 为了使待测光与参考光的频率尽可能接近, 一般需通过和频、差频或参量振荡来改变激光频率, 最后再与微波混频. 此方法的缺点首先是需要的设备非常复杂, 其中包括昂贵的微波设备; 其次对于任何一个频率的测量都需设计一套特殊的方案, 因此通用性差. 若利用相位共轭极化拍频光谱术来实现两个独立光源之间的拍频, 可以克服在探测器上直接拍频的缺点. 首先, 它不要求激光为单模, 频差范围将不再受探测器响应速率的限制, 通用性好; 其次, 它对激光绝对频率的测量可达到与激光线宽同一量级的精度, 对能级差的测量精度仅仅决定于光学跃迁的均匀增宽.

2 理 论

在级联三能级系统中, $|0\rangle$ 是基态, $|1\rangle$ 为中间态, $|2\rangle$ 是激发态, $|0\rangle$ 到 $|2\rangle$ 为偶极禁戒跃迁 (见图 1). 所有入射光束都具有相同方向的线偏振, 几何配制如图 2 所示, 抽运光 1、

* 西安交通大学科研基金(批准号: 9804)资助的课题.

抽运光 2 中场含有两个频率成分 ω_1, ω_2 , 分别接近从 $|0\rangle$ 到 $|1\rangle$ 、从 $|1\rangle$ 到 $|2\rangle$ 的共振跃迁频率 Ω_1, Ω_2 . 光束 3 的频率为 ω_3 , 假定 $\omega_3 \approx \Omega_1, \omega_1$ 通过共振激发诱导基态布局栅, 探测光束 3 被衍射后, 产生了单光子简并四波混频(DFWM)信号, 频率为 ω_3 , 出射方向沿 $\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}'_1 + \mathbf{k}_3$. 而双光子的非简并四波混频(NDFWM)过程是先在意级三能级系统中, 抽运光 1 与抽运光 3 发生了 $\omega_3 + \omega_2$ 的双光子过程, 然后探测光 2 (ω_2) 检测, 产生了频率为 ω_3 的双光子(NDFWM)信号, 出射方向沿 $\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}'_2 + \mathbf{k}_3$. 沿光束 4 方向可以接收到单光子 DFWM 过程和双光子 NDFWM 过程间形成的拍频信号.

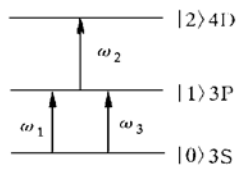


图 1 能级位形图

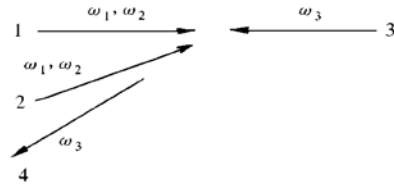


图 2 几何配置图

光束 1、光束 2 的复电场可描述如下:

$$\begin{aligned}
 E_{P1} &= A_1(\mathbf{r}, t) \exp(-i\omega_1 t) + A_2(\mathbf{r}, t) \exp(-i\omega_2 t) \\
 &= \epsilon_1 u_1(t) \exp[i(\mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{r} - \omega_1 t)] + \epsilon_2 u_2(t) \exp[i(\mathbf{k}_2 \cdot \mathbf{r} - \omega_2 t)], \\
 E_{P2} &= A'_1(\mathbf{r}, t) \exp(-i\omega_1 t) + A'_2(\mathbf{r}, t) \exp(-i\omega_2 t) \\
 &= \epsilon'_1 u_1(t - \tau) \exp[i(\mathbf{k}'_1 \cdot \mathbf{r} - \omega_1 t + \omega_1 \tau)] \\
 &\quad + \epsilon'_2 u_2(t - \tau) \exp[i(\mathbf{k}'_2 \cdot \mathbf{r} - \omega_2 t + \omega_2 \tau)],
 \end{aligned}$$

式中 ϵ_i, \mathbf{k}_i ($\epsilon'_i, \mathbf{k}'_i$) 为光束 1(光束 2) 中 ω_i 分量的光场振幅和波矢量, $u_i(t)$ 为描述光场相位和振幅涨落的无量纲扰动因子, τ 为光束 1、光束 2 之间的相对时间延迟.

在 DeBeer 的自衍射几何配制中^[2], 信号强度包含六阶相干函数, 在我们的相位共轭几何配制中, 因光束 3 沿光束 1 的反方向前进, 它与光束 1、光束 2 不存在时延上的关联, 有 $\langle u_3(t) u_3^*(t) \rangle = 1$, 信号强度只包含四阶相干函数, 故我们可假定光束 3 为单色光.

$$E_{P3} = A_3(\mathbf{r}, t) \exp(-i\omega_3 t) = \epsilon_3 \exp[i(\mathbf{k}_3 \cdot \mathbf{r} - \omega_3 t)].$$

光束 3 中不存在统计因子 $u_3(t)$, ϵ_3 和 \mathbf{k}_3 分别为光场振幅和波矢量.

四波混频信号与三阶非对角密度矩阵元 $\rho_{10}^{(3)}$ 相关, $\rho_{10}^{(3)}$ 可通过以下微扰链计算:

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

链(I), (II), (III), (IV) 对应于单光子共振 DFWM 过程, 链(V) 对应于双光子共振

NDFWM 过程. 利用密度矩阵动力学方程, 可求解以上微扰链, 得到了具有波矢量 $\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}'_1 + \mathbf{k}_3$ 或 $\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}'_2 + \mathbf{k}_3$ 的 5 个三阶非对角密度矩阵元 $\rho_{10}^{(3)}$.

在多普勒增宽系统中, 极化强度为

$$P^{(3)} = N \mu_1 \int_{-\infty}^{+\infty} dv w(v) \rho_{10}^{(3)}(v),$$

式中 $w(v) = \frac{1}{\sqrt{\pi}u} \exp[-(v/u)^2]$, $u = \sqrt{2k_B T/m}$, 其中 v 为原子速度, N 为原子数, m 为原子质量, k_B 为玻耳兹曼常数, T 为绝对温度. 在整个任意变量的随机过程中拍频信号正比于 $P^{(3)}$ 绝对值平方的平均值. 若采用自衍射几何配制, 拍频信号强度将与六阶相干函数有关. 由于采用相位共轭几何配制, 拍频信号强度仅与四阶相干函数有关, 假定抽运光 1、抽运光 2 是多模热源的混沌统计模式, 遵从高斯统计规律

$$\begin{aligned} & \langle u_i(t_1) u_i(t_2) u_i^*(t_3) u_i^*(t_4) \rangle \\ &= \langle u_i(t_1) u_i^*(t_3) \rangle \langle u_i(t_2) u_i^*(t_4) \rangle \\ &+ \langle u_i(t_1) u_i^*(t_4) \rangle \langle u_i(t_2) u_i^*(t_3) \rangle \quad (i = 1, 2). \end{aligned}$$

而我们只关心与 τ 有关的信号, 信号强度 $I(\tau) \propto |\langle P^{(3)} \rangle|^2$, 式中仅包含二阶相干函数.

抽运光为洛仑兹线型时,

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

抽运光为高斯线型时,

$$\begin{aligned} \langle u_i(t_1) u_i^*(t_2) \rangle &= \exp\left[-\left|\frac{\alpha_i}{2\sqrt{\ln 2}}(t_1 - t_2)\right|^2\right] \\ &= \exp\{-[\beta_i(t_1 - t_2)]^2\} \quad (i = 1, 2), \end{aligned}$$

式中 $\alpha_i = \frac{1}{2} \delta \omega_i$, $\delta \omega_i$ 为 ω_i 的激光线宽.

抽运光为洛仑兹线型时, 我们可得极化强度的统计平均值,

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

式中

$$\begin{aligned} P^{(I)} &= S_1(\mathbf{r}) \exp[-i(\omega_3 t + \omega_1 \tau)] \int_{-\infty}^{+\infty} dv w(v) \int_0^\infty dt_3 \int_0^\infty dt_2 \int_0^\infty dt_1 \\ &\quad \times \exp[-i\theta_I(v)] H_1(t_1) H_2(t_2) H_3(t_3) \exp(-\alpha_1 |t_1 - \tau|), \\ P^{(II)} &= S_1(\mathbf{r}) \exp[-i(\omega_3 t + \omega_1 \tau)] \int_{-\infty}^{+\infty} dv w(v) \int_0^\infty dt_3 \int_0^\infty dt_2 \int_0^\infty dt_1 \\ &\quad \times \exp[-i\theta_{II}(v)] H_1^*(t_1) H_2(t_2) H_3(t_3) \exp(-\alpha_1 |t_1 + \tau|), \\ P^{(III)} &= S_1(\mathbf{r}) \exp[-i\omega_3 t - i\omega_1 \tau] \int_{-\infty}^{+\infty} dv w(v) \int_0^\infty dt_3 \int_0^\infty dt_2 \int_0^\infty dt_1 \\ &\quad \times \exp[-i\theta_I(v)] H_1(t_1) H_4(t_2) H_3(t_3) \exp(-\alpha_1 |t_1 - \tau|), \\ P^{(IV)} &= S_1(\mathbf{r}) \exp[-i\omega_3 t - i\omega_1 \tau] \int_{-\infty}^{+\infty} dv w(v) \int_0^\infty dt_3 \int_0^\infty dt_2 \int_0^\infty dt_1 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
& \times \exp[-i\theta_{\text{II}}(v)]H_1^*(t_1)H_4(t_2)H_3(t_3)\exp(-\alpha_1|t_1 + \tau|), \\
P^{(V)} = & S_2(\mathbf{r})\exp[-i\omega_3 t - i\omega_2 \tau] \int_{-\infty}^{+\infty} dv w(v) \int_0^{\infty} dt_3 \int_0^{\infty} dt_2 \int_0^{\infty} dt_1 \\
& \times \exp[-i\theta_{\text{III}}(v)]H_3(t_1)H_5(t_2)H_3(t_3)\exp(-\alpha_2|t_2 - \tau|),
\end{aligned}$$

式中

$$\begin{aligned}
S_1(\mathbf{r}) = & -i\hbar N \left[\frac{\mu_1}{\hbar} \right]^4 \epsilon_1(\epsilon'_1)^* \epsilon_3 \exp[i(\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}'_1 + \mathbf{k}_3) \cdot \mathbf{r}], \\
S_2(\mathbf{r}) = & -i\hbar N \left[\frac{\mu_1}{\hbar} \right]^2 \left[\frac{\mu_3}{\hbar} \right]^2 \epsilon_2(\epsilon'_2)^* \epsilon_3 \exp[i(\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}'_2 + \mathbf{k}_3) \cdot \mathbf{r}], \\
\theta_1(v) = & v \cdot [\mathbf{k}_1(t_1 + t_2 + t_3) - \mathbf{k}'_1(t_2 + t_3) + \mathbf{k}_3 t_3], \\
\theta_{\text{II}}(v) = & v \cdot [-\mathbf{k}'_1(t_1 + t_2 + t_3) + \mathbf{k}_1(t_2 + t_3) + \mathbf{k}_3 t_3], \\
\theta_{\text{III}}(v) = & v \cdot [\mathbf{k}_3(t_1 + t_2 + t_3) + \mathbf{k}_2(t_1 + t_2) - \mathbf{k}'_2 t_3], \\
H_1(t) = & \exp[-(\Gamma_{10} + i\Delta_1)t], \\
H_2(t) = & \exp(-\Gamma_0 t), \\
H_3(t) = & \exp[-(\Gamma_{10} + i\Delta_3)t], \\
H_4(t) = & \exp(-\Gamma_1 t), \\
H_5(t) = & \exp[-(\Gamma_{20} + i\Delta_2 + i\Delta_3)t],
\end{aligned}$$

这里, $\Delta_1 = \Omega_1 - \omega_1$, $\Delta_2 = \Omega_2 - \omega_2$, $\Delta_3 = \Omega_1 - \omega_3$; Γ_0, Γ_1 为 $|0\rangle, |1\rangle$ 的纵向弛豫率; Γ_{10}, Γ_{20} 为从 $|0\rangle$ 到 $|1\rangle$ 、从 $|0\rangle$ 到 $|2\rangle$ 的横向弛豫率; μ_1, μ_3 分别为从 $|0\rangle$ 到 $|1\rangle$ 、从 $|1\rangle$ 到 $|2\rangle$ 的跃迁偶极矩; $\xi_1 = k_1/k_3$, $\xi_2 = k_2/k_3$.

2.1 窄带情形

抽运光为洛仑兹线型, 且 $\alpha_1 \ll \Gamma_{10}$, $\alpha_2 \ll \Gamma_{20}$ 时, 拍频信号强度为

$$\begin{aligned}
I(\tau) \propto & |B_1|^2 \exp(-2\alpha_1|\tau|) + |\eta B_2|^2 \exp(-2\alpha_2|\tau|) + \exp[-(\alpha_1 + \alpha_2)|\tau|] \\
& \times \{ \eta B_1^* B_2 \exp[-i(\omega_2 - \omega_1)\tau] + \eta^* B_1 B_2^* \exp[i(\omega_2 - \omega_1)\tau] \}. \quad (1)
\end{aligned}$$

在忽略多普勒效应时,

$$\begin{aligned}
B_1 = & \left[\frac{1}{\Gamma_0} + \frac{1}{\Gamma_1} \right] \frac{2\Gamma_{10}}{(\Gamma_{10} + i\Delta_3)(\Gamma_{10}^2 + \Delta_1^2)}, \\
B_2 = & \frac{1}{(\Gamma_{10} + i\Delta_3)^2 (\Gamma_{20} + i\Delta_2 + i\Delta_3)}, \\
\eta \approx & \frac{\mu_3^2}{\mu_1^2} \left[\frac{\epsilon_2(\epsilon'_2)^*}{\epsilon_1(\epsilon'_1)^*} \right].
\end{aligned}$$

(1) 式表明在窄带情形下, 拍频信号呈现阻尼振荡, 调制频率为 $\omega_2 - \omega_1$, 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为 $\pi(\alpha_1 + \alpha_2)$. 若已知频率 ω_1 , 则通过调制频率的测量可得激光的频率 ω_2 . 亦即相位共轭极化拍频光谱术可用作激光的绝对频率测量. 而能级差的测量精度取决于把 ω_1 和 ω_2 分别调到 Ω_1 和 Ω_2 的好坏, 这种情况对应于频域中的饱和吸收光谱学, 因此测量能级差 $\Omega_2 - \Omega_1$ 时可得

到消除多普勒增宽的精度.

2.2 光子回波法讨论宽带情形

当抽运光为高斯线型时, 从光子回波的角度讨论宽带情形. Morita 和 Yajima^[3] 曾提出, 用非相干光时延四波混频的相干瞬态光谱技术测量能级系统的弛豫时间时, 其时间分辨率取决于激光的相干时间 τ_c . 在三能级系统中, 由于相位匹配条件 $k_1 - k'_1 + k_3$ 和 $k_2 - k'_2 + k_3$, 光子回波只能在链(I), (III), (V) 中发生^[4].

抽运光为高斯线型时, 可得极化强度的统计平均值

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

式中

$$\begin{aligned} P^{(I)} &= S_1(\mathbf{r}) \exp[-i(\omega_3 t + \omega_1 \tau)] \int_{-\infty}^{+\infty} dv w(v) \int_0^{\infty} dt_3 \int_0^{\infty} dt_2 \int_0^{\infty} dt_1 \\ &\quad \times \exp[-i\theta_I(v)] H_1(t_1) H_2(t_2) H_3(t_3) \exp[-\beta_1^2(t_1 - \tau)^2], \\ P^{(II)} &= S_1(\mathbf{r}) \exp[-i(\omega_3 t + \omega_1 \tau)] \int_{-\infty}^{+\infty} dv w(v) \int_0^{\infty} dt_3 \int_0^{\infty} dt_2 \int_0^{\infty} dt_1 \\ &\quad \times \exp[-i\theta_{II}(v)] H_1^*(t_1) H_2(t_2) H_3(t_3) \exp[-\beta_1^2(t_1 + \tau)^2], \\ P^{(III)} &= S_1(\mathbf{r}) \exp[-i\omega_3 t - i\omega_1 \tau] \int_{-\infty}^{+\infty} dv w(v) \int_0^{\infty} dt_3 \int_0^{\infty} dt_2 \int_0^{\infty} dt_1 \\ &\quad \times \exp[-i\theta_I(v)] H_1(t_1) H_4(t_2) H_3(t_3) \exp[-\beta_1^2(t_1 - \tau)^2], \\ P^{(IV)} &= S_1(\mathbf{r}) \exp[-i\omega_3 t - i\omega_1 \tau] \int_{-\infty}^{+\infty} dv w(v) \int_0^{\infty} dt_3 \int_0^{\infty} dt_2 \int_0^{\infty} dt_1 \\ &\quad \times \exp[-i\theta_{II}(v)] H_1^*(t_1) H_4(t_2) H_3(t_3) \exp[-\beta_1^2(t_1 + \tau)^2], \\ P^{(V)} &= S_2(\mathbf{r}) \exp[-i\omega_3 t - i\omega_2 \tau] \int_{-\infty}^{+\infty} dv w(v) \int_0^{\infty} dt_3 \int_0^{\infty} dt_2 \int_0^{\infty} dt_1 \\ &\quad \times \exp[-i\theta_{III}(v)] H_3(t_1) H_5(t_2) H_3(t_3) \exp[-\beta_2^2(t_2 - \tau)^2]. \end{aligned}$$

在多普勒极限增宽情形($k_3 u \rightarrow \infty$)下, 且 $\xi_2 > 1$ 时,

$$\begin{aligned} \int_{-\infty}^{+\infty} dv W(v) \exp[-i\theta_I(v)] &\approx \frac{2\sqrt{\pi}}{K_3 u} \delta(t_3 - \xi_1 t_1), \\ \int_{-\infty}^{+\infty} dv W(v) \exp[-i\theta_{II}(v)] &\approx \frac{2\sqrt{\pi}}{K_3 u} \delta(t_3 + \xi_1 t_1), \\ \int_{-\infty}^{+\infty} dv W(v) \exp[-i\theta_{III}(v)] &\approx \frac{2\sqrt{\pi}}{K_3 u} \delta(t_1 + t_2 + t_3 - \xi_2 t_2), \end{aligned}$$

则 $P^{(II)} = P^{(IV)} = 0$.

(i) 抽运光为宽带($\alpha_1 \gg \Gamma_{10}$, $\alpha_2 \gg \Gamma_{20}$), 且 $\tau > 0$ 时,

$$\begin{aligned} \exp\left[-\left[\frac{\alpha_1}{2\sqrt{\ln 2}}(t_1 - \tau)\right]^2\right] &= \exp[-\beta_1(t_1 - \tau)^2] \approx \frac{\sqrt{\pi}}{\beta_1} \delta(t_1 - \tau), \\ \exp\left[-\left[\frac{\alpha_2}{2\sqrt{\ln 2}}(t_2 - \tau)\right]^2\right] &= \exp[-\beta_2(t_2 - \tau)^2] \approx \frac{\sqrt{\pi}}{\beta_2} \delta(t_2 - \tau), \end{aligned}$$

则

$$P^{(I)} = \frac{2\pi S_1(\mathbf{r})}{k_3 u \Gamma_0 \beta_1} \exp(-i\omega_3 t) \exp(-\Gamma_{10}^a \tau) \exp[-i(\Omega_1 + \xi_1 \Delta_3) \tau],$$

$$P^{(III)} = \frac{2\pi S_1(\mathbf{r})}{k_3 u \Gamma_1 \beta_1} \exp(-i\omega_3 t) \exp(-\Gamma_{10}^a \tau) \exp[-i(\Omega_1 + \xi_1 \Delta_3) \tau],$$

$$P^{(V)} = \frac{2\pi S_2(\mathbf{r})}{k_3 u \beta_2} (\xi_2 - 1) \tau \exp(-i\omega_3 t) \exp[-(\Gamma_{20}^a - \Gamma_{10}) \tau] \exp[-i(\Omega_2 + \xi_2 \Delta_3) \tau].$$

$P^{(I)}$, $P^{(III)}$ 是单光子 FWM 过程, 分别是与基态 $|0\rangle$ 、中间态 $|1\rangle$ 的布局栅有关的三脉冲受激光子回波. $P^{(V)}$ 是双光子 FWM 过程, 对应于 $|0\rangle$ 和 $|2\rangle$ 间双光子相干的和频三能级光子回波.

拍频信号强度为

$$\begin{aligned} I(\tau) &\propto |\langle P^{(3)} \rangle|^2 \\ &\propto \frac{1}{\beta_1^2} \exp(-2\Gamma_{10}^a \tau) \left[\frac{1}{\Gamma_0} + \frac{1}{\Gamma_1} \right]^2 + \frac{|\eta|^2}{\beta_2^2} (\xi_2 - 1)^2 \tau^2 \exp[-2(\Gamma_{20}^a - \Gamma_{10}) \tau] \\ &\quad + \left[\frac{1}{\Gamma_0} + \frac{1}{\Gamma_1} \right] \frac{(\xi_2 - 1) \tau}{\beta_1 \beta_2} \exp[-(\Gamma_{20}^a + \Gamma_{10}^a - \Gamma_{10}) \tau] \\ &\quad \times \{ \eta \exp[-i(\Omega_2 - \Omega_1) \tau - i(\xi_2 - \xi_1) \Delta_3 \tau] \\ &\quad + \eta^* \exp[i(\Omega_2 - \Omega_1) \tau + i(\xi_2 - \xi_1) \Delta_3 \tau] \}, \end{aligned} \quad (2)$$

式中

$$\begin{aligned} \Gamma_{10}^a &= \Gamma_{10} + \xi_1 \Gamma_{10}, & \Gamma_{20}^a &= \Gamma_{20} + \xi_2 \Gamma_{10}, \\ \Delta_1^a &= \Delta_1 + \xi_1 \Delta_3, & \Delta_2^a &= \Delta_2 + \xi_2 \Delta_3. \end{aligned}$$

由(2)式可以看出, 宽带 $\tau > 0$ 时, 对应于相干瞬态光谱学中的光子回波效应, 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. FWM 信号的调制频率为 $(\Omega_2 - \Omega_1) + (\xi_2 - \xi_1) \Delta_3$, 衰变率为 $\Gamma_{20}^a + \Gamma_{10}^a - \Gamma_{10}$. 我们通过完成 DFWM 或饱和吸收光谱实验使 ω_3 接近多普勒线型中央, 即 $\Delta_3 = 0$, 调制频率为 $\Omega_2 - \Omega_1$. 故能级差测量精度可认为是调制频率测量精度, 调制信号的衰变率为 $\Gamma_{20}^a + \Gamma_{10}^a - \Gamma_{10}$, 能级差测量精度为 $\pi(\Gamma_{20}^a + \Gamma_{10}^a - \Gamma_{10})$, 可见宽带时能级差 $\Omega_2 - \Omega_1$ 测量的总体精度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.

(ii) 宽带 ($\alpha_1 \gg \Gamma_{10}$, $\alpha_2 \gg \Gamma_{20}$), 且 $\tau < 0$, 由于

$$\exp(-\beta_1^2 |t_1 - \tau|^2) \approx \frac{\sqrt{\pi}}{\beta_1} \delta(t_1 - \tau) = 0,$$

$$\exp(-\beta_2^2 |t_2 - \tau|^2) \approx \frac{\sqrt{\pi}}{\beta_2} \delta(t_2 - \tau) = 0,$$

则

$$P^{(I)} = P^{(III)} = P^{(V)} = 0.$$

故 $\tau < 0$ 时, 不可能发生光子回波, 根据相位匹配条件, $\tau < 0$ 时, 要出现 FWM 信号, 只有光束中相位相关子脉冲在时间上重叠, 此时光束间是相互相干的, FWM 信号的时间特性与上述窄带情形(1)式类似.

2.3 不考虑扰动因子 $u_i(t)$ 情形

如果我们假定抽运光均为单色光, 即不考虑统计因子 $u_i(t)$ 时, 则无须考虑激光线宽与光学跃迁均匀增宽的比值, 在多普勒极限情形下 ($k_3 u \rightarrow \infty$), 无论抽运光为洛仑兹线型或高斯线型, 信号强度有统一的表达式,

$$I(\tau) \propto \left[\frac{1}{\Gamma_0} + \frac{1}{\Gamma_1} \right]^2 \frac{1}{(\Gamma_{10}^a)^2 + (\Delta_1^a)^2} |\eta|^2 \frac{1}{[(\Gamma_{20}^a - \Gamma_{10})^2 - (\Delta_2^a)^2]^2 + [2(\Gamma_{20}^a - \Gamma_{10}) \Delta_2^a]^2} + \left[\frac{1}{\Gamma_0} + \frac{1}{\Gamma_1} \right] \left[\frac{\eta}{(\Gamma_{10}^a - i\Delta_1^a)(\Gamma_{20}^a - \Gamma_{10} + i\Delta_2^a)^2} \exp[-i(\omega_2 - \omega_1)\tau] + \frac{\eta^*}{(\Gamma_{10}^a + i\Delta_1^a)(\Gamma_{20}^a - \Gamma_{10} - i\Delta_2^a)^2} \exp[i(\omega_2 - \omega_1)\tau] \right]. \quad (3)$$

随着时延 τ 的变化, 混频信号以 $\omega_2 - \omega_1$ 的调制频率呈现等幅振荡, 可见不考虑扰动因子 $u_i(t)$ 时, 无法直接反映原子的能级结构. 信号表达式对各种线型的抽运光都适用.

3 实验与结论

我们在以 $3S$ 为基态, $3P$ 为中间态, $4D$ 为激发态的钠蒸气级联三能级系统中, 让脉冲宽度为 5 ns , 线宽为 0.01 nm 的两台染料激光器的波长 $589, 568.8 \text{ nm}$ 分别对应从 $3S_{1/2}$ 到 $3P_{3/2}$ 、从 $3P_{3/2}$ 到 $4D_{3/2, 5/2}$ 的偶极跃迁. 通过完成第一个单光子共振 DFWM 实验得 589 nm 的相干时间(见图 3), 通过完成第二双光子共振 NDFWM 实验得 568.8 nm 的相干时间(见图 4)^[5]. 最后完成了单光子 DFWM 和双光子 NDFWM 过程之间的拍频实验(见图 5). 得拍频信号的调制频率为 114 ps^{-1} (见图 6), 它相应于 $3S_{1/2} - 3P_{3/2}$, $3P_{3/2} - 4D_{3/2, 5/2}$ 两个共振跃迁之间的拍频, 调制周期为 55.28 fs , 也就是用纳秒脉冲宽度激光器得到了飞秒量级的分辨率.

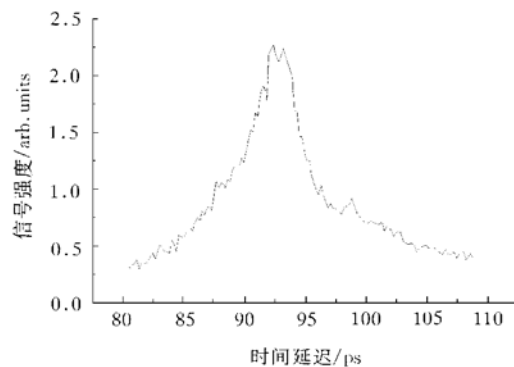


图 3 589 nm 的相干时间

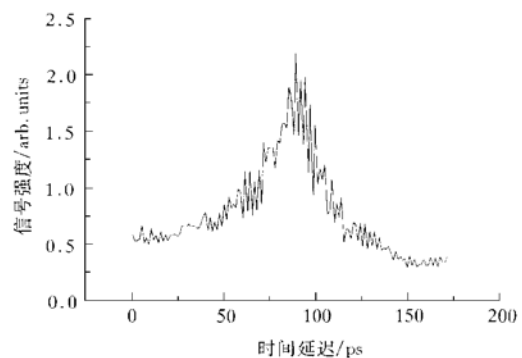


图 4 568.8 nm 的相干时间

窄带和宽带结论的主要区别是前者调制频率为 $\omega_2 - \omega_1$, 后者为 $\Omega_2 - \Omega_1$. 窄带时, 单光子共振 DFWM 和双光子共振 NDFWM 分别对应于频域中的饱和吸收光谱和双光子吸

收光谱^[5],然而与传统频域技术不同的是激光频率无须准确定标.宽带时,单光子共振DFWM与双光子共振NDFWM分别对应于时域中的三脉冲受激光子回波与和频三能级光子回波,但其时间分辨率仅取决于光学跃迁的均匀增宽,区别于传统相干瞬态光谱学的时间分辨率受激光脉冲宽度的限制.相位共轭极化拍频光谱术对能级差的测量精度决定于光学跃迁的均匀增宽.在符合拍频条件时,两独立光源拍频的频差可以超出激光线宽,激光绝对频率的测量精度可达到与激光线宽同一量级.

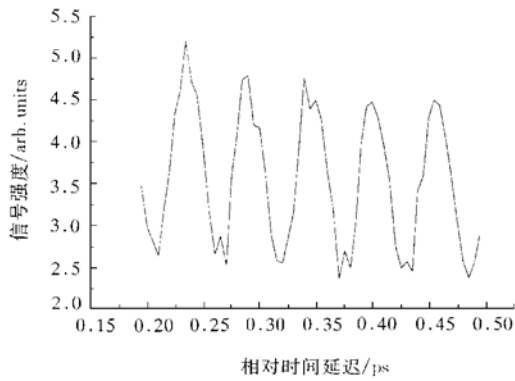


图5 拍频信号强度随相对时间延迟变化的结果

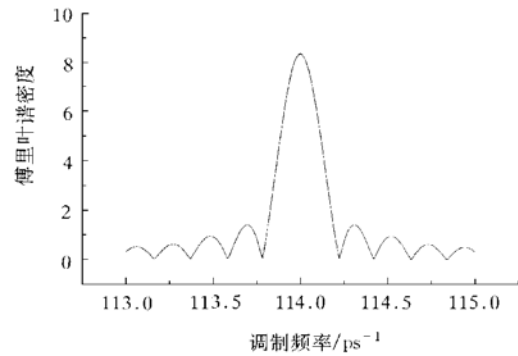


图6 实验数据的傅里叶频谱图

- [1] D. A. Jennings, C. R. Pollock, F. R. Petersen, R. E. Drullinger, K. M. Evenson, J. S. Wells, J. L. Hall, H. P. Layer, *Opt. Lett.*, **8**(1983), 136.
- [2] D. DeBeer, V. G. Van Wagenen, R. Beach, S. R. Hartmann, *Phys. Rev. Lett.*, **56**(1986), 1128.
- [3] N. Morita, T. Yajima, *Phys. Rev.*, **A30**(1984), 2525.
- [4] T. W. Mossberg, R. Kachru, S. R. Hartmann, A. M. Flusberg, *Phys. Rev.*, **A20**(1979), 1976.
- [5] P. M. Fu, X. Mi, Z. H. Yu, Q. Jiang, Y. P. Zhang, X. F. Li, *Phys. Rev.*, **A52**(1995), 4867.

ENERGY-LEVEL DIFFERENCE AND LASER ABSOLUTE FREQUENCY MEASUREMENT BY POLARIZATION BEATS SPECTROSCOPY WITH PHASE-CONJUGATION GEOMETRY*

ZHANG YAN-PENG GAN CHEN-LI ZHU JING-PING TANG TIAN-TONG

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

FU PAN-MING

(*Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100080*)

(Received 30 November 1998; revised manuscript received 12 January 1999)

ABSTRACT

We have studied the polarization beats spectroscopy with phase-conjugation geometry in a cascade three-level system. It was found that the accuracy for the energy-level difference measurement is determined by the homogeneous linewidths of the optical transitions. Under the condition for the occurrence of beating, the frequency difference of the beat between two independent light sources could exceed the laser linewidth. The measurement accuracy for laser absolute frequency could reach the same order of magnitude as the laser linewidth.

PACC: 4265; 3290

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