

利用场关联效应抑制瑞利型非简并四波混频的热背底*

孙 江 姜 谦 米 辛 俞祖和 傅盘铭

(中国科学院物理研究所光物理实验室, 北京 100080)

(2003 年 3 月 28 日收到; 2003 年 5 月 20 日收到修改稿)

瑞利型非简并四波混频是测量物质超快纵向弛豫时间的有效手段, 将场关联原理应用于具有热吸收的样品中瑞利型非简并四波混频的热背底抑制, 给出了抑制热背底的条件, 并通过数值模拟证明了其可行性.

关键词: 四波混频, 场关联, 超快测量

PACC: 4256M, 4250V

1. 引 言

近年来, 由于激光技术的发展使得飞秒非线性光谱学成为研究物质超快现象的有力工具^[1-6]. 例如, 人们用时间分辨四波混频方法研究了半导体和分子材料的弛豫过程. 但是, 这种方法的时间分辨率受激光脉冲宽度的限制. 最近, 我们报道了使用瑞利型非简并四波混频 (NFWM) 来测量物质的纵向弛豫时间^[7]. 不同于传统的时间领域技术, 瑞利型 NFWM 是一种频率域的非线性光谱学方法, 因此, 时间分辨率不再受激光脉冲宽度的限制. 例如, 我们使用 5 ns 脉冲宽度的激光器在 CS₂ 样品中测量到了 1.7 ps 和 220 fs 的弛豫过程.

瑞利型 NFWM 的特点之一是如果激光的线宽比物质的弛豫速率大, 则其频谱依赖于两激光束之间的相对延迟. 从物理上讲, 它反映了非线性光学中激光场随机起伏的影响^[8-10]. 基于这一特点, 我们提出了一种新颖的方法来抑制非共振热背底^[7], 从而使瑞利型 NFWM 技术在即使具有热吸收的介质中, 同样可以测得样品的超快纵向弛豫时间. 为了证实这种方法的有效性, 本文在具有两个不同弛豫分量的光学科尔介质中, 发展了瑞利型 NFWM 理论. 我们研究了瑞利型 NFWM 频谱的场关联效应, 给出了热效应可被忽略的条件, 并通过数值模拟进行了论证.

2. 基本理论

瑞利型 NFWM 是一种有三束入射光参加作用的三阶非线性现象. 如图 1 所示, 光束 1 和光束 2 具有相同的频率 ω_1 , 在它们之间有一个很小的夹角 θ . 光束 3 的频率为 ω_3 , 它沿光束 1 的相反方向传播. 瑞利型 NFWM 信号包含两个来源. 第一, 光束 1 和 2 在介质中感生一个静态栅. 光束 3 被这个静态栅衍射, 产生的混频信号的频率为 ω_3 , 它沿几乎与光束 2 的相反方向前进. 第二, 光束 2 和光束 3 在介质中干涉感生出一个以频率 $|\omega_1 - \omega_3|$ 运动的运动栅. 光束 1 被这个运动栅衍射, 产生频率为 ω_3 的混频信号.

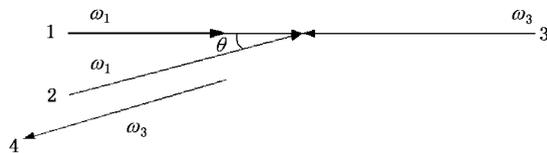


图 1 瑞利型非简并四波混频结构示意图

激光的复数光场可以写为

$$\begin{aligned} E_i(\mathbf{r}, t) &= A_i(\mathbf{r}, t) \exp(-i\omega_i t) \\ &= \epsilon_i u_i(t) \exp[i(\mathbf{k}_i \cdot \mathbf{r} - \omega_i t)], \end{aligned} \quad (i = 1, 2, 3), \quad (1)$$

ϵ_i , \mathbf{k}_i 分别是第 i 个光束的常数场振幅和波矢. $u_i(t)$ 是包括了位相和振幅起伏的无量纲因子. 假设

* 国家自然科学基金(批准号: 10174096)资助的课题.

光束 1 和 2 来自同一个激光光源, 因此有 $u_1(t) = u(t - \tau)$, $u_2(t) = u(t)$. 这里的 τ 是光束 1 相对于光束 2 的延迟时间. 我们进一步假设光学克尔效应有两个分量, 分别对应着非线性极化率 χ_1 和 χ_2 , 感生光栅的弛豫速率 γ_1 和 γ_2 . 于是, 对应于瑞利型 NFWM 的非线性极化为

$$P(\mathbf{r}, t) = \sum_{n=1}^2 [P_n^{(1)}(\mathbf{r}, t) + P_n^{(3)}(\mathbf{r}, t)],$$

其中

$$P_n^{(1)}(\mathbf{r}, t) = Q_n^{(1)}(\mathbf{r}, t)E_3(\mathbf{r}, t),$$

$$P_n^{(3)}(\mathbf{r}, t) = Q_n^{(3)}(\mathbf{r}, t)E_1(\mathbf{r}, t),$$

$Q_n^{(1)}(\mathbf{r}, t)$ 和 $Q_n^{(3)}(\mathbf{r}, t)$ 分别是由光束 1 和 2 以及光束 2 和 3 感生的光栅的序参数. 它们满足^[11]

$$\begin{aligned} & \frac{\partial Q_n^{(1)}}{\partial t} + \gamma_n Q_n^{(1)} \\ &= \gamma_n \chi_n A_1 A_2^* \exp[i(\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2) \cdot \mathbf{r}], \\ & \frac{\partial Q_n^{(3)}}{\partial t} + \gamma_n Q_n^{(3)} \\ &= \gamma_n \chi_n A_3 A_2^* \exp[i(\mathbf{k}_3 - \mathbf{k}_2) \cdot \mathbf{r} - \Delta t], \\ & (n = 1, 2). \end{aligned} \quad (2)$$

这里 $\Delta = \omega_3 - \omega_1$. 通过解方程 (2) 得到

$$\begin{aligned} P_n^{(1)}(\mathbf{r}, t) &= S(\mathbf{r}, t) \left\{ \chi_n \gamma_n A_3(t) \right. \\ & \times \int_0^\infty dt' A_1(t - t') A_2^*(t - t') \\ & \times \exp[-\gamma_n t'] \left. \right\} \\ &= S(\mathbf{r}, t) \left\{ \chi_n \gamma_n \varepsilon_1 \varepsilon_2^* \varepsilon_3 \right. \\ & \times \int_0^\infty dt' u(t - t' - \tau) u^*(t - t') u_3(t) \\ & \times \exp[-\gamma_n t'] \left. \right\}, \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} P_n^{(3)}(\mathbf{r}, t) &= S(\mathbf{r}, t) \left\{ \chi_n \gamma_n A_1(t) \right. \\ & \times \int_0^\infty dt' A_2^*(t - t') A_3(t - t') \\ & \times \exp[-(\gamma_n - i\Delta)t'] \left. \right\} \\ &= S(\mathbf{r}, t) \left\{ \chi_n \gamma_n \varepsilon_1 \varepsilon_2^* \varepsilon_3 \right. \\ & \times \int_0^\infty dt' u(t - \tau) u^*(t - t') u_3(t - t') \\ & \times \exp[-(\gamma_n - i\Delta)t'] \left. \right\}, \\ & (n = 1, 2), \end{aligned} \quad (3)$$

其中

$$S(\mathbf{r}, t) = \exp\{i[(\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2 + \mathbf{k}_3) \cdot \mathbf{r} - \omega_3 t]\}.$$

非简并四波混频的信号强度正比于极化强度绝对值的平方对随机变量的统计平均, 即 $I \propto |P|^2$, 它包含了 $u(t)$ 的四阶相干函数. 假定入射光束是多模热光源, 此时 $u(t)$ 服从高斯统计, 其四阶相干函数满足^[12]

$$\begin{aligned} & u(t_1)u(t_2)u^*(t_3)u^*(t_4) \\ &= u(t_1)u^*(t_3)u(t_2)u^*(t_4) \\ & \quad + u(t_1)u^*(t_4)u(t_2)u^*(t_3). \end{aligned} \quad (4)$$

如果激光光源具有洛伦兹线形, 我们有

$$\begin{aligned} u(t)u^*(t - \tau) &= \exp(-\alpha|\tau|), \\ u_3(t)u_3^*(t - \tau) &= \exp(-\alpha_3|\tau|). \end{aligned} \quad (5)$$

这里 $\alpha = \delta\omega_1/2$, $\alpha_3 = \delta\omega_3/2$, $\delta\omega_1$ 和 $\delta\omega_2$ 分别是光束 1 和光束 3 的激光线宽 (FWHM). 经过复杂的计算, 得到

$$\begin{aligned} K(\Delta, \tau) &\propto (\chi_1)^2 K_1(\Delta, \tau) + (\chi_2)^2 K_2(\Delta, \tau) \\ & \quad + 2\chi_1\chi_2 \text{Re}[K_{12}(\Delta, \tau)]. \end{aligned} \quad (6)$$

(6) 式中的 K_1 , K_2 和 K_{12} 分别为:

当 $\tau \geq 0$ 时,

$$\begin{aligned} K_n(\Delta, \tau) &= G_n(\Delta) + H_n^{(1)}(\Delta) \exp(-2\alpha|\tau|) \\ & \quad + H_n^{(2)}(\Delta) \exp(-2\gamma_n|\tau|) \\ & \quad + H_n^{(3)}(\Delta, \tau) \exp(-\gamma_n^a|\tau|), \\ & (n = 1, 2), \end{aligned} \quad (7)$$

$$\begin{aligned} K_{12}(\Delta, \tau) &= I(\Delta) + M^{(1)}(\Delta) \exp(-2\alpha|\tau|) \\ & \quad + M^{(2)}(\Delta) \exp[-(\gamma_1 + \gamma_2)|\tau|] \\ & \quad + M^{(3)}(\Delta, \tau) \exp(-\gamma_1^a|\tau|), \\ & \quad + M^{(4)}(\Delta, \tau) \exp(-\gamma_2^a|\tau|). \end{aligned} \quad (8)$$

当 $\tau < 0$ 时,

$$\begin{aligned} K_n(\Delta, \tau) &= G_n(\Delta) + H_n^{(4)}(\Delta) \exp(-2\alpha|\tau|), \\ & (n = 1, 2), \end{aligned} \quad (9)$$

$$K_{12}(\Delta, \tau) = I(\Delta) + M^{(5)}(\Delta) \exp(-2\alpha|\tau|). \quad (10)$$

方程 (7) 和 (9) 中的函数 G_n 和 $H_n^{(m)}$ 定义为

$$\begin{aligned} G_n(\Delta) &= \frac{\gamma_n}{\gamma_n + 2\alpha} + \frac{\gamma_n \gamma_n^a}{(\gamma_n^a)^2 + \Delta^2} \\ & \quad + 2 \frac{\gamma_n^2}{(\gamma_n + \gamma_n^a)^2 + \Delta^2} \\ & \quad \times \left[\frac{\gamma_n + \gamma_n^a}{\gamma_n + 2\alpha} + \frac{\gamma_n^a(\gamma_n + \gamma_n^a) - \Delta^2}{(\gamma_n^a)^2 + \Delta^2} \right]. \end{aligned} \quad (11)$$

$$H_n^{(1)}(\Delta) = 1 + \frac{\gamma_n^2 \gamma_n^b}{(\gamma_n - \alpha)[(\gamma_n^b)^2 + \Delta^2]}$$

$$+ 2 \frac{\gamma_n \gamma_n^b}{(\gamma_n^b)^2 + \Delta^2}, \quad (12)$$

$$H_n^{(2)}(\Delta) = \gamma_n^2 \left[\frac{\gamma_n^a}{(\gamma_n + \alpha) [(\gamma_n^a)^2 + \Delta^2]} + \frac{\gamma_n^c}{(\gamma_n - \alpha) [(\gamma_n^c)^2 + \Delta^2]} - 2 \frac{\gamma_n^a \gamma_n^c + \Delta^2}{[(\gamma_n^a)^2 + \Delta^2][(\gamma_n^c)^2 + \Delta^2]} \right], \quad (13)$$

$$H_n^{(3)}(\Delta, \tau) = -4\alpha \gamma_n^2 \operatorname{Re} \left[\frac{\exp(i\Delta\tau)}{(\gamma_n^a - i\Delta)(\gamma_n^b - i\Delta)} \times \left(\frac{1}{\gamma_n} + \frac{1}{(\gamma_n^c + i\Delta)} \right) \right], \quad (14)$$

$$H_n^{(4)}(\Delta) = 1 + \frac{\gamma_n^2 \gamma_n^a}{(\gamma_n + \alpha) [(\gamma_n^a)^2 + \Delta^2]} + 2 \frac{\gamma_n \gamma_n^a}{(\gamma_n^a)^2 + \Delta^2}. \quad (15)$$

方程(8)和(10)中的函数 L 和 $M^{(m)}$ 定义为

$$L(\Delta) = \gamma_1 \gamma_2 \left[\frac{\gamma_1 + \gamma_2 + 4\alpha}{(\gamma_1 + \gamma_2)(\gamma_1 + 2\alpha)(\gamma_2 + 2\alpha)} + \frac{\gamma_1^a + \gamma_2^a}{(\gamma_1 + \gamma_2)(\gamma_1^a - i\Delta)(\gamma_2^a + i\Delta)} + \frac{1}{\gamma_1 + \gamma_2^a + i\Delta} \left(\frac{1}{\gamma_1 + 2\alpha} + \frac{1}{\gamma_2^a + i\Delta} \right) + \frac{1}{\gamma_2 + \gamma_1^a - i\Delta} \left(\frac{1}{\gamma_2 + 2\alpha} + \frac{1}{\gamma_1^a - i\Delta} \right) \right], \quad (16)$$

$$M^{(1)}(\Delta) = 1 + \frac{\gamma_1}{\gamma_1^b - i\Delta} + \frac{\gamma_2}{\gamma_2^b + i\Delta} + \frac{\gamma_1 \gamma_2 (\gamma_1^b + \gamma_2^b)}{(\gamma_1 + \gamma_2 - 2\alpha)(\gamma_1^b - i\Delta)(\gamma_2^b + i\Delta)}, \quad (17)$$

$$M^{(2)}(\Delta) = -\gamma_1 \gamma_2 \left[\frac{1}{(\gamma_1^a - i\Delta)(\gamma_2^a + i\Delta)} + \frac{1}{(\gamma_2^a + i\Delta)(\gamma_1^c - i\Delta)} - \frac{\gamma_1^a + \gamma_2^a}{(\gamma_1 + \gamma_2 + 2\alpha)(\gamma_1^a - i\Delta)(\gamma_2^a + i\Delta)} - \frac{\gamma_1^c + \gamma_2^c}{(\gamma_1 + \gamma_2 - 2\alpha)(\gamma_1^c - i\Delta)(\gamma_2^c + i\Delta)} \right], \quad (18)$$

$$M^{(3)}(\Delta, \tau) = -2\alpha \gamma_1 \gamma_2 \frac{\exp(i\Delta\tau)}{(\gamma_1^a - i\Delta)(\gamma_1^b - i\Delta)} \times \left(\frac{1}{\gamma_2} + \frac{1}{\gamma_2^b + i\Delta} \right), \quad (19)$$

$$M^{(4)}(\Delta, \tau) = -2\alpha \gamma_1 \gamma_2 \frac{\exp(-i\Delta\tau)}{(\gamma_2^a + i\Delta)(\gamma_2^b + i\Delta)} \times \left(\frac{1}{\gamma_1} + \frac{1}{\gamma_1^c - i\Delta} \right), \quad (20)$$

$$M^{(5)}(\Delta) = 1 + \frac{\gamma_1}{\gamma_1^a - i\Delta} + \frac{\gamma_2}{\gamma_2^a + i\Delta} + \frac{\gamma_1 \gamma_2 (\gamma_1^a + \gamma_2^a)}{(\gamma_1 + \gamma_2 + 2\alpha)(\gamma_1^a - i\Delta)(\gamma_2^a + i\Delta)}. \quad (21)$$

这里我们定义 $\gamma_n^a = \gamma_n + \alpha + \alpha_3$, $\gamma_n^b = \gamma_n - \alpha + \alpha_3$ 和 $\gamma_n^c = \gamma_n - \alpha - \alpha_3$.

3. 用时间延迟方法抑制非共振热背底

首先考虑具有单一弛豫速率 γ 的介质中的场关联效应. 这时 $K(\Delta, \tau) \propto K(\Delta, \tau)$, $K(\Delta, \tau)$ 的表达式由将方程(7)(9)中的 γ_n 换成 γ 得出. 图2为 $\alpha_3/\alpha = 1$, (a) $\gamma/\alpha = 100$ (b) $\gamma/\alpha = 0.05$ 时的瑞利型非简并四波混频谱. 图中的虚线, 点线和实线分别为 $\alpha\tau = 0, -1$ 和 -10 时的谱线. 当 $\gamma \gg \alpha, \alpha_3$ 时, 对于 $\tau > 0$ 和 $\tau < 0$, 由(7)式和(9)式可以得出同样的表达式

$$K(\Delta, \tau) \propto [1 + \exp(-2\alpha|\tau|)] \left[1 + 3 \frac{\gamma^2}{\gamma^2 + \Delta^2} \right]. \quad (22)$$

因此, 如图2(a)所示, 这时的瑞利型 NFWM 谱线与时间延迟 τ 无关. 进一步, 将 $\Delta = 0$ 时的共振信号和非共振背底的强度比定义为 $B = I_{\text{res.}}(\Delta = 0)/I_{\text{nonres.}}$,

这时 $B = 3$. 现在考虑 $\gamma \ll \alpha, \alpha_3$ 时的情况(如图2(b)所示)对于 $\tau \leq 0$, 由(9)式可以得出

$$K(\Delta, \tau) \propto \frac{\gamma}{2\alpha} + \frac{\chi(\alpha + \alpha_3)}{(\alpha + \alpha_3)^2 + \Delta^2} + \exp(-2\alpha|\tau|) \times \left[1 + 2 \frac{\chi(\alpha + \alpha_3)}{(\alpha + \alpha_3)^2 + \Delta^2} \right]. \quad (23)$$

(23)式表明 $\tau = 0$ 时, 在 $\Delta = 0$ 处的非共振背底比共振信号大一个因子 $(\alpha + \alpha_3)/3\gamma (\gg 1)$. 然而, 当 $\alpha|\tau| \gg 1$ 时, 共振信号和非共振背底变得可比, 这时 $B = 2\alpha(\alpha + \alpha_3)$, 如果令 $\alpha = \alpha_3$, 则 $B = 1$.

现在, 考虑具有热吸收的样品. 该介质吸收由光束1和2形成的干涉场, 接着通过非辐射衰减而产生一个由温度变化而产生的热感生相位栅. 这个热栅具有很高的效率, 结果 NFWM 谱线中, 来自热栅的部分将占支配地位, 使得谱线中有价值的信息被完全掩盖掉. 抑制热栅的困难在于热栅和我们感

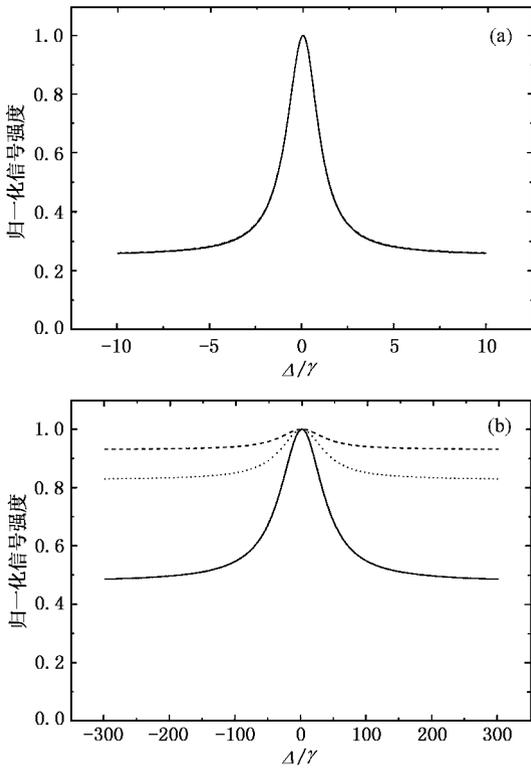


图2 瑞利型非简并四波混频频谱 $\alpha_3/\alpha = 1$ (a) $\gamma/\alpha = 100$, (b) $\gamma/\alpha = 0.05$ (虚线, 点线和实线分别为 $\alpha\tau = 0, -1$ 和 -10 时的谱线)

感兴趣的栅的强度同样的依赖于各种实验条件, 但和感兴趣的栅相比, 热栅具有一个特殊的性质——弛豫时间特别长。

利用瑞利型 NFWM 在 $\gamma \gg \alpha$, α_3 和 $\gamma \ll \alpha$, α_3 时不同的时间行为, 可以抑制吸收介质中的非共振热背底. 简言之, 考虑 $\gamma_M \gg \alpha \gg \gamma_T$ 的情况, 由 (6) 式, 当 $\tau = 0$ 时有

$$K(\Delta) \propto \chi_T^2 + 2\chi_M^2 \left(1 + 3 \frac{\gamma_M^2}{\gamma_M^2 + \Delta^2} \right) + 2\chi_M \chi_T \left(1 + \frac{\gamma_M^2}{\gamma_M^2 + \Delta^2} \right), \quad (24)$$

而当 $\tau \rightarrow \infty$ 时, 有

$$K(\Delta) \propto \chi_M^2 \left(1 + 3 \frac{\gamma_M^2}{\gamma_M^2 + \Delta^2} \right) + \chi_T^2 \left(\frac{\gamma_T}{2\alpha} + \frac{\gamma_T(\alpha + \alpha_3)}{(\alpha + \alpha_3)^2 + \Delta^2} \right). \quad (25)$$

式中的 χ_M 和 γ_M 为分子取向栅(具有超快弛豫时间)的非线性极化率和弛豫速率; χ_T 和 γ_T 为热栅的非线性极化率和弛豫速率. 如果热栅比分子取向栅更有效, 以至 $\chi_T^2 \gg \chi_M^2$, 那么由 (24) 式可知, 当零延迟

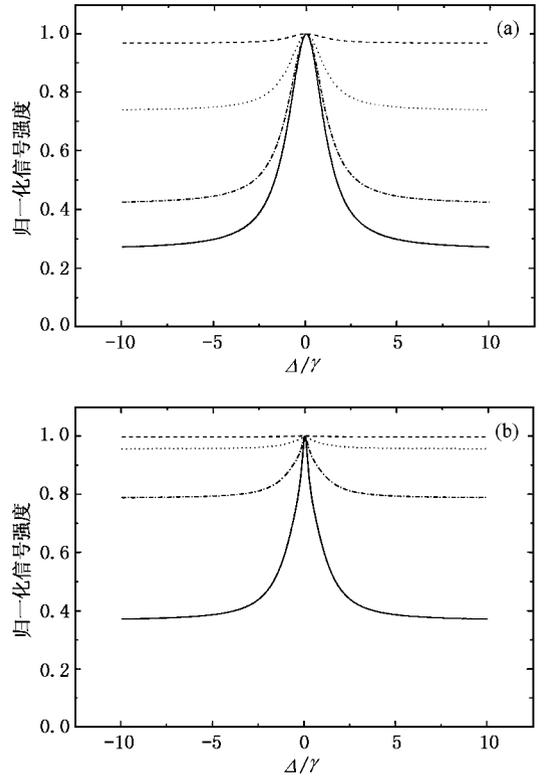


图3 吸收介质中的瑞利型非简并四波混频频谱 其中 $\gamma_M/\alpha = 10$, $\gamma_T/\alpha = 1 \times 10^{-5}$ (a) 为 $\chi_T/\chi_M = 50$, $\alpha\tau = 0$ (虚线), 0.3 (点线), 10 (点虚线) 和 10 (实线) 时的谱线 (b) 为 $\chi_T/\chi_M = 500$, $\alpha\tau = 0$ (虚线), 0.3 (点线), 10 (点虚线) 和 10 (实线) 的谱线

(即 $\tau = 0$ 时 $K(\Delta) \propto \chi_T^2$, 从而 NFWM 谱线被非共振热背底所支配. 随着光束 1 和光束 2 之间延迟时间的增加, 谱线中由热栅引起的部分将被显著抑制. 根据方程 (25) 式, 当光束 1 和 2 变成不相干时, 完全抑制非共振热背底的条件是 $(\chi_T/\chi_M)^2 (\gamma_T/2\alpha) \ll 1$, 在这种情况下, 有 $K(\Delta) \propto \chi_M^2 [1 + 3\gamma_M^2/(\gamma_M^2 + \Delta^2)]$, 这时的谱线与只具有分子取向栅的样品的瑞利型 NFWM 的谱线完全一致. 图 3(a) 为 $\chi_T/\chi_M = 50$, $\gamma_M/\alpha = 10$, $\gamma_T/\alpha = 1 \times 10^{-5}$, $\alpha_3/\alpha = 1$ 时的瑞利型 NFWM 频谱. 图中的虚线, 点线, 点虚线和实线分别为 $\alpha\tau = 0, 0.3, 10$ 时的谱线. 由于满足

$$(\chi_T/\chi_M)^2 (\gamma_T/2\alpha) (= 0.0125) \ll 1,$$

因此, 如图 3(a) 所示, 当时间延迟增加到足够大时, $\alpha\tau = 0$ 时谱线中的巨大热背底可以被完全抑制, 例如图中 $\alpha\tau = 10$ 的谱线已转变为一个与非吸收介质相应的谱线了. 必须指出, 即使当 $(\chi_T/\chi_M)^2 (\gamma_T/2\alpha) \approx 1$ 时, 仍可以通过时间延迟方法, 测量到分子取向栅的超快弛豫时间. 图 3(b) 中的虚线, 点

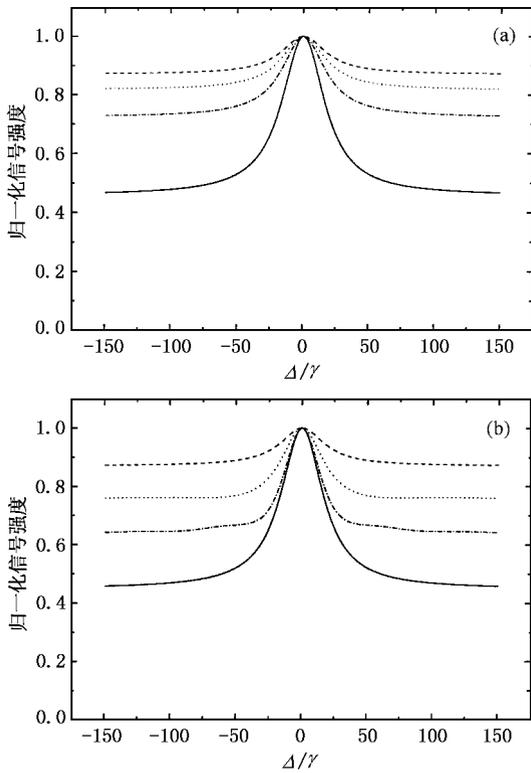


图4 瑞利型非简并四波混频谱 其中 $\gamma/\alpha = 0.1$, $\alpha_3/\alpha = 1$ (a) 为 $\alpha\tau = 0$ (虚线), -0.5 (点线), -1 (点虚线) 和 -10 (实线) 时的谱线 (b) 为 $\alpha\tau = 0$ (虚线), 0.5 (点线), 1 (点虚线) 和 10 (实线) 的谱线

线, 点虚线和实线分别为 $\alpha\tau = 0$, 0.5 和 10 时的瑞利型 NFWM 频谱, 它与图 3(a) 的区别在于 $\chi_T/\chi_M = 500$, 从而 $(\chi_T/\chi_M)^2 (\gamma_T/2\alpha) = 1.25$. 在这种情况下, 虽然当 $\alpha\tau \rightarrow \infty$ 时热栅的影响不能被完全排除, 但通过对数据的拟合, 同样可以得到 γ_M .

场关联效应中另一令人感兴趣的特性是在通常情况下, $I(\Delta, \tau)$ 对于延迟时间 τ 不对称. 这是因为当 $\tau < 0$ 时, $I(\Delta, \tau)$ 只依赖于激光的相干时间(见(9)和(10)式); 而当 $\tau > 0$ 时, $I(\Delta, \tau)$ 依赖于激光的

相干时间和栅的弛豫时间(见(7)和(8)式). 物理上, 在瑞利型 NFWM 中, 光束 1 被用来探测以弛豫速率 γ 衰减的运动栅 $Q^{(3)}(\mathbf{r}, t)$. 当 $\tau > 0$ 时, $I(\Delta, \tau)$ 与弛豫速率 γ 的依赖关系是由于光束 1 和 $Q^{(3)}(\mathbf{r}, t)$ 之间振幅相关联的结果. 从瑞利型 NFWM 频谱可以反映出这种非对称性. 我们假设样品具有单一弛豫速率 γ . 图 4 为 $\alpha_3/\alpha = 1$, $\gamma/\alpha = 0.1$ 时的瑞利型非简并四波混频谱, 图中的虚线, 点线, 点虚线和实线分别为 (a) $\alpha\tau = 0, -0.5, -1$ 和 -10 (b) $\alpha\tau = 0, 0.5, 1$ 和 10 时的谱线. 比较图 4(a) 和 (b), 它们明显的呈现出对 τ 的不对称. 当 $\tau < 0$ 时, 瑞利型 NFWM 频谱为平滑的谱线(图 4(a)); 而当 $\tau > 0$ 时, 瑞利型 NFWM 谱线中出现了像波一样的结构(图 4(b)中 $\alpha\tau = 1$ 时的谱线). 它来源于(14)式中反映 $Q^{(1)}(\mathbf{r}, t)$ 与 $Q^{(3)}(\mathbf{r}, t)$ 之间干涉的 $H_n^{(3)}(\Delta, \tau)$ 项.

4. 结 论

我们将场关联原理应用于吸收介质的热背底抑制. 这种方法充分利用了激光束的内在非相干性, 与分子取向栅和热栅在弛豫时间上数量级的差别. 最后, 为了得到感兴趣的信息, 必须测量 $\alpha|\tau| \gg 1$ 时的瑞利型 NFWM 频谱, 这时的热背底以 $2\alpha/\gamma$ 的抑制因子被抑制. 此外, 由于光束 1 和光束 2 来源于同一个激光光源, 该方法不会影响瑞利型 NFWM 严格的位相匹配条件. 因为即使它们变得完全不相干时, 它们依然具有同样的频率. 在典型条件下, 热栅的弛豫时间为微秒量级, 若令 $\alpha \approx 0.1\gamma_M$, 假设分子取向栅的弛豫时间为 1ps , 则抑制因子约为 10^5 . 另一方面, 如果使用脉冲宽度小于热栅弛豫时间的脉冲激光器, 那么由于激光和介质的有限作用时间, 激光的脉冲宽度将取代热栅弛豫时间的作用. 对于 10ns 脉冲宽度的激光, 抑制因子变为 10^3 .

[1] Chemla D S, edited by Willardson R K and Beers A C 1999 *Nonlinear Optics in Semiconductors* (New York: Academic Press)
 [2] Wang S F et al 2003 *Chin. Phys.* **12** 305
 [3] Tang Y H et al 2002 *Chin. Phys.* **11** 50
 [4] Chen L M et al 2001 *Chin. Phys.* **10** 40
 [5] Wang Z H et al 2003 *Chin. Phys. Sin.* **52** 362 (in Chinese) [王兆华等 2003 物理学报 **52** 362]

[6] Mukamel S 1995 *Principles of Nonlinear Optical Spectroscopy* (New York: Oxford University Press)
 [7] Fu P, Jiang Q, Mi X and Yu Z 2002 *Phys. Rev. Lett.* **88** 113902
 [8] Rahn L A, Farrow R L and Lucht R P 1984 *Opt. Lett.* **9** 223
 [9] Fu P, Yu Z, Mi X, Jiang Q and Zhang Z 1992 *Phys. Rev. A* **46** 1530
 [10] Yu Z, Min X, Jiang Q, Li X and Fu P 1997 *Phys. Rev. A* **55** 2334

- [11] Shen Y R 1984 *Principles of Nonlinear Optics* (New York : John Wiley & Sons Inc)
- [12] Goodman J W 1985 *Statistical Optics* (New York : Wiley)

Thermal background suppression in Rayleigh-type nondegenerate four-wave mixing based on field-correlation effects *

Sun Jiang Jiang Qian Mi Xin Yu Zu-He Fu Pan-Ming

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

(Received 28 March 2003 ; revised manuscript received 20 May 2003)

Abstract

We apply the principle of field-correlation to the thermal background suppression of the Rayleigh-type nondegenerate four-wave mixing spectra , which have been employed for the measurement of ultrafast longitudinal time in the frequency-domain recently . Conditions , under which contributions from the thermal grating can be neglected , are given and numerical results that illustrate the validity of this method are presented .

Keywords : four-wave mixing , field correlation , ultrafast measurement

PACC : 4256M , 4250V

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 10174096).