

基于双光子不对称色锁二阶随机关联 的阿秒极化拍研究*

甘琛利²⁾ 张彦鹏^{1)†} 余孝军¹⁾ 聂志强¹⁾ 李 岭¹⁾
宋建平¹⁾ 葛 浩¹⁾ 姜 彤¹⁾ 张相臣¹⁾ 卢克清³⁾

1) 西安交通大学电子物理与器件教育部重点实验室, 西安 710049)

2) Department of Physics, University of Arkansas, Fayetteville, Arkansas 72701, USA)

3) 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)

(2006 年 7 月 27 日收到, 2006 年 10 月 5 日收到修改稿)

基于两双光子过程的相位共轭二阶极化干涉, 从理论上研究了四能级系统在阿秒量级的不对称和频极化拍频 (FASPB). 在抽运光束为窄带情形下, 场关联对 FASPB 信号影响很弱. 在宽带情形下, FASPB 信号表现出共振-非共振交叉关联, 双光子信号展现出混合辐射-物质失谐的 THz 阻尼振荡, 即当激光频率偏离双光子共振跃迁的条件时, 信号将呈现阻尼振荡, 而且其双光子自相关信号的包络还呈现最大值零延时不对称. 还研究了由于两双光子自相关过程零延时的偏差导致的阿秒拍频信号的不对称性, 和两个双光子信号的最大值分别向相反的方向偏离零延时点的现象. FASPB 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两偶极禁戒跃迁激发态的能级和系统.

关键词: 阿秒和频, 极化拍, 四能级, 双光子

PACC: 4265, 3280

1. 引 言

利用各种技术对物质超快过程的研究一直是个热点. 超快现象的研究是通过对自然界各种各样技术和仪器的组合来体现的. 众所周知由激光器振荡腔直接产生的最短光脉冲小于 5.4 fs (两周期亚脉冲)^[1]. 包括一个几飞秒可见光脉冲和一个同步亚飞秒软 X 射线脉冲的激光系统, 让它们可以在时间领域以阿秒尺度直接探索样品的超快动力学过程^[2]. 十几年前, 利用宽带多模非变换限定的噪声光 (一种不使用超短光脉冲的间接方法) 研究物质的动力学过程获得了超短的时间分辨率. 时间分辨率由噪声光的超快相关时间决定, 而与它典型的几纳秒脉宽无关. 这样的噪声光源通常来源于修正后的染料激光器, 它可以在宽带源的整个带宽内振荡. 噪声光的典型带宽大约是 100 cm^{-1} , 相关时间是 100 fs (半高

宽)^[3-11]. 事实上, 多模宽带激光源的自相关时间类似于相同带宽的变换限定飞秒激光脉冲, 而且宽带光原则上可以是连续光波. 不过这两种光源在两个方面有本质的不同. 首先, 宽带多模光源是脉冲的, 但从效果上看更接近于连续 (或准连续) 光波, 和时间上真正的超短飞秒光脉冲相比具有更高的能量. 两种光源之间的第二点基本差别涉及“交叉色”相干的概念. 当这两种光源具有相同的宽带频谱, 噪声光场各频率成分之间的相对相位是随机的. 那里不存在交叉色相干性, 场关联项是“色锁”的. 无论是啁啾的还是变换限定的飞秒激光脉冲都是由各频率成分之间具有非随机相对相位表征的场来构成的. 基本的不同是变换限定飞秒激光脉冲的光谱是相位相干的, 而宽带光的光谱是相位随机的. 噪声光源总是被分成两孪生光束来极化样品. 随着两孪生噪声光束间的时间间隔由飞秒到阿秒量级的相干性调谐, 超快时间分辨率被成功地获得. 系统的极化强度携带

* 国家自然科学基金 (批准号: 60308002, 60678005); 全国博士学位论文作者专项基金 (批准号: 200339); 教育部科学技术研究重点项目 (批准号: 105156); 霍英东教育基金会高等院校青年教师基金 (批准号: 101061); 高等学校博士学科点专项科研基金 (批准号: 20050698017) 资助的课题.

† 通讯作者: ypzhang@mail.xjtu.edu.cn.

着保留有被极化样品相干时间的噪声光场的烙印。储存的极化强度能被延迟的孪生光束探测，只要原料的相干性能幸存于相位紊乱的系统中，该孪生光束就可以识别它自己烙印在原料相干性中具有高干涉反衬度的噪声模式^[3-11]。

随机过程在各个学科中普遍存在，不像非零耗损记忆型非马尔可夫过程，原子对马尔可夫随机光场的响应现在已被广泛地了解^[12]。本文获得了在相位共轭几何配置情形下，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、FASPB 的二阶马尔可夫随机关联场在阿秒量级的分析近似解。

2. 基本理论

FASPB 是一种极化拍频现象，起源于两个双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。我们来考虑一个具有基态 $|0\rangle$ ，中间态 $|1\rangle$ ，两个激发态 $|2\rangle$ 和 $|3\rangle$ 的四能级系统（图 1）。基态 $|0\rangle$ 和中间态 $|1\rangle$ 之间，中间态 $|1\rangle$ 和激发态 $|2\rangle, |3\rangle$ 之间均为偶极跃迁，其共振频率分别为 Ω_1, Ω_2 及 Ω_3 ；激发态 $|2\rangle$ 与 $|3\rangle$ 之间，基态 $|0\rangle$ 与激发态 $|2\rangle, |3\rangle$ 之间为偶极禁戒。在此四能级系统中进行双频时延四波混频（FWM）实验，光束 2 和 3 均由两个频率成分 ω_2 和 ω_3 组成，光束 1 频率为 ω_1 （图 2）。设想使得 $\omega_1 \approx \Omega_1, \omega_2 \approx \Omega_2, \omega_3 \approx \Omega_3$ ，因此 ω_1, ω_2 及 ω_3 将会分别驱使 $|0\rangle$ 到 $|1\rangle, |1\rangle$ 到 $|2\rangle$ 及 $|1\rangle$ 到 $|3\rangle$ 之间的跃迁。在这个双频时延 FWM 中，由双光子跃迁光束 1 的频率 ω_1 成分和光束 2 的频率 $\omega_2(\omega_3)$ 成分会引发 $|0\rangle$ 和 $|2\rangle(|3\rangle)$ 之间相干，然后由具有频率为 $\omega_2(\omega_3)$ 的光束 3 进行探测。这是两个具有共振中间态的双光子 NDFWM，信号光频率都等于 ω_1 。

单色光束 1 及孪生光束 2, 3 复数形式电场 E_{p1}, E_{p2}, E_{p3} 表达式为

$$E_{p1} = A_1(\mathbf{r}, t) \exp(-i\omega_1 t) = \epsilon_1 u_1(t) \exp[i(\mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{r} - \omega_1 t)], \quad (1)$$

$$E_{p2} = A_2(\mathbf{r}, t) \exp(-i\omega_2 t) + A'_3(\mathbf{r}, t) \exp(-i\omega_3 t) = \epsilon_2 u_2(t) \exp[i(\mathbf{k}_2 \cdot \mathbf{r} - \omega_2 t)] + \epsilon'_3 u_3[t - (\tau - \delta\tau)] \times \exp[i(\mathbf{k}'_3 \cdot \mathbf{r} - \omega_3 t + \omega_3(\tau - \delta\tau))], \quad (2)$$

$$E_{p3} = A'_2(\mathbf{r}, t) \exp(-i\omega_2 t) + A_3(\mathbf{r}, t) \exp(-i\omega_3 t)$$

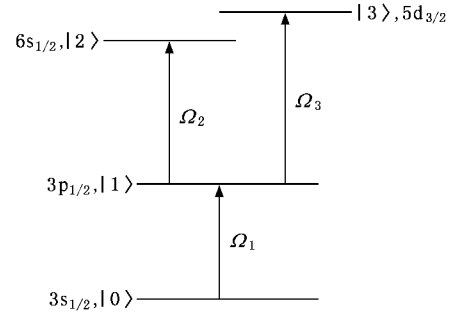


图 1 钠原子四能级阿秒和频极化拍频(FASPB)的能级位形图

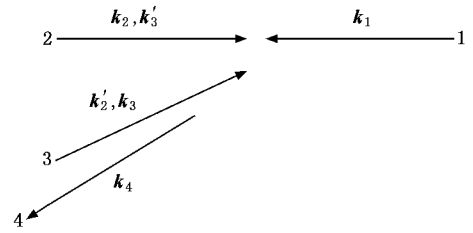


图 2 四能级阿秒和频极化拍频(FASPB)的相位共轭几何配置

$$= \epsilon'_2 u_2(t - \tau) \exp[i(\mathbf{k}'_2 \cdot \mathbf{r} - \omega_2 t + \omega_2 \tau)] + \epsilon_3 u_3(t) \exp[i(\mathbf{k}_3 \cdot \mathbf{r} - \omega_3 t)]. \quad (3)$$

这里 $\epsilon_i, \mathbf{k}_i, A_i$ ($\epsilon'_i, \mathbf{k}'_i, A'_i$) 分别为 ω_i 分量光场的振幅、波矢量和复振幅。 $u_i(t)$ 是描述光场相位和振幅涨落的无量纲统计因子，并且在单色光中我们有 $u_3(t) \approx 1$ 。如图 2 的几何配置，光束 3 的 ω_2 分量和光束 2 的 ω_3 分量均被延迟 τ ，而 $\delta\tau$ 为两自相干过程的零延时偏差（假设 $\delta\tau > 0$ ）。

根据光与四能级系统相互作用的物理机理，可得如下微扰链：

$$(I) \rho_{00}^{(0)} \xrightarrow{A_1} \rho_{10}^{(1)} \xrightarrow{A_2} \rho_{20}^{(2)} \xrightarrow{(A'_2)^*} \rho_{10}^{(3)}; \\ (II) \rho_{00}^{(0)} \xrightarrow{A_1} \rho_{10}^{(1)} \xrightarrow{A'_3} \rho_{30}^{(2)} \xrightarrow{(A_3)^*} \rho_{10}^{(3)}.$$

(I) 和 (II) 分别对应于从 $|0\rangle$ 到 $|2\rangle$ ，从 $|0\rangle$ 到 $|3\rangle$ 的双光子跃迁过程。通过计算我们得到对应于链 (I) (II)，波矢量为 $\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}'_2 + \mathbf{k}_1$ 和 $\mathbf{k}'_3 - \mathbf{k}_3 + \mathbf{k}_1$ 的三阶非对角密度矩阵元的 $\rho_{10}^{(3)}$ ，进而可以得到三阶极化强度为

$$P^{(1)} = S_1(\mathbf{r}) \exp[-i(\omega_1 t + \omega_2 \tau)] \times \int_{-\infty}^{+\infty} d\nu u(\nu) \int_0^{\infty} dt_3 \int_0^{\infty} dt_2 \int_0^{\infty} dt_1 \times \exp[-i\theta_1(\nu)] H_1(t_1) H_2(t_2) H_1(t_3) \times u_2(t - t_2 - t_3) u_2^*(t - t_3 - \tau), \quad (4)$$

$$\begin{aligned}
 P^{(11)} &= S_2(\mathbf{r}) \exp[-\{\omega_1 t - \omega_3(\tau - \delta\tau)\}] \\
 &\times \int_{-\infty}^{+\infty} d\nu u(\nu) \int_0^\infty dt_3 \int_0^\infty dt_2 \int_0^\infty dt_1 \\
 &\times \exp[-i\theta_{\parallel}(\nu)] H_1(t_1) H_3(t_2) H_1(t_3) \\
 &\times u_3(t - t_2 - t_3 - (\tau - \delta\tau)) \mathbb{I} u_3(t - t_3)]^* , \tag{5}
 \end{aligned}$$

这里

$$\begin{aligned}
 S_1(\mathbf{r}) &= \frac{-iN\mu_1^2\mu_2^2}{\hbar^3} \epsilon_2(\epsilon_2')^* \epsilon_1 \\
 &\times \exp[\{\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}'_2 + \mathbf{k}_1\} \cdot \mathbf{r}] , \\
 S_2(\mathbf{r}) &= \frac{-iN\mu_1^2\mu_3^2}{\hbar^3} \epsilon_3'(\epsilon_3)^* \epsilon_1 \\
 &\times \exp[\{\mathbf{k}'_3 - \mathbf{k}_3 + \mathbf{k}_1\} \cdot \mathbf{r}] , \\
 \theta_{\parallel}(\nu) &= \nu \cdot [\mathbf{k}_1(t_1 + t_2 + t_3) + \mathbf{k}_2(t_2 + t_3) - k'_2 t_3] , \\
 \theta_{\parallel}(\nu) &= \nu \cdot [\mathbf{k}_1(t_1 + t_2 + t_3) + \mathbf{k}'_3(t_2 + t_3) - \mathbf{k}_3 t_3] , \\
 H_i(t) &= \exp[-(\Gamma_{10} + i\Delta_1)t] , \\
 H_2(t) &= \exp[-(\Gamma_{20} + i\Delta_1 + i\Delta_2)t] , \\
 H_3(t) &= \exp[-(\Gamma_{30} + i\Delta_1 + i\Delta_3)t] , \\
 \mu_1, \mu_2(\mu_3) &\text{分别为} |0 \text{ 到} |1, |1 \text{ 到} |2(|3) \text{ 的跃迁} \\
 \text{偶极矩} , \Delta_1 &= \Omega_1 - \omega_1, \Delta_2 = \Omega_2 - \omega_2, \Delta_3 = \Omega_3 - \omega_3 , \\
 \Gamma_{10}, \Gamma_{20}(\Gamma_{30}) &\text{分别是} |0 \text{ 到} |1, |0 \text{ 到} |2(|3) \text{ 的横} \\
 \text{向弛豫率} , \text{包含材料的失相动力学过程} ; \Delta_i &\text{为共振失谐} .
 \end{aligned}$$

在典型的双光子 NDFWM 实验中(图 2), 光束 2 和光束 3 的夹角很小并且光束 1 沿着光束 2 的相反方向传播. 因此, 恰当的做出下列近似: $k_1 \approx -k_1 z$, $k_2 \approx k_2 z$, $k'_2 \approx k_2 z$, $k_3 \approx k_3 z$ 及 $k'_3 \approx k_3 z$. 我们首先考虑 ω_1 调节于 $|0 \text{ 到} |1$ 跃迁的多普勒线宽内的情况, 也就是说, $|\Delta_1| \leq k_1 u$. 在这种情况下, 仅有速度沿着 z 方向的原子与光束 1 共振(发生碰撞) $\nu \approx \Delta_1/k_1$. 这组原子进一步分别与光束 2 的 ω_2 或 ω_3 频率成分相干并且对双光子 NDFWM 信号起作用. 双光子跃迁条件是 $(\omega_1 + k_1\nu) + (\omega_3 - k_3\nu) = \Omega_1 + \Omega_3$, 也就是说 $\Delta_1 + \Delta_3 = k_1(1 - \xi_2)\nu$, 这里 $\xi_2 = k_3/k_1$. 假设 $\xi_2 > 1$, 因此我们有 $\Delta_1 + \Delta_3 = (1 - \xi_2)\Delta_1$. NDFWM 光谱是消多普勒效应的, 因为仅仅具有特定速度的原子才对 NDFWM 信号有贡献. 在多普勒增宽极限情形下, 在 ω_3 的 NDFWM 过程中, 消多普勒线宽(FWHM)分别近似等于 $\chi(\sqrt{2} - 1)^{1/2} \Gamma_{30}^a$. Bjorkholm 和 Liao 已在具有共振中间态的双光子吸收中讨论了类似的情形^[13,14].

3. FASPB 的二阶统计关联

对于发生相位匹配的宏观系统, FASPB 信号由来自一个原子的拥有时间变量 t 的 $P^{(3)}$ ($P^{(3)} = P^{(1)} + P^{(11)}$)与来自其他地方的另一个原子的拥有时间变量 s 的 $(P^{(3)})^*$ 的乘积得到(所有这样的原子对的总和)^[3-11]. 在整个任意变量的随机过程中 FASPB 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. 我们只关心与 τ 有关的信号, FASPB 信号强度可以用极化随机平均的绝对值平方近似描述 $(\tau)_{\infty} |P^{(3)}|^2$, 式中仅包含二阶相干函数 $u_i(t)$ ^[6]. 若噪声光为洛伦兹线型, 则有

$$u_i(t_1) u_i^*(t_2) = \exp(-\alpha_i |t_1 - t_2|) , \tag{6}$$

($i = 2, 3$) ,

式中, 噪声光的自相关延时 $\alpha_i = \frac{1}{2} \delta\omega_i$, $\delta\omega_i$ 为 ω_i 的激光线宽. 由激光线形决定的二阶相干函数的形式如(6)式, 是三种不同马尔可夫随机模型^[6-11]的普遍反映.

3.1. 在多普勒增宽极限情形下的二阶随机平均

为了使分析简化, 我们用一种极限方法来计算总极化强度. 我们考虑在对(4)和(5)式的速度积分在多普勒增宽极限情形下($k_1 u \rightarrow \infty$)时将二阶近似的结果代入极化强度并利用脉冲函数的性质, 可相对容易地得到多普勒增宽系统极限情形下二阶随机平均后的极化强度为

$$\begin{aligned}
 &1) \tau > 0 \\
 P^{(1)} &= \frac{2\sqrt{\pi}}{k_1 u} S_1(\mathbf{r}) \exp[-\{\omega_1 t + \omega_2 \tau\}] \mathbb{I} (\xi_1 - 1)^2 \\
 &\times \left\{ \frac{\exp(-\alpha_2 |\tau|)}{(\Gamma_{20}^a - \alpha_2 + i\Delta_2^a)^2} \right. \\
 &+ \exp[-(\Gamma_{20}^a + i\Delta_2^a) |\tau|] \\
 &\times \left[\frac{1}{\Gamma_{20}^a - \alpha_2 + i\Delta_2^a} \right. \\
 &\left. \left. + \frac{\tau + \frac{1}{\Gamma_{20}^a + \alpha_2 + i\Delta_2^a}}{\Gamma_{20}^a + \alpha_2 + i\Delta_2^a} \right] \right\} . \tag{7} \\
 &2) \tau < 0 \\
 P^{(1)} &= \frac{2\sqrt{\pi}}{k_1 u} S_1(\mathbf{r}) \exp[-\{\omega_1 t + \omega_2 \tau\}]
 \end{aligned}$$

$$\times \frac{(\xi_1 - 1)^2 \exp(-\alpha_2 |\tau|)}{(\Gamma_{20}^u + i\Delta_2^a + \alpha_2)^2} \quad (8)$$

3) $\tau > \delta\tau$

$$P^{(\parallel)} = \frac{2\sqrt{\pi}}{k_1 u} S_2(\mathbf{r}) \exp[-i(\omega_1 t - \omega_3(\tau - \delta\tau))] \times \frac{(\xi_2 - 1)^2 \exp(-\alpha_3 |\tau - \delta\tau|)}{(\Gamma_{30}^u + i\Delta_3^a + \alpha_3)^2} \quad (9)$$

4) $\tau < \delta\tau$

$$P^{(\parallel)} = \frac{2\sqrt{\pi}}{k_1 u} S_2(\mathbf{r}) \exp[-i(\omega_1 t - \omega_3(\tau - \delta\tau))] \left[\xi_2 - 1 \right]^2 \times \left\{ \frac{\exp(-\alpha_3 |\tau - \delta\tau|)}{(\Gamma_{30}^u - \alpha_3 + i\Delta_3^a)^2} + \exp[-(\Gamma_{30}^u + i\Delta_3^a) |\tau - \delta\tau|] \right. \\ \times \left[\frac{-\tau - \frac{1}{\Gamma_{30}^u - \alpha_3 + i\Delta_3^a}}{\Gamma_{30}^u - \alpha_3 + i\Delta_3^a} + \frac{1}{\Gamma_{30}^u + \alpha_3 + i\Delta_3^a} \right] \left. \right\} \quad (10)$$

这里 $\Gamma_{20}^u = \Gamma_{20} + (\xi_1 - 1)\Gamma_{10}$, $\Delta_2^a = \Delta_2 + \xi_1\Delta_1$, $\Gamma_{30}^u = \Gamma_{30} + (\xi_2 - 1)\Gamma_{10}$, $\Delta_3^a = \Delta_3 + \xi_2\Delta_1$. 按照(9)(10)式, 当 $\tau > \delta\tau$ 时 $\omega_1 + \omega_3$ 极化强度与激光相干时间有关, 而 $\tau < \delta\tau$ 时同时与激光相干时间和布局光栅的横向弛豫有关. 这与(7)(8)式表达的 $\omega_1 + \omega_2$ 极化强度相反. 这种结果是以前相关文章^[5-12]没有讨论过的. 与相应的非相干光三脉冲受激光子回波不同, 极化强度造成的自相干信号的最大值在 $\tau = 0$ 附近有一个小的移动. 更精确地说, 如图 3 所示的其最大值随着激光线宽的变化而变化. 更进一步, 从图 3 (a)(b)中不难看出两个自相干信号是关于 $\tau = 0$ 点不对称的, 但它们不对称方向不同, 两个信号的最大值点向相反方向偏离零延时点, 而且两者时域不对称现象产生的机理是不完全相同的. $\omega_1 + \omega_2$ 极化强度表达式(7)含有两项, 第一项最大值在 $\tau = 0$, 而第二项中含有 $\tau e^{-\Gamma\tau}$, 其最大值不在 $\tau = 0$ 处, 这样导致信号强度必然在 $\tau > 0$ 的某点, 也就是说光束 2, 3 之间的延时和布局光栅的横向弛豫共同作用造成了 $\omega_1 + \omega_2$ 极化强度信号的时域不对称. 同样的从(10)式可以看到 $\omega_1 + \omega_3$ 极化强度也含有 $-\tau e^{\Gamma\tau}$ 的项, 造成信号强度最大点向 $\tau < 0$ 方向偏移, 但同时由于引入了 $\delta\tau$, 第一项变为 $e^{-\alpha_3|\tau - \delta\tau|}$, 造成了信号强度最大点的向 $\tau > 0$ 的方向偏离. 也就是说 $\omega_1 + \omega_3$ 极

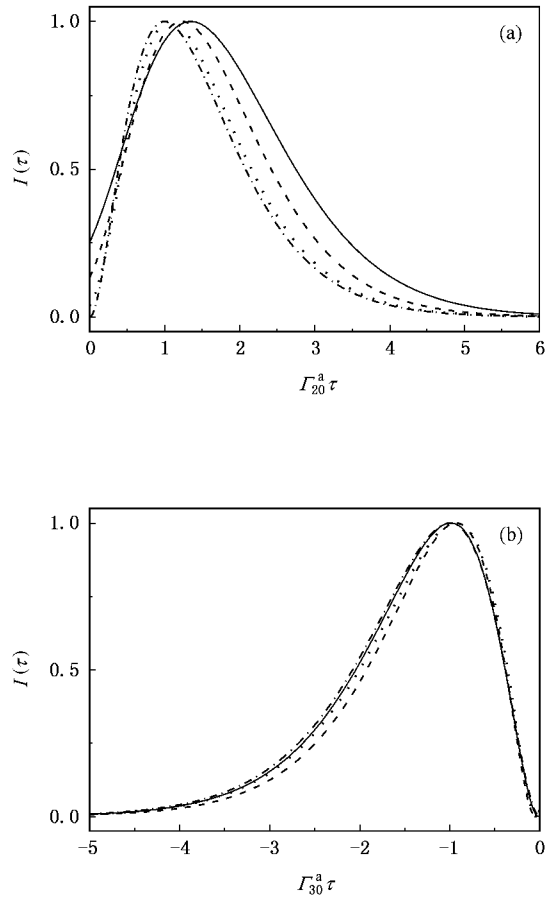


图 3 NDFWM 信号强度 $I(\tau)$ 与 $\Gamma_{20}^u \tau$ 和 $\Gamma_{30}^u \tau$ 的归一化关系曲线 (a) $\omega_1 + \omega_2$ 双光子 NDFWM 和 (b) $\omega_1 + \omega_3$ 双光子 NDFWM. $\Delta_2^a = \Delta_3^a = 0$, $\alpha_2/\Gamma_{20}^u = 1.1$ (实心曲线), 2 (短线曲线), 5 (点曲线), 100 (短线-点曲线)

化强度信号的时域不对称是以上两个原因共同作用的结果. 现在我们讨论失谐因子对信号强度的影响. 与图 3 不同, 在图 4, 5 中失谐因子 Δ_2^a, Δ_3^a 不为零, 自相干信号出现了阻尼振荡, 根据失谐因子的可能取值, 其频率范围在 THz 量级. 这种振荡的频率随着 Δ_2^a, Δ_3^a 的增大而增大(图 4, 5). 由于这种振荡是失谐因子不为零时产生的, 我们可以称之为混合辐射-物质失谐振荡. 一般来说激光线宽越宽振荡越明显. 在这里由图 4(a), 5(a)与 4(b), 5(b)相比较可知, 当 $\alpha_2/\Gamma_{20}^u = \alpha_3/\Gamma_{30}^u = 1$ 时, 失谐振荡最明显.

分析 FASPB 我们首先考虑激光线宽远小于跃迁的均匀线宽的情形, 即 $\alpha_2 \ll \Gamma_{20}^u$ 和 $\alpha_3 \ll \Gamma_{30}^u$, 即窄带极限条件下, 做信号末端近似($\Gamma_{20}^u |\tau| \gg 1$ 和 $\Gamma_{30}^u |\tau| \gg 1$)后, 无论 $\tau > \delta\tau$ 还是 $\tau < \delta\tau$ 我们可以得到二阶关联的 FASPB 信号强度为

$$I(\tau, \mathbf{r}) \propto |P^{(3)}|^2$$

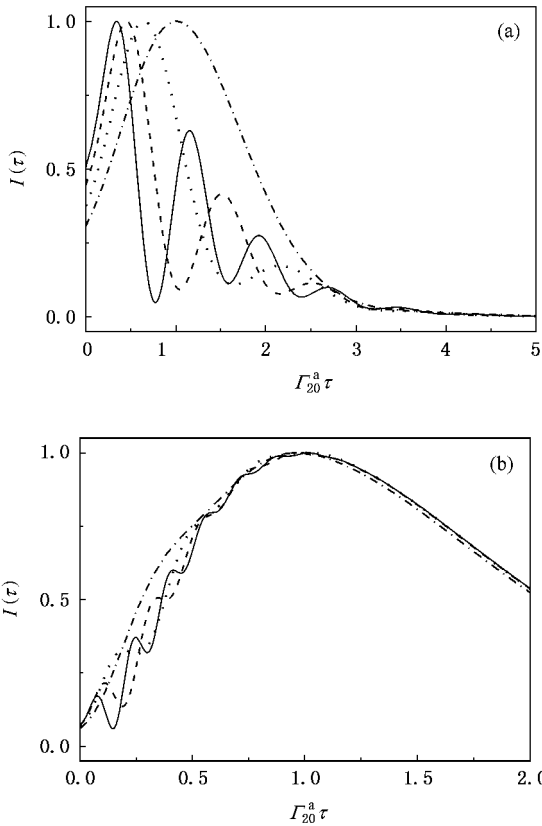


图 4 $\omega_1 + \omega_2$ 双光子 NDFWM 信号强度 $I(\tau)$ 与 $\Gamma_{20}^a \tau$ 的归一化关系曲线 (a) $\alpha_2/\Gamma_{20}^a = 1$; (b) $\alpha_2/\Gamma_{20}^a = 5$. $\Delta_2^a/\alpha_2 = 2$ 短线-点曲线), 4(点曲线), 6(短线曲线), 8(实心曲线)

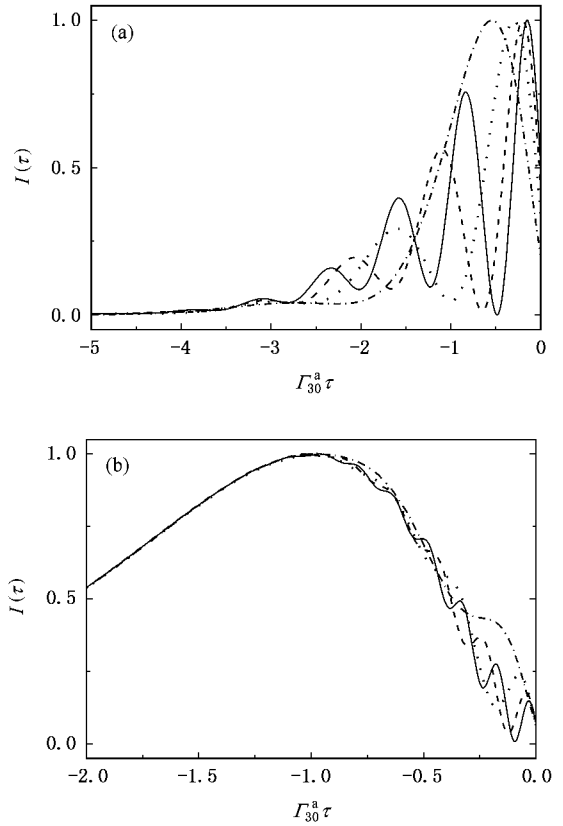


图 5 $\omega_1 + \omega_3$ 双光子 NDFWM 信号强度 $I(\tau)$ 与 $\Gamma_{30}^a \tau$ 的归一化关系曲线 (a) $\alpha_3/\Gamma_{30}^a = 1$; (b) $\alpha_3/\Gamma_{30}^a = 5$. $\Delta_3^a/\alpha_3 = 2$ 短线-点曲线), 4(点曲线), 6(短线曲线), 8(实心曲线)

$$\propto \frac{(\xi_1 - 1)^2 \exp(-2\alpha_2 |\tau|)}{[(\Gamma_{20}^a)^2 + (\Delta_2^a)^2]} + \frac{|\eta|^2 (\xi_2 - 1)^2 \exp(-2\alpha_3 |\tau - \delta\tau|)}{[(\Gamma_{30}^a)^2 + (\Delta_3^a)^2]} + (\xi_1 - 1)(\xi_2 - 1) \exp(-\alpha_2 |\tau| - \alpha_3 |\tau - \delta\tau|) \times \{q \exp[-i(\Delta \mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - \omega_2 \tau - \omega_3(\tau - \delta\tau))] + q^* \exp[i(\Delta \mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - \omega_2 \tau - \omega_3(\tau - \delta\tau))]\} \quad (11)$$

这里 q 为与 τ 无关的系数, 极化拍调制频率为 $\omega_3 + \omega_2$, 在阿秒量级 (图 6), 衰变率为 $\alpha_2 + \alpha_3$, 由 (11) 式可知在窄带情形下, 无论 $\tau > \delta\tau$ 还是 $\tau < \delta\tau$, FASPB 信号只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.

现在考虑当激光源为宽带, 即 $\alpha_2 \gg \Gamma_{20}^a$, $\alpha_3 \gg \Gamma_{30}^a$ 时, 二阶 ASPB 信号强度, 在这种情形下, ASPB 信号调制比较复杂, 但是我们对 (7)–(10) 式做未端近似 ($\alpha_2 |\tau| \gg 1$ 和 $\alpha_3 |\tau| \gg 1$) 后可得

$$1) \tau < 0, \alpha_2 \gg \Gamma_{20}^a, \alpha_3 \gg \Gamma_{30}^a, \alpha_3 |\tau| \gg 1 \\ I(\tau, \mathbf{r}) \propto |P^{(3)}|^2$$

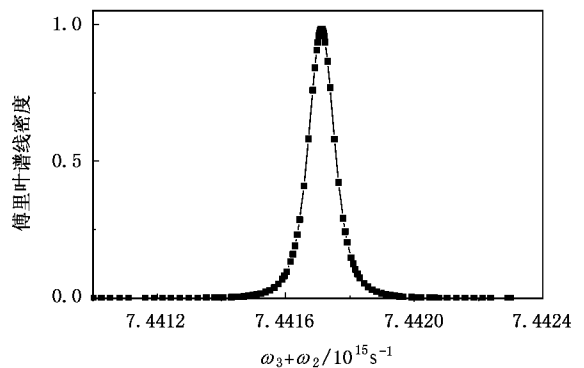


图 6 由等式 (37) 得到的 FASPB 的傅里叶谱线 $\alpha_2 = 3.552 \times 10^{-5} \text{ fs}^{-1}$, $\alpha_3 = 3.8 \times 10^{-5} \text{ fs}^{-1}$, $\omega_3 + \omega_2 = 7.442 \text{ fs}^{-1}$, $r = 0$, $\delta\tau = 0 \text{ fs}$, $\xi_i = 1.5$, $B_i = 0.4$, $|\tau| \leq 200 \text{ fs}$, $\eta = 1$

$$\propto |B_1|^2 \exp(-2\alpha_2 |\tau|) + |\eta B_2|^2 \exp(-2\Gamma_{30}^a |\tau - \delta\tau|) + \exp(-\alpha_2 \tau - \Gamma_{30}^a |\tau - \delta\tau|) \chi(B_1^* \eta B_2) \times \exp[-i(\Delta \mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - \omega_2 \tau$$

$$\begin{aligned}
 & -(\Omega_3 + \xi_2 \Delta_1 \chi(\tau - \delta\tau))] \\
 & + B_1 \eta^* B_2^* \exp[\chi(\Delta \mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - \omega_2 \tau \\
 & - (\Omega_3 + \xi_2 \Delta_1 \chi(\tau - \delta\tau)))] \}, \quad (12) \\
 & B_6 = \frac{(\xi_2 - 1)^2}{(i\Delta_3^a + \alpha_3)^2}.
 \end{aligned}$$

其中

$$\begin{aligned}
 B_1 &= \frac{(\xi_1 - 1)^2}{(\alpha_2 + i\Delta_2^a)^2}, \\
 B_2 &= (\xi_2 - 1)^2 \left[\frac{\tau(\alpha_3 - i\Delta_3^a) - 1}{(i\Delta_3^a - \alpha_3)^2} \right. \\
 & \left. + \frac{\tau(\alpha_3 + i\Delta_3^a) + 1}{(\alpha_3 + i\Delta_3^a)^2} \right].
 \end{aligned}$$

$$2) 0 < \tau < \delta\tau, \alpha_2 \gg \Gamma_{20}^a, \alpha_3 \gg \Gamma_{30}^a, \alpha_2 |\tau| \gg 1, \alpha_3 |\tau| \gg 1$$

$$\begin{aligned}
 \langle \tau, \mathbf{r} \rangle &\propto |P^{(3)}|^2 \\
 &\propto |B_3|^2 \exp(-2\Gamma_{20}^a |\tau|) + |\eta B_4|^2 \\
 &\times \exp(-2\Gamma_{30}^a |\tau - \delta\tau|) \\
 &+ \exp(-\Gamma_{20}^a |\tau| + \Gamma_{30}^a |\tau - \delta\tau|) \\
 &\times \{ B_3^* \eta B_4 \exp[-\chi(\Delta \mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - (\Omega_2 + \xi_1 \Delta_1) \tau \\
 &- (\Omega_3 + \xi_2 \Delta_1 \chi(\tau - \delta\tau)))] \\
 &+ B_3 \eta^* B_4^* \exp[\chi(\Delta \mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - (\Omega_2 + \xi_1 \Delta_1) \tau \\
 &- (\Omega_3 + \xi_2 \Delta_1 \chi(\tau - \delta\tau)))] \}. \quad (13)
 \end{aligned}$$

其中

$$\begin{aligned}
 B_3 &= (\xi_1 - 1)^2 \left[\frac{\tau(\alpha_2 - i\Delta_2^a) - 1}{(i\Delta_2^a - \alpha_2)^2} \right. \\
 & \left. + \frac{\tau(\alpha_2 + i\Delta_2^a) + 1}{(\alpha_2 + i\Delta_2^a)^2} \right], \\
 B_4 &= (\xi_2 - 1)^2 \left[\frac{\tau(\alpha_3 - i\Delta_3^a) - 1}{(i\Delta_3^a - \alpha_3)^2} \right. \\
 & \left. + \frac{\tau(\alpha_3 + i\Delta_3^a) + 1}{(\alpha_3 + i\Delta_3^a)^2} \right].
 \end{aligned}$$

$$3) \tau > \delta\tau, \alpha_2 \gg \Gamma_{20}^a, \alpha_3 \gg \Gamma_{30}^a, \alpha_2 |\tau| \gg 1$$

$$\begin{aligned}
 \langle \tau, \mathbf{r} \rangle &\propto |P^{(3)}|^2 \\
 &\propto |B_5|^2 \exp(-2\Gamma_{20}^a |\tau|) + |\eta B_6|^2 \\
 &\times \exp(-2\alpha_3 |\tau - \delta\tau|) \\
 &+ \exp[-\Gamma_{20}^a \tau - \alpha_3 |\tau - \delta\tau|] \\
 &\times \{ B_5^* \eta B_6 \exp[-\chi(\Delta \mathbf{k} \cdot \mathbf{r} \\
 &- (\Omega_2 + \xi_1 \Delta_1) \tau - \omega_3(\tau - \delta\tau))] \\
 &+ B_5 \eta^* B_6^* \exp[\chi(\Delta \mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - (\Omega_2 + \xi_1 \Delta_1) \tau \\
 &- \omega_3(\tau - \delta\tau))] \}. \quad (14)
 \end{aligned}$$

其中

$$B_5 = (\xi_1 - 1)^2 \left[\frac{\tau(\alpha_2 - i\Delta_2^a) - 1}{(i\Delta_2^a - \alpha_2)^2} \right.$$

在(12)(14)式中前两项分别是两种双光子极化强度的自相干项,第三项是交叉相干项.两式的交叉相干项分别产生了 $\Omega_3 + \omega_2$ 和 $\omega_3 + \Omega_2$ 的调制频率,频率为阿秒量级. Ulness 研究小组^[3-5]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.

3.2. 多普勒增宽和宽带极限情形下的二阶随机平均

用宽带非变换限定的噪声光研究 ASPB 的物理机理一直是个热点,近来工作主要集中在用非相干光源研究各种超快现象^[3-11].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、持续时间为激光器相干时间 τ_c 的短脉冲.由于相位匹配条件 $k_2 - k'_2 + k_1$ 和 $k'_3 - k_3 + k_1$ 已知,和频三能级光子回波分别发生在微扰链(I)(II)^[12].因此二阶相关函数(6)式近似为 δ 函数 $2\delta(t_1 - t_2)$ α_i .因此在多普勒极限增宽($k_1 u \rightarrow \infty$)和激光源宽带极限($\alpha_i \rightarrow \infty$)近似情形下,在多普勒极限增宽结果的基础上得到

$$\begin{aligned}
 P^{(1)} &= \frac{4\sqrt{\pi}}{k_1 u \alpha_2} S_1(\mathbf{r}) \exp[-\chi(\omega_1 t + \omega_2 \tau)] \\
 &\times \int_0^\infty dt_3 \int_0^\infty dt_2 \int_0^\infty dt_1 \delta[t_3 + t_1 - (\xi_2 - 1)t_2] \\
 &\times \delta[t_2 - \tau] \times \exp[-(\Gamma_{10} + i\Delta_1)(t_1 + t_3) \\
 &- (\Gamma_{20} + i\Delta_2 + i\Delta_1)t_2], \quad (15)
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 P^{(II)} &= \frac{4\sqrt{\pi}}{k_1 u \alpha_3} S_2(\mathbf{r}) \exp[-\chi(\omega_1 t - \omega_3(\tau - \delta\tau))] \\
 &\times \int_0^\infty dt_3 \int_0^\infty dt_2 \int_0^\infty dt_1 \delta[t_3 + t_1 - (\xi_2 - 1)t_2] \\
 &\times \delta[t_2 + \tau - \delta\tau] \times \exp[-(\Gamma_{10} + i\Delta_1)(t_1 + t_3) \\
 &- (\Gamma_{30} + i\Delta_3 + i\Delta_1)t_2]. \quad (16)
 \end{aligned}$$

(5)式表明,在时间 $t - t_1 - t_2 - t_3$ 时刻,由 A_1 引起的光学极化在旋转坐标的一个时间间隔 t_1 内为衰减振荡(衰减率为 Γ_{10} ,频率为 Δ_1),然后在 $t - t_2 - t_3$ 时刻与 A'_3 相互作用,作为结果,诱发 $|0$ 和 $|3$ 能级之间的双光子相干.在经过时间间隔 t_2 的衰减振荡以后,光束 3 在 $t - t_3$ 时刻探测该双光子相干并且引起极化,此极化对双光子 NDFWM 信号起作

用. 同样对于(4)式也有相应的对应关系. 在 t 时刻, 我们感兴趣的是 NDFWM 信号在加入光束 3 后 t_3 时间内的情况. 光学极化又在时间间隔 t_3 产生衰减振荡(衰减率为 Γ_{10} , 频率为 Δ_1). 由非均匀增宽系统中共振频率的分布律知, 在 $t - t_1 - t_2 - t_3$ 时刻由 A_1 作用产生的偶极子不久将相互失相. 光束 2 的作用就是使失相的偶极子重新复相, 产生和频光子回波. 由(16)式得当 $t_3 + t_1 = (\xi_2 - 1)t_2$ 时和频光子回波发生在时刻 t . 因为条件 $t_3 \geq 0, t_1 \leq (\xi_2 - 1)t_2$ 是必须的满足的. 我们考虑光束 2 和 3 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 τ_c 的短脉冲(τ_c 是激光器相干时间), 而与延时 τ 有关的 NDFWM 信号仅仅是由光束 2 和 3 中那些相位相关的子脉冲产生. 对于 $\omega_1 + \omega_3$ 双光子 NDFWM, 当光束 2 和 3 间的延时等于 τ 时, 光束 2 和 3 中相位相关子脉冲间的间隔 t_2 等于 $\delta\tau - \tau$. 总的三阶极化强度是不同时刻诱导的极化的累加. 因为在 $\omega_1 + \omega_3$ 双光子情形下和频光子回波发生在 $t_1 \leq (\xi_2 - 1)t_2 = -(\xi_2 - 1)(\delta\tau - \tau)$ (16)式 t_1 的积分应从 0 到 $-(\xi_2 - 1)(\delta\tau - \tau)$. t_1 积分边界增加的 $|\tau|$ 导致共振双光子 NDFWM 信号起初的增加(图 3(b))(12)式的第二项). 随后, 双光子相干衰减成为主流, 双光子 NDFWM 信号随着 $|\tau|$ 的增加而衰减.

这不同于非相干光三脉冲受激光子回波^[6-11]. 共振单光子 DFWM 信号的最大值发生在 $\tau \approx 0$ 时刻. 如图 4 和图 5 所示, 当激光频率远离双光子跃迁共振条件时, NDFWM 信号产生衰减(阻尼)振荡. 更具体地, 在(10)式的第二项导致了在图 5 中, 对于 $\omega_1 + \omega_3$ 双光子 NDFWM, 当 $\tau < 0$ 且 $\Delta_3^a \neq 0$ 时相干并以频率 Δ_3^a 进行信号强度调制. 同样的对于 $\omega_1 + \omega_2$ 双光子情形也有类似的过程和现象, 由于之前的分析, 这里就不详细讨论了.

4. 结 论

总之, 本文系统分析了在孪生随机光场中相位共扼几何配置情形下四能级系统中的不对称和频阿秒极化拍频这种新的效应. 进一步发现了零差探测的 FASPB 信号对孪生马尔可夫随机驱动光场的统计特征非常敏感, 这种技术在测量偶极禁止跃迁两激发态之间的能级和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, 而且我们还发现两个双光子信号的最大值在 $\tau = 0$ 处有一个相对的偏移, 当激光频率远离双光子跃迁条件时, 信号呈现出阻尼振荡.

[1] Morgner U, Kartner F X, Cho S H, Chen Y, Haus H A., Fujimoto J G, Ippen E P, Scheuer V, Angelow G, Tschudi T 1999 *Opt. Lett.* **24** 411

[2] Hentschel M, Kienberger R, Spielmann Ch, Reider G A, Milosevic N, Brabec T, Corkum P, Heinzmann U, Drescher M, Krausz F 2001 *Nature* **414** 509

[3] Turner D B, Ulness D J 2003 *J. Chem. Phys.* **119** 10745

[4] Ulness D J 2003 *J. Phys. Chem.* **107** 8111

[5] Zhang Y P, Cheng C H, Kim J T, Stanojevic J, Eyler E E 2004 *Phys. Rev. Lett.* **92** 203003

[6] Zhang Y P, Gan C L, Song J P, Yu X J, Ma R Q, H Ge, Li C S, Lu K Q 2005 *J. Opt. Soc. Am. B* **22** 694

[7] Zhang Y P, Sun L Q, Tang T T, Fu P M, 2000 *Phys. Rev. A* **61** 053819

[8] Zhang Y P, Sun L Q, Tang T T, Fu P M 2000 *J. Opt. Soc. Am. B* **17** 690

[9] Zhang Y P, Sun L Q, Tang T T, Fu P M 2000 *Phys. Rev. A* **61** 023809

[10] Zhang Y P, de Araujo C B, Eyler E E 2001 *Phys. Rev. A* **63** 043802

[11] Zhang Y P, Gan C L, Farooqi S M, Lu K Q, Hou X, Tang T T 2002 *J. Opt. Soc. Am. B* **19** 1204

[12] Zhang Y P, Gan C L, Song J P, Yu X J, Ma R Q, Ge H, Li C S, Lu K Q 2005 *Phys. Rev. A* **71** 023802

[13] Bjorkholm J E, Liao P F 1976 *Phys. Rev. A* **14** 751

[14] Zhang Y P, Lu K Q, Wu H C, Xu J, Fu P M 2000 *Chinese Physics* **9** 606

Two-photon asymmetric color-locking second-order stochastic correlation of attosecond polarization beats^{*}

Gan Chen-Li²⁾ Zhang Yan-Peng^{1)†} Yu Xiao-Jun¹⁾ Nie Zhi-Qiang¹⁾ Li Ling¹⁾
Song Jian-Ping¹⁾ Ge Hao¹⁾ Jiang Tong¹⁾ Zhang Xiang-Chen¹⁾ Lu Ke-Qing³⁾

1) *Key Laboratory for Physical Electronics and Devices of the Ministry of Education, Xi'an Jiaotong University, Xi'an 710049, China*

2) *Department of Physics, University of Arkansas, Fayetteville, Arkansas 72701, USA*

3) *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 27 July 2006; revised manuscript received 5 October 2006)

Abstract

Based on the phase-conjugation polarization interference between two two-photon processes, we theoretically investigated the attosecond scale asymmetry sum-frequency polarization beat in four-level system (FASPB). The field correlation has weak influence on the FASPB signal when the laser has narrow bandwidth. Conversely, when the laser has broadband linewidth, the FASPB signal shows resonance-nonresonance cross correlation. The two-photon signal exhibits hybrid radiation-matter detuning terahertz damping oscillation, i. e., when the laser frequency is off resonance from the two-photon transition, the signal exhibits damping oscillation and the profile of the two-photon self-correlation signal also exhibits zero time-delay asymmetry of the maxima. We have also investigated the asymmetry of attosecond polarization beat caused by the shift of the two-photon self-correlation zero time-delay phenomenon, in which the maxima of the two two-photon signals are shifted from zero time-delay point to opposite directions. As an attosecond ultrafast modulation process, FASPB can be intrinsically extended to any level-summation systems of two dipolar forbidden excited states.

Keywords : attosecond sum-frequency, polarization beat, four-level, two-photon

PACC : 4265, 3280

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 60308002, 60678005), the Foundation for the Author of National Excellent Doctoral Dissertation of China (Grant No. 200339), the Key Project of Chinese Ministry of Education (Grant No. 105156), the For Ying-Tong Education Foundation for Young Teachers of Institution of Higher Education of China (Grant No. 101061) and the Specialized Research Fund for the Doctoral Program of Higher Education of China (Grant No. 20050698017).

[†] Corresponding author: ypzhang@mail.xjtu.edu.cn