

激发态吸收的简并四波混频*

杨延强 费浩生 魏振乾 孙桂娟

(吉林大学物理系, 长春 130023)

(1994 年 8 月 9 日收到)

从理论和实验两方面讨论了外泵浦场存在时四能级模型的饱和吸收体激发态简并四波混频过程, 结果显示外泵浦场强对激发四波混频信号强度有较大的影响, 在外场由小到大的变化过程中, 信号强度经历一个由小到大再到小的过程.

PACC: 4265; 3150; 4265G

1 引 言

关于饱和吸收体的简并四波混频理论和实验都得到了较快的发展, 许多有机染料由于具有较长的三重态寿命, 饱和吸收强度很低, 因此在很低功率的激光, 甚至在 CW 激光的作用下即可产生简并四波混频的相位共轭波^[1]. 最近, 对于激发态的吸收引起的非线性光学现象已引起人们的重视. 由激发态的吸收引起的反饱和吸收已有较多的报道^[2,3]. Miyanaga 报道了激发态的吸收对于基于基态共振吸收的四波混频的影响^[4]. 我们则报道了利用激发态吸收可以实现双光子实时存储^[5]. 但是, 对于由此引起的激发态的四波混频现象尚未见报道.

本文将对基于激发态吸收的简并四波混频的稳态过程进行较系统的讨论. 对于一个具有长寿命三重态的分子系统, 在外场泵浦下, 可以实现低功率四波混频, 其混频信号受到外场的调制. 对有机偶氮分子的实验证实了我们的分析. 激发态的四波混频过程是一类新的非线性光学过程. 它可能成为另一类新的非线性光学器件, 也可能成为研究分子激发态动力学过程的一种新的方法.

2 理论分析与数值结果

考虑一具有四能级结构的饱和吸收体, 其能级结构如图 1 所示. 图 1 中 S_0 和 S_1 分别为单态的基态和第一激发态, $S_0 \rightarrow S_1$ 跃迁相应的共振波长为 λ_1 , 吸收截面为 σ_S , T_1 , T_2 分别为三重态第一激发态和第二激发态, $T_1 \rightarrow T_2$ 跃迁相应的共振波长为 λ_2 , 吸收截面为 σ_T . 假定 $S_1 \rightarrow T_1$ 和 $T_2 \rightarrow T_1$ 的跃迁为快速无辐射跃迁, 该过程所相应的时间远远小于三重态 T_1 的寿命 τ , 因此当波长为 λ_1 的外泵浦光与该系统相互作用时, 将产生 $S_0 \rightarrow S_1$ 跃迁, 并且泵浦到 S_1 上的粒子将迅速弛豫到 T_1 上. 由于 T_1 具有较长的寿命 τ , 因此

* 国家自然科学基金资助的课题.

三重态 T_1 将随之产生粒子数布居,这一过程可用速率方程描述为

$$\frac{dn_{T_1}}{dt} = \frac{\sigma_S I_1}{h\omega} (n_0 - n_{T_1}) - \frac{n_{T_1}}{\tau}. \quad (1)$$

这里 n_0 为总的分子数密度, n_{T_1} 为三重态 T_1 的粒子数密度, τ 为 T_1 的寿命, I_1 为波长为 λ_1 的外泵浦光强. 当泵浦光作用使各能级粒子数达到稳态布居时, 即当 $dn_{T_1}/dt = 0$ 时

$$n_{T_1} = n_0 I_1 / (I_1 + I_{S_1}). \quad (2)$$

这里 $I_{S_1} = h\omega / \sigma_S \tau$, 为系统吸收波长为 λ_1 的光子时所对应的饱和吸收强度. 若此时另一波长为 λ_2 、强度为 I_2 的光与该系统作用, 由于此时在 T_1 能级上已有粒子数布居, 且 λ_2 与 $T_1 \rightarrow T_2$ 跃迁的共振波长相匹配, $T_1 - T_2$ 将共振吸收波长为 λ_2 的光子. 若 λ_2 光按图 2 所示的几何结构作用于介质薄膜, 按与 Abrams 和 Lind^[6] 类似处理方法, 可得到相位共轭波反射率公式为

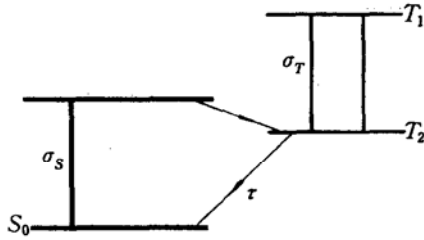


图 1 四能级饱和和吸收体能级图

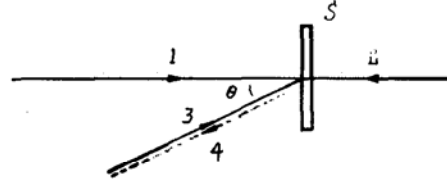


图 2 简并四波混频的几何结构 1, 2 为反向传播的泵浦波; 3 为探测波; 4 为相位共轭波

$$R = \left| \frac{2Q \sin(1/2 HL)}{H \cos(1/2 HL) + \alpha \sin(1/2 HL)} \right|^2. \quad (3)$$

这里 $H = [4|Q|^2 - \alpha^2 T^2]^{1/2}$, Q 为耦合系数, L 为样品厚度, α 为吸收系数. 在低反射率的极限条件下, 即 $A_0(0) \rightarrow 0$ 时, 共轭波反射率可近似为

$$R \approx \frac{|Q|^2}{\alpha^2} [1 - \exp(-\alpha_T L)]^2. \quad (4)$$

这里耦合系数和吸收系数可以分别描述如下:

$$|Q| = \frac{\alpha_T I_{p_2} \exp(-\alpha_T L')}{I_{S_2} (1 + 4I_2/I_{S_2})^{3/2}}, \quad (5)$$

$$\alpha_T = \alpha_{0T} \frac{1 + 2I_2/I_{S_2}}{[1 + 4I_2/I_{S_2}]^{3/2}}. \quad (6)$$

这里 $I_2 = I_{p_2} \exp(-\alpha_T L)$, I_{S_2} 为 $T_1 \rightarrow T_2$ 跃迁的饱和吸收强度, $\alpha_{0T} = \sigma_T n_{T_1}$ 为 T_1 态小信号 (即 $I_2 \ll I_{S_2}$) 吸收系数, $L' = L / \cos \theta$, θ 为 1, 3 光束之间的夹角. 将 (5) 和 (6) 式代入 (4) 式, 得

$$R = \left\{ \frac{\alpha_{0T} I_{p_2} \exp(-\alpha_T L') [1 - \exp(-\alpha_T L)]}{\alpha_T I_{S_2} (1 + 4I_2/I_{S_2})^{3/2}} \right\}^2. \quad (7)$$

注意到三重态激发态 T_2 寿命很短, 饱和吸收强度 I_{S_2} 很大, (7) 式可简化为

$$R = \left\{ \frac{I_{p_2}}{I_{S_2}} \exp(-\alpha_T L') [1 - \exp(-\alpha_T L)] \right\}^2, \quad (8a)$$

$$\begin{aligned}\alpha_T &= n_{T_1} \sigma_T \\ &= (\sigma_T / \sigma_S) \frac{I_1}{I_1 + I_{S_2}} \alpha_{S_0}\end{aligned}\quad (8b)$$

这里 $\alpha_{S_0} = \sigma_S n_0$ 为单态的小信号线性吸收系数. σ_T 为 $T_1 \rightarrow T_2$ 跃迁所对应的吸收截面. 图 3 为利用 (8) 式对基于激发态 $T_1 - T_2$ 共振吸收的简并四波混频过程的共轭反射率与外泵浦光强 I_1 的关系进行数值计算所得结果, 图 3 中曲线 1, 2, 3 对应于不同样品的吸收参量 $\alpha_{S_0} L$, 它们分别为 1.5, 3.5, 5.5. 从图 3 中不难看出, 激发态的吸收较强时共轭波反射率关于泵浦强度有一极大值, 由 (8) 式可求得该极值点为

$$\frac{I_1}{I_{S_1}} = \frac{\ln 2}{(\sigma_T n_0 L - \ln 2)} = \frac{\ln 2}{\frac{\sigma_T}{\sigma_S} \alpha_{S_0} L - \ln 2} \quad (9)$$

3 实验结果与讨论

实验所用样品为掺甲基橙染料聚乙烯醇薄膜 (MO-PVA), 甲基橙分子是一典型的偶氮类化合物, 它的能级结构可用图 1 所示的四能级模型描述^[4]. 图 4 为实验样品的吸收光谱, 曲线 *a* 为无 514.5 nm 激光预激发下的吸收光谱, 曲线 *b* 为在 514.5 nm 激光激发下的吸收光谱. 由图 4 可以看到, 在 514.5 nm 激光激发下, 在 632.8 nm 处有明显的吸收增长.

激发态吸收的简并四波混频实验装置如图 5 所示. 连续波 Ar^+ 激光提供外泵浦场, He-Ne 激光器输出的激光作为激发态四波混频光源. 在实验中我们发现, 当无外泵浦场时, He-Ne 激光的共轭波反射率为零; 当有外泵浦场作用样品时, 出现位相共轭信号. 由 (2) 式可知, 当外泵浦光强 I_1 为零时, 三重态 T_1 上布居粒子数为零, 因此由 (3) 式或 (8a) 式可知 He-Ne 激光的共轭波反射信号应为零. 实验结果与理论预言一致.

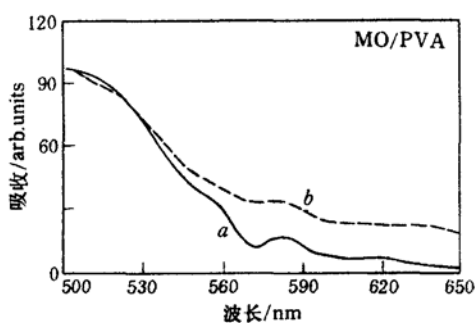


图 4 样品的吸收曲线 曲线 *a*, *b* 分别为无外泵浦光和在外泵浦光条件下样品的吸收光谱

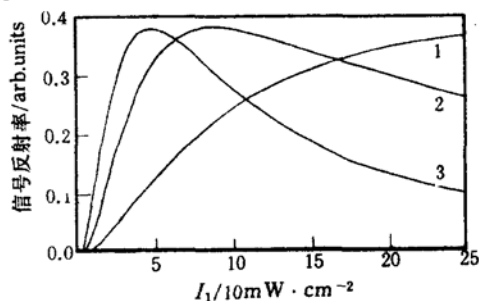


图 3 共轭反射率与外泵浦光强 I_1 的关系 曲线 1, 2, 3 的吸收参量 $\alpha_{S_0} L$ 分别为 1.5, 3.5, 5.5

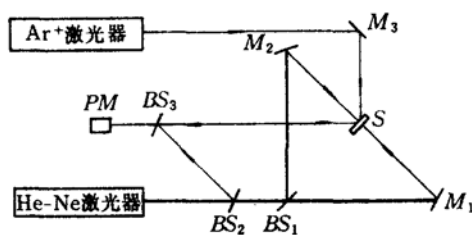


图 5 激发态四波混频光路图 BS 为分束镜; *M* 为全反镜; *S* 为样品; *PM* 为光电倍增管

图 6 为在波长为 514.5 nm 的 Ar^+ 激光激发下,以波长为 632.8 nm 的 He-Ne 激光作为四波混频光源的实验结果.该结果显示了共轭反射率 R 与外泵浦光强 I_1 的关系.实验过程为首先将 Ar^+ 激光作用于样品,使样品分子体系各能级的粒子数达到稳态布居,然后用 He-Ne 激光作为光源进行四波混频实验.实验过程中 He-Ne 激光输出光强保持恒定,只改变外激发光 Ar^+ 激光强度 I_1 .我们利用吸收参量 $\alpha_{S_0}L$ 分别为 4.5 和 5.5 的两个 MO/PVA 样品进行了实验.图 6 中曲线 1,2 分别为利用

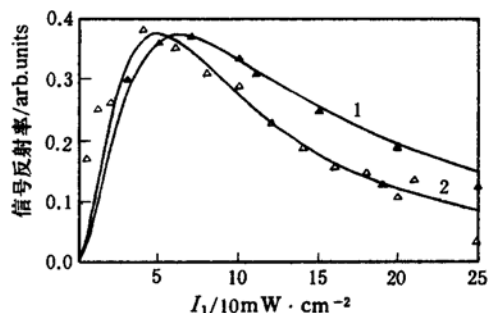


图 6 相位共轭反射率与外泵浦光强关系的实验结果
▲为样品 1 的实验结果(吸收参量 $\alpha_{S_0}L$ 为 4.5);△为
样品 2 的实验结果(吸收参量 $\alpha_{S_0}L$ 为 5.5)

(8)式得到的样品 1 和样品 2 的 $R-I_1$ 曲线.对于曲线 1,当 $I_1 = 7.0 \times 10^1 \text{ mW/cm}^2$ 时,共轭反射率 R 取极大值;对于曲线 2,当 $I_1 = 4.5 \times 10^1 \text{ mW/cm}^2$ 时,共轭反射率 R 取极大值.由图 6 可以看到实验结果与理论计算所得到的 $R-I_1$ 曲线(曲线 1,2)符合得较好.

4 结 论

本文的理论和实验结果表明,在有外泵浦场存在时,可以实现基于激发态吸收的四波混频.四波混频信号强度与外泵浦场强存在一个最佳匹配值.激发态四波混频可能成为另一类新的非线性光学现象,它可以扩展非线性光学工作波长,形成另一类诸如高速光开关、光存储等非线性光学器件,而且也可能为研究分子激发态动力学过程开创一新的途径.

- [1] R. C. Lind, D. G. Steel *et al.*, *Optical Engineering*, **21**(1982), 190.
- [2] Fei Haosheng, Han Li, Ai Xicheng, *Chinese Science Bulletin*, **37**(1992), 258.
- [3] 费浩生, *物理*, **23**(1994), 12.
- [4] S. Miyahara, *J. Opt. Soc. Am.*, **B10**(1993), 1069.
- [5] Haosheng Fei, Zhenqian Wei, Pengfei Wu *et al.*, *Opt. Lett.*, **19**(1994), 411.
- [6] R. L. Abrams and R. C. Lind, *Opt. Lett.*, **2**(1981), 94; **3**(1981), 205.
- [7] T. Huang and K. H. Wagner, *Appl. Opt.*, **32**(1993), 1888.

EXCITED DEGENERATE FOUR-WAVE MIXING

YANG YAN-QIANG FEI HAO-SHENG WEI ZHEN-QIAN SUN GUI-JUAN

(Department of Physics, Jilin University, Changchun 130023)

(Received 9 August 1994)

ABSTRACT

Excited state degenerate four-wave mixing in a four-level saturable system is treated theoretically and experimentally. The results show that the external pump field influences intensely the intensities of the PC signals.

PACC: 4265; 3150; 4265G