

倒 V 形四能级亚飞秒极化拍的三光子吸收和色散^{*}

聂志强¹⁾ 李 岭¹⁾ 姜 彤¹⁾ 沈磊剑¹⁾ 李沛哲¹⁾ 甘琛利²⁾ 宋建平¹⁾ 张彦鹏^{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)

(2007 年 4 月 19 日收到, 2007 年 5 月 12 日收到修改稿)

基于孪生色锁噪声场的互相关效应, 从理论上研究了倒 V 形(RV)四能级飞秒量级差频极化拍与极化拍中五阶非线性极化率, 并提出了用一种相位敏感的方法来研究多能级原子相干造成的三光子六波混频过程. 在抽泵光束为窄带末端情况下, 场关联对信号和极化率的影响都很弱, 在非窄带情况下, 场关联会使极化强度自相干信号和极化拍信号产生关于零延时的不对称性和时域扫描上的辐射与物质失谐阻尼振荡(RDO), 而极化率会产生频域扫描上的 RDO 振荡. 参考光信号是一路传播方向和六波混频信号稍有区别的双光子非简并四波混频信号. 五阶非线性响应则由孪生噪声场色锁互关联效应的控制改变. 相位敏感方法可用于对三光子六波混频信号的光学外差探测以及研究五阶非线性极化率的吸收和色散特性.

关键词: 外差法, 吸收, 色散, 非线性极化

PACC: 4265, 3280

1. 引 言

近年来, 由于激光激发原子相干而引发的强非线性光学效应及抑制线性吸收等新现象的出现, 人们又重新关注多能级原子系统中非线性光学效应的实验及理论研究^[1-3]. 在光学原子相干条件下, 恰当地选择原子能级和激光场的几何配置, 混频效率能够大大提高. 通过直接测量多能级原子系统中非线性光学系数^[4], 会发现这些非线性效应对多种实验参数敏感. 四能级系统中极大的非线性指数增强已经得到了论证^[4]. 为了优化某一非线性光学过程, 精确地知道非线性极化率以及其对各种实验参数的依赖性是非常有益的. 然而, 由于探测光和被测信号光残留的线性吸收和散射的存在, 使得非线性极化率的测量非常困难. 早期在三能级原子系统测量克尔非线性系数实验中, 人们使用一个光学腔来消除线性分量^[4, 5], 并由此直接得到非线性反射系数 n_2 ^[5].

本文研究了三光子六波混频(SWM)飞秒极化拍的五阶非线性极化率, 提出了一种用于测量多能

级气体介质中复杂的五阶非线性极化率相位敏感的探测方法. 通过改变迈克尔逊干涉仪中的双光子非简并四波混频(NDFWM)和三光子 SWM 两束抽运光之间的相对时间延迟(τ), 调整了双光子 NDFWM 本征振荡场与三光子 SWM 场的相对相位. 由 τ 决定的相位差分别取 $2n\pi$ 或 $(2n + 1/2)\pi$ 时, 飞秒极化拍信号将分别变换成三光子 SWM 的非线性色散曲线和吸收曲线. 这里的参考光是另一束双光子 NDFWM 信号, 它满足 NDFWM 相位共轭几何配置, NDFWM 信号光和 SWM 参考光直接在探测器上发生干涉. 这种方法建立在纯同性增宽^[6]或多普勒极限增宽 RV 四能级系统^[7, 8]飞秒极化拍混频过程基础上, 是直接测量五阶非线性极化率的有效途径.

当然在理论上我们也可以直接研究非线性极化率, 即通过计算密度矩阵元(五阶响应函数 $\rho_{10}^{(5)}$)的表达式, 得到复数形式的非线性极化率并最终将其分解成实部和虚部来获得预期结果. 本文正是用此标准方法得到的结果验证了我们之前提出的相敏方法的正确性. 另外从所得结果中会发现修正的五阶吸收和色散可通过噪声光的色锁带宽、频率失谐量

^{*} 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资金(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: E-mail: ypzhang@mail.xjtu.edu.cn.

及延时时间得到相干控制. 另外, 使用双光子忽略多普勒效应的反向传播几何配置^[7,8], 可在一个长原子蒸气腔中观察到这些非线性效应.

2. 刘维尔路径和色锁随机关联

原子介质的非线性光学特性可通过孪生噪声驱动场的色锁相关效应来控制 and 改变. 在 RV 四能级原子系统中, 光学非线性过程由图 1 表示. 双光子 NDFWM 及三光子 SWM 两个激发路径分别为 $|0\rangle \rightarrow |1\rangle \rightarrow |2\rangle \rightarrow |1\rangle$ 及 $|0\rangle \rightarrow |1\rangle \rightarrow |2\rangle \rightarrow |3\rangle \rightarrow |2\rangle \rightarrow |1\rangle$, 它们的极化干涉将产生一个飞秒极化拍频(FSPB)现象^[6-8]. 这种极化拍的产生是基于同性或异性增宽样本同时受激产生的 FWM 和 SWM 信号在探测器上的干涉造成的. 它严格地要求干涉的三阶和五阶极化强度有相同的频率.

RV 四能级飞秒极化拍产生于双光子和三光子光学过程间的差频极化干涉, 而阿秒极化拍频则对应于和频极化干涉^[8,9]. 如图 1(a), RV 四能级原子系统由基态 $|0\rangle$, 中间态 $|1\rangle$ 及激发态 $|2\rangle, |3\rangle$ 构成. 能级 $|0\rangle$ 和 $|1\rangle, |1\rangle$ 和 $|2\rangle$ 及 $|2\rangle$ 和 $|3\rangle$ 是偶极跃迁, 共振频率分别为 Ω_1, Ω_2 及 Ω_3 , 而状态 $|0\rangle$ 和 $|2\rangle, |0\rangle$ 和 $|3\rangle$ 及 $|1\rangle$ 和 $|3\rangle$ 之间都是偶极禁戒的. 在双色时延

FWM 及 SWM 系统中, 如图 1(b), 光束 2 和光束 3 分别由频率分量为 ω_2 和 ω_3 组成, 而光束 1 只含频率分量 ω_1 . 我们进一步假设 $\omega_1 \approx \Omega_1, \omega_2 \approx \Omega_2$ 和 $\omega_3 \approx \Omega_3$, 则 ω_1, ω_2 和 ω_3 将分别驱动从 $|0\rangle$ 到 $|1\rangle, |1\rangle$ 到 $|2\rangle$ 及 $|2\rangle$ 到 $|3\rangle$ 的跃迁. 在这个双色飞秒极化拍中有两个截然不同过程, 见文献 [1, 3, 6-8], 这里不再重复.

孪生光束 $\chi(E_{\rho_2})$ 和光束 $\chi(E_{\rho_3})$ 随机合成场可写作

$$E_{\rho_2} = E_2 + E_3 = \epsilon_2 u_2(t) \exp[i(k_2 \cdot r - \omega_2 t)] + \epsilon_2 u_3(t) \exp[i(k_3 \cdot r - \omega_3 t)], \quad (1)$$

$$E_{\rho_3} = E'_2 + E'_3 = \epsilon'_2 u_2(t - \tau) \exp[i(k'_2 \cdot r - \omega_2 t + \omega_2 \tau)] + \epsilon'_3 u_3(t - \tau) \exp[i(k'_3 \cdot r - \omega_3 t + \omega_3 \tau)], \quad (2)$$

这里 $\epsilon_i, k_i (\epsilon'_i, k'_i)$ 分别是光束 χ (光束 3) 中 ω_i 分量场的振幅和波矢量. $u_i(t)$ 是描述光场相位和振幅涨落的无量纲统计因子, 是时间 t 的系综统计函数, 在混沌场中符合系综高斯统计规律. τ 是延时场和即时场之间的相对延时时间, 如图 1(b). 光束 1 为准单色光 ($u_1(t) \approx 1$). 因此光束 1 的复电场可以写为 $E_1 = A_1(r, t) \exp(-i\omega_1 t) = \epsilon_1 u_1(t) \exp[i(k_1 \cdot r - \omega_1 t)]$.

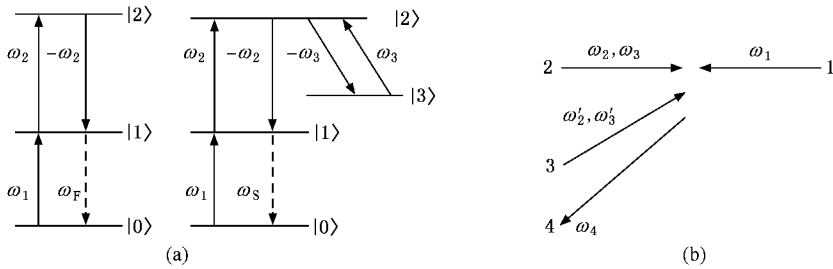


图 1 (a) RV 四能级位形图. 刘维尔空间中对应链 (I) 的三能级双光子 NDFWM 和对应链 (II) 的四能级 SWM. 图中实线, 虚线分别对应于 NDFWM 和 SWM 的左矢变换及出射信号. (b) FSPB 的相位共轭几何配置

在图 1 中, 原子极化和运动的布居方程 (原子响应) 可视为不同次序的刘维尔路径. 为了进一步处理和简化数学计算, 我们忽略基态损耗 ($\rho_{00}^{(0)} \approx 1$), 不考虑抽运脉冲, 探测场及 FWM, SWM 场的传播特征. 在推导过程中我们只保留非线性极化率的共振偶极反项, 即旋转波近似 (RWA). 由于 RWA 的选择性, 每种脉冲反应都以独特的方式在相匹配方向上对非线性信号作贡献. 我们用微扰理论来计算密度

矩阵元, 图 1(a) 中对应微扰链如下^[8]:

$$(I) \rho_{00}^{(0)} \xrightarrow{\omega_1} \rho_{10}^{(1)} \xrightarrow{\omega_2} \rho_{20}^{(2)} \xrightarrow{-\omega_2} \rho_{10}^{(3)},$$

$$(II) \rho_{00}^{(0)} \xrightarrow{\omega_1} \rho_{10}^{(1)} \xrightarrow{\omega_2} \rho_{20}^{(2)} \xrightarrow{-\omega_3} \rho_{30}^{(3)} \xrightarrow{\omega_3} \rho_{20}^{(4)} \xrightarrow{-\omega_2} \rho_{10}^{(5)}.$$

微扰链是刘维尔空间耦合表示. 微扰链中的每一个密度矩阵元代表刘维尔空间中的一个位置, 密度矩阵元第一个和第二个下角标分别代表左矢和右

矢的“轴”.正频率和负频率电场在左矢“轴”上对应激发粒子向上和向下跃迁,而在右矢“轴”上对应激发向下和向上跃迁.链(I)对应的是双光子 NDFWM 过程,而链(II)对应的是三光子 SWM 过程.它们分别满足相匹配条件 $k_F = k_1 + k_2 - k'_2$ 和 $k_S = k_1 + k_2 - k_3 + k_3 - k'_2$.由于 SWM 和 NDFWM 信号传播方向稍有不同,所以它们之间的干涉将导致空间振荡.从物理上讲,NDFWM 来自两种衍射栅的(由 ω_2 和 $-\omega_2$ 形成的小角度静态栅及由 $-\omega_2$ 和 ω_1 形成动态大角度栅)作用和,而三光子 SWM 则是另四种衍射栅(由 ω_2 和 $-\omega_2$, ω_3 和 $-\omega_3$ 形成的小角度栅以及 ω_1 和 $-\omega_2$, ω_1 和 $-\omega_3$ 形成的大角度动态栅)的作用和.

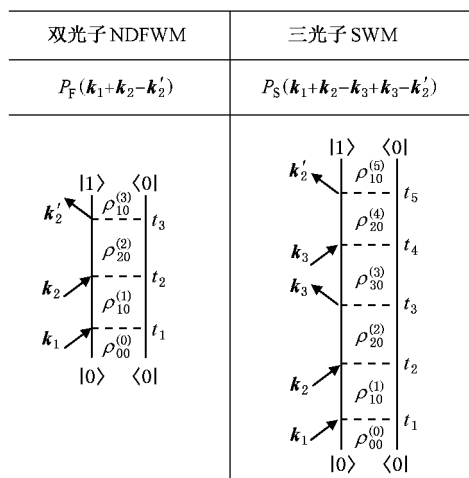


图 2 FSPB 中双光子 NDFWM 和三光子 SWM. 左边和右边的垂线分别表示左矢轴和右矢轴.如果电场沿负波矢方向传播,箭头向左,沿正向传播,箭头向右.图中由下向上表示时间的变化

光驱动原子或分子密度矩阵元的时间演化除了用微扰链表示之外,还可以用双边费曼图(DSFDs)图 2 表示.图 2 中的 DSFDs 表述为图中左右垂线分别表示左矢和右矢(由下到上)的时间演化;如果所加电场沿负波矢方向传播,则箭头指向左,沿正向波矢传播则指向右.每次电场的相互作用都使左矢或右矢的两个电子态发生跃迁.由于能够同时追踪左矢和右矢演化,这使得密度矩阵表达式成为描述非线性光学中一些动力学现象最合适的工具.

在密度矩阵元 $\rho_{ab}^{(j)}$ 的时间演化过程中,每一个特定场的作用都转化为密度矩阵元左矢或右矢的变化.因此,对于任何第 j 阶生成密度矩阵元,都会有 2^j 个演化路径,而且对应于 $j!$ 个生成元的所有可

能场的排列必须全部考虑到,所以共有 $2^j j!$ 个演化的路径.当光束 1, 2 和 3 都不同时,三阶极化拍共有 $2^j j! = 48$ 个不同的刘维尔路径.一个特定的 FWM 过程的三阶密度算子有 48 项,而六波混频五阶算子则有 3840 项,但是由于实验上的限制,只有极少数目的路径过程对信号起主导作用.在旋波近似条件下,沿 k_S 方向的相位匹配以及 FWM 和 SWM 的频率选择性极大地限制了三阶和五阶微扰路径的数目(图 2).由于极化拍是基于探测器上 FWM 和 SWM 信号间干涉,而这些 FWM 和 SWM 信号又产生于样本同步激发而形成的宏观极化,所以这就要求所有的极化都有相同的频率.由光束 3 的 ω_2 和光束 1 的 ω_1 频率分量产生的布居栅(大角度动态栅)对应的是 NDFWM 信号,对于一个多普勒增宽系统,这些栅会被原子的运动淹没掉.此外,还由于实验中相位共轭匹配条件的严格限制,也使得其他路径密度算子产生的 FWM 和 SWM 信号不再重要.

由于激光器本身是一种噪声器件,所以激光场的相位和振幅都有波动.噪声激光束可用于探测原子及分子的动力学过程,为传统频域连续波及超短脉冲时域光谱学研究提供一种独特的备选方案^[9].色锁噪声光技术是一种介于连续波法和短脉冲法之间的一种方法,它可以使噪声光束携带的相当宽的噪声被完全抵消.变换限制的飞秒脉冲激光是相位相干的(相锁),而噪声光则是相位随机的,而且不受变换限制,这是二者的根本区别.关于色锁随机相关理论,文献[3, 6—8]已作过讨论,这里不再详述.利用该理论可以得到在裸态基础上分别对应于微扰链 I 和 II 的 NDFWM, SWM 极化强度 P_F, P_S 的表达式.具体方法详见文献[1, 3, 6—8].

3. 三、五阶极化强度

在展宽的 RV 四能级原子系统中,为了使计算和分析简化,我们分别用了两种极限方法来计算极化强度,即忽略多普勒效应($k_i v \approx 0$ 和 $k'_i v \approx 0$)和多普勒极限增宽效应($k_i u \rightarrow \infty$).由于在这两种情况下得到的极化强度的性质完全相同,而极限增宽近似与实际情况更符合,所以本文只展示极限增宽近似下的结果,此时令 $\xi_1 = k_2/k_1, \xi_2 = k'_3/k_1$,限于文章篇幅,只考虑 $\xi_2 > 0, \xi_1 > \xi_2 + 1$ 的情况.

NDFWM 及 SWM 极化强度如下:

$$(i) \tau > 0$$

$$P_F = \frac{2\sqrt{\pi}Ab}{k_1 u} \left\{ \frac{e^{-\alpha_2 \tau}}{(\alpha_2 - d_2 + bd_1)^2} + e^{-(d_2 + bd_1)\tau} \times \left[\frac{2\alpha_2 \tau}{\alpha_2^2 - (d_2 + bd_1)^2} - \frac{4\alpha_2(d_2 + bd_1)}{[\alpha_2^2 - (d_2 + bd_1)^2]^2} \right] \right\}, \quad (3)$$

$$P_S = \frac{2\sqrt{\pi}B}{k_1 u} \left\{ \frac{e^{-(\alpha_2 + \alpha_3)\tau} [(a + 2b)\alpha_2 - 2b\alpha_3 - 3abd_1 - ad_2 - 2bd_3]}{(\alpha_2 - bd_1 - d_2)(-\alpha_2 + \alpha_3 + ad_1 + d_3)^2} + e^{-(2\alpha_3 + ad_1 + d_3)\tau} \left[\frac{(a - b)(3\alpha_2 + bd_1 + d_2)}{[\alpha_2^2 - (bd_1 + d_2)^2] [\alpha_3 + (a - b)d_1 - d_2 + d_3]} + C_1 - \frac{2a\alpha_2 \tau}{[(\alpha_3 + ad_1 + d_3)^2 - \alpha_2^2] [\alpha_3 + (a - b)d_1 - d_2 + d_3]} \right] + e^{-(\alpha_3 + bd_1 + d_2)\tau} \left[\frac{2b\alpha_2 \tau^2}{[\alpha_2^2 - (bd_1 + d_2)^2] [\alpha_3 + (a - b)d_1 - d_2 + d_3]} - \frac{2\alpha_2 C_2 \tau}{[\alpha_2^2 - (bd_1 + d_2)^2] [\alpha_3 + (a - b)d_1 - d_2 + d_3]} + \frac{-a + b}{(\alpha_2 + bd_1 + d_2) [\alpha_3 + (a - b)d_1 - d_2 + d_3]} + C_3 \right] \right\}. \quad (4)$$

(ii) $\tau < 0$

$$P_F = \frac{2\sqrt{\pi}Abe^{\alpha_2 \tau}}{k_1 u (\alpha_2 + d_2 + bd_1)^2}, \quad (5)$$

$$P_S = \frac{2\sqrt{\pi}B}{k_1 u} \left\{ \frac{e^{(\alpha_2 + \alpha_3)\tau} (3abd_1 + ad_2 + 2bd_3 + a\alpha_2 + 2b\alpha_2 - 2b\alpha_3)}{(bd_1 + d_2 + \alpha_2)(ad_1 + d_3 + \alpha_2 - \alpha_3)^2} + e^{(ad_1 + d_3 + 2\alpha_2)\tau} \left[\frac{2a\alpha_3 \tau}{(bd_1 + d_2 + \alpha_2)[(ad_1 + d_3 + \alpha_2)^2 - \alpha_3^2]} + C_4 \right] \right\}, \quad (6)$$

式中 A 与 B 的定义见文献 [3, 6—8], $d_1 = \Gamma_{10} + i\Delta_1$, $d_2 = \Gamma_{20} + i\Delta_a$, $d_2^* = \Gamma_{20} - i\Delta_a$, $d_3 = \Gamma_{30} + i\Delta_b$, Δ_i 为共振失谐, $\Delta_1 = \Omega_1 - \omega_1$, $\Delta_2 = \Omega_2 - \omega_2$, $\Delta_3 = \Omega_3 - \omega_3$, $\Delta_a = \Delta_1 + \Delta_2$, $\Delta_b = \Delta_1 + \Delta_2 - \Delta_3$; $a = \xi_1 - \xi_2 - 1$, $b = \xi_1 - 1$, C_1, C_2, C_3, C_4 为与 τ 无关的项. 从 (3)(4) 式可以看出在 $\tau > 0$ 时, 四波混频极化强度都含有类似 $\tau^2 e^{-(\alpha_i + d_i)\tau}$, $\tau e^{-(\alpha_i + d_i)\tau}$ 和 $e^{-(\alpha_i + d_i)\tau}$ 的项, 说明此时极化强度与激光的相干时间、布局光栅的横向弛豫和延时有关. 这样的关系必然会使极化强度的自相干信号 $|P_F|^2, |P_S|^2$ 产生关于零延时点的不对称现象, 即信号最大值偏离 $\tau = 0$ 的位置. 在失谐因子 Δ_i 不为零时产生时域的阻尼振荡, 即 RDO 现象 (图 3(a)(b)). $\tau < 0$ 的表达式 (5)(6) 与 $\tau > 0$ 时有两点不同, 一是 (5) 式中不含交叉相干项, 说明四波混频极化强度主要反映激光线宽的影响, 且关于零延时点是对称的, 即信号最大值在 $\tau = 0$ 的位置; 二是在 (6) 式中不含 $\tau^2 e^{(\alpha_i + d_i)\tau}$. 表 1 所列频率实际上是极限增宽时四波混频极化强度

指数项虚部表达式, 其所统计的项互相相减就得到了表 2 的极化强度自相干 RDO 振荡频率. 从表 2 可看出四波混频自相干信号在 $\tau > 0$ 时含有一个 RDO 振荡频率, 六波混频含有三个频率, 相反的在 $\tau < 0$ 时两种信号 RDO 振荡频率要少得多. 这说明 $\tau > 0$ 时物质与激光的相互作用比 $\tau < 0$ 时要剧烈得多. 表 2 中还列有自相干信号的不对称表, 它是对上述不对称分析的统计. 它很好地说明了自相干信号的特性.

一般来说, NDFWM 和 SWM 信号的时域性质很复杂, 为了研究其性质, 以下做了两种近似: 当激光线宽为窄带时 ($\alpha_2 \ll \Gamma_{20}, \alpha_3 \ll \Gamma_{30}$), 且在末端近似 ($\Gamma_{20}\tau \gg 1, \Gamma_{30}\tau \gg 1$) 处, 我们由 (3)–(6) 式可以得到窄带条件下的 FWM 及 SWM 极化强度为

$$P_F = \frac{2\sqrt{\pi}Abe^{-\alpha_2|\tau|}}{k_1 u (d_2 + bd_1)^2}, \quad (7)$$

$$P_S = \frac{2\sqrt{\pi}Be^{-(\alpha_2 + \alpha_3)|\tau|}}{k_1 u} \left[\frac{3abd_1 + ad_2 + 2bd_3}{(bd_1 + d_2)(ad_1 + d_3)^2} \right], \quad (8)$$

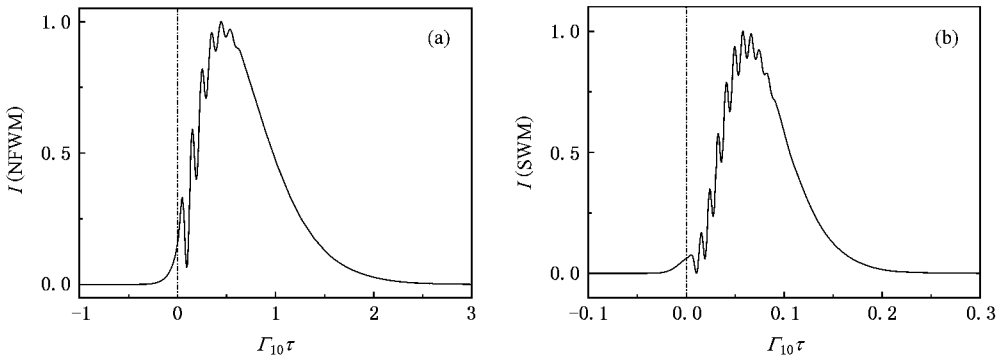


图 3 极限增宽 $\tau < 0$ 和 $\tau > 0$ 合并后 (a) 归一化 NDFWM 极化强度自相干信号强度, 图中参数为 $\Delta_1/\Gamma_{10} = 18$, $\Delta_2/\Gamma_{10} = 10$, $\alpha_2/\Gamma_{10} = 7$, $\Gamma_{20}/\Gamma_{10} = 0.1$, $\xi_1 = 2.5$, $\xi_2 = 1.2$ (b) 归一化 SWM 极化强度自相干信号强度, 图中参数为 $\Delta_1/\Gamma_{10} = 200$, $\Delta_2/\Gamma_{10} = 150$, $\Delta_3/\Gamma_{10} = 500$, $\alpha_2/\Gamma_{10} = 50$, $\alpha_3/\Gamma_{10} = 30$, $\Gamma_{20}/\Gamma_{10} = \Gamma_{30}/\Gamma_{10} = 0.1$, $\xi_1 = 2.5$, $\xi_2 = 1.2$

表 1 极限增宽四六波混频极化强度 $\tau < 0$ 与 $\tau > 0$ 时的振荡频率

延时时间	DFWM ($ P_F $)		NDFWM ($ P_S $)	
	$\tau > 0$	$\tau < 0$	$\tau > 0$	$\tau < 0$
多普勒	$-\omega_2$		$-(\omega_2 + \omega_3)$	
极限增宽	$-\omega_2 - (\xi_1 \Delta_1 + \Delta_2)$	$-\omega_2$	$-(\omega_2 + \omega_3) - (\xi_1 \Delta_1 + \Delta_2)$	$-(\omega_2 + \omega_3)$
			$-(\omega_2 + \omega_3) - [(\xi_1 - \xi_2) \Delta_1 + \Delta_2 - \Delta_3]$	$-(\omega_2 + \omega_3) - [(\xi_1 - \xi_2) \Delta_1 + \Delta_2 - \Delta_3]$

表 2 极限增宽四六波混频极化强度 $\tau < 0$ 与 $\tau > 0$ 时的自相干信号 RDO 频率

延时时间	NDFWM (P_F^2)				SWM (P_S^2)			
	RDO		不对称		RDO		不对称	
	$\tau > 0$	$\tau < 0$	$\tau > 0$	$\tau < 0$	$\tau > 0$	$\tau < 0$	$\tau > 0$	$\tau < 0$
多普勒					$\xi_1 \Delta_1 + \Delta_2, \xi_2 \Delta_1 + \Delta_3$			
极限增宽	$\xi_1 \Delta_1 + \Delta_2$	无	有	无	$(\xi_1 - \xi_2) \Delta_1 + \Delta_2 - \Delta_3$	$(\xi_1 - \xi_2) \Delta_1 + \Delta_2 - \Delta_3$	有	无

(7)(8) 式既是 $\tau > 0$ 的结果也是 $\tau < 0$ 的结果, 也就是说在窄带末端近似情况下信号是完全相同的. 从 (7)(8) 式中可以得到以下结论: 窄带情况下由于指数衰减项中不存在失谐因子 Δ_i , 自相干信号中 RDO 现象消失了. 信号的半高宽只与激光特性有关而与物质能级结构无关. 当激光源为宽带 ($\alpha_2 = \alpha_3 \gg \Gamma_{20}, \Gamma_{30}$) 且在末端近似处 ($\alpha_2 \tau \gg 1, \alpha_3 \tau \gg 1$) 同样对 (3) — (6) 式化简, 这时在 $\tau > 0$ 宽带条件下的四波混频极化强度表达式为

$$P_F = \frac{2\sqrt{\pi}}{k_1 u} A b e^{-(d_2 + b d_1) \tau} \left[\frac{2\alpha_2 \tau}{\alpha_2^2 - (d_2 + b d_1)^2} - \frac{4\alpha_2 (d_2 + b d_1)}{[\alpha_2^2 - (d_2 + b d_1)^2]^2} \right], \quad (9)$$

而六波混频极化强度变为零, 同样在 $\tau < 0$ 时, 四六波混频极化强度全变为了零. 表达式 (9) 和其他极化

强度变为零说明在宽带情况下, 信号中五阶非线性极化强度产生的六波混频自相干信号会迅速衰减为零而只保留三阶非线性极化强度产生的自相干信号, 而且该信号只与能级系统有关, 而受激光的影响不大.

4. 三、五阶极化率研究

在得到极化强度 P_F 和 P_S 的表达式 (3) — (6) 式后, 通过 (10) (11) 式可以得到相应的复数形式非线性极化率 χ_F 和 χ_S .

$$\chi_F(\tau, \Delta_i, \alpha_2) = \frac{P_F}{\epsilon_0 E_2 (E_2')^* E_1} = \frac{P_F}{\epsilon_0 \exp[-\alpha_2 |\tau|]}, \quad (10)$$

$$\chi_S(\tau, \Delta_i, \alpha_i) = \frac{P_S}{\epsilon_0 E_2 (E_2')^* E_3 (E_3')^* E_1}$$

$$= \frac{P_F}{\epsilon_0 \exp[-\alpha_2 |\tau|] \exp[-\alpha_3 |\tau|]}, \quad (11)$$

χ_s 是一个复数, 它的实部是一个奇函数, 代表物质与激光的三光子色散特性 (图 4(a)), 而虚部是偶函数, 代表吸收特性 (图 4(b)). 由于激光和物质的相

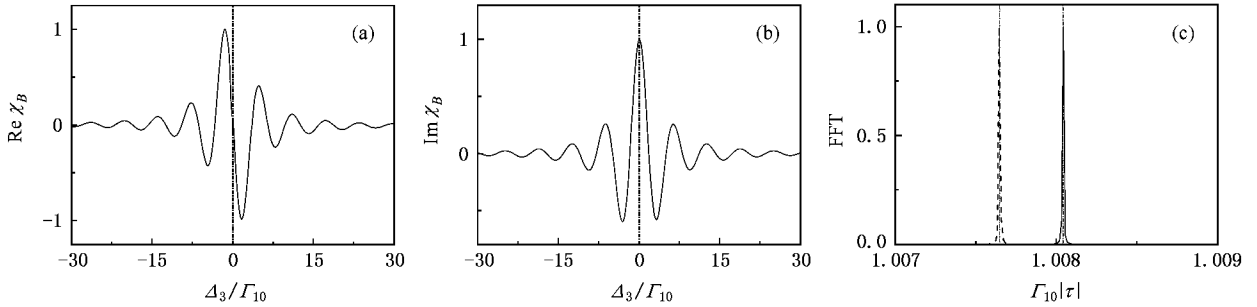


图 4 极限增宽 $\tau < 0$ 时 χ_s 实部 (a) 和虚部 (b) 的归一化色散曲线, 图中参数为 $\Delta_1/\Gamma_{10} = 0.01$, $\Delta_2/\Gamma_{10} = 0.02$, $\alpha_2/\Gamma_{10} = 1$, $\alpha_3/\Gamma_{10} = 4$, $\Gamma_{20}/\Gamma_{10} = \Gamma_{30}/\Gamma_{10} = 0.1$, $\xi_1 = 2.5$, $\xi_2 = 1.2$, $\Gamma_{10}\tau = -1.00804$ (a), $\Gamma_{10}\tau = -1.00765$ (b); (c) 实部和虚部的归一化快速 FFT 频谱, 色散曲线 (a) 的 RDO 频率 (实线), 吸收曲线 (b) 的 RDO 频率 (虚线)

窄带末端近似时由 (7) (8) 式对应的非线性极化率 χ_F 和 χ_s 分别为

$$\chi_F(\tau, \Delta_i, \alpha_2) = \frac{2\sqrt{\pi}}{k_1 u} \frac{b\psi_F}{(\alpha_2 - d_2 + bd_1)^2}, \quad (12)$$

$$\chi_s = \frac{2\sqrt{\pi}\psi_s}{k_1 u} \left[\frac{3abd_1 + ad_2 + 2bd_3}{(bd_1 + d_2)(ad_1 + d_3)^2} \right], \quad (13)$$

ψ_F, ψ_s 的定义详见文献 [1]. 宽带末端近似时因为六波混频极化强度为零, 这里就不再列非线性极化率的表达式了. 以上的表达式和分析体现的物理意义是当激光线宽远小于跃迁的均匀线宽时, χ_F 和 χ_s 则与 α_i, τ 无关, 完全反映所作用物质折性质, χ_F 和 χ_s 的虚部和实部则分别对应于未修正的非线性吸收和色散, 与外界场的性质无关; 当激光线宽和跃迁的均匀线宽可比时, 外界场对信号的影响就不能忽略了. 当激光线宽远大于跃迁的均匀线宽时, 非线性极化率 χ_F 和 χ_s 强烈地依赖于激光线宽 α_i 、延时时间 τ 以及所研究物质的特性 Γ_{20} 和 Γ_{30} , 以至由于激光线宽过大导致五阶非线性极化率会变为零.

5. 亚飞秒极化拍与相敏方法的研究

三光子六波混频相位敏感探测法是在四波混频与六波混频极化相干基础上建立的. 由于光振荡太

互作用, 五阶非线性率的吸收和色散都会有振荡产生 (图 4(a) (b)), 而且频率都为 $\Gamma_{10}\tau$ (图 4(c)), 我们可以称其为频域 RDO 振荡. 由于 $\tau > 0$ 时极化率与 $\tau < 0$ 时性质基本相同. 所以图 4 中只给出了 $\tau < 0$ 时极化率的吸收、色散曲线和快速傅里叶变换 (FFT) 图.

快难以直接探测, 所以它们必须和另一相同频率的场拍频才能被探测到. 实验上有两种方法可以测量非线性极化率 χ_s . 一种是传统的测量方法, 即通过绝对值平方 $P_s P_s^*$ 探测极化强度 P_s . 虽然信号强度正比于 $|\chi_s|^2$ 可是 χ_s 所有相位信息却丢失了. 第二种测量 χ_s 的方法是引入另一个极化强度 P_F (称为参考信号或本征振荡), P_F 的频率和波矢要与待测的 P_s 复数形式相匹配. 因此外差情形下, 信号强度可由 $(P_F + P_s)(P_F^* + P_s^*)$ 导出. 外差法探测到的信号保留了相位信息, 人们可完整地测到复数非线性极化率及其相位.

在探讨外差法之前我们先对飞秒极化拍零差信号作时域和频域上的分析. 飞秒极化拍信号强度表达如下:

$$\begin{aligned} \mathcal{K}(\tau, \Delta_1, \alpha_1) &\propto |P_F + P_s|^2 \\ &= |P_F|^2 + |P_s|^2 + P_F P_s^* + P_F^* P_s, \end{aligned} \quad (14)$$

(14) 式表明飞秒极化拍信号是三种信号的线性叠加, 即双光子 NDFWM 信号强度自相干信号强度 $|P_F|^2$, 三光子 SWM 自相干信号强度 $|P_s|^2$ 及 NDFWM 与 SWM 信号的交叉项 $P_F P_s^* + P_s P_F^*$. 在这三项之中, 前两项如之前所作的分析会产生 THz 量级的 RDO 振荡, 对应表 3 中不含 ω_3 的频率项, 而最后一项会产生飞秒量级的振荡, 对应表 3 中含有 ω_3

的频率项,也就是说飞秒极化拍实际上是最后 NDFWM 与 SWM 相互作用产生的.图 5(a)和(b)很好地反映了上述分析,在图 5(a)中明显存在两种频率差别很大的振荡,对应于图 5(b)中两类相隔很远的谱群.高频频谱群是飞秒振荡的傅里叶变化得到

的,低频频谱群是 RDO 振荡的傅里叶变换得到的.其实这两类振荡的频率是相差 10^3 量级的,但为了作图分析的需要,图中极化拍频率只比 RDO 频率高了两个数量级.表 3 统计了极限增宽时飞秒极化拍信号所有振荡的频率.

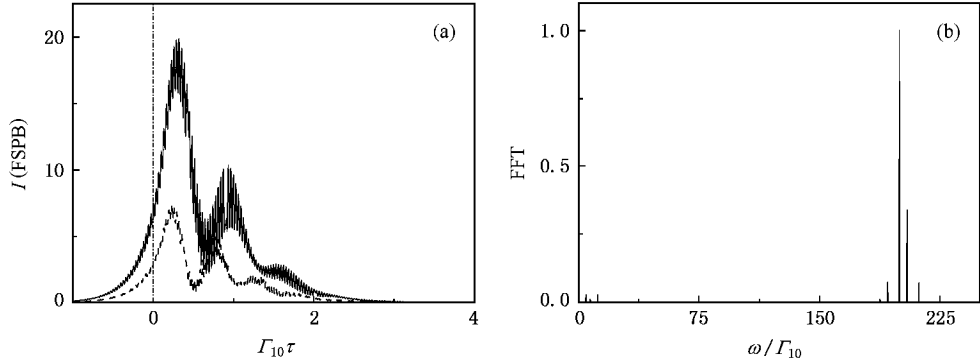


图 5 零差飞秒极化拍强度图和傅里叶分析.(a)极化拍强度对 $\Gamma_{10}\tau$ 扫描,纵坐标取任意单位.作图参数为 $\alpha_2/\Gamma_{10} = 2, \alpha_3/\Gamma_{10} = 0.5, \Delta_2/\Gamma_{10} = 2, \Delta_3/\Gamma_{10} = 2.5, \omega_3 = 200, \Delta_1/\Gamma_{10} = 3$ (实线), $\Delta_1/\Gamma_{10} = 4$ (虚线).(b)零差信号的归一化快速傅里叶变换频谱.参数为 $\alpha_2/\Gamma_{10} = 2, \alpha_3/\Gamma_{10} = 0.5, \Delta_2/\Gamma_{10} = 2, \Delta_3/\Gamma_{10} = 2.5, \omega_3/\Gamma_{10} = 200, \Delta_1/\Gamma_{10} = 4$.由于作图分辨率限制,图中只能看到部分频率

表 3 极限增宽式飞秒极化拍信号所有振荡的频率

延时时间	$\tau > 0$	$\tau < 0$	合计
多普勒极 限增宽	$(\xi_1\Delta_1 + \Delta_2), (\xi_2\Delta_1 + \Delta_3),$ $(\xi_1 - \xi_2)\Delta_1 + \Delta_2 - \Delta_3,$ $\omega_3, \omega_3 \pm (\xi_1\Delta_1 + \Delta_2), \omega_3 + \xi_2\Delta_1 + \Delta_3,$ $\omega_3 + (\xi_1 - \xi_2)\Delta_1 + \Delta_2 - \Delta_3$	$(\xi_1 - \xi_2)\Delta_1 + \Delta_2 - \Delta_3,$ $\omega_3,$ $\omega_3 + (\xi_1 - \xi_2)\Delta_1 + \Delta_2 - \Delta_3$	$(\xi_1\Delta_1 + \Delta_2), (\xi_2\Delta_1 + \Delta_3),$ $(\xi_1 - \xi_2)\Delta_1 + \Delta_2 - \Delta_3,$ $\omega_3, \omega_3 \pm (\xi_1\Delta_1 + \Delta_2), \omega_3 + \xi_2\Delta_1 + \Delta_3,$ $\omega_3 + (\xi_1 - \xi_2)\Delta_1 + \Delta_2 - \Delta_3$

在分析完飞秒极化拍信号的性质后,下面就可以详细探讨外差法了.实际上外差法就是将实验上很难探测到的五阶非线性极化率吸收色散特性曲线通过实验上较容易探测的极化拍信号反映出来.当然对外差法的运用是要满足一定条件的,以下我们将详细讨论这些条件.首先飞秒极化拍信号表达式(14)是可以极化强度与极化率的关系式(10), (11)变为如下形式的:

$$\mathcal{K}(\tau, \Delta_i, \alpha_i) \propto \eta_F |\chi_F|^2 e^{-2\alpha_2\tau} + \eta_S |\chi_S|^2 e^{-\alpha_2\alpha_3\tau} + 2\eta_{FS} |\chi_F| |\chi_S| e^{-(2\alpha_2+\alpha_3)\tau} \times \cos(\theta_F - \theta_S + \theta_R), \quad (15)$$

这里 $\chi_F = |\chi_F| e^{i\theta_F} = |\chi_F| \cos\theta_F + i|\chi_F| \sin\theta_F, \chi_S = |\chi_S| e^{i\theta_S} = |\chi_S| \cos\theta_S + i|\chi_S| \sin\theta_S, \theta_R = \Delta\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} + \omega_3\tau, \Delta\mathbf{k} = \mathbf{k}'_3 - \mathbf{k}_3, \eta_F = \epsilon_1^2 \epsilon_2^2 (\epsilon'_2)^2, \eta_S = \epsilon_1^2 \epsilon_2^2 (\epsilon'_2)^2 \epsilon_3^2 (\epsilon'_3)^2, \eta_{FS} = \epsilon_1^2 \epsilon_2^2 (\epsilon'_2)^2 \epsilon_3 (\epsilon'_3)^*$.抛开复杂的数学表达式不谈,我们知道五阶非线性极化率相对

于三阶非线性极化率来说是非常弱的,以至于六波混频极化强度自相干信号往往会被四波混频极化强度自相干信号淹没,反映到数学上即 $|\chi_F|^2 \gg |\chi_S|^2$, 这是外差法的前提条件.在这种情况下,零差信号(15)式变为外差拍信号(16)式:

$$\mathcal{K}(\tau, \Delta_i, \alpha_i) \propto \eta_F |\chi_F|^2 e^{-2\alpha_2\tau} + 2\eta_{FS} |\chi_F| |\chi_S| \times e^{-(2\alpha_2+\alpha_3)\tau} \cos(\theta_F - \theta_S + \theta_R), \quad (16)$$

(14)式中信号强度是受 χ_F, χ_S , 激光线宽 α_i 和延时 τ 调制影响的.更进一步考虑,从图 1(a)中可以很清楚地看到频率为 ω_2 的激光对 χ_F 和 χ_S 都有调制作用,频率为 ω_3 的激光只对 χ_S 起调制作用. χ_S 是我们最为关心的,那么把四波混频信号作为参考光信号,六波混频信号作为待测信号,在激光线宽 α_i , 延时 τ 和频率 ω_2 固定的情况下,飞秒极化拍信号就唯一的被 ω_3 的激光调制了. ω_3 对极化拍信号的调制实际上是对极化拍信号作了激光与物质的失谐量

Δ_3 的扫描,这完全是一个频域上扫描,反映的却是我们所关心的 χ_s 的信息,而与 χ_F 有关的第一项完全变成一个水平的背底信号(图 (a)(b)),第二项中的 χ_F 也变为了一个常数.当然我们最终要得到的是 χ_s 实、虚部的吸收色散图,而 χ_s 实、虚部分别表示为 $|\chi_s| \cos\theta$ 和 $|\chi_s| \sin\theta$,在 (16) 式中如果 $\theta_F + \theta_R = 2n\pi$ 时就会变为

$$I(\tau, \Delta_i, \alpha_i) \propto \eta_F |\chi_F|^2 e^{-2\alpha_2 \tau} + 2\eta_{FS} |\chi_F| |\chi_s| e^{-(2\alpha_2 + \alpha_3)\tau} \cos\theta_s, \quad (17)$$

如果 $\theta_F + \theta_R = 2n\pi + \frac{\pi}{2}$ 时 (14) 式又会变为

$$I(\tau, \Delta_i, \alpha_i) \propto \eta_F |\chi_F|^2 e^{-2\alpha_2 \tau}$$

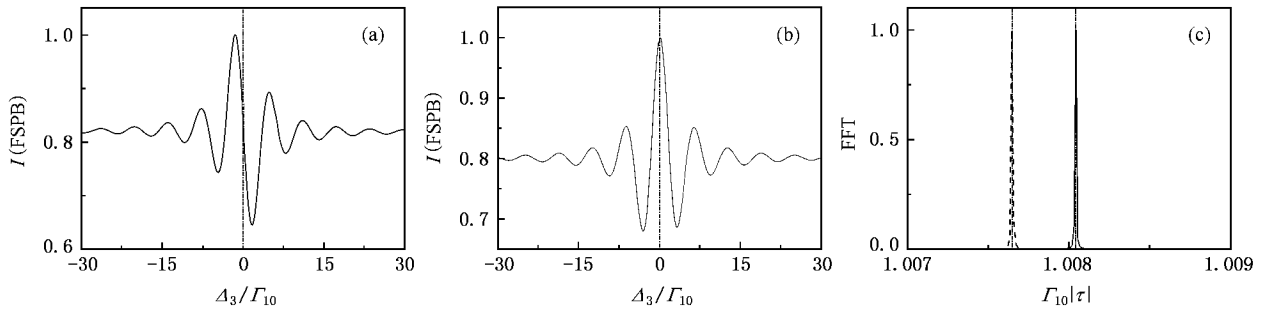


图 6 极限增宽 $\tau < 0$ 时,外差拍得到的对应于 χ_s 吸收 (a) 色散 (b) 归一化曲线.图中参数为 $\Delta_1/\Gamma_{10} = 0.01$, $\Delta_2/\Gamma_{10} = 0.02$, $\alpha_2/\Gamma_{10} = 1$, $\alpha_3/\Gamma_{10} = 4$, $\omega_3/\Gamma_{10} = 4000$, $\xi_1 = 2.5$, $\xi_2 = 1.2$, $\Gamma_{20}/\Gamma_{10} = \Gamma_{30}/\Gamma_{10} = 0.1$, $\Gamma_{10}\tau = -1.00804$ (a), $\Gamma_{10}\tau = -1.00765$ (b) (c) 外差极化拍信号归一化快速傅里叶变换频谱 (a) 图 RDO 频率 (实线) (b) 图 RDO 频率 (虚线)

6. 讨论及结论

我们研究了 RV 四能级原子系统多普勒极限增宽条件下由三阶和五阶非线性极化率 χ_F 和 χ_s 生成的亚飞秒极化拍,并利用外差探测法得到 χ_s 的实虚部图形,该方法可以应用于其他能发生相位匹配的 NDFWM 和 SWM 的物质. Ma 等^[10]在固体薄片利用飞秒极化拍频信号测量三阶非线性极化率的相位,他们的方法是通过同时记录两个不同传播方向的极化拍信号随延迟时间的变化情况得到极化率

$+ 2\eta_{FS} |\chi_F| |\chi_s| e^{-(2\alpha_2 + \alpha_3)\tau} \sin\theta_s. \quad (18)$
用外差法得到的图 (a)(b) 和用直接计算得到的图 4(a)(b) 一样,都反映了 χ_s 实、虚部的特性,不同点仅在于前者在振荡幅度上有所变化且多了常数背底.外差法要求 $\theta_F + \theta_R = 2n\pi$ 或 $2n\pi + \frac{\pi}{2}$, τ 和 r 不可以随意选取.在 $\Delta k \cdot r = 0$ 时, τ 要满足 $\tau = \frac{2n\pi - \theta_F(\tau)}{\omega_3}$ (色散曲线), $\tau = \frac{2n\pi + \pi/2 - \theta_F(\tau)}{\omega_3}$ (吸收曲线).以上两个方程中 n 的取值由 τ 的符号决定,而这两个方程是超越方程,可以通过数值逼近法得到.以上我们就由外差法得到了五阶非线性极化率的吸收色散曲线.

的相位信息.本文的不同之处在于通过调节 ω_3 和能级失谐量 Δ_3 ,只记录一个传播方向的极化拍信号,直接得到五阶非线性极化率的实部和虚部图样.总之,我们证明了一种能在 RV 四能级中研究 SWM 的相敏技术.参考信号是另外一束与 SWM 信号传播方向稍有差别的 NDFWM 信号.因为参考信号传播方向和信号光传播方向夹角很小,所以进行模式匹配和减小背底(所有其他场,线性响应及散射等)就非常重要.这种方法可用于研究极限条件下五阶非线性极化率的相位变化及吸收色散特性.

[1] Zhang Y P, Gan C L, Xiao M 2006 *Phys. Rev. A* **73** 53801
[2] Xu G, Wang T, Zhu H Y, Qian L J, Fan Z Y, Li F M 2002 *Acta Phys. Sin.* **51** 2261 (in Chinese) 徐光、王 韬、朱鹤元、钱列加、范滇元、李富铭 2002 物理学报 **51** 2261]

[3] Gan C L, Zhang Y P, Feng Y, Yu X J, Wang J, Li C S, Song J P, Lu K Q, Hou X 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 726 (in Chinese) 甘琛利、张彦鹏、冯 宇、余孝军、汪 杰、李创社、宋建平、卢克清、侯 洵 2005 物理学报 **54** 726]

- [4] Kang H , Zhu Y F 2003 *Phys. Rev. Lett.* **91** 93601 43802
- [5] Lu B , Burkett W H , Xiao M 1998 *Opt. Lett.* **23** 804 [8] 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** 23802
- [6] Zhang Y P , Gan C L , Li L , Ma R Q , Song J P , Jiang T , Yu X J , Li C S , Ge H , Lu K Q 2005 *Phys. Rev. A* **72** 13812 [9] Ulnes D J 2003 *J. Phys. Chem. A* **107** 8111
- [7] Zhang Y P , Araujo C B de , Eyley E E 2001 *Phys. Rev. A* **63** [10] Ma H , Araujo C B de 1993 *Phys. Rev. Lett.* **71** 3649

Three-photon absorption and dispersion of sub-femtosecond polarization beat in reverse V-type four-level^{*}

Nie Zhi-Qiang¹⁾ Li Ling¹⁾ Jiang Tong¹⁾ Shen Lei-Jian¹⁾ Li Pei-Zhe¹⁾ Gan Chen-Li²⁾
Song Jian-Ping¹⁾ Zhang Yan-Peng^{1)†} 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 19 April 2007 ; revised manuscript received 12 May 2007)

Abstract

We investigate theoretically the color-locked twin noisy field-correlation effects in fifth-order nonlinear absorption and dispersion of ultrafast polarization beats in the RV type system. We demonstrate a phase-sensitive method for studying the three-photon six-wave mixing due to atomic coherence in this multi-level system. In the limit of the narrowband and tail approximation , the fifth-order nonlinear coefficients are independent of the color-locked noisy lights. In broadband FWM and SWM signals show time asymmetry due to field-correlation ,and RDO effect of frequency-time domain. Moreover ,the polarization presents RDO oscillation in frequency-domain. The reference signal is a two-photon non-degenerate four-wave mixing signal ,which propagates in the direction a little different from the optical path of the SWM signal. This method is used for studying the phase dispersion of the fifth-order dispersion and absorption and for the optical heterodyne detection of the three-photon SWM signal. The fifth-order nonlinear response can be controlled and modified through the color-locked correlation of twin noisy fields. The method of phase sensitive detection can be used to detect the nonlinear absorption and dispersion of the three-photon SWM.

Keywords : heterodyne , absorption , dispersion , susceptibility

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 .E-mail :ypzhang@mail.xjtu.edu.cn.