

# 不对称介质中载波包络相位相关的超快多光子现象研究

杨玮枫 宋晓红\*

(汕头大学理学院物理系, 广东 汕头 515063)

**摘要** 研究了不对称介质中载波包络相位(CEP)相关的超快多光子过程。研究发现,通过调节周期量级超短脉冲的 CEP, 能够实现对超快四波混频转换效率的有效控制。而且,进一步研究发现,入射脉冲的 CEP 能够被极化分子介质中产生的孤子脉冲“记住”,这一崭新的效应提供了一种测量未经放大周期量级超短激光脉冲 CEP 的新方案。另外,研究了半抛物量子阱(QW)中的载波拉比振荡效应的物理机制。

**关键词** 超快光学;载波包络相位;周期量级超短脉冲;多光子

**中图分类号** O436 **文献标识码** A **doi**: 10.3788/LOP49.103201

## Carrier-Envelope Phase Dependence of Ultrafast Multiphoton Processes in Asymmetrical Media

Yang Weifeng Song Xiaohong

(Department of Physics, College of Science, Shantou University, Shantou, Guangdong 515063, China)

**Abstract** The carrier-envelope phase (CEP) dependent ultrafast multiphoton processes in polar molecule media is investigated. The conversion efficiency of four-wave mixing can be controlled by the CEP of ultrashort pulses is found. Moreover, the initial CEP of the incident ultrashort pulse propagating in a polar molecule medium can be "remembered" by the subsequent generated soliton pulse, which provides a new method to measure the CEP of non-amplified few-cycle ultrashort pulse. Furthermore, the physics mechanism of carrier-wave Rabi flopping in asymmetric semiparabolic quantum well (QW) is studied.

**Key words** ultrafast optics; carrier-envelope phase; few-cycle ultrashort pulse; multiphoton

**OCIS codes** 320.7150; 320.2250

## 1 引言

随着飞秒脉冲技术的发展,仅包含几个光学周期的激光脉冲得以产生<sup>[1]</sup>。周期量级超短激光脉冲中电场的变化取决于脉冲的载波包络相位(CEP)。从微扰非线性光学<sup>[2]</sup>到极端强场非线性光学领域<sup>[3]</sup>,载波包络相位对激光与物质的非线性相互作用都有非常重要的影响。首先,通过调节激光脉冲的载波包络相位,可以在亚周期乃至阿秒级的时间尺度内探索并控制原子、分子的电子波包动力学行为<sup>[4]</sup>。其次,周期量级极端超快激光脉冲 CEP 的稳定与测量本身仍然是超快激光领域中公认的研究难点与热点<sup>[5,6]</sup>。

从介质方面来考虑,许多介质本身具有不对称结构,如极化分子、不对称量子阱等半导体材料。不对称介质具有以下物理性质:1) 由于非零固有偶极矩的存在,多光子激发会增强,利于产生激光与介质的共振强相互作用。2) 不对称介质中反演对称性被破坏,可以避免 CEP 测量中 $\pm\pi$ 相位的模糊性<sup>[7-9]</sup>,从而可实现对 CEP 的完全决定。因此,研究周期量级超短激光脉冲与不对称介质的相互作用,不仅有望开辟探测未经放大周期量级超短激光脉冲 CEP 的新途径,而且对在阿秒时间尺度内探测或控制不对称介质内超快动力学行为也有重要的应用前景<sup>[10-19]</sup>。

**收稿日期**: 2012-05-21; **收到修改稿日期**: 2012-06-29; **网络出版日期**: 2012-08-28

**基金项目**: 汕头大学高层次引进人才启动基金资助课题。

**作者简介**: 杨玮枫(1977—),男,博士,教授,主要从事超快激光物理方面的研究。E-mail: wfyang@stu.edu.cn

\* **通信联系人**。E-mail: songxh@stu.edu.cn

本文系统总结了近几年作者在该领域所作的工作,包括周期量级双色场超短激光脉冲操控极化分子介质中 ultrafast 四波混频产生、极化分子介质中载波包络相位相关的非线性传输效应以及不对称半导体量子阱中的载波包络相位相关的载波拉比振荡现象,给出了存在固有偶极矩系统(即反演不对称系统)中极端非线性相互作用中的新规律与新机制。

## 2 理 论

描述场与极化分子相互作用的总哈密顿表示为

$$\mathbf{H} = \mathbf{H}_0 + \mathbf{V} = \begin{bmatrix} E_1 & 0 \\ 0 & E_2 \end{bmatrix} - E(t) \begin{bmatrix} \mu_{11} & \mu_{12} \\ \mu_{21} & \mu_{22} \end{bmatrix}. \quad (1)$$

式中  $E_1 = -\frac{1}{2}\hbar\omega_0$  和  $E_2 = \frac{1}{2}\hbar\omega_0$  分别为介质基态及激发态的能量,  $\omega_0$  为两个能级之间的跃迁频率,  $\mu_{ij}$  为偶极矩矩阵元,  $E(t)$  为激光场, 假设激光场是线偏振的, 偏振方向与偶极矩矩阵元方向平行, 脉冲包络形状为双曲正割型, 则电场可以表示为

$$E(t) = E_0 \operatorname{sech}[(t - t_0)/\tau_p] \cos[\omega_1 \cdot (t - t_0) + \phi], \quad (2)$$

式中  $E_0$ ,  $\omega_1$ ,  $\tau_p$  和  $\phi_i$  分别是电场振幅, 激光场频率, 脉冲的宽度和载波包络相位。

系统的时间演化由通常的密度矩阵等式决定, 可以导出的关于密度矩阵元  $\rho_{21}$ ,  $\rho_{22}$  和  $\rho_{11}$  的时间变化等式为

$$\frac{\partial \rho_{21}}{\partial t} = -i \left[ \omega_0 \rho_{21} + (\mu_{21} \rho_{22} - \mu_{21} \rho_{11} - d \rho_{21}) \frac{E(t)}{\hbar} \right] - \frac{1}{T_1} \rho_{21}, \quad (3)$$

$$\frac{\partial \rho_{22}}{\partial t} = \frac{i}{\hbar} (\rho_{12} - \rho_{21}) \mu_{21} E(t) - \frac{1}{T_2} \rho_{22}, \quad (4)$$

$$\frac{\partial \rho_{11}}{\partial t} = \frac{i}{\hbar} (\rho_{21} - \rho_{12}) \mu_{21} E(t), \quad (5)$$

式中  $T_1$  和  $T_2$  分别是失相时间和激发态衰减时间,  $d = \mu_{22} - \mu_{11}$  是基态和激发态固有偶极矩之差,  $dE(t)$  代表由固有偶极矩效应导致的量子干涉效应。

经典的处理电磁辐射, 麦克斯韦方程可以表达为

$$\frac{\partial \mathbf{M}(z, t)}{\partial t} = -\frac{1}{\mu_0} \frac{\partial \mathbf{E}(z, t)}{\partial z}, \quad (6)$$

$$\frac{\partial \mathbf{E}(z, t)}{\partial t} = -\frac{1}{\epsilon_0} \frac{\partial \mathbf{M}(z, t)}{\partial z} - \frac{1}{\epsilon_0} \frac{\partial \mathbf{P}(z, t)}{\partial t}, \quad (7)$$

式中  $\mathbf{M}$ ,  $\mathbf{P}$ ,  $\mu_0$  和  $\epsilon_0$  分别表示磁场, 宏观非线性极化, 真空中的磁导率和电导率。宏观非线性极化与极化分子偶极矩算符期待值的求和平均相关。

用标准的有限时域差分方法求解全波麦克斯韦方程, 同时在不采用任何标准近似的前提下用预纠正的思想求解密度矩阵等式。保证时间步长  $\Delta t$  和空间步长  $\Delta z$  满足  $c \Delta t \leq \Delta z$  ( $c$  为光速)。数值模拟的分子参数采用的 1-[p-(N,N-二甲氨基)苯基]-4-(p-磷酸硝基)-1,3-丁二烯分子的  $S_0 \rightarrow S_1$  电子跃迁分子参数相同。量子阱参数采用图 1 所示的 GaAs-AlGaAs 量子阱<sup>[15]</sup>。

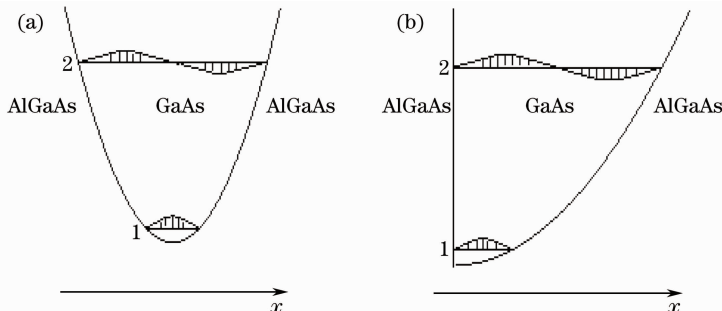


图 1 对称半导体量子阱(a)和非对称量子阱(b)的示意图

Fig. 1 Conduction-band profile of GaAs-AlGaAs (a) symmetric quantum well (QW) and (b) asymmetric QW

### 3 结果和讨论

图 2 呈现了双色周期量级超短激光脉冲传播到  $z=60 \mu\text{m}$  处产生的光谱,以及相应的输入双色场脉冲合成电场(频率分别为  $\omega_1$  和  $2\omega_1$ )的时间形状<sup>[8]</sup>。图 2(a),(b)显示了极化分子介质中的传播光谱。可以发现由于固有偶极矩的作用,高频光谱成分可以产生,在这其中频率  $5\omega_1$  和  $3\omega_1$  处的两个峰是四波混频产生波,也就是说,采用较低强度的脉冲在极化分子介质中传播也能放大超快四波混频。实际上,载波包络相位能够调制合成电场的形状,因此通过双色周期量级超短脉冲的载波包络相位组合可以操控四波混频的转换效率。通过图 2(c)可以看出对于载波包络相位组合  $\phi_1 = \phi_2 = 0$ ,平行于极化(或固有偶极矩)方向的峰值电场要远大于反方向的电场。图 2(d)展示了  $\phi_1 = \phi_2 = \pi$  情况下合成电场的时间形状。当反平行于固有偶极矩方向的电场峰值达到最大值时,这一方向上的电场显然强于另一个方向上的电场。图 2(b)呈现了如图 2(d)所示的输入双色场脉冲所诱导的光谱。 $4\omega_1$  和  $5\omega_1$  处的产生波都被进一步放大了。双光子和三光子过程都被大大地放大了,这样就压缩了其他更高阶过程的放大。在  $\phi_1 = \phi_2 = \pi$  时  $5\omega_1$  处的四波混频产生波强度是  $\phi_1 = \phi_2 = 0$  时的 10 倍。

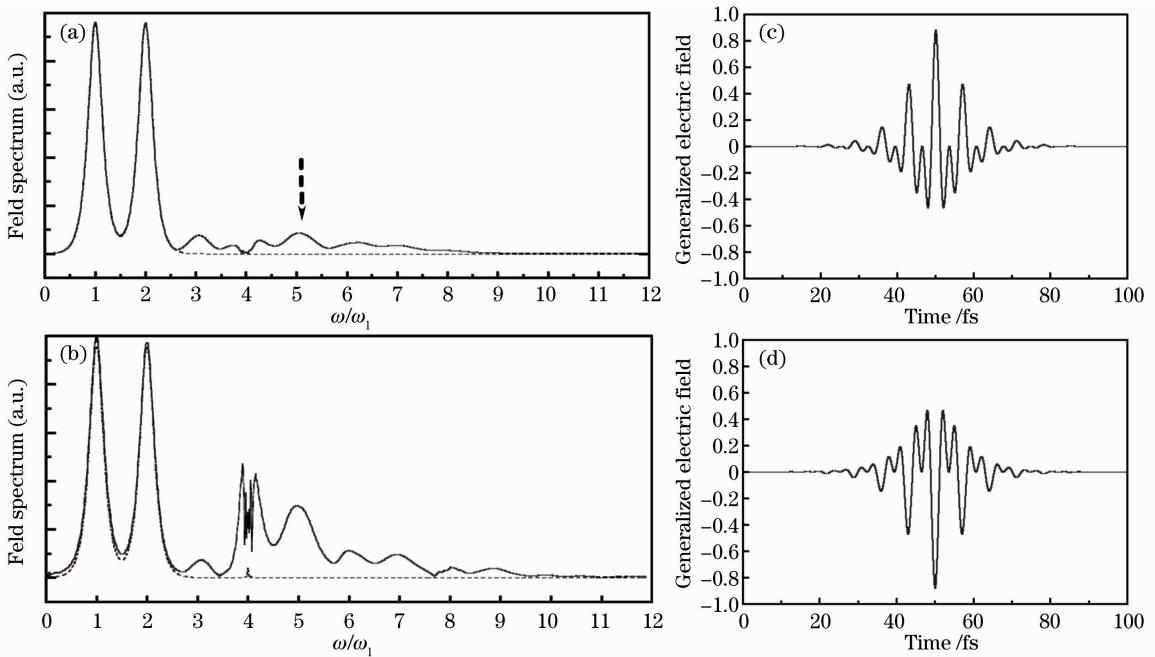


图 2 双色场周期量级超短脉冲在极化分子介质中传播到  $z=60 \mu\text{m}$  处产生的光谱。(a)  $\phi_1 = \phi_2 = 0$  和 (b)  $\phi_1 = \phi_2 = \pi$  时的光谱,(c),(d)为相应的双色场周期量级超短脉冲的输入电场

Fig. 2 Spectra of two-color few-cycle ultrashort pulses at  $z=60 \mu\text{m}$  in the polar molecule medium. (a) Spectra of  $\phi_1 = \phi_2 = 0$  and (b)  $\phi_1 = \phi_2 = \pi$ , (c) and (d) are the corresponding input carrier of two-color few-cycle pulses

进一步研究了周期量级超短激光脉冲在极化分子介质中诱导产生孤子脉冲的载波包络相位依赖效应。发现由于固有偶极矩的效应,在极化分子介质中能够产生一个孤子脉冲。入射脉冲的载波包络相位有效的改变了电场的形状,也由此导致了孤子脉冲携带着入射脉冲载波包络相位的信息。图 3 给出了输入脉冲载波包络相位  $\phi=0$  和  $\phi=\pi$ ,传播到  $240 \mu\text{m}$  时的时间变化电场、粒子布局 and 再辐射场。可以看出在两种情况下,都从主脉冲中分裂出一个孤子脉冲。通过比较时间变化电场和再辐射场,能够看出相干极化和与之相关的再辐射场在孤子脉冲的产生过程中起着决定性的作用。在图 3(e)和(f)中能够发现孤子脉冲的中心频率等于再辐射场的频率也就是等于分子系统的跃迁频率  $\omega_0 = 2\omega_1$ 。然而,在每种情况下,孤子脉冲的主要特征都很不相同。当输入脉冲载波包络相位  $\phi=0$  时,孤子脉冲的宽度要比输入脉冲载波包络相位  $\phi=\pi$  时大。因为输入脉冲载波包络相位  $\phi=\pi$  时孤子脉冲有更高的脉冲强度,所以这一孤子脉冲所诱导的粒子数变化要远远大于另一种情况[如图 3(a)和(b)的点线所示]。这些现象的物理机制可以理解为,由于极化分子两个能级中至少一个能级存在复合宇称,双光子跃迁通道被打开;当满足双光子共振条件的时候,二阶过程成为决定非线性相互作用最重要的因素;而且,固有偶极矩的效应扩大了再辐射场的建设性干涉作用,因此

就导致了在极化分子介质中二阶非线性过程的放大和孤子脉冲的产生。

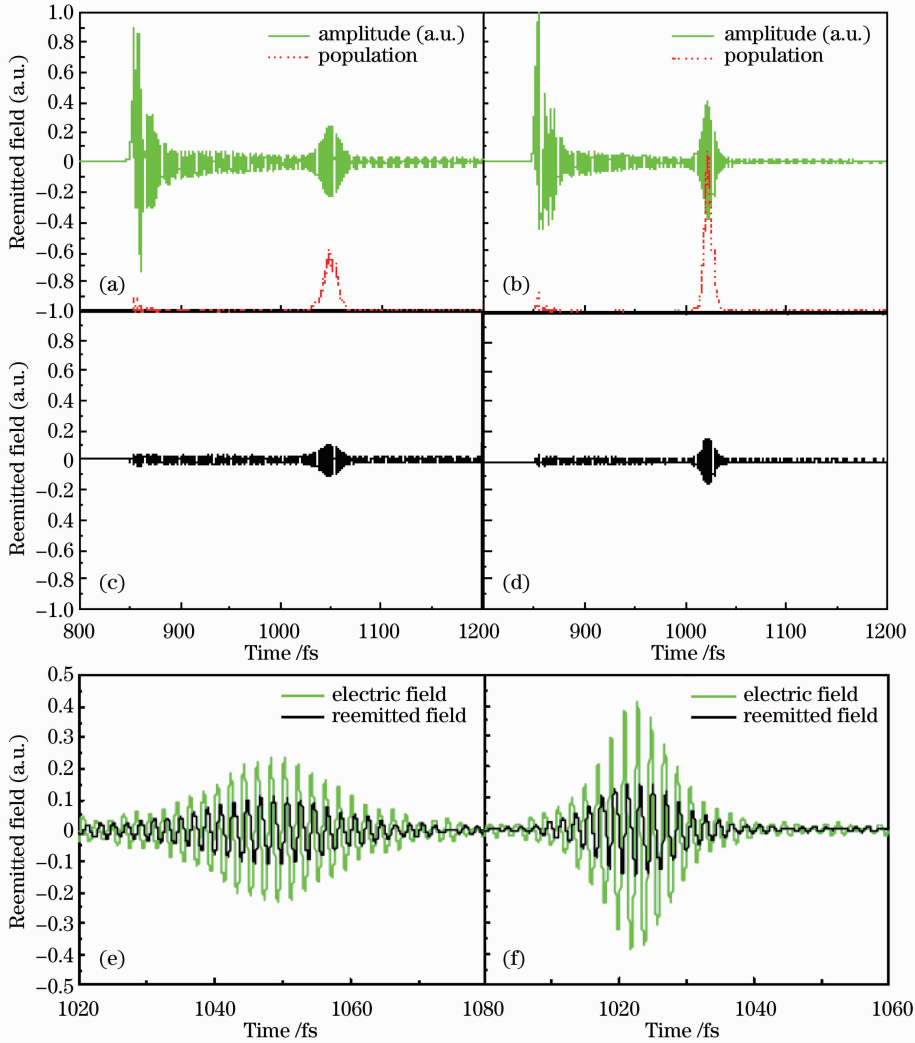


图3 脉冲在极化分子介质中传播到  $240 \mu\text{m}$  时的时间变化电场(实线)和粒子布局(点线)。(a)入射脉冲载波包络相位为  $0$ ; (b)载波包络相位为  $\pi$ 。(c)和(d)为(a),(b)对应的再辐射场。(e)和(f)振幅与对应的再辐射场的比较  
Fig. 3 Time dependent electric field and population at the distance of  $240 \mu\text{m}$  with CEP (a) and (c)  $0$ , (b) and (d)  $\pi$ . (e) and (f) The comparison of electric field and corresponding reemitted field

在图 4<sup>[9]</sup>中,选取了几个有着不同载波包络相位的入射脉冲,画出了孤子脉冲的宽度(在最大振幅的一半处测量)和振幅与入射脉冲载波包络相位之间的关系。每个入射脉冲的载波包络相位只对应着一个类孤子脉冲的宽度和振幅,它们之间存在一个函数关系。因而,在较低强度框架下( $10^{11} \sim 10^{12} \text{ W/cm}^2$ ),入射脉

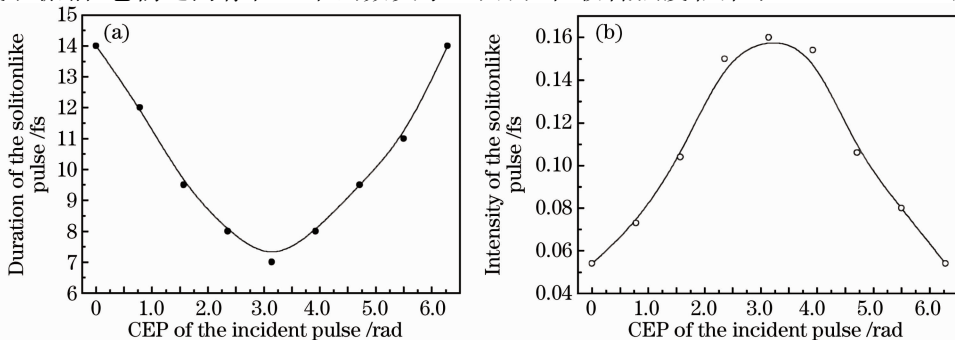


图4 在  $z=240 \mu\text{m}$  处,孤子脉冲的半峰全宽(a)和强度(b)与入射脉冲载波包络相位的函数关系图  
Fig. 4 (a) FWHM and (b) intensity of the soliton pulse as a function of the CEP of the incident pulse

冲的载波包络相位信息可以通过测量孤子脉冲的特性来得到。如果入射场的强度能够被定标,这一显著的效应能够用来决定直接从锁模振荡器中输出的周期量级超短激光脉冲的载波包络相位。

图 5 展示了周期量级超短激光脉冲与对称量子阱相互作用时产生的双光子跃迁透射光谱<sup>[15]</sup>。在激光透射光谱中发现奇次谐波产生。由于系统的反演对称性,很难发现偶次谐波产生。更重要的是周期量级超短激光脉冲的载波包络相位对高频成分影响很小。

图 6<sup>[15]</sup>表明当周期量级超短激光脉冲与低维非对称半抛物量子阱相互作用时,不仅发现奇次谐波产生,还发现偶次谐波产生。同时在这种情况下,周期量级超短激光脉冲的载波包络相位对透射光谱有明显的调制作用,即当周期量级超短激光脉冲在介质中传输一段距离后,对于激光脉冲有不同初始载波包络相位的情况,透射光谱结构也明显不同。如图 6 所示,当超短激光脉冲的初始载波包络相位为  $\phi=0$  时,高频成分显示为连续分布。随着初始载波包络相位  $\phi$  增加,透射光谱的连续分布特点变弱,相应振荡特点变得越来越强,尤其当周期量级超短激光脉冲的初始载波包络相位为  $\phi=\pi$  时,透射光谱呈现很完美的分立峰。

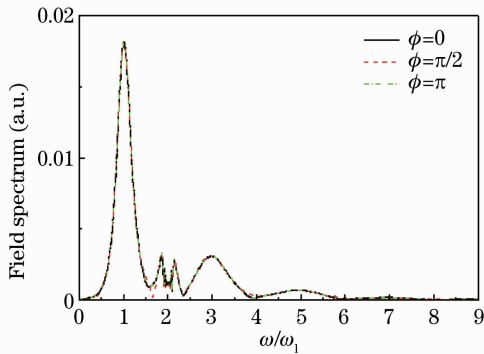


图 5 在双光子共振条件下周期量级超短脉冲与对称量子阱相互作用时的光谱

Fig. 5 Spectra of few-cycle ultrashort pulses in symmetric QW

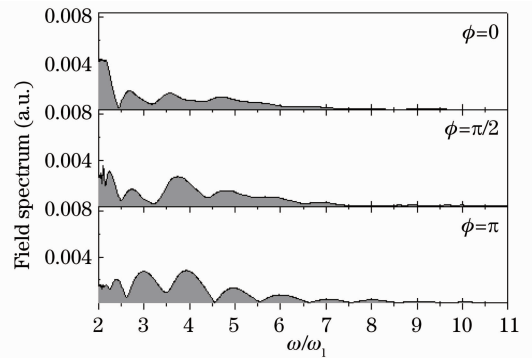


图 6 在双光子共振条件下周期量级超短脉冲与非对称性量子阱相互作用时的光谱

Fig. 6 Spectra of few-cycle ultrashort pulses in asymmetric QW

可以从图 7<sup>[15]</sup>中分析上述现象的物理机制,其中固有偶极矩对这新现象有至关重要的影响。当激光载波反向平行于固有偶极矩时(图中用‘方形’标示),低维半导体量子阱子带间跃迁被明显地增强。而当激光载波平行于固有偶极矩时(图中用‘椭圆形’标示),许多不完整的拉比振荡代替整数个拉比振荡出现。这种不完全的载波拉比振荡直接导致激光透射光谱中的高频成分产生。当基态和激发态之间的跃迁发生在对称性系统中时,载波拉比振荡效应非常弱。而当周期量级超短激光脉冲与非对称性介质系统相互作用时,平行于固有偶极矩的激光载波对脉冲载波拉比振荡和低频成分产生有决定性作用。如图 7 所示,当周期量级超短脉冲的初始载波包络相位为  $\phi=0$  时,平行于固有偶极矩的所有载波中,只在中心位置有最大值,它决定着载波拉比振荡,高频成分显示为连续分布。当超短脉冲的初始载波包络相位为  $\phi=\pi/2$  时,平行于固有偶极矩的第二个次最大载波变得更强,它们之间的干涉增强,高频成分的形状变化。而当周期量级超短激光脉冲的载波包络相位为  $\phi=\pi$  时,载波拉比振荡是由两个相等振幅的载波引起的,它们之间的干涉最强,导致激光透射光谱中的高频成分为分立分布。这表明当周期量级超短激光脉冲与低维非对称量子阱相互作用时,脉冲初始的载波包络相位可以在超

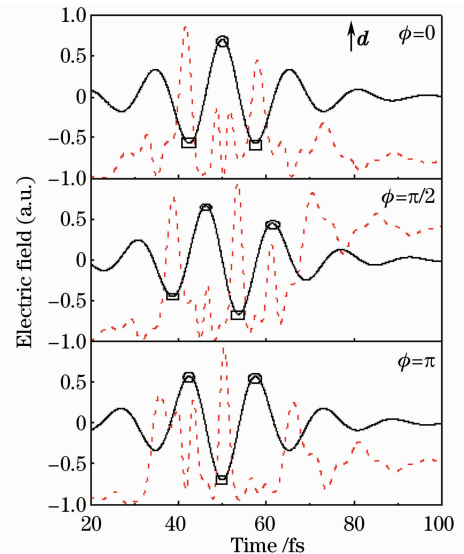


图 7 在非对称量子阱入射位置处的电场(实线)和粒子数差(虚线)

Fig. 7 Carrier of few-cycle ultrashort pulses (solid line) and the population difference (dotted line)

短时间范围内有效操控载波拉比振荡。

## 4 结 论

研究了不对称介质中载波包络相位相关的超快多光子过程。首先,利用周期量级双色场超短激光脉冲操控极化分子介质中超快四波混频的新方案,发现通过调节双色场的载波包络相位可以实现对超快四波混频转换效率的有效放大。更重要的是,发现了周期量级超短激光脉冲在极化分子介质中诱导产生孤子脉冲的载波包络相位依赖效应。发现由于固有偶极矩的效应,在极化分子介质中能够产生一个孤子脉冲。而且,孤子脉冲的主要特征,如脉冲宽度、强度等强烈地依赖于输入脉冲的载波包络相位。另外,也进一步研究了反演对称性打破时,半导体量子阱中的载波包络相位相关的载波拉比振荡现象,发现其物理机制与极化分子一样,都是由于固有偶极矩增强多光子跃迁而导致的。

## 参 考 文 献

- 1 G. Steinmeyer, D. H. Sutter, L. Gallman *et al.*, Frontiers in ultrashort pulse generation; pushing the limits in linear and nonlinear optics[J]. *Science*, 1999, **286**(19): 1507~1512
  - 2 D. J. Jones, S. A. Diddams, J. K. Ranka *et al.*, Carrier-envelope phase control of femtosecond mode-locked lasers and direct optical frequency synthesis[J]. *Science*, 2000, **288**(28): 635~639
  - 3 G. G. Paulus, F. Grasbon, H. Walther *et al.*, Absolute-phase phenomena in photoionization with few-cycle laser pulses [J]. *Nature*, 2001, **414**(8): 182~184
  - 4 A. Baltuška, Th. Udem, M. Uiberacker *et al.*, Attosecond control of electronic processes by intense light fields[J]. *Nature*, 2003, **421**(6): 611~615
  - 5 S. T. Cundiff, J. Ye, J. L. Hall, Optical frequency synthesis based on mode-locked lasers[J]. *Rev. Sci. Instrum.*, 2001, **72**(10): 3749~3771
  - 6 M. Kreß, T. Löffler, M. D. Thomson *et al.*, Determination of the carrier-envelope phase of few-cycle laser pulses with terahertz-emission spectroscopy[J]. *Nature Physics*, 2006, **2**: 327~331
  - 7 G. L. Kamta, A. D. Bandrauk, Phase dependence of enhanced ionization in asymmetric molecules[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2005, **94**(20): 203003
  - 8 W. Yang, S. Gong, Z. Xu, Enhancement of ultrafast four-wave mixing in a polar molecule medium[J]. *Opt. Express*, 2006, **14**(16): 7216~7223
  - 9 W. Yang, X. Song, S. Gong *et al.*, Carrier-envelope phase dependence of few-cycle ultrashort laser pulse propagation in a polar molecule medium[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2007, **99**(13): 133602
  - 10 W. Yang, S. Gong, R. Li *et al.*, Coherent population accumulations of multiphoton transitions induced by an ultrashort pulse train in polar molecules[J]. *Phys. Rev. A*, 2006, **74**(1): 013407
  - 11 W. Yang, S. Gong, R. Li *et al.*, Generation of attosecond pulses in a system with permanent dipole moment[J]. *Phys. Lett. A*, 2007, **362**: 37~41
  - 12 W. Yang, X. Song, R. Li *et al.*, Generation of intense extreme supercontinuum radiation via resonant propagation effects [J]. *Phys. Rev. A*, 2008, **78**(2): 023836
  - 13 W. Yang, S. Gong, Y. Niu *et al.*, Coherent population transfer with chirped few-cycle laser pulses in an excited-doublet four-level system[J]. *Chin. Opt. Lett.*, 2005, **3**(8): 435~437
  - 14 W. Yang, S. Gong, Y. Niu *et al.*, Enhancement of four-wave mixing induced by interacting dark resonances[J]. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, 2005, **38**(15): 2657~2663
  - 15 C. Zhang, X. Song, W. Yang *et al.*, Carrier-envelope phase control of carrier-wave Rabi flopping in asymmetric semiparabolic quantum well[J]. *Opt. Express*, 2008, **16**(3): 1487~1496
  - 16 X. Song, W. Yang, Z. Zeng *et al.*, Unipolar half-cycle pulse generation in asymmetrical media with a periodic subwavelength structure[J]. *Phys. Rev. A*, 2010, **82**(5): 053821
  - 17 W. Yang, X. Song, Z. Chen, Phase-dependent above-barrier ionization of excited-state electrons[J]. *Opt. Express*, 2012, **20**(11): 12067~12075
  - 18 W. Yang, X. Song, C. Zhang *et al.*, Carrier-envelope phase-dependent transmitted spectra in inversion-asymmetric media with permanent dipole moments[J]. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, 2009, **42**(17): 175601
  - 19 Hu Zhan, Jin Mingxing, Wu Di *et al.*, Ionization and energy transfer in polyatomic molecules under ultrafast intense laser field[J]. *Laser & Optoelectronics Progress*, 2010, **47**(9): 093203
- 胡 湛, 金明星, 吴 迪 等. 超快强激光场中多原子分子电离及能量转移过程[J]. *激光与光电子学进展*, 2010, **47**(9): 093203