

简并的四波混频中后向波时间特性的研究*

吴存恺 周 烽** 王志英
(中国科学院上海光学精密机械研究所)

提 要

用半最大全宽度为 10 ns Nd:YAG 调 Q 倍频激光脉冲作激发源,研究了透明介质及吸收介质的简并的四波混频后向波的时间特性。实验表明,当激发光脉冲持续时间 t 比特征时间 $T = \frac{\Delta}{v}$ (其中 Δ 是诱导声波波长, v 为声速)大得多时,后向波的周期振荡特性消失,呈指数衰减。对实验结果进行了讨论。

一、引 言

文献[1]的结果指出,用半最大全宽度为 35 ps 的激光脉冲作泵浦源,激光诱导声波是简并的四波混频后向波产生的主要机制。来自这种机制的后向波与读出光束延迟时间的关系呈周期振荡状态。

本文是[1]的进一步研究。使用半最大宽度约为 10 ns, 波长为 5320 Å 激光脉冲作泵浦源,研究了透明介质 CS₂、苯、硝基苯、甲苯及吸收介质若丹明 6 G 酒精溶液、Coumarin 152 二氯乙烷溶液的简并的四波混频后向波强度与读出光束延迟时间的关系。物波与写入波间的夹角 2θ 分别为 5、8、10、14、19、28 和 50 m rad,物波的偏振方向分别与泵浦波(写入光束和读出光束)的偏振方向正交和平行情况下,读出光束延迟时间由 -1.5~32 ns 范围,逐点测量了后向波的强度。

另外,理论分析解释了本文及[1]的实验结果。若激发光脉冲的半最大全宽度为 t , 波长为 λ , 介质中的声速为 v , 则当 t 远大于特征时间 Δ/v (其中 $\Delta = \frac{\lambda}{2n \sin \theta}$) 时,后向波强度与读出光束延迟时间的关系曲线呈指数衰变状态;当 t 远小于特征时间 Δ/v 时,后向波呈周期振荡状态,此时激光诱导声波是产生后向波的主要机制。

二、实 验 装 置

我们采用的实验装置如图 1 所示。与典型的简并四波混频装置相比,仅增加了改变光束偏振的元件和读出光束 E_2 的光学延迟线^[2]。泵浦源是能量约为 13 mJ 5320 Å 激光脉冲。转动半波片 H , 可以改变物光束的偏振方向。研究了两种偏振状态的情况:一是 E_1 、 E_2 为 p 偏振, E_3 为 s 偏振,此时记为 ps 偏置;另一种是 E_1 、 E_2 和 E_3 都为 p 偏振,此时记为 pp

收稿日期: 1983年7月29日; 收到修改稿日期: 1984年2月10日

* 本文曾在'83国际激光会议(中国,广州)上宣读。

** 浙江大学光仪系 83 届毕业实习生。

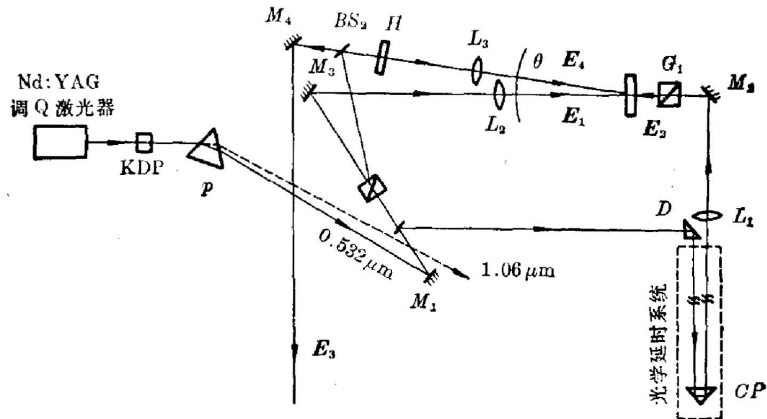


图1 简并的四波混频的实验装置

Fig. 1 Experimental arrangement for degenerated four-wave mixing

偏置。 E_1 、 E_2 和 E_3 光束的能量比约为 3:3:1。

后向波 E_4 从分束镜 BS_2 透射, 用快速硅光二极管接收, 示波器显示。每个测量点是十次取样值的平均值。为了消除激光强度起伏, 作平均时, 对每个取样值都乘一个激光强度负三次方数重因子。在不同角度 θ 、不同偏振状态下, 测量了二硫化碳、苯、甲苯、硝基苯、 $10^{-5} M$ 若丹明 6G 酒精溶液、 $10^{-4} M$ Coumarin 152 二氯乙烷溶液简并四波混频后向波强度随 E_2 光束延迟时间变化的曲线。

三、实验结果

1. ps 偏置状态下后向波的特性

此时物波 E_3 与写入波 E_1 的偏振方向互相垂直, 因此不能在介质中建立干涉场。在介质中不能形成对读出光束 E_2 进行衍射的体光栅。

(1) 经检验, 所产生的后向共轭波的偏振方向为 s , 即与 E_3 波的偏振方向相同。这表明后向波是来自三阶非线性光学极化率 $\chi_{1221}^{(3)}$ 。

(2) 后向波强度与入射物波强度成正比。在 E_2 波零延迟时刻, 后向波的强度大小与介质 $\chi_{1221}^{(3)}$ 大小排列相同。

(3) 各种介质后向波的时间特性相似。半最大全宽度约为 5 ns, 持续时间约为 13.2 ns。图 2(a), (b) 和 (c) 分别给出了 CS_2 , 若丹明 6G 酒精溶液和硝基苯的后向波强度与 E_2 波延迟时间的关系曲线。此时 $\theta \approx 25 \text{ mrad}$ 。由于激发的激光脉冲宽度远大于分子取向弛豫时间, 所以此时后向波的持续时间主要由入射波 E_1 、 E_3 和 E_2 的卷积确定。

(4) 在 E_2 波零延迟以前(我们测量到 -1.5 ns), 仍可观察到后向波信号, 但随着 E_2 超前时间的增加而减少。在 -1.5 ns 处, 各介质的后向波强度只有峰值强度的十分之几。这时的后向波强度和 E_2 与 E_1 、 E_3 在介质中时间上的重叠程度有关。

(5) E_2 波零延迟时, 即通常的简并四波混频状态, 各介质的后向波强度并非极大, 约为相应峰值的 50%, 如表 1 所示。峰值都在一定延迟之后出现。但对于不同的介质, 后向波达到峰值所需要的时间不同, 如表 2 所示。由表 2 可见, 峰值延迟时间顺序与分子取向时间

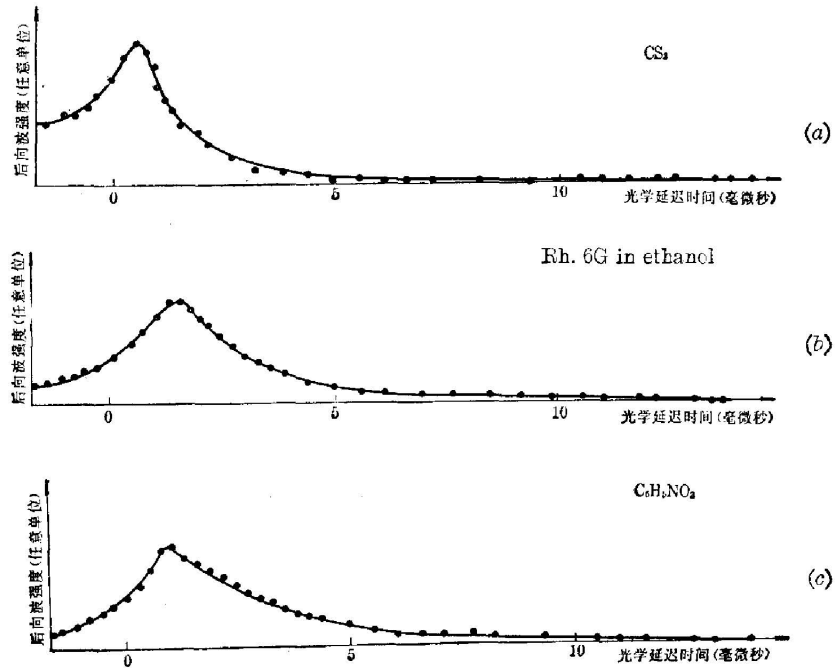


图 2 在 ps 偏置状态下后向共轭波强度与读出光束延迟时间的关系曲线
 Fig. 2 Dependence of the intensity of the backward wave on the optical delay of the reading beam for the orthogonal polarization (ps). (a) CS_2 , (b) Rh. 6G in ethanol, and (c) $C_6H_5NO_2$

表 1 \vec{E}_2 波零延迟时刻, 后向波强度与相应的峰值之比

Table 1 At the zero delay of E_2 beam, the ratio of the intensities of the backward wave to the peak intensity

工作介质 / 工作状态	CS_2	$C_6H_5NO_2$	Rh. 6G
ps	71.4%	50%	24%
pp	51%	80%	83%

表 2 后向波达到峰值时, \vec{E}_2 波的延迟时间(单位: ns)

Table 2 At the peak intensity of the backward wave, the delay time of E_2 beam (ns)

工作介质 / 工作状态	CS_2	$C_6H_5NO_2$	Rh. 6G
ps	0.51	0.84	1.32
pp	3.00	1.62	1.33

表 3 后向共轭波的衰变时间 τ (单位: ns)Table 3 The decay time of the backward wave E_4 (ns)

工作状态 \ 工作介质	CS ₂	C ₆ H ₅ NO ₂	Rh. 6G
<i>is</i>	0.81	2.8	1.28
<i>pp</i>	9.4	7.7	9.7

的大小顺序一致。

(6) 各介质后向波的时间特性曲线呈非对称性, 有较长的后沿, 后沿持续时间约为前沿上升时间的 12 倍。后向波强度由峰值下降到半极大值所对应的 E_2 波的延迟时间间隔为后向波的衰变时间 τ 。对于 CS₂、C₆H₅NO₂ 和 Rh. 6G 的 τ 值列于表 3 中。

2. *pp* 偏置状态下后向波的特性

在这种情况下, 物光束 E_3 与写入光束 E_1 相干涉, 在介质中建立起干涉场, 干涉条纹的间隔为 $A = \frac{\lambda}{2n \sin \theta}$ 。

(1) 对于所研究的介质, 其后向波都有很长的持续时间。当读出光束 E_2 延迟达 32 ns 时, 仍有一定强度的后向波信号。图 3(a), (b) 和 (c) 分别给出了 CS₂, 若丹明 6G 酒精溶液和硝基苯的后向波强度与 E_2 波延迟时间的关系曲线。此时 $\theta \approx 25$ m rad。

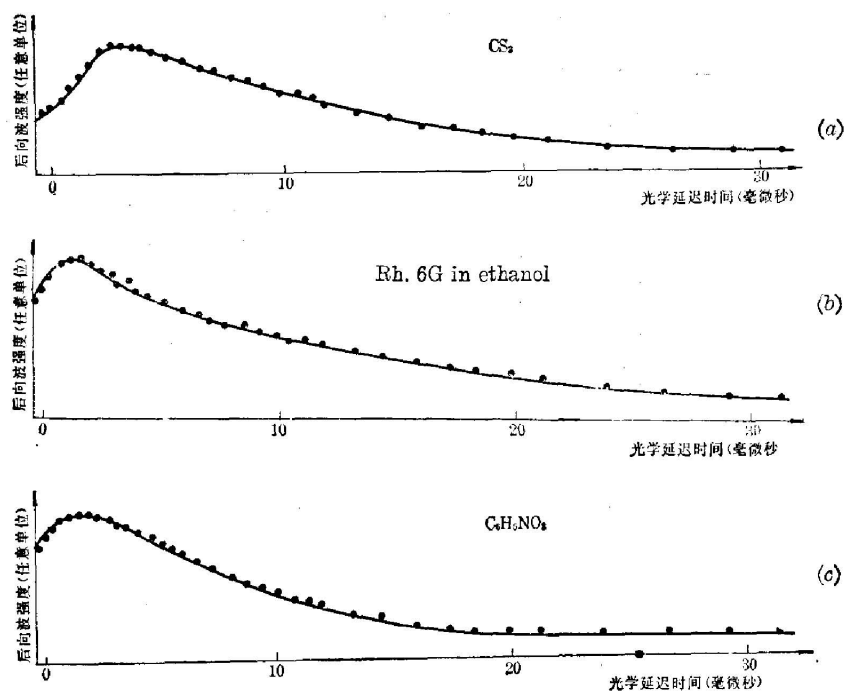
图 3 在 *pp* 偏置状态下, 后向共轭波强度与读出光束延迟时间的关系曲线

Fig. 3 Dependence of the intensity of the backward wave on the optical delay of the reading beam for the parallel polarization (*pp*).

(a) CS₂, (b) Rh. 6G in ethanol, and (c) C₆H₅NO₂

(2) 与 ps 偏置状态相比, 在同一时刻, 各介质的后向波强度增大。在零延迟时刻, 后向波强度与相应峰值之比变大, 见表 1。此时后向波的前沿时间变长。在实际应用中, 适当延迟读出光束, 可以获得最佳非线性反射率。

(3) 达到峰值所需要的延迟时间在表 2 中给出。与 ps 偏置状态相比, 对于透明介质, 峰值延迟时间明显增大, 然而对于吸收介质几乎不变。

(4) 对于所研究的介质, 后向波的衰变时间都很长。表 3 给出了三种介质的后向波衰变时间 τ 。

(5) 改变 θ , 可以得到与图 3 类似的曲线。然而, 随着 θ 的增大, 后向波强度减弱。这主要是由于介质的有效相互作用长度变短。在我们的实验中, 2θ 角的取值为 5、8、10、14、19、28 和 50 m rad。由于受到空间的限制, 没有进一步减小 θ 角。

四、讨 论

将本文得到的实验结果与文献[1]比较, 会提出如下两个问题:

(1) 为什么当激发光脉冲宽度由 35 微微秒增加到 10 毫微秒, 后向波的振荡特性消失了?

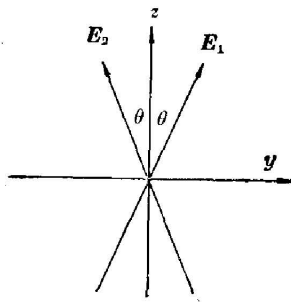


图 4 在简并的四波混频中光传播图

Fig. 4 Propagating geometry of the object and the writing waves in degenerate four-wave mixing

(2) 对于长激发光脉冲, 后向波产生的物理机制是什么?

下面回答第一个问题。已经知道热致光栅效应^[3]不可能引起后向波呈振荡状态。后向波的振荡状态来自于激光诱导声波。声波的激发是通过电场的电致伸缩力(或类似的驱动力)产生的。所以下面分析介质在电致伸缩力作用下折射率的变化。

若物波 E_3 与写入波 E_2 之间的夹角为 2θ , 其传播方向如图 4 所示。由于 E_1 与 E_3 波相干涉, 在介质中建立起非均匀场分布。电致伸缩力与 E^2 的梯度成正比。于是, 当介质的初始密度是均匀时, 电致伸缩力总是驱使粒子趋向强场区。按照 Clousius-Mosotti 关系, 介质的折射率的变化可表示为

$$\delta n = (n^2 - 1)(n^2 + 2)(\delta\rho/\rho_0)/6n_0$$

介质的密度变化 $\delta\rho$ 遵守驱动的声波方程

$$\left(-\nabla^2 + \frac{1}{v^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} + \frac{2\Gamma}{v^2} \frac{\partial}{\partial s}\right) \delta\rho = \frac{1}{8\pi} \frac{\gamma}{v^2} (\nabla^2 E^2),$$

式中 $v = (1/\beta\rho_0)^{1/2}$ 为声速, β 是等温压缩率, Γ 是声衰减因子, $\gamma = 2n\rho_0(\partial n/\partial\rho) = \frac{1}{3}(n^2 - 1)(n^2 + 2)$ 是电致伸缩常数。

如果视 $A_1 \approx A_2 = A$, 则在我们的情况下有

$$E^2 = \frac{1}{2} A^2(t) \exp\left(-i \frac{2\pi}{\lambda} y\right).$$

这时声波方程为

$$\left(-\nabla^2 + \frac{1}{v^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} + \frac{\partial \Gamma}{v^2} \frac{\partial}{\partial t}\right) \delta \rho = \frac{\gamma \pi}{4A^2} A^2(t) \exp\left(-i \frac{2\pi}{A} y\right).$$

若激发光脉冲为三角形尖脉冲

$$A(t) = \begin{cases} A_0 t / t_0 & (0 \leq t \leq t_0), \\ A_0(t-t_1)/(t_0-t_1) & (t_0 < t \leq t_1), \\ 0 & (t > t_1), \end{cases}$$

则边界条件为

$$\delta \rho(t=0) = 0, \quad \left. \frac{\partial \delta \rho}{\partial t} \right|_{t=0} = 0.$$

用分离变数法求解声波方程, 在作齐次方程中视声衰减因子 $\Gamma=0$, 于是得

$$\delta \rho = \frac{\gamma I}{4\pi^2 v^2 \left(\frac{t_0}{T}\right)^2 cn} \left(\cos \Omega t - \frac{\Omega^2}{2} t^2 - 1\right) \exp\left(-i \frac{2\pi}{A} y\right) \exp(-\Gamma t) \quad (0 \leq t \leq t_0),$$

$$\delta \rho = \frac{\gamma I}{4\pi^2 v^2 \left(\frac{t_0}{T}\right)^2 cn} \left[(1 - 2\Omega t_0 \sin \Omega t_0) \cos \Omega t + 2\Omega t_0 \cos \Omega t_0 \sin \Omega t \right. \\ \left. + \frac{\Omega^2}{2} (t - 2t_0)^2 - 1 \right] \exp\left(-i \frac{2\pi}{A} y\right) \exp(-\Gamma t) \quad (t_0 < t \leq t_1),$$

$$\delta \rho = \frac{\gamma I}{4\pi^2 v^2 \left(\frac{t_0}{T}\right)^2 cn} \left[2(\sin \Omega t_0 - \Omega t_0) \sin \Omega t_0 \cos \Omega t \right. \\ \left. + (2\Omega t_0 \cos \Omega t_0 - \sin \Omega t_0) \sin \Omega t \right] \exp\left(-i \frac{2\pi}{A} y\right) \exp(-\Gamma t) \quad (t > t_1),$$

式中 I 为激发光脉冲强度, $\Omega = 2\pi/T$.

我们研究 $t > t_1$ 时的解。由解的表达式可以看出, $\delta \rho$ 以频率 Ω 振荡, 振荡振幅与激发光脉冲的脉宽有关。当脉宽 t_0 比特征时间 T 小得多时, 即 $t_0/T \ll 1$, 可得

$$\delta \rho \approx \frac{\gamma I}{2\pi v^2 \left(\frac{t_0}{T}\right) cn} \sin \Omega t \exp\left(-i \frac{2\pi}{A} y\right) \exp(-\Gamma t).$$

此式表明在介质中激发起频率为 Ω , 传播矢量为 $\mathbf{K} = (2\pi/A)\mathbf{j}$ 的声波, 此声波沿 y 方向传播过程的衰变时间常数为 $1/\Gamma$ 。粒子密度的振荡振幅与 t_0/T 成反比, 显然激发光脉冲越短, 激光诱导声波效应越强。这正是文献[1], 用 35 微微秒激发光脉冲, 得到周期振荡的后向波实验结果。

当激发光脉冲宽度 t_0 比特征时间 T 大得多时, 即 $t_0/T \gg 1$, 可得

$$\delta \rho \approx \frac{\gamma I}{\pi v^2 \left(\frac{t_0}{T}\right) cn} \sin[\Omega(t-t_1)] \exp\left(-i \frac{2\pi}{A} y\right) \exp(-\Gamma t).$$

粒子的密度仍以频率 Ω 振荡。由于振荡振幅与 t_0/T 成反比, 对于脉宽为 10 ns 激发光脉冲来说, 激光诱导声波的振幅要比 35 ps 激发光脉冲所诱导的声波振幅低三个数量级以上。因此无法探测出诱导声波效应, 这正是我们用 10 ns 激发光脉冲所得到的后向波结果。

对于吸收介质, 每单位体积所吸收的光功率与介质的吸收系数 α_0 有关。若激光强度为 I , 则介质的光吸收为

$$q = \alpha_0 I,$$

式中 $I \propto |E|^2$ 。由于光波干涉在介质中造成光强分布不均匀,于是介质受到一热驱动力。此力也应当与 ∇I 成正比。这样一来热驱动力的分析与电致伸缩力的分析相类似。因此无论对吸收介质还是透明介质,当激发光脉冲宽度大于特征时间时,都不能在介质中有效地激发声波。这就回答了第一个问题。

下面回答第二个问题。由 ps 偏振配置的实验结果可知,克尔非线性光学效应主要在激光脉冲宽度内起作用,且仅在零延迟时间后 5 ns 时间内有较大的贡献。因此,对于 pp 偏置情况,由零延迟至 5 ns 时间内,可能是克尔非线性效应起主要作用。由热致光栅效应的分析知道,它在准静态条件下起主要作用,而且其持续时间很长,达毫秒级。因此对于很长的延迟时间,热致光栅效应起主要作用,这一点是清楚的^[2]。现在的问题是在延迟时间为 5 ns 至几十个 ns 期间,产生后向波的主要机制是什么?电致伸缩效应的响应时间为 10^{-8} 秒。上面已经指出,当 $t > T$ 时,电致伸缩效应不能有效地激发声波,但它仍能在介质中造成压力(或密度)不均匀分布(这种不均匀分布是局域的,不能有效地传播而形成声波),这就形成了折射率的周期分布。对于吸收介质,与光强成正比的热驱动力,也造成一压力的非均匀分布,这也表现为粒子的瞬时位移——介质密度的周期分布。显然,由于密度分布局域不均匀性引起的后向波的持续时间由粒子迁移 $\lambda/2$ 后的恢复时间 τ 确定。这个时间的下限近似为半特征时间 $T/2$,即 $\tau \geq T/2$,取 $\lambda = 20\ \mu\text{m}$,粒子最大迁移速度为声速 $v \approx 1500\text{ m/s}$,则得 $\tau \approx 6\text{ ns}$ 。因此,在延迟时间由 5 ns 至几十 ns 时间内,后向波主要来自介质中压力分布的局域不均匀性。在 pp 偏置实验中,当延迟时间大于 30 ns 时仍然观察到后向波信号(见图 3),其衰减得相当缓慢,这一部分后向波信号来自热致光栅的贡献。

五、结 论

由文献[1]及本文的结果可知,对于 pp 偏置情况,当激发光脉宽远小于特征时间时,电致伸缩力或热驱动力引起介质密度或压力分布不均匀,而这种不均匀性以驻声波的形式传播,于是引起后向波呈振荡状态。当激发光脉宽大于特征时间时,这种密度不均匀是局域的,不能以声波形式传播,因此后向波呈指数衰减状态,其时间常数由粒子密度恢复平衡状态所需要的迁移(或热导)时间确定。

对于 ps 偏置情况,后向波主要来自介质的三阶非线性效应。

对后向波时间特性的研究不仅可以了解体光栅的动力学特性,从而探知简并的四波混频位相共振波产生的机制,而且为获得高的非线性反射率提供最佳条件。显然,这在理论上和实际应用上都是有意义的。

作者对胡企铨同志在实验上所给予的许多帮助表示感谢。

参 考 文 献

- [1] C. K. Wu (Wu Cunkai), P. Agostini *et al.*; *Opt. Lett.*, 1983, 8, No. 2 (Feb), 67.
 [2] 叶佩弦、初桂荫等;《中国科学》, 1981, No. 2 (Feb), 179.

Investigation of time character of backward wave in degenerate four-wave mixing*

WU CUNKAI CHOU FENG AND WANG ZHIYING

(*Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Academia Sinica*)

(Received 29 July 1983; revised 10 February 1984)

Abstract

By using SH of a Q-switched Nd:YAG laser as the exciting pulse with FWHM of 10 ns, the time character of the backward waves were demonstrated for both transparent and absorbing media. The experimental results show that when the duration of the exciting pulses is considerably greater than the characteristic time $T = \lambda/v$ (where λ is the wavelength of the laser-induced acoustic wave; v is the sound velocity), the oscillating property of the backward wave disappears, it decays exponentially. The experimental results have been discussed.

*This paper was presented at '83 IOL (Guangzhou, China).