

# 瑞利增强非简并四波混频的时域不对称性研究

时 坚<sup>1</sup> 马瑞琼<sup>2</sup> 苗润才<sup>2</sup> 张彦鹏<sup>3</sup>

(1 西安邮电学院电子与信息工程系, 西安 710061)

(2 陕西师范大学物理学与信息技术学院, 西安 710062)

(3 西安交通大学电子科学与技术学院, 西安 710049)

**摘 要** 基于场关联原理, 采用非相干光时延四波混频法研究了瑞利增强非简并四波混频的时域特性. 利用二阶场关联函数理论揭示出混频信号在时域的细微变化, 发现信号展示出时域不对称性并且在  $\tau < 0$  时会出现振荡结构, 而这种时域不对称性反映了该三阶非线性极化过程的特点.

**关键词** 瑞利增强极化; 四波混频; 时域不对称

**中图分类号** O437.1 **文献标识码** A

## 0 引言

近年来, 物质的超快动力学过程研究已经成为热门的研究方向. 瑞利型非相干光时延四波混频法因其具有时间分辨不受激光脉宽限制的特点而成为测量物质超快过程的有效手段<sup>[1]</sup>. 这种非线性光谱学方法基于激光场随机涨落的特性, 通过对场关联效应的研究揭示光与物质相互作用的各种瞬态效应. 二阶场关联函数能够较为准确地描述激光场的随机特性, 目前已被广泛采用.

本文采用非相干光时延四波混频法研究了瑞利增强非简并四波混频的时域行为. 基于场关联原理, 利用二阶场关联函数理论分析了混频信号中与延时有关的部分, 发现混频信号受共振增强效应与场关联效应的共同影响, 而共振增强效应是导致信号的时域不对称性的原因. 所以对于瑞利增强四波混频而言, 这种不对称性反映的正是其极化过程的特性.

## 1 理论分析

RNDFWM 是一种有三束入射光参加作用的三阶非线性现象, 图 1 中光束 1 和光束 2 具有相同的频率  $\omega_1$ , 且它们之间有一个很小的夹角  $\theta$ . 光束 3 的频率为  $\omega_3$ , 它沿光束 1 的相反方向传播. RNDFWM 信号包含两个来源: 第一, 光束 1 和 2 在介质中感生一个静态栅, 光束 3 被这个静态栅衍射, 产生沿几乎与光束 2 的相反方向前进的频率为  $\omega_3$  的混频信号. 第二, 光束 2 和光束 3 在介质中干涉感生出一个以频率  $|\omega_1 - \omega_3|$  运动的动态栅, 光束 1 被这个动态栅衍射, 产生频率为  $\omega_3$  的混频信号.

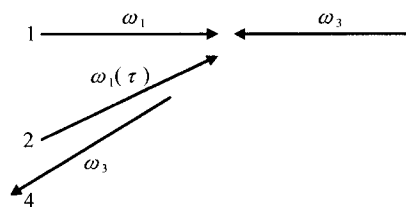


图 1 混频结构

Fig. 1 Diagram of the geometry of RENDFWM

瑞利型共振不同于喇曼共振, 后者源于光场对物质共振结构的激发, 在物质与光场间存在能量交换, 所以共振效应很强, 表现在时域信号中就是淹没场关联效应引起的对称性, 使信号展示不对称性. 而瑞利型共振只是一种类共振结构, 它源于光场对动态栅的衍射信号在  $\Delta = 0$  时的增强, 这种增强不是源自场与物质间的能量交换, 而是由于各入射光的非线性耦合,  $\Delta$  越小, 栅的运动周期越大, 则衍射信号越强. 这种共振效应相对较弱, 很难主导混频信号, 所以一般情况下只能看到被场关联效应主导的时域对称曲线. 本文的目的是揭示瑞利型 NDFWM 信号的时域不对称性, 因为它能够反映物质对光场的三阶极化响应特点.

## 2 计算与讨论

激光场的复数光场可以写为

$$E_i = A_i(\mathbf{r}, t) \exp(-i\omega_i t) = \epsilon_i u_i(t) \cdot \exp[i(\mathbf{k}_i \cdot \mathbf{r} - \omega_i t)] \quad (i=1, 3) \quad (1)$$

$$E_2 = A_2(\mathbf{r}, t) \exp(-i\omega_1 t) = \epsilon_2 u_2(t - \tau) \cdot \exp[i(\mathbf{k}_2 \cdot \mathbf{r} - \omega_1 t + \omega_1 \tau)] \quad (2)$$

$\epsilon_i, k_i$  分别是第  $i$  个光束的常量场振幅和波矢.  $u_i(t)$  是包含了位相和振幅起伏的无量纲因子, 假设光束 1 和 2 来自同一个激光光源, 因此有  $u_1(t) = u(t)$ ,  $u_2(t - \tau) = u(t - \tau)$ . 这里  $\tau$  是光束 2 相对于光束 1 的延迟时间.

对于动态栅, 其序参量为  $Q$ , 它满足方程

$$\frac{dQ}{dt} + \gamma Q = \chi \gamma [A_2'(r, t)]^* A_3(r, t) \exp[-i\Delta t]$$

式中  $\Delta = |\omega_3 - \omega_1|$ ,  $\chi, \gamma$  分别为光克尔介质的非线性极化率和栅的弛豫速率. 与之相对应的极化强度为

$$P = \chi \gamma \epsilon_3 \epsilon_1 \epsilon_2^* \int_0^{\infty} dt' u(t) u^*(t-t'-\tau) u_3(t-t') \cdot \exp[-(\gamma-i\Delta)t'] \exp[i((k_1-k_2+k_3) \cdot r - \omega_3 t - \omega_1 \tau)] = S(r) \int_0^{\infty} dt' u(t) u^*(t-t'-\tau) u_3(t-t') \exp[-(\gamma-i\Delta)t'] \quad (3)$$

式中  $S(r) = \chi \gamma \epsilon_1(\epsilon_2)^* \epsilon_3 \exp\{i[(k_1-k_2+k_3) \cdot r - \omega_3 t - \omega_1 \tau]\}$

对于发生相位匹配的宏观系统, NDFWM 信号由来自一个原子的  $P^{(3)}$  (拥有时间变量  $t$ ) 与来自其他地方的另一个原子的  $(P^{(3)})^*$  (拥有时间变量  $s$ ) 的乘积得到 (所有这样的原子对的总和). 在整个随机过程中 NDFWM 信号正比于  $P^{(3)}$  绝对值平方的平均值即  $\langle |P^{(3)}|^2 \rangle$ <sup>[2]</sup>, 该过程在相位共轭几何配置中与二阶和四阶相关函数有关. 所以有

$$I(\tau) \propto \langle |P^{(3)}|^2 \rangle = \langle |P|^2 \rangle \quad (4)$$

在考察 RNDFWM 信号的时域特性时, 如果只关心与  $\tau$  有关的部分, 则其信号强度可以用极化随机平均的绝对值平方近似描述  $I(\tau) \propto \langle |P^{(3)}\rangle|^2 = \langle |P\rangle|^2$ . 根据式(3)可以得到

$$\langle P \rangle = S(r) \int_0^{\infty} dt' \langle u(t) u^*(t-t'-\tau) u_3(t-t') \rangle \cdot \exp[-(\gamma-i\Delta)t'] \quad (5)$$

这种情况下得到的结果不能完全描述信号特点, 因为式(5)中含有  $\langle u(t) u^*(t-t'-\tau) u_3(t-t') \rangle$  项, 为了使此项有效, 必须同时假定  $u_3(t) \approx 1$ , 即光场 3 是单色稳定的光源. 但仍有必要考察这种情况的原因在于: 噪音光具有和超短脉冲激光类似的频谱, 而且它是完全非锁相的<sup>[3]</sup>; 即每一频率成份的位相是互相独立的. 因此每一频率成份充当一个独立的连续光波源, 这些来自单频连续光波源的无关联随机叠加就形成了拥有时间随机函数的噪音光场. 所以噪音光从本质上是色锁的, 它的每一种频率成份都是自相关联的, 而该频率成份和其他频率成份是不关联的. 这样在  $\langle u(t) u^*(t-t'-\tau) u_3(t-t') \rangle$  式中, 光场 3 是否是噪音场并不会影响  $\langle P^{(3)} \rangle$  结果的有效性.

假定激光光源具有洛伦兹线型, 则有<sup>[4]</sup>  $\langle u_i(t_1) \cdot u_i^*(t_2) \rangle = \exp(-\alpha_i |t_1 - t_2|)$ , 此式中  $\alpha_i = \frac{1}{2} \delta\omega_i$ ,  $\delta\omega_i$  为  $\omega_i$  的激光线宽. 则计算式(5)可得

$$(i) \tau > 0 \text{ 时} \\ I(\Delta, \tau) \propto \langle |P\rangle|^2 = \frac{|S(r)|^2 \exp(-2\alpha_1 |\tau|)}{(\gamma + \alpha_1)^2 + \Delta^2} \\ (ii) \tau < 0 \text{ 时}$$

$$I(\Delta, \tau) \propto \langle |P\rangle|^2 = |S(r)|^2 \left\{ \frac{\exp(-2\alpha_1 |\tau|)}{(\alpha_1 - \gamma)^2 + \Delta^2} - \frac{4\alpha_1 \exp[-(\gamma + \alpha_1) |\tau|]}{[(\gamma - \alpha_1)^2 + \Delta^2][(\gamma + \alpha_1)^2 + \Delta^2]} [(\gamma + \alpha_1) \cos(\Delta |\tau|) - \Delta \sin(\Delta |\tau|)] \right\}$$

模拟结果表明, 具有共振结构的信号在  $\tau < 0$  时会出现振荡结构, 如图 2(a), (b), 且信号展示出时域不对称性; 在  $\tau > 0$  时  $I(\Delta, \tau)$  反映的是光场间的相互作用, 而在  $\tau < 0$  时则反映光场与物质间的相互作用. 图 2(a) 表明带宽越大衰减越快, 这是由于相干时间越短, 非线性极化过程越快, 时域响应越尖锐. 图 2(b) 表明  $\Delta$  越大, 时域的振荡越多, 且随着  $\Delta$  的增大, RNDFWM 信号峰值移向  $\tau = 0$  处. 这是由于动态栅的运动周期是  $2\pi/\Delta$ ,  $\Delta$  越大周期越短, 时域的振荡越密集, 且随着  $\Delta/\gamma$  的增大, 共振增强效应对信号的影响减弱, 场关联效应主导信号, 所以信号峰值出现在场关联效应最强处.

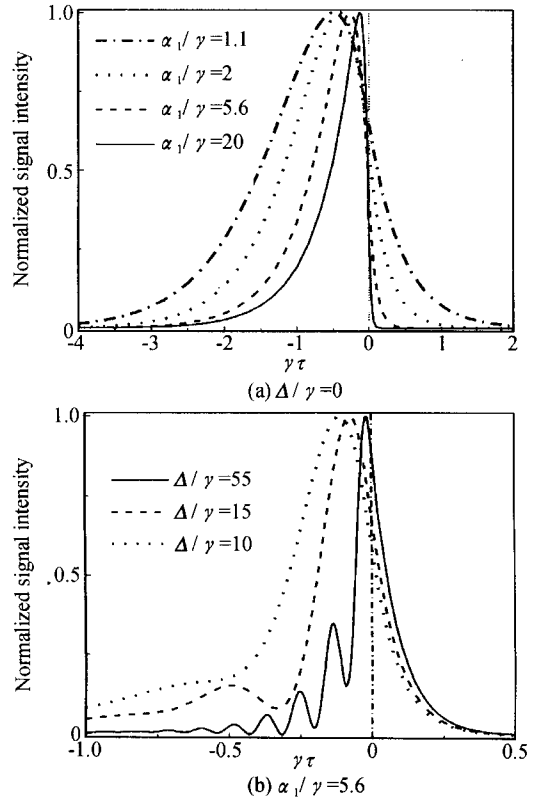


图 2 归一化 RNDFWM 信号随  $\gamma\tau$  变化图  
Fig. 2 Curve of the RNDFWM varies with  $\gamma\tau$   
 $\Delta = 0$  时

$$\langle P \rangle = S(r) \int_0^{\infty} \exp(-\alpha_1 |t' + \tau|) \exp(-\gamma t') dt' \quad (6)$$

积分式(6)可以得到

$$(i) \tau > 0, \langle P \rangle = \frac{-S(r)}{\alpha_1 + \gamma} \exp(-\alpha_1 |\tau|) \\ (ii) \tau < 0, \langle P \rangle = \frac{S(r)}{\alpha_1 - \gamma} \left[ \exp(-\alpha_1 |\tau|) + \frac{2\alpha_1}{\alpha_1 + \gamma} \cdot \exp(-\gamma |\tau|) \right]$$

二阶相关函数理论表明 RNDFWM 的时域特性取决于非线性极化的随机平均. 而非线性极化的建立有两步: 首先是介质与两束入射光发生非线性相互作用, 在介质中感生动态栅  $Q$ , 然后另一束光探测  $Q$ , 产生非线性极化. 由于积分效应,  $Q$  是  $t$  时刻之前所有感生栅序参量之和, 它以  $\gamma$  为衰减速率,  $Q$  代表物质对光场 2,3 共同作用的响应. 如果光束 2 与光束 1 间有延时  $\tau$ , 则只有  $\tau$  时刻之后光束 1 才能探测到物质响应  $Q$ . 所以当  $\tau < 0$  时, 衍射信号正比于光束 1 与物质响应  $Q$  之间形成的三阶极化, 而  $\tau > 0$  时, 由于不能探测到物质响应, 衍射信号只是反映光场间的相互作用.

式(6)函数如图 3. (a) 表示  $f(t') = \exp(-\gamma t')$ , (b) 表示  $\tau < 0$  时  $f(t') = \exp(-\alpha_1 |t' + \tau|)$ , (c) 表示  $\tau > 0$  时  $f(t') = \exp(-\alpha_1 |t' + \tau|)$ .

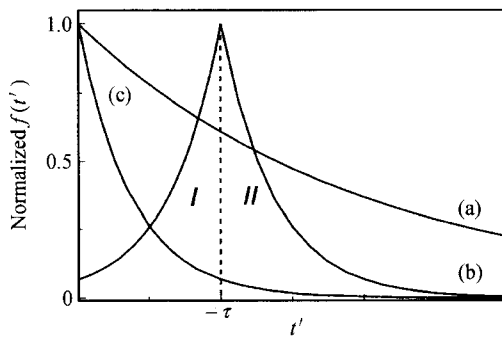


图 3 式(6)的函数

Fig. 3 Diagram of the function of Eq. (6)

RNDFWM 的时域变化特点可以直接从式(6)得到解释. 图 3 给出函数  $\exp(-\gamma t')$  和  $\exp(-\alpha_1 |t' + \tau|)$  的变化,  $\exp(-\gamma t')$  描述  $Q$  以  $\gamma$  衰减, 而  $\exp(-\alpha_1 |t' + \tau|)$  则反映  $Q$  与探测场之间的互相关. 由于积分效应, 非线性极化正比于整个积分区间(从 0 到  $\infty$ )的结果. 首先讨论 RNDFWM 信号最强时的相对延时. 函数  $\exp(-\alpha_1 |t' + \tau|)$  可以分为两部分: 区域 I 表示  $t' < -\tau$ , 区域 II 表示  $t' > -\tau$ . 当时  $\tau \geq 0$ , 只有区域 II 对积分有贡献, 而  $\tau < 0$  时, 区域 I 对积分也有贡献. 因此, RNDFWM 信号最大值应该出现在  $-\tau_{\max} > 0$  处. 考虑极限情况  $\alpha_i \gg \gamma$ , 可近似认为  $\exp(-\alpha_i |t' + \tau|) \approx 2\delta(t' + \tau)/\alpha_i$ , 式(6)化为:  $\langle P \rangle = S(r) \int_0^{\infty} \frac{2\delta(t' + \tau)}{\alpha_1}$ .

$\exp(-\gamma t') dt' = S(r) \frac{2}{\alpha_1} \exp(-\gamma |\tau|)$ , 表明此情况下信号在  $\tau = 0$  处会出现尖锐的峰值, 光谱会呈现极好的时间分辨率. 如图 2(a), 当  $\Delta/\gamma = 0$  时, 即共振效应主导信号时,  $\alpha_1/\gamma$  的比值越大, 信号峰值越接近  $\tau = 0$  处. 当  $\alpha_i \ll \gamma$  时,  $\exp(-\gamma t')$  衰减非常迅速, 此时式(6)积分值主要取决于  $\exp(-\alpha_1 |t' + \tau|)$  在  $t' = 0$  的值, 即  $\langle P \rangle$  随着  $\tau$  的增大以  $\alpha_1$  速率衰减. 其物理解释为由于  $Q$  弛豫时间太短, 对它的探测几乎要和它的激发同时进行, 所以 RNDFWM 信号的时域特性反映了光场 1 和 2 的互相关.

### 3 结论

本文基于场关联原理, 采用非相干光时延四波混频法研究了瑞利增强非简并四波混频的时域特性. 利用二阶场关联函数理论揭示出混频信号在时域的细微变化. 模拟结果表明, 混频信号展示出时域不对称性, 这种不对称特性反映了物质对光场的三阶极化响应特点, 同时在  $\tau < 0$  时会出现振荡结构. 虽然只研究了导致产生不对称的信号部分, 它通常会因为被强烈的场关联效应淹没而探测不到, 但是作为 RNDFWM 信号中一个最能体现极化过程信息的组成部分, 对它的理论研究是很有必要的.

### 参考文献

- 1 Sun Jiang, Jiang Qian, Yu Zuhe, *et al.* Field-correlation effects in Rayleigh-type nondegenerate four-wave mixing; suppression of thermal background. *Optics Communications*, 2003, **223**(3): 187~194
- 2 Fu P M, Mi X, Yu Z H. Ultrafast modulation spectroscopy in a cascade three-level system. *Phys Rev A*, 1995, **52**(6): 4867~4870
- 3 Ulness D J. On the role of classical field time correlations in noisy light spectroscopy; color locking and a spectral filter analogy. *J Phys Chem A*, 2003, **107**(40): 8111~8123
- 4 Georges A T. Resonance fluorescence in markovian stochastic fields. *Phys Rev A*, 1980, **21**(6): 2034~2049

## Temporal Asymmetric Characteristics of Rayleigh-Enhanced Nondegenerate Four Wave Mixing

Shi Jian<sup>1</sup>, Ma Ruiqiong<sup>2</sup>, Miao Runcai<sup>2</sup>, Zhang Yanpeng<sup>3</sup>

<sup>1</sup> Department of Electronic and Information Engineering, Xi'an Institute of Posts and Telecommunications, Xi'an 710061

<sup>2</sup> School of Physics and Information Technology, Shaanxi Normal University, Xi'an 710062

<sup>3</sup> Department of Electronic Science and Technology, Xi'an Jiaotong University, Xi'an 710049

Received date: 2005-10-12

**Abstract** The theoretical analysis based on Rayleigh-Enhanced nondegenerate four wave mixing provides the closed-form solution for the signal. The temporal behavior of the RENDFWM has been investigated which reveals the characteristics of driven exciting resulted from material response to optical field. The resonant signal shows asymmetric temporal behavior and oscillation structure when  $\tau < 0$ .

**Keywords** Rayleigh-enhanced polarization; Four wave mixing; Temporal asymmetric



**Shi Jian** was born in 1978. He graduated from the School of Physics and Information Technology of Shaanxi Normal University in 2004 and obtained Master Degree. His research interests include transient optics and optical measurement.