# 基于共振 Raman 增强的三阶非线性过程\*

裴丽娅\*

(北京化工大学数理学院,北京 100029)

(2020年3月20日收到; 2020年5月18日收到修改稿)

本文实验上观察到在<sup>85</sup>Rb 原子蒸气 D1 线系统中,基于 Raman 共振的四波混频得到显著地增强;并且通 过模拟看到,随着耦合光功率的减小或多普勒展宽的增大,信号线宽呈现被压窄的趋势.我们利用宏观极化 干涉理论对光谱线宽的特点进行了分析,并诠释了在多普勒增宽 Λ-型能级系统中的四波混频与电磁感应透 明均来源于受激 Raman 散射,区别在于探测方式和对象的不同.

关键词: 受激 Raman 谱, 四波混频, 电磁感应透明, 极化干涉 **PACS**: 42.65.-k, 42.50.Gy, 42.65.Dr

**DOI:** 10.7498/aps.69.20200418

### 1 引 言

自电磁感应透明 (electromagnetically induced transparency, EIT) 被提出<sup>[1-3]</sup> 以来, 由于其在原 子共振频率处光的吸收被减小甚至消除的特性,人 们认为利用 EIT 可以增强四波混频 (four-wave mixing, FWM) 等多波混频的非线性过程<sup>[4-7]</sup>. 在 均匀增宽系统中,人们常以量子 Fano 干涉解释 EIT 的物理. 而在多普勒增宽系统中, 我们提出<sup>[8-10]</sup>: EIT 是 一 个 线 性 吸 收 被 共 振 受 激 拉 曼 谱 (stimulated Raman spectroscopy, SRS) 修正的过 程,其透明窗口的出现来自于 Raman 增益对线性 吸收的补偿.在此观点的基础上,本文将进一步全 新阐述在多普勒增宽 Λ-型能级系统中 FWM, EIT与 SRS 三者之间的本质关系.实际上, Raman现象与 FWM 总是存在很强的关联. Jiang 等<sup>[11]</sup>提出了一种研究 Raman 增强非简并 FWM 的相敏方法. 在热铷蒸气中, Zibrov 等<sup>[12]</sup> 演 示了光场对由微波场诱导和维持的原子基态塞曼 相干作用从而产生受激 Raman 散射引起的 FWM 过程. 而 Liu 等<sup>[13]</sup>则在基于 Raman 驱动相 干的高效 FWM 过程中,实现和研究了多 Raman 增益共振. Carrasco-Sanz 等<sup>[14]</sup> 报道了通 过 Raman 放大增强的级联 FWM 产生参考频率 梳的研究. 另一方面, Vanholsbeeck 等<sup>[15]</sup>给出了 参量 FWM 影响受激 Raman 增益的完整实验表 征. Michaud 等<sup>[16]</sup> 在冷原子中实现了 Raman 增益 与 FWM 的干涉. 而 Silva 等<sup>[17]</sup>则是从理论上分 析了高双折射光纤 FWM 过程中受激 Raman 散 射的影响.在前人的工作中,也有与本文相关的研 究. Romanov 等<sup>[18]</sup> 通过在 Rb<sup>85</sup> 中实现 Raman 吸 收,从而对 Rb<sup>87</sup> 中产生的基于 EIT 的 FWM 信号 进行抑制. Parniak 等<sup>[19]</sup> 通过基态原子相干得到 了 Raman 散射与 FWM 信号的强关联.利用双 Λ-型能级系统, Lee 等<sup>[20]</sup> 实现了基于 EIT 的共振 FWM 的高转换效率. 利用 Λ-型 EIT 系统进行光 存储[21,22] 是近年来的重要研究方向, 而光信息的 一次完整写入和读出可以看做是一个 FWM 过程.

承接前期的工作<sup>[8]</sup>,我们来看一下建立 Raman 增益的过程.对于 Λ-型三能级系统,当两 束入射光场 (探测光和耦合光) 频率差等于 ω<sub>R</sub> (原

<sup>\*</sup> 国家自然科学基金 (批准号: 11404330) 资助的课题.

<sup>†</sup> 通信作者. E-mail: peily@mail.buct.edu.cn

<sup>© 2020</sup> 中国物理学会 Chinese Physical Society

子两基态能级之间的 Raman 共振频率)时,在系 统中首先形成两基态之间的 Raman 相干;当此原 子相干进一步与耦合光相互作用时,就会在  $\Delta_1 = \Delta_2$ 处散射出 anti-Stoke 光子,这便是窄线宽 Raman 增益.

Raman 散射最终如何呈现在光谱中, 取决于 探测方式. 前期我们利用锁相放大器对典型 EIT 系统进行调制解调, 期望滤除弱探测光的多普 勒展宽吸收背景,得到纯粹的窄线宽 Raman 增益 信号峰,但由耦合光带来的泵浦效应所形成的的吸 收背景却无法消除<sup>[9]</sup>.为了将上述 Raman 增益信 号峰与泵浦吸收背底也能进行分离,本文设计了一 个非线性过程:首先,介质系统在探测光和耦合光 这两束光作用下形成 Raman 相干, 但与其进一步 作用的是线偏振方向偏转 90°之后的耦合光, 为了 区分称其为控制光. 最终, 得到与探测光偏振分离 的 Raman 增益,其经过介质之后相应的新光场即 为 FWM 信号. 我们将看到, 在多普勒增宽 Λ-型能 级系统中的 FWM 过程被增强, 在本质上是由于 Raman 共振得到满足而非量子干涉. 同时, 我们提 出: FWM 与 EIT 作为两种完全不同的非线性效 应,在本质上均来源于受激 Raman 散射,区别在 于探测方式和对象的不同,使其成为了完全不同的 两种光谱.由于在多普勒增宽系统中原子速度呈高 斯形式分布,单个原子的量子特性被淡化;在一定 条件下,不同速度原子群之间宏观极化干涉成为了 影响 FWM 光谱的主要因素.

### 2 理 论

考虑如图 1 所示的原子能级系统. 与之相互 作用的耦合光场和控制光场,分别记为  $E_2 = \varepsilon_2 e^{-i(\omega_2 \cdot t - k_2 \cdot r)}$ (作用于态  $|2\rangle$ 与 $|1\rangle$ 之间)和  $E_3 = \varepsilon_3 e^{-i(\omega_3 \cdot t - k_3 \cdot r)}$ (作用于态  $|2\rangle$ 与 $|1'\rangle$ 之间). 这 里,与不同线偏振方向的耦合光(||)和控制光 (⊥)分别相互作用的,是两个不同的简并激发态能 级,分别记作 $|1\rangle$ 和 $|1'\rangle$ 以便区分. 另外,探测光场 (||)记为 $E_1 = \varepsilon_1 e^{-i(\omega_1 \cdot t - k_1 \cdot r)}$ (作用于态 $|0\rangle$ 与 $|1\rangle$ 或  $|1'\rangle$ 之间). 系统的原子跃迁频率记为 $\Omega_1(i = 1, 2, 3)$ , 与相应激光场频率的失谐可以记为 $\Delta_i = \Omega_i - \omega_i$ (i = 1, 2, 3). 图 1中,原子两基态能级之间的 Raman 共振频率记为 $\omega_{R}$ .



图 1 <sup>85</sup>Rb 原子 D1 线能级系统 Fig. 1. D1 line energy-level diagram of <sup>85</sup>Rb.

通过求解密度矩阵方程,在弱探测光以及  $\rho_{00} \approx 1, \rho_{22} \approx 0$ 近似条件下,得到与 SRS 相关的三 阶密度矩阵元,其相应的极化强度如下:

$$P_{1} = \frac{-iN\mu_{1} \left[G_{1}G_{2}^{*}G_{3} + G_{1}G_{3}^{*}G_{2} + G_{1}G_{2}^{*}G_{2} + G_{1}G_{3}^{*}G_{3}\right]}{(i\Delta_{1} + \Gamma_{10}) \left[i(\Delta_{1} - \Delta_{2}) + \Gamma_{20}\right] + \left(\left|G_{2}\right|^{2} + \left|G_{3}\right|^{2}\right)} \times \frac{1}{i\Delta_{1} + \Gamma_{10}}.$$
(1)

这里,  $G_i = \mu_i E_i / \hbar (i = 1, 2, 3)$  为光场与原子相互 作用的耦合系数, 记 $\mu_i$ 为相应能级态之间的偶极 矩阵元; 取近似 $\Gamma_{21} \approx \Gamma_{10}$ , 用 $\Gamma_{10}$ 和 $\Gamma_{20}$ 分别表示激 发态与基态、以及两基态之间的横向弛豫率.

如图 1 所示,我们关注的是三个激光场 ( $\omega_1$ ,  $\omega_2,\omega_3$ )与原子介质相互作用产生的三阶非线性过 程;若其中两个入射场的频率满足  $\omega_R = \omega_1 - \omega_2$ 时, 在频率  $\omega_s$ 处散射的信号就会被 Raman 共振增 强.(1) 式表示,在两束光 ( $\omega_2,\omega_3$ ) 耦合下的弱光 ( $\omega_1$ ) 探测系统,包含了四个实质上的三阶非线性路径:

$$\begin{split} \mathbf{A}) \ \rho_{00}^{(0)} & \xrightarrow{G_1} \rho_{10}^{(1)} \xrightarrow{G_2^*} \rho_{20,|1\rangle}^{(2)} \xrightarrow{G_3} \rho_{1\prime0}^{(3)}, \\ \mathbf{B}) \ \rho_{00}^{(0)} & \xrightarrow{G_1} \rho_{1\prime0}^{(1)} \xrightarrow{G_3^*} \rho_{20,|1\prime\rangle}^{(2)} \xrightarrow{G_2} \rho_{10}^{(3)}, \\ \mathbf{C}) \ \rho_{00}^{(0)} & \xrightarrow{G_1} \rho_{10}^{(1)} \xrightarrow{G_2^*} \rho_{20,|1\rangle}^{(2)} \xrightarrow{G_2} \rho_{10}^{(3)}, \\ \mathbf{D}) \ \rho_{00}^{(0)} & \xrightarrow{G_1} \rho_{1\prime0}^{(1)} \xrightarrow{G_3^*} \rho_{20,|1\prime\rangle}^{(2)} \xrightarrow{G_3} \rho_{1\prime0}^{(3)}. \end{split}$$

当取 $\omega_2 = \omega_3$ 时,相应于以上四个路径产生的受激 Raman散射光子的频率: A) $\omega_s = \omega_1 - \omega_2 + \omega_3$ , B)  $\omega_s = \omega_1 - \omega_3 + \omega_2$ , C) $\omega_s = \omega_1 - \omega_2 + \omega_2$ 和D) $\omega_s = \omega_1 - \omega_3 + \omega_3$ ,均为 $\omega_s = \omega_1$ .同时,前两个路径 A 和 B 产生的散射光子与探测光的偏振方向相互垂直<sup>[23]</sup>, 从而可以利用偏振分束器进行空间分离,得到的是 无背景的窄线宽 FWM 信号. 然而,后两个路径 C和 D产生的散射光子,因与探测光的偏振方向 相同从而无法分离;将上面的(1)式与文献[8]中 (10)式

$$P_{1}^{\text{SRS}} = \frac{-iN\mu_{1}G_{1}|G_{2}|^{2}}{(i\Delta_{1} + \Gamma_{10})\left[i(\Delta_{1} - \Delta_{2}) + \Gamma_{20}\right] + |G_{2}|^{2}} \times \frac{1}{i\Delta_{1} + \Gamma_{10}}$$

进行对比,可以看到:此处 Raman 散射光子对探测光经过介质的线性吸收(形成多普勒展宽和泵浦吸收背底<sup>9)</sup>)进行补偿,从而在探测光吸收谱的 $\Delta_1 = \Delta_2 \psi$ (Raman 共振增强)看到一个窄线宽的吸收减少,亦即前人观察到的 EIT 现象<sup>[24]</sup>.

这里只需分析其中一个路径 A)  $\rho_{00}^{(0)} \xrightarrow{G_1}$  $\rho_{10}^{(1)} \xrightarrow{G_2} \rho_{20,|1\rangle}^{(2)} \xrightarrow{G_3} \rho_{1'0}^{(3)}$ ,其它路径的情况便不难给 出. 对于该路径, 探测光 ( $\omega_1$ ) 和耦合光( $\omega_2$ ) 与原 子介质相互作用会诱导产生基态|0>5|2>之间的 原子 Raman 相干:

 $\rho^{(2)}_{20,|1\rangle} =$ 

$$\frac{\mathrm{i}G_{1}\mathrm{i}G_{2}^{*}}{(\mathrm{i}\Delta_{1}+\Gamma_{10})\left[\mathrm{i}(\Delta_{1}-\Delta_{2})+\Gamma_{20}\right]+\left(|G_{2}|^{2}+|G_{3}|^{2}\right)} (2)$$

从 (1) 式可以得到与该路径相应的三阶非线性原 子极化 (用极点形式表示):

$$P_{1(A)} = \frac{N\boldsymbol{\mu}_1 G_1 G_2^* G_3}{\left(\Delta_1 - i\Gamma_{10}\right) \left(\Delta_1 - \tilde{\Delta}_+\right) \left(\Delta_1 - \tilde{\Delta}_-\right)} . \quad (3)$$

其中

$$\begin{split} \tilde{\Delta}_{\pm} &= \frac{1}{2} \left[ \Delta_2 + i \left( \Gamma_{10} + \Gamma_{20} \right) \right] \\ &\pm \frac{1}{2} \sqrt{\left[ \Delta_2 - i \left( \Gamma_{10} - \Gamma_{20} \right) \right]^2 + 4 \left( \left| G_2 \right|^2 + \left| G_3 \right|^2 \right)}. \end{split}$$

通过 (3) 式的三个极点, 来看看基于 Raman 相干 的三阶非线性过程. 首先从 (2) 式看出, 两光场 (探 测光和耦合光) 与原子介质相互作用会诱导产生基 态 $|0\rangle$ 与 $|2\rangle$ 之间的原子 Raman 相干 $\rho_{20}$ ; 当形成的 原子相干进一步与控制光相互作用时, 就会在单光 子共振 ( $\Delta_1 = 0$ , 即极点  $\Delta_1 = i\Gamma_{10}$ 的实部) 处放出 受激 Raman 散射光子, 也就是 (1) 式的第一部分 (即路径 A) 所表达的三阶非线性过程. 而在建立原 子相干  $\rho_{20}$ 的过程中形成的缀饰态  $|\pm\rangle$ , 亦会对  $\Delta_1 = \Delta_{\pm}$  (即极点  $\tilde{\Delta}_{\pm}$ 的实部) 处的受激 Raman 散 射光子产生吸收. 根据 (4) 式, 当耦合光共振( $\Delta_2 =$ 0) 时, 系统的缀饰态位于  $\Delta_1 = \pm \sqrt{|G_2|^2 + |G_3|^2}$ 处. 经原子系统产生的 FWM 信号, 其线宽与系统 的吸收系数和色散系数均有关系.

### 3 实验

如图 1 所示,作用于 <sup>85</sup>Rb 原子 D1 线 5S<sub>1/2</sub>,  $F = 3 \rightarrow 5P_{1/2}, F' = 2$ 之间的是线偏振相互垂直的 耦合光场  $\omega_2(\parallel)$  和控制光场  $\omega_3(\perp)$ , 需注意的是: 在如图2所示的实验装置中,这两个光场来自同一 台 795 nm 半导体激光器 DL2, 其频率相等 ( $\omega_2 =$  $\omega_3$ ). 作用于 5S<sub>1/2</sub>, F = 2  $\rightarrow$  5P<sub>1/2</sub>, F' = 2之间的 是水平偏振(∥)的弱探测光场ω1,该光场来自另 一台单独的 795 nm 半导体激光器 DL1. 三束光经 过一个偏振分束器合成一路后近似同向传播:其中 耦合光与控制光完全重合, 与探测光在 Rb 泡 (长 度 75 mm; 室温 27 ℃) 中心处光斑重合然后以极 小的角度分开; 三束光的光斑高斯直径均约为 1.5 mm, 其均经过光纤以改良光斑质量. 在这里, 介质的多普勒展宽线宽大约为 510 MHz. 我们在 与探测光线偏振相互垂直的方向上检测到了窄线 宽信号光 (ω<sub>s</sub>);并且若挡住耦合光或控制光时,信 号光均会消失.实验过程中,在介质之前利用斩波 器对激光器 DL2 发出的光进行强度调制. 然后, 将 经过 Rb 介质之后的探测光和产生的 FWM 信号 光分别接到锁相放大器进行解调,得到了高信噪比 的探测光 (ω1)吸收谱 (多普勒展宽背底被滤 除)和FWM( $\omega_s$ )光谱.



图 2 实验装置简图. 其中, DL1和DL2:半导体激光器; Chopper:斩波器; PBS: 偏振分束器; PD: 光电探测器; LIA: 锁相放大器

Fig. 2. Experimental setup. DL1 and DL2, diode lasers; PBS, polarizing beam splitter; PD, photodetector; LIA, lock-in amplifier.

我们分别将耦合光锁在<sup>85</sup>Rb的5S<sub>1/2</sub>, F = $3 \rightarrow 5P_{1/2}, F' = 2 原子跃迁线上, 即取 \Delta_2 = 0, 以$ 及正失谐 350 MHz 的频率处, 即取  $\Delta_2 = 350$  MHz; 扫描探测光频率,并始终保持其光强较弱  $I_1 =$ 0.10 mW.图 3(a) 和图 3(b) 给出了两种耦合光失 谐大小的情况下,测得弱探测光吸收谱(I<sub>1</sub>),和另 一个偏振方向上的 FWM 信号 (Is). 可以观察到一 个共同的特征:窄线宽 FWM 信号出现的位置  $(\Delta_1 = \Delta_2)$ , 也是探测光透明窗口出现的位置. 同 时,与在耦合光共振条件下不同的是:在耦合光失 谐时, 探测光有一个从窄线宽的吸收减少 (透明窗 口) 到吸收增强的过渡[10]. 根据上面的理论我们知 道,这是测量手段的不同导致的: FWM 信号是非 线性介质系统产生的新光场,只有 Raman 正增益 可以被检测到;因在建立 Raman 相干过程中产生 的缀饰态而引起的 Raman 损耗, 最多只能消耗相



图 3 (a) 耦合光共振 ( $\Delta_2 = 0$ ) 和 (b) 耦合光失谐 ( $\Delta_2 = 350 \text{ MHz}$ )下的弱探测光吸收谱 (黑色实线)和窄线宽 FWM 信号 (红色实线). (注意:实验中失谐条件下的信号 较小,这里为了看图清楚,图 (b) 的光谱强度相应地均增大 到实际强度的 2.5 倍)

Fig. 3. Experimental results for the transmission intensity of the weak probe beam (black solid line) and the FWM signal with narrow linewidth (red solid line) as a function of  $\Delta_1$ : (a)  $\Delta_2 = 0$ ; (b)  $\Delta_2 = 350$  MHz. (Note that in order to see the details clearly, the spectral intensity in Fig. (b) is the result of magnification to 2.5 times the actual situation.). 应频率处的散射光子,而不能让信号强度为负值. 当然,信号从产生到穿出介质其谱线必然受介质的 色散修正.

从图 3 可以看出,除了探测光扫描到共振附近的窄线宽凸起峰,在其它频率失谐处,FWM 光谱强度基本是零.检测到的是优良信噪比的 FWM 信号.可以想到,如果不在探测之前放置偏振分束器,将得到:四个路径产生的窄线宽 SRS 不会空间分离,其均对探测光泵浦吸收进行补偿,让探测光吸收谱呈现出窄线宽透明窗口.

## 4 理论模拟与讨论

在前面的理论中,研究了在均匀增宽系统中的 Raman 共振增强 FWM. 而对于实验,还要考虑介质的多普勒效应,需将前面的失谐量分别替换如下:

$$\begin{split} \Delta_1 &\to \Delta_1 - k_1 v, \\ \Delta_2 &\to \Delta_2 - k_2 v, \\ & \begin{subarray}{l} \begin{subarray}$$

之后, 将多原子系统对速度积分, 速度在一个 方向上的分布W(v)取高斯形式. 与 FWM 信号对 应的系统非线性极化给出如下:

$$P_{\rm T}^{\rm FWM} = \int_{-\infty}^{\infty} \mathrm{d}v W\left(v\right) P_{1(\rm A+B)}\left(v\right) \ . \tag{5}$$

最终信号强度  $(I_{\rm S})$  正比于  $|P_{\rm T}^{\rm FWM}|^2$ . 并且, (5) 式中的三阶非线性极化  $P_{1({\rm A}+{\rm B})}(v)$ 可以被表达 如下:

$$P_{1(A+B)}(v) = \frac{iN\mu_{1}G_{1}\left(G_{2}^{*}G_{3} + G_{3}^{*}G_{2}\right)/k^{2}}{\left[i(\Delta_{1} - \Delta_{2}) + \Gamma_{20}\right]\left(v - \tilde{v}_{2}\right)\left(v - \tilde{v}_{1}\right)},$$
(6)

其中:

$$k\tilde{v}_{2} = \Delta_{1} - i\Gamma_{10} - \frac{|G_{2}|^{2} + |G_{3}|^{2}}{(\Delta_{1} - \Delta_{2}) - i\Gamma_{20}},$$
  

$$k\tilde{v}_{1} = \Delta_{1} - i\Gamma_{10}.$$
(7)

极点 $\tilde{v}_1$ 反映的是原子从激发态到基态 $|0\rangle$ 的跃 迁,极点 $\tilde{v}_2$ 反映的是原子与缀饰态 $|\pm\rangle$ 的共振;两 个极点随着探测光的频率扫描而变化,其各自的实 部 $v_1$ 和 $v_2$ 分别是贡献(5)式积分的主要部分,这两 个速度的原子群分别诱导产生受激 Raman 增益 与 Raman 损耗.

如图 4 所示,任意选取了耦合光共振 ( $\Delta_2 = 0$ )

的情况进行了理论拟合 (黑色-实线). 从图 4 可以 看出,除了实验信号 (红色-星星) 有强度较弱且稳 定的杂散光噪声背景之外,在 $\Delta_1 = \Delta_2$ 处出现的窄 线宽 FWM 信号与理论拟合符合得非常地好.



图 4 扫描弱探测光频率时, FWM 实验信号 (红色-星 星) 和理论拟合 (黑色-实线). 实验采用的耦合光强度  $I_2 =$  1.97 mW, 控制光强度  $I_3 = 7.4$  mW; 理论模拟采用的参数 是:  $\Gamma_{10} = 7.2$  MHz,  $\Gamma_{20} = 0.72$  MHz,  $G_2 = 10.8$  MHz,  $G_3 = 20.4$  MHz)

Fig. 4. Experimental results (red star) and theoretical fitting (black solid line) for the FWM signal. The coupling field intensity  $I_2 = 1.97$  mW and the control field intensity  $I_3 = 7.4$  mW are used in the experiment. The parameters used in the theoretical simulation are  $\Gamma_{10} = 7.2$  MHz,  $\Gamma_{20} = 0.72$  MHz,  $G_2 = 10.8$  MHz,  $G_3 = 20.4$  MHz.

从上述理论可以看出, FWM 信号的线宽与多 普勒展宽 (对应于实验温度)和耦合光 (或控制 光)强度有关.图 5(a) 和图 6(a) 模拟了耦合光共 振 ( $\Delta_2 = 0$ )条件下的 FWM 光谱 (实线)和 SRS 光谱 (虚线), 在图 5(a) 中  $ku/\gamma = 50.7$ ,  $G_2/\gamma = 0.5$ (黑线), 2.5(红线), 4.0(蓝线); 在图 6(a) 中 $G_2/\gamma =$  $4.0, ku/\gamma = 50.7$  (黑线), 101.4(红线), 202.8(蓝线). 其中, γ为激发态与基态之间的纵向弛豫率. 从 图 5(a) 和图 6(a) 可以看出, 随着耦合光强度 (I2) 增大或多普勒展宽线宽 (ku) 减小, FWM 光谱 线宽会相对变宽.同时,由于 FWM 光谱经过了色 散的修正,其相对 SRS 光谱来说线宽略宽. 但当耦 合光强度越小或多普勒展宽线宽越大时,两种谱线 线宽越趋于基本一致,这是由于此种条件下:在  $\Delta_1 = \Delta_2 = 0$ 处, 色散变化越陡峭<sup>[24]</sup>, 其对受激 Raman 散射光穿出介质的线宽修正影响越小.

在一定条件下,我们可以利用原子共振速度 对 FWM 谱线线宽进行解释.当取 $\Delta_2 = 0$ 时,共振 速度 $v_1 \pi v_2$ 对探测光频率的依赖特性,如图 5(b) 和图 6(b)所示.当 $\Delta_1 = 0$ 时(即在 $\omega_1 - \omega_2 = \omega_R$  处),  $|v_2/u| \to \infty$ , 即在多普勒展宽线宽内只存在共 振速度v1,具有该速度的原子群发射基于 Raman 共振增强的散射光子,从而在 $\Delta_1 = \Delta_2$ 处出现信号 峰, 如图 5(a) 和图 6(a) 所示 (实线). 当Δ<sub>1</sub>远离  $\Delta_1 = \Delta_2$ ,即探测光远离共振时,得到 $v_1 \simeq v_2 \simeq 0$ , 而这两个速度的原子群分别贡献散射光子和损耗 散射光子,从而相互抵消使得信号趋于零.而在 $\Delta_1$ 偏离 $\Delta_1 = \Delta_2$ 的过程中, 当 $v_2 \simeq u$ 时, 共振速度 $v_2$ 的原子群便可以有效消耗共振速度 v1 的原子群贡 献的散射光子,此时探测光频率扫描到 $\Delta_1 =$  $(|G_2|^2 + |G_3|^2)/ku$ ; 从图 5(b) 和图 6(b)(实线)亦 可看出, 当耦合光强度 (|G<sub>2</sub>|<sup>2</sup>) 减小或多普勒展宽 (ku) 增宽时, 探测光扫描到较小失谐 $\Delta_1$ 处, 共振 速度v2就能有效地消耗受激 Raman 散射光子让 信号迅速衰减,从而使得最终的信号线宽较窄.这 就解释了图 5(a) 和图 6(a) 中呈现的 FWM 信号线 宽的特点.从上述分析可以看出,与缀饰态共振 的速度 $v_2$ ,起到了对共振速度 $v_1$ 贡献的 Raman 增益线宽进行压窄的作用,并且 FWM 光谱线宽  $\Gamma_{\rm FWM} \propto (|G_2|^2 + |G_3|^2)/ku$ .



图 5 变化耦合光强度 ( $I_2$ )条件下的 (a)FWM 光谱 (实 线)和 SRS 光谱 (虚线),和 (b)原子共振速度  $v_2/u$  (实 线)和  $v_1/u$  (虚线).所取理论参数为:  $G_2/\gamma = 0.5$  (黑线), 2.5(红线), 4.0(蓝线)

Fig. 5. (a) FWM (solid line) and SRS (dotted line), and (b) corresponding resonant velocities  $v_2/u$  (solid line) and  $v_1/u$  (dotted line) as a function of  $\Delta_1/\gamma$  when  $G_2/\gamma = 0.5$  (black), 2.5(red), 4.0(blue).



图 6 变化多普勒展宽线宽 (ku)条件下的 (a) FWM 光谱 (实线)和 SRS 光谱 (虚线),和 (b) 原子共振速度  $v_2/u$  (实 线)和  $v_1/u$  (虚线).所取理论参数为:  $ku/\gamma = 50.7$  (黑线), 101.4(红线), 202.8(蓝线)

Fig. 6. (a) FWM (solid line) and SRS (dotted line), and (b) corresponding resonant velocities  $v_2/u$  (solid line) and  $v_1/u$  (dotted line) as a function of  $\Delta_1/\gamma$  when  $ku/\gamma = 50.7$  (black), 101.4(red), 202.8(blue).

5 结 论

本文承接前期的工作,基于对 EIT 现象提出 的新诠释,进一步阐明了在多普勒增宽 A-型能级 系统中 EIT 和 SRS 以及 FWM 三者之间的关系: 共振 EIT 吸收光谱的透明窗口,本质上是基于三 阶非线性过程产生的 Raman 增益对介质线性吸收 修正之后的呈现;而 FWM 信号之所以被增强,并 不是因为前人提出的 EIT 的本质---量子干涉,而 是因为相干 Raman 共振得到了满足.在本质上, A-型能级系统中的 FWM 信号与 EIT 透明窗口均 是基于受激 Raman 过程,区别仅在于探测手段的 不同.通过理论模拟得到,在耦合光强度相对较小 或多普勒展宽较大时,介质色散对 FWM 信号线宽 的修正可以忽略,就可以用不同速度原子群之间的 宏观极化干涉,来解释基于非线性过程最终的光谱 呈现.在耦合光共振 ( $\Delta_2 = 0$ )条件下,与缀饰态共 振的速度  $v_2$ ,由于在偏离单光子共振的过程中越来 越有效的起到消耗光子的作用,从而对共振速度  $v_1$ 在以  $\Delta_1 = 0$ 为中心的频率处贡献的 Raman 增益 的线宽进行压窄,使得在双光子共振  $\Delta_1 = \Delta_2$ 处看 到窄线宽的凸起峰---FWM 信号.并且,耦合光强 度相对越小或多普勒展宽越大时,FWM 信号的线 宽越窄.

#### 参考文献

- Harris S E, Field J E, Imamoglu A 1990 Phys. Rev. Lett. 64 1107
- [2] Harris S E 1997 Phys. Today 50 36
- [3] Fleischhauer M, Imamoglu A, Marangos J P 2005 Rev. Mod. Phys. 77 633
- [4] Kang H, Zhu Y F 2003 Phys. Rev. Lett. 91 093601
- [5] Wang H, Goorskey D, Xiao M 2001 Phys. Rev. Lett. 87 073601
- [6] Wang Z B, Marzlin K P, Sanders B C 2006 Phys. Rev. Lett. 97 063901
- [7] Pack M V, Camacho R M, Howell J C 2007 Phys. Rev. A 76 033835
- [8] Pei L Y, Lu X G, Wang R Q, Wu L A, Zuo Z C, Fu P M 2013 Phys. Rev. A 87 063822
- [9] Pei L Y, Wang R Q, Zuo Z C, Wu L A, Fu P M 2013 Acta Phys. Sin. 62 124208 (in Chinese) [裴丽娅, 王如泉, 左战春, 吴 令安, 傅盘铭 2013 物理学报 62 124208]
- [10] Pei L Y, Zuo Z C, Wu L A, Fu P M 2013 Acta Phys. Sin. 62 184209 (in Chinese) [裴丽娅, 左战春, 吴令安, 傅盘铭 2013 物 理学报 62 184209]
- [11] Jiang Q, Mi X, Yu Z H, Wang Y B, Wang L J, Fu P M 2001 *Chin. Phys. Lett.* 18 54
- [12] Zibrov A S, Matsko A B, Scully M O 2002 Phys. Rev. Lett. 89 103601
- [13] Liu J, Wei D, Wang J W, Yu Y, Hu H J, Gao H, Li F L 2016 *Chin. Phys. B* 25 114204
- [14] Carrasco-Sanz A, Martin-Lopez S, Gonzalez-Herraez M, Corredera P, Hernanz M L, Abrardi L 2008 Opt. Commun. 281 2948
- [15] Vanholsbeeck F, Emplit P, Coen S 2003 Opt. Lett. 28 1960
- [16] Michaud F, Gattobigio G L, Tabosa J W R, Kaiser R 2007 J. Opt. Soc. Am. B 24 A40
- [17] Silva N A, Muga N J, Pinto A N 2009 J. Lightwave. Technol. 27 4979
- [18] Romanov G, O'Brien C, Novikova I 2016 J. Mod. Optic. 63 2048
- [19] Parniak M, Leszczynski A, Wasilewski W 2016 Phys. Rev. A 93 053821
- [20] Lee C Y, Wu B H, Wang G, Chen Y F, Chen Y C, Yu I A 2016 Opt. Express 24 001008
- [21] Dudin Y O, Li L, Kuzmich A 2013 Phys. Rev. A 87 031801(R)
- [22] Ma L J, Slattery O, Tang X 2017 J. Optics-UK 19 043001
- [23] Gu S J 1984 Acta Phys. Sin. 33 593 (in Chinese) [顾世杰 1984 物理学报 33 593]
- [24] Fleischhauer M, Imamoglu A, Marangos J P 2005 Reviews of Modern Physics 77 633

## Enhanced third-order nonlinear processes based on Raman resonance<sup>\*</sup>

#### Pei Li-Ya<sup>†</sup>

(College of Mathematics and Physics, Beijing University of Chemical Technology, Beijing 100029, China)
 (Received 20 March 2020; revised manuscript received 18 May 2020)

#### Abstract

We observe experimentally huge enhanced four-wave mixing based on Raman resonance in an  $^{85}$ Rb atomic vapor system. With the decrease of coupling field power or the increase of experimental temperature, the signal tends to be narrowed down in linewidth, and be basically the same spectrum as the stimulated Raman spectroscopy. It is found that the macroscopic polarization interference effect plays a crucial role in determining the nonlinear spectra. Further more, in the Doppler-broadened  $\Lambda$ -type energy level system, there is a strong relationship among electromagnetically induced transparency, four-wave mixing and stimulated Raman spectroscopy. The sharp transparent window in electromagnetically induced transparency can be interpreted as the suppression of Raman gain on the linear absorption of the probe field. However, the four-wave mixing signal is a new field generated by the atomic vapor system, and it comes from the Raman gain which is affected and modified by the absorption and dispersion of the nonlinear optical medium. It shows that in a  $\Lambda$ -type Doppler-broadened system, in essence, both the electromagnetically induced transparency and enhanced four-wave mixing stem from stimulated Raman scattering based on the third-order nonlinear processes, just the spectra of which are from different ways and objects of detection.

**Keywords:** stimulated Raman spectroscopy, four-wave mixing, electromagnetically induced transparency, polarization interference

**PACS:** 42.65.-k, 42.50.Gy, 42.65.Dr

**DOI:** 10.7498/aps.69.20200418

<sup>\*</sup> Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 11404330).

<sup>†</sup> Corresponding author. E-mail: peily@mail.buct.edu.cn