

利用微扰法分析两个相互耦合的参量四波混频过程*

翟学军¹, 朱长军¹, 薛兵¹, 贺俊芳²

(1 西安工程大学 理学院 物理系, 西安 710048)

(2 中国科学院西安光学精密机械研究所 瞬态光学与光子技术国家重点实验室, 西安 710119)

摘 要:利用微扰法在旋转波近似下分析了铷原子中两个独立的参量四波混频过程和一个耦合的参量四波混频过程. 当用超短激光脉冲相干激发这两个参量四波混频过程时, 两个过程就会同时出现并且存在相互耦合作用. 微扰分析表明, 耦合的参量四波混频信号中可以观察到量子拍, 量子拍幅度的大小不仅取决于超短脉冲的特性, 而且依赖于两个耦合的参量四波混频过程中的相位匹配.

关键词:非线性光学; 微扰分析; 参量四波混频; 量子拍

中图分类号: O437; O437.1

文献标识码: A

文章编号: 1004-4213(2007)08-1405-4

0 引言

四波混频过程^[1-2]是一个十分重要的非线性光学过程, 它不仅是产生光学频率转换的重要手段, 也在光学相位共轭波的产生与应用领域起到了极其重要的作用. 在非线性光学介质中, 伴随着四波混频信号的产生, 往往同时出现其它的非线性光学现象, 如放大的自发辐射^[3]和受激超喇曼散射^[4]. 这些过程具有相同或相近频率的信号波, 因此, 如何区分这些过程是一个难题. 另一方面, 如果两个或两个以上的四波混频过程同时出现并相互间存在耦合, 相位匹配将引起这些四波混频过程的竞争, 结果将导致某个过程被抑制而其它过程得到相对增强.

在原子中产生四波混频过程和量子拍^[5]得到了深入而广泛关注. 最近在实验上实现了铷原子中耦合的参量四波混频过程并且从四波混频信号中观察到了量子拍^[6-7]. 然而, 在这一领域, 理论上的研究远远落后于实验研究. 因而, 从理论上探讨原子中耦合的四波混频过程及其量子拍的特性, 不但能够促进对这类系统的认识, 而且能够给实验提供有益的指导. 利用微扰法, 采用旋转波近似, 分别分析了铷原子中两个独立的参量四波混频过程和一个耦合的参量四波混频过程的密度矩阵元的解析表达式. 微扰分析的结果表明, 当用超短激光脉冲相干激发这两个参量四波混频过程时, 两个过程就会同时出现并且存在相互耦合作用, 耦合的参量四波混频信号中可以观察到量子拍, 量子拍幅度的大小不但取决于超短脉冲的特性, 而且依赖于两个耦合的参量

四波混频过程中的相位匹配.

1 参量四波混频的微扰分析

首先, 考虑铷原子中一个四能级系统, 如图 1. 这个四能级系统可以分解为两个三能级系统, 它们分别是 5s, 5d, 6p 和 5s, 7s, 6p. 由于共振增强作用, 能够实现两个四波混频过程, 即 5s → 5d → 6p → 5s 和 5s → 7s → 6p → 5s. 其中, 5s → 5d 和 5s → 7s 跃迁满足双光子跃迁定则. 为简单起见, 现分别将 5s, 6p, 5d 和 7s 态记作 a, b, c 和 d.

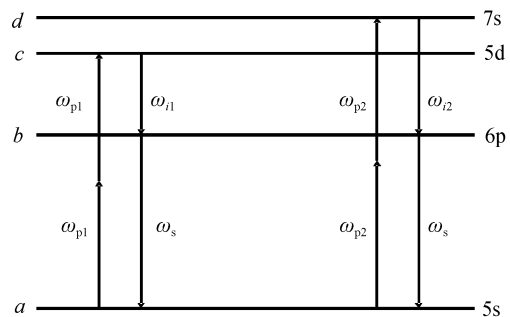


图 1 铷原子中两个独立的四波混频过程及相关原子能级
Fig. 1 Two independent FWM processes and related energy levels in Rb

密度矩阵元的运动方程为^[8]

$$\frac{d\rho_{ii}}{dt} = - \sum_{(E_i < E_l)} \gamma_{li} \rho_{ii} + \sum_{(E_i < E_l)} \gamma_{il} \rho_{ll} + \frac{i}{h} \sum_l (\mu_{li} \rho_{il} - \mu_{il} \rho_{li}) E(t) \quad (1a)$$

$$\frac{d\rho_{lm}}{dt} = -(i\omega_{lm} + \Gamma_{lm}) \rho_{lm} + \frac{i}{h} \sum_l (\mu_{li} \rho_{lm} - \mu_{lm} \rho_{li}) E(t) \quad (1b)$$

式中, $E(t)$ 是泵浦光的电场强度, μ_{lm} 是跃迁耦合极矩, γ_{lm} 是纵向跃迁率, Γ_{lm} 是横向跃迁率.

对于四波混频过程 5s → 5d → 6p → 5s, 将密度矩阵元作微扰展开

* 国家自然科学基金(10576037)资助

Tel: 029-82330609 Email: zhai. x. j@163. com

收稿日期: 2006-12-18

$$\rho_{lm} = \rho_{lm}^{(0)} + \rho_{lm}^{(1)} + \rho_{lm}^{(2)} + \rho_{lm}^{(3)} \quad (2)$$

并假设 $\rho_{aa}^{(0)} = 1$, 同时, 当 $l \neq m$ 和 $l = m \neq a$ 时, $\rho_{lm}^{(0)} = 0$. 把上述条件代入式(1a)和式(1b), 得到一阶微扰近似下的密度矩阵元

$$\rho_{ba}^{(1)}(t) = \frac{i\mu_{ba}}{\hbar} e^{-(i\omega_{ba} + \Gamma_{ba})t} \int_{-\infty}^t e^{(i\omega_{ba} + \Gamma_{ba})t'} E(t') dt' \quad (3)$$

其它一阶微扰密度矩阵元均为零. 把式(2)和(3)代入式(1a)和式(1b), 得到二阶微扰近似下的密度矩阵元

$$\rho_{ca}^{(2)}(t) = \frac{i\mu_{cb}}{\hbar} e^{-(i\omega_{ca} + \Gamma_{ca})t} \int_{-\infty}^t e^{(i\omega_{ca} + \Gamma_{ca})t'} \rho_{ba}^{(1)}(t') E(t') dt' \quad (4)$$

其它二阶微扰密度矩阵元均为零.

把式(2)、(3)和(4)代入式(1a)和(1b), 得到三阶微扰近似下的密度矩阵元

$$\rho_{ba1}^{(3)}(t) = \frac{i\mu_{bc}}{\hbar} e^{-(i\omega_{ba} + \Gamma_{ba})t} \int_{-\infty}^t e^{(i\omega_{ba} + \Gamma_{ba})t'} \rho_{ca}^{(2)}(t') E(t') dt' \quad (5)$$

$$\rho_{db}^{(3)}(t) = -\frac{i\mu_{db}}{\hbar} e^{-(i\omega_{db} + \Gamma_{db})t} \int_{-\infty}^t e^{(i\omega_{db} + \Gamma_{db})t'} \rho_{ca}^{(2)}(t') E(t') dt' \quad (6)$$

其它三阶微扰密度矩阵元均为零.

这样, 四波混频 $5s \rightarrow 5d \rightarrow 6p \rightarrow 5s$ 的非线性极化率可由三阶微扰密度矩阵元表示

$$P_1(t) = N \text{Tr}(\mu\rho) = N(\mu_{ab}\rho_{ba1}^{(3)} + \mu_{bc}\rho_{db}^{(3)} + c. c.) \quad (7)$$

式中 N 是原子数密度.

采取相同的步骤, 对四波混频过程 $5s \rightarrow 7s \rightarrow 6p \rightarrow 5s$, 得到一阶微扰近似下的密度矩阵元

$$\rho_{ba}^{(1)}(t) = \frac{i\mu_{ba}}{\hbar} e^{-(i\omega_{ba} + \Gamma_{ba})t} \int_{-\infty}^t e^{(i\omega_{ba} + \Gamma_{ba})t'} E(t') dt' \quad (8)$$

其它一阶微扰密度矩阵元均为零. 二阶微扰近似下的密度矩阵元

$$\rho_{da}^{(2)}(t) = \frac{i\mu_{db}}{\hbar} e^{-(i\omega_{da} + \Gamma_{da})t} \int_{-\infty}^t e^{(i\omega_{da} + \Gamma_{da})t'} \rho_{ba}^{(1)}(t') E(t') dt' \quad (9)$$

其它二阶微扰密度矩阵元均为零. 三阶微扰近似下的密度矩阵元

$$\rho_{ba2}^{(3)}(t) = \frac{i\mu_{bd}}{\hbar} e^{-(i\omega_{ba} + \Gamma_{ba})t} \int_{-\infty}^t e^{(i\omega_{ba} + \Gamma_{ba})t'} \rho_{da}^{(2)}(t') E(t') dt' \quad (10)$$

$$\rho_{db}^{(3)}(t) = \frac{i\mu_{db}}{\hbar} e^{-(i\omega_{db} + \Gamma_{db})t} \int_{-\infty}^t e^{(i\omega_{db} + \Gamma_{db})t'} \rho_{da}^{(2)}(t') E(t') dt' \quad (11)$$

其它三阶微扰密度矩阵元均为零. 同样地, 四波混频过程 $5s \rightarrow 7s \rightarrow 6p \rightarrow 5s$ 的非线性极化率可由其三阶微扰密度矩阵元表示为

$$P_2(t) = N \text{Tr}(\mu\rho) = N(\mu_{ab}\rho_{ba2}^{(3)} + \mu_{bd}\rho_{db}^{(3)} + c. c.) \quad (12)$$

当用超短激光脉冲相干激发这两个参量四波混

频过程时, 两个过程就会同时出现并且存在相互耦合作用. 也就是说, 在所讨论的系统中, 当泵浦脉冲的谱线宽度足够宽以至于能够同时覆盖能级 c 和 d 时, 四波混频过程 $5s \rightarrow 5d \rightarrow 6p \rightarrow 5s$ 和 $5s \rightarrow 7s \rightarrow 6p \rightarrow 5s$ 将被相干地激发, 如图 2.

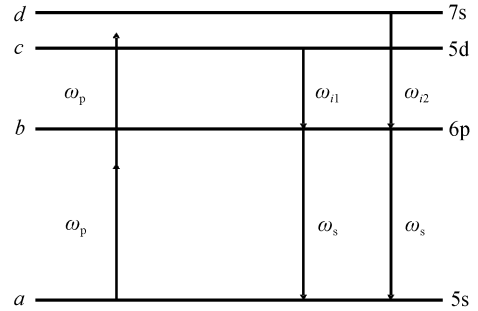


图 2 铷原子中两个耦合的四波混频过程及相关原子能级
Fig. 2 Two coupled FWM processes and related energy levels in Rb

因而, 系统总的非线性极化率为两个四波混频过程非线性极化率的和, 即

$$P(t) = P_1(t) + P_2(t) \quad (13)$$

要实现两个耦合的四波混频过程, 作为泵浦光的超短光脉冲的光谱必须相当宽, 相应的脉冲时间宽度也就非常窄, 四波混频过程所产生的闲频波和信号波也是时间宽度非常窄的脉冲. 这样, 这些超短脉冲的总电场的时域包络可以近似地用 δ 函数来表示

$$E(t) = \delta(t)(A_{\omega_p} e^{-i\omega_p t} + A_{\omega_{i1}} e^{-i\omega_{i1} t} + A_{\omega_{i2}} e^{-i\omega_{i2} t} + A_{\omega_s} e^{-i\omega_s t}) + c. c. \quad (14)$$

采用旋转波近似, 可以得到系统的非线性极化率

$$P(t) = \frac{iN|\mu_{ba}|^2}{\hbar^3} S^2 T \{ |\mu_{cb}|^2 [e^{-(i\omega_{cb} + \Gamma_{cb})t} - e^{-(i\omega_{ba} + \Gamma_{ba})t}] + |\mu_{db}|^2 [e^{-(i\omega_{db} + \Gamma_{db})t} - e^{-(i\omega_{ba} + \Gamma_{ba})t}] \} + c. c. \quad (15)$$

式中

$$T = A_{\omega_p}^* + A_{\omega_{i1}}^* + A_{\omega_{i2}}^* + A_{\omega_s}^*$$

最后, 得到四波混频的强度为

$$I_s(t) \propto |P(t)|^2 \quad (16)$$

2 讨论

式(16)给出了四波混频信号的表达式, 它包含许多频率成分. 其中的一个重要的频率成分是 $(\omega_{da} - \omega_{ca})$, 其对应于能级 d 和 c 之差. 这个频率就是量子拍的频率, 在研究的系统中, 能级 d 和 c 对应的波数差是 608 cm^{-1} , 它包含在四波混频信号中.

量子拍的幅度受到诸多因素的影响. 首先, 泵浦脉冲的时域和频域特性对量子拍的形成起到了关键的作用, 即, 泵浦脉冲的光谱宽度必须同时覆盖能级 d 和 c . 其次, 两个四波混频过程的相位匹配条件

也对量子拍的大小具有影响. 下面来分析两个四波混频过程的相位匹配条件. 四波混频过程的相位匹配条件的矢量表达式为

$$2\mathbf{k}_p = \mathbf{k}_i + \mathbf{k}_s \quad (17)$$

式中 \mathbf{k}_p 、 \mathbf{k}_i 和 \mathbf{k}_s 分别是泵浦波, 闲频波和信号波的波矢. 如图 3, 信号波矢与泵浦波矢之间存在夹角 θ .

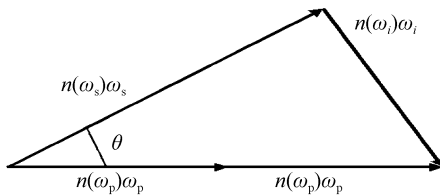


图 3 四波混频过程的相位匹配示意图

Fig. 3 Schematic diagram of phase-matching in FWM processes

为达到完全相位匹配, 必须有

$$n(\omega_s)\omega_s \cos \theta + \sqrt{n(\omega_i)^2\omega_i^2 - n(\omega_s)^2\omega_s^2 \sin^2 \theta} = 2n(\omega_p)\omega_p \quad (18)$$

式中 $n(\omega_p)$ 、 $n(\omega_i)$ 和 $n(\omega_s)$ 分别是泵浦波, 闲频波和信号波的折射率. 如果只考虑轴线方向上的泵浦波, 闲频波和信号波, 即泵浦波, 闲频波和信号波在同一个方向上, 那么式(18)可以简化为

$$n(\omega_s)\omega_s + n(\omega_i)\omega_i = 2n(\omega_p)\omega_p \quad (19)$$

折射率 $n(\omega)$ 可以表达为^[9]

$$n^2(\omega) = 1 + \frac{Ne^2}{2\epsilon_0 m_e} \sum_i \frac{f_{ig}(\omega_{ig}^2 - \omega^2)}{(\omega_{ig}^2 - \omega^2)^2 + \gamma_{ig}^2 \omega^2} \quad (20)$$

式中 N 是原子数密度, e 和 m_e 分别是电子的电荷和质量, f_{ig} 和 ω_{ig} 分别是原子初态 g 到终态 i 的偶极跃迁强度和频率, γ_{ig} 是原子跃迁谱线的宽度.

从式(19)和(20)可以看出, 在相同条件下, 两个耦合的四波混频过程具有不同的相位失配量. 如果其中一个四波混频过程具有比另一个四波混频过程大得多的相位失配, 那么, 这一过程就会被抑制. 相对而言, 另一个四波混频过程就会得到增强. 这样, 所观测的量子拍的幅度就会减弱. 这就要求在实验中合理地控制原子数密度以及泵浦激光脉冲的参量. 实验中, 用超短激光脉冲相干地激发上述两个参量四波混频过程, 不仅观察到了轴向四波混频信号, 而且观察到了非轴向的四波混频信号^[10]. 进一步对时域中的四波混频信号进行傅里叶频谱分析, 得到了频率为 608 cm^{-1} 的量子拍^[7]. 同时, 改变泵浦脉冲的时域和频域特性, 对量子拍幅度的大小具有显著的影响. 例如, 脉冲啁啾参量的变化直接导致两个四波混频过程激发的先后次序的改变, 继而改变了两个四波混频过程的相干程度, 从而影响到量子拍的幅度. 脉冲光谱形状的变化直接导致两个四波混频过程的耦合强度和相干程度, 进而影响到量子拍

的幅度^[7]. 另外, 通过改变原子数密度, 即改变两个四波混频过程的相位匹配, 还能够控制量子拍幅度的大小^[7]. 这些实验结果和理论分析非常相符.

3 结论

采用微扰法在旋转波近似下分别分析了铷原子中两个独立的参量四波混频过程和一个耦合的参量四波混频过程. 当用纳秒级激光分别激发这两个参量四波混频过程时, 两个过程是相互独立的. 当用飞秒级超短激光脉冲相干激发这两个参量四波混频过程时, 两个过程就会同时出现并且存在相互耦合作用. 微扰分析表明, 耦合的参量四波混频信号中可以观察到量子拍, 量子拍幅度的大小不但取决于飞秒级超短脉冲的特性, 而且依赖于两个耦合的参量四波混频过程中的相位匹配.

参考文献

- [1] MA Lan-ying, MA Zhi-kao. Randomly varying zero-dispersion wavelength and phase-sensitive amplification in fiber four-wave mixing[J]. *Acta Photonica Sinica*, 1999, **28**(9): 775-779. 马兰英, 马致考. 光纤四波混频的零色散波长涨落效应和相位敏感放大[J]. *光子学报*, 1999, **28**(9): 775-779.
- [2] MA Rui-qiong, LI Yong-fang, CHENG Zhen, et al. Heterodyne detection for rayleigh-enhanced four-wave mixing[J]. *Acta Photonica Sinica*, 2007, **36**(1): 55-58. 马瑞琼, 李永放, 成桢, 等. 瑞利型增强四波混频的外差探测[J]. *光子学报*, 2007, **36**(1): 55-58.
- [3] MALCUIT M S, GAUTHIER D J, BOYD R W. Suppression of amplified spontaneous emission by the four-wave mixing process[J]. *Phys Rev Lett*, 1985, **55**(10): 1086-1089.
- [4] LU M H, LIU Y M. Observation of the suppression of the stimulated hyper-Raman scattering ($3S_{1/2} - 4P_{3/2}$) near the sodium 4D two-photon resonance[J]. *J Phys B*, 1994, **27**(20): 5089-5096.
- [5] HU Zhen-hua, MIAO Qing-yuan, CHEN Jun, et al. Theoretical studies of the quantum beats on population relaxation for V-level atoms by using time delayed four-wave mixing with incoherent light[J]. *Acta Photonica Sinica*, 2002, **31**(4): 407-411. 胡振华, 缪庆元, 陈俊, 等. 非相干光时延四波混频中 V 型三能级原子的布居弛豫量子拍的理论研究[J]. *光子学报*, 2002, **31**(4): 407-411.
- [6] TRAN H C, JOHN P C, GAO J, et al. Interaction of atomic wave packets with four-wave mixing detection of rubidium and potassium wave packets by coherent ultraviolet emission[J]. *Opt Lett*, 1998, **23**(1): 70-72.
- [7] SENIN A A, TRAN H C, GAO J, et al. Molecular dissociation observed with an atomic wavepacket and parametric four-wave mixing[J]. *Chem Phys Lett*, 2003, **381**(1-2): 53-59.
- [8] BOYD R W, MALCUIT M S, GAUTHIER D J, et al. Competition between amplified spontaneous emission and the four-wave-mixing process[J]. *Phys Rev A*, 1987, **35**(4): 1648-1658.
- [9] KATHARAKIS M, MERLEMIS N, SERAFETINIDES A, et

al. Four-wave mixing and parametric four-wave mixing near the 4P-4S transition of the potassium atom[J]. *J Phys B*, 2002, **35**(24): 4969-4980.

wave radiation generated by parametric four-wave mixing in rubidium vapor; ultrafast (~ 150 fs) and nanosecond time scale excitation[J]. *Phys Rev A*, 2005, **72**(2):023811(1-7).

[10] ZHU C J, SENIN A A, LU Z H, *et al.* Polarization of signal

Analysis of Two Coupled Parametric Four-Wave-Mixing Processes Using Perturbative Theory

ZHAI Xue-jun¹, ZHU Chang-jun¹, XUE Bing¹, He Jun-fang²

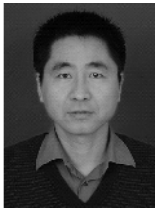
(1 *Department of Physics, School of Science, Xi'an Polytechnic University, Xi'an 710048, China*)

(2 *State Key Laboratory of Transient Optics and Photonics, Xi'an Institute of Optics and Precision Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Xi'an 710119, China*)

Received date: 2006-12-18

Abstract: Two parametric four-wave-mixing (FWM) processes in Rb atoms are studied using perturbation theory under the condition of rotating wave approximation. The two parametric FWM processes are coupled when they are excited coherently by a short laser pulse with a bandwidth encompassing the two corresponding upper energy levels in the two FWM processes. Perturbative analysis reveals clear evidence of the appearance of quantum beatings in the two coupled parametric FWM signals. The amplitude of the quantum beating is not only determined by the temporal and spectral properties of the pump laser pulses, but also influenced by the phase-matching conditions for the two coupled parametric FWM processes.

Key words: Nonlinear optics; Perturbative analysis; Parametric four-wave mixing; Quantum beating



ZHAI Xue-jun was born in Shaanxi Province in 1965. He received the B. S. degree from Northwest University in 1986. He is currently working as a lecturer at the Department of Physics, School of Science, Xi'an Polytechnic University. His research interest includes optics, nuclear physics, atomic and molecular spectroscopy.