Applied Physics 应用物理, 2018, 8(8), 362-367
Published Online August 2018 in Hans. http://www.hanspub.org/journal/app
https://doi.org/10.12677/app.2018.88046

Resonance-Mediated Two-Photon Absorption in Frequency-Domain under Intermediate-Strong Linearly Chirped Pulse

Liqing Ren*, Zhaohua Wang, Zhongxun Deng, Xiaolong Li, Xiaoli Liu, Fan Li, Linwei Guo, Zengsheng Li

College of Energy and Engineering, Yulin University, Yulin Shaanxi
Email: *renliqing1984@163.com

Received: Jul. 21st, 2018; accepted: Aug. 6th, 2018; published: Aug. 13th, 2018

Abstract

Based on second-order perturbation theory, we study two-photon transition under an intermediate-strong linearly chirped pulse. We analyze the effects of chirp parameter, central wavelength and pulse width on two-photon transition in detail. We show the dynamic evolution of two-photon transition probability in frequency-domain. We additionally study two-photon absorption under intermediate-strong linearly chirped pulse. Compared with common scheme with pulse shaping, the proposed scheme has advantages, such as simplicity, economy and easy operation.

Keywords

Atomic System, Interference, Chirped Pulse

中强线性啁啾脉冲激发的共振调制频域双光子吸收过程研究

任立庆*，王兆华，邓仲勋，李小龙，刘孝丽，李　凡，郭林伟，李增生

榆林学院，能源工程学院，陕西　榆林
Email: *renliqing1984@163.com

收稿日期：2018年7月21日；录用日期：2018年8月6日；发布日期：2018年8月13日

摘　要

本文基于二阶微扰理论研究频域中强线性啁啾飞秒脉冲作用下双光子过程。详细分析了频域中啁啾因子、

*通讯作者。

文章引用: 任立庆, 王兆华, 邓仲勋, 李小龙, 刘孝丽, 李凡, 郭林伟, 李增生. 中强线性啁啾脉冲激发的共振调制频域双光子吸收过程研究[J]. 应用物理, 2018, 8(8): 362-367. DOI: 10.12677/app.2018.88046

中心波长等参数对双光子跃迁的影响。阐明了弱场产生的双光子跃迁在频域的动态演化过程。进一步利用拓展的四阶微扰理论研究了中强场条件下双光子吸收过程的物理机理。相比复杂而昂贵的脉冲整形而言，本文提出的研究方案具有简单、经济且易操作的优势。

关键词

原子系统，干涉，啁啾脉冲

Copyright © 2018 by authors and Hans Publishers Inc.
This work is licensed under the Creative Commons Attribution International License (CC BY).
http://creativecommons.org/licenses/by/4.0/
Open Access

1. 引言

弱场双光子激发优势是最低阶微扰描述简单[1]。在时域，人们利用相位整形实现波函数演化研究[2]，波函数时域演化控制[3]，以及实现波函数全息[4]。然而，弱场激发的缺点是吸收信号较低[5]。当人们想得到更高吸收信号时需要更强脉冲强度，但这时最低阶微扰理论不再适用。因此，为了继续利用频域中合理脉冲整形技术且不受限于弱场激发条件，人们需要将最低阶微扰描述拓展到中强场条件。在中强场条件下多光子吸收信号将得到增强[6]。然而，这些研究必须使用复杂的脉冲整形方案实现脉冲的相位控制。本文提出一种简单有效，且经济实惠、易操作的方案，即利用相位可控线性啁啾飞秒脉冲研究了双光子跃迁，以及拉曼过程调制中强场激发过程。

2. 物理模型

本文以钠原子系统为研究对象，如图 1 所示。在线性啁啾飞秒脉冲作用下，钠原子系统在吸收两个光子后从基态 3S($|g\rangle$)跃迁到 4S 激发态($|f\rangle$)。由于单光子与这两个能态不共振，因此，该过程称为弱场激发的双光子跃迁过程，如图 1(a)中的红色虚线框所示。对于弱场激发的双光子跃迁，可以用二阶微扰理论描述。当光场增强时，须考虑共振调制四光子拉曼过程。四光子过程根据中间能态是否被激发而分为共振调制拉曼过程和非共振调制拉曼过程，分别如图 1(a)中绿色和蓝色虚线框所示。线性啁啾脉冲可以通过色散补偿器来控制，如图 1(b)所示。改变光栅和曲面镜之间的距离，可以控制啁啾因子β的大小。图 2 给出的是线性啁啾飞秒脉冲在时域(a)和频域(b)分布情况。脉冲包络为高斯线形，而相位是对应的线性啁啾相位。从图中可以看出，飞秒脉冲随着啁啾增大在时域增宽，但强度减小，相应相位斜率降低，如图 1(a)所示。在频域，光场强度不变，但相位 $\phi(\omega)=\beta(\omega-\omega_0)^2$ 斜率增大，如图 1(b)所示。下面我们主要研究啁啾因子与非共振双光子跃迁几率的关系，以及中强场作用下拉曼过程对双光子的影响。

3. 弱场双光子吸收过程

在弱场条件下，当脉冲完全通过以后，激发态$|f\rangle$的几率振幅 $A_f \equiv a_f(t\to\infty)$ 表示为[1]

$$a_f^{(2)} = -\frac{1}{i\hbar^2}\sum_n \mu_{fn}\mu_{ng}\int_{-\infty}^{\infty} E(\omega_{fg}-\omega)\frac{E(\omega)}{\omega_{ng}-\omega}\mathrm{d}\omega \tag{1}$$

其中 $\mu_{ij}=\langle i|\hat{\mu}|j\rangle$ 是能级$|i\rangle$和$|j\rangle$之间的偶极矩阵元，$\omega_{ij}=(E_i-E_j)/\hbar$ 是相应的跃迁频率。假定中间能级全部是远离共振的，那么非共振双光子跃迁几率变为

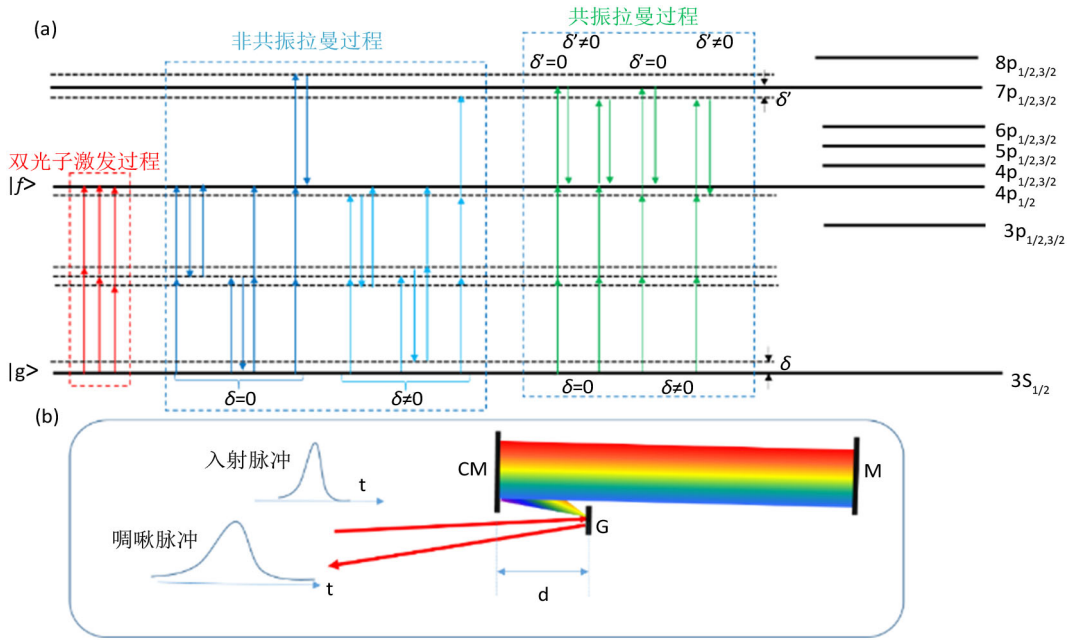

Figure 1. Resonance-mediated two-photon transition under an intermediate-strong linearly chirped pulse. (a) Energy-level diagram of sodium and two-photon- and four-photon processes. (b) Experimental setup to control a linearly chirped pulse. It shows that the linearly chirped pulse can be controlled by a grating (G), a curved mirror (CM) and a plane mirror (M)

图 1. 线性啁啾脉冲作用下多能级钠原子系统中共振调制的双光子跃迁。(a) 钠原子系统能级结构图以及相应的双光子和四光子跃迁过程。(b) 线性啁啾飞秒脉冲获取的实验方案。图中线性啁啾由一个光栅(G)和一个曲面镜(CM)以及一个平面镜(M)实现控制

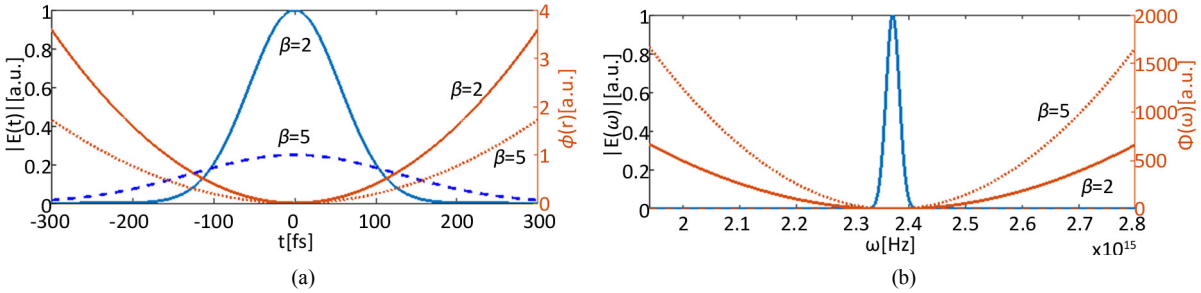

Figure 2. Calculated linearly chirped pulse in time- and frequency-domain. (a) Distributions of pulse intensities and pulse phases in time-domain for different chirp parameters. (b) Distributions of pulse intensities and pulse phases in frequency-domain for different chirp parameters

图 2. 线性啁啾脉冲的时域和频域描述。(a) 不同啁啾因子情况下脉冲强度和相位在时域的分布。(b) 不同啁啾因子情况下飞秒脉冲强度和相位在频域的分布

$$a_f^{nr} \approx -\frac{1}{i\hbar^2}\mu_{fg}^2\int_{-\infty}^{\infty}E(\omega)E(\omega_{fg}-\omega)\mathrm{d}\omega \tag{2}$$

其中 ω_{fg} 为 $|g\rangle-|f\rangle$ 的跃迁频率，$\mu_{fg}^2 \equiv \sum_n \frac{\mu_{fn}\mu_{ng}}{\omega_{ng}-\omega_0}$ 是相应有效双光子耦合，其中 ω_0 为脉冲载频。等式(1)和(2)反映了任意具有频率为 ω 和 $\omega'=\omega_{fg}-\omega$ 的两个吸收光子结合所组成的 $|g\rangle-|f\rangle$ 所有双光子通道之间的相干干涉，如图 1(a)所示。从式(2)改变相位分布，即可以改变激发态的布居几率分布。激发态布居几率、几率振幅实部和虚部随着啁啾因子，脉冲带宽以及中心波长的变化如图 3 所示。当中心波长一定时，从图 3(a)可以看出，随着啁啾绝对值的增大激发态布居几率震荡地衰减，而且关于 $\beta=0$ 呈中心对称分布。布居几率振幅实部关于 $\beta=0$ 呈对称分布，如图 3(b)所示。带宽越宽，组成的双光子跃迁的双光子

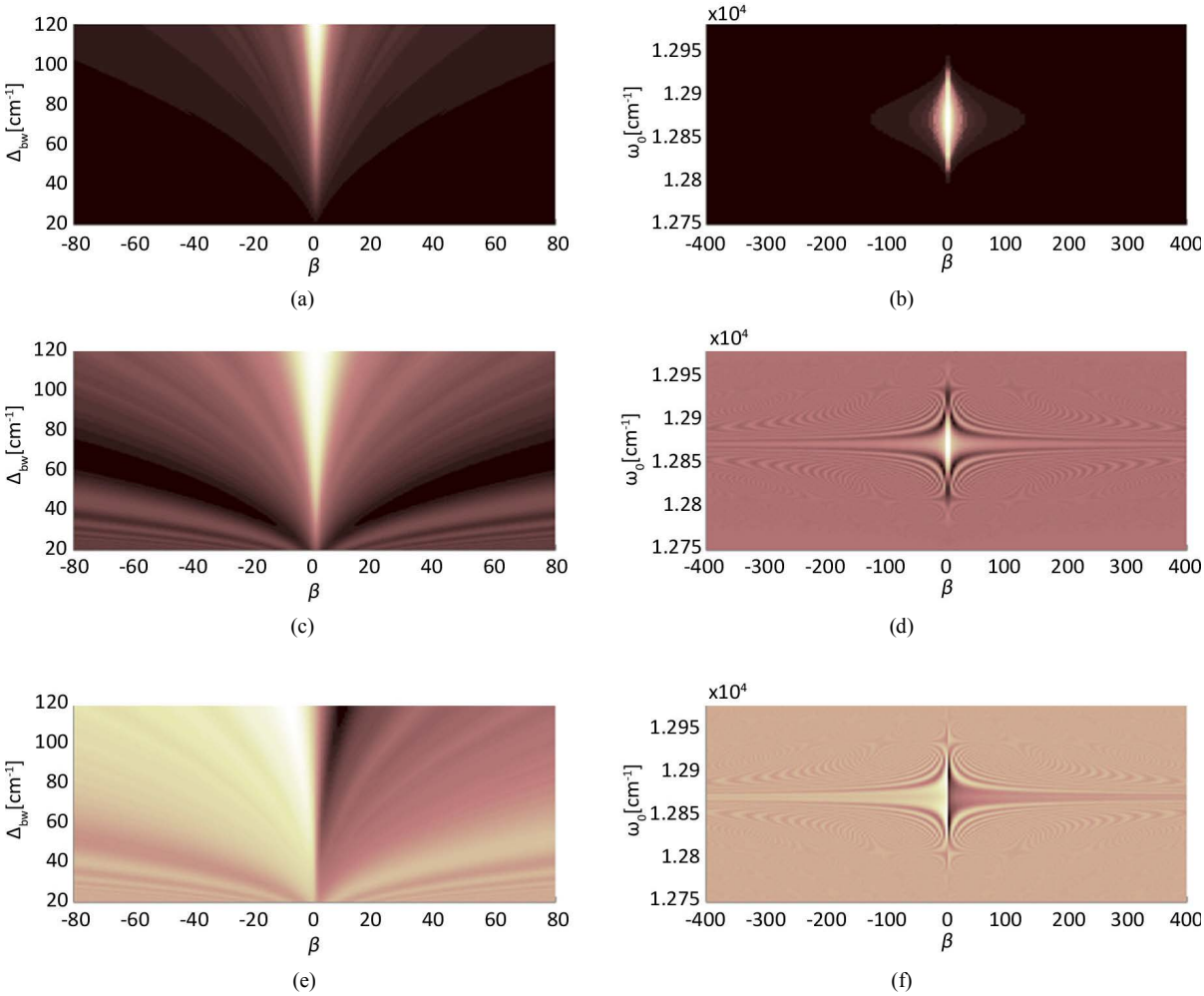

Figure 3. The correlation between the real- and imaginary-part of the population probability with chirp parameters, bandwidth and central wavelength. The first column shows population probability (a), absolute value of the real part (b) and absolute value of imaginary part (c) versus chirp parameter and bandwidth when central wavelength is 12,860 cm^{-1}. The second column shows population probability (d), absolute value of the real part (e) and absolute value of imaginary part (f) versus chirp parameter and central wavelength when bandwidth is 85 cm^{-1}

图 3. 激发态布居几率以及几率振幅的实部和虚部与啁啾因子和脉冲带宽及中心波长的相互关系。第一列分别描述当脉冲中心波长为 12,860 cm^{-1} 时布居几率(a)、几率振幅实部的模方(b)和几率振幅虚部的模方(c)随着啁啾因子和脉冲带宽的变化；第二列分别描述当脉冲宽度为 85 cm^{-1} 时布居几率(d)、几率振幅实部(e)和几率振幅虚部(f)随着啁啾因子和中心波长的变化

对就越多，跃迁几率就越大，如图 3(b)中的最亮的区域。图 3(b)中最暗的部分对应于相消干涉，类似于阶跃相位的调制过程。几率振幅虚部的最大不同在于其关于 $\beta=0$ 呈反对称分布，如图 3(c)所示。

当脉冲带宽一定时，布居几率在中心波长为 12,870 cm^{-1} 时达到最大值，并且关于这一波长呈对称分布，如图 3(d)所示。这是由于光场与二能级发生共振双光子激发导致的。激发态几率振幅的实部的分布类似于布居几率的，如图 3(e)所示。不同之处在于几率振幅实部在非共振区域可以观察到明显的震荡过程。几率振幅虚部的分布类似于脉冲中心波长一定的情况，也关于 $\beta=0$ 呈反对称分布，这是其相位在这点发生跳跃造成的，如图 3(f)所示。总之，相比变换受限脉冲而言，啁啾脉冲自身的相位变化可以实现对布居几率的相干控制。二阶微扰计算可以观察到布居几率及其实部和虚部与脉冲带宽和脉冲中心波长

的关系。

4. 中强场激发双光子吸收过程

中强场作用下激发态$|f\rangle$几率振幅$A_f \equiv a_f(t\to\infty)$在频域表示为[7]

$$A_f = A_f^{(2)} + A_f^{(4)}, \tag{3}$$

四阶几率振幅项$A_f^{(4)}$比二阶几率振幅项$A_f^{(2)}$更加复杂。由于中间态是近共振，得

$$A_f^{(4)}(\infty) \approx -\frac{1}{i\hbar^4}\left[i\pi A^{(2)}(\omega_{fg})A^{(R)}(0) - \wp\int_{-\infty}^{\infty}\mathrm{d}\delta\frac{A^{(2)}(\omega_{fg}-\delta)A^{(R)}(\delta)}{\delta}\right] \tag{4}$$

其中$\Delta\Omega=\delta$，$A^{(2)}(\Omega)$由(2)式定义，而$A^{(R)}(\delta)$定义为

$$A^{(R)}(\Delta\Omega) = A^{(noresR)}(\Delta\Omega) + A^{(resR)}(\Delta\Omega), \tag{5}$$

$$A^{(resR)}(\Delta\Omega) = \left|\mu_{fn_r}\right|^2\left[i\pi E(\omega_{fn_r}+\Delta\Omega)E^*(\omega_{fn_r}) - \wp\int_{-\infty}^{\infty}\frac{E(\omega_{fn_r}+\Delta\Omega-\delta')E^*(\omega_{fn_r}-\delta')}{\delta'}\right] \tag{6}$$

$$A^{(noresR)}(\Delta\Omega) = (\mu_{ff}^2+\mu_{gg}^2)\int_{-\infty}^{\infty}E(\omega_R+\Delta\Omega)E^*(\omega_R)\mathrm{d}\omega_R \tag{7}$$

(7)式中第一项到第四项分别对应于图1中的四个拉曼过程；这组方程反映了$A_f^{(4)}(\infty)$干涉由$|g\rangle$到$|f\rangle$的吸收三个光子与辐射一个光子所组合成的所有四光子通道，如图1所示。每个四光子通道实际上被分成两对双光子部分：(I)具有频率分别为ω和ω'且二者之和为$\Omega=\omega+\omega'=\omega_{fg}-\delta$两个吸收光子的非共振跃迁；(II)具有频率分别为$\omega_R$和$\omega_R'$且二者之差为$\Delta\Omega=\omega_R-\omega_R'$两个光子的拉曼跃迁。这两部分的界限是$\delta$，分别与$|g\rangle$或$|f\rangle$失谐取决于(I)部分或(II)部分发生的先后关系，如图1所示。(5)式中两项分别表示干涉共振($\delta=0$)和近共振($\delta\neq0$)四光子通道。共振通道被柯西主值算符$\wp$从$A_f^{(4)neres}$中分离出来。与相应通道对应的这些项中积分是用两个参量化振幅$A^{(2)}(\Omega)$和$A^{(R)}(\Delta\Omega)$表示。这两个振幅分别表示四光子通道中不同双光子部分，其中$A^{(2)}(\Omega)$干涉跃迁频率为Ω的所有双光子跃迁，而$A^{(R)}(\Delta\Omega)$干涉跃迁频率为$\Delta\Omega$的拉曼跃迁。本文所讨论干涉机制涉及到了与二阶和四阶微扰项对应的多光子通道的内部干涉和相互干涉。

5. 结论

本文详细研究了线性啁啾飞秒脉冲作用下双光子跃迁过程与脉冲各个参量相互关系。中强场作用下拉曼过程调制大小不仅与光场强度和中心波长有关。改变啁啾因子可以改变非共振双光子跃迁和共振调制拉曼过程贡献比例。不仅如此，啁啾因子还可以改变这两项干涉性质，干涉相长或干涉相消。改变啁啾相位还可以操控拉曼过程内部四项干涉性质。所得结果对于大吸收信号的研究具有重要参考价值。

基金项目

陕西省科学技术研究发展计划项目(批准号：2014K05-11)资助；榆林学院高层次人才启动基金(2013GK02)。

参考文献

[1] Meshulach, D. and Silberberg, Y. (1998) Coherent Quantum Control of Two-Photon Transitions by a Femtosecond Laser Pulse. *Nature* (*London*), **396**, 239-242. https://doi.org/10.1038/24329

[2] 李永放, 任立庆, 马瑞琼, 仇旭, 刘娟, 樊荣, 付振兴. 波函数的时域衍射[J]. 中国科学 G 辑: 物理学, 力学, 天

文学, 2009, 39(4): 600-605.

[3] 李永放, 任立庆, 马瑞琼, 樊荣, 刘娟. 利用相位可控光实现量子态波函数时域演化的量子控制[J]. 物理学报, 2010, 59(3): 1671-1676.

[4] 任立庆, 李永放, 张敏华, 许康, 阿布力米提·吾买. 整形啁啾脉冲光场作用下的量子相干控制与量子全息[J]. 中国科学: 物理学, 力学, 天文学, 2011, 41(6): 756-763.

[5] Chatel, B., Degert, J. and Girard, B. (2004) Role of Quadratic and Cubic Spectral Phases in Ladder Climbing with Ultrashort Pulses. *Physical Review A*, **70**, Article ID: 053414.

[6] Trallero-Herrero, C. and Weinacht, T.C. (2007) Transition from Weak- to Strong-Field Coherent Control. *Physical Review A*, **75**, Article ID: 063401.

[7] Chuntonov, L., Rybak, L., Gandman, A. and Amitay, Z. (2008) Frequency-Domain Coherent Control of Femtosecond Two-Photon Absorption: Intermediate-Field versus Weak-Field Regime. *Journal of Physics B*: *Atomic*, *Molecular and Optical Physics*, **41**, Article ID: 035504.

Hans 汉斯

知网检索的两种方式：

1. 打开知网页面 http://kns.cnki.net/kns/brief/result.aspx?dbPrefix=WWJD
   下拉列表框选择：[ISSN]，输入期刊 ISSN：2160-7567，即可查询
2. 打开知网首页 http://cnki.net/
   左侧“国际文献总库”进入，输入文章标题，即可查询

投稿请点击：http://www.hanspub.org/Submission.aspx
期刊邮箱：app@hanspub.org