利用极化拍频光谱术研究光子回波*

张彦鹏 孙立群 唐天同 侯 洵 (西安交通大学电子科学与技术系,西安 710049)

摘 要 利用相位共轭极化拍频光谱术对 V 型三能级系统中的光子回波进行了研究。当抽运光束为宽带线宽且相对时间延迟 $\tau > 0$ 时,单光子四波混频对应于三脉冲受激光子回波。抽运光束为宽带线宽且相对时间延迟 $\tau < 0$ 的情形与抽运光束为窄带线宽的情形类似。这种技术在测量激发态之间的能级分裂时,可得到消除多普勒增宽的测量精度。

关键词 时间延迟, 四波混频, 光子回波。

1 引 言

近年来随着超短脉冲技术的日益成熟,人们开始将注意力转向研究飞秒时域内物质内部的运动规律。例如人们对半导体材料及多量子阱中载流子的热化、弛豫等问题都进行过研究。而瞬态四波混频则是研究物质动态过程的重要手段,它来源于物质与脉冲激光作用后产生的三阶非线性效应,通过测量混频信号随脉冲间相对延时关系,可以在时间领域内得到有关物质内部运动规律的信息。还可以在频率领域内通过测量非线性效应的频谱来得到半导体材料、生物膜以及其他凝聚态物质的超快弛豫时间。然而,由于受相位匹配的限制,一般的非线性光学方法只能用来研究皮秒量级的弛豫过程。而瞬态的非简并四波混频对相位是不敏感的,可在频率领域内将弛豫时间的测量推进到飞秒量级。因此用非相干光时延双频四波混频方法研究物质的超快弛豫过程亦是近年来国际上的热门课题。Morita和Yajima指出[1],如果用非相干光源,则时延双频四波混频可以测量物质的横向弛豫时间,其时间分辨率取决于激光的相干时间而与激光脉宽无关。这样,如果非相干光的频谱足够宽的话,其时间分辨率可以达到 ps 甚至 fs 量级。

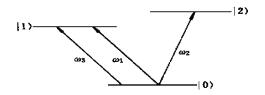
本文利用相位共轭极化拍频技术在抽运光为高斯线型时,对 3型三能级系统中的三脉冲受激光子回波进行了研究。由于抽运光包括两个频率分量,它们将分别产生各自的极化。当改变抽运光相对延迟时,极化间的干涉使混频信号强度产生调制。调制频率直接对应于原子的能级结构,知其时间分辨率仅取决于光学跃迁均匀增宽,而与激光线宽和多普勒增宽无关。

2 理论分析

在图1所示的 V 型三能级系统中, $|0\rangle$ 为基态, $|1\rangle$ 、 $|2\rangle$ 为激发态, $|1\rangle$ 到 $|2\rangle$ 为禁戒跃迁。抽运光的几何配制如图2所示。所有入射光束都具有相同方向的线偏振,光束1、2分别包含频

- * 国家自然科学基金资助项目(批准号:69978019)。
- 收稿日期:1998-12-22; 收到修改稿日期:1999-04-19 (C)1994-2024 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved. http://www

率 ω 、 ω 两个频率分量,它们分别接近于 $|0\rangle$ 到 $|1\rangle$ 、 $|0\rangle$ 到 $|2\rangle$ 的共振频率 Ω 、 Ω , 光束 3 的频率 ω ,假定 ω 接近 Ω 。 ω 、 ω 将感生出 $|0\rangle$ 到 $|1\rangle$ 及 $|2\rangle$ 的基态布局栅,探测光束 3 被此二布局栅衍射后产生频率为 ω 的单光子简并四波混频(DFWM) 信号和单光子非简并四波混频(NDFWM) 信号,沿光束4方向可以接收到简并四波混频和非简并四波混频过程间形成的拍频信号。



 $1 \frac{\omega_1, \omega_2}{\omega_1, \omega_2} \frac{\omega_3}{\omega_3}$

Fig. 1 V-type three-level configuration

Fig. 2 Schematic diagram of the geometry

光束1、2的复电场可描述如下:

$$E_{P1} = A_{1}(\boldsymbol{r}, t) \exp(-i\boldsymbol{\omega}t) + A_{2}(\boldsymbol{r}, t) \exp(-i\boldsymbol{\omega}t) =$$

$$\boldsymbol{\varepsilon}_{U1}(t) \exp\left[i(\boldsymbol{k}_{1} \cdot \boldsymbol{r} - \boldsymbol{\omega}_{t})\right] + \boldsymbol{\varepsilon}_{U2}(t) \exp\left[i(\boldsymbol{k}_{2} \cdot \boldsymbol{r} - \boldsymbol{\omega}_{t})\right],$$

$$E_{P2} = A_{1}(\boldsymbol{r}, t) \exp(-i\boldsymbol{\omega}_{t}) + A_{2}(\boldsymbol{r}, t) \exp(-i\boldsymbol{\omega}_{t}) =$$

$$\boldsymbol{\varepsilon}_{U1}(t - \boldsymbol{\tau}) \exp\left[i(\boldsymbol{k}_{1} \cdot \boldsymbol{r} - \boldsymbol{\omega}_{t} + \boldsymbol{\omega}_{1}\boldsymbol{\tau})\right] + \boldsymbol{\varepsilon}_{U2}(t - \boldsymbol{\tau}) \exp\left[i(\boldsymbol{k}_{2} \cdot \boldsymbol{r} - \boldsymbol{\omega}_{t} + \boldsymbol{\omega}_{1}\boldsymbol{\tau})\right].$$

$$\boldsymbol{\varepsilon}_{P1} = \boldsymbol{\varepsilon}_{P1}(\boldsymbol{\varepsilon}_{1} \cdot \boldsymbol{\varepsilon}_{1} + \boldsymbol{\varepsilon}_{2} \cdot \boldsymbol{\varepsilon}_{1}) + \boldsymbol{\varepsilon}_{P1}(\boldsymbol{\varepsilon}_{1} \cdot \boldsymbol{\varepsilon}_{1} + \boldsymbol{\varepsilon}_{2} \cdot \boldsymbol{\varepsilon}_{2}) + \boldsymbol{\varepsilon}_{P2}(\boldsymbol{\varepsilon}_{1} \cdot \boldsymbol{\varepsilon}_{1} + \boldsymbol{\varepsilon}_{2} \cdot \boldsymbol{\varepsilon}_{2}) + \boldsymbol{\varepsilon}_{P2}(\boldsymbol{\varepsilon}_{1} \cdot \boldsymbol{\varepsilon}_{2} + \boldsymbol{\varepsilon}_{2} \cdot \boldsymbol{\varepsilon}_{2})$$

这里, $\boldsymbol{\epsilon}$ 、 \boldsymbol{k}_i ($\boldsymbol{\epsilon}$, \boldsymbol{k}_i) 为光束 1、2 中 $\boldsymbol{\omega}$ 分量的光场振幅和波矢量, $u_i(t)$ 为描述光场相位和振幅涨落的无量纲扰动因子, $\boldsymbol{\tau}$ 为光束1、2之间的相对时间延迟。

在 DeBeer 的自衍射几何配制中^[2],信号强度包含了六阶相干函数,在本文的相位共轭几何配制中,因光束³沿光束¹相反方向前进,它与光束¹、²不存在时延上的关联,有 $\langle u_3(t) u_3^*(t) \rangle = 1$,信号强度只包含四阶相干函数,故可假定光束³为单色光,

$$E_{P^3} = A_3(\mathbf{r}, t) \exp(-i\omega t) = \epsilon \exp[i(\mathbf{k}_3 \cdot \mathbf{r} - \omega t)],$$

光束³中并不存在统计因子 $u^3(t)$, ϵ 和 k^3 分别为光场振幅和波矢量。四波混频信号与三阶非对角密度矩阵元 \mathbf{R}^3 相关, \mathbf{R}^3 可通过以下微扰链计算:

在多普勒增宽系统中, 极化强度为

$$P^{(3)} = N \, \operatorname{H}^{+\infty} \operatorname{d}$$
域(炬烧)(炬,

(C)1994-2024 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved. http://www

式中 $w(= \frac{1}{\pi_u} \exp [-(/ / / u)^2], u = \frac{1}{2k_B T/m}$,烟为原子速度,N 为原子个数,m 为原子质量, k_B 为玻尔兹曼常数,T 为绝对温度。在整个任意变量的随机过程中拍频信号应正比于 $P^{(3)}$ 绝对值平方的平均值。若采用自衍射几何配制,拍频信号强度将与六阶相干函数有关,由于采用相位共轭几何配制,拍频信号强度仅与四阶相干函数有关。若假定抽运光1、2是多模热源的混沌统计模式,遵从高斯统计规律

$$\langle u_i(t_1) u_i(t_2) u_i^*(t_3) u_i^*(t_4) \rangle = \langle u_i(t_1) u_i^*(t_3) \rangle \langle u_i(t_2) u_i^*(t_4) \rangle + \langle u_i(t_1) u_i^*(t_4) \rangle \langle u_i(t_2) u_i^*(t_3) \rangle,$$

抽运光为高斯线型时,

而本文只关心与 τ 有关的拍频信号,信号强度可近似为极化强度统计平均值的绝对值平方,也就是说,信号强度 $I(\tau) \propto |\langle P^{(3)} \rangle|^2$,式中仅包含二阶相干函数。下面将在不同情形下研究拍频信号的时间特性。

2.1 光子回波

 宽带(α≫铀,α≫铀)且τ>0时 在链(珋中

$$P^{(\mathfrak{P})} = S_{1}(\mathbf{r}) \exp \left[-\mathrm{i}(\omega_{t} + \omega_{\tau}) \right] \int_{-\infty}^{+\infty} \mathrm{d}\mathbf{w} \left(\operatorname{kep} \left[-\mathrm{i} \theta(\mathrm{ke}) \int_{0}^{\infty} \mathrm{d}t^{3} \int_{0}^{\infty} \mathrm{d}t^{2} \right] \right) dt^{3} \times \mathbf{v}$$

对于(1) 式,可参考链(珋做出如下解释,总的极化强度是不同时刻诱导的极化强度的累加。在 $t=t_1=t_2=t_3$ 时刻, A_1 诱导光学极化强度矢量,在 t_1 间隔内,呈现频率 Δ 、衰变率 t_2 的阻尼振荡,在 $t=t_2=t_3$ 时刻, A_1 进行作用,产生基态布局栅,且衰变率为 t_3 证 间隔后, t_4 强 时刻探测此布局栅,并诱导出与四波混频信号有关的极化强度,这个极化强度在 t_4 间隔内以频率 t_4 及衰变率 t_4 进行衰减振荡。由非均匀增宽系统中共振频率的分布规律知,在时刻 $t=t_1=t_2=t_3$ 光束 t_4 产生的偶极子不久将相互失相,光束 t_4 作用后,使失相的

偶极子重新复相,并产生了相干发射或三脉冲受激光子回波,在多普勒极限增宽情形下,

d烟 (堰 exp [$-i \theta$ (堰] $\approx \frac{2-\pi}{k^3u} \delta_{t^3} - \xi_{t1}$),也就是当 $t_3 = \xi_{t1}$ 时,光子回波发生在时刻 t 。 宽带非相干光可看作一系列相位不相干的持续时间为 τ 的短脉冲,而与延时 τ 有关的四波混频信号仅仅是由光束 1、2 中那些相位相关的子脉冲产生。光束 1、2 间的延时 τ 近似等于光束 1、2 中相位相关子脉冲间的间隔 t_1 , t_1 0 式中的因子 exp t_2 0 t_3 1 。由于

抽运光为宽带非相干光,则 $\exp\left(-\beta \left[\ln - \tau^{\beta} \right] \approx \frac{\pi}{\beta} \delta_{L1} - \tau_{\circ}$.于是,

$$P^{(\mathfrak{P})} = \frac{2 \operatorname{TS}_{1}(\mathbf{r})}{k_{3} u + \beta} \exp(-i \omega_{t}) \exp(-i \omega_{t}) \exp(-i \omega_{t}) \exp(-i (\Omega + \xi \Delta)),$$
(2)

这是与基态 (0)的布局栅有关的三脉冲受激光子回波。

同理,在链(珊冲可得

$$P^{(3)} = S_{1}(\mathbf{r}) \exp \left[-i(\omega_{t} + \omega_{T}) \right] \int_{-\infty}^{+\infty} d\mathbf{w} (\mathbf{u} \exp \left[-i \theta(\mathbf{u}) \right] \int_{0}^{\infty} dt^{2} \int_{0}^{\infty} dt^$$

积分得

$$P^{(\mathfrak{M})} = \frac{2 \, \mathsf{TS}_{1}(\mathbf{r})}{\mathbf{k}_{3} \mathbf{u} \, \mathsf{H} \, \mathbf{\beta}} \, \exp \left(- \mathrm{i} \, \boldsymbol{\omega}_{t} \right) \, \exp \left(- \, \mathsf{H} \, \boldsymbol{\sigma} \, \boldsymbol{\tau} \, \exp \left[- \, \mathrm{i} \left(\, \boldsymbol{\Omega} \, + \, \boldsymbol{\xi} \, \boldsymbol{\Delta}_{0} \right) \, \boldsymbol{\tau} \right], \tag{4}$$

 $P^{(***)}$ 是与激发态 $|1\rangle$ 的布局栅有关的三脉冲受激光子回波情形。 在链(\overline{W} 中,

$$P^{(\cancel{\mathbb{R}})} = S_2(\mathbf{r}) \exp \left[-\mathrm{i}(\mathbf{\omega}_t + \mathbf{\omega} \mathbf{T}) \int_{-\infty}^{+\infty} \mathrm{d}\mathbf{w} \left(\mathbf{w} \exp \left[-\mathrm{i} \mathbf{w} \mathbf{w} \right] \right) \int_{-\infty}^{\infty} \mathrm{d}t^2 \int_{-\infty}^{\infty} \mathrm{d}t^2 \left[-\mathrm{i} \mathbf{w} \mathbf{w} \right] \left[-\mathrm{i} \mathbf{w} \mathbf{w} \right]$$

exp [-($\frac{1}{2}$ + $\frac{1}{2}$ Δ) t^3] exp (- $\frac{1}{2}$ exp [-($\frac{1}{2}$ + $\frac{1}{2}$ Δ) t^1] exp (- $\frac{1}{2}$ t^1 - $\frac{1}{2}$)(,5)

式中 $S_2(\mathbf{r}) = -i\hbar N \left(\frac{\mathbf{H}}{\hbar}\right)^2 \left(\frac{\mathbf{H}}{\hbar}\right)^2 \mathbf{\epsilon} \left(\mathbf{\epsilon}\right)^* \mathbf{\epsilon} \exp\left[i(\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_2' + \mathbf{k}_3) \cdot \mathbf{r}\right],$

94. $\mathbf{u} = \mathbf{u} \cdot [\mathbf{k}_{2}(t_{1} + t_{2} + t_{3}) - \mathbf{k}_{2}(t_{1} + t_{2}) + \mathbf{k}_{3}t_{3}],$

在多普勒极限增宽 $(k_3 u \rightarrow \infty)$ 情形下

$$\int_{-\infty}^{+\infty} d\mathbf{w} \left(\operatorname{kep} \left[-i \operatorname{km} \right] \approx \frac{2 - \pi}{k_3 u} \delta_{t_3} - \xi_{t_2} \right),$$

在宽带且 τ> 0 时,

$$\exp\left(-eta_{2}^{2}\mid_{t_{1}}-eta_{1}^{2}
ight)pprox rac{\overline{\pi}}{eta}\delta_{t_{1}}-eta,$$

于是

$$P^{(\frac{1}{2})} = \frac{2 \, \text{TS}_2(\mathbf{r})}{\mathbf{k}_3 u \, \text{in } \, \mathbf{\beta}} \, \exp \left(- \mathrm{i} \, \mathbf{\omega} t \right) \, \exp \left(- \, \mathrm{i} \, \mathbf{\omega} \, \mathbf{\tau} \right) \, \exp \left[- \, \mathrm{i} \left(\, \mathbf{\Omega} \, + \, \mathbf{\xi} \, \mathbf{\Delta} \right) \, \mathbf{T} \right], \tag{6}$$

可见 $P^{(\frac{1}{9})}$ 对应于 $|0\rangle$ 和 $|2\rangle$ 间与基态布局栅有关的三脉冲受激光子回波情形。利用(2)式、(4)式、(6)式可得

 $\langle P^{(3)} \rangle = P^{(\bar{m}} + P^{(\bar{m}} + P^{(\bar{m}}))$

$$\eta^* \exp \left[i(\Omega_i - \Omega_j) \tau + i(\xi - \xi) \Delta_i \tau\right] ,$$
(7)

由(7)式可以看出,四波混频信号的调制频率为($\Omega - \Omega$) + ($^{\xi} - ^{\xi}$) Δ , 衰变率为 th + th 。宽带 $^{\tau} > 0$ 时,对应于相干瞬态光谱学中的三脉冲受激光子回波,存在着偶极矩的自由演化效应。拍频信号直接反映了能级的结构,而与外部激光特性无关。通过完成单光子共振简并四波混频或饱和吸收光谱实验使 ω 接近多普勒线型中央,即 $\Delta = 0$,调制频率为($\Omega - \Omega$),故能级差测量精度可认为是调制频率测量精度,调制信号的衰变率为($\Omega - \Omega$),能级差为($\Omega - \Omega$),测量的总体精度为 Ω + Ω +

2) 宽带(α≫ 抽, α≫ 抽) 且 τ< 0 时 由于

$$\begin{aligned} & \exp \left(-\beta \left| \mathbf{k}_{1} - \tau^{\beta} \right| \approx \frac{-\pi}{\beta} \delta_{t1} - \tau = 0, \\ & \exp \left(-\beta \left| \mathbf{k}_{1} - \tau^{\beta} \right| \approx \frac{-\pi}{\beta} \delta_{t1} - \tau = 0, \end{aligned}$$

故 $extbf{ iny} 0$ 时,不可能发生光子回波。根据相位匹配条件, $extbf{ iny} 0$ 时,如要出现四波混频信号,只有光束中相位相关子脉冲在时间上重叠,此时光束间是相互相干的,四波混频信号的时间特性与文献中窄带情形类似 $extbf{ iny} 0$ 。

2.2 不考虑扰动因子 $u_i(t)$ 情形

如果假定抽运光均为准单色光,即不考虑统计因子 $u_{i}(t)$ 时,则无须考虑激光线宽与光学跃迁均匀增宽的比值,在多普勒极限情形下($\mathbf{k} \otimes \mathbf{u} \rightarrow \mathbf{v}$),无论抽运光为洛仑兹线型还是高斯线型,信号强度都有统一的表达式[\mathbf{v}]

$$I(\mathfrak{J} \propto |\langle P^3 \rangle|^2 \propto (\frac{1}{4\mathfrak{h}} + \frac{1}{4\mathfrak{h}})^2 \frac{1}{(\mathfrak{H}_0)^2 + (\Delta_1^2)^2} + |\mathfrak{n}|^2 \frac{1}{[(\mathfrak{H}_0)^2 + (\Delta_1^2)^2]^{\frac{1}{4\mathfrak{h}}}} + \frac{1}{4\mathfrak{h}} \{ \frac{\mathfrak{n}}{(\mathfrak{H}_0 - i\Delta_1^2)(\mathfrak{H}_0 + i\Delta_1^2)} \exp[-i(\omega - \omega)]^{\frac{1}{4\mathfrak{h}}} + \frac{\mathfrak{n}}{(\mathfrak{H}_0 + i\Delta_1^2)(\mathfrak{H}_0 - i\Delta_1^2)} \exp[i(\omega - \omega)]^{\frac{1}{4\mathfrak{h}}} \},$$

式中 $\mathbf{n} \approx \frac{\mathbf{L}}{\mathbf{L}^2} \left[\frac{\mathbf{g}_1 \left(\mathbf{g}_2 \right)^*}{\mathbf{g}_1 \left(\mathbf{g}_2 \right)^*} \right]$,随着延迟时间 \mathbf{n} 的变化,混频信号以($\mathbf{\omega} - \mathbf{\omega}$) 的调制频率呈现等幅振荡,可见不考虑扰动因子 $u_i(t)$ 时,无法直接反映原子的能级结构 信号表达式对各种线型的抽运光都适用。能级分裂的测量精度取决于把 $\mathbf{\omega}$ 和 $\mathbf{\omega}$ 分别调谐到 $\mathbf{\Omega}$ 和 $\mathbf{\Omega}$ 的好坏,这种情况对应于频域中的饱和吸收光谱学,因此测量能级分裂($\mathbf{\Omega} - \mathbf{\Omega}$) 时可得到消除多普勒增宽的测量精度。

3 实验与结论

在以 3S 为基态,3P 为激发态的钠蒸气 现型三能级系统中完成了时延双频四波混频的拍频实验,让线宽为0.01 nm、脉宽为5 ns 的两台染料激光器的波长589 nm、589.6 nm 分别对应于 $3S_{\text{M}}$ 到 $3P_{\text{M}}$ 、 $3S_{\text{M}}$ 到 $3P_{\text{M}}$ 的偶极跃迁,得拍频信号调制周期为1.93 ps(见图3)。因此用纳秒脉宽激光器得到了皮秒量级的分辨率。

因此不考虑扰动因子u(t) 情形和宽带情形结论的主要区别是前者调制频率为 $(\omega - \omega)$

后者为($\Omega - \Omega$)。不考虑扰动因子 $u_i(t)$ 情形时,单光子共振简并四波混频和非简并四波混频对应于频域的饱和吸收光谱^[4,5],然而与传统领域技术不同的是激光频率无须准确定标。宽带情形时,单光子共振简并四波混频和非简并四波混频对应于时域的三脉冲受激光子回波,但其时间分辨率仅取决于光学跃迁的均匀增宽,区别于传统相干瞬态光谱学的时间分辨率受激光脉宽限制。

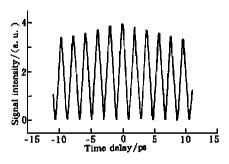


Fig. 3 Result of the polarization beat signal intensity versus relative time delay

参 考 文 献

- [1] Morita N, Yajima T. Ultrahigh-time-resolution coherent transient spectroscopy with incoherent light-Phys. Rev. (A), 1984, 30(5) 終525~2535
- [2] DeBeer D, Van Wagenen V G, Beach R et al·· Ultrafast modulation spectroscopy· Phys· Rev· Lett·, 1986, **56**(11) 数128~1131
- [3] Mossberg T W, Kachru R, Hartmann S R et al.. Echoes in gaseous media: A generalized theory of rephasing phenomena· Phys. Rev. (A), 1979, 20(10) 與976~1996
- [4] Fu P M, Yu Z H, Mi X et al·· Doppler-free ultrafast modulation spectroscopy with phase-conjugation geometry· Phys· Rev·(A), 1994, 50(1) 秦98~708
- [5] 张彦鹏, 卢克清, 唐天同等. V 型三能级系统中五阶极化拍频的理论研究. 光学学报, 2000, 20(3) 燊 $335 \sim 341$

Study of the Photon-Echo by Polarization Beat Spectroscopy

Zhang Yanpeng Sun Liqun Tang Tiantong
(Department of Electronic Science and Technology, Xi an Jiaotong University, Xi an 710049)
(Received 22 December 1998; revised 19 April 1999)

Abstract Photon echo in polarization beat spectroscopy is studied for a V-type three-level system. When the pump beams have broadband linewidth, one-photon four-wave mixing (FWM) is related to the three-pulse stimulated photon echo with relative time delay $\tau > 0$. The result coincides with the case when the beams have narrow linewidth, $\tau < 0$. This technique can achieve Doppler-free precision in the measurement of the energy level splitting between two excited states.

Key words time-delay, four-wave mixing, photon-echo-