

非相干光时延四波混频的多能级 理论——非均匀加宽情形

张瑞华 米 辛 周海天 姜 谦 叶佩弦

中国科学院物理研究所, 北京, 100080

1990 年 4 月 10 日收到

本文将我们建立的非相干光时延四波混频 (TDFWM-IL) 的多能级理论由均匀加宽情形发展到非均匀加宽情形。得到吸收带同时存在均匀和非均匀加宽时, TDFWM-IL 多能级理论给出的信号强度随两束泵光相对延时的一般关系式。讨论非均匀加宽占绝对优势时, 非相干光光子回波的多能级理论结果, 及其与二能级理论结果的差异。论证等效二能级模型同样适用于近似分析存在非均匀加宽影响时, 吸收带 TDFWM-IL 的实验结果。报道在红宝石零声子线和甲酚紫固体膜吸收边上的实验结果, 并与上述理论做了比较。

PACC: 4265; 4265G

一、引 言

在凝聚态物质中光激发的失相时间往往是非常短的, 属于皮秒和飞秒的数量级。采用传统的超短脉冲技术来研究这种超快失相过程是相当复杂和困难的。近年来的一些理论和实验工作表明, TDFWM-IL 为利用毫微秒脉冲激光甚至连续激光探测亚皮秒时间尺度的超快过程提供了一个简便有效的非线性光谱术^[1-3]。然而, 一个时期以来的非相干光时延四波混频理论都是建立在二能级模型基础上的。即便是在分析和处理象固体和染料分子这类物质的吸收带的实验结果时, 仍然使用着二能级理论公式。我们在红宝石吸收带中进行的非相干光时延四波混频实验^[4]已经证明, 用二能级理论处理由一系列振动结构组成的吸收带中的 TDFWM-IL 问题是不恰当的。在此基础上曾经建立了适合于均匀加宽体系的非相干光时延四波混频的多能级理论^[5]。该理论不仅成功地解释了红宝石吸收带在均匀加宽占绝对优势时的实验结果, 而且澄清了前人在用二能级理论处理吸收带的 TDFWM-IL 问题时的模糊概念。但是, 一般说来, 当温度逐渐降低时, 均匀加宽也将逐渐变小而非均匀加宽的相对成份将逐渐增大。本文试图将我们的 TDFWM-IL 多能级理论加以发展, 使之能够概括非均匀加宽情形。

二、基 本 假 设

考虑如图 1 所示的多能级系统。基态是单态 a , 激发态 b 是由一系列很靠近的子能级

$b(i)$ ($i = 0, \pm 1, \pm 2, \dots$) 组成。现在与文献[5]不同的是每一个子能级除了有均匀加宽之外还存在非均匀加宽。为了简单起见, 假定各个子能级的非均匀加宽都是相同的。亦即假定 ω_0 和 ω_i 分别是某一原子的基态与激发态第 0 个和第 i 个子能级的共振频率, 而 $\omega_0 + Q$ 是另一个原子的基态与激发态第 0 个子能级的共振频率, 则另一个原子的基态与激发态任一子能级 i 的共振频率必为 $\omega_i + Q$ ($i = \pm 1, \pm 2, \dots$)。同时, 假设系统的非均匀加宽可用归一化的高斯函数描述

$$\lambda(Q) = (\sqrt{\pi} \delta\omega)^{-1} \exp(-Q^2/\delta\omega^2), \quad (1)$$

式中 $\lambda(Q)$ 满足条件

$$\int_{-\infty}^{+\infty} \lambda(Q) dQ = 1. \quad (2)$$

现在, 与这个多能级系统相互作用的激光场具有下面的形式:

$$\begin{aligned} E(\mathbf{r}, t) &= E_1(\mathbf{r}, t) + E_2(\mathbf{r}, t) + E_3(\mathbf{r}, t) \\ &= e_1(t) \exp(i\mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{r}) + e_2(t) \exp(i\mathbf{k}_2 \cdot \mathbf{r}) + e_3(t) \exp(i\mathbf{k}_3 \cdot \mathbf{r}) + \text{c.c.} \end{aligned} \quad (3)$$

式中 E_1 和 E_2 代表四波混频中互成小角度的两束泵光场; E_3 是探测光场; $e_n(t)$ 和 $\mathbf{k}_n$ ($n = 1, 2, 3$) 分别是含时间因数的场量和波矢。 $e_n(t)$ 包含两个与时间有关的因数, 一个是时间的周期函数 $\exp(-i\omega t)$, 另一个是随机场量(包括位相和振幅的随机涨落)。由于两束泵光来自于同一激光源且具有相对延时 τ , 故有 $e_1(t) = e(t)$, $e_2(t) = e(t + \tau)$ 。探测光假定来自另一个独立的激光源。

系统随时间变化的密度矩阵遵循 Liouville 方程:

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} = \frac{1}{i\hbar} [H_0 + H_1, \rho] + \left(\frac{\partial \rho}{\partial t} \right)_{\text{弛豫}}, \quad (4)$$

式中 H_0 是系统的自由哈密顿量, H_1 是光场与系统的相互作用哈密顿量, $(\partial \rho / \partial t)_{\text{弛豫}}$ 代表系统的有关弛豫项。如果引入两个唯象参量 T_1 和 T_{2i} ($i = 0, \pm 1, \pm 2, \dots$), 则弛豫项中的有关部分还可以写成

$$\left(\frac{\partial \rho_{aa}}{\partial t} \right)_{\text{弛豫}} = -\frac{1}{T_1} \rho_{aa}, \quad (5a)$$

$$\left(\frac{\partial \rho_{b(i),a}}{\partial t} \right)_{\text{弛豫}} = -\frac{1}{T_{2i}} \rho_{b(i),a}, \quad (5b)$$

式中 T_1 代表基态 a 的布居弛豫时间, T_{2i} 代表基态 a 至激发态 b 第 i 个子能级跃迁的横向弛豫时间(失相时间)。

在微扰近似下, 为得到混频信号强度只需求解方程(4)至三阶微扰。对于大多数由振动跃迁构成的吸收带, 基态布居 ρ_{aa} 的寿命远大于激发态布居 $\rho_{b(i),b(i)}$ ($i = 0, \pm 1, \pm 2, \dots$) 的寿命。因此, 在求解方程(4)时, 可忽略激发态布居 $\rho_{b(i),b(i)}$ 的贡献。方程(4)的三阶微扰解 $\rho_{b(i),a}^{(3)}(\mathbf{k}_3 + \mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2)$ 可以通过下面的两个微扰通道得到

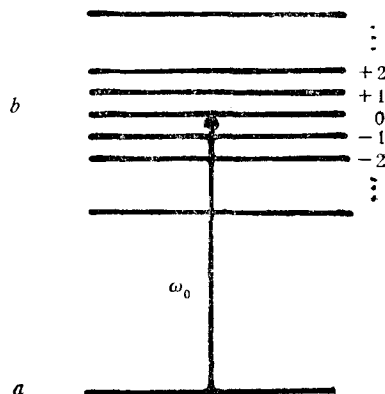


图1 多能级系统 基态只有一个单态 a , 激发态 b 由一系列很靠近的子能级 $b(i)$ ($i = 0, \pm 1, \pm 2, \dots$) 组成

$$\rho_{aa}^{(0)} \xrightarrow{E_1} \rho_{b(j),a}^{(1)}(\mathbf{k}_1)(j=0, \pm 1, \dots) \xrightarrow{E_2^*} \rho_{aa}^{(2)}(\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2) \xrightarrow{E_3} \rho_{b(i),a}^{(3)}(\mathbf{k}_3 + \mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2) \quad (i=0, \pm 1, \pm 2, \dots) \quad (6a)$$

和

$$\rho_{aa}^{(0)} \xrightarrow{E_2^*} \rho_{b(j),a}^{*(1)}(-\mathbf{k}_2)(j=0, \pm 1, \dots) \xrightarrow{E_1} \rho_{aa}^{(2)}(\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2) \xrightarrow{E_3} \rho_{b(i),a}^{(3)}(\mathbf{k}_3 + \mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2) \quad (i=0, \pm 1, \pm 2, \dots). \quad (6b)$$

在上面两个微扰通道中,与 E_1 , E_2 和 E_3 相互作用的是同一个原子,因此 $i=j$ 和 $i \neq j$ 都是允许的. 该原子的三阶非线性极化来自于所有的 $\rho_{b(j),a}^{(3)}(j=0, \pm 1, \pm 2, \dots)$ 的贡献,即

$$P^{(3)}(\Omega, \mathbf{r}, t) = \sum_j \mu_j \rho_{b(j),a}^{(3)}, \quad (7)$$

式中 μ_j 是基态至第 j 个激发子能级跃迁的偶极矩阵元. 出现在(7)式等号左边的 Ω 代表该原子的共振频率的非均匀位移.

三、理 论 公 式

在旋波近似下,求解 Liouville 方程(4),得到原子的三阶非线性极化强度为

$$P^{(3)}(\Omega, \mathbf{r}, t) \propto \exp[i(\mathbf{k}_3 + \mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2) \cdot \mathbf{r}] \cdot \sum_i \sum_j |\mu_j|^2 \cdot |\mu_i|^2 \cdot \int_{-\infty}^t \int_{-\infty}^{t_3} \int_{-\infty}^{t_2} dt_3 dt_2 dt_1 \{ e_3(t_3) \exp[-i(\omega_j + \Omega)(t - t_3) - (t - t_3)/T_{2j}] \\ \cdot [e_1(t_2) e_2^*(t_1) \exp[i(\omega_i + \Omega)(t_2 - t_1) - (t_2 - t_1)/T_1 - (t_2 - t_1)/T_{2i}] \\ + e_1(t_1) e_2^*(t_2) \exp[-i(\omega_i + \Omega)(t_2 - t_1) - (t_3 - t_2)/T_1 - (t_2 - t_1)/T_{2i}]] \}, \quad (8)$$

式中 $\omega_j(j=0, \pm 1, \pm 2, \dots)$ 是第 j 个跃迁的中心频率.

引入变量变换 $\tau_1 = t_2 - t_1$, $\tau_2 = t_3 - t_2$, $\tau_3 = t - t_3$, 利用 $e_1(t) = e(\tau)$, $e_2(\tau) = e(\tau + \tau)$, 则有

$$P^{(3)}(\Omega, \mathbf{r}, t) \propto \exp[i(\mathbf{k}_3 + \mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2) \cdot \mathbf{r}] \cdot \sum_i \sum_j |\mu_j|^2 \cdot |\mu_i|^2 \cdot \int_0^\infty \int_0^\infty \int_0^\infty d\tau_3 d\tau_2 d\tau_1 \{ e_3(t - \tau_3) \exp[-i(\omega_j + \Omega)\tau_3 - \tau_3/T_{2j}] \\ \cdot [e(t - \tau_3 - \tau_2) e^*(t - \tau_3 - \tau_2 - \tau_1 + \tau) \exp[i(\omega_i + \Omega)\tau_1 - \tau_1/T_{2i} - \tau_2/T_1] + e^*(t - \tau_3 - \tau_2 + \tau) e(t - \tau_3 - \tau_2 - \tau_1) \exp[-i(\omega_i + \Omega)\tau_1 - \tau_1/T_{2i} - \tau_2/T_1]] \}. \quad (9)$$

系统的宏观三阶非线性极化强度是单位体积中所有原子三阶非线性极化强度的总和,即

$$P(\mathbf{r}, t) = N \int_{-\infty}^{+\infty} P(\Omega, \mathbf{r}, t) \lambda(\Omega) d\Omega, \quad (10)$$

式中 N 是系统的原子数密度. 利用(9)式得到

$$P(\mathbf{r}, t) \propto \exp[i(\mathbf{k}_3 + \mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2) \cdot \mathbf{r}] \cdot \sum_i \sum_j |\mu_j|^2 \cdot |\mu_i|^2$$

$$\begin{aligned}
& \cdot \int_0^\infty \int_0^\infty \int_0^\infty d\tau_3 d\tau_2 d\tau_1 \{ \epsilon_3(t - \tau_3) \exp[-i\omega_i \tau_3 - \tau_3/T_{2i}] \\
& \cdot [\epsilon^*(t - \tau_3 - \tau_2 + \tau) \epsilon(t - \tau_3 - \tau_2 - \tau_1) G(\tau_1 + \tau_3) \exp[-i\omega_i \tau_1 - \tau_1/T_{2i} \\
& - \tau_2/T_{1i}] + \epsilon(t - \tau_3 - \tau_2) \epsilon^*(t - \tau_3 - \tau_2 - \tau_1 + \tau) G(-\tau_1 + \tau_3) \\
& \cdot \exp[i\omega_i \tau_1 - \tau_1/T_{2i} - \tau_2/T_{1i}]] \}, \quad (11)
\end{aligned}$$

式中 $G(\tau) = \int_{-\infty}^{+\infty} \lambda(Q) e^{-iQ\tau} dQ$ 是 $\lambda(Q)$ 的傅里叶变换。

四波混频信号强度比例于非线性极化强度绝对值平方的统计平均值,由(11)式

$$\begin{aligned}
I_s(\tau) & \propto \langle |P(\mathbf{r}, t)|^2 \rangle \propto \sum_i \sum_k \sum_j \sum_l |\mu_i|^2 \cdot |\mu_j|^2 \cdot |\mu_k|^2 \cdot |\mu_l|^2 \\
& \cdot \int_0^\infty \int_0^\infty \int_0^\infty \int_0^\infty d\tau_3 ds_3 d\tau_2 ds_2 d\tau_1 ds_1 \epsilon_3(t - \tau_3) \epsilon_3^*(t - s_3) \\
& \cdot \exp[-i\omega_i \tau_3 + i\omega_k s_3 - \tau_3/T_{2i} - s_3/T_{2k} - (\tau_2 + s_2)/T_1 - \tau_1/T_{2i} - s_1/T_{2l}] \\
& \cdot [A_{il} + B_{il} + C_{il} + D_{il}], \quad (12)
\end{aligned}$$

式中 $A_{il}, B_{il}, C_{il}, D_{il}$ 分别为

$$\begin{aligned}
A_{il} & = \langle \epsilon^*(t - \tau_3 - \tau_2 + \tau) \epsilon(t - \tau_3 - \tau_2 - \tau_1) \epsilon(t - s_3 - s_2 + \tau) \\
& \cdot \epsilon^*(t - s_3 - s_2 - s_1) \rangle G(\tau_1 + \tau_3) G^*(s_1 + s_3) \\
& \cdot \exp[-i\omega_i \tau_1 + i\omega_l s_1], \quad (13a)
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
B_{il} & = \langle \epsilon^*(t - \tau_3 - \tau_2 + \tau) \epsilon(t - \tau_3 - \tau_2 - \tau_1) \epsilon^*(t - s_3 - s_2) \\
& \cdot \epsilon(t - s_3 - s_2 - s_1 + \tau) \rangle G(\tau_1 + \tau_3) G^*(s_3 - s_1) \\
& \cdot \exp[-i\omega_i \tau_1 - i\omega_l s_1], \quad (13b)
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
C_{il} & = \langle \epsilon(t - \tau_3 - \tau_2) \epsilon^*(t - \tau_3 - \tau_2 - \tau_1) \epsilon^*(t - s_3 - s_2) \\
& \cdot \epsilon(t - s_3 - s_2 - s_1 + \tau) \rangle G(\tau_3 - \tau_1) G^*(s_3 - s_1) \\
& \cdot \exp[i\omega_i \tau_1 - i\omega_l s_1], \quad (13c)
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
D_{il} & = \langle \epsilon(t - \tau_3 - \tau_2) \epsilon^*(t - \tau_3 - \tau_2 - \tau_1 + \tau) \epsilon(t - s_3 - s_2 + \tau) \\
& \cdot \epsilon^*(t - s_3 - s_2 - s_1) \rangle G(\tau_3 - \tau_1) G^*(s_1 + s_3) \\
& \cdot \exp[i\omega_i \tau_1 + i\omega_l s_1]. \quad (13d)
\end{aligned}$$

非相干光源(即宽带激光源)可以用热辐射模型描述,因此在(13a)–(13d)式中出现的四阶相干函数可以用二阶相干函数表达

$$\begin{aligned}
\langle \epsilon(t_1) \epsilon(t_2) \epsilon^*(t_3) \epsilon^*(t_4) \rangle & = \langle \epsilon(t_1) \epsilon^*(t_3) \rangle \langle \epsilon(t_2) \epsilon^*(t_4) \rangle \\
& + \langle \epsilon(t_1) \epsilon^*(t_4) \rangle \langle \epsilon(t_2) \epsilon^*(t_3) \rangle. \quad (14)
\end{aligned}$$

于是,当忽略与 τ 无关的部分(这部分只表现为信号强度随延时 τ 变化中的常数背景)后,上面的四个系数可简化为

$$\begin{aligned}
A_{il} & = \Gamma^{(2)}(-\tau - \tau_1) \Gamma^{(2)}(s_1 + \tau) G(\tau_1 + \tau_3) G^*(s_1 + s_3) \\
& \cdot \exp[-i\omega_i \tau_1 + i\omega_l s_1], \quad (15a)
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
B_{il} & = \Gamma^{(2)}(-\tau - \tau_1) \Gamma^{(2)}(-s_1 + \tau) G(\tau_1 + \tau_3) G^*(s_3 - s_1) \\
& \cdot \exp[-i\omega_i \tau_1 - i\omega_l s_1], \quad (15b)
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
C_{il} & = \Gamma^{(2)}(-\tau + \tau_1) \Gamma^{(2)}(-s_1 + \tau) G(\tau_3 - \tau_1) G^*(s_3 - s_1) \\
& \cdot \exp[i\omega_i \tau_1 - i\omega_l s_1], \quad (15c)
\end{aligned}$$

$$D_{il} = \Gamma^{(2)}(-\tau + \tau_1) \Gamma^{(2)}(s_1 + \tau) G(\tau_3 - \tau_1) G^*(s_1 + s_3) \cdot \exp[i\omega_i \tau_1 + i\omega_l s_1], \quad (15d)$$

式中 $\Gamma^{(2)}(x) = \langle \epsilon(t+x) \epsilon^*(t) \rangle$ 是光场的二阶相干函数。把(15)式代入(12)式, 注意到对 τ_2 和 s_2 的积分是一独立积分, 结果是一常数。最后得到

$$\begin{aligned} I_s(\tau) \propto & \sum_i \sum_k \sum_j \sum_l |\mu_l|^2 \cdot |\mu_j|^2 \cdot |\mu_k|^2 \cdot |\mu_i|^2 \\ & \cdot \left\{ \int_0^\infty \int_0^\infty d\tau_3 d\tau_1 \epsilon_3(t - \tau_3) \exp[-\tau_3/T_{2i} - i\omega_l \tau_3] \right. \\ & \cdot [\Gamma^{(2)}(-\tau - \tau_1) G(\tau_1 + \tau_3) \exp(-\tau_1/T_{2i} - i\omega_i \tau_1) \\ & + \Gamma^{(2)}(-\tau + \tau_1) G(\tau_3 - \tau_1) \exp(-\tau_1/T_{2i} + i\omega_i \tau_1)] \Big\} \\ & \cdot \left\{ \int_0^\infty \int_0^\infty ds_3 ds_1 \epsilon_3(t - s_3) \exp[-s_3/T_{2k} - i\omega_k s_3] \right. \\ & \cdot [\Gamma^{(2)}(-\tau - s_1) G(s_1 + s_3) \exp(-s_1/T_{2l} - i\omega_l s_1) \\ & + \Gamma^{(2)}(-\tau + s_1) G(s_3 - s_1) \exp(-s_1/T_{2l} + i\omega_l s_1)] \Big\}^*. \end{aligned} \quad (16)$$

利用 Wiener-Khinchine 定理

$$\Gamma^{(2)}(x) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega s_0(\omega) \exp(-i\omega x), \quad (17)$$

$s_0(\omega)$ 是光源的功率谱, 得到四波混频信号强度随相对延时 τ 变化的普遍公式

$$\begin{aligned} I_s(\tau) \propto & \left| \int_0^\infty d\tau_3 \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega \int_{-\infty}^{+\infty} dQ \epsilon_3(t - \tau_3) \sum_j |\mu_j|^2 \exp(-\tau_3/T_{2j} - i\omega_j \tau_3) \right. \\ & \cdot \sum_i g(\omega_i) \exp(+i\omega \tau - iQ\tau_3 - Q^2/\delta\omega^2) \cdot \frac{s_0(\omega)/T_{2i}}{(\omega - \omega_i - Q)^2 + 1/T_{2i}^2} \Big|^2, \end{aligned} \quad (18)$$

式中 $g(\omega_i) \propto |\mu_i|^2$ 是第 i 个跃迁的权重因数。

四、非相干光光子回波

在非均匀加宽相对均匀加宽占绝对优势的情况下 ($\delta\omega \rightarrow \infty$), 为方便, 假定非相干光源的相干时间 τ_c 远小于失相时间, 即 $\tau_c \ll T_{2i}$ ($i = 0, \pm 1, \pm 2, \dots$)。 (18) 式积分中的非均匀加宽因数 $\exp(-Q^2/\delta\omega^2)$ 和光源的功率谱 $s_0(\omega)$ 可以从积分中提出来作为一个常量处理。在上面的条件下, 完成(18)式的积分可得到信号强度的一个简单形式

$$I_s(\tau) \propto \left| \sum_i g(\omega_i) \exp(-i\omega_i \tau - \tau/T_{2i}) \right|^4 \quad (\text{当 } \tau \geq 0),$$

$$I_s(\tau) = 0 \quad (\text{当 } \tau < 0). \quad (19)$$

这时的非相干光四波混频亦称作非相干光光子回波。由(19)式可以看出, $I_s(\tau)$ 相对于 $\tau = 0$ 是不对称的, 这是非均匀加宽体系的特征。如果进一步假定所有的跃迁具有相同的失相时间, 即 $T_{2i} = T_2$ ($i = 0, \pm 1, \pm 2, \dots$), 则得

$$I_s(\tau) \propto A(\tau) \exp(-4\tau/T_2), \quad (20)$$

$$\text{式中 } A(\tau) = \left| \sum_i g(\omega_i) \exp(-i\omega_i \tau) \right|^2.$$

已知,按照二能级理论,非相干光光子回波信号随延时 τ 的变化为 $I_e(\tau) \propto \exp(-4\tau/T_2)$. 与(20)式比较,多能级理论结果中多出一个随 τ 变化的因数 $A(\tau)$. 这个因数对于 $I_e(\tau)$ 随 τ 变化规律的影响,将取决于多能级系统激发态的能级结构、子能级之间的间距与均匀加宽 $1/T_2$ 的相对大小.

为讨论方便起见,假定激发态相邻子能级之间具有相同的间隔 Δ , 而且 $g(\omega_i)$ 为高斯函数分布,即 $g(\omega_i) \propto \exp[-(\omega_i - \omega_0)^2 / \delta\omega_b^2]$. 同时引入无量纲量 $b = \delta\omega_b / \Delta$, $c = T_2^{-1} / \Delta$ 和 $\tau' = \tau \cdot \Delta$.

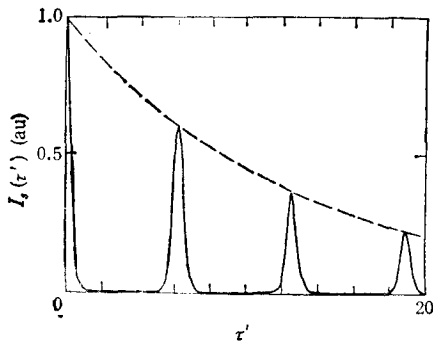


图2 非相干光光子回波的多能级理论与二能级理论比较 实线是多能级理论;虚线是二能级理论;计算所取参量: $b=3$, $c=0.02$

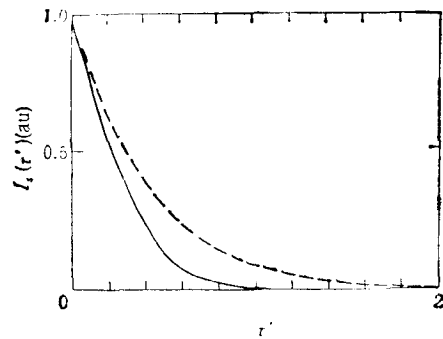


图3 非相干光光子回波的多能级理论与二能级理论比较 ——是多能级理论; ---是二能级理论; 计算所取参量: $b=3$, $c=0.06$

图2的实线是 $b=3$, $c=0.02$ 时由(20)式得到的理论曲线,虚线是当 $A(\tau)=1$ 时亦即由二能级理论得出的理论曲线. 这个结果表明,当 c 很小亦即当每一子能级的均匀加宽远小于相邻子能级的间隔以至组成吸收带的各条谱线可以分辨时,信号强度是被周期性调制的,其包络就是二能级理论的结果.

图3中实线是 $b=3$, $c=0.06$ 时由(20)式得到的理论曲线,虚线是二能级理论曲线. 此结果表明,当 c 足够大亦即当每一子能级的均匀加宽与相邻子能级的间隔可比以至吸收带中各谱线已连成一片时,再不出现在调制结构,但 $I_e(\tau)$ 随 τ 的衰减要比二能级理论结果快. 如果对实线的衰减引入一个特征时间 T'_2 , 则 T'_2 要比 T_2 小.

五、等效的二能级模型

在针对均匀加宽吸收带的非相干光时延四波混频的多能级理论中^[5]曾指出, 当均匀加宽足够大,使组成吸收带的各谱线连成一片时,仍然可以近似用二能级理论去处理,但此时二能级理论公式中的 T_2 将不再是个别跃迁的真正失相时间,而只能理解为一个等效的失相时间,它的倒数代表整个吸收带的带宽. 下面将要论证这样一个等效的二能级模型同样可以用以处理同时存在非均匀加宽的吸收带体系.

为简单起见,假定探测光束来自一个独立的单色激光源,频率为 ω_3 . 此时有 $\epsilon_3(t -$

$\tau_3) = E_{30} \cdot \exp[-i\omega_3(t - \tau_3)]$. 代入(18)式并完成对 τ_3 的积分得到

$$I_s(\tau) \propto \left\{ \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega \int_{-\infty}^{+\infty} d\Omega s_0(\omega) \exp(-\Omega^2/\delta\omega^2) \cdot \sum_i \sum_j \frac{g(\omega_i)g(\omega_j)T_{2i}^{-1} \cdot T_{2j}^{-1} \cdot [\cos\omega\tau/T_{2i} + (\omega_3 - \omega_j - \Omega) \sin\omega\tau]}{[(\omega_3 - \omega_j - \Omega)^2 + 1/T_{2i}^2][(\omega - \omega_i - \Omega)^2 + 1/T_{2j}^2]} \right\}^2 \\ + \left\{ \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega \int_{-\infty}^{+\infty} d\Omega s_0(\omega) \exp(-\Omega^2/\delta\omega^2) \cdot \sum_i \sum_j \frac{g(\omega_i)g(\omega_j)T_{2i}^{-1} \cdot T_{2j}^{-1} \cdot [(\omega_3 - \omega_j - \Omega) \cos\omega\tau - \sin\omega\tau/T_{2i}]}{[(\omega_3 - \omega_j - \Omega)^2 + 1/T_{2i}^2][(\omega - \omega_i - \Omega)^2 + 1/T_{2j}^2]} \right\}^2. \quad (21)$$

当吸收带各谱线因均匀加宽连成一片时, 可认为这个谱带是一条均匀加宽很大的谱线, 是由一个等效二能级系统的共振跃迁产生的. 如果仍然近似地用洛伦兹线型描写这个谱带的轮廓, 则可引入一个等效的失相时间 T'_2 , 使

$$\sum_i \frac{g(\omega_i)/T_{2i}}{[(\omega - \omega_i - \Omega)^2 + 1/T_{2i}^2]} \approx \frac{1/T'_2}{[(\omega - \omega_c - \Omega)^2 + 1/T'^2_2]}, \quad (22)$$

式中 ω_c 是吸收谱带的中心频率. 如果进一步做下面的近似:

$$\sum_j \frac{g(\omega_j)\omega_j/T_{2j}}{(\omega_3 - \omega_j - \Omega)^2 + 1/T_{2j}^2} \approx \frac{\omega_c/T'_2}{(\omega_3 - \omega_c - \Omega)^2 + 1/T'^2_2}, \quad (23)$$

$$\sum_j \frac{g(\omega_j)/T_{2j}}{(\omega_3 - \omega_j - \Omega)^2 + 1/T_{2j}^2} \approx \frac{1/T'^2_2}{(\omega_3 - \omega_c - \Omega)^2 + 1/T'^2_2}, \quad (24)$$

则(21)式可写成

$$I_s(\tau) \propto \left\{ \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega \int_{-\infty}^{+\infty} d\Omega s_0(\omega) \exp(-\Omega^2/\delta\omega^2) \cdot \frac{\cos\omega\tau/T'_2 + (\omega_3 - \omega_c - \Omega) \sin\omega\tau}{[(\omega_3 - \omega_c - \Omega)^2 + 1/T'^2_2][(\omega - \omega_0 - \Omega)^2 + 1/T'^2_2]} \right\}^2 \\ + \left\{ \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega \int_{-\infty}^{+\infty} d\Omega s_0(\omega) \exp(-\Omega^2/\delta\omega^2) \cdot \frac{(\omega_3 - \omega_c - \Omega) \cos\omega\tau - \sin\omega\tau/T'_2}{[(\omega_3 - \omega_0 - \Omega)^2 + 1/T'^2_2][(\omega - \omega_0 - \Omega)^2 + 1/T'^2_2]} \right\}^2. \quad (25)$$

(25)式正好是二能级理论中考虑了同时存在均匀和非均匀加宽时信号强度随延时 τ 变化的关系式. 这一点只需利用(18)式全求和号中的 i 和 j 都只取 $i = j = 0$ 便会得到证明. 这说明当同时考虑非均匀加宽的影响时, 仍然可以用等效的二能级模型去处理, 但用以分析实验结果得到的失相时间将仍然是一个反映整个吸收带谱宽的有效失相时间.

从(25)式可以看出, 非均匀加宽的存在将使函数 $I_s(\tau)$ 变成不对称. 图4给出利用(25)式进行数值计算的结果. 为了方便假定光源的功率谱 $s_0(\omega)$ 是高斯函数 $s_0(\omega) \propto \exp[-(\omega - \omega_m)^2/\delta\omega^2]$, 并设 $\delta\nu_s = \delta\omega_s/2\pi$, $1/\delta\nu_s = 0.1\text{ps}$, 等效失相时间 $T'_2 = 0.1\text{ps}$. 图4中三条理论曲线分别对应于 $\delta\nu \cdot T'_2 =$

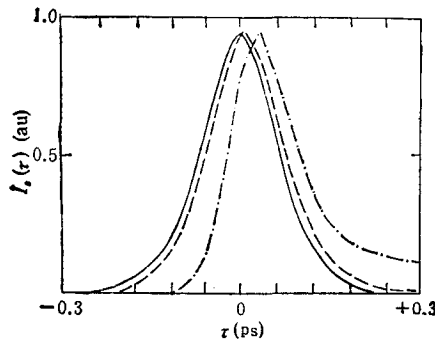


图4 弱非均匀加宽对 TDFWM-IL 信号行为的影响

——是 $\delta\nu \cdot T'_2 = 0$; ---是 $\delta\nu \cdot T'_2 = 0.1$;
- · - 是 $\delta\nu \cdot T'_2 = 1.4$

1/δν_s = 0.1ps, 等效失相时间 T'₂ = 0.1ps. 图4中三条理论曲线分别对应于 δν · T'₂ =

0, $\delta\nu \cdot T_2' = 0.1$, $\delta\nu \cdot T_2' = 1.4$, 其中 $\delta\nu = \delta\omega/2\pi$ 是非均匀加宽的大小, 而实线对应于完全均匀加宽的情形. 可以看出, 当系统存在相对于均匀加宽很弱的非均匀加宽时, 信号强度随延时的变化曲线即会出现非对称, 而且峰值也有明显的移动.

六、一组存在非均匀加宽影响的实验结果

我们曾经报道红宝石吸收带 4T_2 在 80—300K 温度下的 TDFWM-IL 的实验结果^[4], 并利用我们建立的均匀加宽的多能级理论作了圆满的解释. 为了观察非均匀加宽的影响, 并与本文建立的理论相比较, 又在红宝石的零声子线 ($\lambda = 5960 \text{ \AA}$) 进行了 TDFWM-IL 实验, 研究当温度降至 80K 时零声子线的非均匀加宽相对变大时而显现的影响. 实验中使用的非相干光源来自一个自制的平行腔宽带染料激光器, 探测光来自于一台单频的染料激光. 我们使用一台 Quanta Ray YAG 激光的二次谐波同时泵浦这两台染料激光, 脉冲频率是 10Hz. 如同已报道的红宝石实验^[4]中检验 $I_s(\tau)$ 的对称性时做过的那样, 把探测光分成两束, 分别在两个位相匹配的方向上探测. 实验中使用两支光电倍增管和一台 EG&G4203 信号平均器作为我们的测量系统, 同时记录两组信号 $I_s(\tau)$ 和 $I_s'(\tau)$. 利用一台 HP-85 微机自动控制步进马达延时器和信号平均器自动存取数据. 样品是一块长 9mm 的晶体, 铬离子浓度(重量比)是 0.05%. c 轴沿通光的方向.

图 5 是泵光中心波长 $\lambda = 5960 \text{ \AA}$ 时的实验结果. 光源的光谱宽度 $\Delta\lambda \approx 110 \text{ \AA}$. 图 5(a) 是 $T = 300\text{K}$ 时的实验数据. $I_s(\tau)$ 和 $I_s'(\tau)$ 是完全重叠的, 亦即是完全对称的

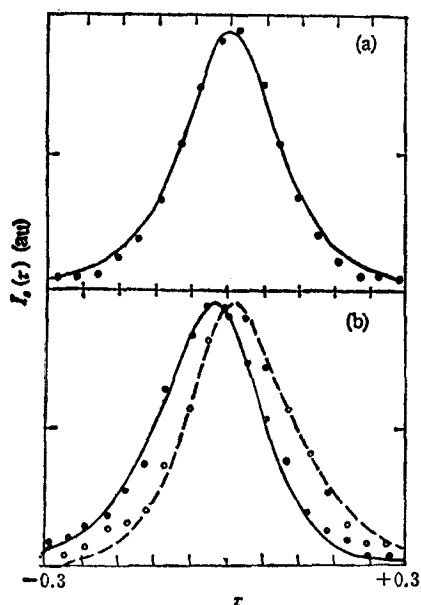


图 5 红宝石零声子线 TDFWM-IL 的实验结果 (a) $T = 300\text{K}$, 实线是对应于 $\delta\nu \cdot T_2' = 0$, $T_2' = 0.15 \text{ ps}$ 时的拟合曲线; (b) $T = 80\text{K}$, 实线和虚线是对应于 $T_2' = 0.18\text{ps}$, $\delta\nu \cdot T_2' = 0.2$ 时两个方向测量数据的理论拟合曲线

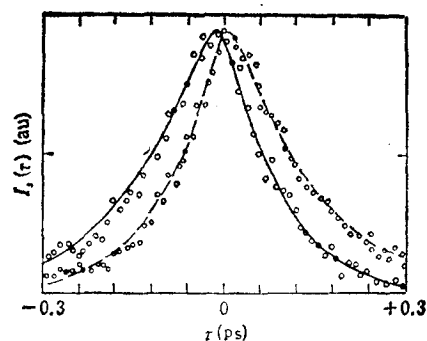


图 6 $T = 80\text{K}$ 时甲酚紫膜的 TDFWM-IL 实验结果 实线和虚线分别是对应于 $\delta\nu \cdot T_2' = 0.4$, $T_2' = 0.25\text{ps}$ 时两个方向测量数据的理论拟合曲线

(图中只画出其中的一组数据)。实线是(25)式当取 $T'_2 = 0.15\text{ps}$, $\delta\nu \cdot T'_2 = 0$ 时的理论拟合曲线。图 5(b) 是 $T = 80\text{K}$ 时的实验结果。其中实线和虚线分别是(25)式, 当 $T'_2 = 0.18\text{ps}$, $\delta\nu \cdot T'_2 = 0.2$ 时在两个方向探测数据的拟合曲线。可以看出, 两组信号曲线 $I_s(\tau)$ 和 $I'_s(\tau)$ 的峰值已经显著分开, 并呈现对 τ 的非对称性。尽管从 $\delta\nu \cdot T'_2 = 0.2$ 知道, 此时的非均匀加宽的相对成份是很小的。

同时还在甲酚紫染料分子的有机玻璃膜 (PMMA) 中进行了 TDFWM-IL 实验。膜厚约为 $100\mu\text{m}$ 。当泵光中心波长调至吸收边 $\lambda = 6320\text{\AA}$ 且在 $T = 80\text{K}$ 的条件下也观察到了非均匀加宽的影响。图 6 是甲酚紫膜的实验结果。光源的光谱宽度 $\Delta\lambda \approx 360\text{\AA}$, 图 6 中实线和虚线分别是(25)式当 $T'_2 = 0.25\text{ps}$, $\delta\nu \cdot T'_2 = 0.4$ 时两个方向测量数据的理论拟合曲线。可以看出不对称是明显的。当 $T = 300\text{K}$ 时, 得到 $I_s(\tau)$ 和 $I'_s(\tau)$ 完全重叠的对称曲线, 且 $T'_2 = 0.2\text{ps}$ 。

上述结果表明, 利用等效二能级模型分析同时存在均匀和非均匀加宽的吸收带的 TDFWM-IL 实验也是成功的。

七、结 语

本文针对物质吸收带提出了一个有关非均匀加宽的简化模型, 并将我们已经建立的只适合于均匀加宽的非相干光时延四波混频的多能级理论加以发展, 使之能概括非均匀加宽同时存在的情况。得到了同时存在均匀和非均匀加宽时多能级理论给出的信号强度随两束泵光延时的一般关系式。在非均匀加宽占绝对优势时, 讨论了非相干光光子回波的多能级理论结果, 分析了与二能级理论结果的差异。从上述一般关系式出发还论证了等效二能级模型同样可用以近似分析存在非均匀加宽影响时 TDFWM-IL 的实验结果。最后, 通过我们在红宝石零声子线和甲酚紫膜吸收边上的实验, 证实了用本文的理论去分析非均匀加宽的影响是可行的。

- [1] S. Asaka, H. Nakatsuka, M. Fujiwara, and M. Matsuoka, *Phys. Rev.*, **A29**(1984), 2286.
- [2] R. Beach and S. R. Hartmann, *Phys. Rev. Lett.*, **53**(1984), 663.
- [3] N. Morita and T. Yajima, *Phys. Rev.*, **A30** (1984), 2525.
- [4] Ruihua Zhang, Xin. Mi, Haitian Zhou, and Peixian Ye, *Opt. Commun.*, **67**(1988), 446.
- [5] Xin. Mi, Haitian Zhou, Ruihua. Zhang, and Peixian Ye, *J. Opt. Soc. Am.*, **B6**(1989).

MULTILEVEL THEORY OF TIME-DELAY FOUR-WAVE MIXING WITH INCOHERENT LIGHT —INHOMOGENEOUS BROADENING CASE

ZHANG RUI-HUA MI XIN ZHOU HAI-TIAN JIANG QIAN YE PEI-XIAN

Institute of Physics, Academia Sinica, Beijing, 100080

(Received 10 April 1990)

ABSTRACT

In this paper, our multi-level theory of time-delay four wave mixing with incoherent light (TDFWM-IL) developed previously for the case of homogeneous broadening system has been extended to a generally inhomogeneous broadening case. From the present theory, a general expression of signal intensity for absorption band with both homogeneous and inhomogeneous broadening is given as a function of mutual time delay τ between two pump beams. Photon echo with incoherent light under the condition of extremely inhomogeneous broadening is discussed, and the difference of results obtained separately from multi-level and two-level theory is pointed out. It has been demonstrated that the experiment of TDFWM-IL can also be analysed approximately by using an effective two-level model when a weak effect of inhomogeneous broadening of absorption band exists. Finally, our experimental results of TDFWM-IL obtained at zero-phonon line of ruby and absorption edge of cresyl violet film in PMMA are also presented and compared with the theory mentioned above.

PACC: 4265; 4265G