

UMSCTS 中光子回波的研究^{*}

张彦鹏 朱京平 唐天同

(西安交通大学电信学院光电子与物理电子工程系, 西安 710049)

付盘铭

(中国科学院物理研究所, 北京 100080)

(1998 年 4 月 6 日收到)

对级联三能级系统超快调制光谱学(UMSCTS)中的光子回波进行了研究. 当宽带线宽且相对时延 $\tau > 0$ 时单光子和双光子四波混频分别对应于三脉冲受激光子回波与和频三能级光子回波. 宽带 $\tau < 0$ 时与窄带情形类似.

PACC: 4265; 3290

1 引 言

超快现象一直是个十分活跃的前沿领域, 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. 我们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^[1]指出, 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.

本文对 UMSCTS 中光子回波进行了研究, 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

在级联三能级系统中(见图 1), $|0\rangle$ 是基态, $|1\rangle$ 为中间态, $|2\rangle$ 是激发态, Ω_1 和 Ω_2 分

^{*} 西安交通大学电信基金资助的课题.

别为从 $|0\rangle$ 到 $|1\rangle$ 和从 $|1\rangle$ 到 $|2\rangle$ 的偶极跃迁共振频率, $|0\rangle$ 到 $|2\rangle$ 为禁戒跃迁. 外来激光的几何配制如图 2 所示, 光束 1, 2 中含有两个频率分量 ω_1, ω_2 , 且 $\omega_1 \approx \Omega_1, \omega_2 \approx \Omega_2$. 光束 3 的频率的 ω_3 , 且 $\omega_3 \approx \Omega_1$, 首先光束 1, 2 中 ω_1 通过共振激发诱导 $|0\rangle$ 和 $|1\rangle$ 态的布局栅, 光束 3 被衍射后, 产生单光子简并四波混频(DFWM)信号. 其次, 光束 1, 3 发生了 $\omega_3 + \omega_2$ 的双光子过程, 经光束 2 (ω_2) 探测, 产生了双光子非简并四波混频(NDFWM)信号. 单光子 DFWM 信号和双光子 NDFWM 信号频率都为 ω_3 , 在探测器上形成拍频信号.

光束 1, 2 的复电场可描述如下:

$$\begin{aligned} E_{P1} &= A_1(\mathbf{r}, t)\exp(-i\omega_1 t) + A_2(\mathbf{r}, t)\exp(-i\omega_2 t) \\ &= \epsilon_1 u_1(t)\exp[i(\mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{r} - \omega_1 t)] + \epsilon_2 u_2(t)\exp[i(\mathbf{k}_2 \cdot \mathbf{r} - \omega_2 t)], \\ E_{P2} &= A'_1(\mathbf{r}, t)\exp(-i\omega_1 t) + A'_2(\mathbf{r}, t)\exp(-i\omega_2 t) \\ &= \epsilon'_1 u_1(t - \tau)\exp[i(\mathbf{k}'_1 \cdot \mathbf{r} - \omega_1 t + \omega_1 \tau)] \\ &\quad + \epsilon'_2 u_2(t - \tau)\exp[i(\mathbf{k}'_2 \cdot \mathbf{r} - \omega_2 t + \omega_2 \tau)], \epsilon_i, \mathbf{k}_i(\epsilon'_i, \mathbf{k}'_i) \end{aligned}$$

为光束 1, 2 中 ω_i 分量的光场振幅和波矢量, $u_i(t)$ 是描述光场相位和振幅涨落的无量纲扰动因子, τ 是光束 1, 2 之间的相对时间延迟. 因光束 3 在我们的相位共轭配制中与光束 1 方向相反, 它与光束 1, 2 不存在时延上的关联, 故我们可假定其为单色光, 其复电场为

$$E_{P3} = A_3(\mathbf{r}, t)\exp(-i\omega_3 t) = \epsilon_3 \exp[i(\mathbf{k}_3 \cdot \mathbf{r} - \omega_3 t)],$$

ϵ_3 和 $\mathbf{k}_3$ 分别是光场振幅和波矢量.

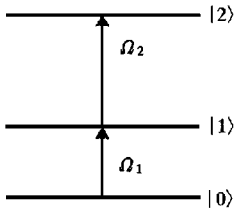


图 1 三能级位形图

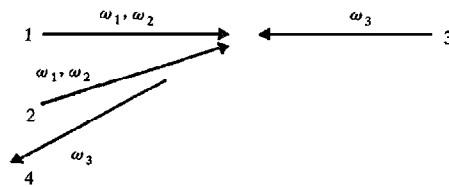


图 2 几何配制图

四波混频信号与三阶非对角密度矩阵元 $\rho_{10}^{(3)}$ 相关, $\rho_{10}^{(3)}$ 可通过以下微扰链计算:

$$\begin{aligned} \text{(I)} \quad & \rho_{00}^{(0)} \xrightarrow{A_1} \rho_{10}^{(1)} \xrightarrow{(A'_1)^*} \rho_{00}^{(2)} \xrightarrow{A_3} \rho_{10}^{(3)}, \\ \text{(II)} \quad & \rho_{00}^{(0)} \xrightarrow{(A'_1)^*} (\rho_{10}^{(1)})^* \xrightarrow{A'_1} \rho_{00}^{(2)} \xrightarrow{A_3} \rho_{10}^{(3)}, \\ \text{(III)} \quad & \rho_{00}^{(0)} \xrightarrow{(A_1)} \rho_{10}^{(1)} \xrightarrow{(A'_1)^*} \rho_{11}^{(2)} \xrightarrow{A_3} \rho_{10}^{(3)}, \\ \text{(IV)} \quad & \rho_{00}^{(0)} \xrightarrow{(A'_1)^*} (\rho_{10}^{(1)})^* \xrightarrow{A_1} \rho_{11}^{(2)} \xrightarrow{A_3} \rho_{10}^{(3)}, \\ \text{(V)} \quad & \rho_{00}^{(0)} \xrightarrow{A_3} (\rho_{10}^{(1)}) \xrightarrow{A_2} \rho_{20}^{(2)} \xrightarrow{(A'_2)^*} \rho_{10}^{(3)}. \end{aligned}$$

链(I)–(IV)对应单光子共振 DFWM, 链(V)对应双光子共振 NDFWM.

对于以上微扰链, 我们可通过密度矩阵动力学方程求解 $\rho_{10}^{(3)}$ 得

$$\rho^{(1)} = (i\mu_1/\hbar)^3 \exp(-i\omega_3 t) \int_0^\infty dt_3 \int_0^\infty dt_2 \int_0^\infty dt_1 H_3(t_3) H_2(t_2) H_1(t_1)$$

$$\times A_1(\bar{r}, t - t_1 - t_2 - t_3) [A'_1(\bar{r}, t - t_2 - t_3)]^* A_3(\bar{r}, t - t_3), \quad (1)$$

$$\rho^{(\text{II})} = (i\mu_1/\hbar)^3 \exp(-i\omega_3 t) \int_0^\infty dt_3 \int_0^\infty dt_2 \int_0^\infty dt_1 H_3(t_3) H_2(t_2) [H_1(t_1)]^* \\ \times A_1(\bar{r}, t - t_2 - t_3) [A'_1(\bar{r}, t - t_1 - t_2 - t_3)]^* A_3(\bar{r}, t - t_3), \quad (2)$$

$$\rho^{(\text{III})} = (i\mu_1/\hbar)^3 \exp(-i\omega_3 t) \int_0^\infty dt_3 \int_0^\infty dt_2 \int_0^\infty dt_1 H_3(t_3) H_4(t_2) H_1(t_1) \\ \times A_1(\bar{r}, t - t_1 - t_2 - t_3) [A'_1(\bar{r}, t - t_2 - t_3)]^* A_3(\bar{r}, t - t_3), \quad (3)$$

$$\rho^{(\text{IV})} = (i\mu_1/\hbar)^3 \exp(-i\omega_3 t) \int_0^\infty dt_3 \int_0^\infty dt_2 \int_0^\infty dt_1 H_3(t_3) H_4(t_2) [H_1(t_1)]^* \\ \times A_1(\bar{r}, t - t_2 - t_3) [A'_1(\bar{r}, t - t_1 - t_2 - t_3)]^* A_3(\bar{r}, t - t_3), \quad (4)$$

$$\rho^{(\text{V})} = (i\mu_1/\hbar)(i\mu_3/\hbar)^2 \exp(-i\omega_3 t) \int_0^\infty dt_3 \int_0^\infty dt_2 \int_0^\infty dt_1 H_3(t_3) H_5(t_2) H_3(t_1) \\ \times A_3(\bar{r}, t - t_1 - t_2 - t_3) A_2(\bar{r}, t - t_2 - t_3) [A'(\bar{r}, t - t_3)]^*, \quad (5)$$

其中 $H_1(t) = \exp[-(\Gamma_{10} + i\Delta_1)t]$, $H_2(t) = \exp(-\Gamma_0 t)$,

$H_3(t) = \exp[-(\Gamma_{10} + i\Delta_3)t]$, $H_4(t) = \exp(-\Gamma_1 t)$,

$H_5(t) = \exp[-(\Gamma_{20} + i\Delta_2 + i\Delta_3)t]$,

$\mu_1(\mu_3)$ 为 $|0\rangle$ 到 $|1\rangle$ ($|1\rangle$ 到 $|2\rangle$) 的跃迁偶极矩阵元。

$$\Delta_1 \equiv \Omega_1 - \omega_1, \quad \Delta_2 \equiv \Omega_2 - \omega_2, \quad \Delta_3 \equiv \Omega_1 - \omega_3.$$

Γ_0 为 $|0\rangle$ 的布局弛豫, Γ_1 为 $|1\rangle$ 的布局弛豫. Γ_{10} (Γ_{20}) 是 $|0\rangle$ 到 $|1\rangle$ ($|0\rangle$ 到 $|2\rangle$) 的横向弛豫.

上面得到了具有波矢量 $\mathbf{k}_1 = \mathbf{k}'_1 + \mathbf{k}_3$ 或 $\mathbf{k}_2 = \mathbf{k}'_2 + \mathbf{k}_3$ 的五个三阶非对角密度矩阵元 $\rho_{10}^{(3)}$. 对于相位共轭 FWM 信号, 非线性极化强度为

$$P^{(3)} = N\mu_1 \int_{-\infty}^{+\infty} d\mathbf{v} W(\mathbf{v}) \rho_{10}^{(3)}(\mathbf{v}). \quad (6)$$

式中, $W(\mathbf{v}) = \frac{1}{\sqrt{\pi}u} \exp[-(\mathbf{v}/u)^2]$, $u = \sqrt{2K_B T/m}$.

在各种混沌过程中, 信号强度正比于 $|\langle P^{(3)} \rangle|^2$,

$$\langle P^{(3)} \rangle = P^{(\text{I})} + P^{(\text{II})} + P^{(\text{III})} + P^{(\text{IV})} + P^{(\text{V})}.$$

在多普勒极限增宽情形 ($K_3 u \rightarrow \infty$) 下, 假定 $\xi_2 \equiv K_2/K_3 > 1$, 得:

2.1 窄带情形

即 $\alpha_1 \ll \Gamma_{10}$, $\alpha_2 \ll \Gamma_{20}$, 得

$$I(\tau) \propto \frac{\exp(-2\alpha_1|\tau|) \left(\frac{1}{\Gamma_0} + \frac{1}{\Gamma_1} \right)^2}{(\Gamma_{10}^a)^2 + (\Delta_1^a)^2} + |\eta|^2 \frac{(\xi_2 - 1)^2 \exp(-2\alpha_2|\tau|)}{[(\Gamma_{20}^a - \Gamma_{10})^2 + (\Delta_2^a)^2]^2} \\ + \exp[-(\alpha_1 + \alpha_2)|\tau|] \{ q \exp[-i(\omega_2 - \omega_1)\tau] + q^* \exp[i(\omega_2 - \omega_1)\tau] \}. \quad (7)$$

式中 $q = \frac{\eta \left(\frac{1}{\Gamma_0} + \frac{1}{\Gamma_1} \right) (\xi_2 - 1)}{(\Gamma_{10}^a - i\Delta_1^a) [\Gamma_{20}^a - \Gamma_{10} + i\Delta_2^a]^2}$, $\eta \approx \left(\frac{\mu_3}{\mu_1} \right)^2 \left[\frac{\epsilon_2(\epsilon_2')^*}{\epsilon_1(\epsilon_1')^*} \right]$, $\xi_2 \equiv k_2/k_3$, $\xi_1 \equiv k_1/k_3$,

$\alpha_i = (1/2) \delta\omega_i$, $\delta\omega_i$ 为频率 ω_i 的线宽. $\Gamma_{10}^a = \Gamma_{10} + \xi_1 \Gamma_{10}$, $\Gamma_{20}^a = \Gamma_{20} + \xi_2 \Gamma_{10}$, $\Delta_1^a = \Delta_1 + \xi_1 \Delta_3$, $\Delta_2^a = \Delta_2 + \xi_2 \Delta_3$.

从上式可看出, 随着时延 τ 的变化, FWM 信号强度以 $\omega_2 - \omega_1$ 为频率呈阻尼振荡, 其衰减率为 $\alpha_1 + \alpha_2$, 主要反映了外部激光的特性, 与具体能级结构无关.

2.2 宽带情形

即 $\alpha_1 \gg \Gamma_{10}$, $\alpha_2 \gg \Gamma_{20}$, 我们假定 $\tau \gg \alpha_1^{-1}$, α_2^{-1} , 可有

$$I(\tau) \propto \left[\frac{\alpha_1 \left(\frac{1}{\Gamma_0} + \frac{1}{\Gamma_1} \right)}{\alpha_1^2 + (\Delta_1^a)^2} \right]^2 \exp(-2\Gamma_{10}^a |\tau|) + \tau^2 |\eta|^2 \left[\frac{\alpha_2 (\xi_2 - 1)}{\alpha_2^2 + (\Delta_2^a)^2} \right]^2 \\ \times \exp[-2(\Gamma_{20}^a - \Gamma_{10}) |\tau|] + \left[\frac{\alpha_1 \left(\frac{1}{\Gamma_0} + \frac{1}{\Gamma_1} \right)}{\alpha_1^2 + (\Delta_1^a)^2} \right] \left[\frac{\alpha_2 (\xi_2 - 1) \tau}{\alpha_2^2 + (\Delta_2^a)^2} \right] \\ \times \exp\{-[\Gamma_{20} + (\xi_1 + \xi_2) \Gamma_{10}] |\tau|\} \times \eta \exp[-i(\Omega_2 - \Omega_1) \tau - i(\xi_2 - \xi_1) \Delta_3 \tau] \\ + \eta^* \exp[i(\Omega_2 - \Omega_1) \tau + i(\xi_2 - \xi_1) \Delta_3 \tau], \quad (8)$$

信号以 $(\Omega_2 - \Omega_1) + (\xi_2 - \xi_1) \Delta_3$ 为频率进行衰减振荡, 衰变率为 $\Gamma_{20}^a + \Gamma_{10}^a - \Gamma_{10}$. 我们通过 DFWM 或饱和吸收光谱实验使 ω_3 调整到多普勒线型的中心, 即 $\Delta_3 = 0$, 调制频率为 $(\Omega_2 - \Omega_1)$.

当 $\tau < 0$ 时有

$$I(\tau) \propto \frac{\left(\frac{1}{\Gamma_0} + \frac{1}{\Gamma_1} \right)^2}{\alpha_1^2 + (\Delta_1^a)^2} \exp(-2\alpha_1 |\tau|) + |\eta|^2 \frac{(\xi_2 - 1)^2}{[\alpha_2^2 - (\Delta_2^a)^2]^2 + (2\Delta_2^a \alpha_2)^2} \exp(-2\alpha_2 |\tau|) \\ + \left(\frac{1}{\Gamma_0} + \frac{1}{\Gamma_1} \right) (\xi_2 - 1) \exp[-(\alpha_1 + \alpha_2) |\tau|] \{ q' \exp[-i(\omega_2 - \omega_1) \tau] \\ + (q')^* \exp[i(\omega_2 - \omega_1) \tau] \}, \quad (9)$$

其中 $q' = \frac{\eta}{(\alpha_1 - i\Delta_1^a)(\alpha_2 + i\Delta_2^a)^2}$.

上式表明信号强度当 τ 变化时, 呈现频率为 $\omega_2 - \omega_1$ 的阻尼振荡, 衰减率为 $\alpha_1 + \alpha_2$, 这与窄带时情形(7)式类似.

2.3 光子回波

下面我们从光子回波的角度讨论一下宽带的情形, 此问题最早由 Morita 和 Yajima 提出, 表明用非相干光时延四波混频的相干瞬态光谱技术测能级系统的弛豫时间, 其时间分辨率取决于激光的相干时间 τ_c . 在三能级系统中, 由于相位匹配条件:

$\mathbf{K}_s = \mathbf{K}_1 - \mathbf{K}_1' + \mathbf{K}_3$, $\mathbf{K}_s = \mathbf{K}_2 - \mathbf{K}_2' + \mathbf{K}_3$, 光子回波只能在链(I), (III), (V)中发生^[2].

在链(I)中, 由(1)和(6)式可得

$$P^{(I)} = S_1(\mathbf{r}) \exp[-i(\omega_3 t + \omega_1 \tau)] \int_{-\infty}^{+\infty} d\mathbf{v} W(\mathbf{v}) \exp[-i\theta_1(\mathbf{v})] \int_0^{\infty} dt_3 \int_0^{\infty} dt_2 \int_0^{\infty} dt_1$$

$$\times \exp[-(\Gamma_{10} + i\Delta_3)t_3] \exp(-\Gamma_0 t_2) \exp[-(\Gamma_{10} + i\Delta_1)t_1] \exp(-\alpha_1 |t_1 - \tau|). \quad (10)$$

式中

$$S_1(\mathbf{r}) = -i\hbar N \left(\frac{\mu_1}{\hbar} \right)^4 \epsilon_1(\epsilon'_1)^* \epsilon_3 \exp[i(\mathbf{K}_1 - \mathbf{K}'_1 + \mathbf{K}_3) \cdot \mathbf{r}],$$

$$\theta_I(\mathbf{v}) = \mathbf{v} \cdot [\mathbf{K}_1(t_1 + t_2 + t_3) + \mathbf{K}'_1(t_2 + t_3) + \mathbf{K}_3 t_3].$$

对于上式,可参考(1)式做出如下解释,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_1 ,衰变率 Γ_{10} 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 Γ_0 .在 t_2 间隔后, A_3 在 $t = t_3$ 时刻探测此布局栅,并诱导出与 FWM 信号有关的极化强度,这个极化强度在 t_3 间隔内以频率 Δ_3 及衰变率 Γ_{10} 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 1 产生的偶极子不久将相互失相,光束 3 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, $\int_{-\infty}^{+\infty} d\mathbf{v} \mathbf{W}(\mathbf{v}) \exp[-i\theta_I(\mathbf{v})] \approx \frac{2\sqrt{\pi}}{K_3 u} \delta(t_3 - \xi_1 t_1)$,也就是当 $t_3 = \xi_1 t_1$ 时,光子回波发生在时刻 t .我们认为宽带非相干光可看作为一系列相位不相干的持续时间为 τ_c 的短脉冲,而与延时 τ 有关的 FWM 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 , (10) 式中的因子 $\exp(-\alpha_2 |t_1 - \tau|)$ 说明了这一点.由于泵光为宽带非相干光,则 $\exp(-\alpha_2 |t_1 - \tau|) \approx \frac{2}{\alpha_2} \delta(t_1 - \tau)$.

于是, $P^{(I)} \propto \frac{1}{\Gamma_0} S_1(\mathbf{r}) \exp(-i\omega_3 t) \exp(-\Gamma_{10}^a \tau) \exp[-i(\Omega_1 + \xi_1 \Delta_3) \tau]$,这是与 $|0\rangle$ 布局栅有关的三脉冲受激光子回波.

同理,在链(III)中可得

$$P^{(III)} = S_1(\mathbf{r}) \exp[-i(\omega_3 t + \omega_1 \tau)] \int_{-\infty}^{+\infty} d\mathbf{v} \mathbf{W}(\mathbf{v}) \exp[-i\theta_I(\mathbf{v})] \int_0^\infty dt_3 \int_0^\infty dt_2 \int_0^\infty dt_1 \\ \times \exp[-(\Gamma_{10} + i\Delta_3)t_3] \exp(-\Gamma_1 t_2) \exp[-(\Gamma_{10} + i\Delta_1)t_1] \exp(-\alpha_1 |t_1 - \tau|). \quad (11)$$

积分得

$$P^{(III)} \propto \frac{1}{\Gamma_1} S_1(\mathbf{r}) \exp(-i\omega_3 t) \exp(-\Gamma_{10}^a \tau) \exp[-i(\Omega_1 + \xi_1 \Delta_3) \tau].$$

$P^{(III)}$ 对应于 $|1\rangle$ 布局栅有关的三脉冲受激光子回波情形.

在链(V)中

$$P^{(V)} = S_2(\mathbf{r}) \exp[-i(\omega_3 t + \omega_2 \tau)] \int_{-\infty}^{+\infty} d\mathbf{v} \mathbf{W}(\mathbf{v}) \exp[-i\theta_V(\mathbf{v})] \int_0^\infty dt_3 \int_0^\infty dt_2 \int_0^\infty dt_1 \\ \times \exp[-(\Gamma_{10} + i\Delta_3)t_3] \exp[-(\Gamma_{20} + i\Delta_2 + i\Delta_3)t_2] \exp[-(\Gamma_{10} + i\Delta_3)t_1] \\ \times \exp(-\alpha_2 |t_2 - \tau|). \quad (12)$$

在多普勒极限增宽 ($K_3 u \rightarrow \infty$) 情形下:

$$\int_{-\infty}^{+\infty} d\mathbf{v} \mathbf{W}(\mathbf{v}) \exp[-i\theta_v(\mathbf{v})] \approx \frac{2\sqrt{\pi}}{K_3 u} \delta(t_1 + t_2 + t_3 - \xi_2 t_2), \quad (13)$$

$$\text{在 } \tau > 0 \text{ 时, } \exp(-\alpha_2 |t_2 - \tau|) \approx \frac{2}{\alpha_2} \delta(t_2 - \tau), \quad (14)$$

宽带 $\tau > 0$, $\xi_2 > 1$ 时, 有

$$P^{(V)} \propto S_2(\mathbf{r}) \exp[-i(\omega_3 t + \omega_2 \tau)] (\xi_2 - 1) \tau \exp[-(\Gamma_{20}^a - \Gamma_{10} + i\Delta_2^a) \tau],$$

式中

$$S_2(\mathbf{r}) = -i\hbar N \left(\frac{\mu_1}{\hbar} \right)^2 \left(\frac{\mu_3}{\hbar} \right)^2 \epsilon_2(\epsilon_2')^* \epsilon_3 \exp[i(\mathbf{K}_2 - \mathbf{K}_2' + \mathbf{K}_3) \cdot \mathbf{r}],$$

$$\theta_v(\mathbf{v}) = \mathbf{v} \cdot [\mathbf{K}_2(t_2 + t_3)] - \mathbf{K}_2' t_3 + \mathbf{K}_3(t_1 + t_2 + t_3). \quad (15)$$

参考(5)式可对(12)式做如下解释,总的极化强度是不同时刻诱导的极化的累加.在 $t - t_1 - t_2 - t_3$ 时刻, A_3 产生的极化,在 t_1 间隔内,呈现频率 Δ_3 ,衰变率 Γ_{10} 的阻尼振荡,在 $t - t_1 - t_2 - t_3$ 时刻后,偶极子开始相互失相,在 $t - t_2 - t_3$ 时刻, A_2 的作用使极化强度在 t_2 间隔内以 $(\Delta_2 + \Delta_3)$ 频率衰变,且衰变率为 Γ_{20} . $t - t_3$ 时刻 A_2' 的作用使失相的极化矢量重新复相,产生了相干辐射,在 t_3 间隔内,极化强度的振荡频率为 Δ_3 ,衰变率为 Γ_{10} ,由(13), (14)式知光子回波发生在 $t_1 + t_2 + t_3 \approx \xi_2 t_2$ 和 $t_2 \approx \tau$ 的 t 时刻.可见, $P^{(V)}$ 对应于 $|0\rangle$ 与 $|2\rangle$ 间双光子相干的和频三能级光子回波情形.

则 $\langle P^{(3)} \rangle = P^{(I)} + P^{(III)} + P^{(V)}$,

$$I(\tau) \propto |\langle P^{(3)} \rangle|^2 \propto \exp(-2\Gamma_{10}^a \tau) \left(\frac{1}{\Gamma_0} + \frac{1}{\Gamma_1} \right)^2 + |\eta|^2 \exp[-2(\Gamma_{20}^a - \Gamma_{10}) \tau]$$

$$\times [(\xi_2 - 1) \tau]^2 + \left(\frac{1}{\Gamma_0} + \frac{1}{\Gamma_1} \right) \exp[-(\Gamma_{20}^a + \Gamma_{10}^a - \Gamma_{10}) \tau] (\xi_2 - 1) \tau$$

$$\times \{ \eta \exp[-i(\Omega_2 - \Omega_1) \tau - i(\xi_2 - \xi_1) \Delta_3 \tau] + \eta^* \exp[i(\Omega_2 - \Omega_1) \tau + i(\xi_2 - \xi_1) \Delta_3 \tau] \}. \quad (16)$$

由上式可以看出 FWM 信号的调制频率为 $(\Omega_2 - \Omega_1) + (\xi_2 - \xi_1) \Delta_3$, 衰变率为 $\Gamma_{20}^a + \Gamma_{10}^a - \Gamma_{10}$. 我们通过完成 DFWM 或饱和吸收光谱实验使 ω_3 接近多普勒线型中央, 即 $\Delta_3 = 0$, 调制频率为 $(\Omega_2 - \Omega_1)$, 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 $\Gamma_{20}^a + \Gamma_{10}^a - \Gamma_{10}$, 能级差可达 $\pi(\Gamma_{20}^a + \Gamma_{10}^a - \Gamma_{10})$ 的精度, 可见宽带时也可消除多普勒增宽, 宽带 $\tau > 0$ 时情形与(8)式一致.

宽带 $\tau < 0$ 时, 由于 $\exp(-\alpha_1 |t_1 - \tau|) \approx \frac{2}{\alpha_1} \delta(t_1 - \tau) = 0$,

$$\exp(-\alpha_2 |t_2 - \tau|) \approx \frac{2}{\alpha_2} \delta(t_2 - \tau) = 0.$$

故 $\tau < 0$ 时, 不可能发生光子回波, 根据相位匹配条件, $\tau < 0$ 时, 要出现 FWM 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, FWM 信号的时间特性与上述窄带情形(7)式类似.

3 实验与结论

我们在以 3S 为基态, 3P 为中间态, 4D 为激发态的钠蒸气级联三能级系统中完成了

时延双频四波混频的拍频实验, 让脉宽为 5ns 的两台染料激光器的波长 589.6 nm, 568.2 nm 分别对应于 $3S_{1/2}$ 到 $3P_{1/2}$, $3P_{1/2}$ 到 $4D_{3/2}$ 的偶极跃迁, 得拍频信号调制周期 $T = \frac{2\pi}{|\omega_2 - \omega_1|} = 52.18\text{fs}$ (见图 3). 因此我们用纳秒脉宽激光器得到了飞秒量级的分辨率.

因此窄带和宽带的主要区别是前者调制频率为 $\omega_2 - \omega_1$, 后者为 $(\Omega_2 - \Omega_1)$, 窄带时, 单光子共振 DFWM 和双光子共振 NDFWM 分别对应于频域的饱和吸收光谱和双光子光谱学^[3,4], 然而与传统领域技术不同的是激光频率无须准确定标, 宽带时, 单光子共振 DFWM 和双光子共振 NDFWM 分别对应于时域的三脉冲受激光子回波与和频三能级光子回波, 但其时间分辨率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.

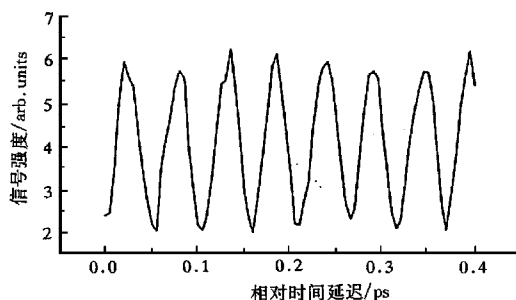


图 3 四波混频信号强度随时延变化的实验结果

- [1] N. Morita and T. Yajima, *Phys. Rev.*, **A30**(1984), 2525.
- [2] T. W. Mossberg, R. Kachru, S. R. Hartmann and A. M. Flusberg, *Phys. Rev.*, **A20**(1979), 1976.
- [3] P. M. Fu, X. Mi, Z. H. Yu, Q. Jiang, Y. P. Zhang and X. F. Li, *Phys. Rev.*, **A52**(1995), 4867.
- [4] Mi Xin, Yu Zuhe, Jiang Qian, Zhang Yanpeng, Li Xiaofeng, Fu Panming, Polarization beats, *Chin. Phys. Lett.*, **A12**(1995), 669.

STUDY OF THE PHOTON ECHO IN UMSCTS

ZHANG YAN-PENG ZHU JING-PING TANG TIAN-TONG

(Xi'an Jiaotong University, Xi'an 710049)

FU PAN-MING

(Institute of Physics Academia Sinica, Beijing 100080)

(Received 6 April 1998)

ABSTRACT

We have studied the photon echo in ultrafast modulation spectroscopy in a cascade three-level system (UMSCTS). When the pump beams have broadband linewidth, the one-photon and two-photon four-wave mixings are related to the three-pulse stimulated photon echo and sum-frequency three-level echo when $\tau > 0$, respectively; while the result should coincide with the case that the beams have narrow linewidth when $\tau < 0$.

PACC: 4265; 3290