

光子回波及其应用

陈天杰

(北京大学物理系)

五十年代人们在微波波段观察到了自旋回波^[1]。1960年相干光源——激光器的问世激发了人们在光频区探寻回波现象的积极性。1962年美国哥伦比亚大学辐射实验室 S. R. Hartmann 的研究小组正式提出了在光频区观察回波的具体设想。经过两年多的努力,该小组终于在1964年首先在晶体中观察到了光子回波^[2]。当时红宝石激光器是唯一可以选用的可见区强脉冲激光器,所以第一次观察到的是红宝石晶体中波长为 6943 \AA 的光子回波。这一实验直接显示了光学相干效应,所以受到了人们的关注。1968年 C. K. N. Patel^[3] 等人用 CO_2 激光在 SF_6 中观察到了光子回波。1976年 B. Bölger^[4] 等人在 Na 蒸气中观察到了光子回波。接着人们又观察到许多种不同类型的光子回波:受激光子回波、激发态光子回波、三能级光子回波、驻波型光子回波和双光子三能级光子回波等。光子回波技术还被用来测量物质激发态的弛豫常数、能级超精细分裂常数和晶体场的对称性等。1982年又有人提出用光子回波技术实现四维瞬态讯息存贮和读取的建议。

一、光子回波的观察

如图1所示,设有两个适当的光脉冲在 $t=0$ 和 $t=\tau$ 时刻射入样品 A,则在射出样品 A 的光束中,不但在 $t=0$ 和 $t=\tau$ 时刻可以看到两个光脉冲,而且在入射光脉冲消失后的 $t=2\tau$ 时刻,在出射光方向上还可以看到由样品 A 中爆发出来的第三个光脉冲。这个脉冲称为光子回波。

常用于观察光子回波的装置如图2所示。

物理

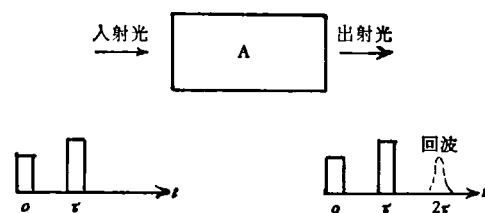


图 1

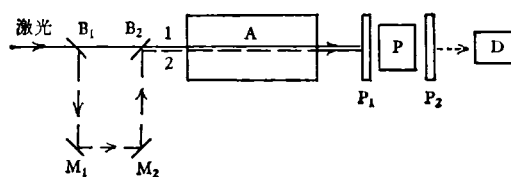


图 2

与样品某一跃迁发生共振的激光束自左方入射。该光束在 B_1 处被分成两束。光束 1 经 B_1 和 B_2 直接射入 A; 光束 2 经 B_1 , M_1 , M_2 和 B_2 , 被延迟时间 τ 后射入 A 中。自 A 出射的光束进入偏振器 P_1 和 P_2 及电光开关 P。当 $t \leq \tau$ 时,电光开关处于关闭状态,阻止脉冲 1 和 2 通过。在 $t > \tau$ 时,电光开关开通,光子回波通过并进入光电探测器 D。这样就可以在示波器上观察到回波讯号。

除了上述装置外,文献[5]中还报道了用斯塔克场调制法在分子气体中观察光子回波的装置。

二、光子回波的形成

光子回波的形成是一种位相重聚合过程。现在以气体原子中光子回波的形成为例来加以说明。

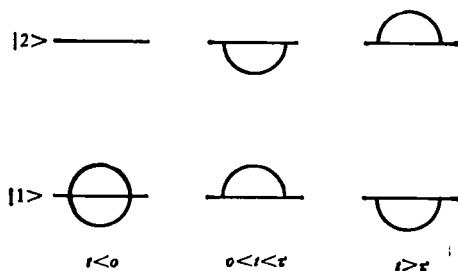


图 3

设有图 3 所示的一个二能级系统。在激发脉冲到来之前,系统处于基态 $|1\rangle$,其波函数为 $\psi_0 = |1\rangle$ 。

受第一个脉冲作用后,系统将处于 $|1\rangle$ 和 $|2\rangle$ 的相干叠加态。为便于讨论起见,设该脉冲的电场 E_1 满足

$$E_1 = \frac{\pi\hbar}{p_{12}\Delta_1},$$

其中 p_{12} 为电偶极矩阵元, Δ_1 为脉冲宽度。这种脉冲称为 $\pi/2$ 脉冲。由薛定谔方程的拉比解知,在 $\pi/2$ 脉冲作用后,原子所处的相干叠加态是

$$\psi_1 = \frac{\sqrt{2}}{2} [|1\rangle + ie^{ikz_1} |2\rangle].$$

如第二个脉冲是 π 脉冲,即电场 E_2 满足

$$E_2 = \frac{2\pi\hbar}{p_{12}\Delta_2},$$

则在它作用后,波函数将为

$$\psi_2 = \frac{\sqrt{2}}{2} [ie^{ikz_2} |2\rangle - e^{ikz_1 - ikz_2} |1\rangle].$$

在这一相干叠加态中,每个原子有微观偶极矩

$$\begin{aligned} \mathbf{p} &= \langle \psi_2 | e\mathbf{r} | \psi_2 \rangle \\ &= \frac{-i}{2} e^{ik(2z_2 - z_1)} \mathbf{p}_{12} + c.c. \end{aligned}$$

现在我们来考察空间某一点 z 处的宏观偶极矩。在 t 时刻处于 z 处原子,在 $t=0$ 和 $t=\tau$ 时刻的位置 z_1 和 z_2 分别为

$$\begin{aligned} z_1 &= z - v_z t; \\ z_2 &= z - v_z(t - \tau), \end{aligned}$$

其中 v_z 为原子沿 z 方向的速度。将上式代入

\mathbf{p} 中,得速度为 v_z 的原子的偶极矩 $\mathbf{p}(v_z)$:

$$\mathbf{p}(v_z) = \frac{-i}{2} e^{ik[z - v_z(t - \tau)]} \mathbf{p}_{12} + c.c..$$

宏观偶极矩 \mathbf{P} 应由 \mathbf{p} 对麦克斯韦速度分布求平均,即

$$\begin{aligned} \mathbf{P}(z, t) &= - \frac{iNM}{4\pi k_B T} \mathbf{p}_{12} e^{ikz} \\ &\cdot \int_{-\infty}^{\infty} \exp \left[- \frac{Mv^2}{2k_B T} - ikv_z(t - 2\tau) \right] dv_z \\ &+ c.c. = -i \sqrt{\frac{M}{8\pi k_B T}} \mathbf{p}_{12} \\ &\cdot \exp \left[ikz - \frac{k_B k^2 T (t - 2\tau)^2}{2M} \right], \end{aligned}$$

其中 k_B 是玻耳兹曼常数, N 为原子数密度, M 为原子质量, T 为绝对温度。上式表明:在 $t=2\tau$ 时刻,空间所有点上的宏观偶极矩同时达到极大值,并且沿 z 方向的辐射满足相位匹配条件。所以在 $t=2\tau$ 时,在 z 方向将形成一个强辐射脉冲,这就是光子回波。这个脉冲的宽度约为 $(2M/k_B k^2 T)^{1/2}$,在可见区它小于 1ns 。

从上述分析可以看到:光子回波的产生是由于样品受到两个激光脉冲作用后,原子的偶极矩位相在某一时刻重聚合(rephasing)的结果。从 ψ_1 和 ψ_2 的表示式中看到,原子波函数的位相项中包含有在激光脉冲作用时该原子位置的讯息,因而在每个原子的偶极矩 \mathbf{p} 中也包含有 $t=0$ 和 $t=\tau$ 时刻原子位置的讯息。在其后的 t 时刻,空间某一点 z 处的宏观偶极矩,由于具有不同速度 v_z 的原子有不同的 z_1 和 z_2 ,所以 \mathbf{p} 也就有随 v_z 而不同的位相因子。虽然每个原子都有微观偶极矩,但是对麦克斯韦速度分布求平均后,其宏观偶极矩 $\mathbf{P}=0$ 。只在特定时刻($t=2\tau$),由两脉冲引起的附加位相项互相抵消,原子微观偶极矩中就不再含有与 v_z 有关的项,亦即在每一点,各种速度的原子在该时刻的位相都相同。这种现象称为“位相重聚合”。该时刻微观偶极矩相干叠加而形成的将是一个巨大的宏观偶极矩,因而在 $t=2\tau$ 时刻,样品内会爆发出一个相干辐射讯号——光子回波。

三、几种不同类型的光子回波

除了上面介绍的双脉冲光子回波外,近年来还发展了许多类型光子回波.下面简要介绍三种典型的光子回波.

1. 受激光子回波^[6]

在 $t = 0$ 和 $t = \tau_1$ 时刻,两个 $\pi/2$ 脉冲射入样品.在 $t = \tau_1 + \tau_2$ 时刻,又有一个 $\pi/2$ 脉冲射入.在其后的 $t = 2\tau_1 + \tau_2$ 时刻,样品中将爆发出一个光子回波讯号,称为受激光子回波[图 4(a)].

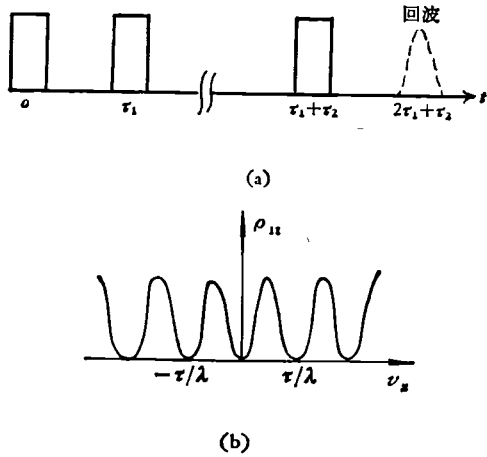


图 4

在两个 $\pi/2$ 脉冲作用后,二能级系统的波函数为

$$\begin{aligned} \phi_2 &= \frac{1}{2} (1 - e^{ik(\alpha_1 - \alpha_2)}) |1\rangle \\ &\quad + \frac{i}{2} (e^{ik\alpha_1} + e^{ik\alpha_2}) |2\rangle \\ &= \frac{1}{2} (1 - e^{-ikv_s\tau_1}) |1\rangle \\ &\quad + \frac{i}{2} e^{ik\alpha_1} (1 + e^{-ikv_s\tau_1}) |2\rangle. \end{aligned}$$

从波函数中第一项可求出系统在 $|1\rangle$ 上的布居数,它应正比于

$$\rho_{11} = \frac{1}{2} (1 - \cos kv_s\tau_1).$$

物理

这是在 ν_s 轴上以 τ_1/λ 为周期的函数[图 4(b)],显然其中含有脉冲 1 和 2 的间隔为 τ_1 的讯息.即不同的 τ_1 将形成周期不同的分布.正是这一讯息决定了回波与脉冲 3 的时间间隔.

在脉冲 3 作用后, ϕ_2 的第一项中与受激光子回波有关的项变成

$$\phi'_3 = \frac{\sqrt{2}}{4} [ie^{ik\alpha_3} |2\rangle - e^{ik(\alpha_1 - \alpha_2)} |1\rangle],$$

它将给出微观偶极矩

$$\begin{aligned} \mathbf{p} &= \frac{-i}{8} \mathbf{p}_{12} \exp\{ik[z - v_s(t - \tau_2 - 2\tau_1)]\} \\ &\quad + c.c.. \end{aligned}$$

不难看出,位相重聚合将在 $t = \tau_2 + 2\tau_1$ 时发生,因而在该时刻将有一个回波产生.这就是受激光子回波.

2. 三能级光子回波^[6]

设有图 5 所示的一个三能级系统.在 $t = 0$ 时刻,一频率为 ω_1 ,沿 z 方向传播的 $\pi/2$ 脉冲 1 射入样品.在 $t = \tau_1$ 和 $t = \tau_1 + \tau_2$ 时刻分别有一频率为 ω_2 ,沿 $(-z)$ 方向传播的 π 脉冲 0 和 3 射入样品.该三能级系统在三个脉冲作用后的波函数为

$$\begin{aligned} \phi_3 &= \frac{\sqrt{2}}{2} |1\rangle - \frac{\sqrt{2}}{2} \\ &\quad \cdot \exp[ik_1 z - iv_s(k_1 t - k_2 \tau_2)] |2\rangle, \end{aligned}$$

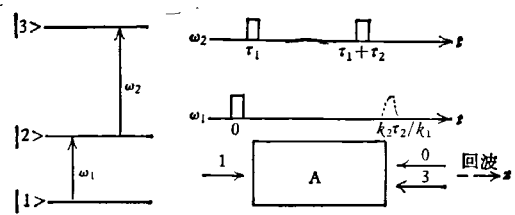


图 5

所以微观偶极矩 \mathbf{p} 为

$$\begin{aligned} \mathbf{p} &= \frac{-\mathbf{p}_{12}}{2} \exp[ik_1 z - iv_s(k_1 t - k_2 \tau_2)] \\ &\quad + c.c., \end{aligned}$$

位相重聚合将在时刻 $t = k_2 \tau_2 / k_1$ 发生.这时样品中将在 z 方向发出一频率为 ω_1 的回波讯

号。当然在此实验中, k_2 必须满足条件: $k_2 > k_1(\tau_2 + \tau_1)/\tau_2$ 。

这种回波形成过程中的 $t = \tau_1 \rightarrow t = \tau_1 + \tau_2$ 期间, 粒子处于 $|1\rangle$ 和 $|3\rangle$ 的相干叠加态。通常 $\tau_2 \gg \tau_1$, 所以, 可以用它来研究处于同宇称相干叠加激发态中原子的弛豫过程。

3. 双光子三能级光子回波^[7]

设有图 6 所示的三能级系统。 $|1\rangle$ 和 $|3\rangle$ 同宇称, 而 $|2\rangle$ 的宇称则与它们的相反。在 $t = 0$ 时刻, 有一频率为 ω_1 的 $\pi/2$ 脉冲入射。而在 $t = \tau$ 时刻, 则有一频率为 ω_2 的脉冲入射。 ω_2 满足: $2\hbar\omega_2 = E_3 - E_1$, 即与能级 $|3\rangle$ 双光子共振, 并且该脉冲有足够的强度, 使其对双光子跃迁是一个 π 脉冲。在两脉冲作用后, 系统的波函数为

$$\psi_2 = \frac{\sqrt{2}}{2} i e^{i k_1 x_1} |2\rangle + \frac{\sqrt{2}}{2} i e^{2i k_2 x_2} |3\rangle,$$

原子具有一个对应于 $|2\rangle \leftrightarrow |3\rangle$ 跃迁的偶极矩

$$p = \frac{-1}{2} p_{23} e^{i(2k_2 - k_1)x + i\nu_x[k_1 t - 2k_2(t - \tau)]}.$$

上式说明, 系统将在 $t = k_2\tau/(2k_2 - k_1)$ 时刻, 在 x 方向给出一个频率为 $2\omega_2 - \omega_1$ 的光子回波讯号。因为回波是在三能级系统中通过双光子吸收形成的, 所以称为双光子三能级光子回波。

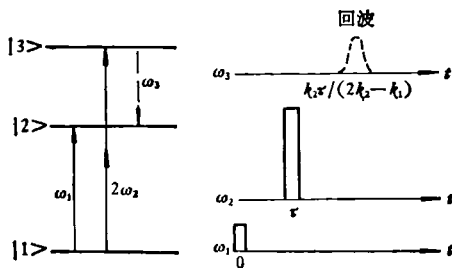


图 6

这种光子回波的特点是产生了一个与入射光频率不同的回波讯号。所以它是一个具有延

迟特性的差频发生过程。原子系统在 $t = \tau$ 到 $t = k_2\tau/(2k_2 - k_1)$ 期间, 处于 $|2\rangle$ 和 $|3\rangle$ 的相干叠加态。所以与前述三能级光子回波互补, 可以用它来研究粒子处于反宇称的相干叠加激发态时的弛豫过程。

上面介绍了四种光子回波。为了讨论方便, 分别假设了激发脉冲是 $\pi/2$ 脉冲和 π 脉冲。在实际工作中并不要求严格为 π 和 $\pi/2$ 脉冲。

四、光子回波的应用

光子回波已被用于各种物理参数的测量。

1. 原子激发态弛豫过程的研究

原子间碰撞截面的测量历来是光谱学的一个重要课题。常规光谱学中通常通过测量光谱线宽度来计算原子间的碰撞截面 σ , 但是这种测量受到自然线宽和多普勒宽度的限制。激光光谱中消多普勒双光子吸收等技术的出现, 大大提高了测量的精度, 但是仍然限于对处于某一能级原子弛豫过程的研究 (ρ_{ii} 的弛豫)。光子回波出现后不久, 就被用于原子间(特别是相干叠加态原子间)碰撞截面的测量, 并很快显示出其特有的优越性。

假设有 A 和 B 的混合气体, 若原子 A 的 $|i\rangle \rightarrow |j\rangle$ 跃迁光子回波的强度为 I_{ij} , 则 I_{ij} 与原子 B 的气压 P 有下述关系:

$$I_{ij} = I_{i j 0} e^{-\beta P} = I_{i j 0} e^{-N \bar{v} \sigma \tau},$$

其中 N 为 B 的原子数密度, \bar{v} 为 A 和 B 之间相对热平均速度, τ 为两激发脉冲间隔, σ 为处于相干叠加态的 A 原子和 B 原子间的碰撞截面。由 $\ln(I_{ij}/I_{i j 0}) \sim P$ 曲线的斜率可求出 σ 值。这种测量的优点有两点: 一是清除了多普勒效应和自然宽度的影响; 二是测量的是处于相干叠加态原子 (ρ_{ij}) 的弛豫。

用三能级光子回波技术测量了高相干激发态原子与惰性气体原子间的碰撞截面。文献[8]中报道了 Na 的 $|3S\rangle + |nD\rangle$ 态及 $|3S\rangle + |5S\rangle$ 态与惰性气体的碰撞截面的测量结果, 其中主量子数 n 已达 38。图 7 是 Na 和 Kr 碰撞截面测量

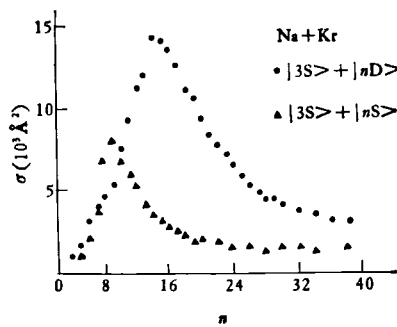


图 7

结果.图中显示出:在小 n 时, σ 随 n 增大而增大,达到极大值;在大 n 时, σ 随 n 增大而下降.这为研究气体原子间相互作用能函数的理论工作提供了重要的实验数据.文献[9]中还报道了 $\text{Li}(|2S\rangle + |2P\rangle)$ 和惰性气体碰撞截面的测量结果(图8).有趣的是 σ 随 τ 而异.在 τ 很小时, σ 的测量值与常规光谱测量结果一致.而当 τ 增大时, σ 随之上升,继而趋于一极限值.文献[10]对此结果作了初步的理论分析.

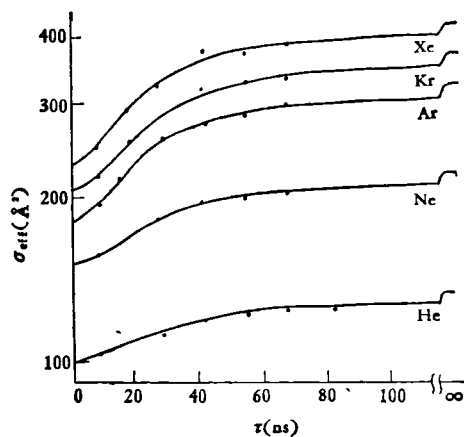


图 8

认为这是第一次在实验上清楚地揭示了小角度散射在碰撞过程中的作用.

2. 超精细分裂值的测量

当二能级系统中的能级包含多个超精细分量时,光子回波的电场将是各对超精细子能级间回波的相干叠加.因而在光子回波强度随 τ 变化的曲线上将出现调制.对这种调制作傅氏分析就可得到能级的超精细分裂值.图9是在

原子掺杂浓度为0.03%时, $\text{LaF}_3:\text{Pr}^{3+}$ 晶体中 $^3\text{H}_4 \rightarrow ^3\text{P}_0$ 跃迁的光子回波强度随 τ 变化的曲线^[11].由此得到能级的超精细分裂为0.73, 1.12, 8.48和16.68MHz.这类测量的特点是用线宽比分裂值大很多的激光束来测量很小的分裂值.

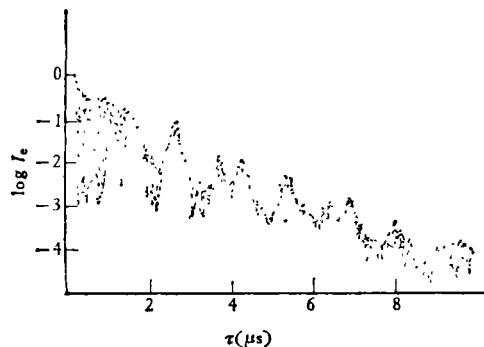


图 9 I_c 为光子回波强度

3. 四维瞬态信息的存贮和读取

受激光子回波的形成,可以看作是时间轴上展开了的四波混频过程.当脉冲1和3是波阵面为均匀平面波的窄脉冲,而脉冲2是有一定时间宽度和振幅、位相分布的脉冲(图10),即 E_2 为

$$E_2 = E_{20}(x, y, t - \tau_1)e^{i\varphi(x, y, t - \tau_1)},$$

则光子回波的电场 E_c 将为

$$E_c \propto E_{20}(x, y, t - 2\tau_1 - \tau_2)e^{i\varphi(x, y, t - 2\tau_1 - \tau_2)},$$

即是 E_2 在 $2\tau_1 + \tau_2$ 时的再现.这是一种四维(三维波前加时间演化过程)信息的存贮和读取过程.和全息术类比, E_2 是讯号波, E_1 是参考波.在这两脉冲过后,讯息 E_2 被贮存在介质中. E_3 为读取脉冲,用 E_3 就可将 E_2 脉冲在 $2\tau_1 + \tau_2$ 时再现.这种方法可以用来贮存瞬态

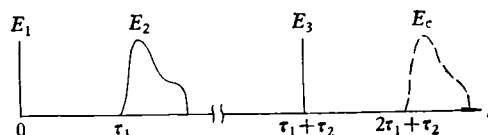


图 10

(下转第70页)