

瑞利型非简并四波混频 :一种研究超快过程的新方法 *

傅盘铭 俞祖和 米辛 姜谦

(中国科学院物理研究所光物理实验室 北京 100080)

摘要 文章提出了用瑞利型非简并四波混频来研究物质的超快过程. 与传统的时间领域技术不同, 瑞利型非简并四波混频是一种频率领域的光谱学方法, 它的时间分辨率与激光的脉冲宽度无关.

关键词 超快过程, 四波混频

RAYLEIGH – TYPE NONDEGENERATE FOUR-WAVE MIXING : A NEW METHOD FOR ULTRAFAST MEASUREMENT

FU Pan-Ming YU Zu-He MI Xin JIANG Qian

(Laboratory of Optical Physics, Institute of Physics & Center for Condensed Matter Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100080, China)

Abstract Rayleigh-type nondegenerate four-wave mixing is proposed for studying ultrafast processes in matter. In contrast to the conventional time-domain technique, Rayleigh-type nondegenerate four-wave mixing is a frequency-domain technique, therefore the time resolution is independent of the incident laser pulse width.

Key words ultrafast process, four-wave mixing

近年来, 激光领域中一个引人注目的成就是飞秒激光技术的发展, 它为人们研究自然界的各种超快动力学过程提供了强大的工具. 比如, 飞秒激光技术可以用来研究半导体量子阱的非平衡热电子弛豫^[1], 研究化学反应中的超快动力学过程^[2], 研究分子液体中分子的弛豫以及它们之间的相互作用^[3].

用飞秒脉冲研究材料的超快弛豫过程的方法基本上可以分为两大类^[4]: 研究物质的失相弛豫主要采用自由感生衰变、光子回波等相干瞬态光谱学技术, 而研究物质的布居弛豫则主要采用抽运-探测、瞬态栅等技术. 这些方法的共同点是时间分辨率主要取决于激光的脉冲宽度.

现以瞬态栅为例. 首先, 在 $t = 0$ 时刻, 我们用来自同一光源的两束飞秒脉冲与介质作用, 它们在介质中干涉并感生出瞬态栅. 脉冲过后, 物质自身的弛豫将使栅发生衰变. 在 $t = \tau$ 时刻, 我们用另一束光去探测栅的变化. 通过测量衍射信号强度随延迟时间 τ 的关系, 就可以得到物质的弛豫时间. 很显然, 这种方法的时间分辨率取决于激光的脉冲宽度. 如果弛豫时间为 10fs, 则激光脉宽必须远小于 10fs.

我们首次在国际上提出用瑞利型非简并四波混

频来研究物质的超快过程^[5]. 与传统的时间领域技术不同, 瑞利型非简并四波混频是一种频率领域的光谱学方法. 它是建立在运动栅的基础上. 我们用频率分别为 ω_1 和 ω_3 的两束光与介质作用, 它们在介质中感生出运动栅. 栅的运动速度为 $|\omega_1 - \omega_3|$. 如果栅的弛豫时间 T_1 大于运动栅移动一个空间周期所需的时间 ($2\pi/|\omega_1 - \omega_3|$), 则新建的栅将与旧栅相干叠加在一起, 使得光栅被抹平, 因此, 看不到衍射信号. 反之, 如果 T_1 小于 $2\pi/|\omega_1 - \omega_3|$, 则当新栅建立时旧栅已经消失, 因此, 存在衍射信号. 即产生衍射信号的条件是 $|\omega_1 - \omega_3| < 2\pi/T_1$. 利用这方法, 我们只要通过改变激光的频率来改变运动栅的速度, 然后测量衍射信号强度与 $|\omega_1 - \omega_3|$ 的关系, 就可以得到介质的弛豫时间 T_1 . 换句话说, 由于运动栅的引入, 使得一个原本是时间领域的问题变为频率领域的问题. 因此, 用它来研究超快过程, 其时间分辨率与激光的脉冲宽度无关.

* 国家自然科学基金(批准号: 19874080, 10174096)资助项目
2002-05-21 收到初稿 2002-07-12 修回

图 1 为瑞利型非简并四波混频的实验装置。我们用 YAG 激光的二倍频输出抽运两台染料激光器。第一台染料激光器的波长为 585nm, 脉冲宽度为 5ns。它通过分束片分为光束 1 和 2 后照射到样品上。两束光的夹角为 1.3°。光束 3 来源于第 2 台染料激光器。它的波长可以通过计算机控制的步进马达来调频。第 3 束光沿着第 1 束光的反向前进, 产生的四波混频信号基本上沿着第 2 束光的反向前进。它的频率与光束 3 相同。在我们的实验配置下, 第 2 和 3 两束频率不同的光在介质中建立起运动栅, 而第 1 束光为探测光, 产生的衍射信号则为四波混频信号。实验中我们测量四波混频信号强度与光束 3 的波长的关系。这里必须指出, 第 1 和 2 两束频率相同的光也将在介质中感生出静态栅, 由它产生的混频信号将与运动栅产生的混频信号相干叠加在一起。由于静态栅产生的混频信号与光束 3 的波长无关, 因此它将形成非共振背底。

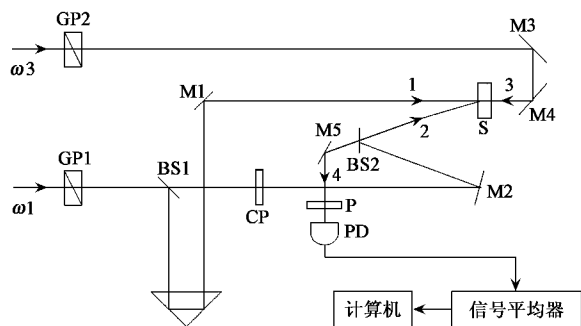


图 1 实验装置

(BS1, BS2 为分束片, M1—M5 为反射镜, GP1, GP2 为格兰棱镜; CP 为补偿器, P 为偏振片, S 为样品)

我们的样品为 CS₂, 它置于厚度为 2mm 的样品盒里。图 2 为瑞利型非简并四波混频信号强度与光束 3 的波长的关系。首先, 四波混频频谱包括一个对称的共振信号叠加在一个非共振背底上。如前所述, 共振信号来源于 2, 3 两束光在介质中发生干涉而形成的运动栅, 而非共振背底来源于由 1, 2 两束光产生的静态栅。这两个栅产生的四波混频信号相干叠加在一起, 使得共振信号比非共振背底大 3 倍。进一步的分析表明, 四波混频频谱可以分解为两个洛伦兹线型的和。它们对应的弛豫时间分别为 1.7ps 和 220fs。这里, 慢弛豫过程和快弛豫过程分别对应于 CS₂ 分子液体中弛豫过程的德拜分量和相互作用感生分量。由于激光器的脉冲宽度为 5ns, 而测到的弛豫时间为 1.7ps 和 220fs, 因此我们的实验结果证实了用瑞利型非简并四波混频来研究超快过程, 其时

间分辨率与激光的脉冲宽度无关。

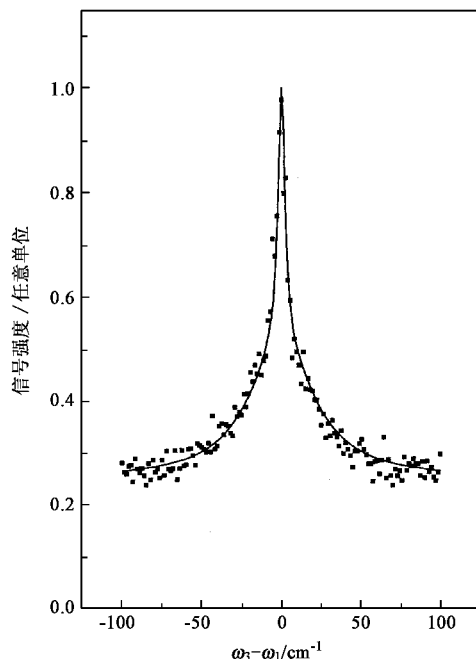


图 2 瑞利型非简并四波混频的频谱
(实验样品为 CS₂, 图中的实线为理论曲线)

作为一种频率领域的非线性激光光谱学方法, 瑞利型非简并四波混频中一个最重要的问题是它的频率带宽。也就是它能容许在多大的范围内改变入射光的频率, 而不会因相位失配影响混频信号的强度。由于瑞利型非简并四波混频是通过测量混频信号强度与频率的关系来研究弛豫过程, 因此频率带宽直接影响到所能测到的最短的弛豫时间。频率带宽与介质的折射率 n , 第 1, 2 两束光的夹角 θ 以及样品的厚度 L 有关。在我们的实验条件下 ($n \approx 1.5$, $\theta \approx 2.27 \times 10^{-2}$ rad, $L = 2$ mm), 频率带宽为 3600cm^{-1} 。这相当于能测到 12fs 左右的弛豫时间。我们还可以通过减小 1, 2 两束光的夹角和样品的厚度来进一步增大频率带宽。因此, 用瑞利型非简并四波混频研究超快过程, 原则上能测到小于 10fs 的弛豫时间。虽然目前的飞秒激光技术已经能得到 3fs 左右的激光脉冲, 但由于用传统的时间领域光谱学方法研究超快过程, 激光脉宽必须远小于介质的弛豫时间, 因此用传统方法来测量小于 10fs 的弛豫时间还存在许多困难。

瑞利型非简并四波混频具有以下一些优点。首先, 利用场关联原理, 可以消除四波混频频谱中的热背底。我们知道, 在具有热吸收的介质中, 由于热栅的形成是非常有效的, 因此由它产生的四波混频将

