

文章编号 : 0258-7025(2001)02-0141-05

# 量子波包干涉仪的实验技术研究<sup>\*</sup>

陈 磊 罗 莉 戴德昌 罗 琦 丘志仁 周建英

(中山大学超快速激光光谱学国家重点实验室 广州 510275)

**提要** 利用双通道飞秒相关测量技术研究了稀土材料中的量子波包干涉现象。测得稀土粉末样品  $Y_2O_3:Eu^{3+}$  中  $Eu^{3+}$  离子常温下的退相时间大于 3 ps, 并观测到  $Eu^{3+}$  离子自由感应衰减(FID)过程的量子波包干涉现象。分析和讨论了实验中的系统误差来源及其消除方法, 并介绍了相应的实验技术改进措施。

**关键词** 飞秒 波包干涉仪 稀土 退相 自由感应衰减

中图分类号 : TH 744.3 ; O 436.1 文献标识码 : A

## Experimental Techniques for Quantum Wavepacket Interferometer

CHEN Lei LUO Li DAI De-chang LUO Qi QIU Zhi-ren ZHOU Jian-ying

(State Key Laboratory of Ultrafast Laser Spectroscopy, Zhongshan University, Guangzhou 510275)

**Abstract** The quantum wavepacket interference in rare earth ions is observed with dual-channel correlation spectroscopic technique using a femtosecond laser. The measured dephasing time of  $Eu^{3+}$  ions in  $Y_2O_3:Eu^{3+}$  at room temperature is longer than 3 picoseconds, and the quantum wavepacket interference is recorded in the free-induction decay process of  $Eu^{3+}$  ions. Some systematic errors in the experiments are discussed and the solutions are suggested. Experimental skills are reported.

**Key words** femtosecond, wavepacket interferometer, rare earth, dephasing, free-induction decay

## 1 引 言

近年来,飞秒光谱技术的发展为研究瞬态量子波包干涉现象提供了强有力的研究手段<sup>[1,2]</sup>。飞秒激光由于脉宽较窄,频谱较宽,使得它可以同时激发原子、分子以及固体样品中的多个量子态,相干激发的各量子态间相互叠加形成波包(Wavepacket)。波包的时间演化过程包含了丰富的信息:如电子波包反映了电子叠加态的演化与退相过程<sup>[2]</sup>,由此可以推断出其中电子-声子耦合与碰撞过程,振动态波包反映原子核的相干振动特性等等<sup>[3]</sup>。了解波包动力学过程对加深认识超短脉冲激光与物质的相互作用有重要意义。

在实验技术上,监测这种量子波包的时间演化过程通常使用基于飞秒“脉冲对”技术的“量子波包干涉仪”。在飞秒激光脉冲的驱动下,所有原子的初

始运动同步,脉冲对中不同脉冲产生的波包相互干涉,从而影响到能级的粒子数布居。样品的荧光和光电流的变化反映了这些能级布居数的变化,通过探测荧光或光电流的信号随脉冲对延时的变化就可以记录整个波包动力学过程。这种实验技术要求高精度的干涉仪和实验条件,必须能精确锁定两脉冲之间的相位差,同时避免某些随机因素对记录相位差的影响。

使用本实验室建立的量子波包干涉仪装置,用监测光电流的方法对半导体材料 GaAs 中的波包动力学过程进行了深入研究<sup>[3,4]</sup>。在此基础上,利用监测荧光的方法对掺杂到不导电的固体材料中的稀土离子的波包动力学进行了广泛的研究<sup>[5]</sup>。这一技术发展使得可研究的物质体系大为增加,由单纯的半导体类推广到有荧光产生的体系,使得研究发强荧光的稀土离子体系的波包动力学过程成为可能。文献[5]简要报道了这一技术的原理和应用。本文以稀土  $Eu^{3+}$  离子的波包动力学实验为基础,对  $Eu^{3+}$  离子在常温下的自由感应衰减(FID)过程和相位动力学进行了描述和分析,对实验过程中的主要技术问题和误差来源进行了分析和讨论,并提出了合适

<sup>\*</sup> 国家自然科学基金(编号:19974078)攀登计划预研项目“强场物理与超快过程”、国家教委博士点基金及广东省自然科学基金资助项目。

的处理方法。

## 2 实验装置和方法

双通道量子波包干涉仪实验装置采取图 1 所示的 Michelson 干涉仪的布局。激光光源为美国 Spectra-Physics 公司的掺钛蓝宝石飞秒激光系统, 频率调谐范围为 720870 nm, 输出的飞秒脉冲在 800 nm 处的脉宽约为 50 fs, 锁模输出平均功率约为 800 mW, 经 LBO 倍频后的紫外激光平均功率约为 80 mW。

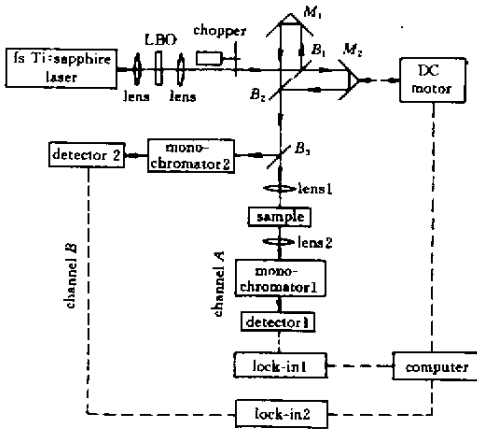


图 1 量子波包干涉仪的实验光路示意图

Fig. 1 Schematic experimental setup for quantum wavepacket interferometer

在信号测量部分中, 通道 A 为一共线抽运-探测光束, 通过一透镜聚焦到样品上, 荧光由一组透镜收集后经滤色片再聚焦送入一单色仪, 用光电倍增管检测特定发射波长的荧光。通过调节 Michelson 干涉仪的延时线, 就可以控制脉冲对的相位差, 进而影响相干叠加态波函数的振幅与相位, 记录的实验结果反映了所测量跃迁能级的自由感应衰减过程。参考信号通道 B 是由通道 A 的光束分出的一小部分, 用于记录激光脉冲的自相关过程。两个通道的信号分别输入两台锁相放大器, 结果由计算机同时记录, 通过两个通道干涉信号最大值间的差分, 可以得到样品的相位差分光谱, 而拟合样品 FID 信号中的极值轮廓线可以给出样品的退相时间。

实验样品为稀土粉末样品  $Y_2O_3:Eu^{3+}$ , 激发波长选在 390420 nm 范围, 它对应于  $Eu^{3+}$  离子  ${}^7F_0 \rightarrow {}^5L_6, {}^5D_3$  吸收跃迁, 监测的荧光波长选在 612 nm, 对应于  $Eu^{3+}$  离子的  ${}^5D_0 \rightarrow {}^7F_2$  跃迁的特征发射。

## 3 实验结果和讨论

为了同时测得相干叠加态的相位信息, 采用了双通道技术。由于马达的速度不够均匀, 飞秒激光脉冲的中心频率与位相角的漂移、环境的振动、空气的扰动等等因素都会使脉宽内本应以单一频率振荡的条纹间距参差不齐, 通过采用双通道技术, 将自相关函数的干涉条纹与 FID 信号条纹同步记录, 所有延时线马达和实验环境引起的误差也同步记录下来。如此得到的相位差分光谱消除了实验系统误差, 并可获得自由感应衰减信号的瞬时相移。

实验中测得的典型结果如图 2 所示。(a) 为记录的样品中  $Eu^{3+}$  离子的 FID 信号, (b) 为参考信号 (c) 为它们的相位差分光谱。

### 3.1 $Eu^{3+}$ 的 FID 过程和相位动力学

常温下  $Eu^{3+}$  离子的退相时间比较长, 这是由于  $Eu^{3+}$  离子内层 4f 电子受到外层 5s5p 电子层的强烈屏蔽, 受晶格振动影响很小, 使得内层 4f 电子具有类原子的线状光谱, 其退相时间也比较长<sup>[6]</sup>。由图 2(a) 可见, 经过 2 ps 后,  $Eu^{3+}$  离子的 FID 信号的振幅衰减很小, 通过延长延时线的移动距离可以记录到样品的退相全过程。经实验测定, 室温下  $Eu^{3+}$  离子在  $Y_2O_3$  中的退相时间长于 3 ps。

如图 2(a) 所示,  $Eu^{3+}$  的 FID 过程中出现一系列波包, 这是由于直接激发的  $Eu^{3+}$  离子的 ( ${}^5L_6, {}^5D_3$ ) 能级有多个 J 分理裂, 由于飞秒脉冲频谱较宽 (半宽 > 10 nm), 能同时激发多个能级, 不同的能级由不同的电子波函数描述, 起始时由于激光的驱动, 不同的电子波函数其位相与激光场完全一致, 但由于各个能级和激光脉冲中不同的频率作用而使其振幅互不相同, 激光场作用过后, 各个能级按照自己的特性分别演化, 测得的波函数叠加后的结果, 便是在某些时刻, 相位比较一致时, 振幅叠加增强, 宏观上出现波峰, 而另一些时刻, 其位相差较大, 振幅发生相消, 出现宏观波谷。由于每个波函数都有固定的振动频率, 叠加后的结果也表现出一定的周期性, 由图 2(a) 明显可见。这种丰富的电子波包现象, 不同于单电子能级和双电子能级的情况<sup>[3]</sup>。过去的文献中, 从未见到过稀土离子在飞秒时间尺度的电子波包报道。

图 2(c) 所示为  $Eu^{3+}$  的相位光谱。开始时, 相位差为零, 与激光场同步, 随后, 相位自由衰减, 与驱动激光场渐渐偏离, 到 900 fs 时达到一个  $\pi$ 。相位谱为一直线, 说明偏离过程为线性过程, 这是电子波包

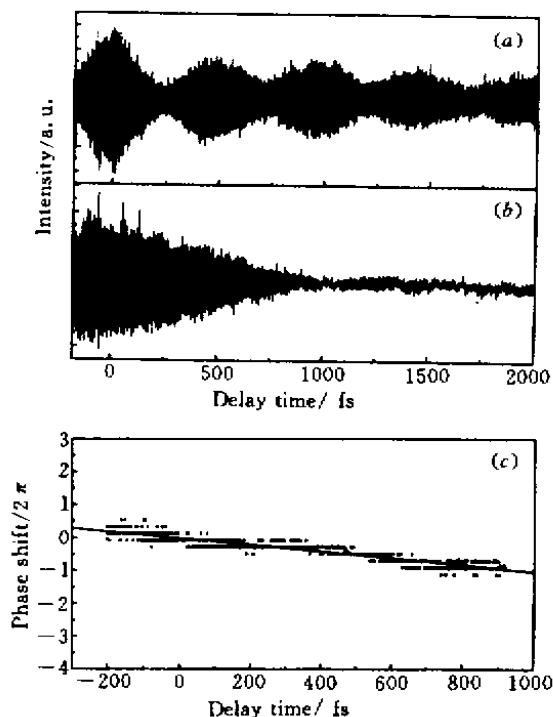


图 2  $Y_2O_3$  中  $Eu^{3+}$  离子自由感应衰减及其相位差分光谱

激发波长为 405 nm 监测的荧光波长为 612 nm

(a) 自由感应衰减信号 (b) 参考自相关信号;

(c) 相位差分光谱

Fig.2 FID and phase differential spectrum of  $Eu^{3+}$  ions doped in  $Y_2O_3$

The excitation wavelength is 405 nm and the fluorescence wavelength is 612 nm. (a) FID signal of  $Eu^{3+}$  ion; (b) reference signal; (c) phase differential spectrum

的本质特性<sup>[3,4]</sup>。由于激光脉冲主频和各电子能级并不严格共振,会产生一定的失谐,表现出来就是直线斜率为某一正值或负值<sup>[3,4]</sup>。对于单电子能级的情况,从直线斜率可以算出该失谐量,但是在多电子能级系中,各个电子能级都产生失谐,实验得到的是总的失谐的叠加,具体计算出每个电子能级的失谐量在理论上有较大困难。 $Eu^{3+}$ 离子( $^5L_6$ ,  $^5D_3$ )的电子能级最多可能分裂为 $[(2 \times 3 + 1) + (2 \times 6 + 1)] = 20$ 个电子能级,因此每个子能级的失谐量很难定量得出。对于单电子能级和双电子能级的情况,已找到合适的理论模型,并对实验结果给出了定量解释<sup>[3,4]</sup>。

### 3.2 参考信号时间长度的改进

图 2(b)记录到的自相关信号长度约为 1 ps,所以得到的相位差分光谱的长度也只能是 1 ps(见图 2

(c))。为了能得到足够长时间的相位差分光谱,记录到的自相关时间也要足够长,而飞秒脉冲的自相关时间是由其时间宽度决定的,本实验使用的飞秒激光输出的自相关时间不超过 200 fs,在测定低温下 GaAs 激子峰的较短退相过程中是足够的<sup>[3]</sup>。但是,稀土离子的退相时间一般比较长,通常超过一个皮秒,为此我们选择在参考通道中的探头前加一个单色仪,单色仪的输出波长选在激光脉冲频谱的中心波长位置,并且入射和出射狭缝都调到 50  $\mu m$  宽,这样脉冲频谱成分中只有中心频率附近极窄的部分才可以通过单色仪进入到探测器中,这相当于从飞秒脉冲的较宽频谱中选一个窄频出来。根据量子力学的测不准原理,飞秒脉冲中选出的窄频部分的时间宽度会相应变长,亦即相干时间变长,于是得到的自相关时间大大长于飞秒输出的自相关时间,并且在一定范围内还可以由单色仪的狭缝大小调节其自相关时间长度,其干涉条纹的振荡频率仍为激光的中心频率。理论上,由于单色仪所用的光栅的刻线为 1200 线/mm,入射和出射狭缝都调到 50  $\mu m$  处,估算一级光谱分辨率为  $1.00 \text{ cm}^{-1}$ ,展宽后的脉冲时间宽度约为皮秒量级,而实际上用此方法,我们得到大于 2 ps 的自相关时间。这已经能满足大多数情况下的实验需要,图 2(b)中所示自相关信号即是用此方法得到的。

### 3.3 延时线的移动精度与光束时空重合的影响

延时线每移动 0.1  $\mu m$  对应的时间为 0.33 fs,对于中心波长为 405 nm 的飞秒激光脉冲,自相关过程中延时线每移动一个波长,即自相关的一个周期,对应的时间是 1.35 fs,在这种移动精度下,一个周期只能记录到 5 个点,这会使后续的数据处理的准确度大大降低,以致得不到准确的结果。可见要准确测量和精确记录每个振荡周期就要求延时线和记录软件的精确度都至少在 0.05  $\mu m$ /点。为此,我们使用移动精度在 0.01  $\mu m$  的延时线,并修改相应的记录程序使之记录到  $\geq 100$  点/ $\mu m$ ,得到较好的实验结果。

实验中的时间重合不精确会给实验结果带来很大的误差,其中 Michelson 干涉仪的延时线的振动是主要原因。初期同步电机与延时线之间用一条有齿的皮带连接,而皮带与齿轮的不完全吻合会使信号发生跳动,使记录到的条纹间距参差不齐。现在我们用弹性较好的橡皮带连接,基本上消除了这种移动误差。但外界环境引起延时线振动而带来的误差则只能利用相位差分光谱的办法消除。

两束光在空间上的严格重合对获得满意的实验结果也十分重要。因为实验本身要求两束光与同一簇原子作用,如果两束光重合不够好,则共同作用的原子数很少,致使得到的实验结果不够清晰,甚至会得不到正确的实验结果。图3为实际测量中采用的光路图,它等效于光路示意图1。由分光片 $A_4$ 分出的一小部分光 $1b$ 、 $2b$ 经反射镜 $A_5$ 反射进入单色仪作为参考信号,而 $1a$ 、 $2a$ 是具有不同延时时间的飞秒激光脉冲对,用于激发样品发荧光。如果 $1a$ 、 $2a$ 经 $A_4$ 后重合得比较好,则在时间零点处,两束光的光斑干涉条纹宽大而稀疏;当重合不好时,干涉光斑上条纹为细而密的曲线或直线,此时测得的自相关信号和FID信号的振幅都较小,给实验结果带来较大误差。另外,光束 $1a$ 、 $2a$ 重合时,由于 $1a$ 比 $2a$ 多经历了两次反射,致使本应强度相同的两束光光强之比约为1:2,这就给荧光信号带来一个本底,使振幅减小,同样会给实验带来误差。

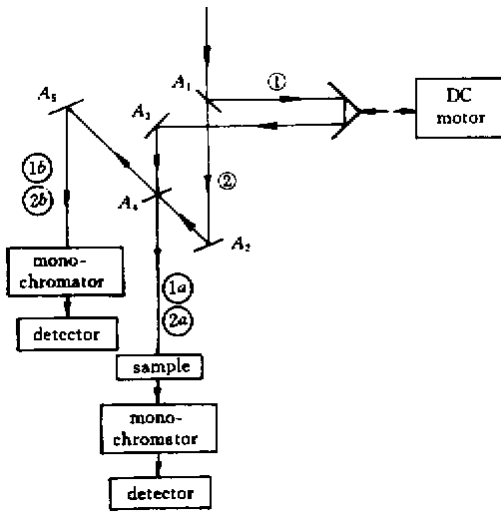


图3 测量中使用的实际光路图  
Fig.3 Detailed experimental arrangement

### 3.4 系统半波损失误差与飞秒脉冲中心波长的选定

除了光束时空重合的影响外,激光器输出激光中心频率的漂移也给实验结果带来误差。如图4所示,(a)前半部分( $x_0$ 位置之前)为自由感应衰减信号,后半部分为停止延时线移动后的荧光信号,它本应是一条直线,但由于机械振动、空气扰动、激光器的输出不稳定而造成很大的漂移。(b)前半部分( $x_0$ 位置之前)为参考信号,后半部分为停止延时线移动后的信号曲线,如果没有外界干扰,它也应是一条直线。(c)和(d)分别是(a)和(b)在 $x_0$ 位置附近放

大的结果,其后半部分不规则的曲线同样是停止延时线移动后外界干扰造成的影响。比较(c)和(d)可以发现,荧光信号条纹与自相关干涉条纹在脉冲重叠时间内总是存在 $\pi$ 的相位差,说明荧光信号与自相关信号是正好反相的。这是由“半波损失”造成的影响。众所周知,光由光疏质进入光密质发生反射时会发生相位突变现象,产生半波损失。光束每经过一次反射,就会有一个 $\pi$ 的相移,而光透过镜片时无半波损失。在图3所示的实际测量光路图中,参考光束所取的是从镜片 $A_4$ 后透出的没有用于激发样品的那束光,据此分析,可知光束 $1a$ 、 $2a$ 、 $2b$ 各经历偶数次半波损失,而光束 $1b$ 经历奇数次半波损失。这样就使两个通道的自相关信号间产生固定相位差 $\pi$ ,给相位光谱增加 $\pi$ 的相移,这可在数据处理中计算相位差时系统扣除,从而消除了半波损失的影响。

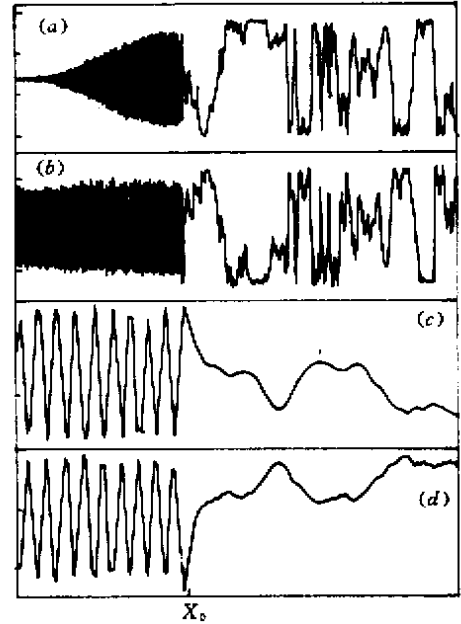


图4 波包干涉仪记录的位相漂移  
Fig.4 Recorded interferogram phase shift

在实验中还发现,如果单色仪监测波长与激光脉冲中心波长有微小偏离,两个通道的干涉条纹周期不会严格等同,而是产生一定的相位差,并且在延时到一定时间长度时,这种相位差会累积到一定的数值,给相位差分光谱带来明显误差,而这种误差很难系统扣除,从而严重影响实验结果的准确性。所以,参考信号通道中单色仪的波长应准确指示到激光脉冲的中心波长处。但是在实际操作中,确定激光脉冲的中心波长的方法如果只是在调节单色仪时观察锁相放大器读数到最大值,往往不能准确指示

中心波长,导致发生上面所述的情况。这时如再辅以观察相位差的方法,就可以严格地确定激光脉冲的中心波长。具体操作是:先通过调节单色仪的波长指示使锁相放大器的读数最大,再同时记录两个通道的自相关信号,其中通道 A 的光束要直接进入探测器中,然后观察记录到的数据。根据上一段的论述,如果波长指示正确,两通道的信号相位差为  $\pi$ ,正好反相,即干涉条纹的波峰正对波谷;否则,相位差不是  $\pi$ ,需根据偏移方向微调单色仪波长指示,最后记录结果加以确证。

## 4 结 论

使用本实验室建立的量子波包干涉仪,记录了常温下  $Y_2O_3$  中  $Eu^{3+}$  离子的 FID 过程,得到其退相时间大于 3 ps,并以其为例,分析和讨论了实验技术中一些改进措施和某些误差的来源及其消除方法,

如延长参考信号的时间长度,确定脉冲的中心波长,时空重合和延时线移动精度对数据的影响,以及半波损失等问题。

## 参 考 文 献

- 1 T. C. Weinacht, J. Ahn, P. H. Bucksbaum. Controlling the shape of a quantum wavefunction. *Nature*, 1999, **397** 233235
- 2 S. Mukamel. Principles of Nonlinear Optical Spectroscopy. New York: Oxford University Press, 1995. 345367
- 3 X. Y. Yu, Q. Luo, W. L. Li *et al.*. Ultrafast phase dynamics of coherent carriers in GaAs. *Appl. Phys. Lett.*, 1998, **73**(23) 33213323
- 4 Q. Luo, X. Y. Yu, J. Y. Zhou *et al.*. Time-resolved free-induction decay in semiconductors. *Appl. Phys. B*, 2000, **70**(1) 5356
- 5 Q. Luo, D. C. Dai, X. Y. Yu *et al.*. Fluorescence-detected ultrafast free-induction decay in powdered rare earth solids. *Chin. Phys. Lett.*, 2000, **17**(2):101103
- 6 M. D. Levenson. Introduction to Nonlinear Laser Spectroscopy. New York: Academic Press, 1982. Chap. 1