

文章编号: 0529-6579 (1999) 02-0024-04

飞秒相干瞬态过程的 Bloch 方程描述^{*}

余向阳, 周建英

(中山大学超快速激光光谱学国家重点实验室, 广东 广州 510275)

摘 要: 用 Laplace 变换法求解了光学 Bloch 方程的解析解, 计算了飞秒尺度的自由感应衰减的振幅谱和相位谱.

关键词: 相干瞬态过程; Bloch 方程; 相位谱

中图分类号: O 432.12 **文献标识码:** A

光学相干瞬态过程, 是指用激光脉冲作用于介质的持续时间远小于介质的弛豫时间. 介质对光场的响应, 与介质对这一考查时刻之前对入射光场(振幅和相位)的“记忆”有关. 要完全确定激光诱导的介质极化场, 需同时确定其振幅和相位. 虽然纳秒和皮秒量级弛豫时间的相干瞬态过程已被广泛研究^[1], 但在光频段, 极化场的振荡周期为几个飞秒, 所以, 尽管飞秒量级和纳、皮秒量级的极化场信号的振幅在特性上并无明显区别, 但只有在飞秒尺度下才能确定其相位特性. 飞秒技术的发展, 使我们能够测量具有亚飞秒量级弛豫时间的介质的光学相干瞬态过程^[2]. 相干瞬态光学的分析方法基于光学 Bloch 方程, 本文用 Laplace 变换法求解光学 Bloch 方程, 计算了均匀介质中自由感应衰减信号和相位光谱.

1 Bloch 方程的 Laplace 解法

二能级体系的光学 Bloch 方程^[3]为

$$\dot{u} = -\beta u - \Delta v, \quad \dot{v} = -\beta v + \Delta u + \Omega w, \quad \dot{w} = -\alpha w + \alpha w_{\text{eq}} - \Omega v \quad (1)$$

式中, u, v, w 为布洛赫矢量分量; w_{eq} 为体系处于热平衡时 w 分量的稳定值; $\Delta = \omega_0 - \omega$, 为失谐量; ω_0 和 ω 分别为能级跃迁频率和入射光频率; $\Omega = \mu E(t)/\hbar$, 为 Rabi 频率, μ 为跃迁矩阵元, $E(t)$ 为电场振幅, $\hbar$ 为 Planck 常数; $\alpha = 1/T_1$, $\beta = 1/T_2$. T_1, T_2 分别为纵向和横向弛豫时间. 研究瞬态相干光学过程, 需要用到不同初始条件下的 Bloch 方程的解. 然而, (1) 式在一般情况下不能得到解析解, 在一定的条件和近似下, 可用 Laplace 变换的方法^[4]求得解析解.

(1) 式作 Laplace 变换^[5], 有

^{*} 基金项目: 国家自然科学基金资助项目 (29673058); 国家科委攀登计划基金资助项目; 广东省自然科学基金资助项目 (970146)

收稿日期: 1998-04-21 作者简介: 余向阳, 男, 1965 年生, 博士, 讲师.

$$\lambda \bar{u} = u_0 - \beta \bar{u} - \Delta \bar{v}, \lambda \bar{v} = v_0 - \beta \bar{v} + \Delta \bar{u} + \Omega \bar{w}, \lambda \bar{w} = w_0 - \alpha \bar{w} + \alpha w_{\text{eq}} / \lambda - \Omega \bar{v} \quad (2)$$

式中, $\bar{u}, \bar{v}, \bar{w}$ 为 Bloch 分量的 Laplace 像函数; u_0, v_0, w_0 为初值; 以 $\bar{u}, \bar{v}, \bar{w}$ 为变量, (2) 式的系数行列式为

$$g_0(\lambda) = (\lambda + \beta)[(\lambda + \alpha)(\lambda + \beta) + \Omega^2] + \Delta^2(\lambda + \alpha) \quad (3)$$

(2) 式的解为

$$\begin{cases} \lambda g_0(\lambda) \bar{u} = [(\lambda + \alpha)(\lambda + \beta) + \Omega^2] u_0 - \lambda \Delta [\lambda(\lambda + \alpha)v_0 + \Omega(\lambda w_0 + \alpha w_{\text{eq}})] \\ \lambda g_0(\lambda) \bar{v} = (\lambda + \beta)[\lambda(\lambda + \alpha)v_0 + \Omega(\lambda w_0 + \alpha w_{\text{eq}})] + \lambda(\lambda + \alpha) \Delta u_0 \\ \lambda g_0(\lambda) \bar{w} = -\lambda \Omega [\Delta u_0 + (\lambda + \beta)v_0] + [(\lambda + \beta)^2 + \Delta^2](\lambda w_0 + \alpha w_{\text{eq}}) \end{cases} \quad (4)$$

将上式记为

$$\Gamma(\lambda) = g(\lambda) / \lambda g_0(\lambda) \quad (5)$$

$g_0(\lambda)$ 可分解为

$$g_0(\lambda) = (\lambda + a)[(\lambda + b)^2 + s^2] \quad (6)$$

根据多项式分解定理, (5) 式可分解为

$$\Gamma(\lambda) = A/(\lambda + a) + [B(\lambda + b) + C]/[(\lambda + a)^2 + s^2] + D/\lambda \quad (7)$$

上式的逆变换是

$$\Gamma(t) = Ae^{-at} + Be^{-bt} \cos st + (C/s)e^{-bt} \sin st + D \quad (8)$$

式中前三项描述了瞬态效应, 最后一项代表 Bloch 方程的稳态解. 式中系数 A 和 D 可从

$$A = -g(-a)/a[(b-a)^2 + s^2], D = g(0)/a(b^2 + s^2) \quad (9)$$

求得. 展开 (3) 和 (6) 式, 两式 λ 的同次幂系数相等, 有

$$\begin{cases} a + 2b = \alpha + 2\beta \\ b^2 + 2ab + a^2 = \beta^2 + 2\alpha\beta + \Delta^2 + \Omega^2 \\ a(a^2 + s^2) = \alpha(\beta^2 + \Delta^2) + \beta\Omega^2 \end{cases} \quad (10)$$

将上式的结果应用到 (9) 式, 可得

$$D_u = -\frac{w_{\text{eq}} \alpha \Delta}{\alpha(\beta^2 + \Delta^2) + \beta\Omega^2}, D_v = \frac{w_{\text{eq}} \alpha \beta \Omega}{\alpha(\beta^2 + \Delta^2) + \beta\Omega^2}, D_w = \frac{w_{\text{eq}} \alpha (\beta^2 + \Delta^2)}{\alpha(\beta^2 + \Delta^2) + \beta\Omega^2} \quad (11)$$

对系数 A 的求解要求知道 a, b, s , 而 a, b, s 又依赖于系数行列式 $g_0(\lambda)$ 的特征根 λ 的求解. 一般情形下, 特征根 λ 并不能得到, 只有在一些特殊条件下才能求得. 系数 B, C 可由下列关系求得

$$B_u = u_0 - A_u - D_u, B_v = v_0 - A_v - D_v, B_w = w_0 - A_w - D_w \quad (12)$$

$$\begin{cases} C_u = aA_u + bB_u - \beta u_0 - \Delta v_0 \\ C_v = aA_v + bB_v - \beta v_0 + \Delta u_0 + \Omega w_0 \\ C_w = aA_w + bB_w - \alpha w_0 + \alpha w_{\text{eq}} - \Omega v_0 \end{cases} \quad (13)$$

下面是两种特殊条件下的解.

(1) 在光场的作用下使入射光突然停止, 这时 $E = 0$, 可得 $a = \alpha, b = \beta, s = \Delta$ (8) 式中各项系数为 $A_u = 0, A_v = 0, A_w = w_0 - w_{\text{eq}}, B_u = u_0, B_v = v_0, B_w = 0, C_u = -\Delta v_0, C_v = \Delta u_0, C_w = 0, D_u = 0, D_v = 0, D_w = w_{\text{eq}}$. 代入 (2) 式, 得

$$\begin{cases} u(t) = [u_0 \cos(\Delta t) - v_0 \sin(\Delta t)] e^{-\beta t} \\ v(t) = [u_0 \sin(\Delta t) + v_0 \cos(\Delta t)] e^{-\beta t} \\ w(t) = w_{\text{eq}} + [w_0 - w_{\text{eq}}] e^{-\alpha t} \end{cases} \quad (14)$$

(2) 如果激发光的 Rabi 频率 $\Omega \gg 1/T_2, 1/T_1$, 则可以忽略衰减的影响, 令 $\alpha, \beta \rightarrow 0$, 则有

$$\begin{aligned} a &= 0, b = 0, s = \sqrt{\Omega^2 + \Delta^2}, A_u = 0, A_v = 0, A_w = 0, B_u = u_0 + w_{\text{eq}} \Delta \Omega / (\Delta^2 + \Omega^2), \\ B_v &= v_0, B_w = w_0 - w_{\text{eq}} \Delta^2 / (\Delta^2 + \Omega^2), C_u = -\Delta v_0, C_v = \Delta u_0 + \Omega w_0, C_w = -\Omega v_0, \\ D_u &= w_{\text{eq}} \Delta \Omega / (\Delta^2 + \Omega^2), D_v = 0, D_w = w_{\text{eq}} \Delta^2 / (\Delta^2 + \Omega^2) \end{aligned}$$

当初始条件为 $u_0 = v_0 = 0, w_0 = w_{\text{eq}}$ 时, 解的形成如下

$$\begin{aligned} u(t) &= w_{\text{eq}} \Delta \Omega [\cos(st) - 1] / s^2 \\ v(t) &= w_{\text{eq}} \Omega \sin(st) / s \\ w(t) &= w_{\text{eq}} [\Omega^2 \cos(st) + \Delta^2] / s^2 \end{aligned} \quad (15)$$

2 飞秒自由感应衰减及相位光谱

相干瞬态现象所测量到的是光场在不同条件下作用于介质后分子的再辐射信号. 宏观极化强度与 Bloch 矢量的关系为^[9]

$$P(t) \propto v(t) \quad (16)$$

用上述方法求出 $v(t)$ 的显式, 便可计算再辐射信号.

当光场与介质的作用经过一段时间已达到稳定状态之后, 用某种方法突然去掉入射光场的作用, 介质内的感应电极化波场并不随之突然消失, 而是在 $t < T_2$ 的时间范围内, 继续辐射出相干光波场, 只不过将随时间的增大而迅速衰减. 这种现象, 称为光学自由感应衰减(FID). 对于均匀展宽介质, 在脉冲作用期间, 假定弛豫时间远大于脉宽, 这时 Bloch 方程的解为(15)式. 光脉冲作用停止后, 这时, 介质会继续辐射后光场, 即 FID 信号. 此时 Bloch 方程的解为(14)式. 以(15)式的值为初值, 代入(14)式, 便可求得极化场的强度信号.

为了测量时间分辨的极化场振幅信号, 可以采用脉冲对激发介质^[7]. 而要得到相位光谱, 则采用双通道技术, 同时记录激发光的自相关^[7]. 相位光谱可以通过下式求得

$$\wp(t) = \{[T_S^n(t) + \epsilon_S^n(t)] - [T_{S_0}^n(t) + \epsilon_{S_0}^n(t)] (2\pi)\} / T_0 \quad (17)$$

式中, $\wp$ 是以 2π 为单位的介质相对于激发光中心频率的相位差, $T_S^n, T_{S_0}^n$ 分别是样品和参考干涉条纹中的最大(或最小)值, $T_{S_0}^{n+1} - T_{S_0}^n = T_0$, T_0 为激发光的周期, n 为整数. $\epsilon_S^n, \epsilon_{S_0}^n$ 分别是样品和参考干涉条纹每个周期的系统误差, 它是时间的随机函数, 采用双通道同步记录的实验方法, 可使 $\epsilon_S^n = \epsilon_{S_0}^n$, 从而消除系统误差.

对于粒子跃迁频率与时间无关的二能级体系, 相位光谱为一条直线, 直线斜率的负值就等于失谐量 Δ .

图 1(a) 是计算相位谱时激发光场的参考信号, (b) 是共振时的自由感应衰减信号, (c) 是以激光脉冲中心频率为参考得的相位光谱. 图 2 是非振时的计算结果. 计算时各参数如下: 跃迁频率 $\omega_{21} = 374.74 \text{ THz}$ ($\lambda = 800 \text{ nm}$), Rabi 频率 $\Omega = 0.02/50 \text{ fs}^{-1} = 0.4 \text{ THz}$, 脉宽 $t_p = 50 \text{ fs}$, 横向弛豫时间 $T_2 = 500 \text{ fs}$, 忽略 T_1 的影响. 非共振时的失谐量 $\Delta = 4 \text{ THz}$.

从计算结果可以看到, 在共振激发时, 相位谱的线型为一条水平线, 表明极化场相对激发光场没有相移. 在非共振激发时, 相位谱为一条直线, 其斜率的负值等于失谐量. 从图 2(b) 中可以看到, 极化场出现有相移.

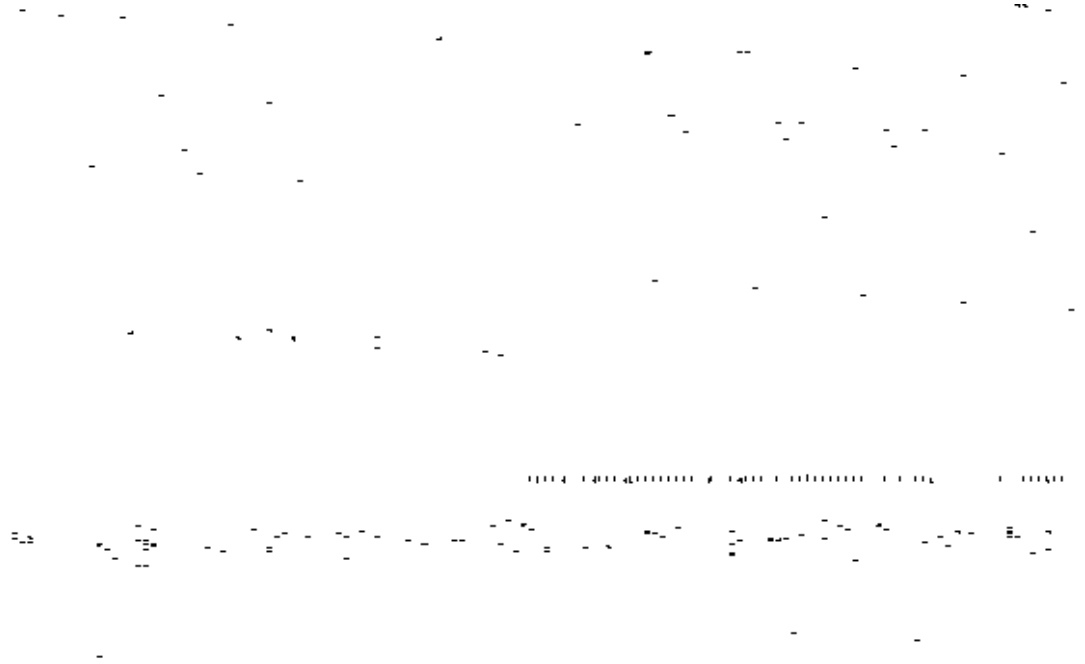


图 1 共振激发的自由感应衰减振幅和相位光谱

Fig 1 Time-resolved phase spectrum for
free-induction decay with resonant excitation

图 2 非共振激发的自由感应衰减振幅和相位光谱

Fig 2 Time-resolved phase spectrum for
free-induction decay with non-resonant excitation

参考文献:

- [1] LEVENSON M D. Introduction of nonlinear laser spectroscopy [J]. Academic Press, 1982.
- [2] SHAH J. Ultrafast spectroscopy of semiconductors and semiconductor nanostructures [M]. Heidelberg, Germany: Springer Verlag, 1996.
- [3] ALLEN L, EBERLY J H. Optical resonance and two-level atoms [M]. New York: Dover, 1987.
- [4] TORREY H C. Transient nutations in nuclear magnetic resonance [J]. Phy Rev, 1949, 76: 1059.
- [5] 祝同江. 工程数学——积分变换 [M]. 北京: 高等教育出版社, 1991.
- [6] 夏慧荣, 王祖赓. 分子光谱和激光光谱学导论 [M]. 上海: 华东师范大学出版社, 1989.
- [7] YU X Y, LUO Q, LI W L, et al. Ultrafast phase dynamics of coherent carriers in GaAs [J]. Appl Phys Lett, 1998, 73 (23): 3321.

Femtosecond Optical Coherent Transients Processes Described with Optical Bloch Equations

^{*}
YU Xiang-yang, ZHOU Jian-ying

Abstract: Optical Bloch equations are solved by operational methods making use of Laplace transform. Using the method described for optical coherent transients, the time-resolved, femtosecond phase spectroscopy of free-induced-decay (FID) in homogeneous broadened system is discussed.

Keywords: coherent transient process; Bloch equation; phase spectroscopy