

三光子矢量模型*

叶佩弦

(中国科学院物理研究所)

提 要

本文指出,由 Feynman, Vernon 和 Hellwarth 建立的二能级系统的光学 Rabi 进动模型,不仅可以推广应用于双光子共振相干作用过程的讨论,也能推广应用到三光子共振相干作用过程.利用此模型和绝热跟随近似,得到了在强场和(或)共振条件下不同于微扰论结果的三级极化公式.讨论了三级共振非线性效应中出现饱和的问题.

引 言

近年来,以共振增强为主要特征的共振非线性光学效应的研究引人注目^[1-3].但是,用以讨论高阶非线性效应的微扰论结果^[4-6],在强光和(或)共振条件下的适用性是值得怀疑的.事实上,已经出现一些与该理论结果相偏离的实验事实^[3,7,8].

由 Feynman, Vernon 和 Hellwarth 建立的光学 Rabi 进动模型^[9],是对于光波场与二能级原子共振相干作用的一种较严格处理. Takatsuji 和 Brewer 等人发展了此模型,建立了双光子的 Rabi 进动模型^[10,11]. Grischkowsky 和 Loy 在此基础上又发展了绝热跟随模型,并用它得到双光子共振条件下三级极化公式^[12]. 本文试图证明,上述矢量模型方法同样适合于讨论至少与四个能级相联系的三光子共振相干作用过程.同时,试图用此方法讨论在非线性光学中更为普遍的三光子共振增强效应.利用绝热跟随近似,得到了在三光子共振条件下的三级极化公式.在弱光场和远离共振的情况下,这个公式与微扰论结果一致,而在强光和(或)接近共振的情况,这个公式不同于微扰论结果,正确地包含有饱和因子.

三光子矢量模型的建立

设原子的能级如图1所示, $\hbar\Omega_i (i = 2, n, 1, 3)$ 分别为 2, n , 1, 3 各态的本征能值. $p_{ij} = \langle i | \mathbf{P} | j \rangle$ 是 i, j 态之间的电偶极矩阵元. 设 $p_{2n}, p_{1n}, p_{13}, p_{23}$ 均不为零, 而 $p_{12} = p_{3n} = 0$. 现在,有圆频率为 $\omega_1, \omega_2, \omega_3$ 的三个光波同时作用于该原子体系. 总光波电场为

$$E = \frac{1}{2} \varepsilon_1 (e^{-i\phi_1} + e^{i\phi_1}) + \frac{1}{2} \varepsilon_2 (e^{-i\phi_2} + e^{i\phi_2}) + \frac{1}{2} \varepsilon_3 (e^{-i\phi_3} + e^{i\phi_3}), \quad (1)$$

* 1978年8月8日收到.

其中

$$\phi_1 = \omega_1 t - k_1 z + \varphi_1, \quad \phi_2 = \omega_2 t - k_2 z + \varphi_2, \quad \phi_3 = \omega_3 t - k_3 z + \varphi_3,$$

ε_i 是频率为 ω_i 的光波电场的振幅, k_i 为相应的波矢, φ_i 为初位相.

在光波场的作用下, 原子的密度矩阵 ρ 由下式决定:

$$\frac{d\rho}{dt} = \frac{i}{\hbar} [\rho, \mathbf{H}], \quad (2)$$

$[\rho, \mathbf{H}]$ 为 ρ 与 \mathbf{H} 的对易子. \mathbf{H} 为原子哈密顿量的矩阵表示:

$$\mathbf{H} = \begin{bmatrix} \hbar Q_1 & 0 & H_{13} & H_{1n} & \vdots \\ 0 & \hbar Q_2 & H_{23} & H_{2n} & \vdots \\ H_{31} & H_{32} & \hbar Q_3 & 0 & \vdots \\ H_{n1} & H_{n2} & 0 & \hbar Q_n & \vdots \\ \dots & \dots & \dots & \dots & \dots \end{bmatrix}, \quad (3)$$

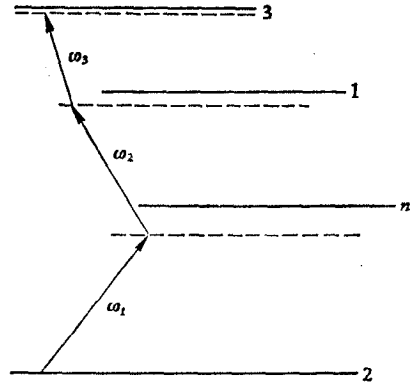


图 1
 n 代表一组能级

其中第 ij 矩阵元为

$$H_{ij} = -\frac{1}{2} p_{ij} [\varepsilon_1 (e^{-i\phi_1} + e^{i\phi_1}) + \varepsilon_2 (e^{-i\phi_2} + e^{i\phi_2}) + \varepsilon_3 (e^{-i\phi_3} + e^{i\phi_3})] \quad (i, j = 1, 2, 3, n), \quad (4)$$

且 $H_{ji} = H_{ij}^*$.

通常, ω_1 和 ω_2 分别都偏离共振频率 $Q_{n2} = Q_n - Q_2$ 和 $Q_{1n} = Q_1 - Q_n$, 故态 n 对态 1 和态 2 的影响可用微扰法处理. 又因态 3 与态 2 之间的共振频率 ($Q_{32} = Q_3 - Q_2$) 不与 $\omega_1, \omega_2, \omega_3$ 中的任一频率相当, 故态 3 与态 2 的相互影响亦可用微扰法处理. 这相当于对体系的基矢进行如下的酉变换:

$$U = e^{-iS}, \quad (5)$$

其中 S 是这样的矩阵: 对角元 $S_{ii} = 0$ ($i = 1, 2, 3, n$); $S_{13} = S_{31} = 0$; 其余非对角元由下式给出:

$$S_{ij} = -\frac{i p_{ij}}{2\hbar} \left[\varepsilon_1 \left(\frac{e^{-i\phi_1}}{Q_{ij} - \omega_1} + \frac{e^{i\phi_1}}{Q_{ij} + \omega_1} \right) + \varepsilon_2 \left(\frac{e^{-i\phi_2}}{Q_{ij} - \omega_2} + \frac{e^{i\phi_2}}{Q_{ij} + \omega_2} \right) + \varepsilon_3 \left(\frac{e^{-i\phi_3}}{Q_{ij} - \omega_3} + \frac{e^{i\phi_3}}{Q_{ij} + \omega_3} \right) \right], \quad (6)$$

$Q_{ij} = Q_i - Q_j$. 由于 $p_{12} = p_{3n} = 0$, 故 $S_{12}, S_{21}, S_{3n}, S_{n3}$ 自然为零.

经此变换后, 新的基矢为 $1', 2', 3', n'$, 而

$$|i'\rangle = \sum_j U_{ji'}^{-1} |j\rangle \quad (i = 1, 2, 3, n), \quad (7)$$

密度矩阵为

$$\rho' = U \rho U^{-1}, \quad (8)$$

运动方程为

$$\frac{d\rho'}{dt} = \frac{i}{\hbar} [\rho', H'], \quad (9)$$

其中

$$H' = UHU^{-1} + \hbar \frac{\partial S}{\partial t} - \frac{\hbar}{2i} \left[\frac{\partial S}{\partial t}, S \right]. \quad (10)$$

为了计算变换后的矩阵元 H'_{ii} , 将 (5) 式的 U 及其逆矩阵展开为

$$U = 1 - iS - \frac{1}{2} SS + \dots, \quad (11)$$

$$U^{-1} = 1 + iS - \frac{1}{2} SS + \dots, \quad (12)$$

保留到 S^2 项, 得

$$UHU^{-1} = H + i(HS - SH) + SHS - \frac{1}{2} (HSS + SSH). \quad (13)$$

计算结果为

$$H'_{ii} = \hbar \Omega_i + \Delta E_i \quad (i = 1, 2, 3, n), \quad (14)$$

其中

$$\Delta E_i = -\frac{1}{4} [\chi_i(\omega_1)\varepsilon_1^2 + \chi_i(\omega_2)\varepsilon_2^2 + \chi_i(\omega_3)\varepsilon_3^2], \quad (15)$$

$$\chi_i(\omega_\sigma) = \sum_j \frac{p_{ij}p_{ji} \cdot 2\Omega_{ji}}{\hbar(\Omega_{ji}^2 - \omega_\sigma^2)} \quad \left(\begin{array}{l} i = 1, 2, 3, n \\ \sigma = 1, 2, 3 \end{array} \right) \quad (16)$$

$$\left(\begin{array}{l} \text{当 } i = 1 \text{ 时, } j \neq 3 \\ \text{当 } i = 3 \text{ 时, } j \neq 1 \end{array} \right)$$

至于非对角元, 当保留到光波电场 ε_i 的最低次共振项(即具有共振分母者)时, 有

$$H'_{12} = -\frac{1}{2} a \varepsilon_1 \varepsilon_2 e^{-i(\phi_1 + \phi_2)} + \dots, \quad (17)$$

$$H'_{13} = -\frac{1}{2} p_{13} \varepsilon_3 e^{i\phi_3} + \dots, \quad (18)$$

$$H'_{23} = -\frac{1}{2} d \varepsilon_1 \varepsilon_2 \varepsilon_3 e^{i(\phi_1 + \phi_2 + \phi_3)} + \dots, \quad (19)$$

$$H'_{1n} = \frac{p_{1n}p_{n1}p_{1n}}{8\hbar^2} \varepsilon_1^3 \frac{1}{(\Omega_{1n} - \omega_1)^2} e^{-i\phi_1} + \frac{p_{1n}p_{n2}p_{2n}}{4\hbar^2} \varepsilon_2^2 \varepsilon_1 \frac{1}{(\Omega_{n2} - \omega_2)^2} e^{-i\phi_1} + \dots, \quad (20)$$

$$H'_{2n} = \frac{p_{2n}p_{n2}p_{2n}}{8\hbar^2} \varepsilon_2^3 \frac{1}{(\Omega_{2n} - \omega_2)^2} e^{+i\phi_2} + \frac{p_{2n}p_{n1}p_{1n}}{4\hbar^2} \varepsilon_1^2 \varepsilon_2 \frac{1}{(\Omega_{1n} - \omega_1)^2} e^{i\phi_2} + \dots, \quad (21)$$

$$H'_{3n} = -\frac{p_{3n}p_{n1}}{4\hbar} \left[\varepsilon_1 \varepsilon_3 e^{-i(\phi_1 + \phi_3)} \frac{1}{\Omega_{1n} - \omega_1} + \varepsilon_2 \varepsilon_3 e^{-i(\phi_2 + \phi_3)} \frac{1}{\Omega_{1n} - \omega_2} \right], \quad (22)$$

其中

$$a = \frac{1}{2\hbar} \sum_n p_{1n} p_{n2} \left(\frac{1}{\Omega_{n2} - \omega_1} + \frac{1}{\Omega_{n2} - \omega_2} \right), \quad (23)$$

$$d = \sum_n \frac{p_{2n} p_{n1} p_{13}}{8\hbar^2} \left(\frac{1}{(\Omega_{n2} - \omega_1)(\Omega_{1n} - \omega_2)} + \frac{1}{(\Omega_{n2} - \omega_2)(\Omega_{1n} - \omega_1)} \right), \quad (24)$$

这里我们已经用了旋波近似, 例如 H'_{12} 中只保留了与因子 $\exp(-i(\phi_1 + \phi_2))$ 有关的项而忽略掉其它项. 其余非对角元也作了类似的考虑.

现在集中注意 2, 1, 3 三个态之间的联系以及发生在这三个态之间的过程. 原来, 2 与 1 之间是禁戒跃迁, 故 $H_{12} = H_{21} = 0$, 用微扰法计及到 n 对 2, 1 的影响后, 2 与 1 之间有了联系, 存在一个由 (17) 式给出的与 $\varepsilon_1 \varepsilon_2$ 成比例的非对角元. 但是, 在用微扰法计及 n 对 2, 1 的影响时, 没有计算到高级微扰, 因此 n 对 2, 1 的影响没有全部考虑进去, 从而使 1, n 之间及 2, n 之间仍保留有量级为 $p_{ij}^1 \varepsilon_i^1$ 的不为零的非对角元 [见 (20) 和 (21) 式]. 可以指出, 如果计及这些非对角元的影响, 在 H'_{12} 中只会增加量级为 $p_{ij}^1 \varepsilon_i^1$ 的高级小项. 因此, 当集中讨论 2, 1, 3 三态之间的过程时, 可将 H'_{1n}, H'_{2n} 忽略. 与此类似, H'_{3n} 对于发生在 2, 1, 3 三态之间的过程的影响是属于 $p_{ij}^1 \varepsilon_i^1$ 量级的, 也可略去. (19) 式表示的 H'_{23} 属 $p_{ij}^1 \varepsilon_i^1$ 项, 本来保留下来对以后的计算不会产生任何困难, 但考虑到在计算的最后结果中它与其它项的贡献相比仍然可以忽略 [原因是: 通常 ω_1, ω_2 偏离 Ω_{1n}, Ω_{n2} 较大, 而 $\omega_1 + \omega_2$ 偏离 Ω_{12} 较小, 故 $(\Omega_{n2} - \omega_1)^{-1}, (\Omega_{n2} - \omega_2)^{-1}, (\Omega_{1n} - \omega_1)^{-1}, (\Omega_{1n} - \omega_2)^{-1}$ 相对 $(\Omega_{12} - \omega_1 - \omega_2)^{-1}$ 在绝对值上小得多], 所以在此亦可略去. 从而, 描写 2', 1', 3' 三个态之间发生的过程, 可以用以下的哈密顿量:

$$\mathbf{H}' = \begin{matrix} 1' \\ 2' \\ 3' \end{matrix} \begin{bmatrix} \hbar\Omega_1 + \Delta E_1 & -\frac{1}{2} a \varepsilon_1 \varepsilon_2 e^{-i(\phi_1 + \phi_2)} & -\frac{1}{2} p_{13} \varepsilon_3 e^{i\phi_3} \\ -\frac{1}{2} a^* \varepsilon_1 \varepsilon_2 e^{i(\phi_1 + \phi_2)} & \hbar\Omega_2 + \Delta E_2 & 0 \\ -\frac{1}{2} p_{31} \varepsilon_3 e^{-i\phi_3} & 0 & \hbar\Omega_3 + \Delta E_3 \end{bmatrix} \begin{matrix} 1' \\ 2' \\ 3' \end{matrix} \quad (25)$$

按以下方式更换矩阵的脚标: $1 \rightarrow 3, 3 \rightarrow 1$, 则

$$\mathbf{H}' = \begin{matrix} \bar{1}' \\ \bar{2}' \\ \bar{3}' \end{matrix} \begin{bmatrix} \hbar\Omega_3 + \Delta E_3 & 0 & -\frac{1}{2} p_{31} \varepsilon_3 e^{-i\phi_3} \\ 0 & \hbar\Omega_2 + \Delta E_2 & -\frac{1}{2} a^* \varepsilon_1 \varepsilon_2 e^{i(\phi_1 + \phi_2)} \\ -\frac{1}{2} p_{13} \varepsilon_3 e^{i\phi_3} & -\frac{1}{2} a \varepsilon_1 \varepsilon_2 e^{-i(\phi_1 + \phi_2)} & \hbar\Omega_1 + \Delta E_1 \end{bmatrix} \begin{matrix} \bar{1}' \\ \bar{2}' \\ \bar{3}' \end{matrix} \quad (26)$$

采用双旋转坐标系统, 即进行以下的酉变换:

$$U' = e^{-i\Lambda}, \quad (27)$$

其中

$$\Lambda = \begin{bmatrix} -\phi_3 & 0 & 0 \\ 0 & \phi_1 + \phi_2 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{bmatrix}. \quad (28)$$

经此变换后, 基矢为 $1'', 2'', 3''$, 且

$$|i''\rangle = \sum_j U'_{ji} |j'\rangle \quad (i = 1, 2, 3). \quad (29)$$

密度矩阵 $\rho'' = U' \bar{\rho}' U'^{-1}$ 的运动方程为

$$\frac{d\rho''}{dt} = \frac{i}{\hbar} [\rho'', H''], \quad (30)$$

其中

$$H'' = U' H' U'^{-1} + \hbar \frac{\partial \Lambda}{\partial t}. \quad (31)$$

(31) 式中的 H' 用 (26) 式表示. 这里的态矢 $|i'\rangle$ 定义为: $|\bar{1}'\rangle = |3'\rangle$, $|\bar{2}'\rangle = |2'\rangle$, $|\bar{3}'\rangle = |1'\rangle$; $\bar{\rho}'$ 是脚标进行 $1 \leftrightarrow 3$ 更换后的 ρ' .

利用 (31) 式容易得到消去频率因子后的 H'' 为:

$$H'' = \begin{bmatrix} \hbar\Omega_3 + \Delta E_3 - \hbar\omega_3 & 0 & -\frac{1}{2} p_{31}\varepsilon_3 \\ 0 & \hbar\Omega_2 + \Delta E_2 + \hbar(\omega_1 + \omega_2) & -\frac{1}{2} a^* \varepsilon_1 \varepsilon_2 \\ -\frac{1}{2} p_{13}\varepsilon_3 & -\frac{1}{2} a \varepsilon_1 \varepsilon_2 & \hbar\Omega_1 + \Delta E_1 \end{bmatrix}. \quad (32)$$

参考文献 [12], 在满足条件 ($\Delta\omega$ 的意义见 (44) 式)

$$\left| \frac{\partial \varepsilon_i}{\partial t} \right| \ll |\Delta\omega \varepsilon_i|, \quad (33)$$

时, 可进行以下酉变换:

$$U'' = e^{-i\delta}. \quad (34)$$

δ 的矩阵元为

$$\delta_{ii} = 0 \quad (i = 1, 2, 3), \quad \delta_{12} = \delta_{21} = 0,$$

其余非对角元为

$$\delta_{ij} = -\frac{iH''_{ij}}{H''_{ji} - H''_{ii}}. \quad (35)$$

变换后 $\rho''' = U'' \rho'' U''^{-1}$ 的变化由下式决定:

$$\frac{d\rho'''}{dt} = \frac{i}{\hbar} [\rho''', H'''], \quad (36)$$

其中

$$H''' = U'' H'' U''^{-1}. \quad (37)$$

计算 H''' 的各矩阵元, 保留 ε_i 的最低次共振项, 得到

$$H'''_{11} = \hbar(\Omega_3 - \omega_3) + \Delta E_3 + \Delta E'_3, \quad (38)$$

$$H'''_{22} = \hbar\Omega_2 + \Delta E_2 + \hbar(\omega_1 + \omega_2), \quad (39)$$

$$H'''_{33} = \hbar\Omega_1 + \Delta E_1 - \Delta E'_3, \quad (40)$$

$$H'''_{12} = -\frac{1}{2} \beta \varepsilon_1 \varepsilon_2 \varepsilon_3, \quad H'''_{21} = H'''_{12}^*, \quad (41)$$

$$H'''_{13} = \frac{1}{4} \frac{p_{13} p_{31}^2 \varepsilon_3^3}{\hbar^2 [(\Omega_{31} - \omega_3) + (\Delta E_3 - \Delta E_1)/\hbar]^2},$$

$$H'''_{31} = H'''_{13}^*, \quad H'''_{23} = H'''_{32} = 0, \quad (42)$$

而

$$\beta = -\frac{p_{31} a}{2\hbar \Delta\omega}, \quad (43)$$

$$\frac{1}{\Delta\omega} = \frac{1}{2} \left[\frac{1}{(\omega_1 + \omega_2) - \Omega_{12} + (\Delta E_2 - \Delta E_1)/\hbar} + \frac{1}{\Omega_{31} - \omega_3 + (\Delta E_3 - \Delta E_1)/\hbar} \right]. \quad (44)$$

当考虑 $1'''$ 和 $2'''$ 之间的过程时, 态 $3'''$ 通过 H_{13}''' 对 $1'''$ 与 $2'''$ 之间过程的影响是属于 p_1^b, ε_1^b 量级的高级小量, 可忽略, 从而得到针对 $1'''$ 和 $2'''$ 的哈密顿量为

$$H''' = \begin{bmatrix} \hbar(\Omega_3 - \omega_3) + \Delta E_3 + \Delta E_3' & -\frac{1}{2} \beta \varepsilon_1 \varepsilon_2 \varepsilon_3 \\ -\frac{1}{2} \beta^* \varepsilon_1 \varepsilon_2 \varepsilon_3 & \hbar\Omega_2 + \Delta E_2 + \hbar(\omega_1 + \omega_2) \end{bmatrix}. \quad (45)$$

按照通常二能级体系建立矢量模型的方法, 引入矢量 $\mathbf{r}(r_1, r_2, r_3)$, 其中 r_1, r_2, r_3 与 ρ''' 各矩阵元之间有以下关系:

$$\begin{aligned} \rho_{11}''' &= \frac{1}{2}(1 + r_3), & \rho_{22}''' &= \frac{1}{2}(1 - r_3), \\ \rho_{12}''' &= \frac{1}{2}(r_1 + ir_2), & \rho_{21}''' &= \frac{1}{2}(r_1 - ir_2), \end{aligned} \quad (46)$$

$$\text{或} \quad \begin{aligned} r_1 &= \rho_{12}''' + \rho_{21}''', & r_2 &= i(\rho_{12}''' - \rho_{21}'''), & r_3 &= \rho_{11}''' - \rho_{22}''', \\ |\mathbf{r}| &= r = 1. \end{aligned} \quad (47)$$

此时由密度矩阵方程 (36) 立即得到矢量 \mathbf{r} 的运动方程为

$$\frac{d\mathbf{r}}{dt} = \boldsymbol{\gamma} \times \mathbf{r}, \quad (48)$$

其中 $\boldsymbol{\gamma}$ 的三个分量分别为

$$\gamma_1 = (H_{12}''' + H_{21}''')/\hbar, \quad \gamma_2 = i(H_{12}''' - H_{21}''')/\hbar, \quad \gamma_3 = (H_{11}''' - H_{22}''')/\hbar, \quad (49)$$

亦即

$$\gamma_1 = -\frac{\beta \varepsilon_1 \varepsilon_2 \varepsilon_3}{\hbar}, \quad (50)$$

$$\gamma_2 = 0. \quad (51)$$

$$\gamma_3 = \Omega_{32} - (\omega_1 + \omega_2 + \omega_3) + (\Delta E_3 + \Delta E_3' - \Delta E_2)/\hbar. \quad (52)$$

(48) 式表明, 矢量 \mathbf{r} 是围绕矢量 $\boldsymbol{\gamma}$ 作进动的, 进动的 Rabi 频率为

$$\gamma = \sqrt{\gamma_1^2 + \gamma_3^2} = \sqrt{[\Omega_{32} - (\omega_1 + \omega_2 + \omega_3) + (\Delta E_3 + \Delta E_3' - \Delta E_2)/\hbar]^2 + \left(\frac{\beta \varepsilon_1 \varepsilon_2 \varepsilon_3}{\hbar}\right)^2}, \quad (53)$$

其中 β 由 (43) 式给出. 当 $\omega_1 + \omega_2 + \omega_3$ 与能级 3, 2 共振或非常接近共振时, (44) 式右边的两项相等, 从而 β 可表示为

$$\beta = \sum_n \frac{p_{31} p_{1n} p_{n2}}{4\hbar^2} \left(\frac{1}{\Omega_{n2} - \omega_1} + \frac{1}{\Omega_{n2} - \omega_2} \right) \frac{1}{\Omega_{12} - (\omega_1 + \omega_2) + (\Delta E_2 - \Delta E_1)/\hbar}. \quad (54)$$

绝热跟随近似

当光波电场振幅变化比较缓慢, 满足绝热跟随近似条件^[12]时, 可以认为矢量 \mathbf{r} 总是几乎平行于矢量 $\boldsymbol{\gamma}$ (同向或反向), 这时有

$$r_3 = -\cos\theta = \mp \frac{\gamma_3}{\gamma}, \quad (55)$$

$$r_1 = -\sin\theta = \mp \frac{\gamma_1}{\gamma}. \quad (56)$$

(55) 和 (56) 两式右端, 当 $\gamma_3 > 0$ 时取“-”号, 当 $\gamma_3 < 0$ 时取“+”号. 此外, 从 (48) 式并考虑到 (51) 式, 得到

$$r_2 = -\frac{1}{\gamma_3} \frac{\partial r_1}{\partial t}. \quad (57)$$

三级极化表示式

单个原子的极化强度为

$$p(t) = \text{Tr}[\mathbf{P}\rho(t)], \quad (58)$$

其中 \mathbf{P} 为原子的电偶矩算符, 而 $\rho(t)$ 可由 $\rho''(t)$ 求得, 即

$$\rho(t) = U^{-1}[U'^{-1}U''^{-1}\rho''(t)U''U']U. \quad (59)$$

注意, 上式右端在进行酉变换 U' 之后, 先要更换矩阵的脚标

1→3, 3→1, 然后再进行酉变换 U . 此外,

$$\rho'''(t) = \begin{bmatrix} \rho'''_{11} & \rho'''_{12} \\ \rho'''_{21} & \rho'''_{22} \end{bmatrix}, \quad (60)$$

ρ'''_{11} , ρ'''_{22} , ρ'''_{12} , ρ'''_{21} 由 (46) 式及 (55)–(57) 式给出.

利用 (58) 和 (59) 式, 计算得到频率为 $\omega_1 + \omega_2 + \omega_3$ 的极化强度为

$$p^{\omega_1+\omega_2+\omega_3}(t) = \pm \frac{1}{2} \frac{\beta p_{23}}{\alpha \hbar} \left(1 + i \frac{1}{\gamma_3} \frac{\partial}{\partial t}\right) \varepsilon_1 \varepsilon_2 \varepsilon_3 \left(\frac{\alpha}{\gamma}\right) \exp(-i(\phi_1 + \phi_2 + \phi_3)) + c.c., \quad (61)$$

其中

$$\alpha = Q_{32} - (\omega_1 + \omega_2 + \omega_3), \quad (62)$$

亦即

$$p^{\omega_1+\omega_2+\omega_3}(t) = \text{Re} \sum_n \frac{p_{23} p_{31} p_{12} p_{n2}}{4\hbar^3} \frac{1}{(Q_{32} - \omega_1 - \omega_2 - \omega_3)(Q_{12} - \omega_1 - \omega_2)} \times \left(\frac{1}{Q_{n2} - \omega_1} + \frac{1}{Q_{n2} - \omega_2}\right) \times \left(1 + i \frac{1}{\gamma_3} \frac{\partial}{\partial t}\right) \varepsilon_1 \varepsilon_2 \varepsilon_3 \left|\frac{\alpha}{\gamma}\right| \exp(-i(\phi_1 + \phi_2 + \phi_3)) \quad (63)$$

或

$$p^{\omega_1+\omega_2+\omega_3}(t) = \frac{1}{4} \text{Re} \left[\chi^{(3)}(\omega_1, \omega_2, \omega_3) \exp(-i(\phi_1 + \phi_2 + \phi_3)) \times \left(1 + i \frac{1}{\gamma_3} \frac{\partial}{\partial t}\right) \varepsilon_1 \varepsilon_2 \varepsilon_3 \right] \left|\frac{\alpha}{\gamma}\right|, \quad (64)$$

其中 $\chi^{(3)}(\omega_1, \omega_2, \omega_3)$ 是用微扰论计算得到的三级极化率.

显然, 当光场很弱或远离共振时, 极化公式 (64) 与微扰论结果一致. 但当光场很强和(或)频率 $(\omega_1 + \omega_2 + \omega_3)$ 很接近共振点时, 我们得到的公式与微扰论结果差一个饱

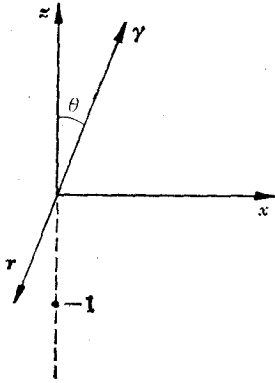


图 2

和因子:

$$\left| \frac{\alpha}{\gamma} \right| = \frac{|\mathcal{Q}_{32} - (\omega_1 + \omega_2 + \omega_3)|}{\sqrt{[\mathcal{Q}_{32} - (\omega_1 + \omega_2 + \omega_3) + (\Delta E_3 + \Delta E'_3 - \Delta E_2)/\hbar]^2 + \left(\frac{\beta \varepsilon_1 \varepsilon_2 \varepsilon_3}{\hbar}\right)^2}}. \quad (65)$$

这时,极化将会出现饱和.

讨 论

以上的讨论适合于这样的情况: $\omega_1 + \omega_2 + \omega_3$ 与能级 3, 2 共振或非常接近共振, $\omega_1 + \omega_2$ 与能级 1, 2 的共振频率稍有偏离, ω_1 或 ω_2 与能级 $n, 2$ 的共振频率有更大的偏离. 在实际工作中, 为了得到更大的共振增强, 常常不仅将 $\omega_1 + \omega_2 + \omega_3$ 调谐到共振点, 而且也将 $\omega_1 + \omega_2$ 调谐到共振点. 这时, (32) 式以前的讨论仍然适用, 此后需严格求解方程 (30). 可以预料, 这时会出现另一个饱和因子, 它反映出 $\omega_1 + \omega_2$ 接近共振点时的情况. 工作正在进行中.

参 考 文 献

- [1] D. M. Bloom, Jame T. Yardley, J. F. Young, S. E. Harris *Appl. Phys. Lett.*, **24** (1974), 427.
- [2] J. J. Wynne, P. P. Sorokin, "Nonlinear infrared generation" (Springer, 1977), p. 195.
- [3] Stephen C. Wallace and G. Zdasiuk, *Appl. Phys. Lett.*, **28** (1976), 449.
- [4] J. A. Armstrong, N. Bloembergen, J. Ducuing and P. S. Pershan, *Phys. Rev.*, **127** (1962), 1918.
- [5] B. J. Orr and J. F. Ward, *Mol. Phys.*, **20** (1971), 513.
- [6] R. B. Miles and S. E. Harris, *IEEE J. Q. E.*, **QE-9** (1973), 470.
- [7] Charles C. Wang and L. I. Davis, Jr., *Phys. Rev. Lett.*, **35** (1975), 650.
- [8] Istael L. Tyler, R. W. Alexander and R. J. Bell, *Appl. Phys. Lett.*, **27** (1975), 346.
- [9] R. P. Feynman, F. L. Vernon and R. W. Hellwarth, *J. Appl. Phys.*, **28** (1957), 49.
- [10] M. Takatsuji, *Phys. Rev.*, **A4** (1971), 808.
- [11] R. G. Brewer, E. L. Hahn, *Phys. Rev.*, **A11** (1975), 1641.
- [12] D. Grischkowsky and M. M. T. Loy, *Phys. Rev.*, **A12** (1975), 2514.

A THREE-PHOTON VECTOR MODEL

YE PEI-XUAN

(Institute of Physics, Academia Sinica)

ABSTRACT

It is shown that the optical Rabi precession model developed by Feynman, Vernon and Hellwarth for two-level systems can be extended not only to discuss the two-photon resonant coherent interaction, but also to the case of three photons. Using this model and the adiabatic following approximation, the third-order polarization expression in an intense and (or) resonant optical field is obtained, which differs from that obtained by perturbation theory. The saturation phenomena in the third-order resonant nonlinear effects are also discussed.