

二能级系统时间分辨简并四波混频的非微扰理论

傅盘铭 叶佩弦

(中国科学院物理研究所)

1983年9月27日收到

提 要

本文用密度矩阵方法严格处理了在共振情况下二能级系统时间分辨简并四波混频问题。讨论了与饱和效应相联系的一些现象。分析了这些现象的物理来源。

一、引 言

四波混频近年来受到人们广泛的注意,不仅因为它在位相共轭光学中的特殊地位^[1-5],也因为它是光谱学的一种重要方法和物质研究中的一种重要手段^[6,7]。

在微扰理论基础上,已经建立稳态和瞬态四波混频的一般三阶非线性理论^[8,9]。这些理论表明,四波混频可用以获得消多普勒加宽谱或减小谱线的非均匀加宽;可用以研究激发态的跃迁;也可用以测量纵向和横向弛豫时间。但是,由于进行了微扰处理,这些理论都不可能概括与饱和效应相联系的一些现象。

光学矢量模型给出二能级系统光与物质相互作用的严格处理^[10]。本文的目的是试图将这种处理方法应用于二能级系统时间分辨的简并四波混频过程,并建立起有关这种过程的一种严格的非微扰的理论。

二、密度矩阵的时间发展

简并四波混频的三光束1,2和3配置如图1所示。1,3两光束的光脉冲同时作用于原子系统,并超前于光束2的光脉冲。前者称泵浦光束,后者称探测光束。

为处理方便起见,假定三光束都是具有相同偏振方向的线偏振光,而且1,3两泵浦光具有相同的振幅。这两束光叠加后其光波电场表示为

$$E_1(\mathbf{r}, t) = \varepsilon_1(z, t)e^{i(\omega t - k_1 z)} + \text{c.c.}, \quad (1)$$

其中

$$\varepsilon_1(z, t) = \varepsilon_1(t) \cos k_1 z.$$

又设泵浦光束2的电场为

$$E_2(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{2} \varepsilon_2(t) e^{i(\omega t + k_1 z + k_2 z)} + \text{c.c.}, \quad (2)$$

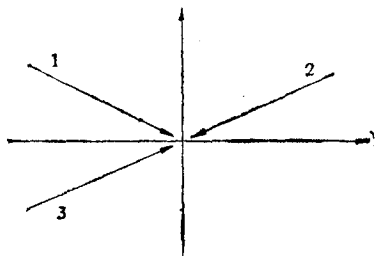


图 1

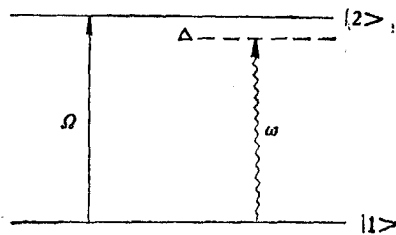


图 2

其中 k_1 和 k_2 是光波波矢的 x 和 z 分量。

与光波相作用的二能级系统如图 2 所示。其中 $\hbar\Omega$ 为 1, 2 两能级的能量间距, 而 $\Delta = \Omega - \omega$, 在光波场 $\mathbf{E}$ 的作用下系统的哈密顿量为

$$\mathbf{H} = \mathbf{H}_0 - \mathbf{P} \cdot \mathbf{E}. \quad (3)$$

其中 $\mathbf{H}_0$ 是系统自身的哈密顿量, 其矩阵表示为

$$\mathbf{H}_0 = \begin{pmatrix} 0 & 0 \\ 0 & \hbar\Omega \end{pmatrix}.$$

$\mathbf{P}$ 为系统的电偶矩算符。

1. 在泵浦光脉冲作用期间的情况

此时, (3) 式中的 $\mathbf{E}$ 由 (1) 式表示。因此哈密顿量的矩阵表示为

$$\mathbf{H}_1 = \begin{pmatrix} 0 & 0 \\ 0 & \hbar\Omega \end{pmatrix} - p\epsilon_1 \cos k_1 z \begin{pmatrix} 0 & e^{i\varphi_1} \\ e^{-i\varphi_1} & 0 \end{pmatrix} - p\epsilon_2 \cos k_2 z \begin{pmatrix} 0 & e^{-i\varphi_1} \\ e^{i\varphi_1} & 0 \end{pmatrix}. \quad (4)$$

其中

$$\varphi_1 \equiv \omega t - k_1 x, \quad p = \langle 1 | \mathbf{P} | 2 \rangle.$$

系统的密度矩阵 ρ 随时间的发展由下式描述:

$$\frac{d\rho}{dt} = -\frac{i}{\hbar} [\mathbf{H}_1, \rho]. \quad (5)$$

沿用光学矢量模型方法中的惯常手续, 进行以下的酉变换:

$$\sigma(t) = e^{iS_1} \rho(t) e^{-iS_1} \quad (6)$$

则在旋转坐标系中

$$\frac{d\sigma}{dt} = -\frac{i}{\hbar} [\mathbf{H}_1^E, \sigma]. \quad (7)$$

其中

$$S_1 = \begin{pmatrix} 0 & 0 \\ 0 & \varphi_1 \end{pmatrix}. \quad (8)$$

$$\mathbf{H}_1^E = e^{iS_1} \mathbf{H}_1 e^{-iS_1} - \hbar \frac{dS_1}{dt}. \quad (9)$$

由 (4), (8) 和 (9) 式并采用旋波近似可得

$$\mathbf{H}_1^E = \begin{pmatrix} 0 & -p\epsilon_1 \cos k_2 z \\ -p\epsilon_1 \cos k_2 z & \hbar\Delta \end{pmatrix}.$$

当 $\Delta \rightarrow 0$, 即当光波频率与二能级系统共振时,

$$\mathbf{H}_1^E = -P\epsilon_1(t) \cos k_2 z, \quad (10)$$

其中

$$P \equiv p \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix}$$

是电偶矩算符的矩阵表示.

设开始时原子处于状态 $|1\rangle$, 亦即 σ 的起始值为

$$\sigma(0) = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 0 \end{pmatrix}.$$

从 (7) 式即可得到经泵浦光脉冲作用后系统的 σ 矩阵为

$$\sigma^+ = e^{-\frac{i}{\hbar} \int dt' \mathbf{H}_1^E(t')} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 0 \end{pmatrix} e^{\frac{i}{\hbar} \int dt' \mathbf{H}_1^E(t')}.$$

利用 (10) 式, 又可得到

$$\sigma^+ = e^{i\hat{p}\theta_1 \cos k_2 z} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 0 \end{pmatrix} e^{-i\hat{p}\theta_1 \cos k_2 z},$$

其中

$$\theta_1 \equiv \frac{p}{\hbar} \int dt' \epsilon_1(t'). \quad (11)$$

$$\hat{p} \equiv \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix}.$$

利用展开式:

$$e^{i\hat{p}\theta_1 \cos k_2 z} = \sum_{n=0}^{\infty} \frac{(i\hat{p}\theta_1 \cos k_2 z)^n}{n!},$$

并定义

$$A_1 \equiv \theta_1 \cos k_2 z,$$

即可将 σ^+ 简化为

$$\sigma^+ = \begin{pmatrix} \cos^2 A_1 & -i \sin A_1 \cos A_1 \\ i \sin A_1 \cos A_1 & \sin^2 A_1 \end{pmatrix}. \quad (12)$$

2. 在探测光脉冲到达前的自由发展过程

在泵浦光作用后和探测光到达前的一段时间内, σ 矩阵的变化只与二能级系统的弛豫过程有关. 引入纵向弛豫时间 T_1 和横向弛豫时间 T_2 , 则在旋转坐标系中 σ 矩阵的时间发展由下式决定:

$$\frac{d\sigma_{11}}{dt} = -\frac{\sigma_{11} - 1}{T_1}, \quad (13a)$$

$$\frac{d\sigma_{22}}{dt} = -\frac{\sigma_{22}}{T_1}, \quad (13b)$$

$$\frac{d\sigma_{12}}{dt} = -\frac{\sigma_{12}}{T_2} + i\Delta\sigma_{12}. \quad (13c)$$

考虑到 $t = 0$ 时 $\sigma = \sigma^+$, 则从上述联立方程式的解得到 $t = \tau$ 时有

$$\begin{aligned}\sigma_{12}(\tau) &= \sigma_{12}^+ e^{-\tau/T_2} e^{i\Delta\tau}, \\ \sigma_{11}(\tau) &= 1 + (\sigma_{11}^+ - 1) e^{-\tau/T_1}, \\ \sigma_{22}(\tau) &= \sigma_{22}^+ e^{-\tau/T_1}.\end{aligned}$$

利用 (6) 式由旋转坐标系转换回到实验室坐标系, 则在此阶段密度矩阵的时间发展将由下式描述:

$$\rho_{11}(\tau) = 1 + (\sigma_{11}^+ - 1) e^{-\tau/T_1}, \quad (14a)$$

$$\rho_{22}(\tau) = \sigma_{22}^+ e^{-\tau/T_1}, \quad (14b)$$

$$\rho_{12}(\tau) = \sigma_{12}^+ e^{-\tau/T_2} e^{i(\Omega\tau - k_1 x)}. \quad (14c)$$

3. 在探测光脉冲作用期间的情况

此时, (3) 式中的 E 由 (2) 式给出, 因此哈密顿量的矩阵表示为

$$H_2 = \begin{pmatrix} 0 & 0 \\ 0 & \hbar\Omega \end{pmatrix} - p \frac{\varepsilon_2}{2} \begin{pmatrix} 0 & e^{i\varphi_2} \\ e^{-i\varphi_2} & 0 \end{pmatrix} - p \frac{\varepsilon_2}{2} \begin{pmatrix} 0 & e^{-i\varphi_2} \\ e^{i\varphi_2} & 0 \end{pmatrix}, \quad (15)$$

其中

$$\varphi_2 = \omega t + k_1 x + k_2 z.$$

进行以下的酉变换后,

$$\sigma(t) = e^{iS_2} \rho(t) e^{-iS_2}. \quad (16)$$

在旋转坐标系上密度矩阵 σ 随时间的发展由下式决定:

$$\frac{d\sigma}{dt} = -\frac{i}{\hbar} [H_2^E, \sigma], \quad (17)$$

其中

$$S_2 = \begin{pmatrix} 0 & 0 \\ 0 & \varphi_2 \end{pmatrix}, \quad (18)$$

$$H_2^E = -p \frac{\varepsilon_2(t)}{2} \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix}. \quad (19)$$

注意, 此处我们已假定 $\Delta \rightarrow 0$, 亦即讨论的是共振时的情形. 此外在得到 (19) 式时已用到旋波近似.

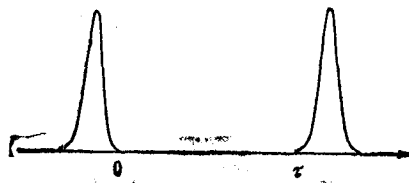


图 3

如果注意到探测光开始作用时 (即 $t = \tau$ 时, 见图 3) 系统的密度矩阵 $\rho(\tau)$ 由 (14) 式表示, 而在目前选用的旋转坐标系中, 它表示为

$$\sigma(\tau) = e^{iS_2(\tau)} \rho(\tau) e^{-iS_2(\tau)}. \quad (20)$$

则求解 (17) 式后可得到在探测光脉冲作用期间有

$$\sigma(t) = e^{i\hat{p}\theta_2(t)}\sigma(\tau)e^{-i\hat{p}\theta_2(t)}, \quad (21)$$

其中

$$\theta_2(t) = \frac{p}{2\hbar} \int_{\tau}^t dt' \varepsilon_2(t'). \quad (22)$$

利用(16)式再由旋转坐标系恢复到实验室坐标系, 并利用(21), (20)和(18)式, 即可得知在探测光脉冲作用期间在实验室坐标系下密度矩阵的时间发展将由下式描述:

$$\begin{aligned} \rho(t) = & \begin{pmatrix} \cos \theta_2 & i \sin \theta_2 e^{i\varphi_2(\tau)} \\ i \sin \theta_2 e^{-i\varphi_2(t)} & \cos \theta_2 e^{i(\varphi_2(\tau) - \varphi_2(t))} \end{pmatrix} \cdot \rho(\tau) \\ & \cdot \begin{pmatrix} \cos \theta_2 & -i \sin \theta_2 e^{i\varphi_2(t)} \\ -i \sin \theta_2 e^{-i\varphi_2(\tau)} & \cos \theta_2 e^{-i(\varphi_2(\tau) - \varphi_2(t))} \end{pmatrix}. \end{aligned} \quad (23)$$

三、极化矢量及其对四波混频输出的贡献

在探测光脉冲作用期间, 系统的宏观极化矢量 P 应为

$$P = N \cdot \text{Tr}(\mathbf{P}\rho(t)).$$

其中 N 为原子的数密度. 考虑到对于二能级系统, 矩阵元 $\langle i | \mathbf{P} | j \rangle$ 只当 $i \neq j$ 时才不为零, 因此

$$P = N p \rho_{12}(t) + \text{c.c.} \quad (24)$$

这说明宏观极化矢量只与密度矩阵的非对角元素有关. 从(23)式可求得 $\rho_{12}(t)$ 为

$$\begin{aligned} \rho_{12}(t) = & i \sin \theta_2 \cos \theta_2 e^{i\varphi_2(t)} (\rho_{22}(\tau) - \rho_{11}(\tau)) \\ & + \sin^2 \theta_2 e^{i[\varphi_2(t) + \varphi_2(\tau)]} \rho_{21}(\tau) + \cos^2 \theta_2 e^{i[\varphi_2(t) - \varphi_2(\tau)]} \rho_{12}(\tau). \end{aligned} \quad (25)$$

事实上并不是 $\rho_{12}(t)$ 中的每一项都对四波混频输出有所贡献. 根据位相匹配条件, 只有其中含有时间因子 $e^{i(\omega t + k_1 x - k_2 z)}$ 的项才会有贡献.

考察(25)式中的各项, 即可发现第2和第3项均不含有该因子, 因而都可不予考虑. 第1项是与能级布居数差 $(\rho_{22}(\tau) - \rho_{11}(\tau))$ 成比例的项. 利用(14a)和(14b)式, 该项可表示为

$$\frac{i}{2} (\sin 2\theta_2) e^{i\varphi_2(t)} [(\sigma_{22}^+ - \sigma_{11}^+) e^{-\tau/T_1} + (e^{-\tau/T_1} - 1)].$$

其中可能含有时间因子 $\exp(\omega t + k_1 x - k_2 z)$ 的又只是其中的以下部份:

$$\begin{aligned} & \frac{i}{2} (\sin 2\theta_2) e^{i\varphi_2(t)} \cdot e^{-\tau/T_1} (\sigma_{22}^+ - \sigma_{11}^+) \\ & = -\frac{i}{2} (\sin 2\theta_2) [\cos(2\theta_1 \cos k_2 z)] e^{i\varphi_2(t)} e^{-\tau/T_1}. \end{aligned} \quad (26)$$

该等式的获得利用了(12)式.

将展开式:

$$\cos(2\theta_1 \cos k_2 z) = \sum_{n=-\infty}^{\infty} (-1)^n J_{2n}(2\theta_1) e^{i2n k_2 z}$$

代入(26)式, 我们发现只有其中 $n = -1$ 的项满足位相匹配条件. 从而, 宏观极化矢量

中对四波混频输出有贡献的部分表示为

$$P_{\text{FWM}}(t) = -\frac{i}{2} [\sin 2\theta_2(t)] J_2(2\theta_1) e^{-t/T_1} \cdot e^{i(\omega t + k_1 x - k_2 z)} + \text{c.c.} \quad (27)$$

此处用到贝塞耳函数的以下性质: $J_{-2}(\theta) = J_2(\theta)$.

从此即得四波混频输出强度为

$$I_{\text{FWM}} \propto \frac{1}{4} [\sin 2\theta_2(t)]^2 [J_2(2\theta_1)]^2 e^{-2t/T_1}. \quad (28)$$

其中 θ_1 和 $\theta_2(t)$ 分别由 (11) 式和 (22) 式表示.

四、讨 论

1. 当 θ_1 和 θ_2 都很小于 1 时, 由于

$$\sin 2\theta_2(t) \sim 2\theta_2(t), \quad J_2(2\theta_1) \propto \theta_1^2,$$

故

$$I_{\text{FWM}} \propto \theta_1^2 \cdot \theta_2^2(t) e^{-2t/T_1}. \quad (29)$$

这意味着四波混频输出强度与三束光脉冲能量的乘积成比例. 这个结果与用微扰论处理所得结果一致. 这从另一个角度检验了本文处理方法的正确性. 这里, 四波混频输出强度是与泵浦光及探测光的脉冲能量而不是脉冲功率成正比. 这是因为在上面的理论推导

中, 我们已经隐含着这样的假定, 就是激光脉冲的宽度远小于二能级系统的弛豫时间 (T_1 和 T_2), 因此激光脉冲对系统的极化存在着积累效应.

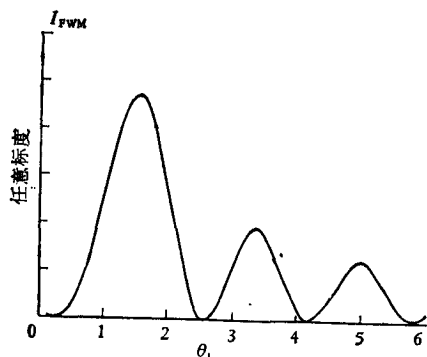


图 4

2. 当 θ_1 和 θ_2 由小变大, 亦即泵浦光和探测光脉冲能量由小变大时, 四波混频输出强度将逐步偏离 (29) 式给出的比例关系, 并出现与饱和效应有关的现象. 从 (28) 式看出, 固定 $\theta_2(t)$, I_{FWM} 随 $2\theta_1$ 的变化遵循贝塞耳函数的平方关系 (见图 4). 这意味着当固定探测光脉冲, 改变泵浦光脉冲能量时, 四波混频输出强度

最初随泵浦光脉冲能量增加而增加, 达到最大值后反而随泵浦光能量增加而减小. 当泵浦光脉冲能量增大到一定值时四波混频输出减小到零, 这相应于贝塞耳函数的第一个节点. 随后四波混频输出又逐渐增加到第二个极大, 接着又下降到零, 这相应于贝塞耳函数的第二个节点……. 这种变化规律在光学矢量模型的基础上完全可以理解. 前面我们已经指出 (参看 (25) 式), 极化矢量中对四波混频输出有贡献的部分是与 $(\sigma_{22}^+ - \sigma_{11}^+)$ 成比例的. 然而 $(\sigma_{22}^+ - \sigma_{11}^+)$ 就是经泵浦光脉冲作用后能级布居数之差值. 因此, 当这个差值为零时四波混频输出便应该等于零了. 如果利用光学矢量模型来描述, 这个差值就是这个模型中的赝矢量在 z 轴上的投影. 而我们又知道, 在共振光场的作用下, 随着光脉冲能量的增加, 这个赝矢量是在 yz 平面内以坐标原点为固定端而旋转的. 当它旋转到与 xy

平面平行时它在 z 轴的投影也就变为零了. 事实上当光脉冲能量不断增加时, 腰矢量是反复经过 xy 平面的, 因而在 z 轴的投影为零的现象也是反复出现的. 从(28)式还可看出, 当固定 θ_1 时, I_{FWM} 随 $2\theta_2(t)$ 的变化遵循正弦函数的平方关系 (见图 5). 这意味着, 当固定泵浦光并逐渐增大探测光脉冲的能量时, 四波混频输出强度随探测光脉冲能量的变化也是一种周期性关系——逐渐增大到极大, 然后减小到零, 再逐渐增大到极大, 再次逐渐减小到零……. 这种变化规律在光学矢量模型的基础上同样可以获得满意的解释. 现在, 在探测光脉冲作用下, 与四波混频输出直接相联系的是密度矩阵中的非对角元素 $\rho_{12}(t)$ (见(24)式). 此外, 前面已经指出, 如果以 $t = \tau$ 作为探测光脉冲作用的起始时间, $\rho_{11}(\tau)$, $\rho_{22}(\tau)$, $\rho_{12}(\tau)$ 作为密度矩阵的起始条件, 则只是 $\rho_{12}(t)$ 中与起始布居数差 $[\rho_{22}(\tau) - \rho_{11}(\tau)]$ 有关的部份才真正对四波混频有贡献. 已知, 起始布居数差 $[\rho_{22}(\tau) - \rho_{11}(\tau)]$ 在光学矢量模型中相当于一个以坐标原点为起点而又平行于 z 轴的一个矢量. 在共振的探测光作用下, 这个矢量将在 yz 平面上旋转, 并出现 y 分量. 这相当于 $\rho_{12}(t)$ 的出现. 随着探测光脉冲能量的增加, 这个矢量中的 y 分量逐渐增加至最大, 这时矢量平行于 xy 平面. 当探测光脉冲能量进一步增加, 这个矢量中的 y 分量再次减小. 当该矢量再次平行于 z 轴时, y 分量并因而 $\rho_{12}(t)$ 再次变为零. 这时四波混频输出为零. 当探测光脉冲能量再次增大时, 上述过程再次周期性地重复出现.

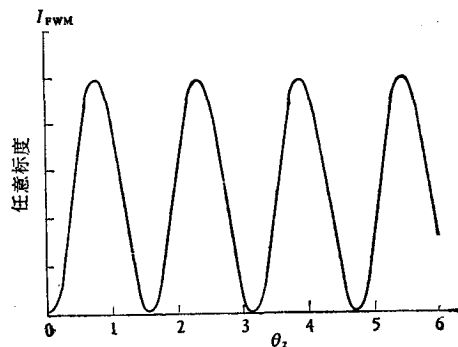


图 5

3. 从(28)式看出, 四波混频输出强度随探测光相对泵浦光的延迟时间 τ 指数式地衰减, 衰减的特征时间是系统的纵向弛豫时间 T_1 , 与横向弛豫时间 T_2 无关. 这是因为在现在的情形对四波混频输出有影响的只是在泵浦光脉冲作用后的能级布居差. 而能级布居差是以纵向弛豫时间 τ 衰减的.

4. 如果探测光是一个窄脉冲, 则该系统在探测光脉冲作用结束后, 根据(28)式四波混频输出将达到一定的量值. 此后, 输出讯号的变化将相应于 ρ_{12} 的一个自由衰减过程. 对于均匀加宽的二能级系统, ρ_{12} 将以横向弛豫时间 T_2 为特征时间指数衰减. 对于非均匀加宽的二能级系统, 与输出讯号成比例的应该是 ρ_{12} 对各种原子的平均值 $\bar{\rho}_{12}$. 而 $\bar{\rho}_{12}$ 的衰减主要来源于不同原子之间的失相, 因此衰减的时间常数将反比于频率的非均匀加宽.

参 考 文 献

- [1] R. M. Hellwarth, *J. Opt. Soc. Amer.*, **67** (1977), 1.
- [2] A. Yariv and D. M. Pepper, *Opt. Lett.*, **1** (1977), 16.
- [3] D. M. Bloom and G. C. Bjorklund, *Appl. Phys. Lett.*, **31** (1977), 592.
- [4] D. M. Bloom *et al.*, *Opt. Lett.*, **2** (1978), 58.
- [5] P. F. Liao and D. M. Bloom, *ibid.*, **3** (1978), 4.
- [6] N. Bloembergen, in "Laser Spectroscopy IV, ed. by H. Walther and K. W. Rothe, Springer Series Opt. Sci., **21** (Springer, Berlin, Heidelberg, New York, 1979) p. 340.

- [7] D. S. Hamilton, D. Heiman, J. Feinberg, R. W. Hellwarth, *Opt. Lett.* **4** (1979), 124.
- [8] J.-L. Oudar and Y. R. Shen, *Phys. Rev. A*, **22** (1980), 1141.
- [9] Ye Peixian and Shen, Y. R., *Phys. Rev. A*, **25** (1982), 2183.
- [10] L. Allen and J. H. Eberly, *Optical Resonance and Two-Level Atoms*, (John Wiley and Sons, New York, London, Sydney, Toronto).

NONPERTURBATION THEORY OF TIME-RESOLVED DEGENERATE FOUR-WAVE MIXING IN TWO-LEVEL SYSTEM

FU PAN-MING YE PEI-XIAN

(*Institute of Physics, Academia Sinica*)

ABSTRACT

In this paper, the time-resolved degenerate four-wave mixing in two-level system is treated rigorously with the density-matrix method. The phenomena related to the saturation effect are discussed. The physical origin of these phenomena is analysed.