## 级联三能级介质中非线性光学信号的增强\*

杜 丹<sup>1)2)</sup> 胡响明<sup>1)†</sup>

1)(华中师范大学物理科学与技术学院,武汉 430079)
 2)(南华大学数理学院,衡阳 421001)
 (2005年12月15日收到2006年1月9日收到修改稿)

揭示非最大相干可能比最大相干产生更有效的非线性频率转换.为此以三能级级联系统(没有最大相干)为 例计算其非线性光学信号的强度,并与三能级 △ 型系统(具有最大相干)进行比较.利用非微扰方法计算表明,在 双光子共振和相同参数的条件下,级联系统产生的非线性光学信号的最大强度约是 △ 系统的两倍.利用缀饰态表 象分析表明,两个系统中耦合跃迁的自发辐射及其介入的不可逆三光子过程具有相反的作用.它们在级联系统中 加强非线性转换,而在 △ 系统中削弱非线性转换.

关键词:电磁感应透明,非线性光学过程,双光子共振 PACC:4265,4255,4250

### 1.引 言

Harris<sup>11</sup>预言电磁感应透明可以增强非线性光 学信号的产生, Hakuta 等<sup>[2]</sup>用氢原子在实验上证实 了这个结论,究其原因,电磁感应透明使偶极禁戒 跃迁的能级之间建立最大的相干,通过混合驱动场 的频谱成分产生相应的差频、和频和四波混频.三 能级 ∧ 或者四能级双 ∧ 系统是产生最大相干的理 想系统.当所用光场调整为双光子共振(对∧系统 也称为拉曼共振)时,相干布居捕获发生,原子处 于暗态,从而获得最大相干<sup>[3,4]</sup>.Harris<sup>[5]</sup>研究组利 用原子 Pb 在实验上获得了从蓝光到紫外光的转换, 其中利用三能级  $\Lambda$  系统和四能级双  $\Lambda$  系统<sup>61</sup>的转 换效率分别为 40% 和 30%. Sautenkov 等<sup>[7]</sup>在 Rb 原 子蒸汽中利用快绝热通道制备最大原子相干获得了 混频的加强,理论分析表明,即使在双光子共振条 件下,非线性转换的效率强烈地依赖耦合场和信号 场与原子耦合的单光子失谐量,只有在缀饰态共振 的情况下才能产生最强的信号<sup>83</sup>. 应该注意,利用 电磁感应透明进行非线性转换时,系统并非严格地 运行于电磁感应透明或者相干捕获,如果是这样, 将没有任何信号出现,事实上,除非线性转换外, 包括许多其他的应用,如量子开关<sup>[9]</sup>、巨克尔非线

性<sup>[10]</sup>和超慢光孤子<sup>[11]</sup>等都需要对电磁感应透明进 行新的耦合.以非线性转换为例,即使一对光场在 Δ系统的两个低能级之间建立最大的相干,为了实 现非线性转换,必须引入第三个光场混合原子相干 才能产生信号场.第三个光场的引入,必定破坏原 有的相干捕获<sup>[8]</sup>.可见,非线性转换的效率并非直 接由最初制备的原子相干来决定.或者说,初始的 最大相干并非具有最高的转换效率.一个自然的问 题是,非最大相干可能比最大相干产生更有效的非 线性转换吗?

本文以三能级级联( $\Xi$ 型)系统为例表明其答案 是肯定的.通过比较发现,在相同的参数条件下, 级联系统产生的最大非线性光学信号比  $\Lambda$  系统高 出一倍.相同的参数条件是指两个系统的单光子失 谐量相同,均满足双光子共振,驱动场强度相同. 利用修饰态方法<sup>[12]</sup>分析其物理过程发现,两个系统 中耦合跃迁的自发辐射及其介入的三光子过程<sup>[13]</sup> 所起的作用正好相反.这样的过程在 $\Xi$ 系统中加强 信号场的产生,而在  $\Lambda$  型系统中则削弱非线性信号 的产生.

#### 2. 模型和方程

本文对比研究 Ξ 型系统 图 1(a))和 Λ 型系统

<sup>\*</sup>国家自然科学基金(批准号 160378008)资助的课题.

<sup>†</sup> 通讯联系人. E-mail:xmhu@phy.ccnu.edu.cn

(图 1(b)). 在级联系统中,两个激光场 $\frac{1}{2}E_1e^{-iw_1t}$ + c. c(c. c 为复共轭)和 $\frac{1}{2}E_2e^{-iw_2t}$  + c. c 分別耦 合|1 - |2 和|2 - |3 跃迁,另一激光场 $\frac{1}{2}E_3e^{-(w_1-\delta)t}$  + c. c 作用在|1 - |2 跃迁,在|2 - | 3 跃迁产生信号场 $\frac{1}{2}E_4e^{-(w_2+\delta)t}$  + c. c 系统的相位 匹配条件是 $k_1 + k_2 = k_3 + k_4$ . 在一适当旋转框架并 利用旋波近似,可推得密度矩阵运动方程

 $\dot{\rho} = -\frac{i}{\hbar} [H_0 + H_1, \rho] + \gamma_1 \mathcal{L}_{21}\rho + \gamma_2 \mathcal{L}_{32}\rho$  (1) 其中,  $H_0$  是自由哈密顿,  $H_1$  是原子与光场耦合的 哈密顿,即

$$H_{0} = -\hbar (\Delta_{1} + \Delta_{2})\sigma_{11} - \hbar\Delta_{2}\sigma_{22} , \qquad (2)$$

$$H_{1} = -\frac{\hbar}{2} (\Omega_{1} + \Omega_{3}e^{i\delta t})\sigma_{12}$$

$$-\frac{\hbar}{2} (\Omega_{2} + \Omega_{4}e^{-i\delta t})\sigma_{23} + H.c. \qquad (3)$$

在方程(3)中 *H*.*c* 表示前面项的厄米共轭项, $\Delta_1 = \omega_1 - \omega_{12}$ 和  $\Delta_2 = \omega_2 - \omega_{23}$ 是原子-场失谐量, $\omega_{12}$ 和  $\omega_{23}$ 分别是偶极跃迁|1 - |2 和|2 - |3 的共振频 率. $\Omega_1 = (\mu_{12} \cdot E_1 e^{ik_1 \cdot r}) \hbar$ , $\Omega_2 = (\mu_{23} \cdot E_2 e^{ik_2 \cdot r}) \hbar$ , $\Omega_3 = (\mu_{12} \cdot E_3 e^{ik_3 \cdot r}) \hbar$ , $\Omega_4 = (\mu_{23} \cdot E_4 e^{ik_4 \cdot r}) \hbar$  是各 场与介质耦合的拉比频率, $\mu_{ij}$ 是原子的偶极矩阵 元. $\sigma_{jk}$ 是原子的投影算子(j = k)和偶极算子( $j \neq k$ ).  $\mathcal{S}_{k\rho}$ 描述原子从态|k 到|j的衰减,

$$\mathscr{L}_{jkl} \rho = \frac{1}{2} (2\sigma_{jkl} \sigma_{kj} - \sigma_{jk} \sigma_{kjl} \rho - \rho \sigma_{jk} \sigma_{kj}), \quad (4)$$

γ1 是原子从能级 | 1 到 | 2 的衰减速率, γ2 是从能级 | 2 到 | 3 的衰减速率, 从方程(1-4)得到密度矩



图 1 系统模型的能级和跃迁 频率为  $\omega_1$ 和  $\omega_2$ 的光场建立原 子相干.频率为  $\omega_1 \mp \delta$ 的光场诱导频率为  $\omega_2 \pm \delta$ 的信号场的产 生.(a) 三型系统,(b)  $\Lambda$  型系统

#### 阵元的方程

$$\dot{\rho}_{12} = -\gamma_{12}\rho_{12} - \frac{i}{2}(\Omega_1 + \Omega_3 e^{-i\partial t}) \rho_{11} - \rho_{22} + \frac{i}{2}(\Omega_2^* + \Omega_4^* e^{i\partial t})\rho_{13} , \qquad (5)$$

$$\dot{\rho}_{23} = -\gamma_{23}\rho_{23} - \frac{i}{2}(\Omega_2 + \Omega_4 e^{-i\delta t}) \rho_{22} - \rho_{33} + \frac{i}{2}(\Omega_1^* + \Omega_3^* e^{i\delta t})\rho_{13} , \qquad (6)$$

$$\dot{\rho}_{13} = -\gamma_{13}\rho_{13} + \frac{1}{2}(\Omega_1 + \Omega_3 e^{-i\delta t})\rho_{23} - \frac{i}{2}(\Omega_2 + \Omega_4 e^{-i\delta t})\rho_{12}, \qquad (7)$$

$$\dot{\rho}_{11} = -\gamma_1 \rho_{11} - \frac{i}{2} (\Omega_1^* + \Omega_3^* e^{i\delta t}) \rho_{12} + \frac{i}{2} (\Omega_1 + \Omega_3 e^{-i\delta t}) \rho_{21} , \qquad (8)$$
$$\dot{\rho}_{33} = \gamma_2 \rho_{22} + \frac{i}{2} (\Omega_2^* + \Omega_4^* e^{i\delta t}) \rho_{23}$$

$$-\frac{\mathrm{i}}{2}(\Omega_2 + \Omega_4 \mathrm{e}^{-\mathrm{i}\delta t})\rho_{32} , \qquad (9)$$

并伴随有方程(5—7)的复共轭. 原子布居满足归一 性条件  $\rho_{11} + \rho_{22} + \rho_{33} = 1.$ 在方程(5—7)中定义了参 数  $\gamma_{12} = \frac{\gamma_1 + \gamma_2}{2} - i\Delta_1, \gamma_{23} = \frac{\gamma_2}{2} - i\Delta_2, \gamma_{13} = \frac{\gamma_1}{2} -$ (  $\Delta_1 + \Delta_2$ ).用非微扰方法可求解系统的密度矩阵 元的方程<sup>[14]</sup>. 将  $\rho_{jk}$ 作谐振展开

 $\rho_{jk} = \sum_{l=-\infty}^{+\infty} \rho_{jk}^{(1)} e^{ikt} \quad (j,k = 1,2,3), (10)$  其中  $\rho_{jk}^{(1)}$ 是慢变幅度.将展开式代入密度矩阵元的 方程(5—9),求得慢变幅度的定态解  $\rho_{jk}^{(1)}$ .

对 Λ 系 统(如图 1(b))可用同样的方法求解. 在 Λ 系 统中,两个激光场  $\frac{1}{2} E_1 e^{-iw_1 t} + c.c$ 和  $\frac{1}{2} E_2 e^{-iw_2 t} + c.c$ 分别耦合 |1 - |2和 |2 - |3 跃 迁,另一激光场  $\frac{1}{2} E_3 e^{-(w_1 + \delta)t} + c.c$ 作用在 |1 - |2 跃迁,在跃迁 |2 - |3产生信号场  $\frac{1}{2} E_4 e^{-(w_2 + \delta)t}$ + c.c.系统的相位匹配条件是  $k_1 - k_2 = k_3 - k_4$ . 各场与原子耦合的拉比频率分别为  $\Omega_1 = (\mu_{21} \cdot E_3 e^{ik_3 \cdot r}) \hbar$ ,  $\Omega_2 = (\mu_{23} \cdot E_2 e^{ik_2 \cdot r}) \hbar$ ,  $\Omega_3 = (\mu_{21} \cdot E_3 e^{ik_3 \cdot r}) \hbar$ ,  $\Omega_4 = (\mu_{23} \cdot E_4 e^{ik_4 \cdot r}) \hbar$ .失谐量定义为  $\Delta_1 = \omega_1 - \omega_{21}$ ,  $\Delta_2 = \omega_2 - \omega_{23}$ ,其中  $\omega_{21}$ 和  $\omega_{23}$ 分别是 偶极跃迁 |1 - |2和 |2 - |3的共振频率.  $\gamma_1$ 和

55 卷

 $\gamma_2$ 分别是原子从能级|2|到|1|和|3|的衰减速率.

#### 3. 非线性信号的增强

0.06

0.04

0.02

0.00

0.06

0.04

0.02

0.00

S

(a) -

系统产生的非线性光学信号的强度<sup>[6]</sup>正比于 *S* =  $|\rho_{23}(\omega_2 + \delta)|^2$ . 设  $\Omega_4 = 0$  计算这个极化. 容易 看出,信号场的强度最终取决于原子相干  $\rho_{23}(\omega_1 + \delta)$ 的大小,而并不是直接取决于初始制备的  $\rho_{13}$ 的 大小. 因此,即使初始时(耦合场  $\Omega_3$  不存在)制备  $\rho_{13}$ 取最大值  $\rho_{13} = \frac{1}{2}$ ,但是耦合场  $\Omega_3$  介入后,并不 必定保证  $|\rho_{23}(\omega_1 + \delta)|$ 取最大值. 图 2 是非线性信 号 *S* 与频差 δ 的函数关系. 假设失谐量、频差、拉比 频率和衰减率以  $\gamma_1 = \gamma_2$  为单位. 为便于比较,图 2 同时画出了两个系统在双光子共振和相同参数条件 下的非线性信号强度,其中实线代表级联系统在双 光子共振( $\Delta_1 = -\Delta_2 \neq 0$ )时的非线性光学信号强度, 点线代表 Λ 系统在单光子共振( $\Delta_1 = \Delta_2 = 0$ )时的强

 $- \Xi : \varDelta_1 = \varDelta_2 = 0$ 



度.点折线代表  $\Lambda$  系统在双光子共振(非单光子共振,  $\Delta_1 = \Delta_2 \neq 0$ )时的强度. 对  $\Xi$  型级联系统所取参

数为: $\Delta_1 = -\Delta_2 = 0$ (a), 6(b), 20(c), 40(d),  $\Omega_1$ =  $\Omega_2 = \Omega_3 = 4$ (a, b),  $\Omega_1 = \Omega_2 = \Omega_3 = 10$ (c),  $\Omega_1 =$ 

 $\Omega_2 = 10$ ,  $\Omega_3 = 4$ (d).注意将 $\Delta_1$ 换为 –  $\Delta_1$ ,  $\Omega_1$ 换为



图 2 三非线性光学信号强度与失谐量  $\delta$  之间的函数关 0);点折线: $\Lambda$ 型系统( $\Delta_1 = \Delta_2 \neq 0$ ). 参数见正文

上述结果可根据修饰态进行分析.在上述双光 子共振条件下,两个系统的相干过程是完全等价 的,从能级|2 到|3 的衰减也相同.唯一的差别是 能级|1 和|2 之间的自发辐射不同.Ξ系统中这个 自发辐射是从|1 到|2 ,而 Δ系统中是从|2 到 |1.显然,只能是这个过程的差别导致了上述结

图 2  $\Xi$ 非线性光学信号强度与失谐量  $\delta$  之间的函数关系 实线: $\Xi$ 型系统(  $\Delta_1 = -\Delta_2$  ) $\neq$ 0;点线: $\Lambda$  型系统(  $\Delta_1 = \Delta_2 =$ 

果的不同.为方便起见,以下计算和分析中假设  $\Omega_1$ 和  $\Omega_2$  为实数.给出  $\Xi$  系统的有关公式.只要将  $\Delta_1$ 替代  $-\Delta_1$ ,即可获得  $\Lambda$  系统的结果.考虑激光场  $E_1$ 和  $E_2$  对中间能级产生的分裂.在双光子共振 ( $\Delta_1 = -\Delta_2 = \Delta$ )条件下,这两个场与原子的耦合哈 密顿量及自由哈密顿量合写为

30

$$H_{2} = -\frac{\hbar}{2}\Delta\sigma_{22} - \frac{\hbar}{2}(\Omega_{1}\sigma_{12} + \Omega_{1}\sigma_{21}) - \frac{\hbar}{2}(\Omega_{2}\sigma_{23} + \Omega_{2}\sigma_{32}), \quad (11)$$

其本征值为

$$E_{0,\pm} = \hbar \lambda_{0,\pm} , \qquad (12)$$

其中

$$\lambda_{0} = 0 , \lambda_{\pm} = \frac{1}{2} \left( \Delta \pm \sqrt{\Delta^{2} + \Omega_{1}^{2} + \Omega_{2}^{2}} \right) . (13)$$

缀饰态用裸态表示为

$$\begin{pmatrix} | + \\ | 0 \\ | - \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} -\xi_{+} \Omega_{1} & -\xi_{0}\Omega_{2} & -\xi_{-} \Omega_{1} \\ \xi_{+} a_{+} & 0 & \xi_{-} a_{-} \\ -\xi_{+} \Omega_{2} & \xi_{0}\Omega_{1} & -\xi_{-} \Omega_{2} \end{pmatrix}^{+} = \begin{pmatrix} | 1 \\ | 2 \\ | 3 \end{pmatrix},$$
(14)

其中

$$\begin{aligned} a_{\pm} &= \Delta \pm \sqrt{\Delta^{2} + \Omega_{1}^{2} + \Omega_{2}^{2}}, \\ \xi_{\pm} &= \left(2\Omega_{1}^{2} + 2\Omega_{2}^{2} + 2\Delta^{2} \pm 2\Delta \sqrt{\Delta^{2} + \Omega_{1}^{2} + \Omega_{2}^{2}}\right)^{-1/2}, \\ \xi_{0} &= \left(\Omega_{1}^{2} + \Omega_{2}^{2}\right)^{-1/2}. \end{aligned}$$
(15)  
$$\stackrel{\text{H}}{=} \Delta \gg |\Omega_{i}| \gg 1 \text{ Pr}, \text{ ff } \xi_{+} a_{+} \approx 1, \xi_{-} a_{-} \approx 0, \text{ pr} \\ | + | \approx | 2. \end{aligned}$$
(16)



图 3 中间能级由于光场  $\Omega_1$  和  $\Omega_2$  作用产生的分裂及分裂后的 主要跃迁 (a) 上型系统 ,(b)  $\Lambda$  型系统

此时,中间能级|2 可由缀饰态|+ 取代,图3所

示. 当频差满足  $\delta \approx 2\Delta$  时, 驱动场  $E_3$  与缀饰态跃 迁 1 - + 发生共振耦合,两个系统均有三个过 程对信号的产生起作用 :| +  $\xrightarrow{\Omega_4}$  |3 ;|1  $\xrightarrow{\Omega_3}$  |+  $\xrightarrow{\Omega_4}$  | 3 ; | 3  $\xrightarrow{\Omega_1,\Omega_2}$  | 1  $\xrightarrow{\Omega_3}$  | +  $\xrightarrow{\Omega_4}$  | 3 . 对于  $\Xi$ 系统,从能级 1 到 2 自发辐射主要变成从能级 |1 到缀饰态|+ 的自发辐射.这个自发辐射增强 缀饰态 | + 的布居, 增强受激辐射, 从而加强信号 场. 同时 这个自发辐射介入一个不可逆三光子过 程<sup>[7]</sup>:  $|3 \xrightarrow{\Omega_2} |2 \xrightarrow{\Omega_1} |1 \xrightarrow{\gamma_1} |+$  这个过程增强 |+ 的布居,减少|3的布居.因此,这两个过程都 加强非线性信号的产生. 然而, 对于 $\Lambda$ 系统, 耦合 跃迁的自发辐射所起作用与 Ξ 系统正好相反.自发 辐射  $+ \xrightarrow{\gamma_1}$  1 减少 + 的布居. 同时自发辐射 介入的不可逆三光子过程 | +  $\xrightarrow{\gamma_1}$  | 1  $\xrightarrow{\Omega_2}$  | 2  $\stackrel{arOmega_2}{\longrightarrow}$ |3 减少|+ 的布居,增强低能态|3 的布居, 从而削弱非线性转换过程,正是由于自发辐射及其 介入的不可逆三光子过程所起着相反的作用,两个 系统产生非线性信号的最大强度才具有上述差别。

#### 4.结 论

总之,我们用非微扰法研究了级联系统中非线 性光学信号的增强.在双光子共振和相同参数条件 下,级联系统产生的最大非线性光学信号约是 Δ 系 统的两倍.利用缀饰态表象阐明了两个系统中唯一 不同过程(能级|1 和|2 之间的自发辐射)所起的 作用正好相反.在级联系统中,这个过程及其介入 的不可逆三光子过程加强非线性信号的产生.而在 Δ 系统中,这个过程及其介入的不可逆三光子过程 削弱非线性转换.

- [1] Harris S E, Field J E, Imamoğlu A 1990 Phys. Rev. Lett. 64 1107
- [2] Hakuta K, Marmet L, Stoicheff B P 1991 Phys. Rev. Lett. 66 596,

Zhang G Z , Hakuta K , Stoicheff B P 1993 Phys. Rev. Lett. 71 3099

- [3] Arimondo E 1996 Progress in Optics **35** ed Wolf E (Amsterdam : Elsevier) p 257
- [4] Zhou Y W, Ye C Y, Lin Q, Wang Y Z 2005 Acta Phys. Sin. 54 2799 (in Chinese)[周艳微、叶存云、林 强、王育竹 2005 物理 学报 54 2799]
  Liu Z D, Wu Q 2004 Acta Phys. Sin. 53 2970 (in Chinese)[刘 正东、武 强 2004 物理学报 53 2970]
  Huang S G, Gu W Y, Ma H Q 2004 Acta Phys. Sin. 53 4211 (in Chinese)[黄善国、顾畹仪、马海强 2004 物理学报 53 4211]
- $\left[ \ 5 \ \right] \quad$  Jain M  $\ ,$  Xia H  $\ ,$  Yin G Y  $\ ,$  Merriam A J  $\ ,$  Harris S E 1996 Phys  $\ .$

Rev. Lett. 77 4326

- [6] Merriam A J, Sharpe S J, Shverdin M, Manuszak D, Yin G Y, Harris S E 2000 Phys. Rev. Lett. 84 5308
- [7] Sautenkov V A, Ye C Y, Rostovtsev Y V, Welch G R, Scully M O 2004 Phys. Rev. A 70 033406
- [8] Harshawardhan W, Agarwal GS 1998 Phys. Rev. A 58 598
- [9] Harris S E , Yamamoto Y 1998 Phys. Rev. Lett. 81 3611 ,
   Yan M , Rickey E G , Zhu Y 2001 Phys. Rev. A 64 041801
- [10] Schimdt H, Imamoğlu A 1996 Opt. Lett. 21 1936,

Wang H , Goorskey D , Xiao M 2001 Phys. Rev. Lett. 87 073601 , Kang H , Zhu Y 2003 Phys. Rev. Lett. 91 093601

- [11] Wu Y, Deng L 2005 Phys. Rev. Lett. 93 143904
- [12] Cohen-Tannoudji C , Dupont-Roc J , Grynberg G 1992 Atom-Photon Interactions (New York : Wiley-Interscience ) p460
- [13] Sellin P B, Yu C C, Bochinski J R, Mossberg T W 1997 Phys. Rev. Lett. 78 1432
- [14] Hu X M, Cheng G L, Zou J H, Li X, Du D 2005 Opt. Commun. 249 543

# Enhancement of nonlinear-optical signals in a cascade three-level system \*

Du Dan<sup>1 (2)</sup> Hu Xiang-Ming<sup>1 )†</sup>

1) (College of Physical Science and Technology, Huazhong Normal University, Wuhan 430079, China)
2) (School of Mathematics and Physics, Nanhua University, Hengyang 421001, China)
(Received 9 December 2005; revised manuscript received 17 January 2006)

#### Abstract

In this paper we show that non-maximal coherence can lead to more efficient nonlinear frequency conversion than maximal coherence does. For this purpose we exemplify with the three-level cascade system ( with no maximal coherence ) to calculate the intensity of nonlinear-optical signal. A comparison is made between the  $\Xi$  system and the  $\Lambda$  system ( with maximal coherence ). The generated intensity is calculated by employing a nonperturbative approach. It is shown that under the conditions of the two-photon resonance and the same parameters , the largest intensity from the  $\Xi$  system is about twice as large as that from  $\Lambda$  system. The difference is analyzed in terms of dressed states. It is shown that both the spontaneous emission on the coupling transition and the spontaneous emission mediated three photon process play a contrary role for the two systems. These two processes enhance the generation of nonlinear signals for  $\Xi$  system but act contrarily for the  $\Lambda$  systems.

Keywords : electromagnetically induced transparency , nonlinear optical processes , two-photon resonance PACC : 4265 , 4255 , 4250

<sup>\*</sup> Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 60378008).

<sup>†</sup> Corresponding author. E-mail: xmhu@phy.ccnu.edu.cn