

原子的非线性光学响应

吴赛骏*

复旦大学物理系, 上海 200433, 中国。

本文档随教学进程跟新。

I. 回顾性讨论

上节课的最后, 我们运用随机波函数方法探索了一些思辨性的思想实验, 包括双原子相对位置在散射光作用下的局域化。这样的思想实验有益于推进我们对开放系统量子光学核心思想的理解、运用、甚至推广, 因此不仅有趣, 也很重要。

另一方面, 随机波函数方法结合了量子系统的非厄密演化和量子测量, 是实验量子技术的自然描述方法。随着人类量子技术的进步, 随机波函数思想实验渐渐可在实验室实现, 通过量子坍缩探测, 推测系统波函数演化, 实现量子反馈, 是当代及未来量子技术的关键组成部分。

然而, 在学习了随机波函数基本方法后, 同学们可能会有一个自然而然的印象: 是随机波函数是”随机“的, 感觉只能是数值计算, 似乎并不方便。这个印象并不准确。随机波函数方法结合概率理论可以用来解析推测系统的性质。本节课的我们会介绍最简单的两个例子。

在上半部分, 我们考察弱激发近似下的等效非厄密哈密顿量方法。该方法首先忽略量子坍缩, 通过直接求解非厄密哈密顿量的本征态来推测开放系统的性质。本节课, 我们将这个方法应用于多能级原子, 将困难的多能级非微扰计算转化为线性代数问题, 并结合多体量子坍缩图像, 从随机波函数的角度讨论非线性和频过程等重要的实用技术。我们还将介绍电磁感应透明, 拉曼增益等可实现脉冲光操控的基本非线性光学过程。

在下半部分, 我们考察系统本征态的能级间隔大, 强激发, 量子坍缩变得频繁的条件下的一类近似方法: 通过随机相位假设, 将主方程近似为速率方程。该方法允许我们将”量子绝热近似“应用到开放系统的随机波函数, 用于理解哈密顿量缓变的开放体系。我们将两个著名的激光冷却案例来展示该方法的优越性。

A. 非厄密哈密顿量的本征态

在 [L91E] 我们已经发现, 对于二能级原子来说, 如果 $|\Omega|^2 \ll \Delta^2 + \Gamma^2/4$, 那么系统在绝大多数时间都可以由 H_{eff} 的本征态 $|\tilde{g}\rangle$ 来描述, 系统的密度矩阵可以近似为 $\rho \approx |\tilde{g}\rangle\langle\tilde{g}|$ 。这个发现让我们轻而易举的对二能级原子的平均性质做出精确的预测。接下来, 我们要将此类方法推广到多能级原子。显而易见的是, 在此类方法中, 非厄密哈密顿量的本征值问题变得重要。本小节对非厄密哈密顿量的本征态一般特点, 及近似方法, 做一个介绍。下面我们一般考察非厄密等效哈密顿量

$$H_{\text{eff}} = H_0 - i\frac{\hbar}{2} \sum_j C_j^\dagger C_j \quad (1)$$

其中 H_0 是厄密部分, $H_0^\dagger = H_0$, C_j 部分是反厄密部分, $(i\hbar \sum_j C_j^\dagger C_j)^\dagger = -(i\hbar \sum_j C_j^\dagger C_j)$ 。

* saijunwu@fudan.edu.cn

1. 非厄密哈密顿量的严格”对角化“

对于 N -能级系统，我们可以定义非厄密哈密顿算符的本征态：

$$\begin{aligned} H_{\text{eff}}|\tilde{n}\rangle &= E_{\tilde{n}}|\tilde{n}\rangle \\ H_{\text{eff}}^\dagger|\underline{n}\rangle &= E_{\underline{n}}|\underline{n}\rangle \end{aligned} \quad (2)$$

注意，本征态完全集 $\{|\tilde{n}\rangle\}$, $\{|\underline{n}\rangle\}$ 虽然均是”完全“的，但是都并不正交，即一般情况下，

$$\langle\tilde{m}|\tilde{n}\rangle \neq \delta_{mn}$$

$$\langle\underline{m}|\underline{n}\rangle \neq \delta_{mn}$$

可是，通过对式 (2) 第二行取厄密共轭，我们很容易发现，

$$\begin{aligned} E_{\underline{n}} &= E_{\tilde{n}}^* \\ \langle\underline{m}|\tilde{n}\rangle &= \delta_{mn} \end{aligned} \quad (3)$$

因此我们完成”对角化“

$$\begin{aligned} H_{\text{eff}} &= \sum_n E_{\tilde{n}}|\tilde{n}\rangle\langle\underline{n}| \\ H_{\text{eff}}^\dagger &= \sum_n E_{\tilde{n}}^*|\underline{n}\rangle\langle\tilde{n}| \end{aligned} \quad (4)$$

物理上来说， $\{|\tilde{n}\rangle\}$ 可用来描述沿着正时间轴演化的态，而 $\{|\underline{n}\rangle\}$ 可用来描述沿着负时间轴演化的态。这样的”对角化“，实际应用中常常就变得比较复杂，巧妙的应用尚不多见。

2. 非厄密哈密顿量的近似对角化 - 1. 弱激发微扰

我们以原子和光相互作用为例，考虑 $C_j \sim \sqrt{\Gamma_{eg}^j}|g\rangle\langle e|$ ，因此可以将式 (1) 更加具体的写出：

$$\begin{aligned} H_{\text{eff}} &= \sum_e \hbar(\omega_e - i\frac{\Gamma_e}{2})|e\rangle\langle e| + \sum_g \hbar\omega_g|g\rangle\langle g| \\ &\quad - \sum_{g,e,l} \left(\hbar \frac{\Omega_{eg}^l e^{-\omega_l t} + c.c.}{2} |e\rangle\langle g| + h.c. \right) - \sum_{e,e',l} \left(\hbar \frac{\Omega_{ee'}^l e^{-i\omega_l t} + c.c.}{2} |e\rangle\langle e'| + h.c. \right) \end{aligned} \quad (5)$$

式 (5) 将原子系统的本征态分成两类：激发态 $\{|e\rangle\}$ 的特征是不稳定，有线宽 $\Gamma_e = \sum_{g,j} \Gamma_{eg}^j$ ，而基态 $\{|g\rangle\}$ 的特征是稳定，线宽为零。而 $|g\rangle - |e\rangle$ 之间， $|e\rangle - |e'\rangle$ 之间，均可能由激光驱动拉比频率 Ω_{eg}^l 耦合 (l 指标列举激光场)。

B. 多光子旋转波近似和变换

为了方便微扰计算，我们需要约化含时哈密顿量的特征时间尺度，方法是在 L3 已经介绍的旋转波变换。

我们以式 (5) 中激光驱动耦合项 $\left(\hbar \frac{\Omega_{eg}^l e^{-\omega_l t} + c.c.}{2} |e\rangle\langle g| + h.c. \right)$ 为例，其中 $|e\rangle\langle g|$ 升算符对应的驱动力分两部分， $\Omega_{eg}^l e^{-\omega_l t}$ 及 $c.c.$ 构成，这是因为在光和原子相互作用 $-\mathbf{E} \cdot \mathbf{d}$ 哈密顿量中，电磁算符 \mathbf{E} 总

是厄密的，在 l - 激光驱动下的期待值 $\mathcal{E}\alpha_l$ 是一个以 ω_l 振荡的实函数。这儿，和 L3 二能级原子一样，我们考虑到 $\omega_{eg} \approx \omega_l$ ，那么在 ξ/ω_l 的时间尺度上 ($\xi \gg 1$)，我们可以忽略 $-\omega_l$ 非共振的 *c.c.* 项。

进一步以图 (1b) 的 4-能级为例，考虑激发态近共振”单链耦合“。具体来说，在式 (5) 哈密顿量中，每一个激发态 $|e\rangle$ 仅有一个多光子吸收路径， $\omega_{e'g} \approx \sum_{l \in \{l_{e'}\}} \omega_l$ ，这样的话，式 (5) 中每一个激光驱动耦合项的 $e^{-i\omega_l t} + c.c.$ 项均可以按照原子算符的升降，以旋转波近似精神略去其中非共振项。对这些项的全面省略是多光子旋转波近似。同时，在这种”单链激发“下，我们可以将激光 l_e 和态 $|e\rangle$ 联系起来，从而忽略 Ω_{eg}^l 中的 l 指标，简化记号。

我们定义多光子失谐量：

$$\begin{aligned}\Delta_e &= \omega_{e,g} - \sum_{l \in \{l_e\}} \omega_l \\ \delta_{g'} &= \omega_{g',g} - \sum_{l \in \{l_{g'}\}} \omega_l\end{aligned}\tag{6}$$

可以在旋转波近似后，以旋转波变换将式 (5) 改写为不含时的哈密顿量：

$$\begin{aligned}H_{\text{eff}} &= \sum_e \hbar(\Delta_e - i\frac{\Gamma_e}{2})|e\rangle\langle e| + \sum_{g'} \hbar\delta_{g'}|g'\rangle\langle g'| \\ &\quad - \sum_{g,e} \left(\hbar\frac{\Omega_{eg}}{2}|e\rangle\langle g| + h.c. \right) - \sum_{e,e'} \left(\hbar\frac{\Omega_{ee'}}{2}|e\rangle\langle e'| + h.c. \right)\end{aligned}\tag{7}$$

在这个案例中，我们设了一个能级基准， $\omega_g = 0$ 。这个选择当然不是必须的，只是在接下来正对 $|\tilde{g}\rangle$ 微扰计算的记号上方便一些。注意式 (6)(7) 看似复杂，在图 (1b) 却一目了然：

1) 选定能量零点 $E_g = 0$ 及相应 $|g\rangle$ 。

2) 对以近共振驱动光 Ω_l 的频率 ω_l 首尾链接到其他”目标态“ $|e\rangle$ 或者 $|g'\rangle$ ，获得 $\sum_{l \in \{l_e\}} \omega_l$ 或者 $\sum_{l \in \{l_{g'}\}} \omega_l$ 。

进而由式 (6) 计算相对于 $|g\rangle$ 态的 n - 光子失谐量 $\Delta_e, \delta_{g'}$ 。

相应的，在该旋转波变换后，在 H_{eff} 中去除 $\Omega_{eg}, \Omega_{ee'}$ 的含时相因子。

C. 微扰解

我们考虑弱耦合， $|\Omega_{eg}|^2 \ll (\omega_e - \omega_g)^2 + \Gamma_e^2/4$ ，那么可以沿用类似于 [L9 式 (18)] 的方法，以 $\eta_{eg} = \sqrt{|\Omega_{eg}|^2 / ((\omega_e - \omega_g)^2 + \Gamma_e^2/4)}$ 为小量展开来计算 $|\tilde{g}\rangle$ 。我们设：

$$|\tilde{g}\rangle = |\tilde{g}^0\rangle + |\tilde{g}^1\rangle + \dots$$

$$E_{\tilde{g}} = E_{\tilde{g}}^0 + E_{\tilde{g}}^1 + \dots$$

我们首先考虑 $\lambda_e = 0$ ，此时很容易得到：

$$H_{\text{eff}}(\Omega_{eg} = 0)|\tilde{g}^0\rangle = 0$$

加下来，在求解本征函数一阶近似的时候运用零阶的能量，有

$$H_{\text{eff}}(|\tilde{g}^0\rangle + |\tilde{g}^1\rangle) = \hbar\omega_g(|\tilde{g}^0\rangle + |\tilde{g}^1\rangle)$$

我们只取一阶近似: $|\tilde{g}\rangle \approx |\tilde{g}^0\rangle + |\tilde{g}^1\rangle = c_g|g\rangle + \sum_{g' \neq g} c_{g'}|g'\rangle + \sum_e c_e|e\rangle$, 记 $g' \neq g$, 保留 $c_g = c_g^0 = 1$, 有

$$\begin{aligned} (\Delta_e - i\frac{\Gamma_e}{2})c_e - \sum_{e, g'} \frac{\Omega_{eg'}}{2} c_{g'} - \sum_e \frac{\Omega_{eg}}{2} c_e &= 0 \\ \delta_{g'} c_{g'} - \sum_e \frac{\Omega_{g'e}}{2} c_e &= 0 \end{aligned} \quad (8)$$

式 (8) 是一个满秩的线性代数方程, 可以方便求解, 获得在 η_e 线性近似下的 H_{eff} 本征态 $|\tilde{g}\rangle$ 。该微扰解的自洽条件是 $|c_e|^2, |c_{g' \neq g}|^2 \ll 1$ 。

显然, 类似的方法可以用于求解每一个本征态 $|\tilde{g}'\rangle, |\tilde{e}\rangle$ 。需要注意的是, 在 $O(\eta_{eg}^2)$ 级别上, 本征基矢 $\{|\tilde{g}\rangle, |\tilde{e}\rangle\}$ 构成了正交完备基, 因此可以对任意态 $|\psi\rangle$ 实现近似展开。其演化规律可以由 [L9 图 3(g,h)] 涵盖: 如果我们不考虑接近平衡前连续两次量子坍塌, 那么相干叠加态 $c_g|\tilde{g}\rangle + c_e|\tilde{e}\rangle$ 在经过阻尼振荡后, 在 $2/\Gamma_e$ 时间尺度上衰减为稳定的 $|\tilde{g}\rangle$ 。因此, 实际应用中, 我们常常就只用式 (8) 来计算 $|\tilde{g}\rangle$ 。并且获得:

$$\begin{aligned} \delta_{\tilde{g}} &= \langle \tilde{g} | H_0 | \tilde{g} \rangle \\ \gamma_{\tilde{g}} &= \sum_e |\langle e | \tilde{g} \rangle|^2 \Gamma_e \end{aligned} \quad (9)$$

分别是微扰作用下的基态能量移动和展宽 (图 (1))。接下来我们还会讲解和 $|\tilde{g}\rangle$ 相关的其他可观测量。

1. 非厄密哈密顿量的近似对角化 - 2. 厄密部分的对角化

上述微扰方法仅适用于系统稍微偏离厄密哈密顿量 H_0 的本征态 $\{|g\rangle, |e\rangle\}$ 的情形。最常见的条件是经典驱动 Ω_{eg} 足够小, 因此 $|\tilde{g}\rangle = |g\rangle + O(\eta_{eg})|e\rangle$ 展开是合理的。接下来我们将看到, 由于 $|\tilde{g}\rangle$ 的激发态成分少, 所以常常稳定, 可以用来描述物质的相干光学性质。因此, 这个弱激发近似在非线性光学中有非常重要和广泛的应用,

然而微扰方法当然是有局限的。事实上, 由式 (2) 我们已经发现, 即使所有 Ω_{eg} 均很小, 如果系统有多个基态, 常常仍无法保证 $|c_{g'}|^2 \ll 1$, 这个问题接下来我们会以电磁感应透明效应为例, 予以介绍。

更加一般的, 我们考虑式 (1) 中的更加可控部分 H_0 占主导, 而 C_j^\dagger, C_j 项损耗是微扰。那么, 我们可以首先对 H_0 实现对角化:

$$H_0|\bar{n}\rangle = E_{\bar{n}}|\bar{n}\rangle \quad (10)$$

这儿我们用 $|\bar{n}\rangle$ 来区别此前非厄密哈密顿量的本征态 $|\tilde{n}\rangle$ 。显然, 由于 H_0 是厄密的, 我们有 $E_{\bar{n}} \in R$, $\langle \bar{m} | \bar{n} \rangle = \delta_{mn}$ 。我们记

$$\begin{aligned} \omega_{\bar{n}} &= E_{\bar{n}}/\hbar \\ \gamma_{\bar{n}} &= \langle \bar{n} | \sum_j C_j^\dagger C_j | \bar{n} \rangle \\ \gamma_{\bar{n} \rightarrow \bar{m}} &= \sum_j |\langle \bar{m} | C_j | \bar{n} \rangle|^2 \end{aligned} \quad (11)$$

分别是 $|\bar{n}\rangle$ 态的”缀饰“能量, 缀饰“线宽, 及 $|\bar{m}\rangle$ 态向 $|\bar{n}\rangle$ 态的”光学泵浦率“。很明显, 我们有 $\gamma_{\bar{n}} = \sum_m \gamma_{\bar{n} \rightarrow \bar{m}}$ 。这些概率在本节课后半部分的速率方程有用。

D. 缀饰能级图像

在式 (6) 旋转波近似和变换后, 无论是式 (8) 中的 $|\tilde{g}\rangle$, 还是式 (10) 中的 $|\tilde{n}\rangle$, 均可以认为是经过“光场”缀饰“的原子本征态。当我们把原子态 $|\psi\rangle$ 写在“缀饰”基矢下, 一个重要的优势是可以运用在本节课最后部分介绍的量子绝热定律, 从而大大化简含时哈密顿量的动力学。相比于式 (8), 式 (10) 及相应的接下来要介绍的“速率方程”应用虽然更加普适, 但在非厄密演化特征的刻画方面, 在弱激发近似下不如式 (8) 精确。

II. 单基态原子的非线性光学响应

接下来我们运用式 (8) 计算如图 (1) ”单链链接“相干驱动的多能级原子的非线性光学响应。已经提到, 这样的”单链链接“近共振驱动系统, 在光强并不”巨大“, 满足旋转波近似条件的情形下, 可以将光和原子哈密顿量式 (5) 约化成不含时的形式。在此基础上, 我们假设弱激发: $|\Omega_{eg}|^2 \ll \Delta_e^2 + \Gamma_e^2/4$, 那么由 [L9 图 3g,h] 图像, 我们预期 $\rho \approx |\tilde{g}\rangle\langle\tilde{g}|$, 而 $|\tilde{g}\rangle = |g\rangle + \sum_e c_e |e\rangle$ 的微扰系数由式 (8) 线性方程组决定。

A. 二能级原子回顾

我们首先回顾一下图 (1a) 的二能级原子, 我们有:

$$|\tilde{g}\rangle \approx |g\rangle + \frac{\Omega/2}{\Delta - i\Gamma/2} |e\rangle$$

因此,

$$\begin{aligned} \delta_{\tilde{g}} &= -\frac{|\Omega|^2 \Delta}{4\Delta^2 + \Gamma^2} \\ \gamma_{\tilde{g}} &= \frac{|\Omega|^2 \Gamma}{4\Delta^2 + \Gamma^2} \end{aligned} \quad (12)$$

式 (12) 值得再讨论:

1) 注意, $\Delta = \omega_{eg} - \omega$, 因此对于”红失谐“激光, $\omega < \omega_{eg}$ 来说, $\delta_{\tilde{g}}$ 是负的, 这个在图 (1a) 中很形象: 在计入光子能量 ω 后, ”缀饰“能级在耦合作用下总是”互相排斥“的。

2) 随着失谐量 Δ 的增加, 基态的光散射 $\gamma_{\tilde{g}}$ 的减弱远快于光频移 $\delta_{\tilde{g}}$, 比例是

$$\frac{\gamma_{\tilde{g}}}{\delta_{\tilde{g}}} = \frac{\Gamma}{\Delta} \quad (13)$$

这个关系和我们在 [L9 式 (21)] 中原子极化率的比例 $2\alpha_i/\alpha_r = \Gamma/\Delta$ 对应。接下来, 在本节课中我们会发现这样的标度是玻璃透明的内在原因, 也是光镊可以操控小玻璃球的内在原因。

3) 随着失谐量 Δ 增加到光学频率 ω 的级别, 我们的旋转波近似会变差, 对 $\delta_{\tilde{g}}, \gamma_{\tilde{g}}$ 的计算均需要计入反旋转波项 (式 (5) 中的 c.c. 项), 进行更加细致的处理。

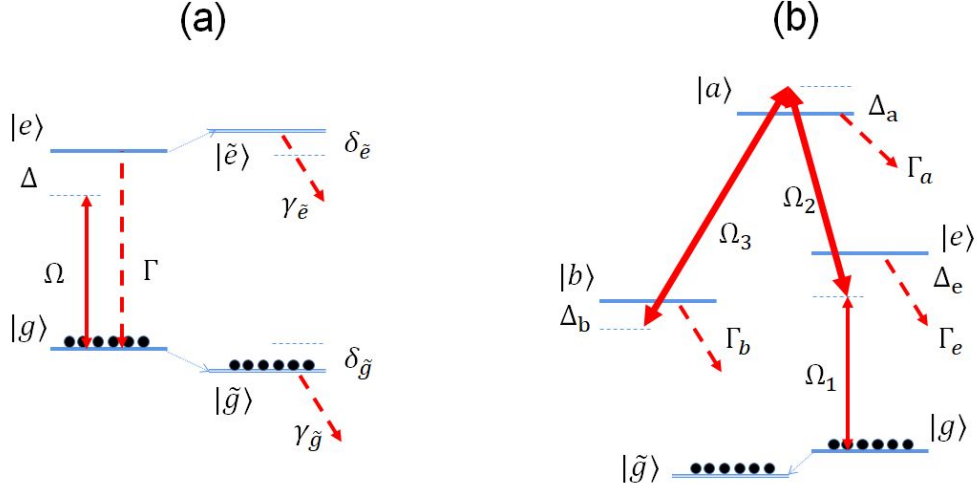


图 1. (a) Dressed state of a 2-level atom. The dressed $|\tilde{g}\rangle, |\tilde{e}\rangle$ states are marked with “====” double lines. the black dots represent the atomic population, which are mostly in $|\tilde{g}\rangle$ when $|\Omega|^2 \ll |\Delta^2 + \Gamma^2/4|$ (b) A 4-level interaction with dressed $|\tilde{g}\rangle$ with $|\Omega_1|^2 \ll \Delta_1^2 + \Gamma_e^2/4$.

B. N-光子散射和 N-波混频

我们接下来考虑图 (1b) 的四能级原子，有

$$H_{\text{eff}} = \hbar(\Delta_e - i\Gamma_e/2)|e\rangle\langle e| + \hbar(\Delta_a - i\Gamma_a/2)|a\rangle\langle a| + \hbar(\Delta_b - i\Gamma_b/2)|b\rangle\langle b| \\ - \hbar\frac{\Omega_1}{2}|e\rangle\langle g| - \hbar\frac{\Omega_2}{2}|a\rangle\langle e| - \hbar\frac{\Omega_3}{2}|a\rangle\langle b| + h.c.$$

我们接下来按照式 (8) 列方程

$$\begin{aligned} (\Delta_e - i\frac{\Gamma_e}{2})c_e - \frac{\Omega_1}{2} - \frac{\Omega_2^*}{2}c_a &= 0 \\ (\Delta_a - i\frac{\Gamma_a}{2})c_a - \frac{\Omega_2}{2}c_e - \frac{\Omega_3}{2}c_b &= 0 \\ (\Delta_b - i\frac{\Gamma_b}{2})c_b - \frac{\Omega_3^*}{2}c_a &= 0 \end{aligned} \quad (14)$$

从上式最后一行开始，一个一个往上带：

$$\begin{aligned} c_e &= \frac{\Omega_1/2}{\Delta_e - i\Gamma_e/2 - \frac{|\Omega_2|^2/4}{\Delta_a - i\Gamma_a/2 - \frac{|\Omega_3|^2/4}{\Delta_b - i\Gamma_b/2}}} \\ c_a &= \frac{\Omega_2/2}{\Delta_a - i\Gamma_a/2 - \frac{|\Omega_3|^2/4}{\Delta_b - i\Gamma_b/2}} c_e \\ c_b &= \frac{\Omega_3^*/2}{\Delta_b - i\Gamma_b/2} c_a \end{aligned} \quad (15)$$

这样，我们就完成了 $|\tilde{g}\rangle = |g\rangle + c_e|e\rangle + c_a|a\rangle + c_b|b\rangle$ ，以及 $\rho = |\tilde{g}\rangle\langle\tilde{g}|$ 的计算。显然，当 $\Omega_{2,3} = 0$ 时，该系统退化为图 (1a) 的二能级系统。注意，式 (15) 并不要求 Ω_2, Ω_3 很小。

1. N -光子散射

我们以图 (1b) 的这个四能级系统为例, 首先介绍 N -光子吸收-自发辐射过程, 这儿, 我们考虑的是 $N=3$, 并引入量子坍缩算符 $C_{b \rightarrow g} = \sqrt{\Gamma_{b \rightarrow g}}|g\rangle\langle b|$,

$$\begin{aligned}\gamma_{b \rightarrow g} &= \langle \tilde{g} | C_{b \rightarrow g}^\dagger C_{b \rightarrow g} | \tilde{g} \rangle \\ &= |c_b|^2 \Gamma_{b \rightarrow g} \\ &= \left| \frac{\Omega_1 \Omega_2 \Omega_3^* / 8}{\tilde{\Delta}_e \tilde{\Delta}_a \tilde{\Delta}_b - \tilde{\Delta}_e |\Omega_3|^2 - \tilde{\Delta}_b |\Omega_2|^2} \right|^2 \Gamma_{b \rightarrow g}\end{aligned}\quad (16)$$

其中我们用了简化记号: $\tilde{\Delta}_e = \Delta_e - i\Gamma_e/2$, 等等。注意, 式 (16) 并不要求 Ω_2, Ω_3 很小, 是非线性散射率在任意 $\Omega_{2,3}$ 下的非微扰表达, 其成立仅需 Ω_1 满足微扰近似。

当然, 如果 $\Omega_{2,3}$ 也是微扰的, 我们有:

$$\gamma_{b \rightarrow g} \rightarrow \left| \frac{\Omega_1 \Omega_2 \Omega_3^* / 8}{\tilde{\Delta}_e \tilde{\Delta}_a \tilde{\Delta}_b} \right|^2 \Gamma_{b \rightarrow g}$$

这个是非线性 3-光子散射的标准微扰结果。

当然, 我们也可以从式 (15) 计算

$$\gamma_{a \rightarrow b}$$

$$\gamma_{a \rightarrow e}$$

$$\gamma_{e \rightarrow g}$$

等等。

注意, 对于原子体系来说, 双光子散射率

$$\gamma_{a \rightarrow g}$$

常常是零, 原因是原子体系的哈密顿量是各向同性的, 因此宇称守恒, 而偶极跃迁伴随原子态的宇称变化, $|a\rangle$ 和 $|g\rangle$ 的宇称必然相同, 因此 $\mathbf{d}_{ag} = 0$ 。注意这个结论在固体物理中不见得成立。

我们可以考虑其他能级构型, 例如图 (2a) 中的 Lyman- α 光子产生, 其产生率应该是

$$\gamma_{12P \rightarrow 6S} = \left| \frac{\Omega_1 \Omega_2 \Omega_3 / 8}{\tilde{\Delta}_e \tilde{\Delta}_a \tilde{\Delta}_b - \tilde{\Delta}_e |\Omega_3|^2 - \tilde{\Delta}_b |\Omega_2|^2} \right|^2 \Gamma_{12P \rightarrow 6S}\quad (17)$$

只是 $\Omega_3^* \rightarrow \Omega_3$ 了, 没啥其他改变。

2. Lyman- α 光源

如图 (2) 所示, 通过对汞蒸气原子的 $\omega_{1,2,3}$ 激发, $12P \rightarrow 6S$ 的辐射在 121.6 nm, 和氢原子的 $1S - 2P$ 跃迁共振, 非常重要, 例如可用于操控氢原子和反氢原子 (由反质子和正电子构成), 对之进行激光冷却, 进而实现正反物质的精密光谱比对, 等, 意义深远。

然而图 (1) 考虑的是单原子, 式 (17) 考虑的是自发辐射, 强度低, 辐射方向随机, 非常不好用。Lyman- α 波长在真空紫外。这么短波长的相干辐射常常并不是直接由激光产生, 而是由较长波长激光

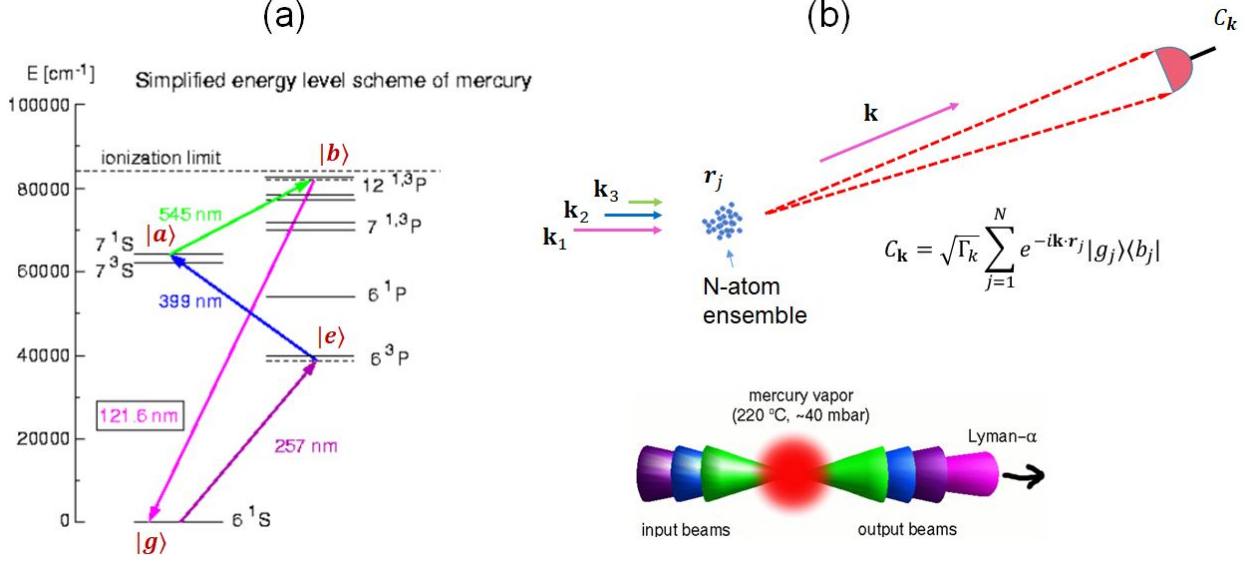


图 2. (a) Level diagram for frequency summation process in mercury vapor to generate Ly- α laser. (b) Top: Directional detection of Ly- α radiation and the associated collective quantum jump operator $C_{\mathbf{k}}$. Bottom: a schematic of the coherent radiation generation. The graphs are from MPQ: www.mpq.mpg.de/~haensch/antihydrogen/lyman-alpha.html

通过非线性频率转化实现。然而 $\lambda_{Ly-\alpha} = 121.6 \text{ nm}$ 实在太短了，在空气和介质中有强烈的吸收，没有透明光学晶体可用，无法由固体非线性光学元件混频产生（当前全世界最好的几种深紫外倍频晶体，如 BBO, KBBF 等，是由我国发明的，此类晶体的波长极限在 170 多纳米。）。事实上，Lyman- α 激光的产生方法非常有限 – 对于激光冷却等窄带宽应用来说，在这个波段的自由电子激光光谱亮度不够，当前人类主要通过如图 (2) 的原子蒸气和频产生。而实现图 (2) 的和频方法，需要在汞原子蒸气里面对非线性极化的原子偶极辐射实现“相位匹配”。接下来我们从量子光学的角度简要介绍这个非线性光学技术，从原子的非线性极化率开始。

3. 原子非线性极化率

为讨论实用和频技术方便，我们现在从图 (1b) 构型转到图 (2a) 构型。哈密顿量唯一的改变是 $\Omega_3 \rightarrow \Omega_3^*$ ，我们有 $|\tilde{g}\rangle = |g\rangle + c_e|e\rangle + c_a|a\rangle + c_b|b\rangle$ ，以及 $\rho = |\tilde{g}\rangle\langle\tilde{g}|$ ，

$$\begin{aligned}
 c_e &= \frac{\Omega_1/2}{\Delta_e - i\Gamma_e/2 - \frac{|\Omega_2|^2/4}{\Delta_a - i\Gamma_a/2 - \frac{|\Omega_3|^2/4}{\Delta_b - i\Gamma_b/2}}} \\
 c_a &= \frac{\Omega_2/2}{\Delta_a - i\Gamma_a/2 - \frac{|\Omega_3|^2/4}{\Delta_b - i\Gamma_b/2}} c_e \\
 c_b &= \frac{\Omega_3/2}{\Delta_b - i\Gamma_b/2} c_a
 \end{aligned} \tag{18}$$

我们考察原子的偶极矩期待值的复表达。注意，在计算观测量的时候，我们需要将旋转波变换对

应的含时相因子放在 \mathbf{d} 算符里面，因此有：

$$\begin{aligned}
\langle \mathbf{d} \rangle &= \mathbf{d}_{eg} \rho_{ge} e^{-i\omega_1 t} + \mathbf{d}_{ae} \rho_{ea} e^{-i\omega_2 t} + \mathbf{d}_{ba} \rho_{ab} e^{-i\omega_3 t} \\
&+ \mathbf{d}_{bg} \rho_{gb} e^{-i(\omega_1 + \omega_2 + \omega_3)t} \\
&= \mathbf{d}_{eg} c_e e^{-i\omega_1 t} + \mathbf{d}_{ae} c_e^* c_a e^{-i\omega_2 t} + \mathbf{d}_{ba} c_b^* c_a e^{-i\omega_3 t} \\
&+ \mathbf{d}_{bg} c_b e^{-i(\omega_1 + \omega_2 + \omega_3)t}
\end{aligned} \tag{19}$$

对于原子来说，根据宇称选择，我们在上式中已经将 $\langle \mathbf{d} \rangle$ 的展开中 $a \rightarrow g, b \rightarrow e$ 两项去除。式 (19) 中目前我们最关心的项是最后一项。我们先写出 c_b 的表达式：

$$c_b = \frac{\Omega_1 \Omega_2 \Omega_3 / 8}{\tilde{\Delta}_e \tilde{\Delta}_a \tilde{\Delta}_b - \tilde{\Delta}_e |\Omega_3|^2 - \tilde{\Delta}_b |\Omega_2|^2} \tag{20}$$

定义 $\mathbf{d}(\omega_1 + \omega_2 + \omega_3) = \alpha^{(3)} \mathbf{E}_1 \mathbf{E}_2 \mathbf{E}_3$ ，那么很容易获得原子的非线性极化率，

$$\alpha^{(3)}(\omega = \omega_1 + \omega_2 + \omega_3) = \frac{\mathbf{d}_{bg} \mathbf{d}_{ge} \mathbf{d}_{ea} \mathbf{d}_{ab} / 8 \hbar^3}{\tilde{\Delta}_e \tilde{\Delta}_a \tilde{\Delta}_b - \tilde{\Delta}_e |\Omega_3|^2 - \tilde{\Delta}_b |\Omega_2|^2} \tag{21}$$

注意，式 (21) 中的 $\alpha^{(3)}$ 对于 $\Omega_{2,3}$ 是非微扰解，因此，对 $\Omega_{2,3}$ 强驱动下的非线性极化也是成立的。

接下来，我们希望在大量原子中产生这种偶极振荡，并制造如图 (2b) 一样的相干辐射，形成 Lyman- α 激光。为此，我们考虑如图 (2b) 的原子体系，记原子位置为 $\mathbf{r}_j, j = 1, \dots, N$ ， N 个原子。我们简化分析，考虑每个原子看到的光场由入射激光主导（及原子间的光散射可以忽略），那么，和式 (18) 类似，我们可以写出在 $\Omega_{1,2,3}$ 驱动下的多原子量子态：

$$\begin{aligned}
|\psi\rangle &= \prod_j^N |\tilde{g}_j\rangle \\
&= \prod_j^N (|g_j\rangle + c_{e,j}|e_j\rangle + c_{a,j}|a_j\rangle + c_{b,j}|b_j\rangle)
\end{aligned} \tag{22}$$

其中我们关心的是：

$$c_{b,j} = \frac{\Omega_1(\mathbf{r}_j) \Omega_2(\mathbf{r}_j) \Omega_3(\mathbf{r}_j) / 8}{\tilde{\Delta}_e \tilde{\Delta}_a \tilde{\Delta}_b - \tilde{\Delta}_e |\Omega_3(\mathbf{r}_j)|^2 - \tilde{\Delta}_b |\Omega_2(\mathbf{r}_j)|^2} \tag{23}$$

4. 多原子集体辐射的量子坍缩图像

和 [L9 图 (11)] 的双原子量子坍缩类似，当我们对图 (2b) 的原子体系进行方向分辨远场监控时，无法区分收集到的 Lyman- α 光子是原子 $j = 1, \dots, N$ 中的哪个发出。因此可以引入集体坍缩算符：

$$C_{\mathbf{k}} = \sqrt{\Gamma_{\mathbf{k}}} \sum_j e^{-i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_j} |g_j\rangle \langle b_j| \tag{24}$$

其中 $\Gamma_{\mathbf{k}} \approx \frac{\delta\Omega}{4\pi} \Gamma_{bg}$ ， $\delta\Omega$ 时探测器的立体角。

我们计算式 (22) 多原子态下的量子坍缩率 (光子计数率)：

$$\begin{aligned}
\gamma_{\mathbf{k}, b \rightarrow g} &= \langle \psi | C_{\mathbf{k}}^\dagger C_{\mathbf{k}} | \psi \rangle \\
&= \sum_{j,l} c_{b,j}^* c_{b,l} e^{-i\mathbf{k} \cdot (\mathbf{r}_l - \mathbf{r}_j)} \Gamma_{\mathbf{k}} \\
&= \sum_j |c_{b,j}|^2 \Gamma_{\mathbf{k}} + \sum_{j \neq l} c_{b,j}^* c_{b,l} e^{-i\mathbf{k} \cdot (\mathbf{r}_l - \mathbf{r}_j)} \Gamma_{\mathbf{k}}
\end{aligned} \tag{25}$$

显然，如果式 (23) 中的 $c_{b,j}$ 系数的相位随机，而原子位置 \mathbf{r}_j 也随机，那么式 (25) 中第二项求和会平均到零，我们有

$$\gamma_{\mathbf{k},b \rightarrow \mathbf{g}} = N|c_b|^2\Gamma_{\mathbf{k}} \sim N\frac{\delta\Omega}{4\pi}\gamma_{12P \rightarrow 6S}$$

因此， N 个原子的 Lyman- α 光辐射，也就是单个原子各项同性辐射 (式 (17)) 的 N 倍而已。

5. 相位匹配

然而，如果我们仔细看式 (23)，对于如图 (2) 行波激光来说，我们发现 $c_{b,j} \propto e^{i(\mathbf{k}_1+\mathbf{k}_2+\mathbf{k}_3)\cdot\mathbf{r}_j}$ ，因此，

$$\begin{aligned} \gamma_{\mathbf{k},b \rightarrow \mathbf{g}} &= \sum_j |c_{b,j}|^2\Gamma_{\mathbf{k}} + \sum_{j \neq l} |c_{b,j}^*c_{b,l}|e^{i\Delta\mathbf{k}\cdot(\mathbf{r}_l-\mathbf{r}_j)}\Gamma_{\mathbf{k}} \\ &\sim (N + N(N-1)\varrho(\Delta\mathbf{k}))\frac{\delta\Omega}{4\pi}\gamma_{12P \rightarrow 6S} \end{aligned} \quad (26)$$

其中 $\varrho(\Delta\mathbf{k}) = \int d^3\mathbf{r}\varrho(\mathbf{r})e^{i\Delta\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}}$ 是归一化原子密度 $\varrho(\mathbf{r}) = \frac{1}{N}\sum_j^N \delta^3(\mathbf{r}-\mathbf{r}_j)$ 的傅里叶变换。

那么，如果有：

$$\Delta\mathbf{k} = \mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 + \mathbf{k}_3 - \mathbf{k} = 0 \quad (27)$$

那么 $\varrho(\Delta\mathbf{k} = 0) = 1$ ，式 (26) 括号中的第二项将提供远大于第一项的贡献。

事实上，在式 (27) 条件下，如式 (19) 的 $\mathbf{d}_j(\omega_1 + \omega_2 + \omega_3)$ 偶极子辐射沿着 \mathbf{k} 方向相干叠加，形成 Lyman- α 相干辐射。式 (27) 在如图 (1b) 等 N -光子过程中有显然的推广，被称为均匀介质非线性混频过程中的相位匹配条件。为讨论完备起见，我们同时列出能量守恒条件：

$$\Delta\omega = \omega_1 + \omega_2 + \omega_3 - \omega = 0 \quad (28)$$

接下来我们考虑 t 时刻光子计数，对于 $\Delta\mathbf{k} = 0$ 情况下，量子坍缩后的多体原子态是：

$$|\psi(t^+)\rangle = C_{\mathbf{k}}|\psi\rangle = \sum_j |\tilde{g}_1, \dots, g_j, \dots, \tilde{g}_N\rangle$$

我们发现，坍缩后的量子态是 N 个直积态的线性叠加。而在任何一个直积态，只有一个原子回到了“裸”基态 $|g_j\rangle$ ，其他原子仍然在 $|\tilde{g}\rangle$ 态。因此，量子坍缩对接下来的相干辐射率几乎不会有影响。而每个 $|g_j\rangle$ 成分也在 $2/\Gamma$ 的时间尺度上由非厄密演化回归到 $|\tilde{g}_j\rangle$ ，系统回归到直积态 $|\psi\rangle$ 。

C. 电磁感应透明和拉曼增益

我们考虑图 (3a,b) 的三能级“ Λ ”-系统。原子体系由激发态 $|e\rangle$ 和基态 $|g\rangle$, $|a\rangle$ 构成。振幅为 $\mathbf{E}_{1,2}$ 的激光场分别近共振驱动 $|g\rangle - |e\rangle$ 和 $|a\rangle - |e\rangle$ 跃迁。系统等效非厄密哈密顿量可以写为

$$H_{\text{eff}} = \hbar(\Delta_e - \frac{i\Gamma_e}{2})|e\rangle\langle e| + \hbar\Delta_a|a\rangle\langle a| - \frac{\hbar\Omega_1}{2}|e\rangle\langle g| - \frac{\hbar\Omega_2}{2}|e\rangle\langle a| + h.c. \quad (29)$$

其中 $\Delta_e = \omega_{eg} - \omega_1$ 是单光子失谐量， $\Delta_a = \omega_{ag} - \omega_1 + \omega_2$ 是双光子失谐量。量子坍缩算符： $C_1 = \sqrt{\Gamma_{eg}}|g\rangle\langle e|$, $C_2 = \sqrt{\Gamma_{ea}}|a\rangle\langle e|$ ，我们有激发态辐射线宽 $\Gamma_e = \Gamma_{eg} + \Gamma_{ea}$ 。

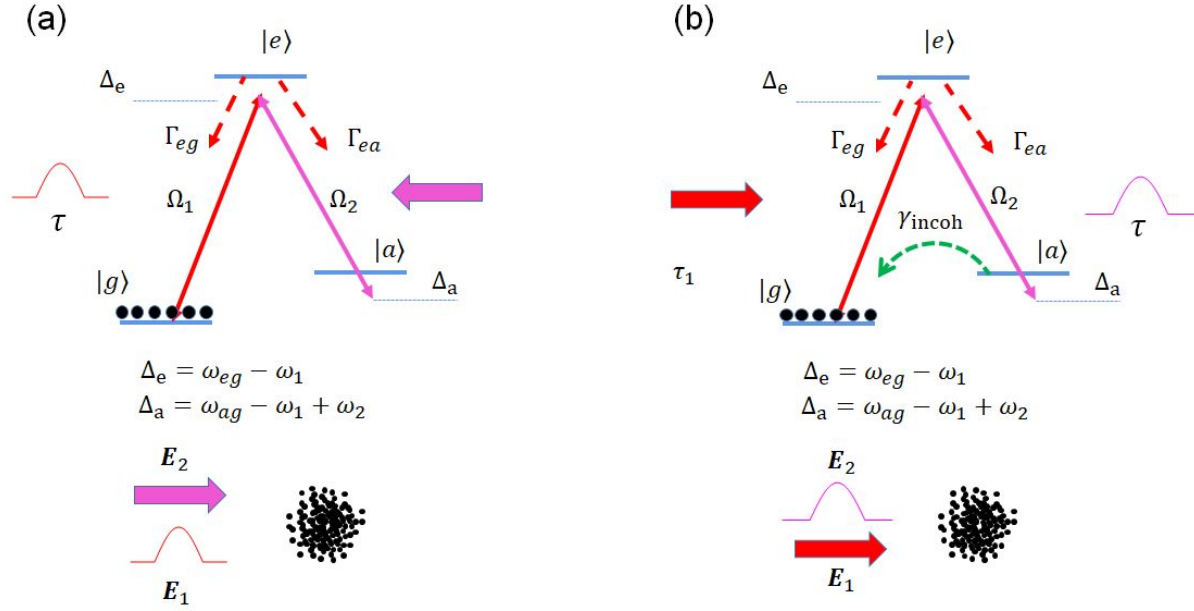


图 3. (a) Level diagram for electro-magnetically induced transparency in Λ -system. (b) Level diagram for Raman amplification in Λ -system.

现考虑初始时刻原子在 $|g\rangle$ 。因此，如果没有 \mathbf{E}_2 激光，那么如图下方的系综原子对 \mathbf{E}_1 的吸收和相移就完全类似于 [L9 式 (21)]。奇妙的是，如果加上 \mathbf{E}_2 激光并满足双光子共振条件，

$$\omega_a - \omega_g = \omega_1 - \omega_2$$

那么在系统的稳态 $|\tilde{g}\rangle\langle\tilde{g}|$ ， \mathbf{E}_1 的吸收会降低到零。这个叫电磁感应透明 (Electro-magnetically induced transparency, EIT)。如图 (3a) 所示，这样的干涉透明线性可以用来控制脉冲光 \mathbf{E}_1 ，只要脉冲光的宽度 τ “足够长”。

在 EIT 条件下，由于 $|a\rangle$ 态并没有布局，原子系综对 \mathbf{E}_2 的吸收当然也降到零。偏离双光子共振条件 $\Delta_a = 0$ ，原子布局会重新分布。如图 (3b) 所示，我们考虑有一种“非相干泵浦”机制，不断地将 $|a\rangle$ 态地布局抽运到 $|g\rangle$ ，这样的基态弛豫可以由 $|a\rangle - |e'\rangle$ 共振驱动下的自发辐射形成，对于分子转振能级来说，也常常可以由分子碰撞等非相干机制构成，“非相干泵浦”的引入可以保证即使 Ω_1 变强，基态原子仍能形成形成 $|g\rangle$ 态布局占主导的稳态。在数学处理上，我们需要在 H_{eff} 中对双光子失谐量引入虚部， $\Delta_a \rightarrow \Delta_a - i\gamma_{\text{incoh}}/2$ ，

$$H_{\text{eff}} = \hbar(\Delta_e - \frac{i\Gamma_e}{2})|e\rangle\langle e| + \hbar(\Delta_a - i\gamma_{\text{incoh}}/2)|a\rangle\langle a| - \frac{\hbar\Omega_1}{2}|e\rangle\langle g| - \frac{\hbar\Omega_2}{2}|e\rangle\langle a| + h.c. \quad (30)$$

我们会发现，这个虚部的引入正是 \mathbf{E}_2 光实现一种稳定的双光子增益 - 拉曼增益的前提条件。

1. EIT 的光散射率和极化率的微扰计算

以下我们先考虑 EIT, 对于 EIT, 不需要引入 γ_{incoh} , 我们运用式 (29) 哈密顿量, 按照式 (2) 的方案列出线性方程, 计算 $|\tilde{g}\rangle = |g\rangle + c_e|e\rangle + c_a|a\rangle$, 有

$$\begin{aligned} (\Delta_e - \frac{i\Gamma_e}{2})c_e + \frac{\Omega_2}{2}c_a + \frac{\Omega_1}{2} &= 0 \\ \frac{\Omega_2^*}{2}c_e + \Delta_a c_a &= 0 \end{aligned} \quad (31)$$

这个线性方程非常好解, 还是从下往上带入, 得:

$$\begin{aligned} c_e &= \frac{\Omega_1}{2} \frac{1}{\Delta_e - i\Gamma_e/2 - \frac{|\Omega_2|^2}{4\Delta_a}} \\ c_a &= \frac{\Omega_1\Omega_2^*}{2\Delta_a} \frac{1}{(\Delta_e - i\Gamma_e/2) - \frac{|\Omega_2|^2}{4\Delta_a}} \end{aligned} \quad (32)$$

接下来, 我们可以计算自发辐射率

$$\begin{aligned} \gamma &= |\langle e|\tilde{g}\rangle|^2\Gamma_e \\ &= \left| \frac{\Omega_1}{2} \frac{1}{\Delta_e - i\Gamma_e/2 - \frac{|\Omega_2|^2}{4\Delta_a}} \right|^2 \Gamma_e \end{aligned} \quad (33)$$

也可以计算 C_1, C_2 通道的量子坍塌率:

$$\begin{aligned} \gamma_1 &= \langle \tilde{g}|C_1^\dagger C_1|\tilde{g}\rangle = \frac{\Gamma_{eg}}{\Gamma}\gamma \\ \gamma_2 &= \langle \tilde{g}|C_2^\dagger C_2|\tilde{g}\rangle = \frac{\Gamma_{ea}}{\Gamma}\gamma \end{aligned}$$

式 (33) 已经可以展示 EIT 的奇妙性质: 如果 $\Omega_2 = 0$, 没有 \mathbf{E}_2 光, 那么式 (33) 的散射率表达式和式 (12) 完全相同。而加上 Ω_2 后, 表达式分母上一个 $|\Omega_2|^2/\Delta_a$ 项在 $\Delta_a \rightarrow 0$ 时趋于无穷, 会导致 $\gamma \rightarrow 0$ 。为了进一步理解这个光谱图像, 我们记:

$$\begin{aligned} \Delta_1 &= \Delta_e = \omega_{eg} - \omega_1, \\ \Delta_2 &= \Delta_e - \Delta_a = \omega_{ea} - \omega_2 \end{aligned} \quad (34)$$

即 $\Delta_2 = \omega_{ea} - \omega_2$ 是第二束激光 \mathbf{E}_2 对 $|e\rangle - |a\rangle$ 跃迁的失谐量, 原子的光散射率可以重写为:

$$\begin{aligned} \gamma &= |\langle e|\tilde{g}\rangle|^2\Gamma_e \\ &= \left| \frac{\Omega_1}{2} \frac{1}{\Delta_1 - i\Gamma_e/2 - \frac{|\Omega_2|^2/4}{\Delta_1 - \Delta_2}} \right|^2 \Gamma_e \end{aligned} \quad (35)$$

我们考虑 Δ_2 不变, 改变第一束激光的失谐量 Δ_1 , (图...).

接下来, 我们可以计算原子的偶极矩期待值

$$\begin{aligned} \langle \mathbf{d} \rangle &= \mathbf{d}_{eg}\rho_{ge}e^{-i\omega_1 t} + \mathbf{d}_{ea}\rho_{ae}e^{-i\omega_2 t} \\ &= \mathbf{d}_{eg}c_e e^{-i\omega_1 t} + \mathbf{d}_{ea}c_e c_a^* e^{-i\omega_2 t} \end{aligned} \quad (36)$$

我们考虑原子在 ω_1 驱动频率下的极化率, 我们发现,

$$\begin{aligned}\alpha(\omega_1) &= \frac{3\lambda_1^3}{4\pi^2} \frac{\Gamma_{eg}/2}{\Delta_e - i\Gamma_e/2 + \frac{|\Omega_2|^2/4}{\Delta_a}} \\ &= \frac{3\lambda_1^3}{4\pi^2} \frac{\Gamma_{eg}/2}{\Delta_1 - i\Gamma_e/2 + \frac{|\Omega_2|^2/4}{\Delta_1 - \Delta_2}}\end{aligned}\quad (37)$$

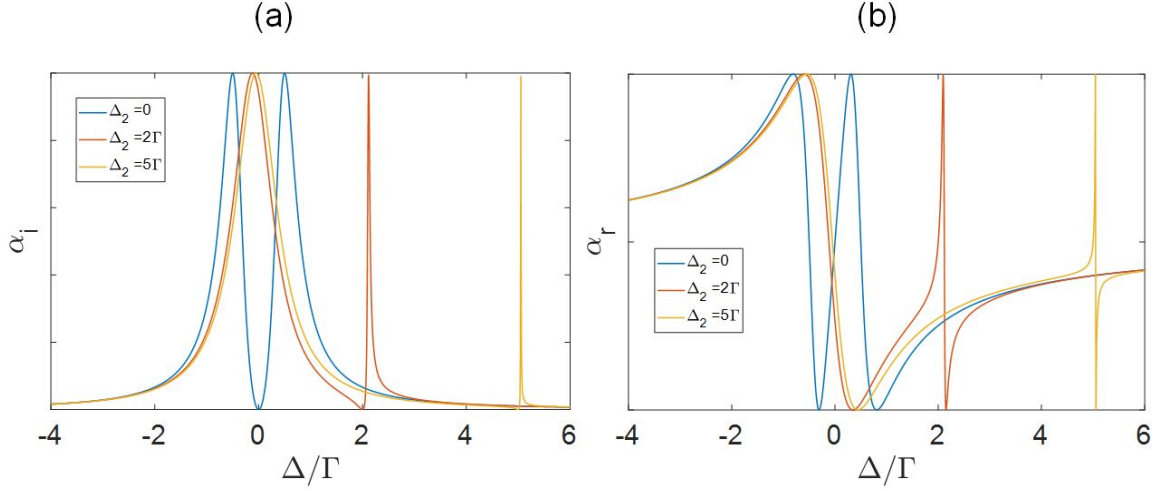


图 4. (a) real and (b) imaginary part of $\alpha(\omega_1)$ according to Eq. (37) at different control detuning Δ_2 .

2. 共振控制 - $\Delta_2 = 0$

如图 (4) 而在 $\Delta \ll |\Omega_2|$ 的“EIT”窗口内,

$$\begin{aligned}\alpha_r &\approx \frac{3\lambda^3}{4\pi^2} \frac{2\Delta\Gamma_{eg}}{|\Omega_2|^2} \\ \alpha_i &\approx \alpha_r \frac{2\Delta}{\Gamma_e}\end{aligned}\quad (38)$$

3. 相速度, 群速度, “慢光”

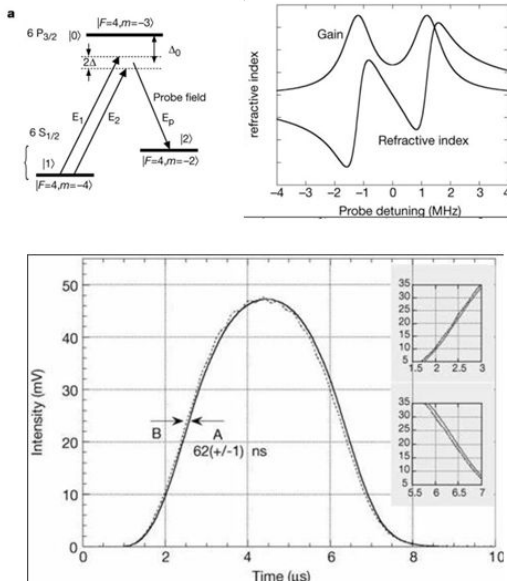
如图 (3) 的非线性光学过程, 实际上和图 (1b), 图 (2a), 没有本质区别, 都是非线性光学混频过程。在分析了单原子响应后, 可以推测多原子体系的集体辐射。在图 (2b) 案例中, 我们运用集体坍缩算符来考虑这件事, 因为频率为 $\omega = \omega_1 + \omega_2 + \omega_3$ 的“第四束光”本不存在, 这样的量子坍缩图像非常方便的将真空涨落融合到相干辐射过程。

而对于图 (3) 的过程, 我们需要考虑的是类似

$$\omega = \omega_1 - \omega_2 + \omega_2$$

$$\omega = \omega_1 - \omega_2 + \omega_2 - \omega_2 + \omega_2$$

(a) Gain-assisted superluminal pulses



(b) EIT and slow light

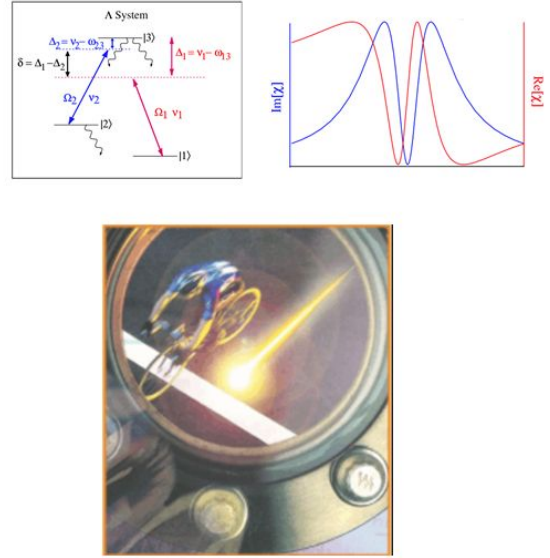


图 5. (a) Between two Raman resonances, anomalous dispersion is accompanied by optical Raman gain to realize superluminal propagation of pulses with negligible losses (from Nature 406, 277). (b) EIT and slow light in a coherently driven Bose-Einstein Condensate (from Nature 397, 594)

$$\omega = \omega_1 - \omega_2 + \omega_2 - \omega_2 + \omega_2 - \omega_2 + \omega_2$$

...

各类混频过程。这儿我们最后关心的是 ω_1 光子的传播特点。在这个情况下，一个更加方便的考察途径是回到 Maxwell 方程本身：

$$\nabla^2 \mathbf{E}_1 + k_1^2 \mathbf{E}_1 = -k_1^2 \sum_j \mathbf{d}_j \delta^3(\mathbf{r} - \mathbf{r}_j) \quad (39)$$

$$\nabla^2 \mathbf{E}_1 + k_1^2 \mathbf{E}_1 = -k_1^2 \chi(\mathbf{r}) \mathbf{E}_1$$

其中

$$\begin{aligned} \chi &= \varrho \alpha \\ \varrho &= \sum_j \delta^3(\mathbf{r} - \mathbf{r}_j) \end{aligned} \quad (40)$$

我们有 $k_2 \rightarrow nk_2$, 其中

$$n = \sqrt{1 + \chi} \approx 1 + \chi/2 \quad (41)$$

如果我们考虑光的波前传播, $\varphi(\mathbf{r}, t) = n\mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{r} - \omega_1 t$, 那么有相速度

$$v_p = \frac{\omega}{nk} = \frac{c}{n} \quad (42)$$

加下来我们考虑脉冲光, 由 $k = n\frac{\omega}{c}$, 可以推导波包的群速度

$$v_g = \frac{d\omega}{dk} = \frac{c}{n + \omega \frac{dn}{d\omega}} \quad (43)$$

4. 光场群速度的动态控制

由式 (37)(43) 可知, 在”控制光“共振, $\Delta_2 = 0$ 的调节下, EIT 透明窗口的宽度 $\delta\omega_{\text{EIT}} = |\Omega_2|$ 由控制光的拉比频率决定。而色散系数 $\frac{d\alpha_r}{d\omega} = \frac{3\lambda_1^3}{3\pi^2} \frac{2\Gamma_{eg}}{|\Omega_2|^2}$ 由控制光强决定。这些特点为光脉冲群速度的动态控制提供了可能。

需要注意的是, 式 (32) 的推导, 其前提调条件不仅包括 $|c_a|^2, |c_e|^2 \ll 1$, 也假设了哈密顿量式 (29) 是静态的。而我们将式 (32) 应用到如图 (3a)(5b) 中的脉冲光 Ω_1 , 其基本条件是脉冲光的脉宽 $\tau_p \gg 1/\delta\omega$, 其中 $\delta\omega$ 是 H_{eff} 本征能量的能隙, 具体量化, 需要应用到如下我们讨论的量子绝热定律 (式 (45))。可以肯定的是, 如果我们按照式 (38), 通过将 Ω_2 降到零的方式将光脉冲的群速度降到零, 绝热性会被破坏。因此基于 EIT 的光子存储似乎并不可行。然而事实上, 更加严格的推导可以证明, 这一非绝热贡献在大原子体系中, 特别是原子规则排列的光晶格体系中, 可以被很好的抑制。基于超精细基态冷原子光晶格 EIT, 及近年来发展的超精细固体色心光子存储方案在基于光量子计算, 光量子通讯等领域有重要的应用价值。

D. 拉曼增益

由式上述式 (36), 由于 $\mathbf{d}(\omega_1) \propto c_e$ 是光场振幅的线性函数, EIT 的微扰讨论在 Ω_1 小信号极限下是自洽的。然而类似的逻辑无法用于讨论 \mathbf{E}_2 光的吸收或增益时, 因为 $\mathbf{d}(\omega_2) \propto c_e c_a^*$, 我们接下来会发现, 是光场振幅的三次函数, 微扰计算无法取 $|\Omega_1|^2 \rightarrow 0$ 极限, 而模型的自洽需要我们引入如图 (3b) 的非相干泵浦项 γ_{incoh} 以确保系统的稳态 $|g\rangle$ 态布居主导。接下来我们运用式 (35) 等效哈密顿量, 结合式 (36), 考虑 ω_2 光对原子的极化:

$$\begin{aligned} \alpha(\omega_2) &= \mathbf{d}_{ea} \frac{\Omega_1}{2} \frac{1}{\Delta_e - i\Gamma_e/2 - \frac{|\Omega_2|^2/4}{\Delta_a - i\gamma_{\text{incoh}}/2}} \frac{\Omega_1^* \mathbf{d}_{ae}}{2\hbar} \frac{1}{(\Delta_e + i\Gamma_e/2)(\Delta_a + i\gamma_{\text{incoh}}/2) - |\Omega_2|^2/4} \\ &= \frac{3\lambda_2^3}{4\pi^2} \frac{\Gamma_{ea}/2}{\Delta_a + i\gamma_{\text{incoh}}/2} \left| \frac{\Omega_1/2}{\Delta_e - i\Gamma_e/2 - \frac{|\Omega_2|^2/4}{\Delta_a - i\gamma_{\text{incoh}}/2}} \right|^2 \end{aligned} \quad (44)$$

注意, $\alpha(\omega_2) \propto 1/(\Delta_a + i\gamma_{\text{incoh}})$ 的虚部是负数, 对于原子系综来说, 存在拉曼增益

$$G_R = -\text{Im}(2nk_2L) = -\rho\alpha_i k_2L$$

其中 L 是原子样品的长度。

E. 伴随增益的”快光“

按照式 (43), 和如图 (5b) 的慢光类似, 如果 $\frac{d\omega}{d\omega} < 0$ 存在反常色散, 那么脉冲光的群速度 v_g 可以高于光速, 甚至达到负值: 脉冲主体还没有进入介质就出来了。这个现象非常的反直觉, 甚至给人们以”超光速通讯“的幻想。

最简单的 $\frac{d\omega}{d\omega} < 0$ 体系实际上是二能级原子体系 [L9 式 (21)], 然而众所周知的是, 在二能级吸收介质中的反常色散伴随着强烈的吸收, 相应的”波包超光速移动“常常被教科书称为波形扭曲, 并没有获得重视。然而, 在 2000 年左右, 美国 NEC 实验室的王力军老师 (现清华大学) 做了一个著名的实验, 证明了波形不变, 振幅不变的脉冲也可以超光速, 这个有趣的实验在当时引起了广泛的讨论。如图

(5a) 所示，这个实验的关键是运用两束缀饰光形成双拉曼共振。在两个共振峰之间存在一个拉曼增益区，原子蒸气的线性折射率出现反常色散。因此可以做到伴随增益的快光，波形和振幅几乎完全不变。

因为双拉曼缀饰方法在能级图上并非如图 (1) 的单联通，因此不能简单的做旋转波近似。运用我们上述微扰理论到这个实验，还需要进一步结合”多时间尺度平均“的数学技巧。然而基本物理和上述微扰图像类似。原子蒸气在有增益的情况下具备强烈的反常色散确实可以让脉冲的群速度超光速，甚至称为负数。为何这样的反常传播不会破坏因果率？有兴趣的同学可以参考 Jackson 的电动力学，学习其中”光前驱波“(optical precursor) 的概念及计算方法。

III. 激光场中原子运动的准绝热图像

A. 绝热近似

由式 (10), 我们对任意量子初态展开:

$|\psi(0)\rangle = \sum_n c_n(0)|\bar{n}\rangle$, 如果系统完全按照 H_0 演化, 且 H_0 不显含时, 我们当然知道 $|\psi(t)\rangle = \sum_n c_n(0)e^{-i\omega_n t}|\bar{n}\rangle$ 。量子绝热定理是说, 如果 H_0 显含时, 则

$$|\psi(t)\rangle \approx \sum_n c_n(0)e^{-i\int_0^t \omega_n d\tau + \varphi_n^G(t)}|\bar{n}(t)\rangle \quad (45)$$

条件是哈密顿量缓变: $\langle \bar{m}|\partial_t|\bar{n}\rangle \ll \omega_{mn}$ 。更加严格一点的表述是非绝热跃迁概率低,

$$\left| \int_0^t \langle \bar{m}|\partial_t|\bar{n}\rangle e^{-i\omega_{mn}\tau} d\tau \right|^2 \ll 1. \quad (46)$$

式 (45) 中的 φ_n^G 是几何相位:

$$\varphi_n^G(t) = i \int_0^t \langle n|\partial_t|n\rangle d\tau \quad (47)$$

常常不重要, 但重要的时候常由于几何稳定性等特点, 变得特别重要。

B. ”缀饰态“基矢下的速率方程

我们回到主方程的一般形式:

$$i\hbar\dot{\rho} = [H_0, \rho] - \frac{i\hbar}{2} \sum_j (C_j^\dagger C_j \rho + \rho C_j^\dagger C_j - 2C_j \rho C_j^\dagger)$$

我们可以将主方程在式 (10) 的缀饰态基矢下展开

$$\begin{aligned} \dot{\rho}_{\bar{n}\bar{n}} &= -\gamma_{\bar{n}}\rho_{\bar{n}\bar{n}} + \sum_m \gamma_{\bar{m}\rightarrow\bar{n}}\rho_{\bar{m}\bar{m}}, \\ i\dot{\rho}_{\bar{n}\bar{m}} &= \omega_{\bar{n}\bar{m}}\rho_{\bar{n}\bar{m}} - L[\rho_{\bar{n}\bar{m}}] \end{aligned} \quad (48)$$

其中第二式的 $L[\rho_{\bar{n}\bar{m}}]$ ($m \neq n$) 的表达式可以直接由主方程展开获得, 在此不展开。

速率方程方法是对式 (48) 的第二式, $m \neq n$ 的相干元取 $\rho_{\bar{n}\bar{m}} \rightarrow 0$, 这个近似看似并不合理, 但是在系统有一定的随机扰动下, 包括自发辐射扰动下, 在一定时间尺度上常常变得合理, 原因是 $\rho_{\bar{n}\bar{m}}$ 的相因子变得随机。速率方程即式 (48) 的第一行, 其中散射率和光学泵浦率由式 (11) 给出。

对于二能级来说，主方程可以由如下速率方程代替：

$$\begin{aligned}\dot{\rho}_{\bar{e}\bar{e}} &= -\gamma_{\bar{e}\rightarrow\bar{g}}\rho_{\bar{e}\bar{e}} + \gamma_{\bar{g}\rightarrow\bar{e}}\rho_{\bar{g}\bar{g}} \\ \dot{\rho}_{\bar{g}\bar{g}} &= -\gamma_{\bar{g}\rightarrow\bar{e}}\rho_{\bar{g}\bar{g}} + \gamma_{\bar{e}\rightarrow\bar{g}}\rho_{\bar{e}\bar{e}}\end{aligned}\quad (49)$$

这个方程结合随机波函数方法，可以帮助在慢变化开放系统演化形成很好的直觉，案例见下面的“西西弗斯加热”。

C. 光力

全量子图像，见 [L9 式 (32-33)]

半经典图像：

$$\langle \mathbf{F} \rangle = -\text{trace}(\rho \nabla H) \quad (50)$$

随机波函数下：

$$\begin{aligned}\langle \mathbf{F} \rangle &= -\nabla (\langle \psi | H | \psi \rangle) + \\ &\langle \psi | H \nabla | \psi \rangle + c.c.\end{aligned}\quad (51)$$

其中第一项叫”反应力“，由内能的梯度造成，有点像保守力场的力 – 但是注意到由于随机量子坍塌的存在，其实不是保守力场。

第二项结合了“耗散力”（光压力），以及光场的几何力 (Berry phase 梯度导致)。

D. 西西弗斯加热

见图 (6)。

注意，由式 (11)，

$$\begin{aligned}\gamma_{\bar{e}} &= \dots \\ \gamma_{\bar{e}\rightarrow\bar{g}} &= \dots \\ \gamma_{\bar{g}} &= \dots \\ \gamma_{\bar{g}\rightarrow\bar{e}} &= \dots\end{aligned}$$

E. 西西弗斯偏振梯度冷却

图 (7) 是上个世纪 80 年代发展起来的激光冷却技术中著名的亚多普勒冷却图像之一。自上个世纪 70 年代理论预言开始，激光冷却技术发展一波三折，一个奇妙的事，是实验观测结果常常优于理论预期，在领域内被笑称以”反墨菲定律“的方式发展。在激光冷却的极限温度方面，在 1990 年以前，大

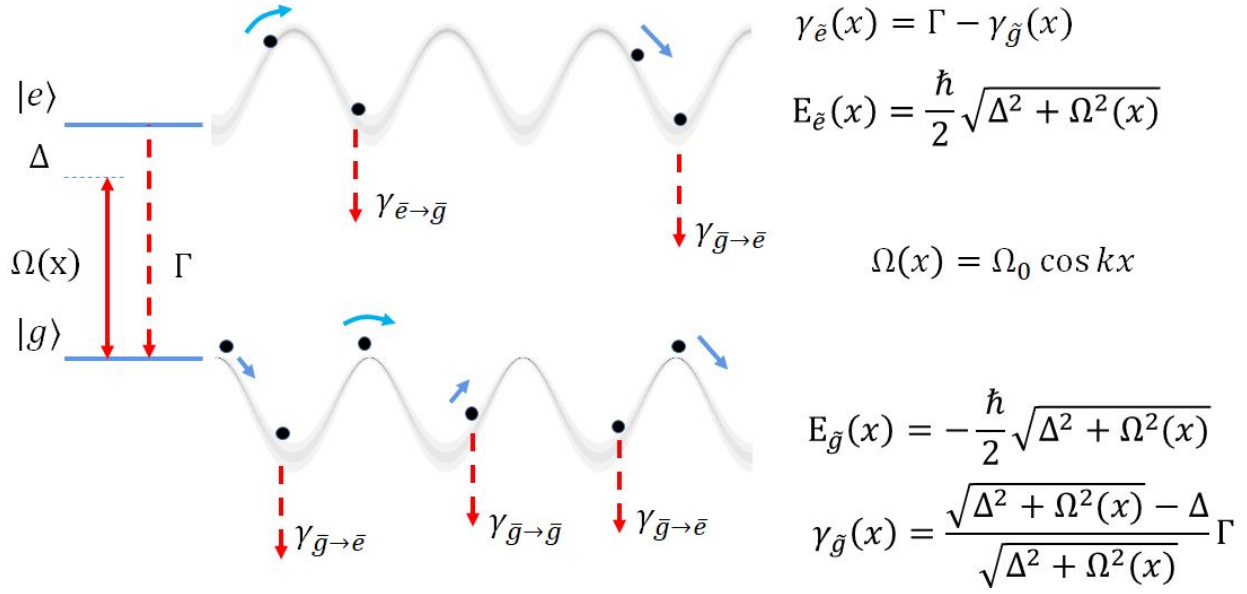


图 6. Sisyphus heating by a red-detuning standing wave

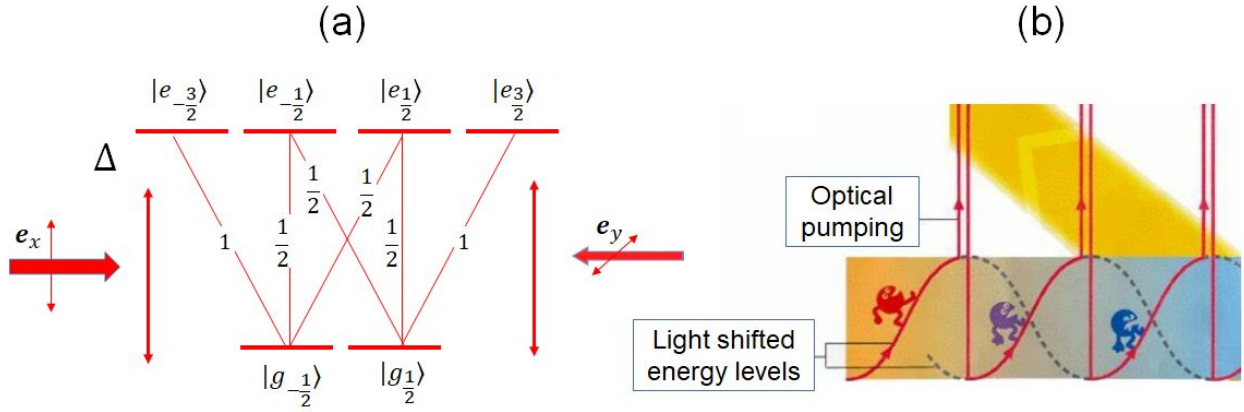


图 7. Sub-Doppler Sisyphus cooling in a red-detuning polarization gradient lattice (The (b) illustration is from a Nobel Physics 1997 poster)

家的统一认识是在光场中由动量阻尼系数 η 决定的运动阻尼和由动量扩散系数 D 决定的动量扩散平衡，最终原子温度会在 Doppler 极限: $T_D \sim \hbar\Gamma/k_B$, 其中 Γ 是二能级跃迁的线宽。这个预言很快被美国国家标准局的 William Phillips 教授以及 Bell 实验室的朱棣文教授打破 – 实验上发现，原子的温度远低于 Doppler 温度。而亚多普勒冷却机制由法国巴黎高等师范的 Claude Cohen-Tannoudji 教授系统给出。此三人因为这一重要技术领域的系列原创贡献被授予 1997 年的诺贝尔物理学奖。

具体到图 (7), 这个冷却机制是 Sisyphus 冷却，物理机制首先由朱棣文, Cohen-Tannoudji 及 Dalibard 给出。我们考虑光场是由沿着 $+z$ 方向传播的 \mathbf{e}_x 偏振光, 及沿着 $-z$ 方向传播的 \mathbf{e}_y 偏振光构成的”偏振晶格“, 在 z 处的光场可以写为:

$$\begin{aligned}
 \mathbf{E}(z) &= E_0(\mathbf{e}_x e^{ikz} + \mathbf{e}_y e^{-ikz}) \\
 &= \sqrt{2}E_0(\mathbf{e}_+ \cos kz + \mathbf{e}_- \sin kz)
 \end{aligned} \tag{52}$$

我们取 z 方向为角动量的量子化轴，由图 (7a) 可知，

$$H_{\text{eff}} = \sum_{m=-3/2}^{3/2} (\Delta - i\Gamma_e/2)|e_m\rangle\langle e_m| + \sum_{m=-1/2}^{1/2} c_m^{(+)} \frac{\Omega_0 \cos kz}{2} |g_m\rangle\langle e_{m+1}| + \sum_{m=-1/2}^{1/2} c_m^{(-)} \frac{\Omega_0 \sin kz}{2} |g_m\rangle\langle e_{m-1}| + h.c. \quad (53)$$

其中我们定义了最大拉比频率 $\Omega_0 = \sqrt{2}E_0(\mathbf{d}_{e_{3/2},g_{1/2}} \cdot \mathbf{e}_+)/\hbar$ ，而 c-g 系数平方 $|c_m^{(+)}|^2$, $|c_m^{(-)}|^2$ 由图 (7)a 给出。我们当然可以写出量子坍缩算符 (L8 图 5):

$$\begin{aligned} C_1 &= \sqrt{\Gamma/2}|g_{-\frac{1}{2}}\rangle\langle e_{\frac{1}{2}}| \\ C_0 &= \sqrt{\Gamma/2}(|g_{\frac{1}{2}}\rangle\langle e_{\frac{1}{2}}| + |g_{-\frac{1}{2}}\rangle\langle e_{-\frac{1}{2}}|) \\ C_{-1} &= \sqrt{\Gamma/2}|g_{\frac{1}{2}}\rangle\langle e_{-\frac{1}{2}}| \end{aligned}$$

接下来，我们考虑 $\Omega_0 \ll \Delta$ 的弱激发，对角化 H_{eff} ，方法上可运用微扰法 (式 (8)) 或 H_0 部分法 (式 (10))，均会发现如图 (7b) 的能量移动:

$$\begin{aligned} E_{\bar{g}_{1/2}} &= \frac{\hbar|\Omega_0|^2}{4\Delta} \left(\frac{1}{3} + \frac{2}{3}\cos^2 kz \right) \\ E_{\bar{g}_{-1/2}} &= \frac{\hbar|\Omega_0|^2}{4\Delta} \left(\frac{1}{3} + \frac{2}{3}\sin^2 kz \right) \end{aligned} \quad (54)$$

同时有

$$\begin{aligned} \gamma_{\bar{g}_{1/2} \rightarrow -1/2} &= \frac{2|\Omega_0|^2\Gamma}{9 \cdot 4\Delta^2} \sin^2 kz \\ \gamma_{\bar{g}_{-1/2} \rightarrow 1/2} &= \frac{2|\Omega_0|^2\Gamma}{9 \cdot 4\Delta^2} \cos^2 kz \end{aligned} \quad (55)$$

我们发现，当单光子失谐量 $\Delta = \omega_{eg} - \omega < 0$ 时，高能量缀饰态的布居转移率（离开率）也高，这个是 Sisyphus 冷却的必要条件（反观图 (6)，能量高的缀饰态布居转移率低）。接下来我们把原子的外态引入哈密顿量，并运用半经典近似，即可得到如图 (7b) 的“西西弗斯”冷却图像。该偏振梯度冷却极限在半经典近似下是光晶格的深度， $T_s \sim \frac{\hbar|\Omega_0|^2}{4\Delta k_B}$ ，形象直观，因此可以通过降低光强来降低平衡温度。然而计入质心运动的波动性后，我们发现存在“失耦”强度：光强低于该强度后 Sisyphus 就不工作了。最终温度极限由晶格的“反冲动量”决定， $T_s \sim T_{\text{recoil}} = \frac{\hbar^2 k^2}{2mk_B}$

第五次作业第一部分

1) 请详细推导式 (3)

2) 请从式 (15) 的推导开始, 就图 (1b) 给出原子在 ω_1 频率上的线性极化率 $\alpha(\omega_1)$, 并讨论如何通过控制 Ω_3 及其他光场参数, 调节长度为 L , 密度为 ρ 的原子蒸气室对 \mathbf{E}_1 光的透射率。

3) 就图 (2), 结合式 (25), 请讨论如何选取失谐量 $\Delta_e, \Delta_a, \Delta_b$, 结合 $\Omega_{1,2,3}$ 光强控制, 才能在获取 Lyman- α 相干辐射的同时尽可能减少 257 nm, 399 nm 光子的散射损失。

4) 请编写程序, 重现图 (5) 的极化率实部和虚部曲线, 并讨论汽室长度 L 和气体密度 ρ 以实现在一毫秒时间内将光场群速度维持在 10 m/s。