

学校代码: 10246

学号: 16110190039

復旦大學

博士学位论文

(学术学位)

冷原子气体光偶极自旋波的几何调控

Geometric control of optical dipole spin waves in cold atomic gases

院 系: 物理学系

专 业: 光 学

姓 名: 何亦尊

指导教师: 吴赛骏 教授

完成日期: 2021年05月26日

指导小组成员名单

吴赛骏 教授

目 录

中文摘要	I
英文摘要	III
第一章 引言	1
1.1 本文的研究背景	1
1.1.1 光与多体系统相互作用中的集体效应	1
1.1.2 光偶极自旋波	3
1.1.3 原子电偶极跃迁的量子调控	6
1.2 本文的研究内容	7
1.3 本文的结构安排	10
参考文献	11
第二章 光与原子、原子与原子的相互作用	21
2.1 本章概述	21
2.2 光与二能级原子的相互作用	21
2.2.1 偶极近似	21
2.2.2 无自发辐射二能级原子的演化	22
2.2.3 基于啁啾脉冲的绝热过程	26
2.2.4 自发辐射与主方程	31
2.2.5 弱激发下电偶极子的演化方程	34
2.3 原子间的偶极-偶极相互作用	35
2.3.1 电偶极子的辐射场	35
2.3.2 经典电偶极子的耦合方程	36
2.3.3 多原子主方程——弱激发近似	36
2.3.4 Maxwell-Bloch 方程	41
参考文献	43

第三章	新型光偶极自旋波调控方案与实验系统介绍	47
3.1	本章概述	47
3.2	自旋波的亚波长分辨几何调控方案	47
3.2.1	相位匹配自旋波的激发	47
3.2.2	自旋相关光子动量转移	49
3.2.3	基于几何相位的自旋波调控	52
3.3	^{87}Rb 的冷原子样品	54
3.3.1	^{87}Rb 的 $D1$ 、 $D2$ 线能级结构	54
3.3.2	多普勒冷却原理	55
3.3.3	磁光阱原理	56
3.3.4	偏振梯度冷却	57
3.3.5	光偶极阱	58
3.3.6	蒸发冷却原理	59
3.3.7	冷原子样品的实验制备	60
3.4	基于高速光纤电光调制的任意波形脉冲产生系统	63
3.4.1	$D1$ 线高带宽任意波形激光系统	64
3.4.2	$D2$ 线激光冷却与任意波形激光系统	69
	参考文献	71
第四章	光偶极自旋波的几何调控——超、亚辐射的高效转换	75
4.1	本章概述	75
4.2	光偶极自旋波调控的实现	75
4.2.1	自旋波激发与调控光路设计	75
4.2.2	集体超、亚辐射的几何控制	78
4.3	自旋波调控效率的标定与优化	84
4.3.1	自旋波调控的加速测量	84
4.3.2	基于“动量晶格”的理论模型	86
4.3.3	自旋波调控效率的分析——实验测量与数值模拟	92
4.4	本章小结	97
	参考文献	98

第五章	光偶极自旋波的几何调控——自旋波的弛豫动力学	101
5.1	本章概述	101
5.2	自旋波的弛豫	102
5.3	自旋波弛豫动力学的超辐射探测	106
5.3.1	测量与定标原子样品的光学深度和密度分布	106
5.3.2	相位匹配自旋波的演化	110
5.3.3	相位失配自旋波的演化	115
5.4	偶极-偶极近场相互作用下自旋波的失相行为	119
5.4.1	自旋波的近场弛豫——理论分析	119
5.4.2	自旋波的近场弛豫——多能级修正	125
5.4.3	对 $\Gamma_{\mathbf{k}_s}$ 实验测量结果的分析	128
5.5	本章小结	130
	参考文献	131
第六章	总结与展望	135
6.1	本文总结	135
6.2	对本文研究工作的一些展望	137
	参考文献	138
	攻读学位期间研究成果	141
	致 谢	143
	论文声明	145

摘要

光学波段的电偶极跃迁是中性原子与光相互作用最重要的形式。对于宏观多原子体系来说，电偶极跃迁表现为光子和光偶极自旋波（或称电偶极自旋波）激发的互相转化。在空间模式匹配的条件下，行波光模式的电偶极激发会导致集体增强的定向自发辐射，这使得与行波光场相位匹配的光偶极自旋波调控在诸如量子通讯、量子存储等领域中起着重要的作用。另一方面，不满足相位匹配条件的自旋波的远场辐射由于组分原子辐射的相干相消而被“屏蔽”，自旋波会表现出亚辐射的性质。近年来的前沿研究表明，相位失配自旋波蕴藏着丰富的以电偶极-偶极多体相互作用为基础的新奇物理现象，在新型的非线性光量子存储技术，超低光强非线性量子光学，及精密光钟等基础和实用技术中有潜在重要应用。然而，相位失配自旋波的激发是量子光学领域中的一大难题：由定义可知，相位失配光偶极自旋波与远场光激发是解耦的；而行波光场的自旋波激发必然满足相位匹配条件。

本论文工作综合 M. O. Scully 和 J. Ruostekoski 等发展的早期技术提案，通过发展高速、高保真度的电偶极跃迁几何容错调控技术，在冷原子气体中实现了光偶极自旋波相位匹配条件的时域高效调控，超辐射和亚辐射相干切换，进而运用无背景超辐射测量研究了亚辐射状态下自旋波近场弛豫的动力学，并成功测出了弛豫时间常数。本工作的主要研究成果概括如下：

一、针对光学波段电偶极跃迁精密调控的技术需要，我们发展了独特的高带宽任意波形相干脉冲产生技术，实现了高精度且光强容错的电偶极跃迁时序控制。具体来说，该技术可产生波形精密可控的亚纳秒啁啾和复合脉冲，并形成带宽高达 13 GHz、相干时长近一微秒（连续激光线宽限制）的光脉冲任意时间序列。在此基础上，我们在时域上实现了对自由原子强光学跃迁的容错复合调控。

二、运用双模光场电偶极跃迁容错调控，我们在纳秒时间尺度实现了铷原子 D_2 跃迁光偶极自旋相关的双光子动量转移，获得了高达 $10^6 g$ 的瞬时物质波自旋相关加速。而该动量转移伴随着光偶极自旋波在实空间中的亚波长分辨几何相位写入，及倒空间中的大范围波矢平移。此系列技术允许我们首次在电偶极跃迁上实现冷原子气体相位匹配自旋波和相位失配自旋波的高效相干切换，进而实现超辐射和亚辐射的相干切换。

三、运用超辐射和亚辐射的相干切换技术，我们对冷原子样品在亚辐射状态下的光偶极自旋波近场弛豫实现了基于远场超辐射无背景探测的测量。具体来说，通过将自由演化的相位失配自旋波转化为具有定向自发辐射的相位匹配

自旋波并利用超辐射探测读取近场相互作用信息，我们首次在光学波段的电偶极跃迁中观测到了随机原子气体密度依赖的自旋波近场弛豫行为，并在运动效应被极大抑制的冷原子体系中实现了弛豫时间常数的测量。

四、基于电偶极-偶极相互作用的基本原理，我们在理论上研究了随机原子气体中光偶极自旋波的近场弛豫动力学。具体来说，我们从近邻原子对的近场相互作用理论出发，结合原子样品的二体分布，揭示了宏观 Maxwell-Bloch 方程所不能解释的、与微观粒子无序性相关的、在原子气体系统中普遍存在的自旋波近场弛豫机制，并结合解析推导和数值模拟得到近场弛豫速率与原子能级结构、原子密度的依赖关系，成功地解释了实验测量结果。

本工作通过探索发展高带宽连续光任意调制技术，结合孤立跃迁的几何资源，实现了强光学跃迁的容错精密调控。注意到光偶极自旋波操控本身是一种常规非线性光学技术，本工作的特点在于突破此前非线性光学领域的“微扰”调控或“强场”调控下的多能级扰动，在亚纳秒时间尺度上发展强光学跃迁的容错精密调控技术，并实现了光偶极自旋波的复杂时序控制。这使得我们能首次通过远场辐射的含时调控来观测光偶极自旋波的近场相互作用微观动力学。我们希望本论文工作能推动基于近共振光偶极自旋波精密调控的新一代非线性量子光学技术的发展。

关键词： 超辐射，亚辐射，几何量子调控，自旋波调控，电偶极相互作用，冷原子，任意波形光脉冲

中图分类号： O431.2;O562

Abstract

Electric dipole transitions are the most important forms of interactions between neutral atoms and light. In the optical domain, electric dipole transitions of many-atom systems are represented by the couplings between the photon field and the optical dipole spin-wave excitations (or electric dipole spin-wave excitations). With the spatial mode matching, the traveling light leads to spin-wave excitations with collectively enhanced directional spontaneous emission. Such collective enhanced interaction between the phase-matched spin wave and light forms an important basis for many quantum optical technologies, such as optical quantum memory and quantum communication. On the other hand, spin waves with broken phase-matching condition can be subradiant, that is, the far-field radiation is suppressed due to destructive interference of emission from constituent atoms in the ensemble. Recently, investigations on novel physical effects and phenomena associated with phase-mismatched spin waves have become a new frontier in quantum optics. In particular, in cold atomic samples, the electric dipole-dipole interaction in the many-atom system can be enhanced in the subradiant regime, leading to highly nontrivial many-body effects in the optical domain, with many anticipated applications, such as to develop a next-generation nonlinear quantum memory, to enable nonlinear quantum optics at ultralow light level, and to enhance the precision of ensemble-based optical clocks. However, control of the phase-mismatched spin-wave excitations remains an outstanding experimental challenge: by definition, phase-mismatched spin waves are naturally decoupled from far-field radiation; conversely, control field composed of traveling light usually leads to excitations of phase-matched spin waves.

Inspired by early proposals by M. O. Scull and J. Ruostekosi *et al.*, we develop a technique to rapidly and precisely control optical dipole spin waves. Key to our technique is to overcome intensity inhomogeneity of control light, by exploring geometric robustness of electric dipole transitions. With the technique, we realize the time-domain phase-matching control for optical dipole spin waves, so as to coherently convert the superradiant and subradiant excitations in a cold atom gas. Furthermore, we achieve background-free detection of superradiant emission, use the far-field emission to characterize the spin-wave relaxation dynamics under the near-field interaction, and successfully measure the associated relaxation time constants. Major achievements in this thesis work are summarized as follows:

1. We have developed an optical arbitrary waveform generation system, with up to 13 GHz bandwidth and nearly a microsecond coherence time (CW seeding laser frequency noise limited), to meet the technical demands of the precise and error-resilient coherent control in time domain on an electric dipole transition. Specifically, the system can generate sub-nanosecond chirped pulses and their arbitrary temporal sequences with precisely controllable waveforms. That enables us to realize time-dependent and error-resilient composite control on a strong optical transition for free atoms.

2. By applying the error-resilient control with counter-propagating laser fields, we realize nanosecond optical spin-dependent two-photon momentum transfer for the optical dipole spin waves defined on the rubidium $D2$ line. The associated state-dependent matter-wave acceleration is as large as 10^6 g. The momentum transfer is accompanied by subwavelength geometric phase patterning in real space, and large-scale spin-wave wavevector shifting in the reciprocal space. This series of techniques allow us to achieve high-efficiency coherent conversion between phase-matched and phase-mismatched spin waves defined on an electric dipole transition and consequently achieve coherent conversion between superradiance and subradiance in a cold atomic gas for the first time to our knowledge.

3. Equipped with the coherent superradiance-subradiance conversion technique, we investigate near-field relaxation dynamics of optical dipole spin waves. In particular, we efficiently convert phase-mismatched spin waves evolving in free space into phase-matched ones with directional spontaneous emission to unravel near-field interaction dynamics of optical spin waves in a cold atomic gas where motional effects are suppressed. The superradiant probe of near-field interaction is background-free, with which we obtain a density-dependent relaxation rate in optical domain for the first time to our knowledge.

4. We have theoretically studied the near-field relaxation dynamics of optical dipole spin waves in a random gas, which is uncovered by the experimental measurements. By theoretically analyzing and numerically studying the near-field interaction of close-by atomic pairs, we obtain a density and atomic energy-level structure dependent spin-wave relaxation rate, which agrees with the experimental measurements. The disorder-induced microscopic spin relaxation effect is related to the atomic two-body distribution, which is not captured by the Maxwell-Bloch equations, but our study suggests it generally exists in atomic ensemble-based optical interfaces.

To summarize, this thesis work realizes precise and error-resilient control of spin waves defined on a strong optical transition. The achievement is enabled by utilizing a wideband arbitrary-waveform modulation system developed in this thesis work. The

system can generate optimally shaped pulses to control the isolated electric dipole transitions by geometric phases with robustness. It should be noted that the manipulation of optical dipole spin waves is traditionally a topic in the field of nonlinear optics. In contrast to the well-developed control techniques in the "perturbative" regime or "strong field" regime where a precise control is compromised by multi-level leakage, our control fully exploits the geometric resource of the isolated quantum transition for the near-resonant spin-wave control. The ability allows us to study the microscopic dynamics of the near-field interaction in optical dipole spin waves through the time-dependent control of far-field radiation. We hope that this thesis work can promote the development of a new generation of nonlinear quantum optics techniques, which is based on the precise, near-resonant control of optical dipole spin waves.

Key words: superradiance, subradiance, geometric quantum control, spin-wave control, electric dipole-dipole interaction, cold atoms, arbitrary-waveform optical pulses

CLC number: O431.2;O562

第一章 引言

1.1 本文的研究背景

1.1.1 光与多体系统相互作用中的集体效应

一个处在激发态的原子（也可以是分子或者其他粒子）会自发地跃迁到基态，并且在这过程中辐射出一个光子，这个现象被称为自发辐射（spontaneous emission）。这种无法被原子体系的 Bohr 理论或薛定谔方程预言的现象在量子物理理论逐步发展完善后得到了解释：电磁场的真空涨落与原子（近似成偶极子）的相互作用会使之从激发态跃迁到基态。在开放环境中单原子激发态的自发辐射率可以被量子理论精确计算^[1]。

若真空中存在着不止一个处于激发态的原子，那么这些原子可能会发生不同于单原子的集体辐射行为。物理学家 Robert H. Dicke 在1954年的一篇文章中预言了多原子系统自发辐射过程中的集体效应。文章指出，当 N 个完全处于激发态的二能级原子的空间分布尺寸远小于一个跃迁波长 λ_0 时，这 N 个原子的自发辐射会自发产生相干性，使得多原子系统在辐射光子的过程中自发辐射率可以上升为单原子的 N 倍，辐射功率可以上升为单原子的 $\sim N^2$ 倍^[2]。这一革命性的发现被称为“Dicke 超辐射”（Dicke superradiance）。在文章中 Dicke 不仅提供了该现象的全量子力学处理，同时给予了相对直观的半经典图像：当 N 个原子彼此间都靠得很近时，这个集合中的原子不再相互独立，像是共同形成了一个“大原子”，这个“大原子”的偶极矩可以是单个原子偶极矩的 N 倍，因此辐射能力有相应的增强。多原子的集体效应可以改变光和多原子系统的相互作用，这一点在“Dicke 超辐射”的理论中得到了很好的体现。实际上，自发辐射集体效应的发生并不一定要求多原子系统的空间尺寸远远小于波长。包括 Dicke 本人在内的一些理论工作者已尝试将“超辐射”的理论推广到尺寸远大于跃迁波长的原子样品中^[2-7]。不同于原初的 Dicke 模型（所有原子局限在尺寸远小于跃迁波长的空间里——“Dicke 区域”），在大尺寸原子样品的共振光激发过程中，每个原子“感受”到的光学相位是空间依赖的，取决于每个原子在激发光波矢方向上的位置，这使得在多原子的激发态中需要引入与各个被激发原子的空间坐标相关的相因子 $e^{i\mathbf{k}_0 \cdot \mathbf{r}_j}$ （这种带相因子的激发在单光子激发的区域常用 timed Dicke state 来描述，详见章节 3.2.1）。这里， \mathbf{k}_0 是激发光的波矢（ $|\mathbf{k}_0| = 2\pi/\lambda_0$ ）， \mathbf{r}_j 是第 j 个原子的空间坐标， i 是虚数单位。这种空间依赖的相因子会使大尺寸原子样品的超辐射具有非常好的定向性：超辐射光子的方向分布在 \mathbf{k}_0 附近，并且其角分布的大小与样品尺寸成反比^[6,8]。由于引入空间自由

度，大尺度样品的集体辐射现象远较原初 Dicke 模型复杂。而另一方面，由于近场强相互作用，原子运动，分子光化学等因素影响^[6]，原初 Dicke 模型的光学波段超辐射和亚辐射极难在真实原子中实现。

在 Dicke 的理论提出不久后，随着脉冲式染料激光器技术的发展，一些早期的实验工作开始对大尺度样品的超辐射现象进行观测和研究。例如，1973年 N. Skribanowitz 等人利用光学泵浦氟化氢 (HF) 气体的方法首次在远红外光波段中观测到超辐射^[9]；在1976年，M. Gross 等人在光学泵浦的钠 (Na) 原子气体样品中首次观测到了近红外的超辐射^[10]；随后的一段时间里有大量的实验工作在不同的原子、分子样品中研究了超辐射^[11-16]。注意到大尺度样品的集体效应在脉冲光瞬态激发下可表现为超辐射。在更一般的条件下，样品集体激发和光耦合所蕴含的光学资源正是非线性光学的研究对象。

上面的论述简要地回顾了较早期关于超辐射的理论、实验研究。随着多体物理理论和现代物理实验技术的发展，近二十年来，人们对光和多体系统相互作用中的集体效应的研究越来越深入，并且其研究范围远远超出“超辐射”。一般地，当空间中存在多个被激发的散射体（例如原子），它们的演化不再相互独立而是相互影响，进而使得整个系统的行为有别于单个散射体的行为，这种现象常常被称为“集体效应”或者“协同效应”。其中相关的新奇物理现象除了超辐射，还包括：亚辐射^[2,17-19]（与超辐射对应，多体自发辐射率远小于单原子的自发辐射率）、集体 Lamb 频移^[20-25]（CLS, collective/cooperative Lamb shifts）、光子的局域化^[26-29]、运动效应导致的集体散射抑制^[30]、拓扑保护的单光子边缘态^[31-32]、Weyl 准粒子激发^[33]、光子的费米化^[34]、集体效应下的新奇光学性质（如透射、反射和散射性质）^[35-39]，等等。

值得一提的是，近年来实验技术的进步发展使得光与多体系统相互作用中的有趣物理现象能在各种各样不同的实验系统中被实现、测量和研究，这使得人们对集体效应能在多方面有更深入的研究，并且很大程度上拓宽了人们对光与物质相互作用的理解，同时使得相关的物理理论在得到检验的同时被进一步地发展。近二十年来，在不同系统中研究集体效应的重要实验工作包括：双离子的超/亚辐射观测^[17]、超冷玻色气体的定向瑞利散射^[40]、量子点的集体辐射^[41]、单层铁 (Fe) 原子核 X 射线超辐射的集体 Lamb 频移测量^[20]、室温二维原子气体的集体 Lamb 频移测量^[22]、稀疏冷原子样品的亚辐射观测^[18]、实现二维原子阵列对近共振光的高效反射^[42]等。

多原子系统与光的相互作用本质上是一个复杂的量子多体问题。从最初的超辐射开始，科学家们对多原子系统协同辐射的研究已长达几十年。随着激光冷却和光晶格等原子操控技术的发展^[43-49]，原子运动展宽可以被有效抑制，这促进了人们对多原子系统与光相互作用的深入研究。近年来，超越集体辐射基本图像的光和原子相互作用多体关联效应逐渐被发现，其蕴含新奇丰富的多体物理正成为前沿研究热点^[34,50-55]。对光学跃迁集体和多体关联效应的研究会催

生出许多重要的量子技术的应用，如量子存储^[56-58]、基于单光子技术的量子通讯^[59-61]和量子计算^[62]等。随着现代计算机运算能力的飞速发展和多体物理理论的完善，多体系统中的集体效应能够在一定程度上得到数值仿真，这在很大程度上促进了人们对光与物质相互作用的深入理解和研究。最近，超辐射晶格概念的提出^[63]和相关的实验工作^[64-66]甚至将集体辐射应用到了量子模拟中。冷原子的全同性、光学跃迁极高的品质因子和非线性特性使得原子系统天然地成为研究集体辐射和多体效应的极佳平台。而超越集体辐射、面向冷原子系统的“更加宏大”的（亚辐射）量子多体资源开发，是本论文工作的主要研究动机。

1.1.2 光偶极自旋波

在之前的论述中提到，大尺寸样品中的超辐射可以具有非常好的定向性。现考虑原子系统的单光子激发：当 N 个基态二能级原子（空间分布的尺寸远大于跃迁波长）吸收了一个波矢为 \mathbf{k}_0 的光子后，原子系统会处在一个非局域化（delocalized）的激发态中，它可用“timed Dicke state”来表示：

$$|\psi_{\mathbf{k}_0}\rangle = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_j e^{i\mathbf{k}_0 \cdot \mathbf{r}_j} |g_1, g_2, \dots, e_j, \dots, g_N\rangle \quad (1.1)$$

这里 $|e_j\rangle$ 和 $|g_j\rangle$ 分别为第 j 个原子的激发态、基态， \mathbf{r}_j 为第 j 个原子的空间坐标。当这种非局域化的激发态发生自发辐射时，所辐射出的光子会定向地沿着激发光子波矢 \mathbf{k}_0 的方向^[7]。在公式 (1.1) 所示的 timed Dicke state 背后蕴含着两个重要的物理：(1) 激发的非局域化的形成是由于在物理上无法分辨是系统中哪一个原子吸收了激发光子；(2) 量子态中的相因子 $e^{i\mathbf{k}_0 \cdot \mathbf{r}_j}$ 满足辐射场的相位匹配条件（phase-matching condition），即 $|\mathbf{k}_0| = \omega_{eg}/c$ （ $\omega_{eg}/2\pi$ 是基态和激发态之间的跃迁频率， c 是光速），这使得所有原子的辐射在 \mathbf{k}_0 方向上得到相干的增强，其结果是集体自发辐射的光子定向地沿着 \mathbf{k}_0 方向（也称为前向辐射，forward emission）。这种集体相干增强的定向辐射在量子光学领域十分重要，是许多重要应用的基石。比如基于原子系统的量子存储^[67-68]和量子通讯^[59]等。2012年，香港科技大学的杜胜望小组观测并调控了大光学深度的原子样品对单光子的吸收与定向辐射^[69]。随后，许多实验和理论工作在相干光弱激发的近似下对这种相位匹配的非局域化激发在随机原子气体样品中进行了研究。这些研究的内容包括但不限于：前向辐射衰减速率（或激发谱线的集体展宽）和样品光学深度的线性关系^[24,30,70-72]、系统的集体 Lamb 频移^[24,30,70]，等等。

实际上，形如式 (1.1) 所示的量子态可以写成更一般的形式，即

$$|\psi_{\mathbf{k}}\rangle = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_j e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_j} |g_1, g_2, \dots, e_j, \dots, g_N\rangle \quad (1.2)$$

该式与公式 (1.1) 的区别在于：相因子中的波矢 \mathbf{k} 是一般的矢量，它可以满足相位匹配条件 ($|\mathbf{k}| = \omega_{eg}/c$, 同 *timed Dicke state*)，也可以不满足相位匹配条件 ($|\mathbf{k}| \neq \omega_{eg}/c$)。式 (1.2) 中的量子态也被称为自旋波态 (*spin-wave state*)，在光学波段的电偶极跃迁，它也常被称为光偶极自旋波或电偶极自旋波（在后文的论述中我们会有时将其简称为“自旋波”）。根据是否满足相位匹配条件，可将自旋波分为相位匹配的自旋波 (*phase-matched spin wave*, 有 $|\mathbf{k}| = \omega_{eg}/c$) 和相位失配的自旋波 (*phase-mismatched spin wave*, 有 $|\mathbf{k}| \neq \omega_{eg}/c$)。在光学的电偶极跃迁中，原子之间存在偶极-偶极相互作用（详见章节 2.3），这使得集体激发中会存在许多新奇的物理现象，它们一直是物理学家们关注和研究的对象。

如前所述，对于光学跃迁，在相位匹配的自旋波中有定向集体辐射等有趣且重要的物理现象。对于相位失配的自旋波，近年来的许多前沿理论研究发现了一系列基于原子阵列的重要物理现象，这里举例简要介绍。2016年，S. V. Syzranov 等人的理论研究表明在高密度的三维偶极晶格中存在与相位失配激发相关的 Weyl 准粒子^[33]。2017年，A. Asenjo-Garcia 等人在理论上研究了亚波长原子晶格中的自旋波激发^[19]。他们发现当激发的自旋波在“光锥”之外（相位失配自旋波波矢满足 $|\mathbf{k}| > \omega_{eg}/c$ ）时，系统会处在长寿命的亚辐射态中（见图 1.1）。这种亚辐射可以通过与纳米波导的耦合高效地转化为定向辐射。同年，J. Perczel 等人在理论上提出了基于亚波长蜂巢状晶格的拓扑量子光学方案^[31]。其中的长寿命单光子拓扑边缘态也同样是在“光锥”之外 ($|\mathbf{k}| > \omega_{eg}/c$)。同样在2017年，英国的 C. S. Adams 小组也发表了类似的关于拓扑量子光学的理论研究^[32]。另外，相位失配的激发在亚波长间距的原子链中可形成稳定且低辐射耗散的波导模式。这在近几年也是前沿理论研究的热点之一^[73-75]。

这些前沿理论工作研究了许多关于相位失配自旋波的新奇物理，并展示了与之相关的一些重要应用的可能性，并且这些重要应用多是与亚辐射相关的。令人感到遗憾的是，这些有趣且重要的理论方案直至今日仍未在实验系统中得到实现。其中的一个重要原因是：用以激发原子样品的共振激光在真空中传播时，其光波矢 \mathbf{k}_0 和电磁场振荡的圆频率 ω 满足相位匹配的关系 $|\mathbf{k}_0| = \omega/c$ ，而被激发的原子的波函数相位取决于激发光的光学相位，这导致了原子样品的集体激发必然是相位匹配的。换句话说，相位失配的自旋波是天然与辐射场解耦的，这使得它无法被真空中单一的行波 (*travelling wave*) 光场激发。另一方面，如果一个系统是亚辐射的，那意味着它与外界交换光子的能力是弱的，或者说它与外界电磁场的相互作用是弱的，这一定程度上导致了亚辐射态激发的困难。

要打破相位匹配的条件或实现亚辐射态的激发，新的实验思路和实验技术是不可缺少的，在近几年已有一些科学家提出了相关的理论方案。它们包括：借助原子的其他能级，利用超快脉冲对样品中的一部分原子写入量子态相关的几何相位，从而打破相位匹配条件^[76]；利用原子多个能级间的多光子跃迁实现

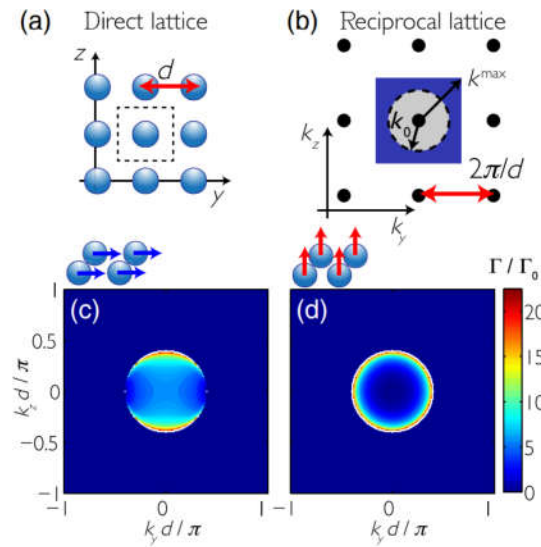


图 1.1 在亚波长间距的原子晶格中，在“光锥”之外的自旋波激发拥有很长寿命。(a) 实空间中的二维原子晶格。(b) 倒空间中的二维原子晶格。(c, d) 平行与垂直于晶格的偏振激发下自旋波的衰减速率在第一布里渊区中的表示。图取自引文^[19]。

相位失配自旋波的激发^[33]；利用磁场或矢量光频移（vector light shift）打破不同偏振的偶极跃迁的简并，可以实现亚辐射态的激发^[77]。这些理论方案是极具启发性的，但是它们对一些实验条件的要求较高或受限于当前的实验技术，而尚未被实现。

考虑原子的电偶极跃迁，要实现相位匹配自旋波（通常是超辐射态）与相位失配自旋波之间的高效且可逆的转换，所需的操作时间至少要远远短于单原子的自发辐射寿命，这样可以尽可能地降低辐射耗散以提高效率。这在实验上是十分困难的一件事情，因为原子光学波段的电偶极跃迁的激发态常常只有 ~ 10 纳秒的自发辐射寿命，所需的操作在时间上至少要短至 ~ 1 纳秒，这样才能显著地降低操作过程中的辐射耗散。要实现这种高速操作，新实验技术的发展是不可缺少的（详见章节 1.2）。

值得说明的是，多个基态能级间也可形成自旋波态，这些自旋波态的寿命可以很长。通过拉曼跃迁可以实现对这些基态自旋波的高精度调控^[78-81]，此过程不需要（亚）纳秒级的短脉冲。并且，这些基态的自旋波可以通过光缀饰的方法转换成我们感兴趣的电偶极跃迁的自旋波^[57]。然而，光缀饰的缺点是明显的：受缀饰光光强和失谐量等因素的影响，原子在光缀饰下所展示出的并不是其“本征”的物理特性。另一方面，上面所提及的与（相位失配）光偶极自旋波相关的重要应用和新奇物理都依赖于原子基态的唯一性，在基态唯一的原子

中，以额外基态辅助能级为基础的传统拉曼跃迁自旋波调控技术将难以发挥作用。

1.1.3 原子电偶极跃迁的量子调控

探索相位失配自旋波物理的关键是实现相位匹配、失配自旋波态的高效相干转换。对强光学跃迁的直接量子调控是光偶极自旋波的最普遍和最有效的手段，拥有拉曼等非直接手段难以获得的调控效率和带宽，并且避免了拉曼跃迁调控的多基态要求。因此，对强光学跃迁的直接量子调控将允许我们以最高的效率探索以相位失配光偶极自旋波为基础的、尚未被开发的电偶极多原子体系巨大态空间，并探索相关量子资源。然而，原子的强光学跃迁（电偶极跃迁）相干时间常只有 ~ 10 纳秒（相位匹配自旋波的相干时间会比单原子的更短，详见章节 5.2），因此对电偶极跃迁的直接高效调控需要 ~ 1 纳秒甚至更短的光学脉冲。对于电偶极跃迁的微扰级相干调控，超快激光方面的技术已有不少突破性的成果，比如基于光梳的精密光谱测量^[82-84]和 multidimensional 相干光谱技术^[85-86]。这些技术为人们观测新物理现象提供了新的方法，推动了人们对光与物质相互作用的研究。然而此类调控的精度有限：基于微扰的调控必然和光强相关。要实现高精度的光偶极自旋波调控，可借助孤立跃迁的几何特性来克服光强的非均匀展宽^[87-88]。从技术层面来看，对电偶极跃迁实现光强容错的量子调控及其复杂序列组合，所需的光学脉冲必须满足如下条件：

1. 脉冲宽度应远小于跃迁的激发态寿命 τ ($\tau \sim 10$ ns)。
2. 脉冲的重复频率应远大于 $1/\tau$ 。
3. 脉冲的波形可精确调节。这样可以通过波形的优化设计实现光强容错的量子调控¹，以克服通常实验中激光光强空间不均匀的困境。
4. 在研究自旋波的时域性质时，需要相邻脉冲（或相邻自旋波调控）之间的延时 Δt 能在较大的范围内连续任意可调²，且脉冲间的相对相位保持稳定（章节 5.3.3）。
5. 脉冲的带宽不能过大，需保证所调控的电偶极跃迁为“孤立跃迁”。比如，锁模激光产生的飞秒脉冲带宽高达数十 THz，它有可能会同时激发原子样品的多个电偶极跃迁（例如 ^{87}Rb 的 $D1$ 和 $D2$ 跃迁（章节 3.3.1））。其调控的保真度会受多能级扰动甚至是光电离效应的影响^[90]。

实际上，上述技术要求是十分苛刻的。近年来，新型锁模激光调制技术的发展^[88,91-92]以及连续激光电光调制技术的发展^[93-95]在一定程度上展示出了高效电偶极跃迁调控的可能性。虽然它们与实现高效、全面的光偶极自旋波调控仍有一定的距离，但相关技术的发展是极具启发性的。应注意到，目前已有一些前

¹这里的脉冲包括由多个子脉冲组合而成的复合脉冲^[89]。

²例如，对于寿命为 τ_{sub} 的亚辐射的自旋波， Δt 应能连续增加至 $\sim \tau_{\text{sub}}$ 的级别。

沿实验工作利用电偶极跃迁的量子调控对原子内外态进行操控^[93,96-98]。但因无法同时兼顾实现量子调控光强容错性、原子孤立跃迁近似、高重复频率及长相干时间任意时序控制，相关的技术也难以用于实现光偶极自旋波的全面时域调控（比如章节 4.2.2 中的实验）。章节 3.4 将介绍本文研究发展出的新型高带宽任意波形激光系统，它能产生带宽高达 13 GHz 的任意波形脉冲序列，这允许我们在原子的电偶极跃迁中实现复杂的自旋波时序调控，是本文用以研究光偶极自旋波的重要实验技术。

1.2 本文的研究内容

光与多体系统相互作用中的集体效应蕴含着丰富重要的物理，在这一领域中的研究正驱动着新型技术的发展，其重要性前文已有所论述。集体效应与物质所处的量子态是息息相关的，其中一类重要的量子态是自旋波态，它是基于原子系统的量子存储和量子通讯等重要量子技术的基石之一，同时也是 Weyl 准粒子激发、单光子拓扑输运等新奇物理现象的重要基础（见章节 1.1.2）。然而，正如前文所述，在电偶极跃迁中常规的光学手段只能激发相位匹配的自旋波，而无法实现相位失配自旋波的有效激发，更不用提相位匹配自旋波和相位失配自旋波之间的高效转换。其原因一方面是缺少对实验条件具有鲁棒性的理论方案，另一方面则是受限于传统的激光技术（详见章节 1.1.3）。在此背景下，我们开展了本研究工作，尝试提出新方案并且发展新技术，以攻克目前光偶极自旋波调控当中的种种难题，借此探索光与物质相互作用的新物理，希望推动新一代量子技术和激光技术的发展。

本文的研究内容主要概括为：

1. 我们自主设计并搭建一套新型的高带宽任意波形激光系统，它可以产生亚纳秒级波形精确可控的光脉冲以及这些光脉冲组合而成的任意时间序列，序列的相干时长达到近一微秒。我们利用该系统产生的脉冲序列实现了电偶极跃迁时域的容错调控。
2. 借助我们新发展的高速电偶极跃迁调控技术，我们在激光冷却的原子样品中实现了 10^6 倍于重力的、自旋相关的“几何力”，并在此过程中保持了原子内态和外态的相干性。
3. 我们提出并在实验上实现了一个新的自旋波调控方案：利用自旋相关的相干加速改变自旋波的波矢以实现相位匹配自旋波与相位失配自旋波的高效转换。利用这样的技术我们成功地将原子样品高效地制备到了“亚辐射”态，并且能在之后的特定时刻将其转换成“超辐射”态，通过无背景的定向辐射测量研究自旋波集体效应的微观动力学。
4. 借助我们新发展的自旋波调控技术和基于高性能计算机的数值模拟，我们发现并研究了一种由近场偶极-偶极相互作用导致的自旋波失相行为。

我们不仅在实验上对这种物理现象进行了定量的观测，还从理论推导和数值模拟的角度给予了完备的解释，揭示了这一物理现象背后的微观机制。

本文的研究涉及诸多内容，包含脉冲激光技术、量子调控、原子物理、激光冷却、多体物理和集体效应等，其中的部分内容前文已有所论述。下面对其他一些内容点作简要的补充。

○ 本文研究的实验对象：冷原子样品

目前，对集体效应的研究已拓展到各种各样不同的体系中（在章节 1.1.1 中有所列举）。除了原子，它们还包括量子点^[41]、人工超材料^[99-100]、等离子体纳米颗粒^[101-102]、宏观声学结构^[103]等等。相比其他体系，原子在集体效应的研究中有其独特的优势，其中包括：

1. 自由原子没有非辐射耗散，即原子仅以交换光子的方式与外界交换能量，是“干净”的散射体。（在其他体系中，例如人工超材料，会存在欧姆热耗散等非辐射耗散，这限制了系统的一些性能。）
2. 相同种类的原子是天然全同的。这种全同性是许多基于集体效应的重要应用和新奇物理（详见章节 1.1.1 和 1.1.2）的基础。
3. 原子的品质因子（Q 因子）极高（对于电偶极跃迁可达到 $10^7 - 10^8$ 甚至更高），有很高的频率稳定性和选择性。
4. 原子是理想的单光子级的非线性光学元件：对于某一跃迁而言，原子具有波长级的共振散射截面，而且一个处在激发态的原子不可能在相同跃迁中再吸收另一个光子。

然而研究多原子体系集体效应的重要前提是抑制运动展宽：室温下的原子气体中原子的运动速度可达到几百米每秒，运动的原子在许多场合是不利于研究集体效应的，尤其是在需要考虑原子的空间位置和量子态相位的关联时（见公式 (1.2)）。对于原子的运动问题，近二十年来逐渐发展成熟的激光冷却与俘获技术^[43-44,104]成为了一个很好的解决方案。这种技术可以将原子的运动速度降至毫米每秒的量级，使得运动导致的消相干可以被极大地抑制。而且，最前沿的光晶格及单原子操控技术^[45-49]已经可以在实验上以单原子级别的精度制备出各种复杂构型的原子样品。这进一步地使得原子成为研究集体效应的不可替代的物质载体。本文的研究是基于激光冷却的原子样品（详见章节 3.3），原子的运动效应可以被忽略（详见章节 4.3.3）。

○ 多原子（内态的）动力学演化模型

本文研究内容中的一个重要概念是“偶极-偶极相互作用”。在研究集体辐射的原初文章中（见章节 1.1.1），Dicke 并没有在模型中考虑真实原子之间的偶

极-偶极相互作用，这使得 Dicke 模型常常缺乏实用性（尽管它极具启发性）。原子样品中其中一个原子辐射出的光子可以被另一个处在基态的原子吸收，原子之间这种交换光子的行为（或者说通过电磁场环境交换能量的行为），可以用偶极-偶极相互作用来描述。1970年，R. H. Lehberg 考虑 N 个静止的³全同二能级原子与量子化的多模电磁场耦合，推导出了开放环境中描述多原子系统含时演化的主方程^[105]。它包含了原子间的偶极-偶极相互作用，是描述原子样品集体自发辐射行为的一个更精确的模型。在该模型中，量子化的各个电磁场模式已被“求和”（trace over）掉，因此只需考虑原子算符的演化。但即便如此，其本身仍然是一个量子多体问题，所涉及的希尔伯特空间的维数（ 2^N ）随着原子数的增加呈指数上升。这使得该模型的（基于经典计算机的）数值求解仅能在少数原子中进行^[50,106]。

注意到在弱激发极限下，原子可以近似成经典的电偶极子，并且电偶极子之间通过偶极-偶极相互作用实现耦合。此时描述原子系统动力学演化的 Lehberg 主方程会退化成经典的耦合偶极子方程^[70,107-108]。该模型也被称为耦合偶极子模型（coupled dipole model，后面简称 CDM，详见章节 2.3.3）。CDM 的数值计算难度要远远小于 Lehberg 的主方程，目前用于科研的高性能计算机已能利用 CDM 模拟 $\sim 10^4$ 个相互作用的原子的动力学演化。实际上，多原子系统的单激发态，包括式 (1.2) 所示的自旋波态，其含时演化都可以通过 CDM 进行数值模拟（见章节 2.3.3 的讨论）。本文对自旋波动力学行为的研究大多是在弱激发的条件下，CDM 也是本文所使用的理论工具之一。另外，通过截断原子间的（高阶）量子关联，可以将 CDM 推广至超越弱激发极限的区域^[50,70,109-111]。但是这些近似方法会在一定程度上偏离精确解，其有效性仍有待深入研究。这里需要一提的是，若考虑基态不唯一的原子（例如本文研究所用的铷原子），即使在弱激发的条件下 CDM 的计算也可能存在问题，更精确的计算需要结合其他理论分析方法，这一点在本文的研究中会有所体现（详见章节 5.4.2）。

由上述讨论可知，即使不考虑微观原子的运动，光和多原子相互作用也是十分复杂的物理问题。另一个近似描述该物理问题的重要方法是忽略原子间相互作用导致的量子关联，并对微观粒子分布平均化，把原子样品视作连续极化介质。利用该近似方法可推导出麦克斯韦-布洛赫方程^[112-114]（Maxwell-Bloch equations，后面简称 MBE，详见章节 2.3.4）。相比于 CDM 及其非线性推广，MBE 的一个优势在于：当模拟原子数更多、尺寸更大的真实样品时，MBE 所需的计算资源比 CDM 少。MBE 在非线性光学领域的成功是巨大的，其在描述宏观光学现象时强调“相位匹配”物质激发和光场的耦合，其中“相位匹配”条件是光场能量高效传播的保证，但与此对应的高速能量迁移在很大程度上抑制了局域多体关联效应的积累。然而，在“相位失配”的系统中，宏观光学传

³后来的激光冷却技术很好地实现了这一条件。

播效应可以被抑制，从而使得原子“粒子性”等微观性质导致的相互作用微观动力学变得不可忽略，此时 MBE 将无法有效描述系统的演化（章节 5.2）。制造“相位失配”的条件，研究宏观 MBE 方程无法描述的微观现象（章节 5.4），是本文研究的核心内容及创新点。

。多体波函数的“自旋波元激发”调控

实际上，我们可以定义自旋波元激发算符：

$$\hat{S}^+(\mathbf{k}) = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_j e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}_j} |e_j\rangle \langle g_j| \quad (1.3)$$

式 (1.2) 可认为是自旋波元激发算符作用到基态（即 $|g_1, \dots, g_N\rangle$ ）上而产生的单激发态。更一般地，若多个自旋波元激发算符作用到基态上，则可在原子系统中形成以自旋波元激发为基础的多激发态，其动力学由 Lehmborg 主方程描述。在单激发占主导的弱激发极限下，多原子系统对激发光的光学响应一定为线性的，因此这也常被称为线性激发。在强激发光下，原子系统的波函数中会存在不可忽略的（以自旋波元激发为基础的）多激发态成分（章节 3.2.1）。本论文工作开发的自旋波调控技术本质上是对自旋波元激发进行调控，原则上它可用于调控一个或任意多个自旋波元激发算符“生成”的多体波函数。在线性激发区域，该技术允许我们实现对元激发的空间模式进行实时操控，并以此实现超辐射/亚辐射转换及研究自旋波元激发的动力学等，这是本论文工作的研究重点之一。另一方面，通过对原子样品的近共振强激发，可制备自旋波的多激发态，而在此基础上对自旋波元激发的相干操控将允许我们探究由 Lehmborg 主方程描述的多体物理，这是本文工作未来的发展方向之一（见章节 6.2）。

1.3 本文的结构安排

本章（第一章）为本论文的引言，在这里我们首先从三个方面介绍了本文的研究背景，其内容包括光与多体系统相互作用中的集体效应（章节 1.1.1）、光偶极自旋波（章节 1.1.2）、原子电偶极跃迁的量子调控（章节 1.1.3）。接着，章节 1.2 概括了本文的研究目的与意义、研究的对象和内容及研究的方法。

第二章论述了本文研究所需的基础理论知识。我们在章节 2.2 中讨论了单原子在近共振光场中的演化规律，并介绍了与本文自旋波调控紧密相关的物理过程——基于啁啾脉冲的绝热布居翻转（章节 2.2.3）。在章节 2.3 中，我们将关注点放在了原子间的偶极-偶极相互作用上，并在弱激发近似下给出描述“点状”原子的 CDM 方程（章节 2.3.3）和连续介质的 MBE 方程（章节 2.3.4）。在后面章节的理论研究以及相关的数值模拟中，我们会频繁使用到第二章的内容。

第三章可划分为两部分。在第一部分中我们阐明了一个新型的自旋波容错调控方案，这种调控方案是基于量子态相关、空间相关的几何相位，它能允许我们高效地改变自旋波的波矢以实现相位失配的自旋波激发（章节 3.2）。在第二部分中，我们介绍了本文实现自旋波调控的实验基础，内容包括冷原子样品的制备（章节 3.3）和高带宽任意波形近共振光脉冲的产生（章节 3.4）。

第四章首先介绍了实验上自旋波调控光路的设计（章节 4.2.1）以及实现自旋波调控的重要实验观测——定向集体自发辐射的“转向”、“关闭”和“唤醒”（章节 4.2.2）。在章节 4.3.1 中，我们对自旋波调控所伴随的原子加速效应进行了测量。为了更深入地对实验结果进行分析，我们利用无相互作用的“动量晶格”模型（章节 4.3.2）对自旋波调控过程中的原子自发辐射行为和加速效应进行了数值模拟（章节 4.3.3）。在第四章的最后，我们对限制自旋波调控效率的因素进行了分析并提出了可行的改进方案（章节 4.3.3）。

第五章介绍了本文对光偶极自旋波动力学的研究结果。在章节 5.2 中，我们定义了一个用以表征自旋波性质的重要物理量——自旋波的“存活率”。自旋波的“存活率”的演化会受到原子间偶极-偶极相互作用的影响，是实验中的一个非常重要的观测量。在章节 5.3 中，我们通过测量特定自旋波调控时序下的原子超辐射动力学行为来研究自旋波的含时演化，研究的对象包括了相位匹配的自旋波以及相位失配的自旋波。利用“无背景”的荧光探测，我们测出了相位匹配自旋波小角度集体辐射的初始强度及其衰减速率与原子光学深度的关系，并利用多原子的耦合偶极子方程对其进行了数值上的验证（章节 5.3.2）。此外，在实验上，我们测出了相位失配自旋波的衰减速率与原子样品密度的关系（章节 5.3.3），并通过对原子间近场偶极-偶极相互作用进行理论分析（章节 5.4.1）和数值模拟（章节 5.4.2）解释了实验的测量结果。在章节 5.4.3 中，我们对影响实验测量的一些因素进行了分析。

在第六章中，我们会对本文的研究内容及成果进行总结。与此同时，我们将展望本文的自旋波调控技术在未来的可能应用，并对其重要性进行阐述。

参考文献

- [1] Weisskopf V, Wigner E. Calculation of the natural width of line based on the Dirac's theory of light[J]. Z. Physik, 1930, 63(1-2):54–73
- [2] Dicke R H. Coherence in Spontaneous Radiation Processes[J]. Phys. Rev., 1954, 93:99–110
- [3] Rehler N E, Eberly J H. Superradiance[J]. Phys. Rev. A, 1971, 3:1735–1751
- [4] MacGillivray J C, Feld M S. Theory of superradiance in an extended, optically thick medium[J]. Phys. Rev. A, 1976, 14:1169–1189

- [5] Andreev A V, Emel'yanov V I, Il'inskiĭ Y A. Collective spontaneous emission (Dicke superradiance)[J]. Soviet Physics Uspekhi, 1980, 23(8):493–514
- [6] Gross M, Haroche S. Superradiance: An essay on the theory of collective spontaneous emission[J]. Physics Reports, 1982, 93(5):301 – 396
- [7] Scully M O, Fry E S, Ooi C H R, et al. Directed Spontaneous Emission from an Extended Ensemble of N Atoms: Timing Is Everything[J]. Phys. Rev. Lett., 2006, 96:010501
- [8] Scully M O, Svidzinsky A A. The Super of Superradiance[J]. Science, 2009, 325(5947):1510–1511
- [9] Skribanowitz N, Herman I P, MacGillivray J C, et al. Observation of Dicke Superradiance in Optically Pumped HF Gas[J]. Phys. Rev. Lett., 1973, 30:309–312
- [10] Gross M, Fabre C, Pillet P, et al. Observation of Near-Infrared Dicke Superradiance on Cascading Transitions in Atomic Sodium[J]. Phys. Rev. Lett., 1976, 36:1035–1038
- [11] Flusberg A, Mossberg T, Hartmann S. Observation of Dicke superradiance at $1.30 \mu\text{m}$ in atomic Tl vapor[J]. Physics Letters A, 1976, 58(6):373 – 374
- [12] Gibbs H M, Vreheh Q H F, Hikspoors H M J. Single-Pulse Superfluorescence in Cesium[J]. Phys. Rev. Lett., 1977, 39:547–550
- [13] Gross M, Raimond J M, Haroche S. Doppler Beats in Superradiance[J]. Phys. Rev. Lett., 1978, 40:1711–1714
- [14] Crubellier A, Liberman S, Pillet P. Doppler-Free Superradiance Experiments with Rb Atoms: Polarization Characteristics[J]. Phys. Rev. Lett., 1978, 41:1237–1240
- [15] Vreheh Q H F, Schuurmans M F H. Direct Measurement of the Effective Initial Tipping Angle in Superfluorescence[J]. Phys. Rev. Lett., 1979, 42:224–227
- [16] Rosenberger A T, DeTemple T A. Far-infrared superradiance in methyl fluoride[J]. Phys. Rev. A, 1981, 24:868–882
- [17] DeVoe R G, Brewer R G. Observation of Superradiant and Subradiant Spontaneous Emission of Two Trapped Ions[J]. Phys. Rev. Lett., 1996, 76:2049–2052
- [18] Guerin W, Araújo M O, Kaiser R. Subradiance in a Large Cloud of Cold Atoms[J]. Phys. Rev. Lett., 2016, 116:083601
- [19] Asenjo-Garcia A, Moreno-Cardoner M, Albrecht A, et al. Exponential Improvement in Photon Storage Fidelities Using Subradiance and “Selective

- Radiance” in Atomic Arrays[J]. *Phys. Rev. X*, 2017, 7:031024
- [20] Röhlberger R, Schlage K, Sahoo B, et al. Collective Lamb Shift in Single-Photon Superradiance[J]. *Science*, 2010, 328(5983):1248–1251
- [21] Scully M O. Collective Lamb Shift in Single Photon Dicke Superradiance[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2009, 102:143601
- [22] Keaveney J, Sargsyan A, Krohn U, et al. Cooperative Lamb Shift in an Atomic Vapor Layer of Nanometer Thickness[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2012, 108:173601
- [23] Meir Z, Schwartz O, Shahmoon E, et al. Cooperative Lamb Shift in a Mesoscopic Atomic Array[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2014, 113:193002
- [24] Roof S J, Kemp K J, Havey M D, et al. Observation of Single-Photon Superradiance and the Cooperative Lamb Shift in an Extended Sample of Cold Atoms[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2016, 117:073003
- [25] Jennewein S, Besbes M, Schilder N J, et al. Coherent Scattering of Near-Resonant Light by a Dense Microscopic Cold Atomic Cloud[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2016, 116:233601
- [26] Akkermans E, Gero A, Kaiser R. Photon Localization and Dicke Superradiance in Atomic Gases[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2008, 101:103602
- [27] Skipetrov S E, Sokolov I M. Absence of Anderson Localization of Light in a Random Ensemble of Point Scatterers[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2014, 112:023905
- [28] Skipetrov S E. Localization Transition for Light Scattering by Cold Atoms in an External Magnetic Field[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2018, 121:093601
- [29] Cottier F, Cipris A, Bachelard R, et al. Microscopic and Macroscopic Signatures of 3D Anderson Localization of Light[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2019, 123:083401
- [30] Bromley S L, Zhu B, Bishof M, et al. Collective atomic scattering and motional effects in a dense coherent medium[J]. *Nature Communications*, 2016, 7:11039
- [31] Perczel J, Borregaard J, Chang D E, et al. Topological Quantum Optics in Two-Dimensional Atomic Arrays[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2017, 119:023603
- [32] Bettles R J, Minář J, Adams C S, et al. Topological properties of a dense atomic lattice gas[J]. *Phys. Rev. A*, 2017, 96:041603(R)
- [33] Syzranov S V, Wall M L, Zhu B, et al. Emergent Weyl excitations in systems of polar particles[J]. *Nature Communications*, 2016, 7:13543
- [34] Zhang Y X, Mølmer K. Theory of Subradiant States of a One-Dimensional Two-Level Atom Chain[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2019, 122:203605
- [35] Chomaz L, Corman L, Yefsah T, et al. Absorption imaging of a quasi-two-

- dimensional gas: a multiple scattering analysis[J]. *New Journal of Physics*, 2012, 14(5):055001
- [36] Pellegrino J, Bourgain R, Jennewein S, et al. Observation of Suppression of Light Scattering Induced by Dipole-Dipole Interactions in a Cold-Atom Ensemble[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2014, 113:133602
- [37] Bettles R J, Gardiner S A, Adams C S. Enhanced Optical Cross Section via Collective Coupling of Atomic Dipoles in a 2D Array[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2016, 116:103602
- [38] Shahmoon E, Wild D S, Lukin M D, et al. Cooperative Resonances in Light Scattering from Two-Dimensional Atomic Arrays[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2017, 118:113601
- [39] Corman L, Ville J L, Saint-Jalm R, et al. Transmission of near-resonant light through a dense slab of cold atoms[J]. *Phys. Rev. A*, 2017, 96:053629
- [40] Inouye S, Chikkatur A P, Stamper-Kurn D M, et al. Superradiant Rayleigh Scattering from a Bose-Einstein Condensate[J]. *Science*, 1999, 285(5427):571–574
- [41] Scheibner M, Schmidt T, Worschech L, et al. Superradiance of quantum dots[J]. *Nature Physics*, 2007, 3(2):106–110
- [42] Rui J, Wei D, Rubio-Abadal A, et al. A subradiant optical mirror formed by a single structured atomic layer[J]. *Nature*, 2020, 583(7816):369–374
- [43] Chu S. Nobel Lecture: The manipulation of neutral particles[J]. *Reviews of Modern Physics*, 1998, 70(3):685–706
- [44] Cohen-Tannoudji C N. Nobel Lecture: Manipulating atoms with photons[J]. *Reviews of Modern Physics*, 1998, 70(3):707–719
- [45] Weitenberg C, Endres M, Sherson J F, et al. Single-spin addressing in an atomic Mott insulator[J]. *Nature*, 2011, 471(7338):319–324
- [46] Nogrette F, Labuhn H, Ravets S, et al. Single-Atom Trapping in Holographic 2D Arrays of Microtraps with Arbitrary Geometries[J]. *Phys. Rev. X*, 2014, 4:021034
- [47] Wang Y, Zhang X, Corcovilos T A, et al. Coherent Addressing of Individual Neutral Atoms in a 3D Optical Lattice[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2015, 115:043003
- [48] Barredo D, Lienhard V, De Leseleuc S, et al. Synthetic three-dimensional atomic structures assembled atom by atom[J]. *Nature*, 2018, 561(7721):79–82
- [49] Ebadi S, Wang T T, Levine H, et al. Quantum Phases of Matter on a 256-Atom Programmable Quantum Simulator. <https://arxiv.org/pdf/2012.1>

- 2281.pdf, 2020
- [50] Henriot L, Douglas J S, Chang D E, et al. Critical open-system dynamics in a one-dimensional optical-lattice clock[J]. *Phys. Rev. A*, 2019, 99:023802
 - [51] Williamson L A, Borgh M O, Ruostekoski J. Superatom Picture of Collective Nonclassical Light Emission and Dipole Blockade in Atom Arrays[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2020, 125:073602
 - [52] Masson S J, Ferrier-Barbut I, Orozco L A, et al. Many-Body Signatures of Collective Decay in Atomic Chains[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2020, 125:263601
 - [53] Williamson L A, Ruostekoski J. Optical response of atom chains beyond the limit of low light intensity: The validity of the linear classical oscillator model[J]. *Phys. Rev. Research*, 2020, 2:023273
 - [54] Bettles R J, Lee M D, Gardiner S A, et al. Quantum and nonlinear effects in light transmitted through planar atomic arrays[J]. *Commun. Phys.*, 2020, 3(1)
 - [55] Cipris A, Moreira N A, Espirito Santo T S, et al. Subradiance with Saturated Atoms: Population Enhancement of the Long-Lived States[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2021, 126:103604
 - [56] Phillips D F, Fleischhauer A, Mair A, et al. Storage of Light in Atomic Vapor[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2001, 86:783–786
 - [57] Bajcsy M, Zibrov A, Lukin M. Stationary pulses of light in an atomic medium[J]. *Nature*, 2003, 426(6967):638–641
 - [58] Julsgaard B, Sherson J, Cirac J, et al. Experimental demonstration of quantum memory for light[J]. *Nature*, 2004, 432(7016):482–486
 - [59] Duan L, Lukin M, Cirac J, et al. Long-distance quantum communication with atomic ensembles and linear optics[J]. *Nature*, 2001, 414(6862):413–418
 - [60] Liao S K, Cai W Q, Liu W Y, et al. Satellite-to-ground quantum key distribution[J]. *Nature*, 2017, 549(7670):43–47
 - [61] Chen Y A, Zhang Q, Chen T Y, et al. An integrated space-to-ground quantum communication network over 4,600 kilometres[J]. *Nature*, 2021, 589:214–219
 - [62] Zhong H S, Wang H, Deng Y H, et al. Quantum computational advantage using photons[J]. *Science*, 2020, 370(6523):1460–1463
 - [63] Wang D W, Liu R B, Zhu S Y, et al. Superradiance Lattice[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2015, 114:043602
 - [64] Chen L, Wang P, Meng Z, et al. Experimental Observation of One-Dimensional Superradiance Lattices in Ultracold Atoms[J]. *Phys. Rev. Lett.*,

- 2018, 120:193601
- [65] Cai H, Liu J, Wu J, et al. Experimental Observation of Momentum-Space Chiral Edge Currents in Room-Temperature Atoms[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2019, 122:023601
- [66] Wang P, Chen L, Mi C, et al. Synthesized magnetic field of a sawtooth superradiance lattice in Bose-Einstein condensates[J]. *NPJ Quantum Information*, 2020, 6(1)
- [67] Fleischhauer M, Lukin M D. Dark-State Polaritons in Electromagnetically Induced Transparency[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2000, 84:5094–5097
- [68] Fleischhauer M, Imamoglu A, Marangos J P. Electromagnetically induced transparency: Optics in coherent media[J]. *Rev. Mod. Phys.*, 2005, 77:633–673
- [69] Zhang S, Liu C, Zhou S, et al. Coherent Control of Single-Photon Absorption and Reemission in a Two-Level Atomic Ensemble[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2012, 109:263601
- [70] Zhu B, Cooper J, Ye J, et al. Light scattering from dense cold atomic media[J]. *Phys. Rev. A*, 2016, 94:023612
- [71] Sutherland R T, Robicheaux F. Coherent forward broadening in cold atom clouds[J]. *Phys. Rev. A*, 2016, 93:023407
- [72] Araújo M O, Krešić I, Kaiser R, et al. Superradiance in a Large and Dilute Cloud of Cold Atoms in the Linear-Optics Regime[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2016, 117:073002
- [73] Chui S T, Du S, Jo G B. Subwavelength transportation of light with atomic resonances[J]. *Phys. Rev. A*, 2015, 92:053826
- [74] Bettles R J, Gardiner S A, Adams C S. Cooperative eigenmodes and scattering in one-dimensional atomic arrays[J]. *Phys. Rev. A*, 2016, 94:043844
- [75] Needham J A, Lesanovsky I, Olmos B. Subradiance-protected excitation transport[J]. *New Journal of Physics*, 2019, 21(7):073061
- [76] Scully M O. Single Photon Subradiance: Quantum Control of Spontaneous Emission and Ultrafast Readout[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2015, 115:243602
- [77] Facchinetti G, Jenkins S D, Ruostekoski J. Storing Light with Subradiant Correlations in Arrays of Atoms[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2016, 117:243601
- [78] Simon J, Tanji H, Ghosh S, et al. Single-photon bus connecting spin-wave quantum memories[J]. *Nature Physics*, 2007, 3(11):765–769
- [79] Zhao R, Dudin Y O, Jenkins S D, et al. Long-lived quantum memory[J]. *Nature*

- Physics, 2009, 5(2):100–104
- [80] Novikova I, Walsworth R, Xiao Y. Electromagnetically induced transparency-based slow and stored light in warm atoms[J]. *Laser & Photonics Reviews*, 2012, 6(3):333–353
- [81] Chang W, Li C, Wu Y K, et al. Long-Distance Entanglement between a Multiplexed Quantum Memory and a Telecom Photon[J]. *Phys. Rev. X*, 2019, 9:041033
- [82] Udem T, Holzwarth R, Hänsch T W. Optical frequency metrology[J]. *Nature*, 2002, 416(6877):233–237
- [83] Cundiff S T, Ye J. Colloquium: Femtosecond optical frequency combs[J]. *Rev. Mod. Phys.*, 2003, 75:325–342
- [84] Cingöz A, Yost D C, Allison T K, et al. Direct frequency comb spectroscopy in the extreme ultraviolet[J]. *Nature*, 2012, 482(7383):68–71
- [85] Tian P, Keusters D, Suzuki Y, et al. Femtosecond Phase-Coherent Two-Dimensional Spectroscopy[J]. *Science*, 2003, 300(5625):1553–1556
- [86] Lomsadze B, Cundiff S T. Frequency combs enable rapid and high-resolution multidimensional coherent spectroscopy[J]. *Science*, 2017, 357(6358):1389–1391
- [87] Ichikawa T, Bando M, Kondo Y, et al. Geometric aspects of composite pulses[J]. *Philosophical Transactions of the Royal Society A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, 2012, 370(1976):4671–4689
- [88] Ma Y, Huang X, Wang X, et al. Precise pulse shaping for quantum control of strong optical transitions[J]. *Opt. Express*, 2020, 28(12):17171–17187
- [89] Low G H, Yoder T J, Chuang I L. Methodology of Resonant Equiangular Composite Quantum Gates[J]. *Phys. Rev. X*, 2016, 6:041067
- [90] Jo H, Song Y, Ahn J. Qubit leakage suppression by ultrafast composite pulses[J]. *Opt. Express*, 2019, 27(4):3944–3951
- [91] Cundiff S T, Weiner A M. Optical arbitrary waveform generation[J]. *Nature Photonics*, 2010, 4(11):760–766
- [92] Weiner A M. Ultrafast optical pulse shaping: A tutorial review[J]. *Optics Communications*, 2011, 284(15):3669–3692. Special Issue on Optical Pulse Shaping, Arbitrary Waveform Generation, and Pulse Characterization
- [93] Carini J L, Kallush S, Kosloff R, et al. Enhancement of Ultracold Molecule Formation Using Shaped Nanosecond Frequency Chirps[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2015, 115:173003

- [94] Rogers C E, Gould P L. Nanosecond pulse shaping at 780 nm with fiber-based electro-optical modulators and a double-pass tapered amplifier[J]. *Opt. Express*, 2016, 24(3):2596–2606
- [95] Kaufman B, Paltoo T, Grogan T, et al. Pulsed, controlled, frequency-chirped laser light at GHz detunings for atomic physics experiments[J]. *Applied Physics B: Lasers and Optics*, 2017, 123(2):58
- [96] Lim J, Lee H G, Lee S, et al. Ultrafast Ramsey interferometry to implement cold atomic qubit gates[J]. *Scientific Reports*, 2014, 4:5867
- [97] Metcalf H. Colloquium: Strong optical forces on atoms in multifrequency light[J]. *Rev. Mod. Phys.*, 2017, 89:041001
- [98] Long X, Yu S S, Jayich A M, et al. Suppressed Spontaneous Emission for Coherent Momentum Transfer[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2019, 123:033603
- [99] Jenkins S D, Ruostekoski J. Theoretical formalism for collective electromagnetic response of discrete metamaterial systems[J]. *Phys. Rev. B*, 2012, 86:085116
- [100] Jenkins S D, Ruostekoski J. Metamaterial Transparency Induced by Cooperative Electromagnetic Interactions[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2013, 111:147401
- [101] Hopkins B, Poddubny A N, Miroschnichenko A E, et al. Revisiting the physics of Fano resonances for nanoparticle oligomers[J]. *Phys. Rev. A*, 2013, 88:053819
- [102] Emami S D, Soltanian M R K, Attaran A, et al. Application of Fano resonance effects in optical antennas formed by regular clusters of nanospheres[J]. *Applied Physics A: Materials Science & Processing*, 2015, 118(1):139–150
- [103] Langguth L, Fleury R, Alù A, et al. Drexhage’s Experiment for Sound[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2016, 116:224301
- [104] Urvoy A, Vendeiro Z, Ramette J, et al. Direct Laser Cooling to Bose–Einstein Condensation in a Dipole Trap[J]. *Physical Review Letters*, 2019, 122(20):203202
- [105] Lehmburg R H. Radiation from an N -Atom System. I. General Formalism[J]. *Phys. Rev. A*, 1970, 2:883–888
- [106] Jones R, Saint R, Olmos B. Far-field resonance fluorescence from a dipole-interacting laser-driven cold atomic gas[J]. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, 2017, 50(1):014004
- [107] Bienaimé T, Petruzzio M, Bigerni D, et al. Atom and photon measurement in cooperative scattering by cold atoms[J]. *Journal of Modern Optics*, 2011, 58(21):1942–1950
- [108] Lee M D, Jenkins S D, Ruostekoski J. Stochastic methods for light propagation

- and recurrent scattering in saturated and nonsaturated atomic ensembles[J]. *Phys. Rev. A*, 2016, 93:063803
- [109] Schachenmayer J, Pikovski A, Rey A M. Many-Body Quantum Spin Dynamics with Monte Carlo Trajectories on a Discrete Phase Space[J]. *Phys. Rev. X*, 2015, 5:011022
- [110] Schachenmayer J, Pikovski A, Rey A M. Dynamics of correlations in two-dimensional quantum spin models with long-range interactions: a phase-space Monte-Carlo study[J]. *New Journal of Physics*, 2015, 17(6):065009
- [111] Krämer S, Ritsch H. Generalized mean-field approach to simulate the dynamics of large open spin ensembles with long range interactions[J]. *European Physical Journal D*, 2015, 69(12):282
- [112] Bowden C M, Dowling J P. Near-dipole-dipole effects in dense media: Generalized Maxwell-Bloch equations[J]. *Phys. Rev. A*, 1993, 47:1247–1251
- [113] Castin Y, Mølmer K. Maxwell-Bloch equations: A unified view of nonlinear optics and nonlinear atom optics[J]. *Phys. Rev. A*, 1995, 51:R3426–R3428
- [114] Svidzinsky A A, Zhang X, Scully M O. Quantum versus semiclassical description of light interaction with atomic ensembles: Revision of the Maxwell-Bloch equations and single-photon superradiance[J]. *Phys. Rev. A*, 2015, 92:013801

第二章 光与原子、原子与原子的相互作用

2.1 本章概述

在本文的第一章中，我们回顾了关于多体系统集体效应的研究工作，并介绍了原子系统的光偶极自旋波——一种有着非常重要应用的非局域集体激发。在目前，对光偶极自旋波的调控手段十分匮乏，这导致许多基于相位失配的集体激发的重要物理应用无法实现。本文研究的主要工作是借助自主发展的新型电偶极跃迁调控技术来实现高效的光偶极自旋波调控，并在新技术开辟的新领域中探究了与自旋波相关的新奇物理现象。在展示本文的实验工作之前，本章（第二章）将对相关的理论基础进行介绍，其内容涉及光与原子相互作用的理论和原子与原子相互作用的理论，它们为本文的自旋波调控技术、自旋波动力学研究提供了重要的物理图像。

章节 2.2 将首先从偶极近似下的二能级原子出发，介绍经典光场与一个无自发辐射的中性二能级原子的相互作用理论，并借助 Bloch 球的图像讨论基于啁啾脉冲的绝热快速过程以及与之相关的几何相位的概念。接着，在章节 2.2 的后半部分我们将引入原子激发态的自发辐射并给出波恩-马尔科夫近似下的主方程形式，然后借此推导出单个弱激发的原子的演化方程——一个描述经典电偶极子的动力学方程。

在章节 2.3 中，我们将介绍电偶极子的辐射场，并利用章节 2.2 中的一些结论推导出经典电偶极子的耦合方程。然后，我们更进一步地讨论原子之间的偶极-偶极相互作用，并介绍描述多原子系统演化的主方程。接着，我们介绍在弱激发近似（或者单激发近似）下多原子主方程如何退化到经典电偶极子的耦合方程。最后，我们对原子样品的空间分布做连续化的近似，给出另一个描述弱激发原子系统的动力学方程——描述连续介质的 Maxwell-Bloch 方程。

2.2 光与二能级原子的相互作用

2.2.1 偶极近似

作为中性原子的一个简单例子，碱金属原子与光的相互作用是易于描述的。它拥有一个电子和一个带正电原子实组成的类氢结构，这种简单结构使得相应的电偶极跃迁理论模型也较简单，因此，它与（近共振）光场的相互作用也容易在数值上进行模拟。现在，我们用一个二能级系统来描述这种电偶极跃迁：它有一个基态 $|g\rangle$ 和一个激发态 $|e\rangle$ ，激发态与基态之间的能量差为 $\hbar\omega_0$ ，如图

2.1 所示。不失一般性，可以将基态的能量设为 0，那么二能级原子的哈密顿量（Hamiltonian）可以写成：

$$\hat{H}_0 = \hbar\omega_0|e\rangle\langle e| + 0|g\rangle\langle g| \quad (2.1)$$

原子电偶极矩的经典表达式为 $\mathbf{d} = e\mathbf{l}$ ，其中 e 是电子的电荷， \mathbf{l} 是正、负电荷相对位矢。其量子化的形式，即电偶极矩算符 $\hat{\mathbf{d}}$ ，在原子能量本征态展开下可写成：

$$\hat{\mathbf{d}} = \mathbf{d}_{eg}|e\rangle\langle g| + \mathbf{d}_{ge}|g\rangle\langle e| \quad (2.2)$$

其中 $\mathbf{d}_{eg} \equiv \langle e|\hat{\mathbf{d}}|g\rangle = \mathbf{d}_{ge}^*$ 。这里我们认为基态 $|g\rangle$ 和激发态 $|e\rangle$ 本身都不具备电偶极矩，即 $|\langle e|\hat{\mathbf{d}}|e\rangle| = |\langle g|\hat{\mathbf{d}}|g\rangle| = 0$ 。电偶极矩算符 $\hat{\mathbf{d}}$ 的对角项为 0 意味着只有当原子处在基态与激发态的相干叠加态时，它才表现出非零的电偶极矩。

原子是电中性的，它与外场相互作用的最主要形式表现为电偶极子和电场 $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$ 的相互作用，相互作用的哈密顿量可写成：

$$\hat{H}_{\text{int}} = -\hat{\mathbf{d}} \cdot \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) \quad (2.3)$$

在相互作用的表达式里，原子之所以能被当成是电偶极子，是基于一个很重要的近似——偶极近似：外场的波长远远大于原子的尺寸，这使得电场在原子内部可以近似成均匀的。在偶极近似下，原子在外场中仅表现出（量子的）电偶极子的行为，原子与外场的高阶相互作用可以忽略^[1]。公式 (2.3) 中的 \mathbf{r} 为原子位矢。对于实际情况而言，用于激发电偶极跃迁的近共振光的波长（ $\sim 10^{-6}$ m）常常是远大于原子尺寸（ $\sim 10^{-10}$ m）的，因此偶极近似在实际应用中是十分好的近似。

这里值得一提的是，虽然公式 (2.3) 中的电场写成了经典的形式，但这种相互作用的表达式同样是适用于量子化的光场的。实际上，原子在和外部经典光场相互作用的同时也会与真空的多模电磁场相互作用（这导致了激发态的自发辐射，这在章节 2.2.4 中会有所讨论），对后者的描述需借助量子化的手段，但相互作用的表达式仍然形如式 (2.3)，只是其中的电场部分是量子化后的场算符。

2.2.2 无自发辐射二能级原子的演化

现考虑一个近共振的经典光场，其电场 $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$ 的具体形式为：

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \mathcal{E}(\mathbf{r}, t)e^{-i(\omega t - \mathbf{k} \cdot \mathbf{r})} + \mathcal{E}^*(\mathbf{r}, t)e^{i(\omega t - \mathbf{k} \cdot \mathbf{r})} \quad (2.4)$$

其中， $\mathcal{E}(\mathbf{r}, t)$ 是慢变振幅，即它在时间上的变化远远慢于光学（圆）频率 ω ，即 $|\frac{\partial}{\partial t}\mathcal{E}(\mathbf{r}, t)| \ll \omega|\mathcal{E}(\mathbf{r}, t)|$ 。并且它在空间上发生变化的尺度也远远大于光学波长

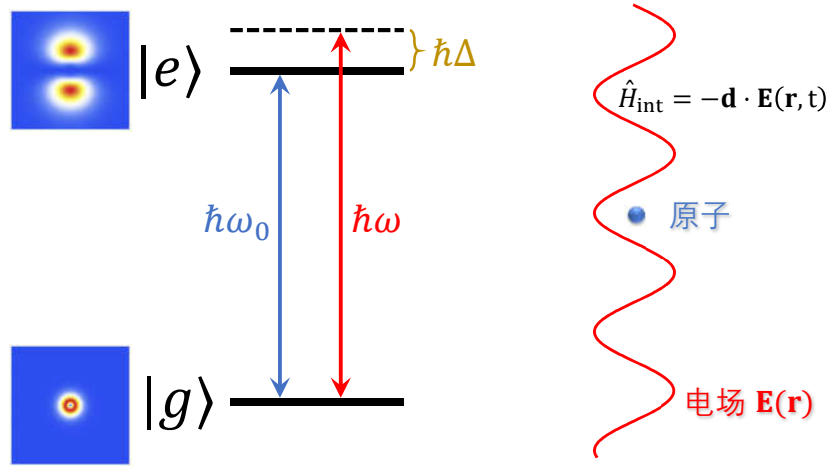


图 2.1 上图为近共振光场与原子相互作用示意图，其中光场的圆频率为 ω ， $\Delta = \omega - \omega_0$ 是单频光场的失谐量（detuning），原子尺寸远小于光波波长，满足偶极近似条件。

$\lambda = 2\pi/|\mathbf{k}|$ ， \mathbf{k} 是光场的波矢。若我们考虑光场与空间中静止的原子相互作用，不失一般性，可令 $\mathcal{E}(\mathbf{r}, t) = \mathcal{E}(t)$ ，并且略去光场的空间相位，即 $\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} = 0$ 。现在，结合公式 (2.1) 和 (2.3)，系统总的哈密顿量可写成：

$$\begin{aligned} \hat{H}_{\text{tot}} &= \hat{H}_0 + \hat{H}_{\text{int}} \\ &= \hbar\omega_0|e\rangle\langle e| - (\mathbf{d}_{eg}|e\rangle\langle g| + \mathbf{d}_{ge}|g\rangle\langle e|) \cdot (\mathcal{E}(t)e^{-i\omega t} + \mathcal{E}^*(t)e^{i\omega t}) \\ &= \hbar\omega_0|e\rangle\langle e| - [(\mathbf{d}_{eg} \cdot \mathcal{E}(t)e^{-i\omega t} + \mathbf{d}_{ge} \cdot \mathcal{E}^*(t)e^{i\omega t})|e\rangle\langle g| + \text{H.c.}] \end{aligned} \quad (2.5)$$

其中 H.c. 表示厄米共轭项。同时，二能级系统的波函数可表达成：

$$|\psi\rangle = c_1(t)|e\rangle + c_2(t)|g\rangle \quad (2.6)$$

其中复数 c_1 、 c_2 满足归一化条件 $|c_1|^2 + |c_2|^2 = 1$ ，而波函数的演化遵循 Schrödinger 方程：

$$i\hbar \frac{d}{dt} |\psi\rangle = \hat{H}_{\text{tot}} |\psi\rangle \quad (2.7)$$

通过 Schrödinger 方程（见式 (2.6)）我们可以直接得到二能级原子的含时演化，但在实际应用中我们往往不会对其进行直接求解。对于电偶极跃迁，其跃迁（圆）频率通常为 $\omega_0 \sim 2\pi \times 10^2$ THz。这使得式 (2.6) 中波函数 $|\psi\rangle$ 的含时演化也会包含相应的高频成分，这有时会给数值计算带来麻烦。

现在考虑如下变换：

$$\begin{aligned} |\psi'\rangle &= \hat{U}^{-1}|\psi\rangle \\ \hat{H}'_{\text{tot}} &= \hat{U}^{-1}\hat{H}_{\text{tot}}\hat{U} - i\hbar\hat{U}^{-1}\frac{d}{dt}\hat{U} \end{aligned} \quad (2.8)$$

其中的酉矩阵 \hat{U} 为

$$\hat{U} = e^{-i\omega t}|e\rangle\langle e| + |g\rangle\langle g| = \begin{pmatrix} e^{-i\omega t} & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix} \quad (2.9)$$

在该变换下， $|\psi'\rangle$ 和 \hat{H}'_{tot} 仍满足 Schrödinger 方程，即

$$i\hbar\frac{d}{dt}|\psi'\rangle = \hat{H}'_{\text{tot}}|\psi'\rangle \quad (2.10)$$

此时的哈密顿量 \hat{H}'_{tot} 为¹：

$$\hat{H}'_{\text{tot}} = -\hbar\Delta|e\rangle\langle e| - ((\mathbf{d}_{eg} \cdot \boldsymbol{\mathcal{E}}(t) + \mathbf{d}_{eg} \cdot \boldsymbol{\mathcal{E}}^*(t)e^{2i\omega t})|e\rangle\langle g| + \text{H.c.}) \quad (2.11)$$

这里 $\Delta = \omega - \omega_0$ 是光场的失谐量，满足 $\Delta \ll \omega$ 。式 (2.8) 所示的变换实际上更换了能量参考系，它相当于在 $|g\rangle$ 和 $|e\rangle$ 构成的希尔伯特空间中换了一个“旋转的”参考系，在这个参考系下光场的频率为 0。在新的“旋转”参考系下，波函数的演化中依然存在高频成分（源于式 (2.11) 中的 $\mathbf{d}_{eg} \cdot \boldsymbol{\mathcal{E}}^*(t)e^{2i\omega t}$ 和它的共轭项）。实际上，在 $\Delta \ll \omega$ 以及 $|\mathbf{d}_{eg} \cdot \boldsymbol{\mathcal{E}}^*| \ll \hbar\omega$ 的近似下，式 (2.11) 中的高频因子可以被忽略舍去，它们相当于非常远失谐的光场，并且相比起失谐量它们的强度很弱，这样的近似称为旋转波近似。在此近似下可得到更简洁的哈密顿量：

$$\begin{aligned} \hat{H} &= -\hbar\Delta|e\rangle\langle e| - (\mathbf{d}_{eg} \cdot \boldsymbol{\mathcal{E}}(t)|e\rangle\langle g| + \text{H.c.}) \\ &= -\hbar\Delta|e\rangle\langle e| - (\hbar\Omega(t)|e\rangle\langle g| + \text{H.c.}) \end{aligned} \quad (2.12)$$

其中 Rabi 频率定义为 $\Omega \equiv (\mathbf{d}_{eg} \cdot \boldsymbol{\mathcal{E}})/\hbar$ 。

在章节 3.4 中，本文会介绍一套自主设计搭建的高带宽任意波形激光系统，它能够产生在时域上有着特定振幅和相位的相干脉冲，进而实现量子调控。为了在理论上描述这种量子调控的过程，我们对上述推导稍作推广。引入相位调制后，光场的形式可写为：

$$\mathbf{E}(t) = \boldsymbol{\mathcal{E}}(t)e^{-i(\omega t + \varphi(t))} + \boldsymbol{\mathcal{E}}^*(t)e^{i(\omega t + \varphi(t))} \quad (2.13)$$

¹这里值得注意的是，变换相当于换了一套基矢： $\{|e\rangle, |g\rangle\} \rightarrow \{|\tilde{e}\rangle, |\tilde{g}\rangle\} = \{e^{-i\omega t}|e\rangle, |g\rangle\}$ ，但为了记号的简洁，在后文中将继续使用记号 $|e\rangle$ 、 $|g\rangle$ ，而不是 $|\tilde{e}\rangle$ 、 $|\tilde{g}\rangle$ 。

其中相位调制的速度远远小于光场的（圆）频率，即 $\dot{\varphi}(t) \ll \omega$ ，在这一条件下我们仍然可以使用旋转波近似。并且，用于旋转参考系变换的酉矩阵可选为：

$$\hat{U} = \begin{pmatrix} e^{-i(\omega t + \varphi(t))} & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix} \quad (2.14)$$

而最终的哈密顿量为

$$\hat{H} = -\hbar\Delta(t)|e\rangle\langle e| - (\hbar\Omega(t)|e\rangle\langle g| + \text{H.c.}) \quad (2.15)$$

其中 $\Delta(t) = \omega + \dot{\varphi}(t) - \omega_0$ 。

对于一个具有特定参数 $\Delta(t)$ 、 $\Omega(t)$ 的形如式 (2.15) 的哈密顿量，我们可以通过求解 Schrödinger 方程来得到系统的波函数演化。一般地，若忽略波函数的整体相位，二能级系统的波函数可以参数化成如下形式：

$$|\psi(\theta, \phi)\rangle = \cos\frac{\theta}{2}|e\rangle + e^{i\phi}\sin\frac{\theta}{2}|g\rangle \quad (2.16)$$

其中 θ 的范围从 0 到 π ， ϕ 的范围从 0 到 2π 。从式 (2.16) 中不难发现，二能级原子的波函数与二维球面上的点是一一对应的，这使得我们可以在一个球面上可视化二能级原子的波函数，这样的球称为 Bloch 球，如图 2.2 所示。

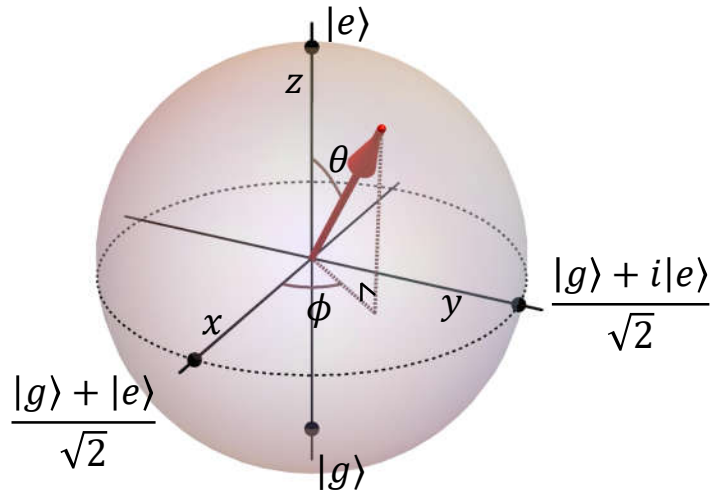


图 2.2 Bloch 球示意图。图中的红色箭头表示量子态 $|\psi(\theta, \phi)\rangle = \cos\frac{\theta}{2}|e\rangle + e^{i\phi}\sin\frac{\theta}{2}|g\rangle$ 。

我们可以很直观地用 Bloch 球上的一点来表示一个量子态，同时我们可以利用算符的运动方程求出量子态在 Bloch 球上的演化，下面我们对此作简要介绍。记 Bloch 球上的一点（对应一个量子态）的三维坐标为 $\mathbf{R} = \{X, Y, Z\}$ （态

矢量), 它们可以通过泡利矩阵的期待值得得, 即 $\{X, Y, Z\} = \{\langle \hat{\sigma}_x \rangle, \langle \hat{\sigma}_y \rangle, \langle \hat{\sigma}_z \rangle\}$, 其中:

$$\hat{\sigma}_x = \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix}, \quad \hat{\sigma}_y = \begin{pmatrix} 0 & -i \\ i & 0 \end{pmatrix}, \quad \hat{\sigma}_z = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix} \quad (2.17)$$

在海森堡图像下, 可观测量的算符 \hat{A} 的演化方程 (海森堡方程) 为:

$$\frac{d}{dt}\hat{A}(t) = \frac{i}{\hbar}[\hat{H}, \hat{A}] + \frac{\partial \hat{A}}{\partial t} \quad (2.18)$$

将 $\hat{\sigma}_{x,y,z}$ 和式 (2.15) 中的哈密顿量 \hat{H} 代入海森堡方程, 我们可以发现 $\mathbf{R}(t)$ 满足的运动方程可以简洁地表达为:

$$\frac{d}{dt}\mathbf{R}(t) = \boldsymbol{\Omega}(t) \times \mathbf{R}(t) \quad (2.19)$$

其中控制矢量的定义为 $\boldsymbol{\Omega}(t) = \{-2\text{Re}\Omega(t), -2\text{Im}\Omega^*(t), -\Delta(t)\}$ 。可以看出, 式 (2.19) 是一个描述转动的方程, 即态矢量 $\mathbf{R}(t)$ 绕着控制矢量 $\boldsymbol{\Omega}(t)$ 转动, 且转动的瞬时圆频率为 $|\boldsymbol{\Omega}(t)|$ 。相比 Schrödinger 方程, 式 (2.19) 没有给波函数含时演化的数值计算带来实质性的便利, 但它能为我们理解二能级波函数演化提供一个直观的图像。

为了记号的简洁性, 我们不妨做变换: $\Omega(t) \rightarrow \Omega(t)/2$ 。在变换后哈密顿量变为 $\hat{H} = -\hbar\Delta(t)|e\rangle\langle e| - (\frac{\hbar}{2}\Omega(t)|e\rangle\langle g| + \text{H.c.})$, 而控制矢量可以重新写成 $\boldsymbol{\Omega}(t) = \{-\text{Re}\Omega(t), -\text{Im}\Omega^*(t), -\Delta(t)\}$, 在之后本文会统一使用这种形式的写法。

2.2.3 基于啁啾脉冲的绝热过程

现考虑一个二能级系统的含时哈密顿量 $\hat{H}(t)$, 它在任意 t 时刻都有一组瞬时的正交完备的本征态 $\{|\psi_1(t)\rangle, |\psi_2(t)\rangle\}$ 和本征能量 $\{E_1(t), E_2(t)\}$, 满足:

$$\hat{H}(t)|\psi_{1,2}(t)\rangle = E_{1,2}(t)|\psi_{1,2}(t)\rangle \quad (2.20)$$

因为 $\{|\psi_1(t)\rangle, |\psi_2(t)\rangle\}$ 是正交完备的, 系统在 t 时刻的波函数总可以写成

$$|\psi(t)\rangle = c_1(t)e^{i\theta_1(t)}|\psi_1(t)\rangle + c_2(t)e^{i\theta_2(t)}|\psi_2(t)\rangle \quad (2.21)$$

其中:

$$\theta_{1,2}(t) \equiv -\frac{1}{\hbar} \int_0^t E_{1,2}(t') dt' \quad (2.22)$$

它通常被称为动态相位。

现将式 (2.20) 代入到 Schrödinger 方程 $i\hbar \frac{d}{dt}|\psi(t)\rangle = \hat{H}(t)|\psi(t)\rangle$ 中, 可以得到

$$\dot{c}_{1,2}(t) = -c_{1,2}\langle\psi_{1,2}|\dot{\psi}_{1,2}\rangle - c_{2,1}\frac{\langle\psi_{1,2}|\dot{\hat{H}}|\psi_{2,1}\rangle}{E_{2,1} - E_{1,2}}e^{i(\theta_{2,1}-\theta_{1,2})} \quad (2.23)$$

应当注意到, 到式 (2.23) 为止的结果是严格的。现考虑绝热近似 (adiabatic approximation), 当哈密顿量随时间变化非常缓慢时, 式 (2.23) 中等式右边的最后一项可以忽略, 在此近似下有:

$$\begin{aligned} \dot{c}_{1,2}(t) &\approx -c_{1,2}\langle\psi_{1,2}|\dot{\psi}_{1,2}\rangle \\ \implies c_{1,2}(t) &= c_{1,2}(0)e^{i\gamma_{1,2}(t)} \end{aligned} \quad (2.24)$$

其中

$$\gamma_{1,2} = i \int_0^t \langle\psi_{1,2}(t')|\frac{\partial}{\partial t'}\psi_{1,2}(t')\rangle dt' \quad (2.25)$$

被称为几何相位^[2], 是纯实数。结合式 (2.21) 和式 (2.24) 我们可以发现, 若系统初始时刻处在哈密顿量的某个瞬时本征态上, 在绝热近似下该系统会一直处在对应的瞬时本征态中。式 (2.23) 中的最后一项会导致不同瞬时本征态之间的耦合, 也是绝热过程中的“非绝热性”的来源。一般地, 如果哈密顿量随时间的变化过程中始终保持条件

$$\hbar \left| \frac{\langle\psi_1|\dot{\hat{H}}|\psi_2\rangle}{E_2 - E_1} \right| \ll |E_2 - E_1|, \quad (2.26)$$

那么系统会具有很好的“绝热性”。当系统满足绝热条件时, 系统的演化会“跟随”哈密顿量的本征态, 最终到达我们想要的末态, 而这一过程并不对哈密顿量的具体演化方式有要求, 因此绝热过程是对实验条件极具容错性的一种量子调控方案, 它有着非常广泛的应用。这里的讨论虽然是以二能级系统为例, 但它也可以很直接地推广到多能级系统。

绝热过程可以很形象地在 Bloch 球上表示出来, 作为一个例子, 我们这里考虑原子布居翻转的绝热过程。现考虑原子初始时刻处在基态, 即态矢量指向 Bloch 球的“南极点”, 一个具有特定振幅 \mathcal{E} 和相位 φ 的光场 (见式 (2.13)) 可使得控制矢量 Ω 具有如下形式:

$$\Omega = \{\Omega_x, \Omega_y, \Omega_z\} = \{\Omega_0 \sin(\pi t/\tau), 0, -\Delta_0 \cos(\pi t/\tau)\} \quad (2.27)$$

该控制矢量在初始时刻指向“南极点”, 与态矢量方向一致。接着, 控制矢量沿着某一条“经线”运动直至在末时刻 τ 指向“北极点”。假设在该过程中始终满

足条件 $\sqrt{\Omega_0^2 + \Delta_0^2} \gg \pi/\tau$ (该条件是式 (2.26) 的一个特例), 那么态矢量会一直绕在控制矢量的附近并跟随控制矢量翻转至“北极点”。在图 2.3 中展示了这一过程的数值模拟结果, 其中的参数设为 $\tau\Omega_0 = \tau\Delta_0 = 80\pi$ 。模拟的初始时刻为 $t = 0$ (若不指明, 本章所考虑的演化的初始时刻总是 $t = 0$)。

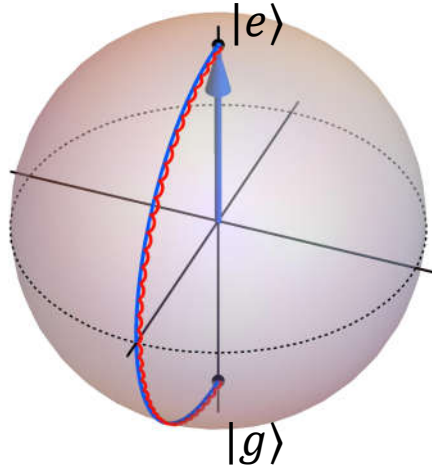


图 2.3 绝热近似下的布居翻转在 Bloch 球上的表示。红色轨迹表示量子态的演化轨迹, 蓝色箭头是 (归一化的) 控制矢量, 蓝色轨迹是其演化轨迹。具体的模拟参数详见正文。

绝热近似的条件 (式 (2.26)) 在有些实验条件下是难以满足的, 而且它常常是不必要的。要实现高保真度的绝热过程, 系统无需在演化过程中的所有时刻都保持“绝热”。对于一些经过设计的含时哈密顿量, 式 (2.23) 中的非对角耦合项 $-\frac{\langle \psi_{1,2} | \dot{H} | \psi_{2,1} \rangle}{E_{2,1} - E_{1,2}} e^{i(\theta_{2,1} - \theta_{1,2})}$ 在不同时刻导致的“非绝热”效应是能够相互抵消的, 这使得系统的波函数在演化过程中可以偏离绝热路径但最后仍然能回到哈密顿量的瞬时本征态上。目前, 一些关于“绝热快速过程” (adiabatic rapid passage) [3-5] 和“绝热捷径” (shortcut to adiabaticity) [6-8] 的研究工作已在绝热过程的优化问题上进行了大量的探索, 它们为一些哈密顿量的设计和优化提供了不少方案。

这里我们继续考虑原子的布居翻转, 并且讨论一下基于啁啾脉冲的绝热快速过程。式 (2.27) 中的控制矢量所对应的光场的相位随时间的变化并非线性的 ($\dot{\varphi}(t) = -\Delta_0 \cos(\pi t/\tau)$), 也可以说其“瞬时频率”在随时间变化, 这样的光脉冲被称为啁啾脉冲。现在将式 (2.27) 中的调控参数设为 $\tau\Omega_0 = \tau\Delta_0 = 8\pi$, 原子初始仍然处于基态, 演化方程 (2.19) 的数值模拟结果如图 2.4(a) 所示。可以看出, 在这样的参数下, 系统演化过程中的“绝热性”远不如图 2.3 所示的结果, 但是系统在最后时刻仍能准确到达激发态 $|e\rangle$, 这是因为参数“ $\tau\Omega_0 = \tau\Delta_0 = 8\pi$ ”的特殊性使得演化过程中的“非绝热性”相互抵消了。现在, 我们尝试偏离这

个特殊的参数点：固定 Δ_0 和 τ ，让 Ω_0 从 $7.8\pi/\tau$ 变化到 $8.8\pi/\tau$ 。数值模拟的结果如图 2.4(b) 所示，其中不同颜色的曲线代表不同 Ω_0 下量子态的演化轨迹，它们对应的末时刻的激发态布居均大于 99%。可以看出，虽然不在绝热近似的极

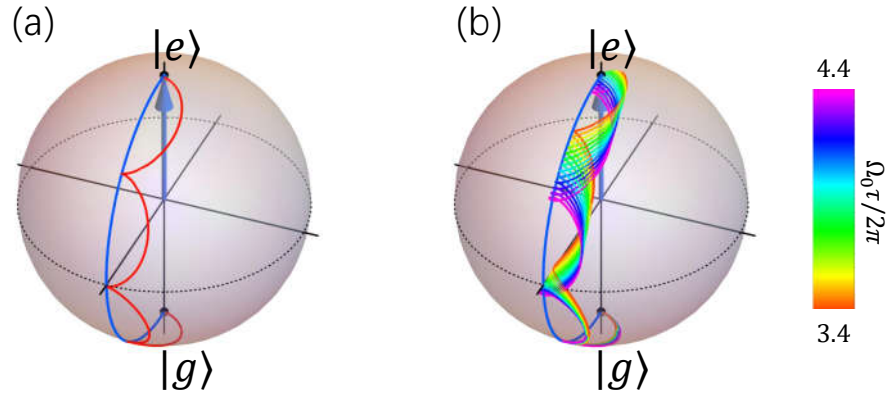


图 2.4 啁啾脉冲下的绝热快速过程。(a) 啁啾脉冲下的布居翻转，控制矢量为 $\Omega = \{\Omega_0 \sin(\pi t/\tau), 0, -\Delta_0 \cos(\pi t/\tau)\}$ 。(b) 不同强度下啁啾脉冲的布居翻转，所示的所有强度下末时刻的激发态布居均大于 99%。在 (a) 中，红色轨迹表示量子态的演化轨迹，蓝色箭头是（归一化的）控制矢量，蓝色轨迹是其演化轨迹。在 (b) 中，彩色的轨迹表示不同场强下量子态的演化轨迹，其余同 (a)。模拟参数详见正文。

限下，但这种“绝热快速过程”依然有着对调控参数的容错性。为了更清楚地展示出这种容错性，在图 2.5 中我们比较了共振脉冲调控 ($\Omega_x(t) = \Omega_0 \sin(\pi t/\tau)$, $\Omega_y(t) = 0$, $\Omega_z(t) = 0$) 和啁啾脉冲调控 ($\Omega_x(t) = \Omega_0 \sin(\pi t/\tau)$, $\Omega_y(t) = 0$, $\Omega_z(t) = -\Delta_0 \cos(\pi t/\tau)$) 下原子在 τ 时刻的激发态布居与脉冲面积 A 的关系，其中脉冲面积定义为 $A \equiv \int_0^\tau (|\Omega_x(t)|^2 + |\Omega_y(t)|^2) dt$ 。数值模拟中固定 $\tau\Delta_0 = 8\pi$ ， A 的改变是通过改变 Ω_0 来实现的。模拟结果表明，啁啾脉冲的布居翻转率在一定的光强范围内对光强的大小不敏感。实际上，基于这种啁啾脉冲的绝热快速过程不仅对光强有容错性，它还对脉冲的波形、脉冲的中心频率（体现为 Ω_z 的偏移量）等调控参数都具有容错性，这一点可以通过数值模拟来验证。对相关内容更深入的讨论可参考 Metcalf 等人的研究成果^[3-5]。在章节 4.3.3 中，我们会展示这些容错性在自旋波光学调控实验中的重要性。

○ 几何相位

现在我们考虑一对啁啾脉冲与原子的相互作用，系统的哈密顿量为 $\hat{H} =$

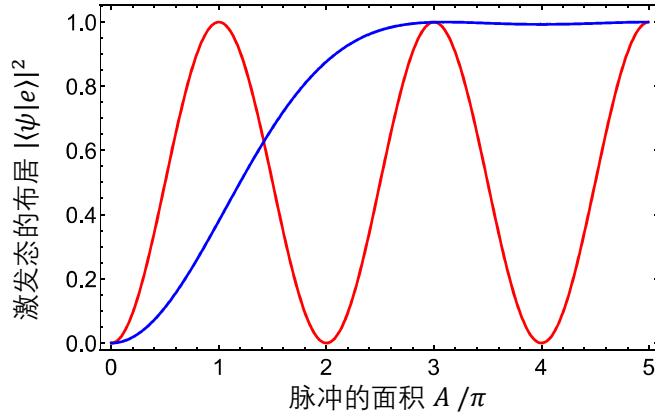


图 2.5 原子在 τ 时刻的激发态布居与脉冲面积 A 的关系。红色是共振脉冲的模拟结果，蓝线是啁啾脉冲的模拟结果。具体模拟参数见正文。

$-\hbar\Delta(t)|e\rangle\langle e| - (\frac{\hbar}{2}\Omega(t)|e\rangle\langle g| + \text{H.c.})$ (见章节 2.2.2)，这里我们设

$$\Omega(t) = \begin{cases} \Omega_0 e^{i\phi_1} \sin \frac{\pi t}{\tau}, & 0 \leq t < \tau \\ \Omega_0 e^{i\phi_2} \sin \frac{\pi(t-\tau)}{\tau}, & \tau \leq t < 2\tau \end{cases} \quad (2.28)$$

$$\Delta(t) = \begin{cases} -\Delta_0 \cos \frac{\pi t}{\tau}, & 0 \leq t < \tau \\ -\Delta_0 \cos \frac{\pi(t-\tau)}{\tau}, & \tau \leq t < 2\tau \end{cases}$$

其中第一个啁啾脉冲在时间区间 $0 \leq t < \tau$ ，第二个啁啾脉冲在时间区间 $\tau \leq t < 2\tau$ 。其中的 ϕ_1 、 ϕ_2 是第一、二个脉冲的光学相位。若系统能很好的满足绝热近似的条件，那么：在 $0 \leq t < \tau$ 的时间区间里，态矢量会跟随控制矢量的正方向绝热地从基态到达激发态；在 $\tau \leq t < 2\tau$ 的时间区间里，态矢量会跟随控制矢量的反方向绝热地从激发态回到基态。整个过程后量子态又回到了基态，这时波函数前会多出一个相位：

$$\begin{aligned} |\psi(0)\rangle &= |g\rangle \\ \implies |\psi(2\tau)\rangle &\approx e^{i\gamma}|g\rangle \end{aligned} \quad (2.29)$$

这里， γ 是几何相位，对于理想的绝热过程（绝热过程中态矢量“严格”跟随控制矢量），它可由式 (2.25) 严格计算出，其结果为：

$$\gamma = \pi + \phi_1 - \phi_2 \quad (2.30)$$

一般地，波函数在绝热过程中还会携带动态相位（见式 2.22），但这里波函数最终的动态相位为零。其原因在于，在第一个啁啾脉冲的绝热过程中波函数跟随着哈密顿量能量为正的本征态（控制矢量的正方向），而在第二个啁啾脉冲的绝热过程中波函数跟随着哈密顿量能量为负的本征态（控制矢量的反方向），两个过程是对称的，它们的积累的动态相位能相互抵消： $\theta = -\frac{1}{\hbar} \int_0^\tau E_1(t') dt' - \frac{1}{\hbar} \int_\tau^{2\tau} E_2(t') dt' = 0$ ，其中 E_1 、 E_2 分别为含时哈密顿量两个瞬时本征态的本征能量。

在图 2.6 中我们利用 Bloch 球展示了一对啁啾脉冲和原子相互作用的过程。要注意到，在实际中态矢量并不“严格”跟随控制矢量（如图 2.6(b) 所示），这时候仍然可以使用几何相位的概念。实际上这里几何相位 γ 可以解释为态矢量在 Bloch 球上形成的闭合回路对原点所张的立体角的一半。即使是如图 2.6(b) 所示的绝热快速过程，其调控的容错性和对称性也能保证 $\gamma \approx \pi + \phi_1 - \phi_2$ 。值得一提的是，若原子初始处在激发态，那么它将获得一个相反的几何相位： $|\psi(0)\rangle = |e\rangle \rightarrow |\psi(2\tau)\rangle \approx e^{-i\gamma}|e\rangle$ 。之后，我们将会论述如何利用上述几何相位实现自旋波调控（详见章节 3.2.3）。

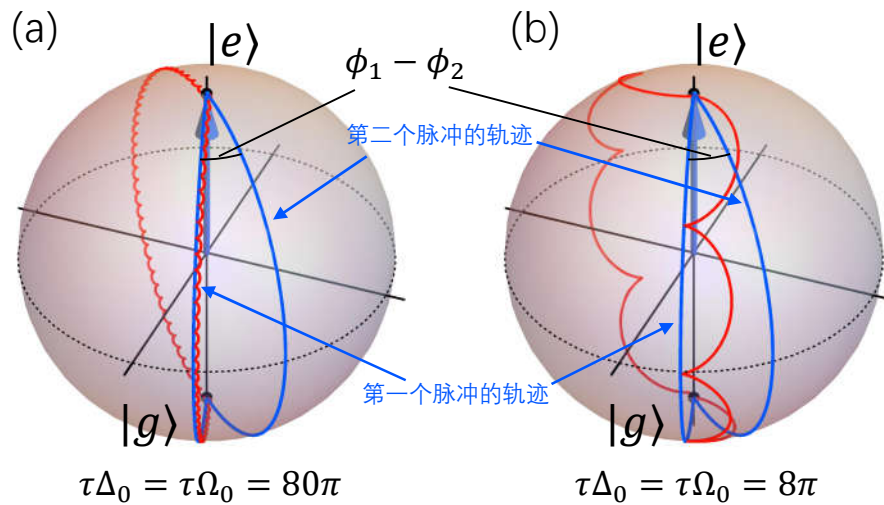


图 2.6 一对啁啾脉冲与二能级原子的相互作用在 Bloch 球中的表示。数值模拟的参数已在图上标出，记号与之前相同，见正文。

2.2.4 自发辐射与主方程

在真空环境中，当原子处在激发态时，即使没有经典的外场驱动，它也会“自发地”回到基态，并且辐射出一个光子。这种现象背后的原因是电磁场的真空模式与原子发生了相互作用，这种相互作用使得原子在有限时间里能够从激发态跃迁到基态。一个用以描述真空中原子含时演化的更精确的模型不仅要包含原子（内态）的自由度，还需要包含真空电磁场各个模式的自由度。

真空中，量子化的电场算符可用平面波的形式展开：

$$\hat{\mathbf{E}}(\mathbf{r}, t) = \sum_{\mathbf{k}, \alpha} \mathbf{e}_{\mathbf{k}}^{(\alpha)} \mathcal{E}_{\mathbf{k}} \hat{a}_{\mathbf{k}, \alpha} e^{-i\omega_{\mathbf{k}}t + i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}} + \text{H.c.} \quad (2.31)$$

其中 $\omega_{\mathbf{k}} = c|\mathbf{k}|$ (c 是光速)； $\mathbf{e}_{\mathbf{k}}^{(\alpha)}$ 表示偏振的单位基矢 ($\alpha = 1, 2$)； $\mathcal{E}_{\mathbf{k}} = \sqrt{\frac{\hbar\omega_{\mathbf{k}}}{2\epsilon_0 V}}$ ， V 是量子化的模式体积， ϵ_0 是真空介电常数； $\hat{a}_{\mathbf{k}, \alpha}$ 是光子的湮灭算符，满足 $[\hat{a}_{\mathbf{k}, \alpha}, \hat{a}_{\mathbf{k}', \alpha'}^\dagger] = \delta_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}\delta_{\alpha\alpha'}$ 。多模电磁场的哈密顿量为：

$$\hat{H}_F = \sum_{\mathbf{k}, \alpha} \hbar\omega_{\mathbf{k}} \left(\hat{a}_{\mathbf{k}, \alpha}^\dagger \hat{a}_{\mathbf{k}, \alpha} + \frac{1}{2} \right) \quad (2.32)$$

在偶极近似下（详见章节 2.2.1），考虑电场与原子的相互作用，系统总的哈密顿量为

$$\hat{H} = \hat{H}_A + \hat{H}_F - \hat{\mathbf{d}} \cdot \hat{\mathbf{E}}(\mathbf{r}, t) \quad (2.33)$$

其中 $\hat{\mathbf{d}}$ 是原子的电偶极矩算符， \hat{H}_A 是原子的哈密顿量，以二能级原子为例，可写成 $\hat{H}_A = \hbar\omega_0 |e\rangle\langle e| + 0 |g\rangle\langle g|$ （即式 (2.1)）。值得一提的是，这里电场已成了算符，式 (2.33) 中的哈密顿量既能用来描述原子与经典的驱动光场（例如光的量子态为相干态）的耦合，又能用来描述原子与真空光场（光的量子态为真空态）等的耦合。而本文对于原子与经典光场的耦合会一直采用如章节 2.2.1、章节 2.2.2 和章节 2.2.3 所示的半经典描述。

考虑原子在真空环境中，当我们得知了系统的哈密顿量（式 (2.33)），原则上我们可以通过求解 Schrödinger 方程得到原子和多模真空光场组成的整个系统的含时演化，但是这往往并不具备可行性。一方面，环境中需要考虑的光场模式数是无穷个（若把原子放到光学腔里情况会不一样），这给数值计算带来极大地困难。另一方面，我们通常感兴趣的只是原子的演化，而并不关心各个光场模式的行为，因此我们需要一个能直接描述原子（开放系统）演化的方法并在此过程中避免计算复杂的多模光场（外界环境）动力学。

○ 密度矩阵

在上面所讨论的原子与量子化多模光场耦合的系统中，若我们所关注的范围只限于原子的希尔伯特空间，那么作为一个开放系统，原子的“状态”用密度矩阵 $\hat{\rho}$ 来表征是更方便的。

一般地，系统的密度矩阵或密度算符可以写为

$$\hat{\rho} = \sum_i p_i |\psi_i\rangle\langle\psi_i| \quad (2.34)$$

这里 p_i 是原子处在量子态 $|\psi_i\rangle$ 的概率。以二能级原子为例，若系统处在一个相

干叠加态 $|\psi\rangle = c_1|e\rangle + c_2|g\rangle$ ，那么它的密度矩阵为

$$\hat{\rho} = (c_1|e\rangle + c_2|g\rangle)(c_1^*\langle e| + c_2^*\langle g|) = \begin{pmatrix} |c_1|^2 & c_1c_2^* \\ c_2c_1^* & |c_2|^2 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \rho_{ee} & \rho_{eg} \\ \rho_{ge} & \rho_{gg} \end{pmatrix} \quad (2.35)$$

其中 ρ_{ee} 和 ρ_{gg} 分别为原子在激发态和基态的布居，有 $\text{Tr}(\hat{\rho}) \equiv \rho_{ee} + \rho_{gg} = 1$ 。密度矩阵的非对角项 ρ_{eg} ($= \rho_{ge}^*$) 描述了基态与激发态的相干性 (coherence)。在式 (2.35) 中所展示的是一个纯态²，而密度矩阵还能用来表示混合态³，其中一个例子是：

$$\hat{\rho} = \frac{1}{2}|e\rangle\langle e| + \frac{1}{2}|g\rangle\langle g| = \begin{pmatrix} 1/2 & 0 \\ 0 & 1/2 \end{pmatrix} \quad (2.36)$$

这个密度矩阵所表示的原子的状态是：原子有 1/2 的概率处在基态，1/2 的概率处在激发态，但这种叠加模式是基于经典概率统计，而非量子力学中的相干叠加。实际上，对于开放系统（与外界环境有耦合）而言，它既有可能处于纯态，也有可能处于混合态，密度矩阵是描述这样的系统的一种方便的工具。对于密度算符 $\hat{\rho}$ ，任一算符 \hat{O} 的期待值可以通过求迹得到：

$$\langle \hat{O} \rangle = \text{Tr}(\hat{O}\hat{\rho}) = \text{Tr}(\hat{\rho}\hat{O}) \quad (2.37)$$

与 Schrödinger 方程对应，密度矩阵的演化方程为：

$$\dot{\hat{\rho}} = \frac{1}{i\hbar}[\hat{H}, \hat{\rho}] \quad (2.38)$$

○ 主方程

原子和多模真空光场组成的整个系统的密度矩阵记为 $\hat{\rho}_{AF}$ ，它的演化遵循方程 $i\hbar\dot{\hat{\rho}}_{AF} = [\hat{H}_A + \hat{H}_F - \hat{\mathbf{d}} \cdot \hat{\mathbf{E}}(\mathbf{r}, t), \hat{\rho}_{AF}]$ （见式 (2.38)）。在波恩-马尔科夫近似⁴下，通过对光场的自由度进行求迹，可以得到系统的一个约化的密度矩阵，即描述原子的密度矩阵， $\hat{\rho}_A = \text{Tr}_F(\hat{\rho}_{AF})$ ，并同时可以得到它的动力学方程 $\dot{\hat{\rho}}_A = \text{Tr}_F(\dot{\hat{\rho}}_{AF})$ 。以真空中的二能级原子为例， $\hat{\rho}_A$ 的动力学方程为^[9]：

$$\frac{d\hat{\rho}_A}{dt} = \frac{1}{i\hbar}[\hat{H}_A, \hat{\rho}_A] - \frac{\Gamma}{2}(\hat{\sigma}^+\hat{\sigma}^-\hat{\rho}_A + \hat{\rho}_A\hat{\sigma}^+\hat{\sigma}^- - 2\hat{\sigma}^-\hat{\rho}_A\hat{\sigma}^+) \quad (2.39)$$

该方程也称为主方程 (master equation)，其中 $\hat{\sigma}^- = |g\rangle\langle e|$ 、 $\hat{\sigma}^+ = (\hat{\sigma}^-)^\dagger$ 分别是

²对于纯态，有 $\text{Tr}(\hat{\rho}^2) = 1$ 。

³对于混合态，有 $\text{Tr}(\hat{\rho}^2) < 1$ 。

⁴外界环境（多模真空光场）足够“大”，原子对外界环境的影响可以忽略不计，且原子演化的特征时间远远大于外界环境的关联时间。

原子的下降、上升算符。 Γ 是激发态的衰减率，它可由 Weisskopf-Wigner 自发辐射理论^[10]得出：

$$\Gamma = \frac{\omega_0^3 |\mathbf{d}_{ge}|^2}{3\pi\epsilon_0 \hbar c^3} \quad (2.40)$$

这里 ω_0 是跃迁（圆）频率， \mathbf{d}_{eg} 定义为 $\mathbf{d}_{eg} \equiv \langle e | \hat{\mathbf{d}} | g \rangle$ （见式 (2.2)）。值得一提的是，式 (2.39) 中的 \hat{H}_A 可以是自由原子的哈密顿量（见式 (2.1)），也可以包含原子与经典的驱动场的耦合，（在“旋转”参考系下）可写成（见式 (2.12)）：

$$\hat{H}_A = -\hbar\Delta |e\rangle\langle e| - (\mathbf{d}_{eg} \cdot \boldsymbol{\mathcal{E}}(t) |e\rangle\langle g| + \text{H.c.}) \quad (2.41)$$

现在，不妨做记号更变 $\hat{\rho}_A \rightarrow \hat{\rho}$ ，并将式 (2.41) 代入到式 (2.39) 所示的主方程中，其展开式可写成

$$\begin{cases} \frac{d}{dt}\rho_{ee} = -\frac{d}{dt}\rho_{gg} = -\Gamma\rho_{ee} + \frac{1}{i\hbar}(-\mathbf{d}_{eg} \cdot \boldsymbol{\mathcal{E}}(t)\rho_{ge} + \mathbf{d}_{ge} \cdot \boldsymbol{\mathcal{E}}^*(t)\rho_{eg}) \\ \frac{d}{dt}\rho_{eg} = \frac{d}{dt}\rho_{ge}^* = \left(i\Delta - \frac{\Gamma}{2}\right)\rho_{eg} + \frac{1}{i\hbar}\mathbf{d}_{eg} \cdot \boldsymbol{\mathcal{E}}(t)(\rho_{ee} - \rho_{gg}) \end{cases} \quad (2.42)$$

该式子也被称为“光学 Bloch 方程”（optical Bloch equations，简称 OBE）。

与式 (2.19) 不同的是，光学 Bloch 方程（或主方程）中包含了原子自发辐射导致的消相干效应，这会使得原子在演化过程中其密度矩阵可能会处在混合态中，即使原子初态是纯态。尽管存在消相干效应，之前章节中所讨论的 Bloch 球、几何相位等概念是可以直接推广到开放系统中的，例如，Bloch 球中的态矢量现在可以写成 $\mathbf{R} = \{\text{Tr}(\hat{\rho}\hat{\sigma}_x), \text{Tr}(\hat{\rho}\hat{\sigma}_y), \text{Tr}(\hat{\rho}\hat{\sigma}_z)\}$ ，且 $|\mathbf{R}|$ 满足 $|\mathbf{R}| \leq 1$ 。注意到，当 $\Gamma \rightarrow 0$ 时式 (2.42) 与式 (2.19) 是一致的。

2.2.5 弱激发下电偶极子的演化方程

结合式 (2.2)，利用密度算符可将电偶极算符的期待值 $\langle \hat{\mathbf{d}} \rangle$ 写成：

$$\begin{aligned} \langle \hat{\mathbf{d}} \rangle &= \text{Tr}(\hat{\rho}\hat{\mathbf{d}}) = \mathbf{d}_{eg}\rho_{ge} + \mathbf{d}_{ge}\rho_{eg} \\ &= \mathbf{d}_+ + \mathbf{d}_- \end{aligned} \quad (2.43)$$

其中 $\mathbf{d}_- \equiv \mathbf{d}_{ge}\rho_{eg}$ ， $\mathbf{d}_+ \equiv \mathbf{d}_{eg}\rho_{ge}$ 。现在，我们利用光学 Bloch 方程（见式 (2.42)）求出 \mathbf{d}_- 的演化方程：

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt}\mathbf{d}_- &= \mathbf{d}_{ge}\frac{d}{dt}\rho_{eg} \\ &= \left(i\Delta - \frac{\Gamma}{2}\right)\mathbf{d}_- - \frac{i}{\hbar}(\rho_{ee} - \rho_{gg})(\mathbf{d}_{eg} \cdot \boldsymbol{\mathcal{E}}(t))\mathbf{d}_{ge} \end{aligned} \quad (2.44)$$

在弱激发下, 有 $\rho_{ee} - \rho_{gg} \approx -1$, 这时式 (2.44) 可进一步写成:

$$\dot{\mathbf{d}}_- \simeq \left(i\Delta - \frac{\Gamma}{2} \right) \mathbf{d}_- + \frac{i}{\hbar} (\mathbf{d}_{eg} \cdot \boldsymbol{\mathcal{E}}(t)) \mathbf{d}_{ge} \quad (2.45)$$

此时, \mathbf{d}_- 的演化遵循着线性的方程, 其行为无异于一个经典的电偶极子。其中, $\boldsymbol{\mathcal{E}}$ 是驱动场, 当系统中有着不止一个原子时, 它还可以包含其他原子的辐射场 (详章节 2.3.2)。

2.3 原子间的偶极-偶极相互作用

2.3.1 电偶极子的辐射场

若在空间坐标 \mathbf{r}_j 处存在一个经典的振荡频率为 ω_0 的电偶极子 \mathbf{d}_j , 那么它的辐射电场在 $\mathbf{r} = \mathbf{r}_j + \mathbf{R}_j$ 处的值可由经典电动力学的麦克斯韦方程组求得^[11]:

$$\mathbf{E}_j(\mathbf{r}) = \frac{k_0^3}{4\pi\epsilon_0} e^{ik_0 R_j} \left\{ \left(\frac{1}{k_0 R_j} + \frac{i}{(k_0 R_j)^2} - \frac{1}{(k_0 R_j)^3} \right) \mathbf{d}_j + \left(-\frac{1}{k_0 R_j} - \frac{3i}{(k_0 R_j)^2} + \frac{3}{(k_0 R_j)^3} \right) \frac{(\mathbf{R}_j \cdot \mathbf{d}_j) \mathbf{R}_j}{R_j^2} \right\} \quad (2.46)$$

式中有 $k_0 = \omega_0/c$, $R_j = |\mathbf{R}_j|$ 。 ϵ_0 是真空介电常数。引入格林张量, 上式可以简洁地写为

$$\mathbf{E}_j(\mathbf{r}) = \frac{k_0^2}{\epsilon_0} \mathbf{G}(\mathbf{R}_j, \omega_0) \cdot \mathbf{d}_j \quad (2.47)$$

其中 $\mathbf{G}(\mathbf{R}_j, \omega_0)$ 是自由空间的格林张量 (free-space Green's tensor), 其表达式为

$$\mathbf{G}(\mathbf{R}_j, \omega_0) = \frac{e^{ik_0 R_j}}{4\pi k_0^2 R_j^3} \left\{ (k_0^2 R_j^2 + ik_0 R_j - 1) \mathbb{1} + (-k_0^2 R_j^2 - 3ik_0 R_j + 3) \frac{\mathbf{R}_j \otimes \mathbf{R}_j}{R_j^2} \right\} \quad (2.48)$$

值得注意的是, 当 $k_0 R_j \gg 1$ 时, 式 (2.46) 所示的电场可近似为:

$$\mathbf{E}_j(\mathbf{r}) \simeq \mathbf{E}_j^{(\text{far})}(\mathbf{r}) = \frac{k_0^2}{4\pi\epsilon_0} \left\{ \left(\frac{\mathbf{R}_j}{R_j} \times \mathbf{d}_j \right) \times \frac{\mathbf{R}_j}{R_j} \right\} \frac{e^{ik_0 R_j}}{R_j} \quad (2.49)$$

在电偶极子辐射的远场区域, 电场大小以 $\sim 1/R_j$ 的形式随距离变化。

再看近场区域, 当 $k_0 R_j \ll 1$ 时, 式 (2.46) 可近似为:

$$\mathbf{E}_j(\mathbf{r}) \simeq \mathbf{E}_j^{(\text{near})}(\mathbf{r}) = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \left\{ \frac{3\mathbf{R}_j}{R_j} \left(\frac{\mathbf{R}_j}{R_j} \cdot \mathbf{d}_j \right) - \mathbf{d}_j \right\} \frac{1}{R_j^3} + i \frac{k_0^3}{6\pi\epsilon_0} \mathbf{d}_j \quad (2.50)$$

式 (2.50) 中的第一项随着 $k_0 R_j \rightarrow 0$ 是以 $\sim 1/R_j^3$ 的形式发散的, 这是由格林函数实部的渐进行为 $\text{Re}(\mathbf{G})|_{R_j \rightarrow 0}$ 导致的; 而式 (2.50) 中的第二项是收敛的, 这是因为 $\text{Im}(\mathbf{G})|_{R_j \rightarrow 0}$ 是收敛的。

2.3.2 经典电偶极子的耦合方程

现在, 我们考虑系统中存在 N ($N > 1$) 个弱激发的同种原子, 单原子激发态的自发辐射率记为 Γ , 在弱激发下它们可以被近似成经典的电偶极子 (见章节 2.2.5)。记空间上 N 个电偶极子为 $\mathbf{d}_1, \mathbf{d}_2, \dots, \mathbf{d}_N$ (每个电偶极子在自由时的本征频率均为 ω_0), 它们在空间上互不重合且保持静止, 记它们的坐标为 $\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, \dots, \mathbf{r}_N$ 。对于其中任意一个电偶极子而言, 它不仅“感受”到外界的驱动电场, 它还“感受”到其余 $N - 1$ 个电偶极子的辐射电场。在之前的论述中我们知道: 通过式 (2.45) 可以求出一个经典的电偶极子在驱动电场下的含时演化; 通过式 (2.47) 可以求出电偶极子在空间任一位置的辐射电场。结合这两点, 我们可以写出 N 个电偶极子 (在外场下) 的耦合方程。

根据式 (2.47) 以及电场的叠加原理, 这 N 个电偶极子的总辐射电场在 \mathbf{r} 处的值为:

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}) = \sum_{j=1}^N \mathbf{E}_j(\mathbf{r}) = \frac{k_0^2}{\epsilon_0} \sum_{j=1}^N \mathbf{G}(\mathbf{r} - \mathbf{r}_j, \omega_0) \cdot \mathbf{d}_j \quad (2.51)$$

现在, 利用式 (2.45) 我们可以 (在“旋转”坐标系下) 写出第 j 个电偶极子的动力学方程:

$$\dot{\mathbf{d}}_j = \left(i\Delta - \frac{\Gamma}{2} \right) \mathbf{d}_j + \frac{i}{\hbar} \left\{ \mathbf{d}_{eg} \cdot \left(\boldsymbol{\mathcal{E}}_0(\mathbf{r}_j, t) + \frac{k_0^2}{\epsilon_0} \sum_{l \neq j} \mathbf{G}(\mathbf{r}_j - \mathbf{r}_l, \omega_0) \cdot \mathbf{d}_l \right) \right\} \mathbf{d}_{ge} \quad (2.52)$$

其中 $\boldsymbol{\mathcal{E}}_0$ 是外部驱动电场。当 $\boldsymbol{\mathcal{E}}_0(\mathbf{r}_j, t) = 0$ 时, 式 (2.52) 将化为:

$$\dot{\mathbf{d}}_j = \left(i\Delta - \frac{\Gamma}{2} \right) \mathbf{d}_j + \frac{i}{\hbar} \mathbf{d}_{eg} \cdot \left(\frac{k_0^2}{\epsilon_0} \sum_{l \neq j} \mathbf{G}(\mathbf{r}_j - \mathbf{r}_l, \omega_0) \cdot \mathbf{d}_l \right) \mathbf{d}_{ge} \quad (2.53)$$

式 (2.53) 是无外场下经典电偶极子的耦合方程, 通过求解它, 我们可以得知多电偶极子系统的动力学行为, 并可结合式 (2.51) 求出系统辐射场的含时演化, 以此可以预言多原子系统在弱激发下的一些超辐射和亚辐射现象。实际上, 从多原子的主方程出发, 也可以推导出式 (2.53) (或式 (2.52)), 在章节 2.3.3 中我们做相关的讨论。

2.3.3 多原子主方程——弱激发近似

现考虑空间上有 N 个二能级原子 (这些原子是全同的), 它们的电偶极矩

算符记为 $\hat{\mathbf{d}}_1, \hat{\mathbf{d}}_2, \dots, \hat{\mathbf{d}}_N$ ，它们的激发态记为 $|e_1\rangle, |e_2\rangle, \dots, |e_N\rangle$ ，基态记为 $|g_1\rangle, |g_2\rangle, \dots, |g_N\rangle$ 。这些原子在空间上是静止且互不重合的，仍记它们的坐标为 $\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, \dots, \mathbf{r}_N$ 。单原子激发态与基态间的跃迁频率为 ω_0 。在本章节中，我们不考虑外部的驱动场（若要考虑，其推广过程是相当直接的）。

根据式 (2.2)，第 j 个原子的电偶极子算符可写为

$$\begin{aligned}\hat{\mathbf{d}}_j &= \mathbf{d}_{ge}|g_j\rangle\langle e_j| + \mathbf{d}_{eg}|e_j\rangle\langle g_j| \\ &= \mathbf{d}_{ge}\hat{\sigma}_j^- + \mathbf{d}_{eg}\hat{\sigma}_j^+\end{aligned}\quad (2.54)$$

其中 $\mathbf{d}_{ge} = d_{ge}\mathbf{e}_{ge}$ ， \mathbf{e}_{ge} 是描述电偶极矩偏振的单位向量。第 j 个原子辐射电场可记为

$$\begin{aligned}\hat{\mathbf{E}}_j(\mathbf{r}) &= \hat{\mathbf{E}}_j^{(+)}(\mathbf{r}) + \hat{\mathbf{E}}_j^{(-)}(\mathbf{r}) \\ &= \boldsymbol{\varepsilon}_j(\mathbf{r})\hat{\sigma}_j^- + \boldsymbol{\varepsilon}_j^*(\mathbf{r})\hat{\sigma}_j^+\end{aligned}\quad (2.55)$$

利用格林函数 $\mathbf{G}(\mathbf{r}, \omega_0)$ 可得到关系：

$$\boldsymbol{\varepsilon}_j(\mathbf{r}) = \frac{k_0^2}{\epsilon_0} \mathbf{G}(\mathbf{r} - \mathbf{r}_j, \omega_0) \cdot \mathbf{d}_{ge}\quad (2.56)$$

我们知道，在偶极近似下，原子与外场的相互作用形式为 $-\hat{\mathbf{d}} \cdot \hat{\mathbf{E}}$ ，而原子的辐射场为 $\sim \mathbf{G} \cdot \hat{\mathbf{d}}$ 。当第 j 个原子接收到第 l 个原子的辐射场时，第 j 个原子与第 l 个原子辐射场的相互作用必然形如 $\sim -\hat{\mathbf{d}}_j \cdot \mathbf{G} \cdot \hat{\mathbf{d}}_l$ ，这是原子之间以电磁场为媒介进行的相互作用的形式，常被称为偶极-偶极相互作用。考虑偶极-偶极相互作用， N 个二能级原子的相互作用哈密顿量^[12]为

$$\hat{H}_{\text{int}} = \sum_{j,l=1}^N \hat{H}_{\text{int}}^{jl} = -\frac{k_0^2}{\epsilon_0} \sum_{j,l=1}^N \mathbf{d}_{eg} \cdot \mathbf{G}(\mathbf{r}_j - \mathbf{r}_l, \omega_0) \cdot \mathbf{d}_{ge} \hat{\sigma}_j^+ \hat{\sigma}_l^- \quad (2.57)$$

实际上，基态原子之间会有形如 $\sim \frac{1}{|\mathbf{r}_j - \mathbf{r}_l|^6} (|g_j\rangle\langle g_j|) \otimes (|g_l\rangle\langle g_l|)$ 的 Casimir 相互作用^[13]。但由于它的强度与原子间的距离呈六次方反比，在密度相对不大的原子气体中它无法显现出作用，在本文的研究中可不作考虑。

式 (2.57) 中的求和包含了 $j = l$ 的项，它们可以看作是原子的“自相互作用”，下面对此作一些说明。由式 (2.50) 可知，当 $\mathbf{r} \rightarrow \mathbf{r}_j$ 时，有

$$\begin{aligned}\boldsymbol{\varepsilon}_j(\mathbf{r}) &= \frac{k_0^2}{\epsilon_0} \mathbf{G}(\mathbf{r} - \mathbf{r}_j, \omega_0) \cdot \mathbf{d}_{ge} \\ &\simeq \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \left\{ 3 \frac{\mathbf{r} - \mathbf{r}_j}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}_j|^3} \left(\frac{\mathbf{r} - \mathbf{r}_j}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}_j|} \cdot \mathbf{d}_{ge} \right) - \mathbf{d}_{eg} \right\} \frac{1}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}_j|^3} + i \frac{k_0^3}{6\pi\epsilon_0} \mathbf{d}_{ge}\end{aligned}\quad (2.58)$$

式 (2.58) 最后一行的第二项是收敛的，它贡献到了原子“自相互作用”的虚部

中，可以求得：

$$\begin{aligned}\hat{H}_{\text{int}}^{jj} &= -\frac{k_0^2}{\epsilon_0} \mathbf{d}_{eg} \cdot \mathbf{G}(\mathbf{r} \rightarrow 0, \omega_0) \cdot \mathbf{d}_{ge} |e_j\rangle \langle e_j| \\ &= \left\{ \text{Re} \left[-\frac{k_0^2}{\epsilon_0} \mathbf{d}_{eg} \cdot \mathbf{G}(\mathbf{r} \rightarrow 0, \omega_0) \cdot \mathbf{d}_{ge} \right] - \frac{i\hbar}{2} \times \frac{\omega_0^3 |\mathbf{d}_{ge}|^2}{3\pi\epsilon_0 \hbar c^3} \right\} |e_j\rangle \langle e_j| \quad (2.59) \\ &= \left\{ \text{Re} \left[-\frac{k_0^2}{\epsilon_0} \mathbf{d}_{eg} \cdot \mathbf{G}(\mathbf{r} \rightarrow 0, \omega_0) \cdot \mathbf{d}_{ge} \right] - i\hbar \frac{\Gamma}{2} \right\} |e_j\rangle \langle e_j|\end{aligned}$$

上面的推导用到了单原子自发辐射率 Γ 的表达式，即 $\Gamma = \omega_0^3 |\mathbf{d}_{ge}|^2 / 3\pi\epsilon_0 \hbar c^3$ （见式 (2.40)）。注意到，在式 (2.59) 中，通过“自相互作用”的虚部可以直接推导出单原子激发态的自发辐射率，而“自相互作用”的实部则导致了单原子激发态的能量移动，但其直接计算的值是发散的：

$$\text{Re} \left[-\frac{k_0^2}{\epsilon_0} \mathbf{d}_{eg} \cdot \mathbf{G}(\mathbf{r} \rightarrow 0, \omega_0) \cdot \mathbf{d}_{ge} \right] \rightarrow \infty \quad (2.60)$$

实际上，对“自相互作用”实部的更准确的处理是借助重整化的方法进行计算^[14]。其结果最终可包含于原子的跃迁频率 ω_0 中，这里我们不妨设其为 0。于是有

$$\hat{H}_{\text{int}}^{jj} = -i\hbar \frac{\Gamma}{2} |e_j\rangle \langle e_j| \quad (2.61)$$

无外场下，系统的单原子哈密顿量为

$$\hat{H}_A = \sum_{j=1}^N \hbar\omega_0 |e_j\rangle \langle e_j| \quad (2.62)$$

现在，可写出系统的有效哈密顿量：

$$\begin{aligned}\hat{H}_{\text{eff}} &= \hat{H}_A + \hat{H}_{\text{int}} \\ &= \sum_{j=1}^N \hbar\omega_0 |e_j\rangle \langle e_j| - \frac{k_0^2}{\epsilon_0} \sum_{j,l=1}^N \mathbf{d}_{eg} \cdot \mathbf{G}(\mathbf{r}_j - \mathbf{r}_l, \omega_0) \cdot \mathbf{d}_{ge} \hat{\sigma}_j^+ \hat{\sigma}_l^- \quad (2.63)\end{aligned}$$

之所以称其为有效哈密顿量，是因为 \hat{H}_{eff} 本身是非厄米的。这意味着 Schrödinger 方程 $i\hbar \frac{d}{dt} |\psi\rangle = \hat{H}_{\text{eff}} |\psi\rangle$ 不能保证系统的波函数 $|\psi\rangle$ 在演化过程中始终满足归一化条件。值得一提的是，方程 $i\hbar \frac{d}{dt} |\psi\rangle = \hat{H}_{\text{eff}} |\psi\rangle$ 在系统处于弱激发时是很好的近似。

想要准确地描述该多原子系统的演化，一方面可以结合有效哈密顿量 \hat{H}_{eff} 计算系统随机波函数的演化^[15-17]。另一方面，也可以直接从“多原子-量子化多模光场”的哈密顿量出发，通过对环境光场的自由度进行求迹，得到多原子开放系统的 Lehmberg 主方程（章节 1.2）。这里沿用此前的记号给出 N 个二能级

原子的主方程^[18]:

$$\frac{d\hat{\rho}_A}{dt} = \frac{1}{i\hbar}[\hat{H}, \hat{\rho}_A] + \sum_{j,l=1}^N \frac{\Gamma_{jl}}{2} (2\hat{\sigma}_l^- \hat{\rho}_A \hat{\sigma}_j^+ - \hat{\sigma}_j^+ \hat{\sigma}_l^- \hat{\rho}_A - \hat{\rho}_A \hat{\sigma}_j^+ \hat{\sigma}_l^-) \quad (2.64)$$

在式 (2.64) 中, \hat{H} 和 Γ_{jl} 分别为

$$\hat{H} = \sum_{j=1}^N \hbar\omega_0 |e_j\rangle\langle e_j| - \frac{k_0^2}{\epsilon_0} \sum_{\substack{j,l=1 \\ j \neq l}}^N \mathbf{d}_{eg} \cdot \text{Re} [\mathbf{G}(\mathbf{r}_j - \mathbf{r}_l, \omega_0)] \cdot \mathbf{d}_{ge} \hat{\sigma}_j^+ \hat{\sigma}_l^- \quad (2.65)$$

$$\Gamma_{jl} = \frac{2k_0^2}{\epsilon_0 \hbar} \mathbf{d}_{eg} \cdot \text{Im} [\mathbf{G}(\mathbf{r}_j - \mathbf{r}_l, \omega_0)] \cdot \mathbf{d}_{ge} \quad (2.66)$$

理论上, 通过求解式 (2.64), 我们可以知道系统的含时演化。但是应当注意到, 当系统的原子数 N 增加时, 描述系统的希尔伯特空间的维度数 d 以指数方式增加 ($d = 2^N$), 这会给式 (2.64) 的求解带来极大的困难。目前, 对式 (2.64) 的严格求解只能在少数原子的系统中进行^[19-20]。但在弱激发 (或单原子激发) 的情况下, 系统中的高阶量子关联可以被忽略, 这会使得系统演化方程的求解的复杂度大大下降。

通过式 (2.54)、式 (2.55) 和式 (2.56) 我们知道, 系统的辐射行为由各个原子的电偶极矩的演化决定, 更进一步地, 它由各个时刻原子的下降 (或上升) 算符的期待值决定, 即 $\langle \hat{\sigma}_j^- \rangle(t)$ (或 $\langle \hat{\sigma}_j^+ \rangle(t)$), 其中 $j = 1, 2, \dots, N$ 。由 $\langle \hat{\sigma}_j^- \rangle = \text{Tr}(\hat{\rho}_A \hat{\sigma}_j^-) = \rho_{eg}^j$ 以及式 (2.64)、式 (2.65) 和式 (2.66) 可求得 $\langle \hat{\sigma}_j^- \rangle$ 的演化方程:

$$\frac{d}{dt} \langle \hat{\sigma}_j^- \rangle = \left(-i\omega_0 - \frac{\Gamma}{2} \right) \langle \hat{\sigma}_j^- \rangle - i \frac{3\pi\Gamma}{k_0} \sum_{l \neq j} \mathbf{e}_{ge}^* \cdot \mathbf{G}(\mathbf{r}_j - \mathbf{r}_l, \omega_0) \cdot \mathbf{e}_{ge} \langle \hat{s}_j \hat{\sigma}_l^- \rangle \quad (2.67)$$

其中 $\hat{s}_j \equiv (|e_j\rangle\langle e_j| - |g_j\rangle\langle g_j|)$ 。现在, 我们考虑系统中每一个原子都在弱激发的区域, 即对任意的 j 都有 $\langle \hat{s}_j \rangle \approx -1$ 。那么式 (2.67) 可近似为

$$\frac{d}{dt} \langle \hat{\sigma}_j^- \rangle = \left(-i\omega_0 - \frac{\Gamma}{2} \right) \langle \hat{\sigma}_j^- \rangle + i \frac{3\pi\Gamma}{k_0} \sum_{l \neq j} \mathbf{e}_{ge}^* \cdot \mathbf{G}(\mathbf{r}_j - \mathbf{r}_l, \omega_0) \cdot \mathbf{e}_{ge} \langle \hat{\sigma}_l^- \rangle \quad (2.68)$$

若引入形如式 (2.4) 中的近共振场: $\mathbf{E}_0(\mathbf{r}, t) = \mathcal{E}_0(\mathbf{r}, t)e^{-i(\omega t - \mathbf{k} \cdot \mathbf{r})} + \mathcal{E}_0^*(\mathbf{r}, t)e^{i(\omega t - \mathbf{k} \cdot \mathbf{r})}$, 在旋转参考系下式 (2.68) 可改写成:

$$\frac{d}{dt} \langle \hat{\sigma}_j^- \rangle = \left(i\Delta - \frac{\Gamma}{2} \right) \langle \hat{\sigma}_j^- \rangle + i \frac{3\pi\Gamma}{k_0} \sum_{l \neq j} \mathbf{e}_{ge}^* \cdot \mathbf{G}(\mathbf{r}_j - \mathbf{r}_l, \omega_0) \cdot \mathbf{e}_{ge} \langle \hat{\sigma}_l^- \rangle + i\Omega_0(\mathbf{r}_j, t) \quad (2.69)$$

其中 $\Omega_0(\mathbf{r}_j, t) = \mathbf{d}_{eg} \cdot \mathcal{E}_0(\mathbf{r}_j, t)e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_j} / \hbar$, $\Delta = \omega - \omega_0$ 。应当注意到, 除了等号两

边差了一个常量 \mathbf{d}_{ge} ，式 (2.69) 与式 (2.52) 是完全一样的，它们都是描述 N 个耦合偶极子的方程。

现在，我们考虑一个处在基态 $|g_1, g_2, \dots, g_N\rangle$ 的系统，当它吸收了一个光子后，其波函数的一般形式可以写成：

$$|\psi(t)\rangle = \sum_{j=1}^N \beta_j(t) |g_1, g_2, \dots, e_j, \dots, g_N\rangle \quad (2.70)$$

若将上式代入有效哈密顿量 \hat{H}_{eff} （见式 (2.63)）的 Schrödinger 方程，即 $i\hbar \frac{d}{dt} |\psi\rangle = \hat{H}_{\text{eff}} |\psi\rangle$ ，可得到单激发态系数 $\beta_j(t)$ ($j = 1, 2, \dots, N$) 的动力学方程：

$$\frac{d}{dt} \beta_j = \left(-i\omega_0 - \frac{\Gamma}{2} \right) \beta_j + i \frac{3\pi\Gamma}{k_0} \sum_{l \neq j} \mathbf{e}_{ge}^* \cdot \mathbf{G}(\mathbf{r}_j - \mathbf{r}_l, \omega_0) \cdot \mathbf{e}_{ge} \beta_l \quad (2.71)$$

虽然方程 $i\hbar \frac{d}{dt} |\psi\rangle = \hat{H}_{\text{eff}} |\psi\rangle$ 是近似成立的，但式 (2.71) 在系统只有单激发时是严格的，它也可以从完整的“多原子-量子化多模光场”的哈密顿量出发通过 Schrödinger 方程来求得。比较式 (2.71) 和式 (2.68) 可以发现，系统单激发态的演化完全可以由耦合偶极子方程来描述，这给我们研究自旋波态（式 (1.2)）的动力学提供了便利。在上面结论的基础上，为了记号的简洁性，下面我们会在耦合偶极子方程中使用“ β ”，而不用“ $\langle \hat{\sigma} \rangle$ ”，即使是在描述弱激发系统的时候。

○ 多能级情况： $J = 0 - J' = 1$ 跃迁

在之前的讨论中，我们以二能级原子为例介绍了原子间的偶极-偶极相互作用。我们知道，在二能级原子的电偶极矩算符（见式 (2.54)）中有 $\mathbf{d}_{ge} = d_{ge} \mathbf{e}_{ge}$ ，这样的电偶极矩在空间上只能沿着 \mathbf{e}_{ge} 方向。然而在许多实际情况中，我们需要考虑多能级的系统，并且系统的电偶极矩可以沿着不同的方向，它取决于激发光的偏振。一个包含三个偏振的跃迁的最简单的系统是四能级系统，它的基态角动量量子数为 $J = 0$ ，有 $2J + 1 = 1$ 个子能级，记为 $|g\rangle$ ；它的激发态角动量量子数为 $J' = 1$ ，有 $2J' + 1 = 3$ 个子能级，这 3 个子能级的磁量子数为 $m_e = -1, 0, +1$ ，对应的量子态分别记为 $|e^{(1)}\rangle = |e, m_e = -1\rangle$ ， $|e^{(2)}\rangle = |e, m_e = 0\rangle$ ， $|e^{(3)}\rangle = |e, m_e = +1\rangle$ 。三个激发态在无外磁场的情况下是简并的。基态与这三个子能级间的跃迁对应着原子吸收或辐射三种不同偏振（左旋圆偏振、线偏振、右旋圆偏振）的光，如图 2.7 所示。这里，三个激发态有着相同的单原子自发辐射寿命，三种不同偏振的跃迁对应着三种不同的电偶极矩算符：

$$\begin{aligned} \hat{\mathbf{d}}_1 &= d_{ge} \mathbf{e}_1 |g\rangle \langle e^{(1)}| + \text{H.c.} \\ \hat{\mathbf{d}}_2 &= d_{ge} \mathbf{e}_2 |g\rangle \langle e^{(2)}| + \text{H.c.} \\ \hat{\mathbf{d}}_3 &= d_{ge} \mathbf{e}_3 |g\rangle \langle e^{(3)}| + \text{H.c.} \end{aligned} \quad (2.72)$$

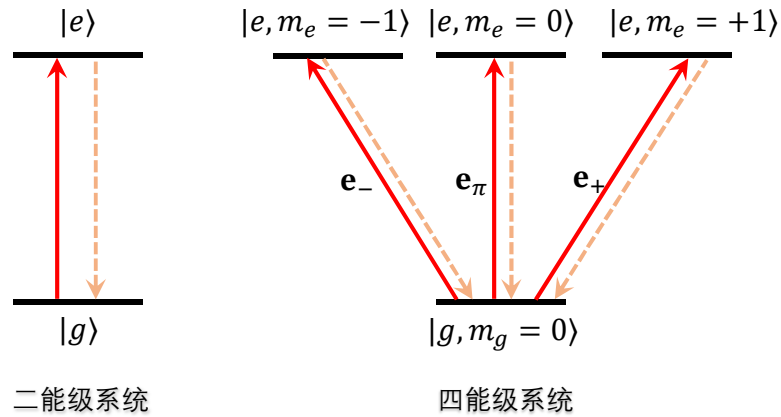


图 2.7 二能级系统（左）与四能级系统（右）的能级示意图。在该四能级系统中，基态（角动量量子数为 $J = 0$ ）只有一个子能级，激发态（角动量量子数为 $J' = 1$ ）有三个子能级（无外磁场下是简并的），基态与激发态之间的跃迁有三种可能，对应原子吸收或辐射三种不同偏振的光，见右图。

其中 $\mathbf{e}_1 = \mathbf{e}_-$ 、 $\mathbf{e}_2 = \mathbf{e}_\pi$ 和 $\mathbf{e}_3 = \mathbf{e}_+$ 分别是左旋圆偏振、线偏振、右旋圆偏振的基矢量向量。同样地，可以使用前面的推导方法来得到弱激发近似下 $J = 0 - J' = 1$ 原子的耦合偶极子方程：

$$\frac{d}{dt}\beta_{j\alpha} = \left(i\Delta - \frac{\Gamma}{2}\right)\beta_{j\alpha} + i\frac{3\pi\Gamma}{k_0} \sum_{l \neq j} \sum_{\alpha'=1}^3 \mathbf{e}_\alpha^* \cdot \mathbf{G}(\mathbf{r}_j - \mathbf{r}_l, \omega_0) \cdot \mathbf{e}_{\alpha'} \beta_{l\alpha'} + i\Omega_\alpha(\mathbf{r}_j, t) \quad (2.73)$$

其中， j 是原子指标， α 、 α' 是偏振指标， $\Omega_\alpha(\mathbf{r}_j, t) = d_{eg}\mathbf{e}_\alpha \cdot \boldsymbol{\mathcal{E}}_0(\mathbf{r}_j, t)e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}_j}/\hbar$ 。这里， $\beta_{j\alpha}$ 既可以解释为原子下降算符的期待值，即 $\langle |g_j\rangle \langle e_j^{(\alpha)}| \rangle$ ，也可以解释为多原子单激发态的系数（参考式 (2.70)）。形如式 (2.73)（或者式 (2.71)）的方程也被称为耦合偶极子模型（coupled dipole model）^[21]，简称 CDM。

尽管我们引入了关于多能级的讨论，但应注意到，二能级原子的模型也可以具有实际意义：当对原子样品施加很大的磁场时，利用塞曼效应和原子跃迁的选择定则可以将多能级系统近似成二能级系统。这样的技术已在一些量子光学实验上有相当成熟的发展^[22]。

2.3.4 Maxwell-Bloch 方程

现仍考虑空间上有 N 个二能级原子 $(\hat{\mathbf{d}}_1, \hat{\mathbf{d}}_2, \dots, \hat{\mathbf{d}}_N)$ ，由式 (2.54)、式

(2.55) 和式 (2.56) 可知，空间中场算符的正频分量可写为：

$$\hat{\mathbf{E}}^{(+)}(\mathbf{r}) = \frac{k_0^2}{\epsilon_0} \sum_{j=1}^N \mathbf{G}(\mathbf{r} - \mathbf{r}_j, \omega_0) \cdot \mathbf{d}_{ge} \sigma_j^- \quad (2.74)$$

空间的电极化强度矢量的算符可以写为

$$\hat{\mathbf{P}}(\mathbf{r}) = \sum_{j=1}^N \mathbf{d}_{ge} \sigma_j^- \delta^3(\mathbf{r} - \mathbf{r}_j) \quad (2.75)$$

根据电动力学， $\hat{\mathbf{P}}(\mathbf{r})$ 与 $\hat{\mathbf{E}}^{(+)}(\mathbf{r})$ 满足场方程^[11]：

$$\nabla \times \nabla \times \hat{\mathbf{E}}^{(+)}(\mathbf{r}) - \frac{\omega_0^2}{c^2} \hat{\mathbf{E}}^{(+)}(\mathbf{r}) = \frac{\omega_0^2}{\epsilon_0 c^2} \hat{\mathbf{P}}(\mathbf{r}) \quad (2.76)$$

现在，我们不妨考虑原子系统处在式 (2.70) 所示的单激发态中（也就是 $|\psi(t)\rangle = \sum_{j=1}^N \beta_j(t) |g_1, \dots, e_j, \dots, g_N\rangle$ ），那么系统的单光子波函数为：

$$\epsilon(\mathbf{r}) = \langle g_1, g_2, \dots, g_N | \hat{\mathbf{E}}^{(+)}(\mathbf{r}) | \psi(t) \rangle \quad (2.77)$$

可以验证， $\epsilon(\mathbf{r})$ 满足场方程

$$\nabla \times \nabla \times \epsilon(\mathbf{r}) - \frac{\omega_0^2}{c^2} \epsilon(\mathbf{r}) = \frac{\omega_0^2}{\epsilon_0 c^2} \mathbf{p}(\mathbf{r}) \quad (2.78)$$

其中 $\mathbf{p}(\mathbf{r}) = \sum_{j=1}^N \mathbf{d}_{ge} \beta_j \delta^3(\mathbf{r} - \mathbf{r}_j)$ 。

现在，原子在空间上的密度函数 $\varrho(\mathbf{r})$ 是一个个“点”，即 $\varrho(\mathbf{r}) = \sum_j \delta^3(\mathbf{r} - \mathbf{r}_j)$ ，但若这些“点”在空间上的概率分布较为光滑（比如高斯分布），那么可以容易地将其近似成空间上连续的等效介质：

$$\sum_{j=1}^N \delta^3(\mathbf{r} - \mathbf{r}_j) \rightarrow \tilde{\varrho}(\mathbf{r}) \quad (2.79)$$

这里有 $\int \tilde{\varrho}(\mathbf{r}) d^3\mathbf{r} = N$ ，并且我们假设 $\tilde{\varrho}$ 不随时间变化。对原子空间密度做连续化的近似后，电极化强度矢量为 $\tilde{\mathbf{p}}(\mathbf{r}) = \mathbf{d}_{ge} \beta(\mathbf{r}) \tilde{\varrho}(\mathbf{r})$ ，对应的电场分布 $\tilde{\epsilon}$ 满足场方程：

$$\nabla \times \nabla \times \tilde{\epsilon} - \frac{\omega_0^2}{c^2} \tilde{\epsilon} = \frac{\omega_0^2}{\epsilon_0 c^2} \tilde{\mathbf{p}} \quad (2.80)$$

一般地， $\tilde{\mathbf{p}}$ ， $\tilde{\epsilon}$ 随时间变化，即 $\tilde{\mathbf{p}} = \tilde{\mathbf{p}}(\mathbf{r}, t)$ ， $\tilde{\epsilon} = \tilde{\epsilon}(\mathbf{r}, t)$ 。将 $\mathbf{d}_- \equiv \mathbf{d}_{ge} \beta = \tilde{\mathbf{p}}(\mathbf{r}, t) / \tilde{\varrho}(\mathbf{r})$ 代入到式 (2.45)（弱激发的光学 Bloch 方程）中并结合式 (2.40)，我

们可以得到 $\tilde{\mathbf{p}}(\mathbf{r}, t)$ 和 $\tilde{\boldsymbol{\epsilon}}(\mathbf{r}, t)$ 满足的另一个方程:

$$\frac{\partial}{\partial t} \tilde{\mathbf{p}}(\mathbf{r}, t) = \left(i\Delta - \frac{\Gamma}{2} \right) \tilde{\mathbf{p}}(\mathbf{r}, t) + i \frac{3\pi\epsilon_0\Gamma c^3}{\omega_0^3} \tilde{\boldsymbol{\rho}}(\mathbf{r}) \tilde{\boldsymbol{\epsilon}}(\mathbf{r}, t) \quad (2.81)$$

应当注意到, 若旋转圆频率为 ω_0 的旋转参考系, 上式中应有 $\Delta = 0$ 。式 (2.80) 与式 (2.81) 分别由 Maxwell 方程和光学 Bloch 方程推导出。它们的耦合方程通常被称为 Maxwell-Bloch 方程^[23], 简称 MBE。

○ 慢变振幅近似

现在, 不妨考虑式 (1.1) 所示的相位匹配自旋波。设原子的初态为

$$|\psi(0)\rangle = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{j=1}^N e^{i\mathbf{k}_0 \cdot \mathbf{r}_j} |g_1, g_2, \dots, e_j, \dots, g_N\rangle \quad (2.82)$$

不失一般性, 我们设 $\mathbf{k}_0 = k_0 \mathbf{e}_z$ 沿着 z 方向。那么在初始时刻, 空间连续化处理后的电极化强度矢量为 $\tilde{\mathbf{p}}(\mathbf{r}, 0) = 1/\sqrt{N} \mathbf{d}_{ge} \tilde{\boldsymbol{\rho}}(\mathbf{r}) e^{i\mathbf{k}_0 \cdot \mathbf{r}}$ 。现引入慢变振幅近似, 设

$$\begin{aligned} \tilde{\mathbf{p}}(\mathbf{r}, t) &= \tilde{\mathbf{p}}_S(\mathbf{r}, t) e^{i\mathbf{k}_0 \cdot \mathbf{r}} \\ \tilde{\boldsymbol{\epsilon}}(\mathbf{r}, t) &= \tilde{\boldsymbol{\epsilon}}_S(\mathbf{r}, t) e^{i\mathbf{k}_0 \cdot \mathbf{r}} \end{aligned} \quad (2.83)$$

其中 $\tilde{\mathbf{p}}_S$, $\tilde{\boldsymbol{\epsilon}}_S$ 是慢变振幅, 它们在空间上 (z 方向) 和时间上的变化都较为缓慢, 有:

$$\begin{aligned} \left| \frac{\partial}{\partial z} \tilde{\mathbf{p}}_S \right| &\ll |k_0 \tilde{\mathbf{p}}_S| \\ \left| \frac{\partial}{\partial z} \tilde{\boldsymbol{\epsilon}}_S \right| &\ll |k_0 \tilde{\boldsymbol{\epsilon}}_S| \\ \left| \frac{\partial}{\partial t} \tilde{\mathbf{p}}_S \right| &\ll |\omega_0 \tilde{\mathbf{p}}_S| \\ \left| \frac{\partial}{\partial t} \tilde{\boldsymbol{\epsilon}}_S \right| &\ll |\omega_0 \tilde{\boldsymbol{\epsilon}}_S| \end{aligned} \quad (2.84)$$

若原子样品的空间密度分布较为光滑 (如高斯分布) 且其尺寸远大于波长, 那么式 (2.84) 通常能被满足。将式 (2.83) 代入到式 (2.80) 中, 并在慢变振幅近似下忽略掉在时间上和空间上 (z 方向) 的高阶求导, 可以得到方程:

$$\frac{1}{2ik_0} \nabla_{\perp}^2 \tilde{\boldsymbol{\epsilon}}_S + \frac{\partial}{\partial z} \tilde{\boldsymbol{\epsilon}}_S = \frac{ik_0}{2\epsilon_0} \tilde{\mathbf{p}}_S \quad (2.85)$$

相比式 (2.80), 慢变振幅近似下的场方程 (式 (2.85)) 的求解难度明显更低。在本文的研究中, 我们会用到式 (2.85) 与式 (2.81) 的耦合方程来研究弱激发 (或单激发) 原子样品自发辐射的动力学。

参考文献

- [1] Cohen-Tannoudji C, Grynberg J R G. Atom-Photon Interactions[M]. New Jersey: Wiley, 2004
- [2] Berry M V. Quantal phase factors accompanying adiabatic changes[J]. Proc. R. Soc. Lond. A, 1984, 392(1802):45–57
- [3] Miao X, Wertz E, Cohen M G, et al. Strong optical forces from adiabatic rapid passage[J]. Phys. Rev. A, 2007, 75:011402
- [4] Lu T, Miao X, Metcalf H. Nonadiabatic transitions in finite-time adiabatic rapid passage[J]. Phys. Rev. A, 2007, 75:063422
- [5] Metcalf H. Colloquium: Strong optical forces on atoms in multifrequency light[J]. Rev. Mod. Phys., 2017, 89:041001
- [6] Chen X, Ruschhaupt A, Schmidt S, et al. Fast Optimal Frictionless Atom Cooling in Harmonic Traps: Shortcut to Adiabaticity[J]. Phys. Rev. Lett., 2010, 104:063002
- [7] Li Y C, Chen X. Shortcut to adiabatic population transfer in quantum three-level systems: Effective two-level problems and feasible counterdiabatic driving[J]. Phys. Rev. A, 2016, 94:063411
- [8] Guéry-Odelin D, Ruschhaupt A, Kiely A, et al. Shortcuts to adiabaticity: Concepts, methods, and applications[J]. Rev. Mod. Phys., 2019, 91:045001
- [9] Scully M O, Zubairy M S. Quantum Optics[M]. New York: Cambridge University Press, 1997
- [10] Weisskopf V, Wigner E. Calculation of the natural width of line based on the Dirac's theory of light[J]. Z. Physik, 1930, 63(1-2):54–73
- [11] Jackson J D. Classical Electrodynamics[M]. 3rd ed., New York: Wiley, 1998
- [12] Asenjo-Garcia A, Moreno-Cardoner M, Albrecht A, et al. Exponential Improvement in Photon Storage Fidelities Using Subradiance and “Selective Radiance” in Atomic Arrays[J]. Phys. Rev. X, 2017, 7:031024
- [13] Buhmann S Y. Dispersion forces I[M]. Berlin: Springer-Verlag, 2012
- [14] Welton T A. Some Observable Effects of the Quantum-Mechanical Fluctuations of the Electromagnetic Field[J]. Phys. Rev., 1948, 74:1157–1167
- [15] Dalibard J, Castin Y, Mølmer K. Wave-function approach to dissipative processes in quantum optics[J]. Phys. Rev. Lett., 1992, 68:580–583
- [16] Mølmer K, Castin Y, Dalibard J. Monte Carlo wave-function method in quantum optics[J]. J. Opt. Soc. Am. B, 1993, 10(3):524–538

- [17] Munro E, Asenjo-Garcia A, Lin Y, et al. Population mixing due to dipole-dipole interactions in a one-dimensional array of multilevel atoms[J]. Phys. Rev. A, 2018, 98:033815
- [18] Lehmberg R H. Radiation from an N -Atom System. I. General Formalism[J]. Phys. Rev. A, 1970, 2:883–888
- [19] Jones R, Saint R, Olmos B. Far-field resonance fluorescence from a dipole-interacting laser-driven cold atomic gas[J]. J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys., 2017, 50(1):014004
- [20] Henriot L, Douglas J S, Chang D E, et al. Critical open-system dynamics in a one-dimensional optical-lattice clock[J]. Phys. Rev. A, 2019, 99:023802
- [21] Zhu B, Cooper J, Ye J, et al. Light scattering from dense cold atomic media[J]. Phys. Rev. A, 2016, 94:023612
- [22] Rui J, Wei D, Rubio-Abadal A, et al. A subradiant optical mirror formed by a single structured atomic layer[J]. Nature, 2020, 583(7816):369–374
- [23] Svidzinsky A A, Zhang X, Scully M O. Quantum versus semiclassical description of light interaction with atomic ensembles: Revision of the Maxwell-Bloch equations and single-photon superradiance[J]. Phys. Rev. A, 2015, 92:013801

第三章 新型光偶极自旋波调控方案与实验系统介绍

3.1 本章概述

本文的主要工作是实现光偶极自旋波的高效调控并借此对自旋波的新奇动力学行为进行深入研究。为此，本章将从三个方面为本文光偶极自旋波的实验研究做必要的铺垫，其内容有：新型的自旋波调控方案、 ^{87}Rb 的冷原子样品制备以及用于电偶极调控的新型任意波形激光产生技术。

在章节 3.2 中，我们会首先介绍相位匹配自旋波的弱光激发（章节 3.2.1），然后介绍如何利用布居翻转过程的几何相位来对原子进行量子态相关的外态加速，这种加速也可以用半经典的受激辐射和受激吸收的理论来解释（章节 3.2.2）。最后，我们基于前面的讨论介绍一种新型的自旋波调控方案——借助辅助能级将量子态相关的几何相位“写入”到多体波函数中以改变自旋波的波矢（章节 3.2.3）。该方案可以实现相位匹配自旋波与相位失配自旋波之间的可逆转换，并且其效率的理论上限对于大多数原子孤立光学跃迁来说都可以达到 99% 以上。在实验上对该方案的实现将在章节 4.2 中展示。

在章节 3.3 中，我们将对本文研究中光偶极自旋波的物质载体—— ^{87}Rb 的冷原子样品——进行介绍。其内容包括： ^{87}Rb 的 $D1$ 、 $D2$ 线能级结构（章节 3.3.1）、冷原子的制备原理（章节 3.3.2 – 3.3.6）以及本文 ^{87}Rb 冷原子样品的制备过程（章节 3.3.7）。

章节 3.4 将展示本文研究中所使用的新型任意波形激光技术。在章节 3.4.1 中，我们将介绍用于 ^{87}Rb 的 $D1$ 线电偶极跃迁调控的高带宽任意波形激光系统，它能够产生亚纳秒时长的啁啾脉冲，以实现章节 3.2.3 中基于布居翻转的自旋波调控方案。在章节 3.4.2 中，我们将介绍 ^{87}Rb 的 $D2$ 线的任意波形激光系统，它能产生用于激光冷却的多频激光和用于 $D2$ 线自旋波激发的近共振纳秒脉冲。

3.2 自旋波的亚波长分辨几何调控方案

3.2.1 相位匹配自旋波的激发

在章节 1.1.2 中，我们介绍了 N 个二能级原子的自旋波态，其形式为：

$$|\psi_{\mathbf{k}}\rangle = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_j e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}_j} |g_1, g_2, \dots, e_j, \dots, g_N\rangle \quad (3.1)$$

其中, \mathbf{k} 是自旋波的波矢, $|g_j\rangle$ 和 $|e_j\rangle$ 分别为第 j 个原子的基态和激发态, 它们之间的跃迁 (圆) 频率记为 ω_0 。可以看出, 自旋波态是一种单激发态, 系统中的 N 个原子只有 $N_e = 1$ 个在激发态, 其余的 $N_g = N - 1$ 个在基态。并且, 由于物理上无法分辨是哪个原子处于激发态, 自旋波包含了所有单原子激发的可能, 其中每个原子被激发的概率 ($1/N$) 是相等的。相位匹配的自旋波, 有时被称为 “timed Dicke” 态^[1-2], 可写成:

$$|\psi_{\mathbf{k}_0}\rangle = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_j e^{i\mathbf{k}_0 \cdot \mathbf{r}_j} |g_1, g_2, \dots, e_j, \dots, g_N\rangle \quad (3.2)$$

其中, 自旋波的波矢 \mathbf{k}_0 满足 $|\mathbf{k}_0| = \omega_0/c$, 即相位匹配条件。现考虑一个近共振的平面波光学脉冲与 N 个二能级原子相互作用, 其中光场的形式为

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \mathcal{E}(t)e^{-i(\omega_0 t - \mathbf{k}_0 \cdot \mathbf{r})} + \mathcal{E}^*(t)e^{i(\omega_0 t - \mathbf{k}_0 \cdot \mathbf{r})} \quad (3.3)$$

其中 $\mathcal{E}(t)$ 是脉冲的振幅, 满足 $|\frac{d}{dt}\mathcal{E}(t)| \ll \omega_0|\mathcal{E}(t)|$, 即慢变振幅条件 (见章节 2.2.2)。一般地, 在真空中传播的光场会携带一个与空间位置相关的光学相位, 即 $\mathbf{k}_0 \cdot \mathbf{r}$, 如式 3.3 所示。那么, 由式 2.12 的推导过程可知, 第 j 个原子与光场耦合的 Rabi 频率也必然会携带相同的空间相位, 即 $\Omega_j(t) \sim \Omega_0(t)e^{i\mathbf{k}_0 \cdot \mathbf{r}}$ 。现在, 我们考虑脉冲的时长远远短于系统自发辐射的寿命和原子间相互作用的时间尺度, 并且脉冲对原子的激发是弱激发。那么, 在光学脉冲与原子系统相互作用的时间里, 每个原子都可以近似为独立的、无自发辐射的原子, 其演化可以由式 2.19 近似给出。由此可以知道, 脉冲激发后的原子系统所处的状态为 (原子初态为 $|\psi_0\rangle = |g_1, g_2, \dots, g_N\rangle$):

$$|\psi_f\rangle \propto (|g_1\rangle + \eta e^{i\mathbf{k}_0 \cdot \mathbf{r}_1} |e_1\rangle)(|g_2\rangle + \eta e^{i\mathbf{k}_0 \cdot \mathbf{r}_2} |e_2\rangle) \cdots (|g_N\rangle + \eta e^{i\mathbf{k}_0 \cdot \mathbf{r}_N} |e_N\rangle) \quad (3.4)$$

$$\approx |g_1, g_2, \dots, g_N\rangle + (\sqrt{N}\eta) \sum_j \frac{1}{\sqrt{N}} e^{i\mathbf{k}_0 \cdot \mathbf{r}_j} |g_1, \dots, e_j, \dots, g_N\rangle + O(N\eta^2) \quad (3.5)$$

若我们考虑弱激发极限 $|\sqrt{N}\eta|^2 \ll 1$, 则双光子及以上的激发成分可以忽略。在光脉冲激发过后, 原子系统将发生自发辐射, 最后回到基态 $|g_1, g_2, \dots, g_N\rangle$ 。由于在此过程中基态不发生自发辐射, 因此式 (3.5) 所示的量子态的自发辐射是来自于其单激发的分量——相位匹配的自旋波。从这里也可以看出, 原子系统在弱激发时的自发辐射行为可以近似成单激发时的自发辐射行为, 关于这一点章节 2.3.3 也有所讨论。在弱激发极限条件下式 (3.4) 所示的量子态会表现出 (对激发光的) 线性光学响应, 相应的激发也被称为线性激发 (线性激发与单激发的动力学是一致的)。但值得一提的是, 在线性激发区域中, 弱激发极限条件 $|\sqrt{N}\eta|^2 \ll 1$ 常常是过于 “保守” 的。在稀疏原子气体中, 要保持原子系统的线

性光学性质，通常只需满足 $|\eta|^2 \ll 1$ 的条件¹——这是多数基于原子系统的线性光学实验所容易满足的条件。

在弱激发区域，一个相干光脉冲可在原子系统中激发出相位匹配的自旋波，这在实验上是相对容易实现的。当然，也可通过用单光子去激发原子系统来实现^[1,4]。然而，一个在真空中传播的近似平面波的光场（或者单光子波函数）其光波矢 \mathbf{k}_0 必然满足相位匹配条件 $|\mathbf{k}_0| = \omega_0/c$ ，这使得被激发出的自旋波也必然是相位匹配的自旋波。要实现任意波矢 \mathbf{k} 的自旋波激发（式 3.1）需要非常规的光学手段，相关的论述在章节 3.2.3 中。

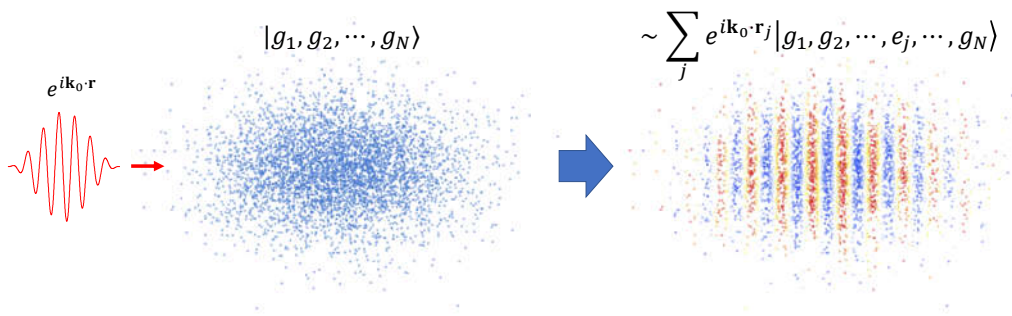


图 3.1 相位匹配的自旋波的激发示意图。

顺便一提，在式 (3.4) 中若 $|\eta|$ 不是小量，比如满足 $|\eta| \sim 1$ ，那么原子系统处在非线性激发的区域，其相互作用动力学的过程将非常复杂（由式 (2.64) 描述）。在非线性激发区域，式 (3.4) 的展开中除了单激发态的成分，还有不可忽略的多激发态成分。这些多激发态的成分蕴含着与量子纠缠、量子非线性等相关的有趣物理现象^[5-11]。在章节 3.2.3 中我们将介绍如何利用亚波长分辨的几何相位来对自旋波态进行调控，虽然相关的论述是以单激发态为例的，但调控技术本身是针对系统的“自旋波元激发”（章节 1.1.2），因此也同样面向这里所讨论的非线性激发或者以“自旋波元激发”为基础的多激发态。

3.2.2 自旋相关光子动量转移

在章节 2.2 中，我们介绍了光与原子相互作用的过程中原子内态的演化，在本章节中我们将相关的讨论拓展到原子的外态。

在本章节中我们仍考虑二能级原子，并且记原子的基态为 $|g\rangle$ ，激发态为 $|a\rangle$ 。不妨以啁啾脉冲的绝热翻转（详见章节 2.2.3）为例，设一个沿 \mathbf{k}_c 方向传播的啁啾脉冲，它与原子耦合的 Rabi 频率（参考章节 2.2）为 $\Omega(t)e^{i\mathbf{k}_c \cdot \mathbf{r}}$ ，其中 $|\mathbf{k}_c| = \omega_{ag}/c$ ， ω_{ag} 是跃迁频率。设啁啾脉冲的时间长度 τ 远远短于原子的自发辐射寿命，这里忽略原子的自发辐射。当一个原子被此啁啾脉冲翻转至激发态 $|a\rangle$

¹比如，文献^[3]中有相关的数值验证。

时, 从原子的角度来看, 它受激吸收了一个能量为 $\hbar\omega_{ag}$ 的光子。这个光子在被吸收前的动量为 $\hbar\mathbf{k}_c$, 由动量守恒原理可知, 该处于激发态 $|a\rangle$ 的原子会获得激发光子的动量, 即 $\hbar\mathbf{k}_c$ 。总的来说, 当 Rabi 频率为 $\Omega(t)e^{i\mathbf{k}_c\cdot\mathbf{r}}$ 的啁啾脉冲将原子翻转至激发态时, 原子会受激吸收一个光子, 并获得这个光子的动量。相反地, 若考虑原子初始时刻在激发态 $|a\rangle$, 那么同样的啁啾脉冲会将其翻转至基态, 整个过程原子受激辐射一个动量为 $\hbar\mathbf{k}_c$ 的光子, 原子将获得反冲动量 $-\hbar\mathbf{k}_c$ 。图 3.2 为这两种过程的示意图。

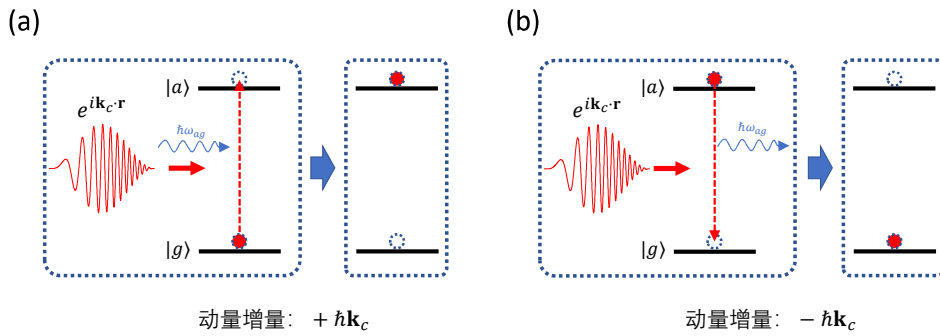


图 3.2 原子与单个啁啾脉冲相互作用过程中的动量改变。(a) 原子初始在基态 $|g\rangle$, 受激吸收一个光子, 动量改变为 $\hbar\mathbf{k}_c$; (b) 原子初始在激发态 $|a\rangle$, 受激辐射一个光子, 动量改变为 $-\hbar\mathbf{k}_c$ 。

在上面的结论以及章节 2.2.3 的基础上, 我们现在讨论两个方向相反的啁啾脉冲 (表达式可参考式 (2.28)) 与原子的相互作用。不妨设原子初始处于基态

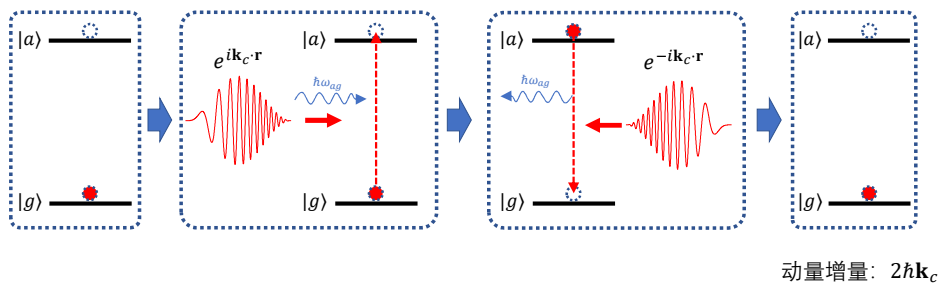


图 3.3 原子先后与两个方向相反的啁啾脉冲的相互作用。具体讨论见正文。

$|g\rangle$, 第一个啁啾脉冲 ($\Omega_1(t)e^{i\mathbf{k}_c\cdot\mathbf{r}}$) 沿着 \mathbf{k}_c 方向传播, 它将原子从基态翻转至激发态 $|a\rangle$, 与此同时原子受激吸收一个光子并获得 $\hbar\mathbf{k}_c$ 的动量。紧接着 (在原子发生自发辐射之前) 另一个沿着 $-\mathbf{k}_c$ 方向的啁啾脉冲 ($\Omega_2(t)e^{-i\mathbf{k}_c\cdot\mathbf{r}}$) 将原子从激发态翻转回基态, 在此过程中原子往 $-\mathbf{k}_c$ 方向受激辐射一个光子, 其动量为 $-\hbar\mathbf{k}_c$, 在反冲作用下原子再次获得 $\hbar\mathbf{k}_c$ 的动量。在整个过程中, 原子的动量增

量为 $\Delta\mathbf{P} = 2\hbar\mathbf{k}_c$ ，并且内态不变，如图 3.3 所示。

现在，我们用几何相位（见章节 2.2.3）来解释该过程原子动量的改变。不妨设原子初始时刻处在旋量：

$$|\psi(0)\rangle = \Psi_g(\mathbf{r})|g\rangle \quad (3.6)$$

其中 $\Psi_g(\mathbf{r})$ 是原子外态的波函数，有 $\int |\Psi_g(\mathbf{r})|^2 d^3\mathbf{r} = 1$ 。由章节 2.2.3 可知，当原子与上述两个啁啾脉冲相互作用之后，原子的量子态会携带一个相位，该相位与原子的态矢量在 Bloch 球上的演化轨迹形成的闭合回路对原点所张的立体角有关。该相位也称为几何相位^[12]。式 (2.30) 给出了该过程几何相位的表达式，即 $\gamma = \pi + \phi_1 - \phi_2$ ，其中 ϕ_1 、 ϕ_2 分别是第一、二个脉冲的光学相位，对于上述过程有 $\phi_1(\mathbf{r}) = \phi_{C1} + \mathbf{k}_c \cdot \mathbf{r}$ 和 $\phi_2(\mathbf{r}) = \phi_{C2} - \mathbf{k}_c \cdot \mathbf{r}$ ， ϕ_{C1} 和 ϕ_{C2} 是与空间位置无关的常数相位。进而，由式 (2.29) 可知，在上述过程中原子再次回到基态时，其量子态为

$$|\psi(2\tau)\rangle \simeq e^{i\phi_0} e^{2i\mathbf{k}_c \cdot \mathbf{r}} \Psi_g(\mathbf{r})|g\rangle \quad (3.7)$$

其中， τ 是单个啁啾脉冲的时间长度， ϕ_0 是与 \mathbf{r} 无关的常数，这里我们不妨假设波函数 $\Psi_g(\mathbf{r})$ 的运动可以忽略，即 $\Psi_g(\mathbf{r}, 2\tau) \simeq \Psi_g(\mathbf{r}, 0)$ ——如果我们关注纳秒时间尺度的冷原子运动，这是一个很好的假设。由量子力学的基本理论可知，式 (3.7) 中与空间位置相关的相因子 $\exp(2i\mathbf{k}_c \cdot \mathbf{r})$ 对应着波函数在动量上的增量为 $2\hbar\mathbf{k}_c$ ，即原子获得了两倍光子的动量。如果原子初始时刻在激发态，那么波函数将会获得相位相反的相因子 $\exp(-2i\mathbf{k}_c \cdot \mathbf{r})$ ，对应的原子动量增量也是相反的，为 $-2\hbar\mathbf{k}_c$ 。注意到，式 (3.7) 中的相位 ϕ_0 包含了动态相位（详见章节 2.2.3），若激发光的强度在空间上不均匀， ϕ_0 可以是 \mathbf{r} 的函数，这一点我们会在对实验的数值模拟中考虑到（详见章节 4.3.3）。

上面所展示的是一种与量子态相关的光子动量转移²（不同初态会获得不同光子动量），这种加速的实现需要原子布居的高效翻转，而基于啁啾脉冲的绝热翻转只是一个例子，上面的讨论并不失一般性。在原子的电偶极跃迁中，这种基于高效布居翻转的加速已在一些实验中得到实现^[15-17]，相关技术在激光冷却领域有着重要的应用前景^[16,18]。

在式 (3.6)（和式 (3.7)）中我们使用了波函数来描述原子的外态，而在本文其他地方的论述中我们常常会近似地认为原子在空间上有“确定”的位置，即：

$$|\Psi_j(\mathbf{r})|^2 \approx \delta^3(\mathbf{r} - \mathbf{r}_j) \quad (3.8)$$

其中 \mathbf{r}_j 为（第 j 个）原子的位置。在理论计算中，这样的近似相当于对原子外

²二能级原子通常可被当成“自旋-1/2”粒子，因此该技术也被称为“自旋相关光子动量转移”^[13-14]。

态的波函数进行了随机采样，并且在其时间演化过程中忽略波包运动（以牛顿力学演化）。该近似在短时间和非束缚态原子中是有效的。但对于一些系统，例如原子晶格，在有些条件下原子位置的不确定性可以明显地影响到系统的物理性质，这时式 (3.8) 不再是好的近似，需要直接考虑原子内外态量子化，才能获得“无反冲吸收、辐射”等重要性质。

3.2.3 基于几何相位的自旋波调控

在本章节中，我们将从简单的理论模型出发介绍一种新型的自旋波调控方案——利用量子态相关的几何相位实现不同自旋波态之间的高效转换。

如图 3.4(a) 所示，我们考虑原子有三个能级，一个为基态，另两个为激发态，我们分别将其记为 $|g\rangle$ 、 $|a\rangle$ 和 $|e\rangle$ 。其中 $|g\rangle$ 和 $|e\rangle$ 之间的跃迁（圆）频率为 ω_{eg} ， $|g\rangle$ 和 $|a\rangle$ 之间的跃迁（圆）频率为 ω_{ag} 。并且， ω_{ag} 和 ω_{eg} 的差足够大，以至于 $|g\rangle - |a\rangle$ 跃迁的近共振光不会对处在 $|e\rangle$ 态的原子造成影响， $|g\rangle - |e\rangle$ 跃迁的近共振光也不会对处在 $|a\rangle$ 态的原子造成影响。

首先我们考虑自旋波的激发。由章节 3.2.1 可知，一个波矢为 \mathbf{k}_0 的 $|g\rangle - |e\rangle$ 跃迁的近共振弱脉冲可以在 N 个原子的系统中激发出相位匹配的自旋波，即 $|\psi_{\mathbf{k}_0}\rangle \sim \sum_j e^{i\mathbf{k}_0 \cdot \mathbf{r}_j} |g_1, g_2, \dots, e_j, \dots, g_N\rangle$ ，其中 $|\mathbf{k}_0| = \omega_{eg}/c$ ，见图 3.4(a)。现在考虑这样一个过程：一个波矢为 \mathbf{k}_c 的啁啾脉冲将处在基态 $|g\rangle$ 中的原子全部翻转到激发态 $|a\rangle$ 上，然后一个波矢为 $-\mathbf{k}_c$ 的啁啾脉冲将激发态 $|a\rangle$ 上的原子又全部翻转回基态 $|g\rangle$ ，这个过程 $|e\rangle$ 态上的原子不受影响。由章节 3.2.2 可知，在这样的一对啁啾脉冲的作用之后，基态的原子将获得 $2\hbar\mathbf{k}_c$ 的动量增量，基态原子的波函数会多一个相因子 $e^{2i\mathbf{k}_c \cdot \mathbf{r}}$ ，其中 $2\mathbf{k}_c \cdot \mathbf{r}$ 是几何相位（见章节 3.2.2 和章节 2.2.3）。具体地，此过程使第 l 个基态的原子的量子态 $|g_l\rangle$ 多出一个相因子 $e^{2i\mathbf{k}_c \cdot \mathbf{r}_l}$ ，而处在 $|e\rangle$ 态的原子不受任何影响，因此整个系统的量子态变为：

$$|\psi_{\mathbf{k}_0 - 2\mathbf{k}_c}\rangle \sim e^{i\sum_{l=1}^N 2\mathbf{k}_c \cdot \mathbf{r}_l} \sum_j e^{i(\mathbf{k}_0 - 2\mathbf{k}_c) \cdot \mathbf{r}_j} |g_1, g_2, \dots, e_j, \dots, g_N\rangle \quad (3.9)$$

其中 $\sum_{l=1}^N 2\mathbf{k}_c \cdot \mathbf{r}_l$ 只是波函数的一个整体相位。由式 (3.9) 可以看出，在“ $|g\rangle \rightarrow |a\rangle \rightarrow |g\rangle$ ”的操作过后系统处在了波矢为 $\mathbf{k}_0 - 2\mathbf{k}_c$ 的自旋波态 $|\psi_{\mathbf{k}_0 - 2\mathbf{k}_c}\rangle$ 中。

在上面的例子中我们看到， $|g\rangle - |a\rangle$ 跃迁的两次布居翻转将几何相位 $-2\mathbf{k}_c \cdot \mathbf{r}_j$ “写入”到了自旋波的波函数中，从而使得自旋波的波矢发生变化： $\mathbf{k}_0 \rightarrow \mathbf{k}_0 - 2\mathbf{k}_c$ 。与此同时，基态原子获得了 $2\hbar\mathbf{k}_c$ 的动量增量。对于上面的讨论，应当注意到：1) 实现布居翻转不一定要使用啁啾脉冲，这里只是以啁啾脉冲为例；2) 实现两次布居翻转的光脉冲不一定要沿相反方向传播，它们的波矢之差决定了自旋波波矢的增量。忽略不重要的整体相位，图 3.4(b) 所示的自旋波操作可以用

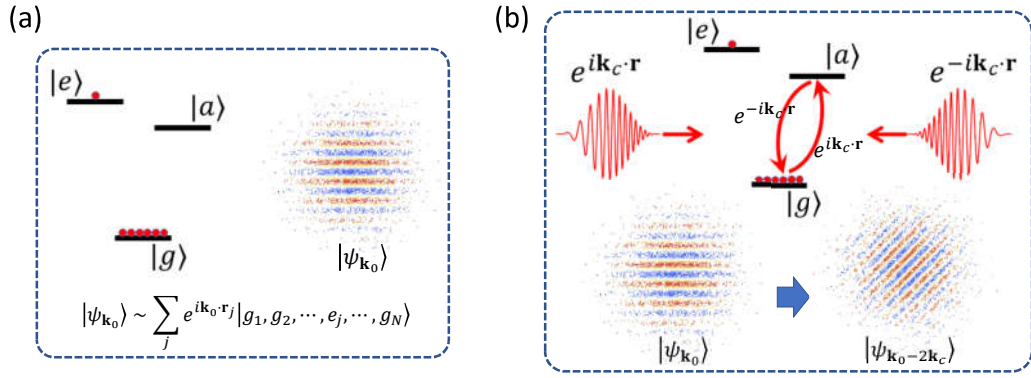


图 3.4 (a) $|g\rangle - |e\rangle$ 跃迁中相位匹配自旋波的激发。(b) 利用 $|g\rangle - |a\rangle$ 跃迁的两次布居翻转实现自旋波波矢的改变。

多体算符来表示，它的理想形式在数学上可以写成

$$\hat{U}_c^{(\text{perfect})}(\Delta\mathbf{k}) = \prod_j^N (|e_j\rangle\langle e_j| - e^{-i\Delta\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}_j}|g_j\rangle\langle g_j|) \quad (3.10)$$

对于图 3.4(b) 所示的自旋波操作，有 $\Delta\mathbf{k} = -2\mathbf{k}_c$ 。式 (3.10) 所展示的是一个理想的自旋波操作，而在实际情况下，自旋波操作是非理想的，操作的失真度可以来源于原子的自发辐射、真实原子系统的多能级干涉效应等，这些会在章节 4.3.3 中有所讨论。一般地，在非理想情况下，上述的操作可以形式化地写为

$$\hat{U}_c(\Delta\mathbf{k}) = \prod_j^N (|e_j\rangle\langle e_j| - e^{-i\Delta\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}_j}|g_j\rangle\langle g_j|) + \hat{f} \quad (3.11)$$

其中， \hat{f} 是描述操作失真的算符。在本文后面的论述中，我们会常引用式 (3.11) 而不是式 (3.10)，以使得所论述的内容更具普适性。

值得一提的是，式 (3.11) 所示的自旋波操作也可以通过加速激发态的原子来实现。如图 3.6 所示，考虑原子的能级结构中有 $|g\rangle - |e\rangle$ 和 $|e\rangle - |a\rangle$ 的光学跃迁，自旋波的激发在 $|g\rangle - |e\rangle$ 跃迁中，而原子布居的翻转操作在 $|e\rangle - |a\rangle$ 跃迁中进行。在图 3.6 中， $|e\rangle$ 态的原子被波矢为 \mathbf{k}_c 的脉冲翻转到 $|a\rangle$ 态，然后被波矢为 $-\mathbf{k}_c$ 的脉冲翻转回 $|e\rangle$ 态，其结果是自旋波的波矢从 \mathbf{k}_0 变到了 $\mathbf{k}_0 + 2\mathbf{k}_c$ 。

当自旋波的波矢从 \mathbf{k}_0 变到 $\mathbf{k}_0 + \Delta\mathbf{k}$ 后，新的波矢可以满足相位匹配条件 ($|\mathbf{k}_0 + \Delta\mathbf{k}| = \omega_{eg}/c$)，也可以不满足相位匹配条件 ($|\mathbf{k}_0 + \Delta\mathbf{k}| \neq \omega_{eg}/c$)，这取决于波矢的增量 $\Delta\mathbf{k}$ 与 \mathbf{k}_0 的关系。理论上，通过具有特定 $\Delta\mathbf{k}$ 的操作 $\hat{U}_c(\Delta\mathbf{k})$ ，相位匹配的自旋波可以转变成相位失配的自旋波，反之亦然。我们将在章节 4.2.2 中展示相关的实验结果。

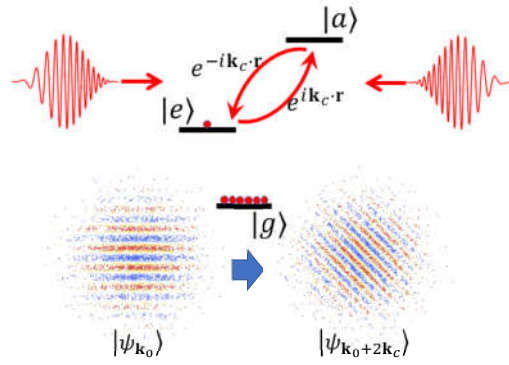


图 3.5 通过对激发态 $|e\rangle$ 的原子进行操作同样可以实现自旋波的调控，原理同图 3.4(b)。

3.3 ^{87}Rb 的冷原子样品

3.3.1 ^{87}Rb 的 $D1$ 、 $D2$ 线能级结构

本文关于自旋波调控的实验工作是在铷原子的冷原子系统中进行的。具体地，我们在实验中所使用的是铷原子的原子质量数为 87 的同位素， ^{87}Rb 。本文自旋波的激发将在 ^{87}Rb 的 $D2$ 线中进行，对应的跃迁波长为 780 nm；而本文将通过 ^{87}Rb 的 $D1$ 线的电偶极调控来实现 $D2$ 线中不同自旋波的转换。 $D1$ 线和 $D2$ 线的能级结构如图 3.6 所示。 ^{87}Rb 的 $5^2P_{1/2}$ 态和 $5^2P_{3/2}$ 态的自发辐射寿命

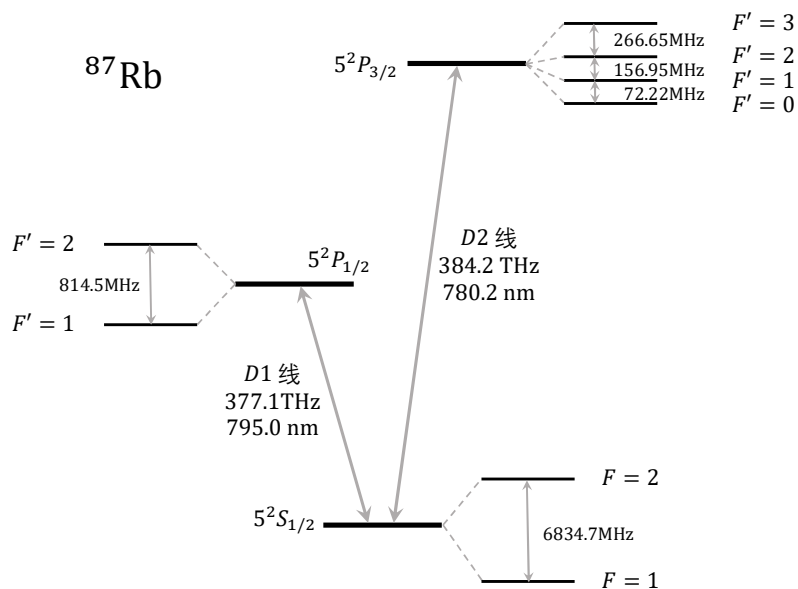


图 3.6 ^{87}Rb 的 $D1$ 、 $D2$ 线能级结构图。图中的数据取自文献^[19]。

分别为 $\tau_{D1} = 1/\Gamma_{D1} = 27.7 \text{ ns}$ 和 $\tau_{D2} = 1/\Gamma_{D2} = 26.2 \text{ ns}$ 。

对应到图 3.4(b)，我们在实验中将选择 $5^2S_{1/2} F = 2$ 的能级作为自旋波的基

态 $|g\rangle$ (它有 5 个塞曼子能级), 并选择 $5^2P_{3/2}F' = 3$ 的能级作为自旋波的激发态 $|e\rangle$ (它有 7 个塞曼子能级), 而辅助能级 $|a\rangle$ 则为 $5^2P_{1/2}F' = 1, 2$ 的能级。

3.3.2 多普勒冷却原理

现在, 我们考虑波矢为 \mathbf{k} 的近共振光与一个二能级原子的相互作用, 系统的哈密顿量设为 (参考章节 2.2.2):

$$\hat{H} = -\hbar\Delta|e\rangle\langle e| - \left(\frac{\hbar}{2}\Omega_0 e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}}|e\rangle\langle g| + \text{H.c.}\right) \quad (3.12)$$

首先, 我们不妨假设原子是静止的。由于式 (3.12) 中的 Ω_0 不含时, 我们可以求得光学 Bloch 方程 (式 (2.42)) 的稳态解 (利用条件 $\frac{d\rho_{ee}}{dt} = \frac{d\rho_{ge}}{dt} = 0$) [20]:

$$\rho_{ee}^{(s)} = \frac{|\Omega_0|^2}{4\Delta^2 + \Gamma^2 + 2|\Omega_0|^2} \quad (3.13)$$

其中 Γ 为原子激发态的自发辐射率。当上述二能级原子处在稳态时, 其激发态的布居由式 (3.13) 给出。注意到, 当原子处在稳态时, 它在单位时间内辐射的光子数和单位时间内吸收的光子数应是相同的, 均为 $\rho_{ee}^{(s)}\Gamma$ 。当这个原子从光场中受激吸收一个光子时, 它会获得动量 $\hbar\mathbf{k}$ (见章节 3.2.2)。可以得出, 在单位时间内原子从受激吸收光子的过程中获得的动量为 $\rho_{ee}^{(s)}\Gamma\hbar\mathbf{k}$ 。另一方面, 方向任意的自发辐射并不为原子提供净动量, 因此, 我们可以得到原子在光场中的受力为:

$$\begin{aligned} \mathbf{F} &= \rho_{ee}^{(s)}\Gamma\hbar\mathbf{k} \\ &= \hbar\mathbf{k}\Gamma \frac{|\Omega_0|^2}{4\Delta^2 + \Gamma^2 + 2|\Omega_0|^2} \end{aligned} \quad (3.14)$$

若原子在匀速运动, 其速度记为 \mathbf{v} , 那么由于多普勒效应, 原子看到的光场的失谐量应为 $\Delta - \mathbf{k}\cdot\mathbf{v}$, 其中 $-\mathbf{k}\cdot\mathbf{v}$ 为多普勒频移。考虑多普勒效应, 原子在光场中的受力为

$$\mathbf{F} = \hbar\mathbf{k}\Gamma \frac{|\Omega_0|^2}{4(\Delta - \mathbf{k}\cdot\mathbf{v})^2 + \Gamma^2 + 2|\Omega_0|^2} \quad (3.15)$$

现在, 我们考虑原子与两束相向传播的光的相互作用, 原子与光场耦合的 Rabi 频率为 $\Omega_0 e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} + \Omega_0 e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}}$ 。当 $\mathbf{k}\cdot\mathbf{r} \ll \Delta, \Gamma$ 且 $\Omega_0 \ll \Gamma$ 时, 原子受的合力可以近似为

$$\begin{aligned} \mathbf{F} &\approx \frac{|\Omega_0|^2\hbar\mathbf{k}\Gamma}{4(\Delta - \mathbf{k}\cdot\mathbf{v})^2 + \Gamma^2 + 2|\Omega_0|^2} + \frac{|\Omega_0|^2\hbar\mathbf{k}\Gamma}{4(\Delta + \mathbf{k}\cdot\mathbf{v})^2 + \Gamma^2 + 2|\Omega_0|^2} \\ &\approx \frac{16\hbar\Gamma|\Omega_0|^2\Delta}{(\Gamma^2 + 2|\Omega_0|^2 + 4\Delta^2)^2}(\mathbf{k}\cdot\mathbf{v})\mathbf{k} \end{aligned} \quad (3.16)$$

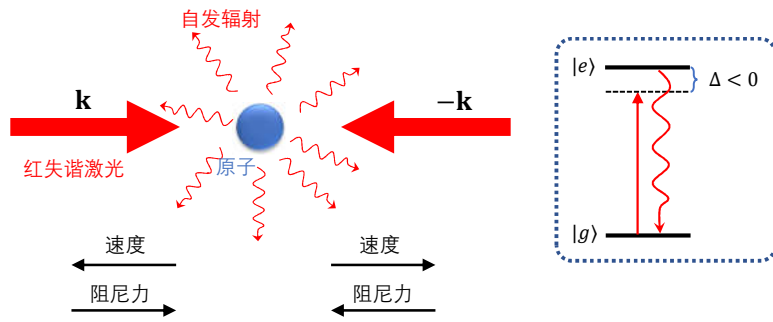


图 3.7 (a) 多普勒冷却原理示意图。原子在红失谐 ($\Delta < 0$) 的相向传播的光场中感受到了阻尼力，运动速率降低。

若失谐量 $\Delta < 0$ ，式 (3.16) 表现为阻尼力（如图 3.7 所示）：当 \mathbf{v} 沿着 \mathbf{k} 方向时，原子受力沿着 $-\mathbf{k}$ 方向；而当 \mathbf{v} 沿着 $-\mathbf{k}$ 方向时，原子受力沿着 \mathbf{k} 方向。在这种阻尼力的作用下，原子（在一个维度上）的运动速率会被降低，其动能会下降，这就是多普勒冷却的原理。上面所展示的是一维冷却的情况。若在空间的三个正交的维度上都施加上述的相向传播的光场，则能够对原子样品实现三个维度的多普勒冷却^[21-22]。多普勒冷却不会一直降低原子样品的温度，实际上，在进行多普勒冷却的同时原子的自发辐射会产生加热的效应，这使得多普勒冷却会有一个温度极限，它与激发态的自然线宽有关。该极限可由 $T_{D,\min} \sim \hbar\Gamma/2k_B$ 估算^[22]。

3.3.3 磁光阱原理

磁光阱是一种较为常用的技术，它能够对原子产生阻尼力和回复力，因此能够冷却并囚禁原子^[23]。下面以能级结构为 $J = 0 - J' = 1$ 的原子（详见章节 2.3.3）为例对磁光阱做简要介绍。

图 3.8(a) 是磁光阱的一个示意图。其中，三对红失谐的 ($\Delta < 0$)、相向传播的光场（对应的偏振已在图中标出）对原子样品进行三维的多普勒冷却。与此同时，一对反亥姆霍兹线圈在空间中形成了磁场，磁场的分布在原子样品附近具有线性的空间梯度。图 3.8(b) 展示了在空间原点附近 $z > 0$ 的区域和 $z < 0$ 的区域中激发态塞曼子能级在磁场中的分裂情况。我们以 $z > 0$ 的区域为例阐述空间回复力的原理：磁场的作用使得 $|e, m_e = +1\rangle$ 态的能量降低，从而让波矢为 $-k_e z$ 的 σ_+ 偏振的光更加近共振（见图 3.8(b)），其后果是让原子吸收波矢为 $-k_e z$ 的光子多于波矢为 $k_e z$ 的光子，并获得 $-e_z$ 方向的净加速度。同理，在 $z < 0$ 的区域原子会获得 e_z 方向的净加速度。由于磁场的空间梯度是线性的，塞曼子能级的移动随空间位置也是线性的，由此造成的失谐量的变化随空间位置也应是线性的。不妨设原子在 z 轴上 ($x = y = 0$) 并且靠近原点，以波矢为 $k_e z$

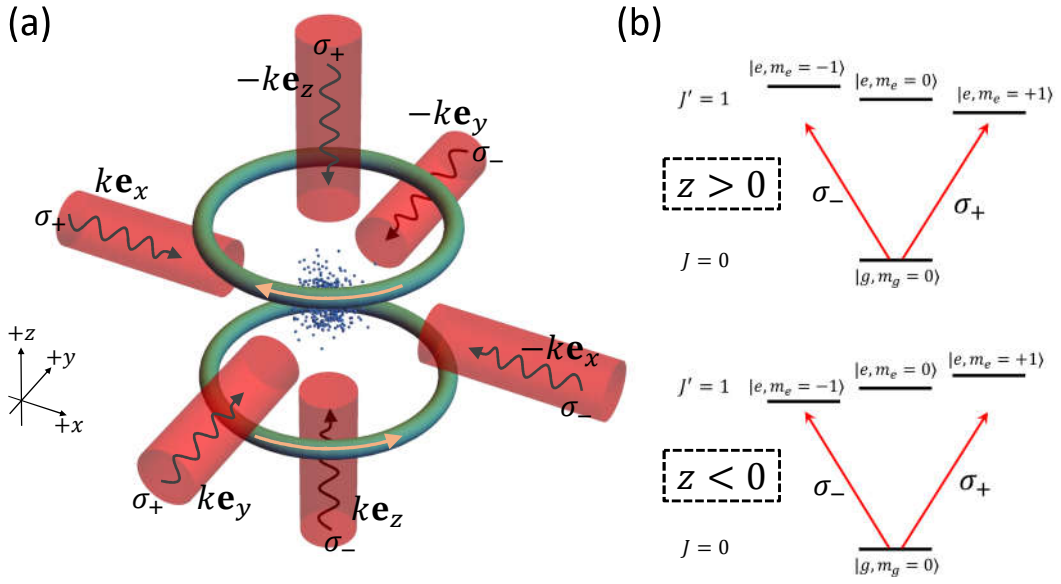


图 3.8 (a) 磁光阱示意图。(b) 激发态的塞曼子能级在外磁场下有空间相关的频移，导致原子对光的吸收具有偏振选择性。

的光为例，它对原子施加的力为（参考式 3.15）：

$$\mathbf{F}_{+z} = \mathbf{e}_z \hbar k \Gamma \frac{|\Omega_0|^2}{4(\Delta - kv_z - \xi z)^2 + \Gamma^2 + 2|\Omega_0|^2} \quad (3.17)$$

其中 ξ 的具体表达式为 $\xi = (g_e m_e - g_g m_g) \mu_B \kappa / \hbar$ ，这里 g_e 、 g_g 分别为激发态和基态的朗德 g 因子， μ_B 为波尔磁子， κ 是磁场梯度（在通常的磁光阱实验系统中有 $\kappa \sim 10 \text{ Gauss/cm}$ ）。现在，对于沿 z 轴相向传播的两束光（波矢为 ke_z 和 $-ke_z$ ），不难求出它们对原子的作用力为（参考式 3.16）：

$$\mathbf{F}_{+z} + \mathbf{F}_{-z} \approx \frac{16\hbar k^2 \Gamma |\Omega_0|^2 \Delta}{(\Gamma^2 + 2|\Omega_0|^2 + 4\Delta^2)^2} \left(v_z + \frac{\xi}{k} z \right) \mathbf{e}_z \quad (3.18)$$

式 3.18 既包含了阻尼力又包含了回复力。在弱激发近似下，式 (3.18) 可直接推广到三维的情况^[23]。

3.3.4 偏振梯度冷却

多普勒冷却的极限温度受限于激发态的自然线宽，若想得到更冷的原子样品，可以在多普勒冷却之后对原子进行偏振梯度冷却。偏振梯度冷却的方案不止一种，这里以一维情况为例介绍如何利用相向传播的圆偏振光实现偏振梯度冷却。具体细节可参考文献^[24]。

这里不妨以能级结构为 $J = 1 - J' = 2$ 的原子为例来进行讨论。图 3.10(b) 展

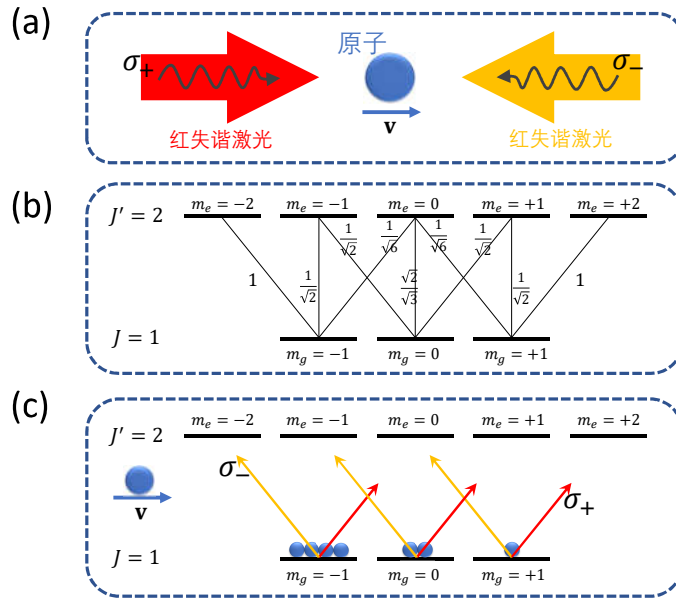


图 3.9 (a) 原子与相向传播的频率相同的圆偏振光相互作用。当原子往 σ_- 偏振的光的传播方向的反方向运动时，由于多普勒效应，原子看到的 σ_- 偏振的光的频率将升高，而看到的 σ_+ 偏振的光的频率将下降。(b) 原子的能级结构图。图中标注了不同跃迁的 Clebsch-Gordan 系数。(c) 光抽运效应导致了原子塞曼子能级的布居失去平衡。

示了原子的能级结构，其中每个跃迁的 Clebsch-Gordan 系数已标注，它可以用来表示（在相同光强下）不同跃迁的 Rabi 频率的相对大小。现在考虑如图 3.10(a) 所示的情况：原子与相向传播的圆偏振光相互作用，若原子静止，它看到两束光的频率是一样的；现原子往 σ_- 偏振的光的传播方向的反方向运动，那么它看到两束光的频率会因为多普勒频移而发生变化，如图 3.10(c) 所示。在图 3.10(c) 中，原子看到两束光的频率不一样，由于光学泵浦效应，原子在稳态时不同塞曼子能级的布居发生了失衡，在这个例子中原子 $m_g = -1$ 态上的布居会占主导。结合图 3.10(b) 的 Clebsch-Gordan 系数可以看出，原子塞曼子能级的布居失衡会使得原子吸收更多的 σ_- 光子（ $m_g = -1$ 态的布居最多且 $m_g = -1 \rightarrow m_e = -2$ 的耦合最强），这会产生额外的阻尼力，使得原子更进一步地被减速，这就实现了偏振梯度冷却。这种由塞曼子能级的布居之差产生的阻尼力可以让激光冷却的效果突破多普勒冷却的极限。在非常大失谐量的情况下，即 $|\Delta| \gg \Gamma$ ，偏振梯度冷却可以将原子样品冷却至 $T_{P,\min} \sim 0.1\hbar|\Omega_0|^2/k_B|\Delta|$ 的低温。具体计算细节可参考文献^[24]。

3.3.5 光偶极阱

光偶极阱（optical dipole trap）是一种囚禁原子样品的常用光学技术，其原

理是借助空间不均匀的光强分布（例如聚焦光束）来产生囚禁原子所需的势能梯度，下面对此做简要介绍。

回到光与二能级原子的相互作用哈密顿量：

$$\hat{H} = -\hbar\Delta|e\rangle\langle e| - \left(\frac{\hbar}{2}\Omega|e\rangle\langle g| + \text{H.c.}\right) \quad (3.19)$$

它的两个本征态对应的本征能量为：

$$E_{\pm} = \hbar\left(-\frac{\Delta}{2} \mp \frac{1}{2}\sqrt{\Delta^2 + |\Omega|^2}\right) \quad (3.20)$$

现考虑远失谐的情况，即 $|\Delta| \gg |\Omega|$ ，则上式近似为

$$\begin{aligned} E_- &\approx \frac{\hbar|\Omega|^2}{4\Delta} \\ E_+ &\approx -\hbar\Delta - \frac{\hbar|\Omega|^2}{4\Delta} \end{aligned} \quad (3.21)$$

可以看出，在光场的作用下，原子基态的能量移动了 $\hbar|\Omega|^2/4\Delta$ （激发态的能量移动则相反）。若光场的强度在空间上不均匀，则基态的原子能够感受到势能：

$$U(\mathbf{r}) = \frac{\hbar|\Omega(\mathbf{r})|^2}{4\Delta} \quad (3.22)$$

现不妨考虑红失谐的聚焦光束，它的光强在空间上有极大值，并且有 $\Delta < 0$ 。此时，由式 (3.22) 可知，光强越大的地方原子感受到的势能越低，并且对原子而言光场在焦点（光强极大值点）附近形成了一个势阱。这个势阱可以用来囚禁原子。一般地，光偶极阱在囚禁原子的同时会有一定概率激发原子，这会导致原子样品的加热和原子损失，为抑制这种效应，在许多实际应用中常常会选用非常远失谐的光场来实现光偶极阱。当光场的失谐量大到与跃迁频率在同一个量级时，旋转波近似（详见章节 2.2.2）不再适用（即式 (3.19) 和式 (3.22) 不再适用）。这时描述光场势能的一个更严格的表达式为^[25]：

$$U(\mathbf{r}) = -\frac{1}{4}\hbar|\Omega(\mathbf{r})|^2\left(\frac{1}{\omega_0 - \omega} + \frac{1}{\omega_0 + \omega}\right) \quad (3.23)$$

注意到 $\omega_0 - \omega = -\Delta$ ，那么式 (3.23) 会在旋转波变换适用的时候（ $|\omega_0 - \omega| \ll \omega_0 + \omega$ ，见章节 2.2.2）近似为式 (3.22)。

3.3.6 蒸发冷却原理

在实验的冷原子样品制备过程中，我们还会用到冷原子蒸发冷却^[26-27]的技术。它可以更进一步地降低原子样品的温度，下面对此进行简要介绍。

假设一个势能深度有限的保守势阱（如远失谐的光偶极阱）里囚禁着原子样品，那么在其中的原子会彼此之间发生碰撞并交换能量然后到达热平衡的状态。在热平衡的状态中，原子的能量近似满足玻尔兹曼分布，处在分布中高能区域的原子会有较大概率越离势阱。这些原子越离势阱的同时也带走了能量，其余的原子留在势阱中继续碰撞并到达一个新的热平衡状态，新的热平衡态的温度会比原来的低。在到达新的热平衡状态后，一部分原子会因碰撞获得了较高的能量，它们也会处在热平衡能量分布的高能区域，然后也会以较大概率越离势阱。如此进行下去，会持续不断地有高能原子越离势阱，使势阱中剩余原子的温度不断下降。在实际应用中，为了提高蒸发冷却的效率，在蒸发冷却的过程中常常会渐渐减少势阱的深度（势阱深度的减少速度通常需要足够慢以让原子样品近似保持热平衡），在对低能原子保持囚禁的同时让高能原子更有效地越出势阱，从而加速冷却过程。

3.3.7 冷原子样品的实验制备

在实验中，我们选择 ^{87}Rb 的冷原子样品作为我们研究光偶极自旋波的物质载体。结合前文对冷原子制备原理的讨论（章节 3.3.2 – 3.3.6），这一章节将介绍我们的实验中冷原子样品的制备过程。

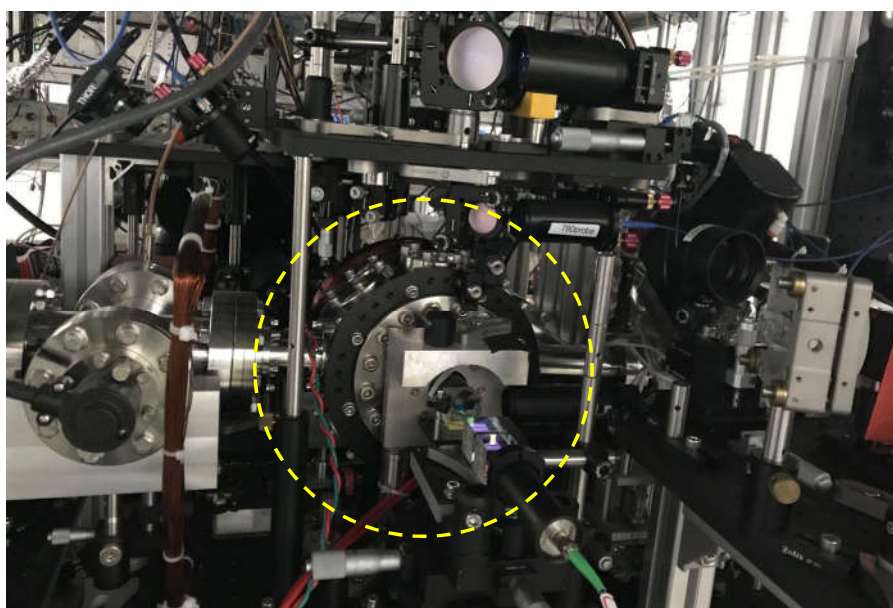


图 3.10 实验的真空装置实物图。黄色虚线标注的地方是真空系统的主实验腔。

图 3.10 展示了我们实验的真空装置，其中黄色虚线框内是主实验腔体，自旋波的调控实验将在其中进行。主实验腔体中是超高真空环境，其气压可以维持在 4×10^{-11} torr 以下。冷原子样品在制备过程中会与环境中的粒子发生碰撞，

导致原子在势阱中的寿命减少，而超高真空的环境可以有效地抑制这种效应。

我们通过磁光阱可俘获囚禁铷原子。在磁光阱中，用以进行激光冷却的光为 $5^2S_{1/2}F = 2 - 5^2P_{3/2}F' = 3$ 跃迁的近共振红失谐激光（如图 3.11 所示），在我们实验中失谐量一般选为 -12 MHz 到 -9 MHz 之间。注意到， $5^2S_{1/2}F = 2 - 5^2P_{3/2}F' = 3$ 跃迁为循环跃迁，当原子被激发到 $5^2P_{3/2}F' = 3$ 的能级时，由于选择定则它只能衰减到 $5^2S_{1/2}F = 2$ 的能级上。但在实际情况中，原子仍有可能被冷却光激发到 $5^2P_{3/2}F' = 2$ 的能级上，这时原子有可能会衰减到 $5^2S_{1/2}F = 1$ 的能级，然后这些原子由于巨大的失谐量 ($|\Delta| > 6\text{ GHz}$) 而与冷却光失耦，它们无法被继续冷却。常规的解决方案是在施加冷却光的同时施加一束反抽运光，它能利用激发态的自发辐射将 $5^2S_{1/2}F = 1$ 的能级上的原子抽运回 $5^2S_{1/2}F = 2$ 的能级。在实验中，我们对原子施加的反抽运光的频率相对 $5^2S_{1/2}F = 1 - 5^2P_{3/2}F' = 2$ 跃迁的共振频率蓝失谐了 $+6\text{ MHz}$ 。在反抽运光的作用下，在 $5^2S_{1/2}F = 1$ 的能级上的原子会被激发到 $5^2P_{3/2}F' = 2$ 的能级，然后通过自发辐射以一定概率跃迁到 $5^2S_{1/2}F = 2$ 的能级。反抽运光可以使得原子绝大部分布居在 $5^2S_{1/2}F = 2$ 的能级上。冷却光与反抽运光的频率相差超过 6 GHz （见图 3.11），在实验中它们会由一个基于电光调制的任意波形激光系统同时产生，详见章节 3.4.2。

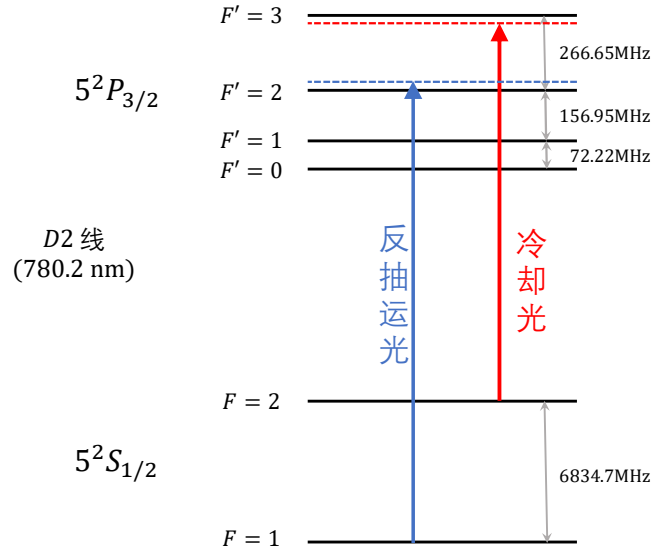


图 3.11 冷却光频率、反抽运光频率示意图。

在真空装置中我们配置了铷源（铷金属块），通过真空阀门可以控制它是否与系统的真空环境连通。铷源的存在使得真空环境中存在铷原子的气体，原则上磁光阱可以直接从背景环境中俘获并冷却铷原子以形成被囚禁的冷原子气体，但在超高真空环境中铷原子的气压很低，磁光阱直接从背景中俘获铷原子的速率也会很低。我们实验上所使用的是二级真空系统，如图 3.12 所示。在靠近铷

源的预备腔中，环境气压约为 $\sim 10^{-8}$ torr，我们初步利用磁光阱在此腔体中预制备了铷的冷原子气体样品。在预备腔与主实验腔的连接通道中间有（两个）差分管，用以维持它们之间的气压差。预备腔中的冷原子样品制备完毕后，我们对原子施加一束近共振的推送光，推送光会加速原子（见式 (3.15)）让其到达主实验腔并被主实验腔中的磁光阱所俘获（见图 3.12），此过程可让主实验腔的磁光阱囚禁 $\sim 10^7$ 个 ^{87}Rb 的冷原子。在主实验腔的磁光阱中，磁场梯度由一对线圈提供，大小约为 ~ 20 Gauss/cm。

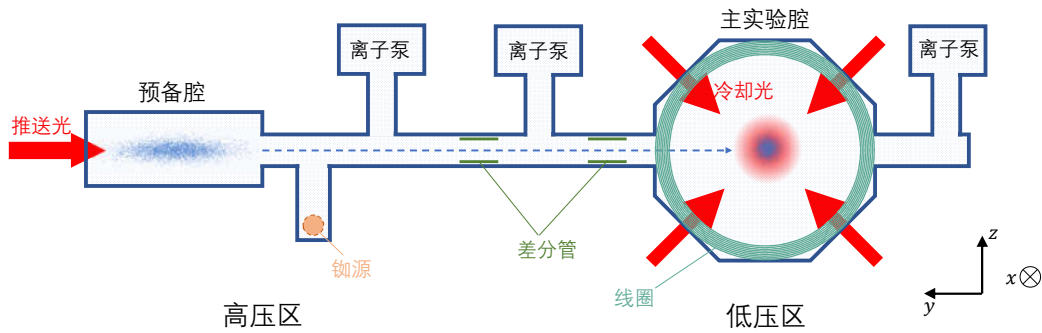


图 3.12 真空装置示意图。其中差分管维持着真空系统中预备腔和主实验腔的气压差。

当主实验腔的磁光阱完成原子装载（耗时 ~ 1 s）后，我们降低冷却光的频率，以对原子样品进行偏振梯度冷却（见章节 3.3.4）。在偏振梯度冷却（耗时 ~ 10 ms）完成后，我们打开光偶极阱（见章节 3.3.5），将冷原子样品囚禁在光场中。本文的实验工作会使用到两种模式的光偶极阱，它们分别能制备出两种形状分布的原子样品，如图 3.13 所示。在图 3.13(a) 中，原子被囚禁在由两束交叉的激光形成的光偶极阱中，交叉的两束激光是线偏振光，并且它们的偏振相互垂直，它们的波长均为 1064 nm。这两束激光相交于它们的焦点，它们聚焦的光斑半径（光强下降到最大光强的 $1/e^2$ 处的半径距离）为 ~ 20 μm ，两束激光的夹角为 $\sim 10^\circ$ 。在此光偶极阱中原子样品的空间分布呈长条形（相关的测量见章节 5.3）。在图 3.13(b) 中，光偶极阱由三束激光形成：除了图 3.13(a) 所展示的两束 1064 nm 激光，还有一束沿着 x 方向传播的 840 nm 聚焦激光，它聚焦到两束 1064 nm 的交点处，焦平面处的光斑半径为 ~ 15 μm 。在三束激光形成的光偶极阱中，原子样品的空间分布近似为球形（相关的测量见章节 5.3）。

接着，辅以近一秒的蒸发冷却（章节 3.3.6），原子温度被进一步降低，且密度升高。最后，所有光偶极阱会被关闭，冷原子样品被释放并处于自由空间中（仅受重力），此时我们将进行自旋波的调控实验（详见章节 4.2.2）。通常，当需要更高密度的原子样品时，我们还会在释放原子前的一段时间里（ ~ 10 ms）增大光偶极阱的深度，对原子进行绝热压缩，以获得体积更小，密度更大的冷

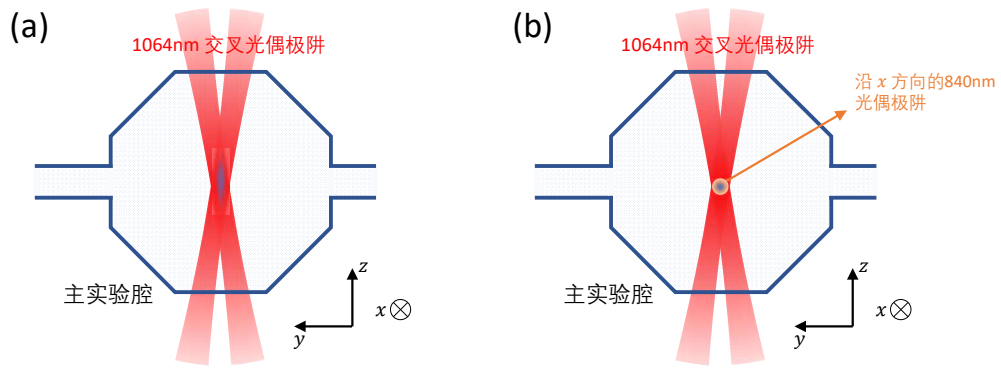


图 3.13 (a) 两束交叉的 1064 nm 激光形成光偶极阱，原子样品的空间分布呈长条形。(b) 两束交叉的 1064 nm 激光与一束沿 x 方向的 840 nm 激光形成光偶极阱，原子样品的空间分布呈近似球形。

原子样品。

在冷原子样品制备完之后，我们可以通过吸收成像的方法对其性质（包括原子形状和尺寸、原子数、原子密度等）进行测量，具体方法和结果见章节 5.3.1。

3.4 基于高速光纤电光调制的任意波形脉冲产生系统

在章节 3.2 中我们介绍了一种新型的自旋波的调控方案；章节 3.3 介绍了本文研究中所使用的自旋波的物质载体——冷原子样品。在本章节中，我们将介绍两个新型的任意波形激光系统：一个用于 $D1$ 线的高效电偶极调控（自旋波调控）；另一个用于 $D2$ 线的自旋波激发和激光冷却。

在本文的研究中，自旋波的激发和调控将在 ^{87}Rb 原子电偶极跃迁的 $D2$ 、 $D1$ 线中进行（见章节 3.3.1）。这两个跃迁的自发辐射寿命只有二十多纳秒，这给自旋波的激发和高效调控带来极大的困难。

对于自旋波的激发而言，激发光的脉冲时长应小于原子间相互作用的时间尺度（在通常的冷原子样品密度下为 $\sim 1/\Gamma$ ），以避免在激发过程中激发光的光子在原子样品中的多重散射（多重散射效应可通过式 (2.73) 来计算），这样才能实现高效的自旋波激发（见章节 3.2.1）。 ^{87}Rb 的 $D2$ 线自发辐射寿命为 $\tau_{D2} = 1/\Gamma_{D2} = 26.2 \text{ ns}$ ，而对应的自旋波激发的光脉冲应短至几纳秒（频率带宽应足够高），这样才能激发出较“干净”的自旋波态——每个原子被激发的概率是均匀的。这一点在章节 5.4.3 中有相关的讨论。

对于自旋波的调控而言，其条件更加苛刻。自旋波的调控中的一个重要指标是自旋波调控的效率，即原来的自旋波态有多少成分被成功转换至新的自旋波态中。为实现高效率的自旋波调控，所需的光脉冲时长应远小于原子（集体

的)自发辐射的寿命。对于 ^{87}Rb 的 $D1$ 线 ($\tau_{D1} = 1/\Gamma_{D1} = 27.7 \text{ ns}$) 来说, 高效的自旋波调控需要亚纳秒级别甚至以下的波形可控的光脉冲。不仅如此, 在一些复杂的组合调控中, 还需要光脉冲具有高的重复频率 ($\gg \Gamma_{D1}$) 和相位稳定性。

事实上, 在本工作以前, 对电偶极跃迁集体辐射的操控是超快光学的研究范畴^[28]。具体来说, 运用锁模激光可实现短至飞秒的脉冲, 可用来对原子的电偶极跃迁进行微扰调控^[29]甚至强场调控^[30]。然而此类工作对电偶极的调控均基于光对原子电偶极跃迁的直接驱动, 操控效果对光强敏感, 难以运用到量子光学领域。另一方面, 对超快激光的脉冲整形技术^[31]可用于产生啁啾脉冲甚至任意波形^[32], 可实现电子态的绝热布局转移^[33]等。然而该类技术只适用于带宽达 THz 的超快激光, 运用于孤立能级调控有光谱亮度, 调控复杂度和精度等诸多方面的限制。

在章节 3.4.1 中, 我们将介绍本文的核心技术: 基于电光调制的高带宽任意波形激光系统。它能产生用于电偶极跃迁自旋波调控的亚纳秒脉冲。在章节 3.4.2 中, 我们会介绍另一个任意波形激光系统, 它能提供激光冷却所需的多频激光以及 $D2$ 线自旋波激发所需的纳秒脉冲。

3.4.1 $D1$ 线高带宽任意波形激光系统

本文的 $D1$ 线高带宽任意波形激光系统的光路设计如图 3.14 所示。该系统的激光源是一个外腔式的半导体激光器 (为方便起见, 后面简称 ECDL)。ECDL 的输出激光通过偏振分束镜分为了两路: 其中一路用于激光锁频, 另外一路是主光路, 用于产生高带宽的任意波形光脉冲。

这里首先介绍激光系统的主光路。如图 3.14 所示, (经过锁频的) ECDL 的输出激光在主光路中首先注入到了一个光学的锥形放大器 (taper amplifier, 后面简称 TA) 中, 它能够放大激光的功率。在实验中, TA 的注入功率通常为 30mW, 它能将激光功率放大到约 1.8 W。经过放大的激光会注入到一个声光调制器 (Acousto-Optic Modulator, 后面简称 AOM) 中, AOM 的一级衍射将注入到光纤电光调制器 (fiber-based electro-optic modulator, 后面简称 fEOM) 中。这里我们使用了 EOSPACE 公司的相位调制 fEOM, 它的微波调制带宽可高达 40 GHz。用于驱动 fEOM 的微波来源于一个高带宽的任意波形微波发生器, 该微波发生器是 Keysight Technologies 公司的产品 (型号为 M8195A), 它能够产生带宽范围为 0 – 20 GHz 的任意波形微波信号。经过 fEOM 调制的激光可以含有不同频率的调制边带, 紧接着激光会经过一个基于大面积光栅和单模光纤的光学滤波系统, 它会过滤出其中与原子 $D1$ 跃迁近共振的边带。该光路的核心思想是将高带宽的任意波形微波信号转换为高带宽的任意波形光脉冲, 下面对其原理进行阐述。

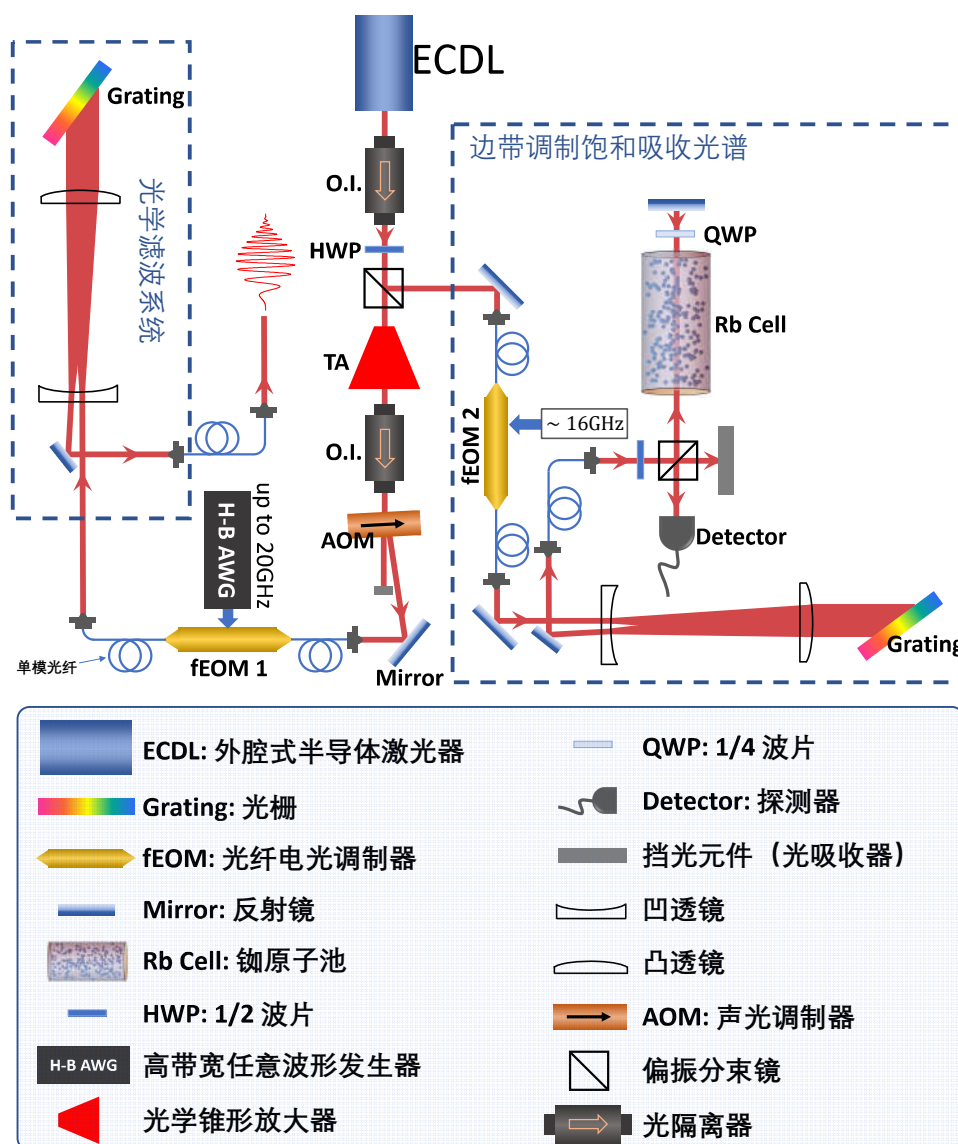


图 3.14 D1 线高带宽任意波形激光系统的示意图。各个元件已在光路图下标注。图中的所有光纤均是单模光纤。

实验中，fEOM 调制基础是 LiNbO₃ 晶体电光效应：外界电场改变晶体折射率。在实验中 fEOM 所工作的电压区间里，晶体的折射率变化正比于电压，即 $\Delta n = bV$ ， b 是常数。不难得出，在外界电压下，通过 fEOM 的光的相位变化也会正比于电压，即 $\Delta\phi = \theta_0 V$ ，这里 θ_0 是常数。现在，不妨设施加的外界电压（调制电压）具有形式： $V(t) = A(t) \sin(-\omega_M t - \varphi(t))$ ，这里 ω_M 是调制电压的

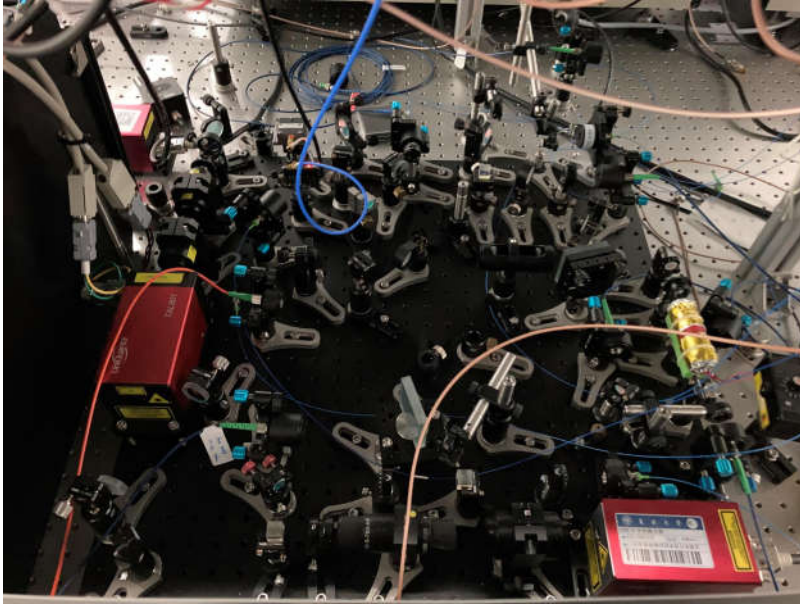


图 3.15 D1 线高带宽任意波形激光系统的实物图。

载波（圆）频率。出射光的电场 E_{out} 与入射光的电场 $E_{\text{in}} = E_0 e^{-i\omega t}$ 的关系为：

$$\begin{aligned}
 E_{\text{out}} &= e^{i\Delta\phi} E_{\text{in}} \\
 &= e^{i\theta_0 A(t) \sin(-\omega_M t - \varphi(t))} E_{\text{in}} \\
 &= \sum_{n=-\infty}^{+\infty} J_n(\theta_0 A(t)) e^{-in(\omega_M t + \varphi(t))} e^{-i\omega t} E_0
 \end{aligned} \tag{3.24}$$

公式的最后一步用到了 Bessel 函数的级数展开。在式 3.24 中的最后一行，求和中不同的 n 代表出射光中不同级次的边带。在实验中，我们选用的载波（圆）频率为 $\omega_M = 2\pi \times 16 \text{ GHz}$ 。因此相邻的级次之间会相差 16 GHz 的频率。如此大的频率间隔允许我们利用光学滤波的方法筛选出其中某一个边带。一个基于大面积光栅和单模光纤的光学滤波系统已在图 3.14 中标注，其中光栅的规格为 2400 线/mm。式 3.24 中不同级别的光由于频率不同，经光栅衍射后它们的空间模式会有差别，利用单模光纤可以有效地筛选出其中一个想要的模式的光。经测量，该光学滤波系统的光学带宽（半高全宽）为 13 GHz。我们用它筛选出 $n = -3$ 的边带，那么最后输出光的形式可写为

$$\begin{aligned}
 E_{\text{out}} &\sim J_{-3}(\theta_0 A(t)) e^{3i\varphi(t)} e^{-i(\omega - 3\omega_M)t} E_0 \\
 &= A'(t) e^{3i\varphi(t)} e^{-i(\omega - 3\omega_M)t}
 \end{aligned} \tag{3.25}$$

由于在实验上 $A(t)$ 的函数形式可以通过任意波形微波发生器进行设计，因此 $J_{-3}(\theta_0 A(t))$ 也应可以具有（在带宽范围以内）任意可调的函数形式，这里不妨用 $A'(t)$ 替换 $J_{-3}(\theta_0 A(t))E_0$ 。在式 3.25 中， $A'(t)$ 和 $\varphi(t)$ 的函数形式可以分别独

立进行任意波形的设计和优化，实验中我们可以使其满足：

$$\begin{aligned} A'(t) &= \begin{cases} A_0 \sin(\pi t/\tau), & 0 \leq t \leq \tau \\ 0 & , t \notin [0, \tau] \end{cases} \\ 3\dot{\varphi}(t) &= \begin{cases} -\Delta_0 \cos(\pi t/\tau), & 0 \leq t \leq \tau \\ 0 & , t \notin [0, \tau] \end{cases} \end{aligned} \quad (3.26)$$

比较式 (2.28) 可知，式 (3.26) 表示一个啁啾脉冲。并且，脉冲的中心（圆）频率为 $\omega - 3\omega_M$ （见式 (3.25)）。

实验中，我们可以让激光系统产生的脉冲的中心频率为 ^{87}Rb 原子的 $5^2S_{1/2}F = 2 - 5^2P_{1/2}F' = 1$ 跃迁和 $5^2S_{1/2}F = 2 - 5^2P_{1/2}F' = 2$ 跃迁的中心频率，见图 3.16。这一点可以通过边带调制的饱和吸收光谱锁频技术来实现。它有别于传统的饱和吸收光谱锁频技术^[34]。在图 3.14 的锁频光路中，激光在进入饱和吸收光谱光路前先经过了一个光纤电光调制器（图中标注为“fEOM 2”），其调制频率为 $\sim 16 \text{ GHz}$ ，然后一个光学滤波系统将调制后的激光的负三级边带筛选出，而被筛选出的边带用于产生饱和吸收光谱信号，该信号用于反馈 ECDL，实现锁频。这种方法可以让 ECDL 锁在了 $5^2S_{1/2}F = 2 - 5^2P_{1/2}$ 跃迁蓝失谐 $\sim 3 \times 16 \text{ GHz}$ 的地方，从而让主光路中的负三级边带是近共振的边带，这使得激光系统可以产生中心频率近共振的任意波形光学脉冲。在锁频光路中，通过微波发生器的参数调节可以对调制频率（ $\sim 16 \text{ GHz}$ ）进行高精度（ $< \text{MHz}$ ）的调整，以补偿在主光路中由 AOM 导致的频移，使得主光路产生的光脉冲的中心频率（ $\omega - 3\omega_M$ ）可以精确地锁在 ^{87}Rb 原子的 $5^2S_{1/2}F = 2 - 5^2P_{1/2}F' = 1$ 跃迁和 $5^2S_{1/2}F = 2 - 5^2P_{1/2}F' = 2$ 跃迁的中心频率（如图 3.16 所示）。

在该任意波形激光系统中，我们只利用一个相位调制器就实现了对光脉冲的强度和相位的同时调控。在系统中我们选用了 $n = -3$ 的边带，一方面，这可以 n 倍地增加光脉冲的相位调制幅度（ $\varphi(t) \rightarrow n\varphi(t)$ ），另一方面，它可以让 ECDL 的锁频频率以 n 倍的载波频率（ $\omega_M/2\pi = 16 \text{ GHz}$ ）远离原子的共振跃迁，这使得任意波形激光系统在无调制时其激光输出会由于频率远离光学滤波系统的工作区间而被有效抑制，并且没被抑制的部分也由于远失谐而难以对原子产生作用。我们通常选用 13 GHz 带宽的光学滤波系统，经过仔细调节，可使得系统的光脉冲开关比高达 $1000 : 1$ 。

通常，由于光折变效应^[35]（一种光学损伤），fEOM 的注入功率应被限制小于 $\sim 10 \text{ mW}$ 。而此时经调制的出射光常常只有几毫瓦。若想利用 fEOM 的高带宽调制来产生高功率高带宽的任意波形脉冲，需结合光学放大的技术。通常，光学放大会在电光调制之后^[36]。但在本文 D1 线的高带宽任意波形激光系统中，为避免任意波形光脉冲在光学放大过程中的形变，我们在电光调制之前对激光进行光学放大。光学放大后的激光约为 1.8 W ，由于光折变效应它无法直接注入

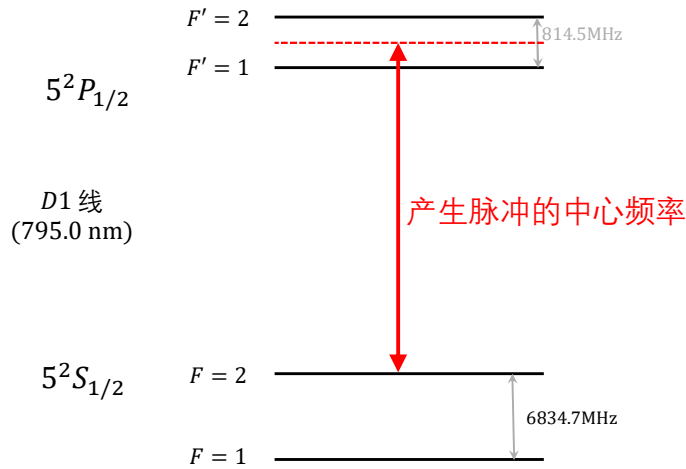


图 3.16 激光系统产生的脉冲的中心频率为 ^{87}Rb 原子的 $5^2S_{1/2}F = 2 - 5^2P_{1/2}F' = 1$ 跃迁和 $5^2S_{1/2}F = 2 - 5^2P_{1/2}F' = 2$ 跃迁的中心频率。

到 fEOM 中。这里我们利用一个 AOM 将光学放大后的连续激光调制成时长不超过 $1\mu\text{s}$ 且峰值功率超过 1W 的光脉冲。激光是聚焦后注入 AOM 的（图中未画出），这样可以缩短 AOM 开关的上升和下降时间。实验中 AOM 输出光的上升沿或下降沿时长约为 15ns 。AOM 的输出脉冲将注入到 fEOM 中，这种脉冲式的注入方式可以有效地避免 fEOM 的光折变效应。加州伯克利大学的 H. Müller 小组对此也有相关的研究^[37]。当 AOM 调制的脉冲光进入到 fEOM 中时，用于电光调制的微波信号会同步开启，最后在光学滤波系统的筛选作用下产生任意波形光脉冲。

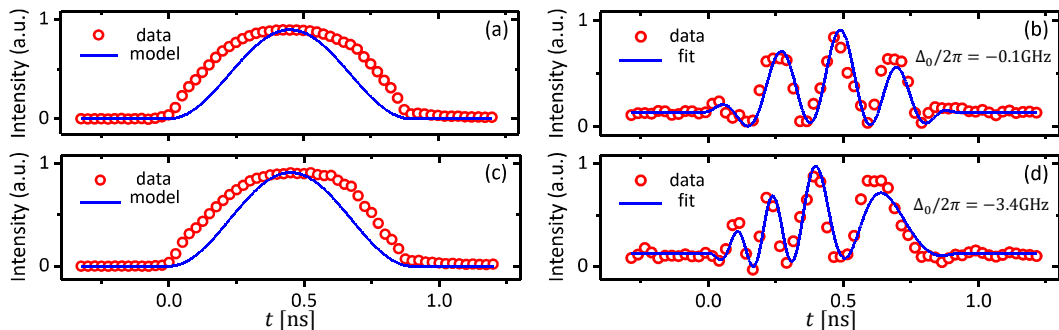


图 3.17 亚纳秒啁啾脉冲的产生。(a)、(c) 为强度测量，(b)、(d) 为对应的拍频测量。拍频所选用的连续激光比脉冲的中心频率高 4.6GHz 。图中的测量采用了 Thorlabs 公司的高速光电探测器，其型号为 PDA8GS。

总的来说, 该 $D1$ 线的激光系统产生的任意波形激光输出的峰值功率为 20mW (一方面受限于 fEOM 注入光的峰值功率, 另一方面受限于负三阶边带的功率占比: $\max(|J_{-3}(x)|^2) \approx 0.18$), 调制开关比可达到 $1000:1$, 调制带宽范围从近直流至 13GHz , 并且其中心频率与 ^{87}Rb 的 $D1$ 线近共振。作为一个例子, 图 3.17 展示了对上述任意波形激光系统产生的啁啾脉冲的测量结果。在图 3.17(a) 和图 3.17(c) 中, 蓝线是任意波形的强度函数设计 ($\propto \sin^2(\pi t/\tau)$, $\tau = 0.9\text{ns}$), 红线是实际测得的强度。可以看出, 实际的测量结果与预期有出入, 其原因在于光学滤波系统不能有效地抑制 $n = -2, -4$ 的边带 (它们与 $n = -3$ 级的边带的频率差只有 16GHz), 导致最终的输出光中包含了一部分非 $n = -3$ 级的光, 从而使得所测光强与预期有出入。但是, 由于 $n = -2, -4$ 的边带对于原子跃迁频率来说失谐了 $\pm 16\text{GHz}$, 它们对原子的影响可以忽略³。为测得 $n = -3$ 边带对应的脉冲波形, 在图 3.17(b) 和图 3.17(d) 中我们测量了任意波形激光系统的输出和一束连续激光的拍频信号。所用的连续激光的频率比 $n = -3$ 边带的中心频率高 4.6GHz , 由于探测器的带宽限制 (探测器带宽截止到 9.5GHz , 其型号见图 3.17 的注释), 该连续激光与 $n = -2, -4$ 边带的拍频将被滤除, 因此图 3.17(b) 和图 3.17(d) 中的拍频仅来源于连续激光与 $n = -3$ 边带的干涉。可以看出, 图 3.17(b) 和图 3.17(d) 中的测量结果符合预期的啁啾脉冲形式 (见式 (3.26)), 利用式 (3.26) 对拍频的测量结果进行拟合, 可以验证光脉冲的输出波形并测定脉冲的啁啾参数, 相关的结果已标注在图 3.17(b) 和图 3.17(d) 中。在章节 4.3.2 和章节 4.3.3 中, 我们将对实验中电偶极跃迁的量子调控进行建模和数值模拟, 其结果会进一步证实该任意波形激光系统所产生的啁啾脉冲的可靠性。

3.4.2 $D2$ 线激光冷却与任意波形激光系统

本章节将介绍另一个基于电光调制的任意波形激光系统, 它的输出会用于铷原子的激光冷却以及 $D2$ 跃迁的自旋波激发。该系统主要结合了高带宽的电光调制、光学放大以及光学滤波来产生多频连续激光或近共振纳秒脉冲, 它的工作原理与 $D1$ 线的任意波形激光系统类似 (见章节 3.4.1), 下面作简要介绍。

如图 3.18 所示, ECDL 输出激光的其中一路用于饱和吸收光谱的激光锁频。 $D2$ 线激光系统 ECDL 的频率会锁在 ^{87}Rb 原子的 $5^2S_{1/2}F = 1 - 5^2P_{3/2}F' = 0$ 跃迁和 $5^2S_{1/2}F = 1 - 5^2P_{3/2}F' = 1$ 跃迁的中心频率上 (见图 3.19)。除了锁频的光路, ECDL 的激光被分成了两路: 其中一路激光没有经过 fEOM, 它的频率在经过 AOM 的调制后与 $5^2S_{1/2}F = 1 - 5^2P_{3/2}F' = 2$ 跃迁近共振, 最终输出为激光冷却的反抽运光 (见章节 3.3.7 和图 3.11); 另外一路激光会先经过 fEOM 的调制 (调制频率通常为 $\sim 6.8\text{GHz}$), 这会产生 $5^2S_{1/2}F = 2 - 5^2P_{3/2}$ 跃迁的近共振

³原则上输出光中也会包含 $n = -1, -5$ 的边带, 它们的强度和对原子的影响只会更小。

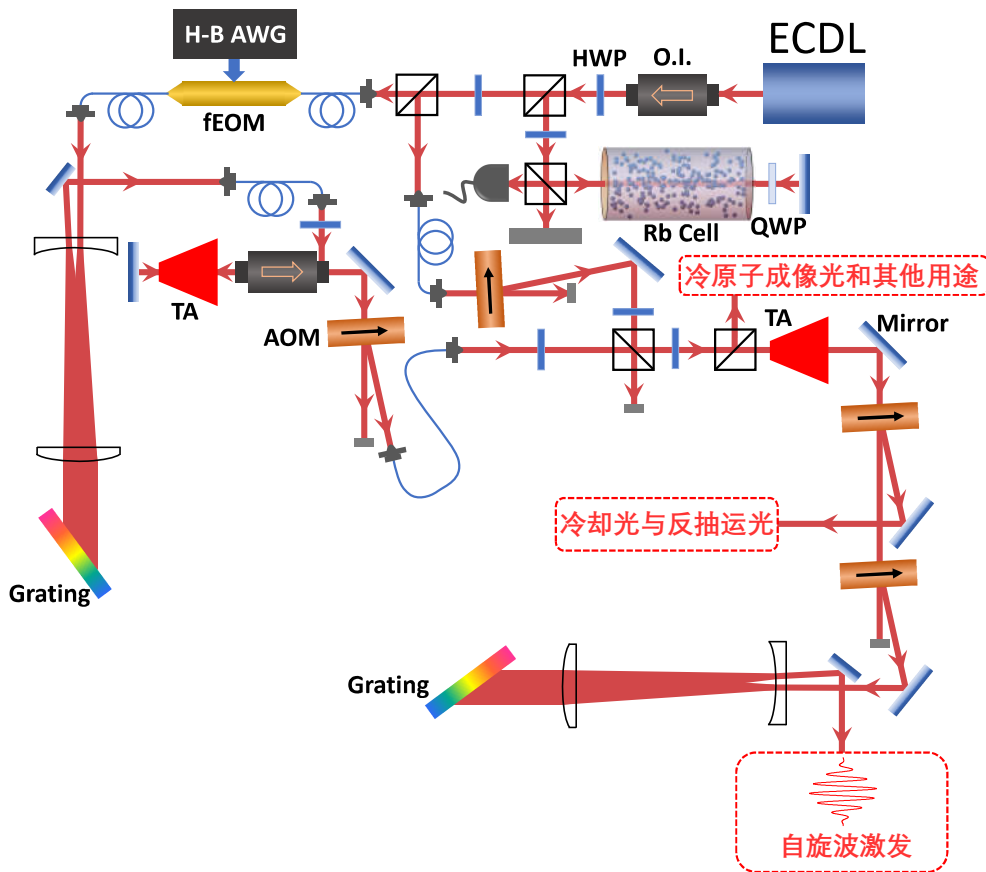


图 3.18 D_2 线激光冷却与任意波形激光系统。该系统用于产生激光冷却所需的冷却光和反抽运光、 D_2 线自旋波激发所需的纳秒脉冲以及冷原子样品的成像照明光等。该图中的各元件的示意图的含义见图 3.14 中的标注。

边带（参考能级图 3.6），接着在经过光学滤波和光学放大后，该光路的激光可输出为冷却光或者自旋波激发所需的纳秒脉冲。

D_2 线激光系统产生任意波形的原理与 D_1 线激光系统的是一样的，都是通过结合光学滤波和高速相位调制来产生强度和相位同时可控的任意波形激光输出（参考章节 3.4.1）。在 D_1 线激光系统中，相位调制是在光学放大之后，由于需要避免光折变效应，fEOM 的高功率注入只能是脉冲式的，因此 D_1 线激光系统的设计不适合用于输出连续光。在 D_2 线激光系统中，相位调制是在光学放大之前，这样的设计可以让其输出激光冷却所需的连续光。在图 3.18 中，fEOM 的注入光是连续光⁴，其功率约为 17 mW，而 fEOM 的输出光功率在毫瓦量级。经过相位调制后，图 3.18 中 fEOM 的输出光会含有不同频率的边带，此时我们利用一个光学滤波系统（其结构同图 3.14 中的光学滤波系统）抑制我们不需要的边带（非冷却光的边带）。在滤波之后，激光功率约剩 1 mW，它难以通过常

⁴在实验中，我们通过加热 fEOM 到 $\sim 70^\circ$ 来提高它的光学损伤阈值，此时 fEOM 可注入近 20 mW 的光。这样的技术也用于 D_1 线的激光系统中。

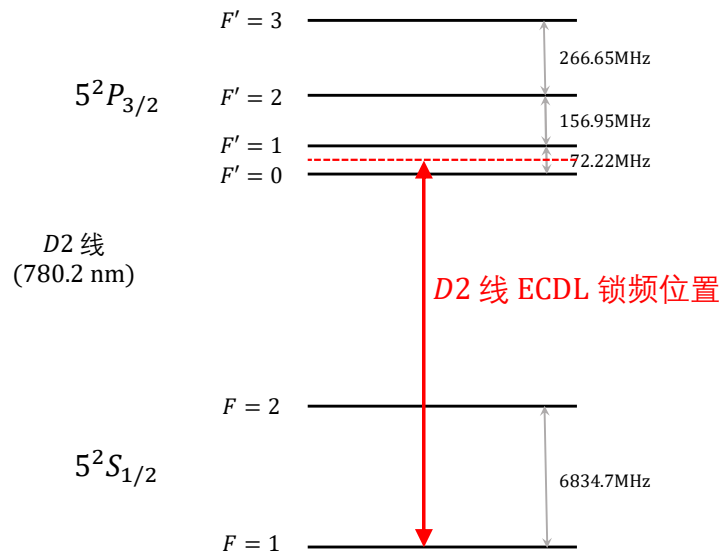


图 3.19 D2 线激光系统中 ECDL 的锁频位置为 ^{87}Rb 原子的 $5^2S_{1/2}F = 1 - 5^2P_{3/2}F' = 0$ 跃迁和 $5^2S_{1/2}F = 1 - 5^2P_{3/2}F' = 1$ 跃迁的中心频率。

规的 TA 注入方式被有效放大（通常 TA 正向注入的种子光需要达到 20 mW ）。这里，我们利用光隔离器中的法拉第效应让激光从反、正方向两次注入到 TA 中。这种方法可以有效地放大功率仅为 1 mW 的激光^[38]。值得一提的是，fEOM 后面的光学滤波系统没有把电光调制的零级光（频率与入射光一样的边带）完全去除，这样会让 TA 在 fEOM 无调制时仍有一定的注入光，可以在一定程度上抑制 TA 自身的自发辐射放大噪声（Amplified spontaneous emission, ASE）并延长 TA 的使用寿命。关于 TA 的增益自发辐射，可参考文献^[39]。

经过 fEOM 调制的光在经过光学滤波和第一次光学放大后与另一路没有经过 fEOM 调制的光（用于输出反抽运光）通过偏振分束镜合束并被另一个 TA 放大。第二个 TA 的输出光的功率可高达 1.5 W ，它的输出既可以在连续光调制模式中用于激光冷却，也可以在脉冲光调制模式中产生自旋波激发所需的纳秒脉冲（中心频率与 $5^2S_{1/2}F = 2 - 5^2P_{3/2}F' = 3$ 跃迁共振）。如图 3.18 所示，为了让用于自旋波激发的纳秒脉冲有更“干净”的频率成分，它在输出到原子样品之前还经过了最后一个光学滤波系统。自旋波激发光的输出带宽为 $\sim 5\text{ GHz}$ ，在实验中我们通常使用时长为 $\tau_p = 3 - 5\text{ ns}$ 的光强为 $\propto \sin(\pi t/\tau_p)$ 形式的纳秒脉冲来实现自旋波的激发，且脉冲的中心频率与 $5^2S_{1/2}F = 2 - 5^2P_{3/2}F' = 3$ 跃迁共振。原则上可以选择更短的 τ_p ，但为了避免其他超精细结构能级的激发（如 $5^2S_{1/2}F = 2 - 5^2P_{3/2}F' = 2$ 跃迁），我们一般不让 τ_p 小于 3 ns （详见章节 4.2.2）。

参考文献

- [1] Scully M O, Fry E S, Ooi C H R, et al. Directed Spontaneous Emission from an Extended Ensemble of N Atoms: Timing Is Everything[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2006, 96:010501
- [2] Svidzinsky A A, Yuan L, Scully M O. Quantum Amplification by Superradiant Emission of Radiation[J]. *Phys. Rev. X*, 2013, 3:041001
- [3] Zhu B, Cooper J, Ye J, et al. Light scattering from dense cold atomic media[J]. *Phys. Rev. A*, 2016, 94:023612
- [4] Zhang S, Liu C, Zhou S, et al. Coherent Control of Single-Photon Absorption and Reemission in a Two-Level Atomic Ensemble[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2012, 109:263601
- [5] Zhang Y X, Mølmer K. Theory of Subradiant States of a One-Dimensional Two-Level Atom Chain[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2019, 122:203605
- [6] Henriët L, Douglas J S, Chang D E, et al. Critical open-system dynamics in a one-dimensional optical-lattice clock[J]. *Phys. Rev. A*, 2019, 99:023802
- [7] Williamson L A, Borgh M O, Ruostekoski J. Superatom Picture of Collective Nonclassical Light Emission and Dipole Blockade in Atom Arrays[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2020, 125:073602
- [8] Masson S J, Ferrier-Barbut I, Orozco L A, et al. Many-Body Signatures of Collective Decay in Atomic Chains[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2020, 125:263601
- [9] Williamson L A, Ruostekoski J. Optical response of atom chains beyond the limit of low light intensity: The validity of the linear classical oscillator model[J]. *Phys. Rev. Research*, 2020, 2:023273
- [10] Bettles R J, Lee M D, Gardiner S A, et al. Quantum and nonlinear effects in light transmitted through planar atomic arrays[J]. *Commun. Phys.*, 2020, 3(1)
- [11] Cipris A, Moreira N A, Espirito Santo T S, et al. Subradiance with Saturated Atoms: Population Enhancement of the Long-Lived States[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2021, 126:103604
- [12] Berry M V. Quantal phase factors accompanying adiabatic changes[J]. *Proc. R. Soc. Lond. A*, 1984, 392(1802):45–57
- [13] Mizrahi J, Senko C, Neyenhuis B, et al. Ultrafast Spin-Motion Entanglement and Interferometry with a Single Atom[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2013, 110:203001
- [14] Campbell W C, Hamilton P. Rotation sensing with trapped ions[J]. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, 2017, 50(6):064002

- [15] Miao X, Wertz E, Cohen M G, et al. Strong optical forces from adiabatic rapid passage[J]. *Phys. Rev. A*, 2007, 75:011402
- [16] Metcalf H. Colloquium: Strong optical forces on atoms in multifrequency light[J]. *Rev. Mod. Phys.*, 2017, 89:041001
- [17] Long X, Yu S S, Jayich A M, et al. Suppressed Spontaneous Emission for Coherent Momentum Transfer[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2019, 123:033603
- [18] Jayich A M, Vutha A C, Hummon M T, et al. Continuous all-optical deceleration and single-photon cooling of molecular beams[J]. *Phys. Rev. A*, 2014, 89:023425
- [19] Steck D A. Rubidium 87 D Line Data. <http://steck.us/alkalidata>, 2019
- [20] Scully M O, Zubairy M S. *Quantum Optics*[M]. New York: Cambridge University Press, 1997
- [21] Chu S, Hollberg L, Bjorkholm J E, et al. Three-dimensional viscous confinement and cooling of atoms by resonance radiation pressure[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 1985, 55:48–51
- [22] Lett P D, Phillips W D, Rolston S L, et al. Optical molasses[J]. *J. Opt. Soc. Am. B*, 1989, 6(11):2084–2107
- [23] Raab E L, Prentiss M, Cable A, et al. Trapping of Neutral Sodium Atoms with Radiation Pressure[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 1987, 59:2631–2634
- [24] Dalibard J, Cohen-Tannoudji C. Laser cooling below the Doppler limit by polarization gradients: simple theoretical models[J]. *J. Opt. Soc. Am. B*, 1989, 6(11):2023–2045
- [25] Grimm R, Weidemüller M, Ovchinnikov Y B. Optical dipole traps for neutral atoms. <https://arxiv.org/pdf/physics/9902072.pdf>, 1999
- [26] Anderson M H, Ensher J R, Matthews M R, et al. Observation of Bose-Einstein Condensation in a Dilute Atomic Vapor[J]. *Science*, 1995, 269(5221):198–201
- [27] Davis K B, Mewes M O, Andrews M R, et al. Bose-Einstein Condensation in a Gas of Sodium Atoms[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 1995, 75:3969–3973
- [28] Shen Y R. *The Principles of Nonlinear Optics*[M]. Hoboken: Wiley-Interscience, 1984
- [29] Cundiff S T, Mukamel S. Optical multidimensional coherent spectroscopy[J]. *Physics Today*, 2013, 66(7):44
- [30] Lim J, Lee H G, Lee S, et al. Ultrafast Ramsey interferometry to implement cold atomic qubit gates[J]. *Scientific Reports*, 2014, 4:5867

- [31] Weiner A M. Ultrafast optical pulse shaping: A tutorial review[J]. *Optics Communications*, 2011, 284(15):3669–3692. Special Issue on Optical Pulse Shaping, Arbitrary Waveform Generation, and Pulse Characterization
- [32] Cundiff S T, Weiner A M. Optical arbitrary waveform generation[J]. *Nature Photonics*, 2010, 4(11):760–766
- [33] Goswami D. Optical pulse shaping approaches to coherent control[J]. *Physics Reports*, 2003, 374(6):385–481
- [34] Preston D W. Doppler-free saturated absorption: Laser spectroscopy[J]. *American Journal of Physics*, 1996, 64(11):1432–1436
- [35] Ashkin A, Boyd G D, Dziedzic J M, et al. Optically-induced refractive index inhomogeneities in LiNbO₃ and LiTaO₃[J]. *Applied Physics Letters*, 1966, 9(1):72–74
- [36] Rogers C E, Gould P L. Nanosecond pulse shaping at 780 nm with fiber-based electro-optical modulators and a double-pass tapered amplifier[J]. *Opt. Express*, 2016, 24(3):2596–2606
- [37] Wu X, Zi F, Dudley J, et al. Multiaxis atom interferometry with a single-diode laser and a pyramidal magneto-optical trap[J]. *Optica*, 2017, 4(12):1545–1551
- [38] Bolpasi V, Klitzing W. Double-pass tapered amplifier diode laser with an output power of 1 W for an injection power of only 200 μ W[J]. *Review of Scientific Instruments*, 2010, 81(11):113108
- [39] Voigt D, Schilder E, Spreeuw R, et al. Characterization of a high-power tapered semiconductor amplifier system[J]. *Applied Physics B*, 2001, 72:279–284

第四章 光偶极自旋波的几何调控——超、亚辐射的高效转换

4.1 本章概述

在本章中，我们将对本文的自旋波调控实验工作进行介绍和论述，这是本论文的核心内容之一。借助本工作发展的任意波形激光系统（见章节 3.4），我们利用亚纳秒级的啁啾脉冲在 ^{87}Rb 的 $D1$ 跃迁中实现了高效的电偶极调控，并以此来操控 $D2$ 跃迁的自旋波波矢（原理见章节 3.2.3）。具体来说，我们在随机冷原子气体中激发出光偶极自旋波，并在远小于原子自发辐射寿命的时间内实现自旋波波矢（在倒空间中）的大范围平移，这不仅能改变原子定向集体辐射的方向，甚至还能将原子样品激发到没有定向辐射的相位失配自旋波中。在本章，我们不仅会展示自旋波调控的实验结果，还会利用无相互作用的理论模型对实验进行细致的数值模拟和分析。下面对本章各小节的内容进行简要梳理。

在章节 4.2 中，我们会首先介绍本文自旋波调控所使用的光路设计（章节 4.2.1），利用该光路设计我们能够将任意波形激光系统（见章节 3.4）输出的单向的任意脉冲序列转换为双向的任意脉冲序列，以实现自旋波调控的各种复杂组合。接着在章节 4.2.2 中，我们会展示光偶极自旋波调控的一个重要的实验结果——集体超、亚辐射的几何控制。利用自旋波的几何调控，我们实现了原子定向集体辐射的“转向”、“关闭”与“唤醒”，具体实验细节见章节 4.2.2。

在章节 4.3 中，我们对自旋波调控伴随的原子加速效应进行了细致的测量（章节 4.3.1），并在无相互作用的近似下建立了一个用以描述自旋波调控的“动量晶格”模型（章节 4.3.2），该模型包含了 ^{87}Rb 的 $D1$ 、 $D2$ 跃迁的所有超精细结构能级，我们可以用它对自旋波调控的整个过程进行细致的数值模拟。最后，在章节 4.3.3 中，我们会结合实验测量和数值模拟对本文的自旋波调控实验进行细致的分析。

4.2 光偶极自旋波调控的实现

4.2.1 自旋波激发与调控光路设计

在章节 3.2.2 和章节 3.2.3 中，我们介绍了如何利用一对方向不同的啁啾脉冲来实现量子态相关的加速以及自旋波的几何调控；而在章节 3.4.1 中，我们介绍了能够产生自旋波调控所需的亚纳秒啁啾脉冲（见图 3.17）等任意波形光脉

冲的高带宽任意波形激光系统。现在，在光偶极自旋波调控的实验条件已基本具备的情况下，具体调控光路的设计仍至关重要。

在式 3.11 中所示的自旋波调控的算符表达式中，当 $\Delta \mathbf{k} \neq 0$ 时 $\hat{U}_c(\Delta \mathbf{k})$ （参考公式 (3.11)）对应着一个非平庸的自旋波调控。要实现这样的操作，原子样品需和波矢不同的光脉冲进行相互作用（详见章节 3.2.3）。要在实验上实现这一点，一个简单的方法是将任意波形激光系统产生的光脉冲分成两路（或者更多路），让每一路沿着不同的方向传播并与原子相互作用，但是这种方法的一个明显的缺点是大大降低了脉冲光的峰值功率（每一路光的峰值功率最多为总峰值功率的一半）。另一个简单方法是搭建另一台一样的任意波形激光系统，这样可以解决上述峰值功率的问题，但是所需实验成本会变高。对这一问题的解决存在巧妙的方案，本章节将介绍我们设计的自旋波激发与调控的光路，一方面它利用光学延迟（optical delay）提高了调控脉冲的能量利用率，另一方面它通过将特定的光脉冲“存储”在光学延迟系统中来实现两个传播方向的光脉冲时序的同步控制，以完成复杂的自旋波调控组合。

本文的自旋波激发与调控是在 ^{87}Rb 冷原子样品的 $D2$ 线和 $D1$ 线中进行的。在本章节中，我们将采用章节 3.3.1 中的记号（也可参考图 4.1(c)）：记 $5^2S_{1/2}F = 2$ 的能级为 $|g\rangle$ ；记 $5^2P_{3/2}F' = 3$ 的能级为 $|e\rangle$ ；记 $5^2P_{1/2}F' = 1, 2$ 的能级为 $|a\rangle$ 。

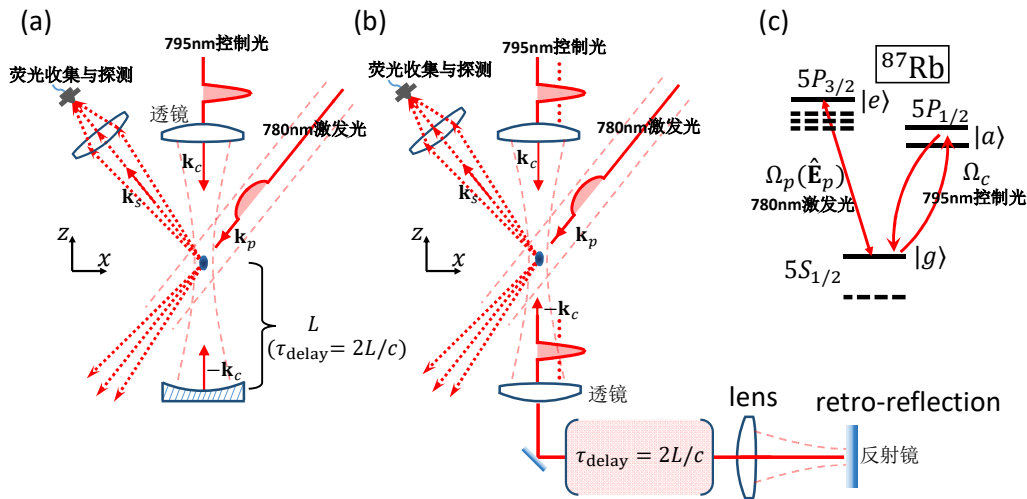


图 4.1 (a)、(b) 自旋波激发与调控光路的两种设计，细节见正文。(c) 自旋波激发与调控的能级示意图。

图 4.1(a) 展示了本文激发与调控光路的初步设计，波长为 780 nm 的激发脉冲（中心频率与 $|g\rangle - |e\rangle$ 跃迁共振）沿着波矢 \mathbf{k}_p 的方向激发 $|g\rangle - |e\rangle$ 跃迁的相位匹配自旋波。紧接着，沿着波矢 \mathbf{k}_c 方向的 $|g\rangle - |a\rangle$ 跃迁的控制脉冲将处在 $|g\rangle$ 态的原子翻转至 $|a\rangle$ 态。波矢为 \mathbf{k}_c 的控制脉冲是聚焦到原子样品上的，当它与原子相互作用完成之后紧接着会被一个凹面镜原路反射回来，并再次聚焦到原

子样品上与原子发生第二次相互作用。在第二次相互作用中，控制光的波矢为 $-\mathbf{k}_c$ ，它会将处在 $|a\rangle$ 态的原子翻转回 $|g\rangle$ 态。通过一次反射，控制脉冲可以连续两次对原子样品实现布居翻转，并且两次翻转时控制脉冲的波矢不一样，整个过程只需让任意波形激光系统输出一个控制脉冲便能实现自旋波的 $\hat{U}_c(-2\mathbf{k}_c)$ 操作（原理详见章节 3.2.3）。该光路的设计参考了文献^[1]。值得一提的是，通过不同的反射镜组合可以让控制脉冲沿不同的方向反射回原子样品，其波矢不一定是 $-\mathbf{k}_c$ 方向，这里以本文的实验为例进行讨论，不失一般性。在图 4.1(a) 中，第二个控制脉冲相对第一个控制脉冲的延迟时间 τ_{delay} 由反射镜到原子样品的光程 L 决定，有 $\tau_{\text{delay}} = 2L/c$ 。这里我们所使用的凹面镜的曲率半径为 $R = 200 \text{ mm}$ ，它放置在真空系统之外，与原子样品隔着 5 mm 厚的玻璃，这使得凹面镜在把光反射并聚焦回原子位置处时其位置与原子位置间的光程 L 会略大于 200 mm 。通过几何光学的知识可以求出实际的光程 L 并最终算出延迟时间 $\tau_{\text{delay}} = 1.36 \text{ ns}$ 。

上面的论述展示了如何利用图 4.1(a) 的光路实现自旋波的 $\hat{U}_c(-2\mathbf{k}_c)$ 操作。然而，该光路的设计无法实现 $\hat{U}_c(-2\mathbf{k}_c)$ 操作的逆操作，即 $\hat{U}_c(+2\mathbf{k}_c)$ 操作。其原因是波矢为 \mathbf{k}_c 的控制脉冲总是比波矢为 $-\mathbf{k}_c$ 的控制脉冲先到达原子的位置并对原子进行布居翻转。

为了打破这样的顺序，我们设计了如图 4.1(b) 所示的光路。通过增加光程 L ，图 4.1(b) 中的光学延迟时间 τ_{delay} 增大到了 97 ns 。注意到 $\tau_{\text{delay}} \sim 4/\Gamma_{D1}$ ，一个波矢为 \mathbf{k}_c 的控制脉冲与原子发生相互作用后，在它返回与原子再次相互作用时，原子由于自发辐射已回到基态，换句话说，当控制脉冲进入光学延迟系统后，原子有足够的时间“重置”到基态。借助这一点，我们可以在自旋波激发之前先往调控光路中输出一组特定的脉冲序列（它们会与原子相互作用并接着进入光学延迟系统），在它们即将返回到原子位置处时原子样品已在基态，此时再进行自旋波的激发并输出第二组脉冲序列。第二组脉冲序列会与返回的第一组脉冲序列迎面“相撞”，由于第一、二组脉冲序列的时间参数是独立调节的，它们的“相撞”既可以形成 $\hat{U}_c(-2\mathbf{k}_c)$ 操作，也可以形成 $\hat{U}_c(+2\mathbf{k}_c)$ 操作，或者是它们之间的任意排列。实际上，该光路设计还有另一个优点：第一、二组脉冲序列的相对光强是可以调节的¹，这使得 $\hat{U}_c(\pm 2\mathbf{k}_c)$ 操作中的两个啁啾脉冲的相对光强也可调节，利用这一点我们可以更有效地抑制 $\hat{U}_c(\pm 2\mathbf{k}_c)$ 操作中的动态相位（见章节 2.2.3）。作为例子，章节 4.2.2 的图 4.2(a) 展示了一个由该光路设计产生的脉冲序列，其中包含了自旋波的激发以及自旋波的 $\hat{U}_c(\pm 2\mathbf{k}_c)$ 操作。另外，为了确定 τ_{delay} ，我们可以往光路中输入单个控制脉冲，它会先后两次激发原子样品，产生两次荧光信号，我们通过测量这两次荧光信号的时间间隔可以在实验中精确确定光学延迟 τ_{delay} 的值，其不确定度为 0.1 ns 。值得一提的是，第二组脉冲序列在与原子相互作用之后也会进入光学延迟系统，并经过 $\sim \tau_{\text{delay}}$ 时间后

¹这一点在图 4.1(a) 的光路中是无法实现的，因为其反向光（波矢为 $-\mathbf{k}_c$ ）的光强由对应的正向光（波矢为 \mathbf{k}_c ）的光强决定。

返回原子位置处再次与原子作用，这使得自旋波的能自由演化时长也为 $\sim \tau_{\text{delay}}$ ，这对于本文的自旋波动力学研究来说是足够的。

前面提到，在图 4.1(b) 所示的光路中，当控制脉冲进入光学延迟系统后，被激发的原子会“重置”到基态。然而， ^{87}Rb 原子的基态不止一个（见章节 3.3.1），被激发的原子有可能回到基态 $|g\rangle$ （概率为 $5/8$ ），它们会贡献到 $|g\rangle - |e\rangle$ 跃迁的自旋波激发中；被激发的原子也有可能衰减到其他非 $|g\rangle$ 的基态，即 $5^2S_{1/2}F = 1$ 的能级（概率为 $3/8$ ），这些原子不贡献到后续的自旋波实验中，其后果等效为样品中原子数的损失。对于一个特定的脉冲时序，这种原子数的“损失”可通过实验测得，也可通过数值模拟来估算。

4.2.2 集体超、亚辐射的几何控制

在本章节中，我们将介绍本文关于自旋波调控的初步实验结果——集体超、亚辐射的几何控制。

首先，我们在实验上制备出 ^{87}Rb 的冷原子样品（详见章节 3.3.7）。在本章节所展示的实验中，冷原子样品所含的原子数为 $N \sim 5 \times 10^3$ ，温度为 $T \sim 20\mu\text{K}$ ，原子样品近似为球形（形状可通过光偶极阱来控制，见图 3.13）且样品的尺寸为 $\sigma \sim 7\mu\text{m}$ （ $1/e$ 密度半径）。当冷原子样品制备完毕后，它将从光偶极阱中被释放到自由空间（详见章节 3.3.7），然后通过章节 4.2.1 所讨论的方法对原子实现自旋波的激发与调控。下面对此进行介绍。

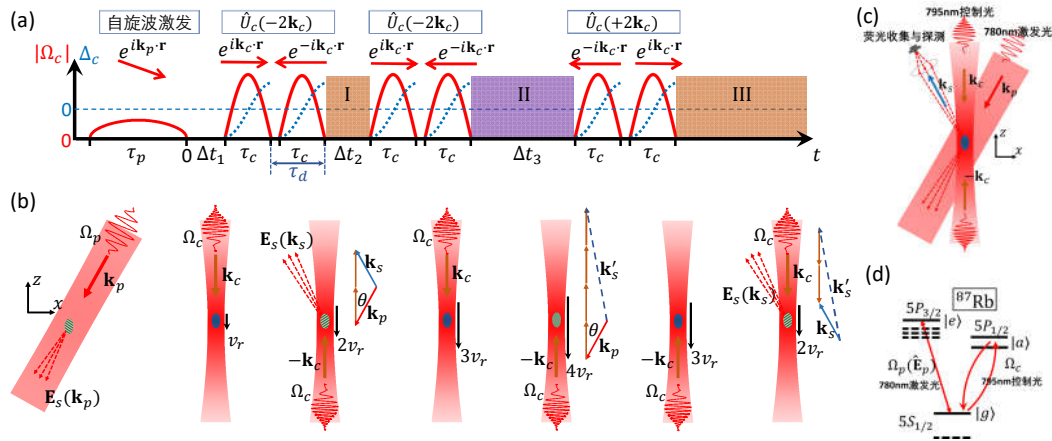


图 4.2 (a) 自旋波激发与调控时序。(b) 自旋波激发与调控的物理过程的示意图。(c) 自旋波激发与调控光路，其中自旋波激发脉冲的偏振是沿着 y 方向的，而 $D1$ 线的控制脉冲的偏振是沿着 x 方向的。(d) 自旋波激发与调控的能级示意图。

图 4.2 展示了实验上的一个典型的自旋波激发与调控的脉冲时序。如图所示，在时序的初始时间区间 $t \in [-\tau_p, 0]$ 里，时间长度为 τ_p 的 $D2$ 线脉冲沿着波矢 \mathbf{k}_p 的方向激发出 $|g\rangle - |e\rangle$ 的相位匹配自旋波且自旋波的波矢为 \mathbf{k}_p 。此时原子样品会沿着 \mathbf{k}_p 方向有定向的超辐射^[2-3]（见图 4.2(b)）。在经过 $\Delta t_1 \ll$

$1/\Gamma_{D2} = 26.2 \text{ ns}$ 的时间后，原子被施加一对 $D1$ 线的啁啾脉冲（啁啾脉冲的形式如式 (3.26) 所示）：第一个啁啾脉冲沿着 \mathbf{k}_c 方向将处在 $|g\rangle$ 态的原子翻转转到 $|a\rangle$ 态，第二个啁啾脉冲沿着 $-\mathbf{k}_c$ 方向将处在 $|a\rangle$ 态的原子翻转回 $|g\rangle$ 态。这一对啁啾脉冲完成了一次 $\hat{U}_c(-2\mathbf{k}_c)$ 操作（详见章节 3.2.3），使得自旋波的波矢发生了变化，即 $\mathbf{k}_p \rightarrow \mathbf{k}_s = \mathbf{k}_p - 2\mathbf{k}_c$ 。实验中，自旋波激发脉冲的偏振是沿着 y 方向的，而 $D1$ 线的控制脉冲的偏振是沿着 x 方向的，坐标的方向定义见图 4.2(c)。我们可以在实验中调整激发光的方向，让 \mathbf{k}_c 与 \mathbf{k}_p 的夹角为 $\theta = \arccos(780/795) \approx 11^\circ$ ，这使得 $\mathbf{k}_s = \mathbf{k}_p - 2\mathbf{k}_c$ 同样满足相位匹配条件，即 $|\mathbf{k}_p - 2\mathbf{k}_c| = |\mathbf{k}_p| = \omega_{eg}/c = \frac{2\pi}{780} \text{ nm}^{-1}$ ，而自旋波的定向辐射会从 \mathbf{k}_p 方向转至 $\mathbf{k}_s = \mathbf{k}_p - 2\mathbf{k}_c$ 方向。在实验中，我们总是将荧光探测设置在 $\mathbf{k}_s = \mathbf{k}_p - 2\mathbf{k}_c$ 方向——我们在 \mathbf{k}_s 方向用多模光纤收集原子的辐射荧光，收集荧光的数值孔径为 $\text{NA}=0.04$ ，多模光纤的输出接到两个时间分辨的单光子探测器上，单光子探测器产生的电脉冲信号会输入到计数卡中并最终生成时间分辨的荧光信号，整个荧光探测过程与脉冲时序同步。我们实验上所使用的单光子探测器是 Excelitas Technologies 公司的产品，型号为 SPCM-AQRH-14-FC。最终我们会统计在不同时间区间内的荧光光子数，并以此绘制出荧光信号随时间的变化曲线，时间区间的长度固定为 $T_{\text{bin}} = 256 \text{ ps}$ 。在通常的自旋波实验中，荧光在收集的过程中会经过一个滤光片（未在图中画出），它只允许波长为 780 nm 的荧光通过，而波长为 795 nm 的荧光将被滤除。于是，在图 4.2(a) 中标记为“**I**”的时间区间里，我们将探测到原子的定向超辐射。如果在经历时长为 Δt_2 的时间区间“**I**”后我们对原子样品施加另一个 $\hat{U}_c(-2\mathbf{k}_c)$ 操作（见图 4.2(a)），那么自旋波的波矢将进一步发生变化： $\mathbf{k}_s \rightarrow \mathbf{k}'_s = \mathbf{k}_p - 4\mathbf{k}_c$ 。在时间区间“**II**”里，原子的自旋波不满足相位匹配条件，有 $|\mathbf{k}'_s| \approx 2.9 \times \omega_{eg}/c > \omega_{eg}/c$ ，此时各个原子的辐射光沿任何一个方向都不是相干相加的，原子样品在空间上没有定向的集体辐射，原子样品处在一个“亚辐射”的状态上。由于在时间区间“**II**”里原子样品失去了“超辐射”的性质，我们预期原子的自旋波将拥有更长的寿命——相比时间区间“**I**”里的相位匹配自旋波。在第二次 $\hat{U}_c(-2\mathbf{k}_c)$ 操作后经过 Δt_3 的时间，我们可以对原子样品施加一个 $\hat{U}_c(+2\mathbf{k}_c)$ 操作，其后果是自旋波的波矢将发生 $\mathbf{k}'_s \rightarrow \mathbf{k}_s$ 的变化，此时自旋波会重新回到相位匹配的条件并向 \mathbf{k}_s 方向产生定向的集体辐射，原子的超辐射性质重新被“唤醒”了。被“唤醒”的超辐射中实际上包含了相位失配自旋波（在时间区间“**II**”）的演化信息，通过在时间区间“**III**”中的荧光测量我们可以研究相位失配自旋波的一些动力学行为（详见章节 5.3.3）。

○ 集体辐射的“转向”与“关闭”

图 4.3 展示了本文自旋波调控实验的初步结果。在本文的实验中，用以实现自旋波调控的 $D1$ 线啁啾脉冲与原子相互作用的瞬时 Rabi 频率可以描述为 $\Omega_c = \Omega_0 \sin(\pi(t - t_{\text{off}})/\tau_c)$ ，瞬时失谐量可以描述为 $\Delta_c = -\Delta_0 \cos(\pi(t - t_{\text{off}})/\tau_c)$ ，

其中 $t \in [t_{\text{off}}, t_{\text{off}} + \tau_c]$ 。值得一提的是， $D1$ 线的控制脉冲是聚焦到原子样品上的，在空间不同的地方 Rabi 频率会不一样，这里的 Ω_c 通常指控制光在空间上的最大 Rabi 频率。不同啁啾脉冲的时间坐标 t_{off} 可以独立地调节（通过任意波形激光系统来实现，见章节 3.4.1），以形成所需的自旋波调控时序。在图 4.3 的实验中， $\tau_p = 3 \text{ ns}$ ， $\Omega_0 = 2\pi \times 3 \text{ GHz}$ ， $\Delta_0 = 2\pi \times 3.4 \text{ GHz}$ ， $\tau_c = 0.9 \text{ ns}$ ，此实验测量采用了图 4.1(a) 的光路设计，因此有 $\tau_d = 1.36 \text{ ns}$ （ τ_d 的定义见图 4.2(a)）。在实验中， $D1$ 线的啁啾脉冲通过透镜聚焦到原子样品处，它在原子位置处的光斑半径为 $w_c \approx 13 \mu\text{m}$ （光强下降到 $1/e^2$ 的半径）。自旋波的激发光在原子位置处的光斑半径为 $w_p \approx 50 \mu\text{m}$ ，它远大于原子的尺寸 $\sigma \sim 7 \mu\text{m}$ ，因此可以认为自旋波的激发是平面波激发。在该实验中，自旋波激发脉冲的峰值功率约为 $I_{p,0} \sim 3 \text{ mW/cm}^2$ ，它对应的峰值 Rabi 频率仅为 $\Omega_{p,0} = \sqrt{I_{p,0}/2I_{s2}}\Gamma_{D2} \sim 2\pi \times 5 \text{ MHz}$ ，其中 $I_{s2} = 3.577 \text{ mW/cm}^2$ 是原子“没有极化”时 $|g\rangle - |e\rangle$ 跃迁线偏振光的饱和光强（当原子均匀地布居在各个塞曼子能级上时我们认为原子“没有极化”）。该饱和光强的值取自文献^[4]。通常，自旋波的激发脉冲的波形为 $\Omega_p = \Omega_{p,0} \sin(\pi(t + \tau_p)/\tau_p)$ ($t \in [-\tau_p, 0]$)，那么在上述的参数下它导致的激发态布居率为 $(\frac{1}{2} \int_{-\tau_p}^0 \Omega_p dt)^2 \lesssim 10^{-3}$ ，满足自旋波的弱激发条件（见章节 3.2.1）。

图 4.3 的注释给出了相关实验的具体细节。在曲线 (i) – (v) 所对应的实验中，沿着 \mathbf{k}_p 方向的自旋波激发被一个 $\hat{U}_c(-2\mathbf{k}_c)$ 操作转变成 \mathbf{k}_s 方向的自旋波，其相位匹配条件使得原子往 \mathbf{k}_s 方向有定向的集体辐射，原子样品的集体辐射被“转向”了。在曲线 (i) – (v) 中，定向集体辐射的荧光信号分别在不同的时刻出现，这是因为我们在实验中设定了不同的 $\hat{U}_c(-2\mathbf{k}_c)$ 操作的延迟时间 Δt_1 （具体值见图 4.3 注释）。从章节 4.3.2 的理论模型中我们将得知， \mathbf{k}_s 方向荧光信号从零上升到最大的过程实际上是 $\hat{U}_c(-2\mathbf{k}_c)$ 操作的第二个啁啾脉冲与原子相互作用的过程，所以图 4.3 中荧光信号的上升沿应为 $\tau_c = 0.9 \text{ ns}$ 。而实际测到的上升沿（ $\sim 1.2 \text{ ns}$ ）比 τ_c 稍宽，这是由单光子探测的时间测量不确定度导致的。另外， $\tau_p = 3 \text{ ns}$ 的脉冲在激发 $5^2S_{1/2}F = 2 - 5^2P_{3/2}F' = 3$ 跃迁的自旋波的同时也会少量地激发出 $5^2S_{1/2}F = 2 - 5^2P_{3/2}F' = 2$ 跃迁的自旋波。这两种自旋波的集体辐射会产生拍频^[5]。在图 4.3 中观测到的荧光信号的振荡正是由此产生，图中的振荡频率为 $f \approx 267 \text{ MHz}$ 。通过对曲线 (i) – (v) 的集体辐射荧光信号进行拟合，我们发现其衰减的寿命为 $\tau_N = 12.3 \text{ ns}$ ，它短于单原子的自发辐射衰减寿命（ $\tau_{D2} = 26.2 \text{ ns}$ ）。这是由前向辐射的集体效应导致的^[2-3,6-7]。文本在章节 5.3.2 中将对这一现象进行更细致的研究。实验中我们还测量了集体辐射在远场的发散角为 $\theta_s \sim 20 \text{ mrad}$ ，这是符合理论预期（ $\sim 1/|\mathbf{k}_s|\sigma$ ）的（见章节 5.2）。作为曲线 (i) – (v) 的对照，在曲线 (vi) 的实验中只有自旋波激发而无任何 \hat{U}_c 操作，此时原子所处的自旋波态的波矢为 \mathbf{k}_p ，原子样品在 \mathbf{k}_s 方向辐射的光子是极少的。

我们在波矢为 \mathbf{k}_p 的自旋波激发之后对原子施加一个 $\hat{U}_c(-2\mathbf{k}_c)$ 操作，自旋波的波矢变为 \mathbf{k}_s ，原子集体辐射的方向也变为 \mathbf{k}_s 方向（图 4.3 曲线 (i) – (v) 所

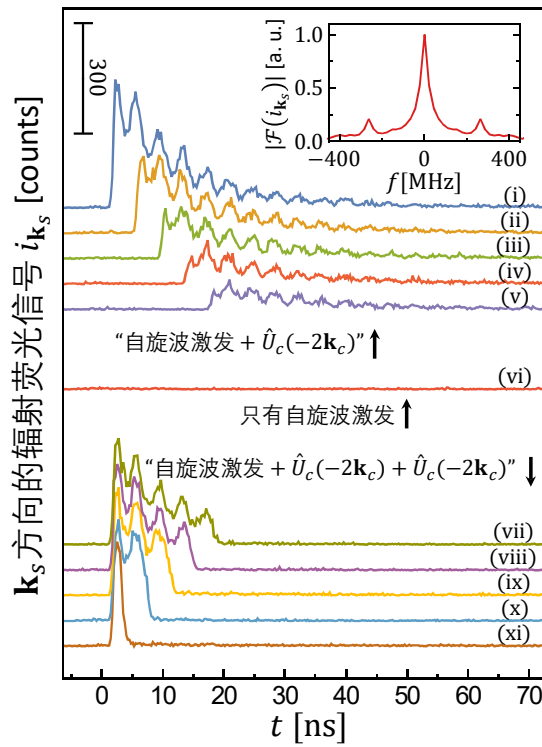


图 4.3 自旋波调控的初步实验结果。在自旋波的激发与调控过程中，我们收集并测量原子样品在 \mathbf{k}_s 方向的荧光信号 $i_{\mathbf{k}_s}$ （见图 4.2(c)）。在此测量中，自旋波激发脉冲的时长为 $\tau_p = 3$ ns，它在 $-\tau_p < t < 0$ 的时间区间里激发出了 $|g\rangle - |e\rangle$ 跃迁的自旋波，且自旋波波矢为 \mathbf{k}_p 。在曲线 (i)–(v) 中，在自旋波的激发之后仅接一个 $\hat{U}_c(-2\mathbf{k}_c)$ 操作，且延迟时间分别为 $\Delta t_1 = 0.0, 4.0, 8.0, 12.0, 16.0$ ns。曲线 (vi) 中，在 $|g\rangle - |e\rangle$ 自旋波激发之后无任何 \hat{U}_c 操作。在曲线 (vii)–(xi) 中，自旋波的激发之后进行了两次 $\hat{U}_c(-2\mathbf{k}_c)$ 操作，其中 Δt_1 固定为 0.0 ns，而第二次 $\hat{U}_c(-2\mathbf{k}_c)$ 操作的延迟时间分别为 $\Delta t_2 = 16.6, 12.6, 8.6, 4.6, 0.6$ ns。右上角的插图是曲线 (i) 的傅里叶变换的模。这里，物理量的符号与图 4.2(a) 中的相同。

展示的结果)。如果我们继续对原子样品施加第二次 $\hat{U}_c(-2\mathbf{k}_c)$ 操作，那么自旋波的波矢将变为 \mathbf{k}'_s ，此时由于相位失配 ($|\mathbf{k}'_s| = 2.9\omega_{eg}/c$)，原子的集体辐射被“关闭”了。具体结果见图 4.3 的曲线 (vii)–(xi)。其中，我们在不同的时刻施加了第二次 $\hat{U}_c(-2\mathbf{k}_c)$ 操作，集体辐射也在不同的时刻被“关闭”，而且在集体辐射被“关闭”后， \mathbf{k}_s 方向所测到的荧光量急剧减少，其下降沿为 ~ 1 ns。实际上，当自旋波的波矢为 \mathbf{k}'_s 时，原子样品沿 \mathbf{k}_s 方向的辐射光并不是所有原子的辐射的相干相加。当集体辐射被“关闭”后，原子在 \mathbf{k}_s 方向的辐射光强应下降到“关闭”前的 $\sim 1/N$ ^[81]。

在上述实验中，我们能在任意时刻对原子样品施加 $\hat{U}_c(-2\mathbf{k}_c)$ 操作，进而让原子的集体辐射被“转向”或“关闭”。在一些测量前向超辐射的实验中，由于

激发光和原子辐射光的空间模式极为相近，通常难以干净地把激发光滤除，这导致超辐射的测量信号会存在较大的背景（来源于激发光的光子）。而本文的集体辐射的“转向”操作使得我们可以在不受背景光的干扰下对原子样品的超辐射进行测量和研究，我们将在章节 5.3.2 中展示与此相关的更多的研究结果。相比集体辐射的“转向”，集体辐射的“关闭”可能是更加重要的，因为此时原子样品进入到了一个“亚辐射”的状态——相位失配的自旋波态。这种自旋波态在晶格系统中有着非常重要的应用前景^[9-12]。它同时也在随机气体中表现出有趣的微观动力学（见章节 5.4）。另外，上述集体辐射的“关闭”操作是可逆的，这意味着在此操作下量子态的相干性是被保留的，下面我们将展示相关的实验结果。

○ 集体辐射的“唤醒”

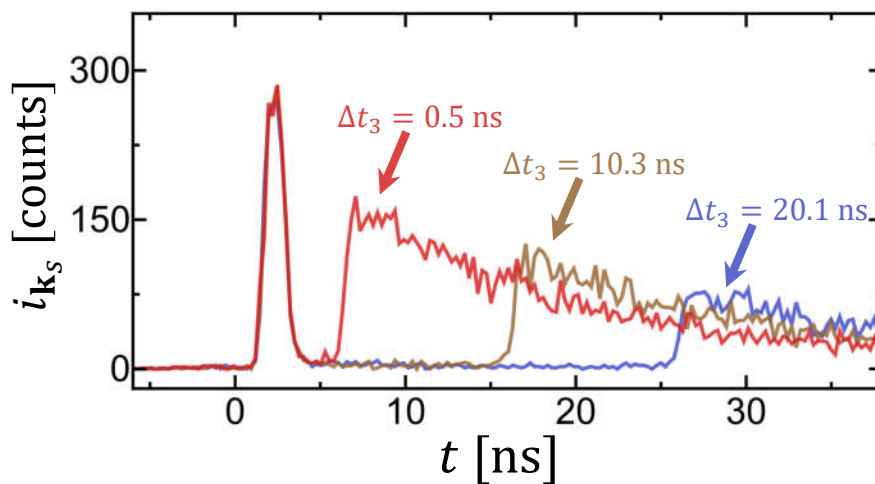


图 4.4 在原子样品中实施“自旋波激发 $-\hat{U}_c(-2\mathbf{k}_c) - \hat{U}_c(-2\mathbf{k}_c) - \hat{U}_c(+2\mathbf{k}_c)$ ”（见图 4.2(a)）的脉冲序列并收集整个过程中 \mathbf{k}_s 方向的荧光信号 $i_{\mathbf{k}_s}$ 。在该实验中， $\Delta t_1 = 0.2$ ns 和 $\Delta t_2 = 0.8$ ns 是固定不变的。对于图中的三条曲线， $\hat{U}_c(+2\mathbf{k}_c)$ 操作的延迟时间分别为 $\Delta t_3 = 0.5, 10.3, 20.1$ ns，其余的实验条件一致。在此实验中， $\tau_p = 5$ ns，集体辐射的“拍频”被有效的抑制了，详见正文。

现在，我们利用图 4.1(b) 所示的光路设计对原子样品实施“自旋波激发 $-\hat{U}_c(-2\mathbf{k}_c) - \hat{U}_c(-2\mathbf{k}_c) - \hat{U}_c(+2\mathbf{k}_c)$ ”的脉冲序列，实验结果如图 4.4 所示。这里我们所使用的 $D1$ 控制脉冲的参数为 $\Omega_0 \approx 2\pi \times 4$ GHz， $\Delta_0 \approx 2\pi \times 4$ GHz， $\tau_c = 0.5$ ns， $\tau_d = 1.2$ ns。并且，我们将激发光的脉冲时长增加到 $\tau_p = 5$ ns，更长的 τ_p 意味着激发脉冲有更窄的带宽（激发脉冲的中心频率与 $5^2S_{1/2}F = 2 - 5^2P_{3/2}F' = 3$ 跃迁共振），这使得 $5^2S_{1/2}F = 2 - 5^2P_{3/2}F' = 2$ 跃迁的激发可以被有效地抑制，

与此同时集体辐射信号中的拍频的振幅也会被抑制（可以比较图 4.3 和图 4.4 的结果）。在图 4.4 中，当原子样品的集体辐射被“关闭”后，我们在实验上施加了 $\hat{U}_c(+2\mathbf{k}_c)$ 操作，此时自旋波的波矢重新变为满足相位匹配条件的 \mathbf{k}_s （对应图 4.2(a) 中的时间区间“III”），而被“关闭”的超辐射重新被“唤醒”了。

从图 4.4 可以发现，随着 Δt_3 的增加，集体辐射被“唤醒”的强度在衰减，并且其衰减的速度比集体辐射本身的衰减速度要慢。举个例子，图 4.4 中的“蓝线”代表集体辐射在 $\Delta t_3 = 20.1 \text{ ns}$ 时被“唤醒”，它的荧光强度在上升到最大时明显已经超过了“红线”（ $\Delta t_3 = 0.5 \text{ ns}$ ）的荧光强度。通过拟合发现，图 4.4 中集体辐射的衰减寿命为 $\tau_N = 14.6 \text{ ns}$ ，而集体辐射被“唤醒”的强度随着 Δt_3 的衰减寿命为 $\tau'_N \sim 26 \text{ ns}$ ，几乎为单原子的自发辐射寿命（ $\tau_{D2} = 26.2 \text{ ns}$ ）。这里其实蕴含着自旋波近场弛豫的重要物理，我们将在章节 5.4 中展开讨论。

值得一提的是，若我们关注图 4.4 中的“红线”（ $\Delta t_3 = 0.5 \text{ ns}$ ），可以发现集体辐射在被“唤醒”之后它的强度为集体辐射在被“关闭”前的 $\sim 58\%$ ，而其中经历了两次 \hat{U}_c 操作（我们假设它们的效率一致），由此可以求出我们实验中单次 \hat{U}_c 操作的效率为 $75(5)\%$ （ $\sim \sqrt{58}\%$ ）。对自旋波调控效率的更仔细的分析在章节 4.3 中。

○ 自旋波调控与荧光测量的循环实验

图 4.3 和图 4.4 中的荧光信号其实是大量重复实验的结果。在将冷原子样品从光偶极阱中释放到自由空间之前，我们会将冷原子样品预制备到 $5^2S_{1/2}F = 2$ 的能级上（利用反抽运光，详见章节 3.3.7）。当冷原子样品被释放到自由空间中后，我们会对其进行 N_{rep} 次循环的实验以增强总的荧光信号量。这 N_{rep} 次实验的参数可以不同（比如 Δt_3 的值不同），这取决于我们想要进行哪些实验。由于每一个光子到达探测器的时间都被记录下来，最终我们会对所有实验循环中测到的光子信号按照实验的类别进行分组，这些经过分组的光子信号将形成不同实验时序所对应的总的荧光信号，比如图 4.3 中的曲线 (i) – (xi)。在 N_{rep} 次循环的每一个循环中，我们首先会对原子样品施加自旋波激发与调控的脉冲序列（比如图 4.2(a) 所示的序列），并同时触发光子的探测与计数。然后在 $\sim 100 \text{ ns}$ （原子的辐射荧光在这段时间内会基本衰减完全）之后，我们会利用 $D1$ 线的任意波形激光系统产生 $5^2S_{1/2}F = 1 - 5^2P_{1/2}F' = 2$ 跃迁的共振脉冲，将自旋波调控过程中衰减到 $5^2S_{1/2}F = 1$ 能级的原子抽运回 $5^2S_{1/2}F = 2$ 的能级上。该共振脉冲与原子相互作用的时间长度最长为 200 ns ，并且其光强约为控制脉冲的峰值光强的千分之一，这样的脉冲可以将 $5^2S_{1/2}F = 1$ 能级上的原子以超过 95% 的比例抽运回 $5^2S_{1/2}F = 2$ 的能级上。抽运过程完成后，将进入下一个循环并开始进行新的自旋波实验。在实验中，我们常用的循环周期为 $T_{\text{rep}} \sim 700 \text{ ns}$ ，并且循环数常设为 $N_{\text{rep}} = 72$ 。在经历了 $N_{\text{rep}} = 72$ 次循环后（经历的总时长为 $\sim 50 \mu\text{s}$ ），冷原子样品的加热膨胀已经比较明显（相关的测量见章节 5.3.1），不

适合继续实验。这时我们会重新开始冷原子样品的制备（见章节 3.3.7），并开始新的“ N_{rep} -循环”。记冷原子样品的制备次数为 N_e ，那么一共进行的自旋波实验次数为 $N_{\text{exp}} = N_e N_{\text{rep}}$ ，而某一类实验进行的总次数为 $N_{\text{exp}} = \eta_g N_e N_{\text{rep}}$ ，其中 η_g 为分组因子，即该类实验占总实验次数的比例。实验中，我们会控制自旋波激发光的光强，一方面保证原子的自旋波激发是在弱激发的区域中进行，另一方面保证在“ N_{rep} -循环”的每一个循环中每一个单光子探测器（一共两个）探测到的平均光子数总是小于 0.25。这样可以避免单光子探测器发生饱和²。对于图 4.3 中的每一条荧光信号曲线， $N_{\text{exp}} = 70000$ ；对于图 4.4 中的每一条荧光信号曲线， $N_{\text{exp}} = 50000$ 。

4.3 自旋波调控效率的标定与优化

4.3.1 自旋波调控的加速测量

在章节 4.2.2 所展示的实验中，我们通过 $D1$ 跃迁的电偶极调控对 $D2$ 跃迁的自旋波态实现了 $\hat{U}_c(\pm 2\mathbf{k}_c)$ 操作（见式 (3.11)），其结果为自旋波的波矢发生了变化，这最终影响了原子的集体辐射行为。从章节 3.2.2 和章节 3.2.3 的讨论可以知道，我们对原子进行 $\hat{U}_c(\pm 2\mathbf{k}_c)$ 操作，不仅会改变 $D2$ 跃迁的自旋波波矢，还会改变处在基态的原子的动量。在本章节的实验中，我们对 $\hat{U}_c(-2\mathbf{k}_c)$ 操作导致的原子加速进行测量，该测量会帮助我们分析和优化自旋波的调控效率（见章节 4.3.3）。

图 4.5(b) 展示了我们的实验设计。我们采用图 4.1(a) 的光路设计对原子进行 $\hat{U}_c(-2\mathbf{k}_c)$ 操作——让一个啁啾脉冲先后沿 $+\mathbf{k}_c$ 、 $-\mathbf{k}_c$ 方向对原子进行两次布居翻转。我们知道，一个理想的 $\hat{U}_c(-2\mathbf{k}_c)$ 操作（式 (3.10)）会让基态原子获得 $2\hbar\mathbf{k}_c$ 的动量增量（见章节 3.2.2）。然而，实际情况常常是非理想的，为了对我们的自旋波调控实验进行更深入的分析，我们改变用以实现 $\hat{U}_c(-2\mathbf{k}_c)$ 操作的啁啾脉冲的参数（包括 Ω_0 和 Δ_0 ）并测量不同参数下原子的动量增量。在实验中，我们重复制备冷原子样品并对它们施加不同参数的 $\hat{U}_c(-2\mathbf{k}_c)$ 操作。操作完成后，原子样品会在自由空间中“飞行”，接着我们通过冷原子吸收成像的方法测量原子的位置并以此推算出原子样品在 $\hat{U}_c(-2\mathbf{k}_c)$ 操作后的动量增量（或者速度增量）。

对于 ^{87}Rb 而言， $\hbar\mathbf{k}_c$ 的动量对应的运动速率为 $v_r = 5.78 \text{ mm/s}$ ^[4]。在实验中，为了放大某一特定参数的 $\hat{U}_c(-2\mathbf{k}_c)$ 操作对原子的加速效应以提高测量精度，我们对原子样品重复施加 5 次相同的 $\hat{U}_c(-2\mathbf{k}_c)$ 操作，并且其中的间隔时间 $T_{\text{rep}} = 440 \text{ ns}$ 远大于原子的自发辐射寿命，这样可以保证 5 次 $\hat{U}_c(-2\mathbf{k}_c)$ 操作之

²通常，单光子探测器存在一个“死亡时间”。当它探测到一个光子后，在“死亡时间”以内是无法探测第二个光子的，这会导致信号的失真。为避免这种情况，应尽可能降低单光子探测器探测到光子的概率。对于本文的实验，“死亡时间”为 24 ns。

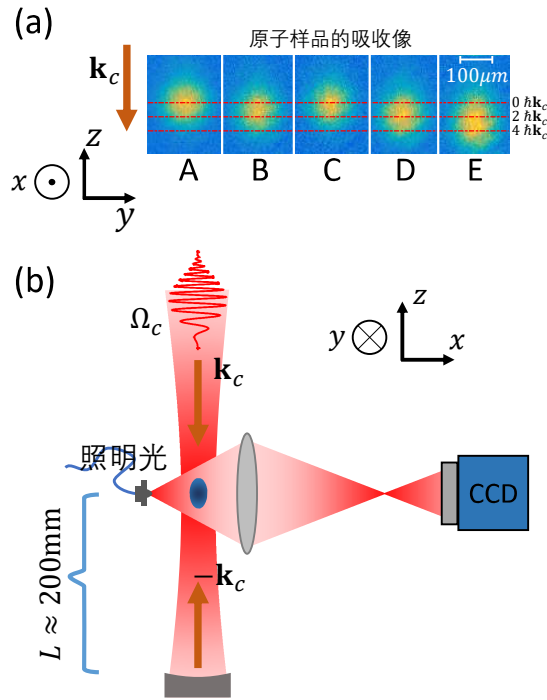


图 4.5 (a) 用吸收成像的方法（具体细节见本章末尾）对经过 $T_{\text{tof}} = 400 \mu\text{s}$ 自由飞行后的原子的位置进行测量，可以推算出其动量。在图 A – D 中，原子样品经过一对啁啾脉冲的加速往 $-z$ 方向运动，其中啁啾脉冲的参数分别为： $\Omega_0 = 0 \text{ GHz}$, $\Delta_0 = 2\pi \times 0.1 \text{ GHz}$; $\Omega_0 = 2\pi \times 0.8 \text{ GHz}$, $\Delta_0 = 2\pi \times 0.1 \text{ GHz}$; $\Omega_0 = 2\pi \times 1.9 \text{ GHz}$, $\Delta_0 = 2\pi \times 0.1 \text{ GHz}$; $\Omega_0 = 2\pi \times 2.7 \text{ GHz}$, $\Delta_0 = 2\pi \times 3.4 \text{ GHz}$ 。在图 E 中，原子样品经过连续两对啁啾脉冲的加速，其中啁啾脉冲的参数与图 D 的相同。这里， $\tau_c = 0.9 \text{ ns}$, $\tau_d = 1.36 \text{ ns}$ 。(b) 加速光路与成像光路的示意图，其中物镜的数值孔径为 $\text{NA} \approx 0.3$ ，原子样品的像由 CCD 照相机记录。

间的相互独立性。之后，经过 $T_{\text{tof}} = 400 \mu\text{s}$ 的自由飞行时间，动量（或速度）不同的原子样品会处在不同的位置上，这时我们在 x 方向（已在图 4.5 中标明）上对原子施加 $5^2S_{1/2}F = 2 - 5^2P_{3/2}F' = 3$ 跃迁的共振照明光，照明的时长为 $\tau_{\text{probe}} = 20 \mu\text{s}$ 。利用原子对共振光的吸收，我们可以测出原子的光学深度分布 $\text{OD}_x(y, z)$ ($\text{OD}_x(y, z)$ 正比于原子样品的二维密度分布，具体细节见章节 5.3.1)，并通过拟合的方法求出 $\text{OD}_x(y, z)$ 的 (z 方向) 中心位置。最终，我们通过比较有、无 $\hat{U}_c(-2\mathbf{k}_c)$ 操作下原子样品在自由飞行后的位置（飞行时间已知），可以求得平均每次 $\hat{U}_c(-2\mathbf{k}_c)$ 操作对原子样品产生的动量增量 ΔP ，实验的结果见图 4.6。

在不同的 $\sqrt{s_1}$ 和 Δ_0 的参数下，原子在 $\hat{U}_c(-2\mathbf{k}_c)$ 操作后的动量增量的测量结果如图 4.6 所示。 $s_1 \equiv I_{c,0}/I_{s1}$, $I_{s1} = 4.49 \text{ mW/cm}^2$ 为 $D1$ 跃迁的饱和光强^[4]。 $I_{c,0} \propto |\Omega_0|^2$ 为 $D1$ 啁啾脉冲的（时间和空间上的）峰值光强。值得注意的

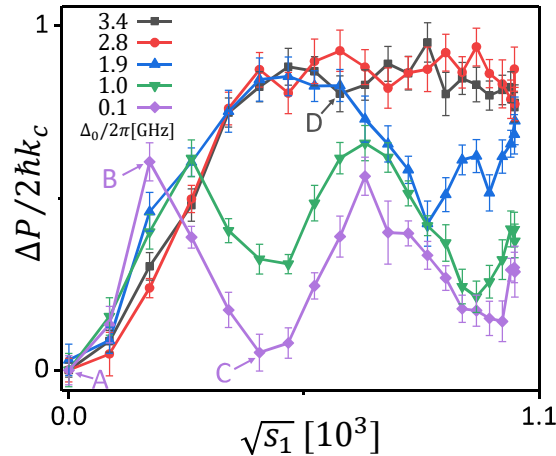


图 4.6 不同的 $\sqrt{s_1}$ 和 Δ_0 的参数下，自旋波的 $\mathbf{k} \rightarrow \mathbf{k} - 2\mathbf{k}_c$ 操作过程中对原子产生的动量增量。图中的 A–D 四个数据点对应图 4.5(a) 中 A–D 四张成像图的测量结果。这里， $\tau_c = 0.9 \text{ ns}$ ， $\tau_d = 1.36 \text{ ns}$ 。 s_1 的定义见正文。

是，图 4.6 中 $\Delta_0 = 2\pi \times 0.1 \text{ GHz}$ 的数据点随着 $\sqrt{s_1}$ 的增加在振荡，并且振荡的幅度在衰减，这是由于控制光的光强在空间上的不均匀性所导致的，在章节 4.3.3 中我们会对此进行分析。当 Δ_0 增大时，动量增量随 $\sqrt{s_1}$ 的振荡幅度逐渐减小，并在 Δ_0 较大时形成了一个“平台区”（可以与图 2.5 进行比较），在该区域中 $\hat{U}_c(-2\mathbf{k}_c)$ 操作对原子的加速效果相对较好，这也意味着 $\hat{U}_c(-2\mathbf{k}_c)$ 操作的保真度较高。“平台区”是容错调控的体现。在图 4.6 中容错调控的区域，一个 $\hat{U}_c(-2\mathbf{k}_c)$ 操作产生的原子动量增量可达 $\Delta P = (89 \pm 4)\% \times 2\hbar k_c$ 。考虑到啁啾脉冲的时长仅为 $\tau_c = 0.9 \text{ ns}$ ，在 $\hat{U}_c(-2\mathbf{k}_c)$ 操作的过程中原子的平均受力达到了 $\sim \hbar k_c / \text{ns}$ ，它约为一百万倍的重力。在章节 4.3.3 中，我们将会对图 4.6 的结果进行数值模拟和进一步的分析。

4.3.2 基于“动量晶格”的理论模型

本文的自旋波激发与调控实验的过程一共涉及到了 $D1$ 、 $D2$ 跃迁的 32 个超精细能级（见章节 3.3.1）。即使仅考虑三能级的情况（见章节 3.2.3），对 N 个原子的严格数值求解也需要在 3^N 维的希尔伯特空间中进行（其多体主方程形式类似式 (2.64)），这在含有上千个原子的系统中是几乎不可能的³。注意到，在 $D1$ 跃迁的电偶极调控中，原子布居可以发生完全的翻转，这一过程并不能用章节 2.3.3 中所提到的弱激发条件下的耦合偶极子模型（参考式 (2.73)）来描述。

在本章节中，我们将忽略原子与原子之间的偶极-偶极相互作用，并在动量空间中求解系统的主方程（下面会对此进行介绍），以此来分析我们的自旋波调控过程。该模型会包含 ^{87}Rb 的 $D1$ 、 $D2$ 跃迁的所有 32 个塞曼子能级，并且会

³实际上， 3^{1000} 已远远大于目前所估算的宇宙粒子总数： $\sim 3^{160}$ 。

包含这些塞曼子能级的不同的动量态，且不限于弱激发。实际上，当我们的关注点仅为自旋波的 $\hat{U}_c(\pm 2\mathbf{k}_c)$ 操作时，忽略原子之间的相互作用会是一个合理的近似，因为在我们的实验条件下原子间的相互作用难以在原子与亚纳秒脉冲的相互作用过程中积累出明显的效应，关于这一点我们会在本章节的末尾进行更多的讨论。尽管原子间的相互作用难以在 $\hat{U}_c(\pm 2\mathbf{k}_c)$ 操作的 ~ 1 ns 时间里产生影响，但是当自旋波在自由空间中进行长时间 ($\sim 1/\Gamma_{D2} = 26.2$ ns) 的演化时，相互作用往往不能被忽略。

本章节的理论模型将会被用来研究和分析自旋波的调控效率，即 $\hat{U}_c(\pm 2\mathbf{k}_c)$ 操作的效率，但是该模型无法预言“超辐射”等多原子的集体行为（见章节 4.3.3）。而在研究 $D2$ 跃迁的弱激发自旋波动力学时，我们会常采用耦合偶极子模型（参考式 (2.73)）以将偶极-偶极相互作用纳入考虑，详见章节 5.3.2。

我们不妨先将 ^{87}Rb 的基态、 $D1$ 线的激发态以及 $D2$ 线的激发态均简化为只有一个（超精细）子能级（参考图 3.4），并暂时将它们分别记为 $|g\rangle$ 、 $|a\rangle$ 和 $|e\rangle$ 。考虑我们的自旋波实验情况，在忽略原子间相互作用的情况下 N 个原子的有效哈密顿量可写为（可参考式 2.63）：

$$H'_{\text{eff}} = \sum_{j=1}^N (H_a^j + H_e^j - i\hbar \frac{\Gamma_{D2}}{2} |e_j\rangle\langle e_j| - i\hbar \frac{\Gamma_{D1}}{2} |a_j\rangle\langle a_j|) \quad (4.1)$$

其中，第 j 个原子的 H_a^j 和 H_e^j 可写为

$$H_a^j = -\hbar\Delta_a |a_j\rangle\langle a_j| + \frac{\hbar}{2} (\eta(\mathbf{r}_j)\Omega_c(t)e^{-i\varphi_c(\mathbf{r}_j,t)}\sigma_{c,j}^+ + \text{H.c.}) \quad (4.2)$$

$$H_e^j = -\hbar\Delta_e |e_j\rangle\langle e_j| + \frac{\hbar}{2} (\Omega_p(t)e^{-i\varphi_p(\mathbf{r}_j)}\sigma_j^+ + \text{H.c.}). \quad (4.3)$$

\mathbf{r}_j 为第 j 个原子的空间坐标。这里有： $\sigma_{c,j}^+ = |a_j\rangle\langle g_j|$ 以及 $\sigma_j^+ = |e_j\rangle\langle g_j|$ 。在式 (4.2) 中，与原子耦合的光脉冲为我们一直所讨论的啁啾脉冲（可以参考图 4.2(a) 或式 3.26），与之前的写法不同的是，这里我们选择了 Δ_a 不含时的旋转参考系（见章节 2.2.2），啁啾脉冲的瞬时失谐量可以利用相位的导数来求出： $\Delta_c(t) = \dot{\varphi}_c$ 。式 (4.2) 中的 $\eta(\mathbf{r}_j) \leq 1$ 是一个与空间位置相关的因子，我们用它来描述聚焦的控制光的的空间光强的不均匀性。 Ω_p 是 $D2$ 激发光的 Rabi 频率，并且满足 $\int_{-\tau_p}^0 \Omega_p dt \ll 1$ ， $\varphi_p(\mathbf{r}_j) = -\mathbf{k}_p \cdot \mathbf{r}_j$ 是激发光的光学相位。同样地， $\varphi_c(\mathbf{r}_j, t)$ 中与空间相关的部分为 $-\mathbf{k}_c \cdot \mathbf{r}_j$ 。在动量空间（或者“ \mathbf{k} 空间”）中，波函数基矢可以定义为： $|g, \mathbf{k}\rangle \equiv \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_j e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}_j} |g_j\rangle$ 、 $|e, \mathbf{k}\rangle \equiv \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_j e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}_j} |e_j\rangle$ 、 $|a, \mathbf{k}\rangle \equiv \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_j e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}_j} |a_j\rangle$ 。现在，不妨在模型中引入 ^{87}Rb 的塞曼子能级，具体做法是将 g 、 e 、 a 分别视为 $5S_{1/2}$ 、 $5P_{3/2}$ 、 $5P_{1/2}$ 态的子能级的指标。在动量空间的基矢下，式 (4.1) 中的有效哈密顿量可以写成 N 个“单粒子”的有效哈密顿量的求

和, 即 $H_{\text{eff}} = \sum_{j=1}^N H_{\text{eff}}^{(s)}$ 。对于章节 4.2.2 所展示的自旋波实验, $H_{\text{eff}}^{(s)}$ 的可写为

$$H_{\text{eff}}^{(s)} = H_p + H_{c1} + H_{c2} \quad (4.4)$$

其中, H_p 、 H_{c1} 、 H_{c2} 分别为

$$\begin{aligned} H_p = & \hbar \sum_{g,\mathbf{k}} \Delta_g |g, \mathbf{k}\rangle \langle g, \mathbf{k}| \\ & + \hbar \sum_{e,\mathbf{k}} (-\Delta_e - i\Gamma_{D2}/2) |e, \mathbf{k}\rangle \langle e, \mathbf{k}| \\ & + \hbar \sum_{a,\mathbf{k}} (-\Delta_a - i\Gamma_{D1}/2) |a, \mathbf{k}\rangle \langle a, \mathbf{k}| \\ & + \hbar \sum_{g,e,\mathbf{k}} \left(\frac{1}{2} \Omega_p(t + \tau_p) c_{eg}^y |e, \mathbf{k} + \mathbf{k}_p\rangle \langle g, \mathbf{k}| + \text{H.c.} \right) \end{aligned} \quad (4.5)$$

$$\begin{aligned} H_{c1} = & -\hbar \sum_{a,\mathbf{k}} \Delta_c(t - t_1) |a, \mathbf{k}\rangle \langle a, \mathbf{k}| \\ & + \hbar \sum_{g,a,\mathbf{k}} \left(\frac{1}{2} \eta_1 \Omega_{c1}(t - t_1) c_{ag}^x |a, \mathbf{k} + \mathbf{k}_c\rangle \langle g, \mathbf{k}| + \text{H.c.} \right) \end{aligned} \quad (4.6)$$

$$\begin{aligned} H_{c2} = & -\hbar \sum_{a,\mathbf{k}} \Delta_c(t - t_2) |a, \mathbf{k}\rangle \langle a, \mathbf{k}| \\ & + \hbar \sum_{g,a,\mathbf{k}} \left(\frac{1}{2} \eta_2 \Omega_{c2}(t - t_2) c_{ag}^x |a, \mathbf{k} - \mathbf{k}_c\rangle \langle g, \mathbf{k}| + \text{H.c.} \right) \end{aligned} \quad (4.7)$$

上面的哈密顿量中已包含 $D1$ 、 $D2$ 跃迁的所有超精细能级, 其中 g 、 e 、 a 分别为 $5S_{1/2}$ 、 $5P_{3/2}$ 、 $5P_{1/2}$ 态对应的子能级指标。在上面的式子中, c_{ag}^x 和 c_{eg}^y 分别为 x 方向偏振的 $D1$ 线脉冲和 y 方向偏振的 $D2$ 线脉冲与原子的耦合系数, 其具体值可由 Clebsch-Gorden 系数直接导出。Clebsch-Gorden 系数的值可参考文献^[4]。考虑到光学延迟系统 (见图 4.1) 中的成像球差, 我们不假定波矢为 $+\mathbf{k}_c$ 、 $-\mathbf{k}_c$ 的控制脉冲有相同的聚焦半径, 式中的 η_1 、 η_2 分别为它们的空间光强因子。上面的含时哈密顿量实际上描述的是图 4.2(a) 所示的过程, $D2$ 线的激发脉冲在时间区间 $t \in [-\tau_p, 0]$ 中, 而 $+\mathbf{k}_c$ 、 $-\mathbf{k}_c$ 方向的控制脉冲分别开始于 $t_1 = \Delta t_1$ 和 $t_2 = \Delta t_1 + \tau_d$ 时刻。现在, 我们可以利用上面的有效哈密顿量写出描述动量空间中“单粒子”密度矩阵 $\rho^{(s)}$ 演化的主方程 (可参考章节 2.2.4):

$$\begin{aligned} \dot{\rho}^{(s)}(t) = & \frac{1}{i} (H_{\text{eff}}^{(s)} \rho^{(s)} - \rho^{(s)} H_{\text{eff}}^{(s)\dagger}) \\ & + \sum_{\alpha} (\hat{C}_{D1}^{\alpha} \rho^{(s)} \hat{C}_{D1}^{\alpha\dagger} + \hat{C}_{D2}^{\alpha} \rho^{(s)} \hat{C}_{D2}^{\alpha\dagger}) \end{aligned} \quad (4.8)$$

其中, 坍缩算符 \hat{C}_{D1}^{α} 、 \hat{C}_{D2}^{α} 的定义为

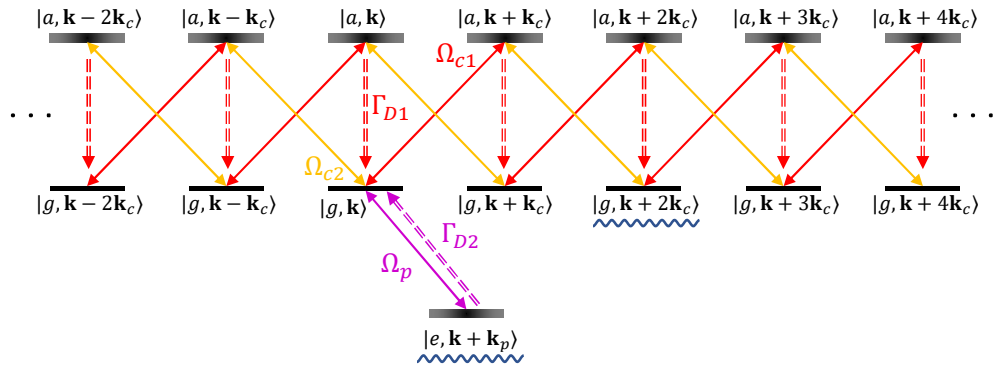


图 4.7 “动量晶格”示意图。其中红色实线和橙色实线代表不同方向的 $D1$ 脉冲与原子的耦合，紫色实线代表 $D2$ 激发脉冲与原子的耦合。图中的虚线表示原子的自发辐射。值得注意的是， $|e, \mathbf{k} + \mathbf{k}_p\rangle$ 和 $|g, \mathbf{k} + 2\mathbf{k}_c\rangle$ 态之间的相干性（或者说电偶极矩）与原子样品在 $\mathbf{k}_s = \mathbf{k}_p - 2\mathbf{k}_c$ 方向上的辐射相关。

$$\begin{aligned}\hat{C}_{D1}^\alpha &= \sum_{a,g,\mathbf{k}} \sqrt{\Gamma_{D1}} c_{ag}^\alpha |g, \mathbf{k}\rangle \langle a, \mathbf{k}| \\ \hat{C}_{D2}^\alpha &= \sum_{e,g,\mathbf{k}} \sqrt{\Gamma_{D2}} c_{eg}^\alpha |g, \mathbf{k}\rangle \langle e, \mathbf{k} + \mathbf{k}_p|\end{aligned}\quad (4.9)$$

α 是表示偏振的指标。在动量空间中，原子与光场的耦合还可以用“动量晶格”来表示，如图 4.7 所示。这里需要说明的是，在原子发生自发辐射时，由于所辐射的光子的空间方向是随机的，原子有可能获得不同方向的反冲动量，但在图 4.7 中， $|a, \mathbf{k}\rangle$ 态的原子在自发辐射过程中只往相同动量的基态坍塌。这种处理方法可以在很大程度上减少我们所需考虑的动量态以简化计算，其合理性来源于：在原子自发辐射过程中不同方向的反冲动量的期待值为 0。对于 $D2$ 线的激发态，为简化计算，我们只考虑一个动量态，即 $|e, \mathbf{k} + \mathbf{k}_p\rangle$ ，并且它的自发辐射只指向 $|g, \mathbf{k}\rangle$ 态。可以验证，这样的处理不会影响最终我们对原子电偶极相干性的计算结果，其原因是： $D2$ 的激发脉冲总是最先作用原子的，并且它在时序中只出现一次，它只能激发动量差为 \mathbf{k}_p 的动量态之间的电偶极相干性，因此 $|g, \mathbf{k}\rangle - |e, \mathbf{k} + \mathbf{k}_p\rangle$ 子空间足以用来描述 $D2$ 跃迁的激发过程。

通过式 (4.8) 我们可以求出“单粒子”密度矩阵 $\rho^{(s)}(t)$ 的含时演化。对于无相互作用的多体系统，其密度矩阵的演化可由 $\rho^{(s)}(t)$ 直接求得，即 $\rho(t) = (\rho^{(s)}(t))^{\otimes N}$ ，而系统的观测量可通过 $\langle \hat{O} \rangle = \text{Tr}(\rho(t)\hat{O})$ 来求出（见式 (2.37)）。在自旋波的实验中，我们总是利用反抽运光将原子的初态制备在 $5S_{1/2}F = 2$ 的能级上（见章节 4.2.2），并认为原子没有极化。在式 (4.8) 数值求解中，原子初态

设为

$$\rho^{(s,i)} = \frac{1}{5} \sum_{g=1}^5 |g, \mathbf{k}\rangle \langle g, \mathbf{k}| \quad (4.10)$$

式中 $|g\rangle$ 求和的范围为 $5S_{1/2}F = 2$ 的五个塞曼子能级。我们在求解 $\rho^{(s)}(t)$ 的同时计算不同动量态之间的偶极相干，它们包括： $\mathbf{d}(\mathbf{k}_s) = \text{Tr}(\rho^{(s)}(t)\mathbf{d}^-(\mathbf{k}_s))$ 、 $\mathbf{d}(\mathbf{k}_p) = \text{Tr}(\rho^{(s)}(t)\mathbf{d}^-(\mathbf{k}_p))$ 、 $\mathbf{d}(\mathbf{k}'_s) = \text{Tr}(\rho^{(s)}(t)\mathbf{d}^-(\mathbf{k}'_s))$ 。其中，相关的算符的定义为： $\mathbf{d}^-(\mathbf{k}_s) \equiv \mathbf{e}_y \sum_{g,e} c_{eg}^y |g, \mathbf{k} + 2\mathbf{k}_c\rangle \langle e, \mathbf{k} + \mathbf{k}_p|$ 、 $\mathbf{d}^-(\mathbf{k}_p) \equiv \mathbf{e}_y \sum_{g,e} c_{eg}^y |g, \mathbf{k}\rangle \langle e, \mathbf{k} + \mathbf{k}_p|$ 以及 $\mathbf{d}^-(\mathbf{k}'_s) \equiv \mathbf{e}_y \sum_{g,e} c_{eg}^y |g, \mathbf{k} + 4\mathbf{k}_c\rangle \langle e, \mathbf{k} + \mathbf{k}_p|$ 。从上面动量空间的波函数基矢的定义不难得知，当 $N \gg 1$ 时， $|\mathbf{d}(\mathbf{k}_s)|^2$ 正比于原子在波矢为 \mathbf{k}_s 的自旋波态上的布居（ $|\mathbf{d}(\mathbf{k}_p)|^2$ 和 $|\mathbf{d}(\mathbf{k}'_s)|^2$ 也有类似的结论），也就是说，它正比于原子样品在 \mathbf{k}_s 方向的集体辐射的光强。因此，通过计算动量空间的“电偶极矩” $\{\mathbf{d}(\mathbf{k}_p), \mathbf{d}(\mathbf{k}_s), \mathbf{d}(\mathbf{k}'_s), \dots\}$ ，我们可以计算出无相互作用的原子样品的集体辐射的动力学演化，并且可以将计算的结果与实验的测量结果作比较。另外，若想计算 $D1$ 跃迁电偶极调控的加速效应（章节 4.3.1），可将 $D2$ 线激发脉冲的 Rabi 频率 Ω_p 设为 0，那么，原子在 $D1$ 脉冲的作用下其动量增量可由下面的式子给出：

$$\begin{aligned} \Delta P(t) = & \hbar \mathbf{k}_c \sum_{g,n} n \langle g, \mathbf{k} + n\mathbf{k}_c | \rho^{(s)}(t) | g, \mathbf{k} + n\mathbf{k}_c \rangle \\ & + \hbar \mathbf{k}_c \sum_{a,n} n \langle a, \mathbf{k} + n\mathbf{k}_c | \rho^{(s)}(t) | a, \mathbf{k} + n\mathbf{k}_c \rangle \end{aligned} \quad (4.11)$$

在文献^[13]中有类似的讨论。

为了更符合实验的情况，我们在实际计算中会考虑 $D1$ 跃迁控制脉冲的光强在空间中的不均匀性。具体地来说，我们认为 $\pm\mathbf{k}_c$ 方向的 $D1$ 控制光在空间上是高斯光束（它们聚焦的光斑半径可以不一样），然后我们根据原子样品的空间分布对 $\eta_{1,2}$ 进行多次采样，在每次采样中我们利用式 (4.8) 求出对应的密度矩阵 $\rho_\eta^{(s)}(t)$ ，最终物理量的计算结果是这些采样的平均，例如 $\langle |\mathbf{d}(\mathbf{k}_s)|^2 \rangle_\eta$ 、 $\langle \Delta P \rangle_\eta$ 。更具体的讨论在章节 4.3.3 中。

注意到“动量晶格”的希尔伯特空间是无穷维的，图 4.7 中所展示的是参考波矢为 \mathbf{k} 的“动量晶格”，而 \mathbf{k} 的选择是有无穷多个的，并且对于每一个 \mathbf{k} ，其“格点”数也是无穷个的。考虑到原子间没有相互作用，原子样品的空间密度分布中不同 \mathbf{k} 成分相互独立的，因此在实际计算中我们只需考虑其中一个波矢 \mathbf{k} 所对应的“动量晶格”即可。为了让数值模拟可以有效进行，我们还会对“晶格”的长度进行截断：我们只考虑 $\mathbf{k} + n\mathbf{k}_c$ 的“格点”，其中 $|n| < 10$ 。截断长度的合理性可以通过比较不同截断长度下的模拟结果来验证。

○ 偶极-偶极相互作用导致的自旋波调控误差

这里，我们简要讨论一下偶极-偶极相互作用对自旋波调控的影响。为简化

讨论，我们现在不考虑超精细结构的子能级，将系统简化为三能级系统，并沿用此前量子态的记号 $|g\rangle$ 、 $|e\rangle$ 、 $|a\rangle$ （见图 3.4）。参考章节 2.3.3 中的论述，我们可以将系统中第 j 个原子和第 l 个原子的相互作用势写为：

$$\begin{aligned} \hat{V}_{\text{DD}}^{j,l} = & -\frac{k_p^2}{\epsilon_0} \mathbf{d}_{eg}^* \cdot \mathbf{G}(\mathbf{r}_j - \mathbf{r}_l, \omega_{eg}) \cdot \mathbf{d}_{eg} \sigma_j^+ \sigma_l^- \\ & -\frac{k_c^2}{\epsilon_0} \mathbf{d}_{ag}^* \cdot \mathbf{G}(\mathbf{r}_j - \mathbf{r}_l, \omega_{ag}) \cdot \mathbf{d}_{ag} \sigma_{c,j}^+ \sigma_{c,l}^- \end{aligned} \quad (4.12)$$

其中，算符的定义参考式 (4.2) 和式 (4.3)，格林函数的定义见式 (2.48)。 \mathbf{d}_{ag} 、 \mathbf{d}_{eg} 分别为 $|g\rangle - |a\rangle$ 、 $|g\rangle - |e\rangle$ 跃迁的矩阵元（参考式 (2.2)），而 ω_{ag} 、 ω_{eg} 分别为它们的跃迁（圆）频率，并且有 $\omega_{ag} = ck_c$ 、 $\omega_{eg} = ck_p$ 。式 (4.12) 中的第一行代表了 $D2$ 跃迁的偶极-偶极相互作用，而第二行代表了 $D1$ 跃迁的偶极-偶极相互作用。在章节 3.2.3 中我们讨论到，本文自旋波的 $U_c(\Delta\mathbf{k})$ 操作可以理解为在原子系统的基态波函数上写入几何相位 $\gamma = \pi - \Delta\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}$ ，而原子间的偶极-偶极相互作用会导致写入波函数的几何相位存在误差 $\delta\gamma$ ，从而引起自旋波调控的误差，下面对此进行讨论。

首先分析 $D2$ 跃迁。在自旋波调控的实验中， $D2$ 跃迁总是处于弱激发的状态，而 $D1$ 控制光会导致原子在 $|g\rangle$ 、 $|a\rangle$ 态上的布居发生变化，且不会影响原子在 $|e\rangle$ 态上的布居。当处在基态 $|g\rangle$ 的原子完全没有被 $D1$ 控制光翻转到 $|a\rangle$ 态时， $D2$ 跃迁的电偶极矩的期待值是最大的，此时 $D2$ 跃迁的偶极-偶极相互作用的强度也最大的。若以最大的相互作用强度进行估算，那么其导致的 U_c 操作写入波函数的几何相位的误差为 $\delta\gamma_e \sim \tau_c \sqrt{\langle \delta_{N,eg} \rangle^2 + \langle \Gamma_{N,eg} \rangle^2 / 4}$ 。其中 $\delta_{N,eg}$ 、 $\gamma_{N,eg}$ 分别为原子系统在弱激发（或者单激发）时的集体 Lamb 频移^[14-15]和集体自发辐射率^[16]。在光学深度和空间密度都不太大的原子样品（例如本文所使用的原子样品）中， $\sqrt{\langle \delta_{N,eg} \rangle^2 + \langle \Gamma_{N,eg} \rangle^2 / 4}$ 的大小一般为 $\sim \Gamma_{D2}$ 的级别，当 $\tau_c \ll 1/\Gamma_{D2}$ 时， $\delta\gamma_e$ 是小量。进一步地，在自旋波的调控过程中，处在基态 $|g\rangle$ 的原子会被翻转到 $|a\rangle$ 态上，平均来说它们在 \hat{U}_c 操作过程中有一半的时间在 $|a\rangle$ 态上，这使得 $D2$ 跃迁的偶极-偶极相互作用平均来说会比其最大值少一半，考虑到这一点， $\delta\gamma_e$ 应该更小。

$D1$ 跃迁的偶极-偶极相互作用相比 $D2$ 的来说要大得多，其强度的最大值可达 $\sim N \sqrt{\langle \delta_{N,ag} \rangle^2 + \langle \Gamma_{N,ag} \rangle^2 / 4}$ 。但实际上这并不能用来估算 $D1$ 偶极-偶极相互作用导致的相位误差 $\delta\gamma_a$ ，这是因为在 $|g\rangle - |a\rangle$ 跃迁中原子还同时“感受到”很强的 $D1$ 线的控制光场 $\Omega_c(\mathbf{r}, t) e^{-i\varphi_c(\mathbf{r}, t)}$ ($\max(\Omega_c) \sim 10^3 \Gamma_{D1}$)。实际上， $D1$ 跃迁的偶极-偶极相互作用对自旋波调控的最大影响体现在原子对控制光的反作用（对控制光的吸收和相移）上，这会导致 $\Omega_c(\mathbf{r}, t) e^{-i\varphi_c(\mathbf{r}, t)}$ 的形变进而影响调控效果。不过，对于像“绝热快速过程”这样的容错调控而言，当原子样品的光学深度和空间密度都不太大且调控脉冲的带宽和平均 Rabi 频率都远大于 $\sim \Gamma_{D1}$ 时，脉冲

的形变导致的调控误差是小量。即使调控的对象是大光学深度的原子样品，一些前沿的容错调控技术也能有效地抑制因脉冲形变而导致的调控误差^[17-18]。值得一提的是，对于光学深度非常大的样品，若采用图 3.6 所示的方案，则可以通过对极少数处在激发态 $|e\rangle$ 的原子进行调控来避免大光学深度对调控脉冲的影响。

4.3.3 自旋波调控效率的分析——实验测量与数值模拟

在本章节中，我们将对实验中的自旋波调控效率进行分析。在实验中，我们利用一个 $\hat{U}_c(-2\mathbf{k}_c)$ 操作将原子的集体辐射从 \mathbf{k}_p 方向转到了 \mathbf{k}_s 方向。利用章节 4.3.2 中“动量晶格”的“语言”，一个完美的 $\hat{U}_c(-2\mathbf{k}_c)$ 操作可写为

$$\hat{U}_c^{(p)}(-2\mathbf{k}_c) = 1 - \sum_g |g, \mathbf{k}\rangle \langle g, \mathbf{k}| + \sum_g |g, \mathbf{k} - 2\mathbf{k}_c\rangle \langle g, \mathbf{k}| \quad (4.13)$$

注意到，由于自发辐射的存在，上述的完美操作必须在无穷短的时间里完成（在 $t \rightarrow 0^+$ 的时刻完成）。在章节 4.3.2 的末尾我们提到，对于实验的情况，原子在 \mathbf{k}_s 方向的自发辐射正比于 $\langle |\mathbf{d}(\mathbf{k}_s)|^2 \rangle_\eta$ ，其中 $\langle \dots \rangle_\eta$ 表示对不同的光强因子 $\eta_{1,2}$ 求平均。我们记在完美的 $\hat{U}_c^{(p)}$ 操作下对应的物理量为 $|\mathbf{d}^{(p)}(\mathbf{k}_s)|^2$ 。那么，我们可以定义自旋波的调控效率为 $f_d \equiv (\langle |\mathbf{d}(\mathbf{k}_s)|^2 \rangle_\eta)|_{t=\tau_c+\tau_d} / (|\mathbf{d}^{(p)}(\mathbf{k}_s)|^2)|_{t=0^+}$ ，其中 $\tau_c + \tau_p$ 为 $\hat{U}_c(-2\mathbf{k}_c)$ 操作完成的时刻（见图 4.2(a)）。这里我们考虑的是 $\langle |\mathbf{d}(\mathbf{k}_s)|^2 \rangle_\eta$ 而非 $|\langle \mathbf{d}(\mathbf{k}_s) \rangle_\eta|^2$ ，这是因为我们在实验中收集荧光所使用的是多模光纤，前者是符合实际情况的，后者对应的是单模测量。对于加速的效率，我们定义为 $f_a \equiv \langle \Delta P \rangle_\eta / (2\hbar k_c)$ 。应当注意到，在实验中我们是可以对 f_a 进行直接测量的（见章节 4.3.1），但在实验中测量 f_d 是十分困难的。要在实验中对 f_d 进行测量，需要在不同的方向收集原子集体辐射的荧光，并在自旋波操作的前后时刻比较不同方向的荧光强度大小，这里会遇到一个困难：沿 \mathbf{k}_p 方向的辐射荧光是难以和自旋波激发光在空间上分开的，单光子探测的饱和效应（见章节 4.2.2 的脚注）会导致非常大的测量背景，进而影响测量精度。而且，多方向辐射荧光的同时测量通常会因光路条件的限制而难以进行。在实验上，我们首先利用 f_a 的测量结果（图 4.6）对数值模拟中用到的部分实验参数进行定标，然后我们利用定标后的参数对 f_d 进行模拟，并将模拟的结果与实验中的荧光测量结果进行对比，以对自旋波的调控效率进行细致地分析。下面对此进行具体讨论。

在实验中，正向的 $D1$ 控制光（波矢为 \mathbf{k}_c ）经过一个设计好的透镜组聚焦到原子样品上。该透镜组的所有参数已知，我们通过光学模拟的方法⁴可求得正向 $D1$ 控制光的聚焦光斑半径为 $w_c \approx 13 \mu\text{m}$ （光强下降到 $1/e^2$ 的半径），同时我们可以通过成像的方法（见图 4.6）测出原子样品的尺寸 $\sigma \approx 7 \mu\text{m}$ （ $1/e$ 密度

⁴我们是利用商业软件 OSLO 的免费试用版进行模拟的。

半径)。自旋波实验中的 $D1$ 控制光是经过单模光纤的空间滤波 (见图 3.14) 的, 因此我们认为它是高斯光束, 那么光强因子 $\eta_1(\mathbf{r})$ 的空间分布在我们的模型中便是已知的。但是我们认为 $\eta_2(\mathbf{r}) \neq \eta_1(\mathbf{r})$, 其原因是反向的控制光 (波矢为 $-\mathbf{k}_c$) 经过了更多的成像光学元件 (见图 4.1(a,b)), 这使得它有更多的成像误差 (球差、彗差等) 并且这增大了它的聚焦光斑半径。我们仍假设反向光是高斯光束, 并且令其聚焦光斑半径为 $w_{\eta_2} = \kappa_1 w_c$, 这里的 κ_1 是数值模拟中的第一个可调参数。考虑到在相同功率下电场强度与光斑半径成反比, 在调 κ_1 时, 我们会对强度因子做整体上的相应调整, 即 $\eta_2(\mathbf{r}) \propto 1/\kappa_1$ 。在图 3.17 中, 我们利用拍频的方法测量了控制脉冲的波形, 同样利用该方法我们可以测量出不同参数的控制脉冲的 Rabi 频率的相对大小, 但是其绝对的大小我们无法精确得知。我们在数值模拟中的第二个可调参数是控制脉冲的整体强度系数 κ_2 , 我们用它来修正饱和和光强参数 s_1 (其定义详见章节 4.3.1), 有 $s_1 \propto \kappa_2$ 。当然, 在进行数值模拟之前我们会尽可能地通过测量来估算出 s_1 , 而 κ_2 的值常常是在 1 附近进行调整的。

现在, 我们利用“动量晶格”模型对图 4.6 中的实验结果进行数值模拟。由于确切的实验参数 $\kappa_{1,2}$ 不能从实验测量中精确得知, 我们在计算过程中会在估测值附近不断微调 $\kappa_{1,2}$, 以使得 $\langle \Delta P \rangle_\eta$ 的计算结果最符合图 4.6 中的测量值。这里, “最符合”指的是图 4.6 中的所有数据点与相应的模拟值的差的平方和最小。经过 $\kappa_{1,2}$ 优化后, $\langle \Delta P \rangle_\eta$ 的计算结果如图 4.8(b) 所示, 为方便比较, 我们将图 4.6 中的结果也放到了图 4.8(a) 中。可以看出, 图 4.8(b) 中的模拟结果很好地还原了图 4.8(a) 中的实验结果。最终优化出来的 κ_1 的值为 1.25, 这意味着反向控制光的聚焦光斑半径等效地比正向增加了 25%, 这一结论帮助我们更加深入地理解了实验的光路。

为了更进一步地理解我们的自旋波调控实验, 我们在相同的啁啾脉冲参数下测量了“转向”荧光的总光子数。具体地说, 我们在 $\tau_p = 5$ ns 的自旋波激发脉冲过后仅施加一个 $\hat{U}_c(-2\mathbf{k}_c)$ 操作并在此过程中测量 \mathbf{k}_s 方向的“转向”集体辐射信号 $i_{\mathbf{k}_s}$ (具体细节可参考章节 4.2.2)。我们对集体辐射信号 $i_{\mathbf{k}_s}$ 进行积分, 求得“转向”荧光的总光子数 $\int i_{\mathbf{k}_s} dt$, 实验结果如图 4.8(c) 所示。注意到, 按照前面的定义, 有 $\int i_{\mathbf{k}_s} dt \propto f_d$, 即“转向”荧光的总光子数是正比于 $\hat{U}_c(-2\mathbf{k}_c)$ 操作的效率的。由于 $\int i_{\mathbf{k}_s} dt$ 与光子收集和探测效率等因素相关, 实验中只能精确测量其相对值, 而非绝对值, 在图 4.8(c) 中我们用同一个常数因子对所测得的荧光数进行归一, 这里我们只关注它的相对值。现在, 我们利用之前优化得到的 $\kappa_{1,2}$ 的值来模拟计算图 4.8(c) 结果所对应的 f_d , 如图 4.8(d) 所示。测量结果 (图 4.8(c)) 与模拟结果 (图 4.8(d)) 在数据点的变化结构上吻合地很好, 这进一步地验证了我们的理论建模的合理性。

结合图 4.8 中的数值模拟和实验测量, 我们可以得出自旋波调控效率和电偶极加速效率在相应的参数范围内的最高值分别为 $f_d = (72 \pm 4)\%$ 和 $f_a = (89 \pm 4)\%$ 。另外, 在此前图 4.4 的实验中, 我们利用 $\tau_c = 0.5$ ns、 $\tau_d = 1.2$

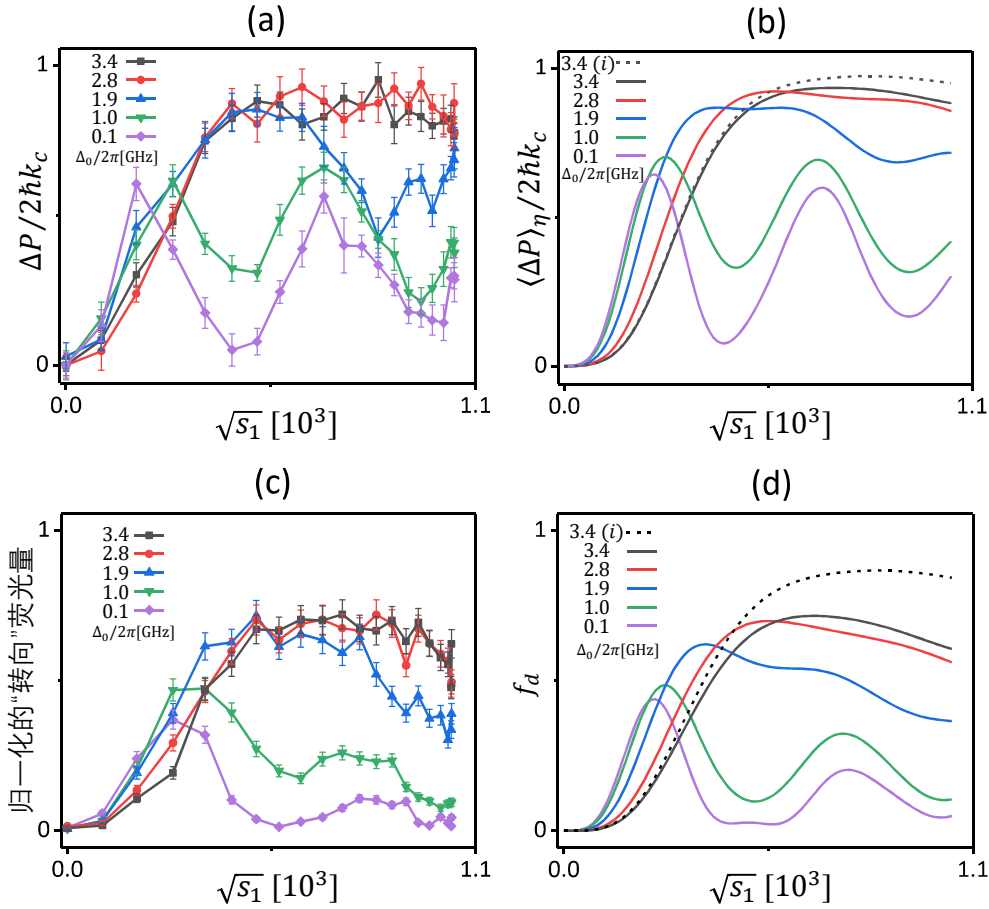


图 4.8 在不同的 $\sqrt{s_1}$ 和 Δ_0 的参数下，我们测量了 $\hat{U}_c(-2\mathbf{k}_c)$ 操作所对应的原子加速和自旋波“转向”荧光量（见图 (a) 和图 (c)），并同时进行了数值模拟（见图 (b) 和图 (d)）。图 (a) 的数据与图 4.6 中的数据是相同的。在图 (b)、(d) 的黑色虚线所对应的数值模拟中，我们设原子初态为 $|5^2S_{1/2}F=2, m_F=0\rangle$ ，在其余的数值模拟中原子初态都是均匀分布在基态的 5 个塞曼子能级（原子初始没有极化）。各个数据点对应的参数已在图中标明。

ns 的 $\hat{U}_c(\pm 2\mathbf{k}_c)$ 操作实现了复杂的自旋波调控时序，并通过比较集体辐射“唤醒”的强度与“关闭”前的强度求出自旋波的调控效率 $f_d = (75 \pm 5)\%$ （见章节 4.2.2），该结论同样得到了“动量晶格”模型的验证。

○ 对自旋波调控效率的一些分析

在本文的实验中，单次自旋波调控的效率可以达到 $f_d \sim 75\%$ 。其中一个限制自旋波调控效率的因素是自发辐射，这里以图 4.8 的实验为例，其中 $\tau_c + \tau_d = 2.26$ ns。在 $\tau_c + \tau_d$ 的时间内， $D1$ 线的自发辐射与 $D2$ 线的自发辐射会导致原子内态的消相干，这会导致 \hat{U}_c 操作的效率下降（或者说失真）。单原子自发辐射导致的 \hat{U}_c 失真度可估算为 $(\tau_c + \tau_d)/\tau_{D2} + (\tau_c + \tau_d)/(2\tau_{D1}) \approx 13\%$ （该结论可通过“动量晶格”模型验证）。注意到在 \hat{U}_c 操作过程中，原子在 $|g\rangle - |a\rangle$ 子空间

中的布居是含时变化的，平均来说其布居一半时间在 $|g\rangle$ 态，另一半时间在 $|a\rangle$ 态，因此在估算 $D1$ 自发辐射导致的失真度时需要加上一个 $1/2$ 因子。在此条件下 \hat{U}_c 操作的效率上限为 $f_d \approx 87\%$ （同理可得加速效率的上限为 $f_a \approx 97\%$ ）。

另一方面， $D1$ 激发态超精细能级的频率差 $\Delta_{D1,\text{hfse}}/2\pi = 814.5 \text{ MHz}$ （见图 3.6）也会影响自旋波的调控效率。该频率差可以使得 $5^2S_{1/2}F = 2$ 态上不同的塞曼子能级在 \hat{U}_c 操作过后会有不同的动态相位（动态相位的定义见章节 2.2.3）。当原子的波函数在不同基态子能级中的分量的相位不一致时，不同基态塞曼子能级对应的 $D2$ 自旋波的相位也会不一致，它们所对应的集体辐射会在一定程度上相干相消，最终表现为自旋波调控的失真。这些物理都已包含在“动量晶格”的模型中。在图 4.8(b) 和图 4.8(d) 中，我们还模拟了当原子初态为 $|5^2S_{1/2}F = 2, m_F = 0\rangle$ （ m_F 为塞曼子能级的磁量子数）时的加速和自旋波调控效率（其结果在图中用黑色虚线表示）。在 π 偏振的控制光作用下， $|5^2S_{1/2}F = 2, m_F = 0\rangle$ 态只与 $|5^2P_{1/2}F' = 1, m_F = 0\rangle$ 态进行相干耦合，因此当基态原子只布居在 $|5^2S_{1/2}F = 2, m_F = 0\rangle$ 态时， $\Delta_{D1,\text{hfse}}$ 体现不出作用，此时上述消相干效应被有效的抑制了。在图 4.8(d) 模拟的结果中黑色虚线对应的自旋波调控效率可达到自发辐射影响下的极限 $f_d \approx 87\%$ ，这一结果验证了我们的分析。当基态原子没有极化时，原子在基态的 5 个塞曼子能级中是均匀分布的（本文实验的情况），此时仍然可以通过优化 \hat{U}_c 的参数在一定程度上抑制超精细结构导致的消相干效应，例如在图 4.4 的实验中，时间参数 $\tau_c = 0.5 \text{ ns}$ 以及 $\tau_d = 1.2 \text{ ns}$ 便是在此考量下的数值模拟优化结果。实际上，不管原子的极化情况如何，在 $\tau_c \Delta_{D1,\text{hfse}} \rightarrow 0$ 的极限下，当 τ_d 为 $2\pi/\Delta_{D1,\text{hfse}}$ 的整数倍时，超精细结构导致的消相干效应是可以被完全抑制的。

对于 $|m_F| = 1$ 态而言，情况要更加复杂，因为在 π 偏振的控制光作用下 $|m_F| = 1$ 的基态都分别同时与两个 $D1$ 激发态的子能级进行相干耦合。例如， $|5^2S_{1/2}F = 2, m_F = 1\rangle$ 态同时与 $|5^2P_{1/2}F' = 1, m_F = 1\rangle$ 态和 $|5^2P_{1/2}F' = 2, m_F = 1\rangle$ 态进行相干耦合。除了上述动态相位的问题， $\Delta_{D1,\text{hfse}}$ 还会在一定程度上破坏啁啾脉冲的绝热过程，这导致了部分原子在 \hat{U}_c 操作后仍布居在 $|5^2P_{1/2}, |m_F| = 1\rangle$ 态中，这等效地导致了 $D2$ 线自旋波的原子损失，并同时表现为自旋波调控的失真。通过数值模拟可知，在较优的自旋波调控参数下（图 4.8 中自旋波调控效率较高的参数点），实验中单次 \hat{U}_c 操作后的瞬间，会有 $l \approx 10\%$ 的原子仍留在 $D1$ 激发态中。虽然它们会逐渐衰减到基态，但此过程会让它们与 $|e\rangle$ 态的相干性消失。

根据上面的分析，如果我们让自旋波操作 \hat{U}_c 的时长更短，比如 $\tau_c + \tau_p = 0.4 \text{ ns}$ ，并且能结合塞曼子能级的态制备技术（比如将原子初态制备到 $|5^2S_{1/2}F = 2, m_F = 0\rangle$ ）来避免超精细结构导致的消相干效应，那么自旋波的调控效率可以达到 $\sim 98\%$ 。这一目标的实现需要时长更短、带宽更大的 $D1$ 控制脉冲。这可以

通过将更高速的电光调制应用到本文的 $D1$ 任意波形激光系统中来实现⁵。

○ 自旋波调控的动力学过程

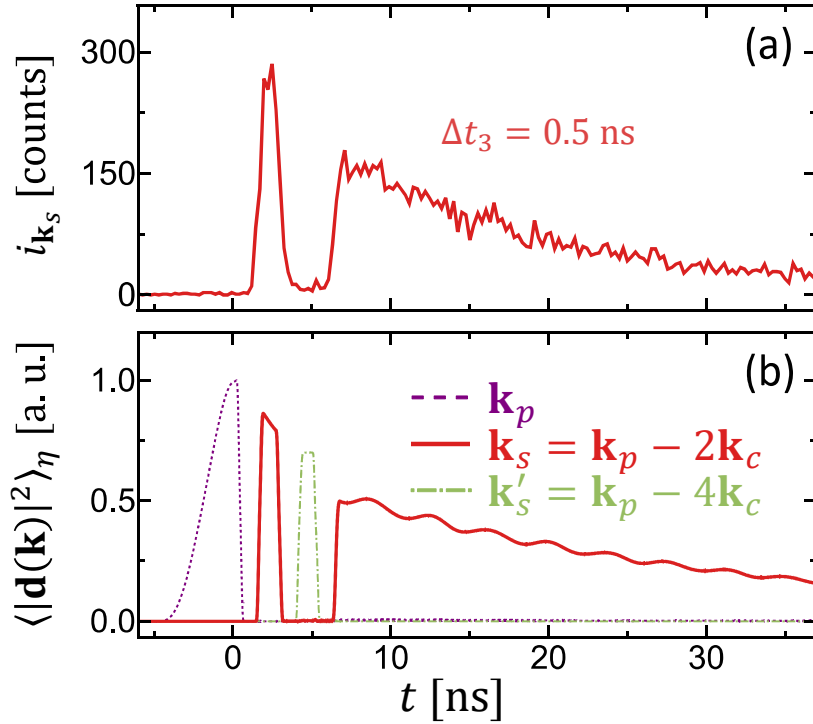


图 4.9 利用“动量晶格”模型来模拟自旋波调控的动力学过程。图 (a) 中的实验结果来源于图 4.4，自旋波调控时序的细节见章节 4.2.2。具体的讨论见正文。

现在，我们可以尝试用“动量晶格”模型来模拟自旋波调控的动力学过程。以图 4.4 中的 $\Delta t_3 = 0.5$ ns 的实验结果为例，我们在相应的实验参数（实验细节见章节 4.2.2）下数值计算了 $\langle |d(\mathbf{k}_s)|^2 \rangle_\eta$ 、 $\langle |d(\mathbf{k}'_s)|^2 \rangle_\eta$ 和 $\langle |d(\mathbf{k}_p)|^2 \rangle_\eta$ 的含时演化，结果如图 4.9(b) 所示。为方便比较，我们将图 4.4 中的 $\Delta t_3 = 0.5$ ns 的实验结果再次展示在图 4.9(a) 中。可以发现，模拟计算的 $\langle |d(\mathbf{k}_s)|^2 \rangle_\eta$ 的演化基本还原了实验中原子在 \mathbf{k}_s 方向辐射的荧光的测量结果 ($i_{\mathbf{k}_s}$)。不仅如此，通过“动量晶格”模型，我们还可获得 $\langle |d(\mathbf{k}'_s)|^2 \rangle_\eta$ 和 $\langle |d(\mathbf{k}_p)|^2 \rangle_\eta$ 的信息。值得提及的是，在图 4.9(b) 中，最后 $\langle |d(\mathbf{k}_s)|^2 \rangle_\eta$ 的衰减寿命为单原子的衰减寿命 $\tau_{D2} = 26.2$ ns，而在图 4.9(a) 中测出的衰减寿命为 $\tau_N = 14.6$ ns——这是由集体效应导致的超辐射现象。本文的“动量晶格”模型因为忽略了原子间的相互作用，它无法预言自旋波中的诸多集体效应，比如超辐射，但这不妨碍我们用它来研究短时间的

⁵目前 Keysight Technologies 公司型号为 M8194A 的任意波形微波发生器的模拟带宽高达 45 GHz，采用率高达 120 GSa/s。若将它应用到章节 3.4.1 中的任意波形激光系统中，则有望可产生能够实现高效布居翻转且时长仅为 $\tau_c \lesssim 0.2$ ns 的啁啾脉冲。

自旋波调控过程（具体讨论见章节 4.3.2）。在第五章中，我们将考虑原子间的偶极-偶极相互作用，对自旋波的动力学演化过程进行更细致的研究。

○ 原子运动效应的分析

在上面的所有分析中，我们都没有考虑原子的运动对自旋波调控或自旋波演化动力学的影响，下面我们对此进行分析。自旋波态（见式 (3.1)）的一个重要的特征是波函数的相位是与原子位置关联起来的，这一点体现在式 (3.1) 中的相因子 $e^{ik \cdot r_j}$ 上，这也是相位匹配（或相位失配）条件的基础。在原子气体中，原子会发生热运动，这会使得波函数的相位与原子位置的关联逐渐消失，这种现象也被称为多普勒失相。在实验上，我们的冷原子样品的温度为 $T \sim 20-30 \mu\text{K}$ ，对应的热运动速度为 $v_T \sim 50 \text{ mm/s}$ ，因此在 $\sim \tau_{D2}$ 的时间内原子的热运动距离为 $l_T \sim v_T \tau_{D2} \sim 1 \text{ nm}$ 。由于 $l_T \ll \lambda_{D2} = 780.2 \text{ nm}$ ，原子运动诱导的多普勒失相在我们的实验中可以被忽略。对于一些窄线宽的跃迁，原子激发态的寿命可以很长，这时原子热运动导致的多普勒失相会对原子的集体行为产生明显的影响^[19]。

另外，在自旋波的调控过程中， \hat{U}_c 操作会对基态的原子产生加速效应，这种加速在空间上是近似均匀的，不会导致自旋波的失相。但需要注意的是， \hat{U}_c 操作只会加速 $|g\rangle$ 态的原子，对 $|e\rangle$ 态的原子不产生影响。当 $|g\rangle$ 态的原子获得速度增量后，会渐渐与 $|e\rangle$ 态的原子在空间上分离，这会使得原子电偶极矩的空间分布逐渐消失，集体效应也随之消失。不过，对于我们的实验， $|g\rangle$ 态原子在自旋波调控过程中获得的速度增量最多为 $\Delta v \sim 4v_r \approx 24 \text{ mm/s}$ ，由此导致的 $|g\rangle$ 、 $|e\rangle$ 态原子分布的相对位移仅为 $\tau_{D2} \Delta v \sim 1 \text{ nm}$ 的级别，远远小于原子空间分布的尺寸（ $\sigma \sim 7 \mu\text{m}$ ），因此该效应也可以忽略。

4.4 本章小结

本章展示了本文研究中的一个重要成果：在实验上利用聚焦的亚纳秒啁啾脉冲将空间相关的几何相位写入到 ^{87}Rb 原子基态的波函数中，从而在 ^{87}Rb 的冷原子样品中实现了对光偶极自旋波波矢的高效调控。通过这种调控技术，我们能够可逆地、高效地改变光偶极自旋波的波矢，并借此来改变原子的集体自发辐射行为。在章节 4.2.2 中，我们实现了原子集体辐射的“转向”、“关闭”与“唤醒”，这会成为我们对自旋波动力学的实验研究的重要基础（见本文第五章）。在改变原子集体自发辐射行为的同时，本文的自旋波调控可对原子施加 $\sim 10^6$ 倍于重力的光力，由此导致的原子加速效应同样在实验中得到了观测（见章节 4.3.1）。为了更深入地分析实验结果，我们利用无相互作用的“动量晶格”模型对实验中的自旋波调控过程及其所伴随的原子加速效应进行了数值模拟（见章节 4.3.3）。在本章的实验中，单次自旋波的调控效率可达 $f_d = (75 \pm 5)\%$ 。

在章节 4.3.3 中，我们结合数值模拟和实验测量对限制自旋波调控效率的因素进行了分析并且提出了相应的改进方案。

参考文献

- [1] Miao X, Wertz E, Cohen M G, et al. Strong optical forces from adiabatic rapid passage[J]. *Phys. Rev. A*, 2007, 75:011402
- [2] Scully M O, Fry E S, Ooi C H R, et al. Directed Spontaneous Emission from an Extended Ensemble of N Atoms: Timing Is Everything[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2006, 96:010501
- [3] Eberly J H. Emission of one photon in an electric dipole transition of one among N atoms[J]. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, 2006, 39(15):S599–S604
- [4] Steck D A. Rubidium 87 D Line Data. <http://steck.us/alkalidata>, 2019
- [5] Young L, Hill W T, Sibener S J, et al. Precision lifetime measurements of Cs $6p^2P_{1/2}$ and $6p^2P_{3/2}$ levels by single-photon counting[J]. *Phys. Rev. A*, 1994, 50:2174–2181
- [6] Araújo M O, Krešić I, Kaiser R, et al. Superradiance in a Large and Dilute Cloud of Cold Atoms in the Linear-Optics Regime[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2016, 117:073002
- [7] Roof S J, Kemp K J, Havey M D, et al. Observation of Single-Photon Superradiance and the Cooperative Lamb Shift in an Extended Sample of Cold Atoms[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2016, 117:073003
- [8] Scully M O. Single Photon Subradiance: Quantum Control of Spontaneous Emission and Ultrafast Readout[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2015, 115:243602
- [9] Syzranov S V, Wall M L, Zhu B, et al. Emergent Weyl excitations in systems of polar particles[J]. *Nature Communications*, 2016, 7:13543
- [10] Asenjo-Garcia A, Moreno-Cardoner M, Albrecht A, et al. Exponential Improvement in Photon Storage Fidelities Using Subradiance and “Selective Radiance” in Atomic Arrays[J]. *Phys. Rev. X*, 2017, 7:031024
- [11] Perczel J, Borregaard J, Chang D E, et al. Topological Quantum Optics in Two-Dimensional Atomic Arrays[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2017, 119:023603
- [12] Chui S T, Du S, Jo G B. Subwavelength transportation of light with atomic resonances[J]. *Phys. Rev. A*, 2015, 92:053826
- [13] Freegerde T G M, Walz J, Hänsch T W. Confinement and manipulation of atoms

- using short laser pulses[J]. *Optics Communications*, 1995, 117(3-4):262–267
- [14] Scully M O. Collective Lamb Shift in Single Photon Dicke Superradiance[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2009, 102:143601
- [15] Guerin W, Rouabah M, Kaiser R. Light interacting with atomic ensembles: collective, cooperative and mesoscopic effects[J]. *Journal of Modern Optics*, 2017, 64(9):895–907
- [16] Zhu B, Cooper J, Ye J, et al. Light scattering from dense cold atomic media[J]. *Phys. Rev. A*, 2016, 94:023612
- [17] Demeter G. Adiabatic passage in photon-echo quantum memories[J]. *Phys. Rev. A*, 2013, 88:052316
- [18] Demeter G. Composite pulses for high-fidelity population inversion in optically dense, inhomogeneously broadened atomic ensembles[J]. *Phys. Rev. A*, 2016, 93:023830
- [19] Bromley S L, Zhu B, Bishof M, et al. Collective atomic scattering and motional effects in a dense coherent medium[J]. *Nature Communications*, 2016, 7:11039

第五章 光偶极自旋波的几何调控——自旋波的弛豫动力学

5.1 本章概述

在上一章中，我们介绍了本文的光偶极自旋波调控实验，并借助无相互作用的“动量晶格”模型对实验的重要细节进行了分析和讨论。在自旋波调控的实验中，我们可以通过几何相位的写入（见章节 3.2.3）来改变自旋波的波矢，从而实现相位匹配自旋波和相位失配自旋波之间的转换，这允许我们可以在不受背景光的干扰下对原子进行超辐射探测（见章节 4.2.2），并借此来研究偶极-偶极相互作用下的自旋波含时演化规律。在本章中，我们将结合实验观测、理论分析及数值模拟对自旋波的动力学行为进行研究。下面对本章各章节的内容进行简要概述。

在章节 5.2 中，我们将对自旋波的弛豫行为进行讨论。我关注于自旋波的“存活率”，该物理量与我们的实验观测是紧密联系在一起。与此同时，我们将结合数值模拟简要讨论相位匹配自旋波和相位失配自旋波的“存活率”的含时演化规律，为后文的相关研究和论述做铺垫。

章节 5.3 的内容与实验测量相关。随机原子气体中自旋波的动力学行为与样品的原子数密度和光学深度等性质相关，章节 5.3.1 将介绍我们如何在实验上测量与定标原子样品的光学深度和密度分布，这是自旋波动力学研究的实验基础之一。在章节 5.3.2 中，我们通过对原子样品的定向超辐射进行直接测量来对相位匹配自旋波的动力学进行实验上的研究，与此同时，我们将借助“固定”基态近似下的 CDM 方程对实验测量结果进行数值上的模拟计算，以验证我们的实验结论。在章节 5.3.3 中，我们将展示在实验上测得的相位失配自旋波衰减速率与原子密度的关系，并对相关的实验细节进行讨论。相位失配自旋波的衰减速率与原子密度的关系是本文研究的核心内容之一，我们将相关的更深入的物理分析和讨论放在了章节 5.4 中，而章节 5.3.3 的内容主要是实验结果的展示。

在章节 5.4 中，我们的关注点放在了相位失配自旋波的衰减规律上。我们首先从能级结构为 $J = 0 - J' = 1$ 的原子出发，通过对自旋波态进行能谱分析推导出相位失配自旋波初始衰减速率与原子密度的关系（见章节 5.4.1）。然后，我们将相关的分析推广到能级结构为 $F = 2 - F' = 3$ 的原子中，并借助对近场偶极-偶极相互作用的数值模拟得到了相位失配自旋波衰减速率在多能级系统中的修正系数（见章节 5.4.2）。最后，在章节 5.4.3 中，我们将对比实验测量结果和理论、数值的分析结果，并作相关讨论。

5.2 自旋波的弛豫

现在我们开始考虑自旋波的含时演化, 不失一般性, 这里我们沿用章节 3.2.1 中的记号并以 N 个二能级原子为例进行讨论。一般地, 多体的单激发波函数的数学形式为

$$|\psi(t)\rangle = \sum_j \beta_j(t) |g_1, g_2, \dots, e_j, \dots, g_N\rangle \quad (5.1)$$

其中, $|g_j\rangle$ 、 $|e_j\rangle$ 分别为第 j 个原子的基态、激发态。我们记 $|g_j\rangle - |e_j\rangle$ 跃迁的(圆)频率为 ω_{eg} , 且记第 j 个原子的空间位置为 \mathbf{r}_j , 我们认为这 N 个原子在空间上是静止的, 并且它们按照一定的概率分布形成随机气体。可以发现, 式 (5.1) 是单激发态的一般形式, 我们所关心的自旋波态也包含于其中。单激发态的含时演化的信息包含于系数 $\beta_j(t)$ ($j = 1, 2, \dots, N$) 中, 要求解这些系数, 我们需要考虑原子间的偶极-偶极相互作用(见章节 2.3.3)。参考式 (2.57), 系统的(非厄米)相互作用 Hamiltonian 为 $\hat{H}_{\text{int}} = \sum_{j,l=1}^N \hat{H}_{\text{int}}^{jl}$, 其中 $\hat{H}_{\text{int}}^{jl}$ 为:

$$\hat{H}_{\text{int}}^{jl} = -\frac{k_p^2}{\epsilon_0} \mathbf{d}_{eg} \cdot \mathbf{G}(\mathbf{r}_j - \mathbf{r}_l, \omega_{eg}) \cdot \mathbf{d}_{ge} \hat{\sigma}_j^+ \hat{\sigma}_l^- \quad (5.2)$$

其中 $k_p = \omega_{eg}/c$, 其他物理量的含义同式 (2.57)。利用系统的相互作用哈密顿量 \hat{H}_{int} , 我们可以求出 $\beta_j(t)$ ($j = 1, 2, \dots, N$) 所遵循的方程, 即式 (2.71) 所示的 CDM (耦合偶极子模型, 见章节 2.3.3) 方程。原子是没有非辐射的能量耗散的(见章节 1.2), 在原子系统的演化过程中, 一个非常重要的观测量是原子辐射出的光子——它携带了原子系统动力学演化的信息。由式 (2.74) 和式 (2.77) 可求得, 原子辐射场的单光子波函数为

$$\begin{aligned} \varepsilon(\mathbf{r}, t) &= \langle g_1, g_2, \dots, g_N | \hat{\mathbf{E}}^{(+)}(\mathbf{r}) | \psi(t) \rangle \\ &= \frac{k_p^2}{\epsilon_0} \sum_{j=1}^N \mathbf{G}(\mathbf{r} - \mathbf{r}_j, \omega_{eg}) \cdot \mathbf{d}_{ge} \beta_j(t) \end{aligned} \quad (5.3)$$

实验中测量的荧光总是对应着系统的远场辐射, 由格林张量 \mathbf{G} 的表达式(式 (2.48)) 以及电偶极子远场辐射的表达式(式 (2.49)) 可以推出, 上述原子系统在 \mathbf{e}_n ($|\mathbf{e}_n| = 1$) 方向上辐射荧光的光强为:

$$i(t; \mathbf{e}_n) \propto |\varepsilon(\mathbf{r}_n, t)|^2 \propto \left| \sum_{j=1}^N \beta_j(t) e^{-ik_p \mathbf{e}_n \cdot \mathbf{r}_j} \right|^2 \quad (5.4)$$

注意到这里是以二能级原子为例。对于多偏振的跃迁, 远场辐射的计算方法可参考文献^[1-2]。其中 \mathbf{r}_n 为 \mathbf{e}_n 方向的位置矢量, 且 $|\mathbf{r}_n| k_p \gg 1$ 。式 (5.4) 对应着我

们实验的观测量。

现在，我们不妨设多原子系统初始时刻处于自旋波态，即：

$$|\psi(0)\rangle = |\psi_{\mathbf{k}}\rangle = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{j=1}^N e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}_j} |g_1, g_2, \dots, e_j, \dots, g_N\rangle \quad (5.5)$$

并且，我们将自旋波的“存活率”（spin-wave survival ratio）定义为

$$O_{\mathbf{k}}(t) \equiv |\langle \psi_{\mathbf{k}} | \psi(t) \rangle|^2 = \left| \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{j=1}^N \beta_j(t) e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}_j} \right|^2 \quad (5.6)$$

值得注意的是，由式 (5.4) 和式 (5.6) 可知，当 $|\mathbf{k}| = \omega_{eg}/c$ 时， $O_{\mathbf{k}}(t)$ 是正比于原子系统在 \mathbf{k} 方向上的荧光辐射强度的，即 $O_{\mathbf{k}}(t) \propto i(t; \mathbf{k}/|\mathbf{k}|)$ 。自旋波的“存活率”是系统在自旋波态上的布居，它是表征自旋波性质的一个基本物理量，本章的主要内容是对自旋波的“存活率”进行研究，以探究偶极-偶极相互作用下自旋波的演化性质。虽然上面的讨论都是基于二能级原子，但相关的论述和物理量的定义可以直接推广到 $J = 0 - J' = 1$ 的四能级结构（见章节 2.3.3）或者更复杂的多能级结构（比如 ^{87}Rb 的 $5^2S_{1/2}F = 2 - 5^2P_{3/2}F' = 3$ 跃迁）。另外，式 (5.6) 也可通过 $\langle \hat{S}^+(\mathbf{k}) \hat{S}^-(\mathbf{k}) \rangle$ 来定义， $\hat{S}^+(\mathbf{k})$ 的定义见式 (1.3)，而 $\hat{S}^-(\mathbf{k}) = (\hat{S}^+(\mathbf{k}))^\dagger$ 。

接下来，我们借助章节 2.3 中的理论工具对自旋波在自由空间中的动力学进行探究，且为了更加接近实际情况，我们接下来的相关数值计算是基于 $J = 0 - J' = 1$ 四能级原子（详见章节 2.3.3）的。首先，我们考虑原子的初态为相位匹配的自旋波，即 $|\psi(0)\rangle = |\psi_{\mathbf{k}}\rangle$ 且 $|\mathbf{k}| = \omega_{eg}/c$ ，如图 5.1(a) 所示。在图 5.1(c) 中，我们参考式 (5.3) 计算了原子样品初始时刻的辐射场分布的模值 $|\text{Re}(\boldsymbol{\epsilon}(\mathbf{r}, 0))|$ ，这里取实部是对应了物理上的实际电场。从图 5.1(c) 中可以看出，相位匹配的自旋波沿着波矢 \mathbf{k} 的方向有着很强的辐射，这是因为在相位匹配的条件下，每个原子的辐射光场在 \mathbf{k} 方向上是相干相长的。在此方向上原子集体辐射初始光强相比单原子有 $\sim N^2$ 倍的增益^[2-3]。从图 5.1(c) 中可注意到，原子的集体辐射并不是完全严格地沿着 \mathbf{k} 方向，而是分布在 \mathbf{k} 方向附近的一个小立体角 Ω_s 中，即使波矢 \mathbf{k} 是严格精确的。实际上， Ω_s 与原子样品的大小有关（在章节 4.2.2 中有相关的测量），可由式 $\Omega_s \sim (k_p \sigma)^{-2}$ 估算^[3-4]。在实验中，我们测量的荧光信号包含了 Ω_s 立体角内的所有辐射光子，因此所测的信号不直接对应于 $O_{\mathbf{k}}(t) \propto i(t; \mathbf{k}/|\mathbf{k}|)$ ，而是对应于 $I_{\mathbf{k}}(t) \propto \int_{\Omega_s} i(t; \mathbf{k}_\Omega/|\mathbf{k}_\Omega|) d\Omega$ ，即荧光辐射强度在 Ω_s 立体角内的积分。相位匹配自旋波的前向辐射 $i(t; \mathbf{k}/|\mathbf{k}|)$ （或者 $O_{\mathbf{k}}(t)$ ）的初始衰减速率可以通过

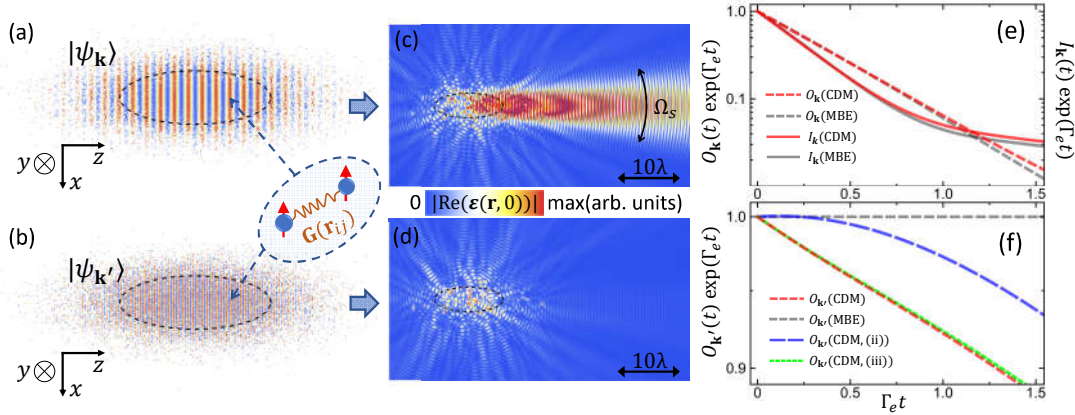


图 5.1 图 (a,b) 展示了高斯分布的随机原子气体中的自旋波（参考章节 3.2.1）。图 (a) 中的是相位匹配自旋波，有 $|\mathbf{k}| = \omega_{eg}/c$ ；图 (b) 中的是相位失配自旋波，有 $|\mathbf{k}'| = 2.9\omega_{eg}/c$ 。这里，原子样品的密度分布函数为 $\rho(x, y, z) = \rho_0 e^{-\frac{x^2}{2\sigma_x^2} - \frac{y^2}{2\sigma_y^2} - \frac{z^2}{2\sigma_z^2}}$ ，其中 $\sigma_x = \sigma_y = 1.36\lambda_{eg}$ ， $\sigma_z = 3.85\lambda_{eg}$ ，原子总数为 $N = \int \rho d^3\mathbf{r} = 532$ ，此分布对应的峰值原子密度为 $\rho_0 \lambda_{eg}^3 \approx 5$ ，这与实验上的值相近（见章节 5.3.1）。在数值模拟中，随机气体的产生是通过原子密度分布 $\rho(x, y, z)$ 进行 N 次独立的位置采样来完成的。图 (c,d) 是原子气体初始时刻的辐射场分布 $|\text{Re}(\epsilon(\mathbf{r}, 0))|$ ，分别对应图 (a,b) 的自旋波态，其中展示场分布的空间截面是 $y = 0$ 的平面。图 (e,f) 是 CDM 方程（见式 (2.73)）和 MBE 方程（见式 (2.81) 和式 (2.85)）的数值模拟结果，对应的初态分别为图 (a,b) 的自旋波态。CDM 方程的模拟是在随机气体中进行的，我们在相同的原子密度分布下产生了 1200 个随机原子气体，最终的计算结果是这 1200 个随机气体计算结果的平均。

$\Gamma_{\mathbf{k}} = -2 \text{Im}(\langle \psi_{\mathbf{k}} | \hat{H}_{\text{int}} | \psi_{\mathbf{k}} \rangle)$ 求出（ \hat{H}_{int} 可由式 (5.2) 求得）。其结论为^[2,5-6]：

$$\Gamma_{\mathbf{k}} \approx \left(1 + \frac{\overline{\text{OD}}(\mathbf{k}/|\mathbf{k}|)}{4} \right) \Gamma_e \quad (5.7)$$

其中 Γ_e 是单原子的自发辐射衰减速率，而 $\overline{\text{OD}}(\mathbf{k}/|\mathbf{k}|)$ 是原子样品在 \mathbf{k} 方向上的平均的（共振）光学深度，该物理量在我们的实验测量和数值模拟中都将十分重要，这里以高斯分布的原子样品为例对此进行说明。

设原子样品的密度分布函数为

$$\rho(x, y, z) = \rho_0 e^{-\frac{x^2}{2\sigma_x^2} - \frac{y^2}{2\sigma_y^2} - \frac{z^2}{2\sigma_z^2}} \quad (5.8)$$

原子总数可由 $N = \int dx dy dz \rho(x, y, z)$ 求出。如果我们以 z 方向为例，那么 z 方

向的平均光学深度可由下式算出：

$$\begin{aligned}
 \overline{\text{OD}}(\mathbf{e}_z) &= \frac{\int \text{OD}(\mathbf{r}_\perp)^2 d^2\mathbf{r}_\perp}{\int \text{OD}(\mathbf{r}_\perp) d^2\mathbf{r}_\perp} \\
 &= \frac{\int dx dy \left(\int dz \rho(x, y, z) \sigma_{\text{sc}} \right)^2}{\int dx dy \left(\int dz \rho(x, y, z) \sigma_{\text{sc}} \right)} \\
 &= \sigma_{\text{sc}} \times \frac{N}{4\pi\sigma_x\sigma_y}
 \end{aligned} \tag{5.9}$$

式 (5.9) 中的 σ_{sc} 是单原子共振散射截面，对于二能级原子或者 $J = 0 - J' = 1$ 原子而言，有 $\sigma_{\text{sc}} = 6\pi/k_p^2$ 。 ^{87}Rb 共振散射截面具体数值可在文献^[7]中查到。上式中的平均光学深度是以 z 方向为例进行计算的，实际上式 (5.9) 中的第一行适用于任何方向的平均光学深度的计算，其中 \mathbf{r}_\perp 表示垂直于 $\overline{\text{OD}}$ 计算方向的坐标。

接着上面的讨论，当原子初态是相位匹配的自旋波 $|\psi_{\mathbf{k}}\rangle$ 时（见图 5.1(a)），我们分别利用 CDM 方程（见式 (2.73)）和 MBE 方程（见式 (2.81) 和式 (2.85)）对自旋波的含时演化进行数值模拟，并计算出对应的 $O_{\mathbf{k}}(t)$ 和 $I_{\mathbf{k}}(t)$ ，其结果如图 5.1(e) 所示，图中纵轴取对数坐标。在图 5.1(e) 中， $O_{\mathbf{k}}(t)$ 和 $I_{\mathbf{k}}(t)$ 都乘上了一个 $e^{\Gamma_e t}$ 因子，这能便于看出它们与单原子含时演化的不同，且它们在 $t = 0$ 时刻都是归一化的。在该图中， $O_{\mathbf{k}}(t)$ 随时间的衰减规律非常接近指数的形式，并且它的衰减速率与式 (5.7) 相符； $I_{\mathbf{k}}(t)$ 在接近初始时刻的时间段里也是指数衰减的，并且它的衰减速率比 $O_{\mathbf{k}}(t)$ 大，但是在衰减了一段时间后它的衰减速率会随时间发生变化，衰减有逐渐减慢的趋势。对于相位匹配的自旋波，原子在 Ω_s 立体角内的不同方向的辐射的初始衰减速率是不一样的^[8]。这导致了 $I_{\mathbf{k}}(t)$ 与 $O_{\mathbf{k}}(t)$ 初始衰减速率的不同。但有意思的是， $I_{\mathbf{k}}(t)$ 的初始衰减速率也近似和平均光学深度呈线性关系，相关的模拟和实验的研究见章节 5.3.2。在图 5.1(e) 中可以注意到，CDM 方程和 MBE 方程的模拟结果在开始阶段是非常接近的，但在长时间的演化过后它们的计算结果会发生偏离，其原因在于：在 MBE 方程中，由于原子样品已作连续化处理，原子间的多重散射的细节会被忽略，而这些细节全部包含在了 CDM 方程中。

现在，我们考虑另外一个有趣的情况。我们设原子的初态为相位失配的自旋波，具体地，有 $|\psi(0)\rangle = |\psi_{\mathbf{k}'}\rangle$ 且 $|\mathbf{k}'| = 2.9\omega_{eg}/c \neq \omega_{eg}/c$ （这里设 $|\mathbf{k}'| = 2.9\omega_{eg}/c$ 是为了和实验对应，并不失一般性），如图 5.1(b) 所示。同样，对于相位失配的自旋波，在图 5.1(d) 中我们也模拟了随机原子气体的辐射场。可以发现，相位失配的自旋波没有定向的超辐射，原因在于当 $|\mathbf{k}'| \neq \omega_{eg}/c$ 时原子的辐射沿任何一个方向都无法相干相加。在随机气体中，原子的辐射场在各个方向是随机干涉的，因此图 5.1(d) 所展现的是杂乱的干涉图案。在图 5.1(f) 中（纵轴

同样取对数坐标), 我们分别利用 CDM 方程和 MBE 方程模拟计算了原子在初始相位失配自旋波态上的布居, 即 $O_{\mathbf{k}'}(t)$ 。图中, MBE 方程的模拟结果 (灰色虚线, 在图中标记为 “ $O_{\mathbf{k}'}(\text{MBE})$ ”) 表明, 当视原子样品为连续介质时, 相位失配自旋波的衰减速率等于单原子自发辐射的衰减速率。与之不同的是, 在 CDM 方程的模拟结果 (红色虚线, 在图中标记为 “ $O_{\mathbf{k}'}(\text{CDM})$ ”) 中, 相位失配自旋波的衰减速率大于单原子的自发辐射衰减速率, 且其衰减的形式是接近指数形式的。图 5.1(f) 中的蓝色虚线 (标记为 “ $O_{\mathbf{k}'}(\text{CDM}, (\text{ii}))$ ”) 同样是 CDM 方程的模拟结果, 不同的是我们把原子样品中相互距离小于 $\lambda_{eg}/2\pi$ ($\lambda_{eg} = 2\pi/k_p$) 的所有原子对移除了, 这些原子对之间有很强的近场偶极-偶极相互作用 ($\sim 1/R^3$ 相互作用, 见章节 2.3)。尽管被移除的原子对占原子总数的比仅为 $\lesssim 3\%$, 但可以看到蓝色虚线在初始阶段的衰减速率降至单原子的衰减速率, 其动力学行为相比红色虚线所示的结果发生了非常大的变化。为了体现出这些靠得很近的原子对的作用, 在绿色虚线 (标记为 “ $O_{\mathbf{k}'}(\text{CDM}, (\text{iii}))$ ”) 的模拟中, 我们完全随机地移除了样品中的原子, 并且移除的数量与蓝色虚线对应的移除原子数相同, 模拟结果表明, 自旋波的动力学几乎没有发生变化。上述模拟的具体参数见图 5.1 的注释。

图 5.1(f) 的结果表明, 距离很近的原子之间的偶极-偶极相互作用 (它们之间 $\sim 1/R^3$ 近场相互作用占主导) 可以显著地影响随机气体中自旋波的衰减动力学, 并且这一现象无法被描述连续介质的 MBE 方程预言, 这说明原子的 “粒子性” 在这里起了很关键的作用。本文研究的核心成果之一是发现测量了相位失配自旋波的衰减速率相对单原子衰减速率的偏离, 即

$$\Gamma_{\mathbf{k}'} \approx \Gamma_e + \gamma'(\rho) \quad (5.10)$$

其中, γ' 是一个与原子密度 ρ 相关的量, 它的具体表达式见章节 5.4。

5.3 自旋波弛豫动力学的超辐射探测

5.3.1 测量与定标原子样品的光学深度和密度分布

自旋波的动力学行为与原子样品的光学深度、空间密度等性质相关 (见章节 5.2), 对这些性质的测量是自旋波动力学实验研究的基础之一。因此, 在研究自旋波的动力学时, 我们会对原子样品的 $\rho(\mathbf{r})$ 、 $\overline{\text{OD}}$ 进行测量, 这会帮助我们探索一些重要的物理规律, 比如式 (5.10)。

在章节 4.3.1 中, 我们利用了图 4.5 所示的方法对原子样品沿 x 方向的光学深度 $\text{OD}_x(y, z)$ 进行了测量。 $\text{OD}_x(y, z)$ 不仅能提供原子的位置信息, 还能提供原子样品尺寸, 原子数等信息。在实验中, 当一束沿着 x 方向的共振照明光透过原子样品时, 它的一部分光子会被原子吸收, 设照明光透射原子样品的光强分

布为 $I_t(y, z)$ ，并且设照明光在没有原子样品时的“透射”光强分布为 $I_{in}(y, z)$ ，那么在照明光是弱光的近似下（即原子样品在照明光下是弱激发的状态）光学深度可定义为 $OD_x(y, z) = -\ln(I_t/I_{in})$ 。另一方面，在弱激发的近似下，原子样品对共振照明光的光学深度也可由下面的式子得到：

$$OD_x(y, z) = \int dx \varrho(x, y, z) \sigma_{sc} \quad (5.11)$$

其中 σ_{sc} 是原子的共振散射截面（见章节 5.2）。在本文中，我们总是考虑原子样品弱激发时的光学深度，其重要原因是，弱激发状态下的光学深度反映的是一个与照明光光强无关的原子样品的本征属性，它与相位匹配自旋波的衰减速率是联系在一起的（见式 (5.7)）。

然而，在实际测量当中，为了增加探测的信噪比，我们会增加照明光的强度来对原子的光学深度进行测量。在强照明光下，原子不处于弱激发状态，其饱和效应会使得它对光子的吸收能力下降，最终表现为照明光的透射率上升。这种饱和效应是与照明光的光强相关的，它通常不利于对原子样品的精密探测。为了抑制饱和效应带来的影响，我们会采用文献^[9-10]中的方法来对强光下的饱和效应进行定标和修正。原子样品的成像探测的具体细节如下。

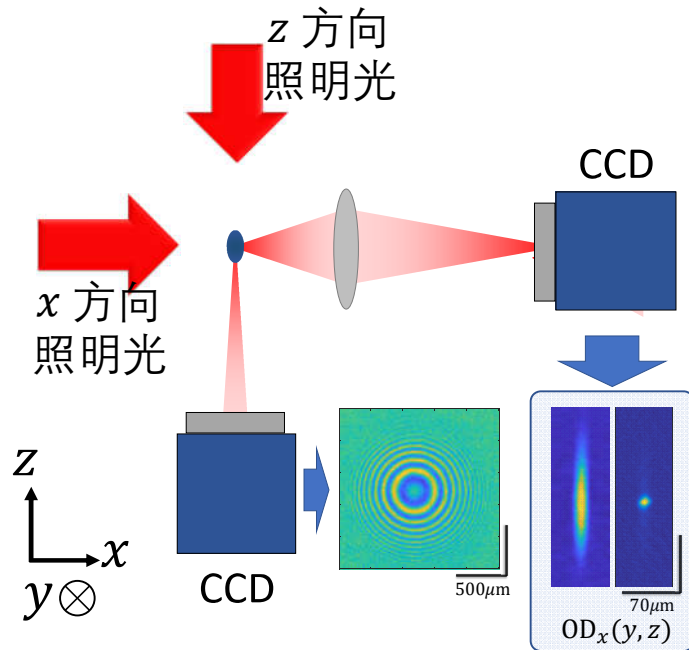


图 5.2 照明光探测原子样品的光路示意图。其中 x 方向成像系统的数值孔径为 $NA = 0.3$ ，图中展示了 x 方向上吸收像的两个例子，从左到右分别对应着长条形的原子样品和近球形的原子样品。 z 方向的成像系统（图中未画出）的数值孔径为 $NA = 0.1$ ，CCD 没有放置在原子样品的焦平面上，我们通过远场的衍射图案来确定 σ_x/σ_y 。

首先，我们考虑图 5.2 中的 x 方向的成像探测（这和图 4.5(b) 中的 x 方向的成像探测是一致的）。实验中，照明光开启的时长为 $\tau_{\text{probe}} = 20 \mu\text{s}$ ，放置在原子焦平面的 CCD 照相机同步曝光以记录照明光的光强分布。照明光的频率与 $5^2S_{1/2}F = 2 - 5^2P_{3/2}F' = 3$ 跃迁共振，该跃迁是循环跃迁。实验中的照明光是线偏振光，在此照明光作用下，原子在 $5^2S_{1/2}F = 2$ 的五个塞曼子能级上会形成一定的稳态分布，此时 $5^2S_{1/2}F = 2 - 5^2P_{3/2}F' = 3$ 跃迁的饱和光强和共振散射截面分别为 $I_{s_2}^{(2)} = 3.054 \text{ mW/cm}^2$ 和 $\sigma_{\text{sc}}^{(2)} = 1.588 \times 10^{-9} \text{ cm}^2$ ，但我们最终关心的是原子在 $5^2S_{1/2}F = 2$ 的五个塞曼子能级上均匀布居（这对应我们自旋波实验的情况，见章节 4.3.3）时的光学性质，此时对应的饱和光强和共振散射截面分别为 $I_{s_2}^{(1)} = 3.577 \text{ mW/cm}^2$ 和 $\sigma_{\text{sc}}^{(1)} = 1.356 \times 10^{-9} \text{ cm}^2$ ，注意到这两种情况相差一个常数因子 0.85，该因子在我们数据处理中会被考虑。饱和光强和散射截面的数据来自文献^[7]。在实验中，为保证探测的信噪比，我们设定 I_t 在原子样品位置附近的光强值在 $1 - 20 \text{ mW/cm}^2$ 的范围内¹，对应的饱和参数为 $s = 0.3 - 7$ ($s \equiv I_t/I_{s_2}^{(2)}$)。在饱和效应下， $\text{OD}_x(y, z)$ 的修正公式为^[9-10]：

$$\text{OD}_x(y, z) = -\ln(I_t/I_{\text{in}}) + \frac{I_{\text{in}} - I_t}{I_s^{\text{eff}}} \quad (5.12)$$

式中的 I_s^{eff} 是等效饱和光强，它是一个待定参数，并且在同样的实验条件下它应是固定值。在实际测量中，我们会利用不同光强的照明光（光强范围为 $1 - 20 \text{ mW/cm}^2$ ）对原子样品进行探测，得到若干组 $\{I_t, I_{\text{in}}\}$ ，并通过优化参数 I_s^{eff} 使得由式 (5.12) 得到的各组 $\{I_t, I_{\text{in}}\}$ 所对应的 OD_x 的方差最小。此时通过 I_s^{eff} 算出来的 OD_x 便对应着原子样品在弱激发极限下的光学深度^[9]。该方法的好处是不需要我们对照明光的绝对光强进行精确测量。由式 (5.11) 易知，原子数可通过 $N = (1/\sigma_{\text{sc}}^{(2)}) \int \text{OD}_x(y, z) dydz$ 来求得。图 5.2 展示了两种原子样品的 $\text{OD}_x(y, z)$ 测量结果，它们分别对应长条形的原子样品和近球形的原子样品（见章节 3.3.7）。在测出样品的 $\text{OD}_x(y, z)$ 后，相应的 $\overline{\text{OD}}_x$ 可通过下面的式子求出：

$$\overline{\text{OD}}_x = \frac{\int (\text{OD}_x(y, z))^2 dydz}{\int \text{OD}_x(y, z) dydz} \quad (5.13)$$

注意到 CCD 像素点的大小有限，所有的积分计算在实际中会被近似成求和。

在实验中我们认为原子的密度分布为高斯分布²。实验制备出的冷原子样品（见章节 3.3.7）的高斯半径可小至 $\sigma_{x,y,z} \sim 4 \mu\text{m}$ ($\sigma_{x,y,z}$ 的含义见式 (5.8))。在实际测量中，我们通常会结合飞行时间（time-of-flight）成像的方法对样品的原

¹此实验条件能保证 CCD 上原子成像位置附近的每个像素在对照明光的单次曝光中有 $\gtrsim 2 \times 10^3$ 个光子计数。

²在光偶极阱的底部原子感受到的势能可近似为简谐势，在热平衡条件下原子样品的密度服从玻尔兹曼分布，简谐势对应的玻尔兹曼分布为高斯分布。

子数进行更精确的测量。举例来说，当冷原子样品从光偶极阱中释放到自由空间后，在施加时长为 $\tau_{\text{probe}} = 20 \mu\text{s}$ 的照明光前我们会让原子在自由空间中“飞行”，“飞行”的时长通常可选为 $T_{\text{tof}} = 0, 50, \dots, 500 \mu\text{s}$ 。在 T_{tof} 的时间里，原子样品会在自由空间中膨胀，体积变大，密度变小——这使得对 $\text{OD}_x(y, z)$ 的测量能利用的 CCD 像素点变多，并且照明光透过原子样品的光强 I_t 不至于太低，可以提高原子数的测量精度（尤其是对于大光学深度的原子样品而言）。另外，通过飞行时间成像的方法我们还可以测出原子样品在自由空间中的膨胀速率，进而求出样品的温度。

通过 x 方向的成像测量（见图 5.2），我们可以得到原子样品的 $\text{OD}_x(y, z)$ ，进而可以测出 $\sigma_{y,z}$ 。为了测出原子样品的 σ_x ，我们会在 z 方向上也施加照明光进行探测。在 z 方向，我们没有对样品进行成像，而是在将 CCD 放置在远场的散焦平面，通过测量远场衍射图案在不同方向上的宽度得到 σ_x/σ_y （见图 5.2）。在通常的实验中，我们会调节形成光偶极阱的光束（见图 3.13）的相对强度，以尽量使得 $\sigma_x/\sigma_y \approx 1$ 。

○ 自旋波调控过程中样品密度分布的变化

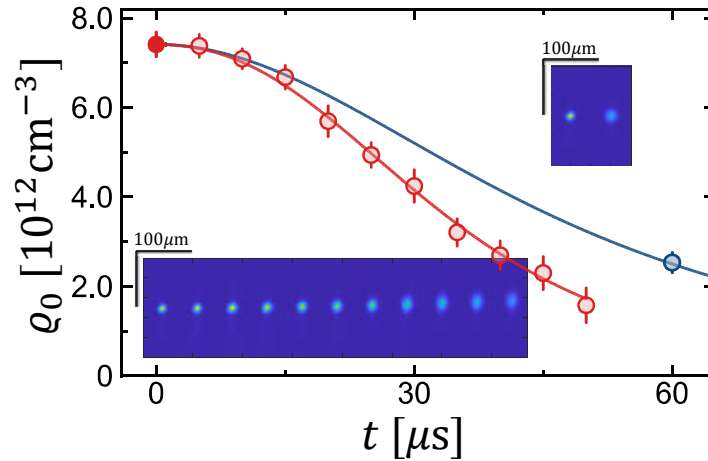


图 5.3 近球形原子样品的峰值密度 ρ_0 随时间变化的测量结果。蓝色实线对应原子样品在自由空间中膨胀，红色实线对应原子样品在自旋波调控的加热效应下膨胀。右上角的两个吸收像分别对应着 $T_{\text{tof}} = 0, 50 \mu\text{s}$ ($\tau_p = 20 \mu\text{s}$)，其中第二张吸收像对应的原子密度在图中以蓝色数据点标出。蓝色曲线是通过拟合 $T_{\text{tof}} = 50, 100, \dots, 500 \mu\text{s}$ 的吸收像数据得到的（所用拟合曲线为自由空间的膨胀曲线，见正文）， $T_{\text{tof}} > 50 \mu\text{s}$ 的数据未在图中标出。我们分别在自旋波实验连续进行了 $j = 0, 6, 13, 21, 28, 35, 42, 50, 57, 64, 72$ 次后终止自旋波的实验时序并紧接着施加 $\tau_p = 20 \mu\text{s}$ 的照明光得到了左下角的吸收像阵列。其他细节见正文。

非简并原子气体在自由空间中的膨胀遵循规律^[11-12]: $\sigma_i(t) = \sqrt{\sigma_{i,0}^2 + \frac{k_B T_i}{m} t^2}$ ($i = x, y, z$)。其中 m 是原子质量; $\sigma_{i,0}$ 和 $\sigma_i(t)$ 分别是原子初始时刻和 t 时刻的高斯半径; T_i 是原子样品在 i 的维度上的温度, 可通过实验测量拟合求出。通过在实验中测量不同 t_j 时刻的 $\sigma_i(t_j)$, 我们可以拟合出原子样品的尺寸随时间的变化, 即 $\sigma_i(t)$ 。实验中照明光的时长是有限值 ($\tau_{\text{probe}} = 20 \mu\text{s}$), 我们会选用 τ_{probe} 时间内的中心时刻来确定 t_j 。受限于照明光的时长, 我们无法直接测量每一时刻原子样品的尺寸, 但这部分无法直接测量的信息可以通过 $\sigma_i(t)$ 的拟合来推断出。结合原子数 N 的测量 (见上文) 和 $\sigma_i(t)$ 的拟合结果, 我们可以推断出自由空间中的原子样品在不同时刻下的密度分布 (以及峰值密度)。

在章节 4.2.2 中我们提到, 为增加荧光信号量, 自旋波的调控实验会在同一原子样品中连续进行 $N_{\text{rep}} = 72$ 次 (经历的总时长为 $\sim 50 \mu\text{s}$), 在此期间原子样品会不断被加热³, 因此它的膨胀不遵循上面提及的规律。实验中, 为求出每一次自旋波调控实验进行时的原子密度分布, 我们设计了相关的实验测量方法, 接下来我们以图 5.3 的为例进行说明。

对于某个特定的“ $N_{\text{rep}} - \text{循环}$ ” (见章节 4.2.2), 我们分别在自旋波实验连续进行了 $j = 0, 6, 13, 21, 28, 35, 42, 50, 57, 64, 72$ 次后终止自旋波的实验时序并对原子样品施加成像光进行空间探测 (结合时间飞行成像技术), 并利用原子样品在自由空间中的膨胀规律拟合出原子样品在第 j 次自旋波结束后的瞬间的原子密度 (见图 5.3 中的红色数据点)。另一方面, 我们认为每一次自旋波实验对原子样品的加热效应是线性累积的, 并且在数学上设 $T_i(t) = T_i(0) + K_i t$ 。这样, 我们可以通过文献^[11]中的格林函数法求得原子尺寸的含时变化应符合: $\sigma_i(t) = \sqrt{\sigma_{i,0}^2 + \frac{k_B T_i(0)}{m} t^2 + \frac{2k_B T_i(0)K_i}{3m} t^3}$ 。利用该式, 我们拟合出原子样品的峰值密度 (高斯分布的中心密度) 在自旋波的“ $N_{\text{rep}} - \text{循环}$ ”中随时间的变化 (见图 5.3 中的红线), 这里我们设 $t = 0$ 为第一次实验循环的开始时刻。实验中我们发现 K_z 的值 ($\sim 2.5 \text{ K/s}$) 一般大于 $K_{x,y}$ 的值 ($\sim 1 \text{ K/s}$), 即原子样品在 z 方向上的加热效应要更明显, 这与 $D1$ 控制光在 z 轴传播有关。由此, 通过拟合得到的 $\sigma_i(t)$, 我们可以知道每一次自旋波实验进行时原子的密度分布。利用这一信息, 我们在进行“ $N_{\text{rep}} - \text{循环}$ ”的自旋波实验时, 会将测得的不同时刻的荧光光子信号按照原子密度进行分组, 以得到自旋波弛豫动力学和原子密度的关联信息 (见章节 5.3.3)。值得注意的是, 虽然这里讨论的是密度的测量, 但是该方法也同样适用于光学深度的测量。

5.3.2 相位匹配自旋波的演化

在章节 4.2.2 所示的集体辐射“转向”的实验中, 我们实现了自旋波的

³加热来源于原子与 $D1$ 控制光、 $D2$ 激发光以及反抽运光相互作用过程中的自发辐射, 实验循环的细节见章节 4.2.2。

$\hat{U}_c(-2\mathbf{k}_c)$ 操作（具体定义见章节 3.2.3），将自旋波的波矢从 \mathbf{k}_p 转变成 \mathbf{k}_s ，自旋波的定向集体辐射也从 \mathbf{k}_p 方向转到了 \mathbf{k}_s 方向（实验结果见图 4.3 中的曲线 (i)–(iv)）。当原子的定向集体辐射转到了 \mathbf{k}_s 方向后，它和 $D2$ 的激发脉冲（沿 \mathbf{k}_p 方向）就在空间上分离了。这允许我们可以在不受背景光干扰的情况下对相位匹配自旋波的定向集体辐射进行观测⁴。这使得我们可以在实验上精确地研究相位匹配自旋波的动力学行为。

结合章节 5.3.1 所论述的原子样品的探测方法，我们研究了不同 \overline{OD} 下相位匹配自旋波的定向集体辐射。实验中，我们设定 $D2$ 线的自旋波激发脉冲的时长为 $\tau_p = 5$ ns，它与 $\hat{U}_c(-2\mathbf{k}_c)$ 操作的时间间隔为 $\Delta t_1 = 0.2$ ns（ Δt_1 的定义见图 4.2(a)），其他实验细节可参考章节 4.2.2 中的集体辐射“转向”实验。在图 5.4 所示的实验中，我们使用了近球形的原子样品，原子样品的尺寸为 $\{\sigma_x, \sigma_y, \sigma_z\} = \{5.4, 4.9, 4.5\}$ μm ，我们通过改变磁光阱的装载时间（章节 3.3.7）来改变样品中的原子数，并且对有着不同原子数的样品进行集体辐射的“转向”实验，测量 \mathbf{k}_s 方向的荧光信号。

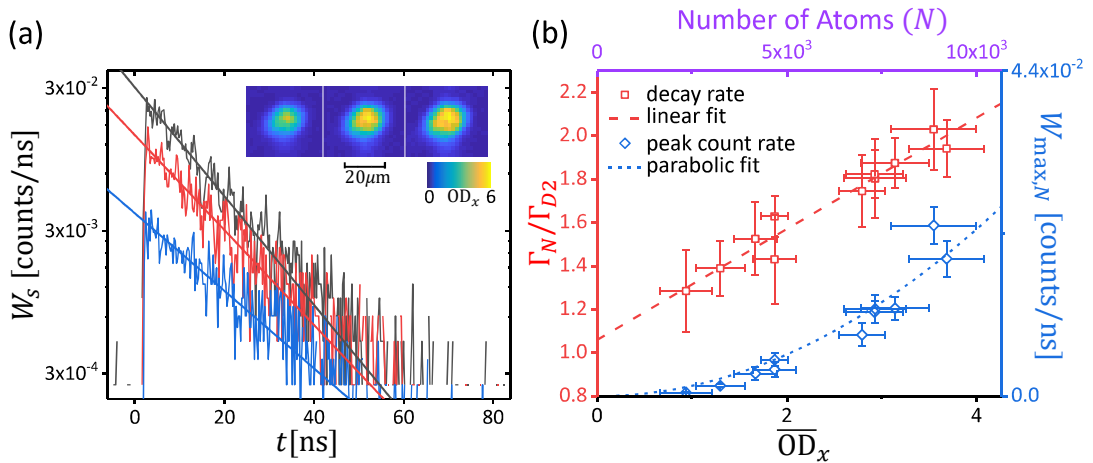


图 5.4 图 (a) 是含时的“转向”荧光信号测量结果。 $W_s = i_{\mathbf{k}_s} / N_{\text{exp}} T_{\text{bin}}$ 是平均单次实验的荧光计数率，在本次测量中实验总次数为 $N_{\text{exp}} = 13000$ （ N_{exp} 的定义见章节 4.2.2），光子计数的时间间隔为 $T_{\text{bin}} = 256$ ps。图 (a) 中的插图是三个原子数不同的样品的 $OD_x(y, z)$ 测量结果（测量方法见章节 5.3.1），它们分别与三条荧光信号曲线对应。我们通过对荧光信号曲线做指数拟合可以求出荧光信号的衰减速率 Γ_N 和峰值强度 $W_{\text{max},N}$ 。图 (b) 是 Γ_N 和 $W_{\text{max},N}$ 在不同的 \overline{OD}_x 下的测量结果。我们通过分析拟合误差和多次重复测量的统计标准差得到图中的误差棒。

图 5.4(a) 展示了三种定向集体辐射的荧光信号，它们分别对应着三种不同原子数的样品（见图 5.4(a) 中的插图），图中的纵轴取对数坐标，图中的三条直

⁴激发光对前向集体辐射探测的影响在通常的实验中是普遍存在的^[6,13]。

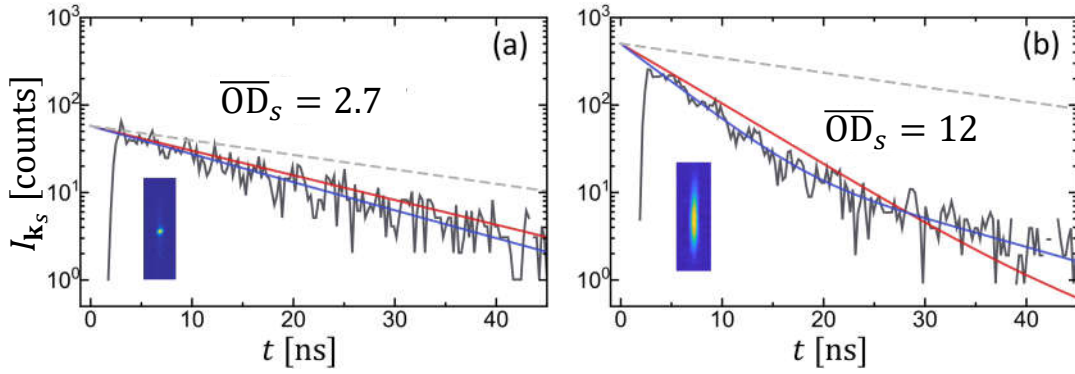


图 5.5 定向集体辐射含时演化的实验测量与数值模拟。图 (a) 和图 (b) 分别对应近球形的原子样品和长条形的原子样品，其中的插图仅是原子样品形状的示意图。图中红色实线和蓝色实线分别对应着 $O_{\mathbf{k}_s}(t)$ 和 $I_{\mathbf{k}_s}(t)$ 的模拟，灰色虚线表示单原子的自发辐射衰减规律。

线为“转向”荧光信号的指数拟合。 W_s 是平均单次实验的荧光计数率，它与荧光信号 $i_{\mathbf{k}_s}$ 的关系为 $W_s = i_{\mathbf{k}_s}/N_{\text{exp}}T_{\text{bin}}$ ，这里 N_{exp} 为实验总次数， $T_{\text{bin}} = 256 \text{ ps}$ 为光子计数的时间间隔，详见章节 4.2.2。在图 5.4(a) 中，自旋波激发脉冲的强度是固定的，我们可以从图中定性地发现：当样品原子数增加时，定向集体辐射的初始荧光强度会变大，而且它的衰减速率也会变大。为了定量地对相位匹配自旋波的辐射行为进行研究，我们将拟合得到的集体辐射衰减速率和初始荧光强度随着原子样品 $\overline{\text{OD}}_x$ 的变化展示在了图 5.4(b) 中。在图 5.4(b) 中，红色虚线是集体辐射衰减速率的线性拟合，拟合的结果为 $\Gamma_N = (1.1 + 0.26\overline{\text{OD}}_x)\Gamma_{D2}$ 。注意到自旋波的波矢 \mathbf{k}_s 不是沿着 x 方向的（见章节 4.2.2），我们通过对原子样品 $\{\sigma_x, \sigma_y, \sigma_z\}$ 的测量可以算出原子样品沿 \mathbf{k}_s 方向的平均光学深度 $\overline{\text{OD}}_s$ 与 $\overline{\text{OD}}_x$ 的关系为 $\overline{\text{OD}}_s = \xi \times \overline{\text{OD}}_x$ ，其中 $\xi \approx 0.8$ 。进一步考虑到 $\hat{U}_c(-2\mathbf{k}_c)$ 操作后会有 $l \approx 10\%$ 的原子不贡献到 $D2$ 的自旋波中（见章节 4.3.3），实际上有 $\overline{\text{OD}}_s \approx (1 - l)\xi \times \overline{\text{OD}}_x$ ，那么我们实际得到的结果为 $\Gamma_N \approx (1.1 + \nu \times \overline{\text{OD}}_s)\Gamma_{D2}$ ，其中 $\nu = 0.35 \pm 0.1$ 。根据章节 5.2 中的讨论，对于严格的前向辐射 ($\propto O_{\mathbf{k}_s}$)，应有 $\nu = 0.25$ （见式 5.7），但实际上我们实验所测的是 \mathbf{k}_s 方向 Ω_s 立体角内的所有辐射荧光 ($\propto I_{\mathbf{k}_s}$)，它所对应的集体自发辐射率应大于 $(1 + 0.25\overline{\text{OD}}_s)\Gamma_{D2}$ ，在本章节的后面我们会结合数值模拟和更多的实验数据对此进行分析。另一方面，我们对荧光信号的峰值强度 $W_{\text{max},N}$ 进行了二次函数拟合⁵，拟合结果表明荧光信号的峰值强度随着原子数是以 $\sim N^2$ 的方式上升的，这从侧面验证了样品的定向集体辐射是各原子辐射的相干相加的结果。

在实验中，我们不仅可以制备出近球形的原子样品，还可以制备出长条形的原子样品（章节 3.3.7）。长条形的原子样品可含有更多的原子数，它在 \mathbf{k}_s 方

⁵拟合模型为 $y = Ax^2$ ，仅有一个拟合参数。

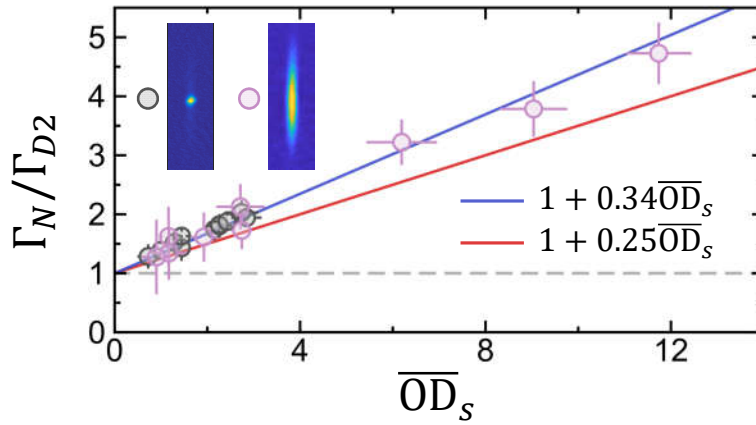


图 5.6 相位匹配自旋波集体辐射的初始衰减速率 Γ_N 与 \overline{OD}_s 的关系。图中，红色实线和蓝色实线分别是 $O_{\mathbf{k}_s}(t)$ 和 $I_{\mathbf{k}_s}(t)$ 的 CDM 模拟结果。两种不同形状的原子样品对应的测量结果均展示在图上。

向上的平均光学深度 \overline{OD}_s 可高达 ~ 12 ，我们在这样的样品中也同样进行上述的自旋波实验，测量相位匹配自旋波的集体辐射。图 5.5 展示了两种原子样品的集体辐射信号，图 5.5 中所标记的 \overline{OD}_s 是通过实验测量的 \overline{OD}_x 以及 $\sigma_{x,y,z}$ （方法见章节 5.3.1）计算出来的，这里 $l \approx 10\%$ 已纳入考虑。对于本章节的实验，长条形原子样品的尺寸为 $\{\sigma_x, \sigma_y, \sigma_z\} = \{4.7, 4.7, 40\} \mu\text{m}$ 。在图 5.5 中，灰色虚线代表单原子的自发辐射衰减规律，而红色实线和蓝色实线分别是 $O_{\mathbf{k}_s}(t)$ 和 $I_{\mathbf{k}_s}(t)$ 的 CDM 模拟结果，具体的模拟涉及到对多能级系统的近似，相关细节见本章末尾。我们发现， $I_{\mathbf{k}_s}(t)$ 的模拟结果与实验测量结果吻合地很好，模拟甚至能还原出实验上大光学深度样品集体辐射衰减速率变慢的趋势（图 5.5(b)）。我们对相位匹配自旋波集体辐射信号的前 10 ns 的数据进行指数拟合，求出其初始衰减速率，并将它和 \overline{OD}_s 的关系展示在图 5.6 中。其中，红色实线和蓝色实线分别对应着 $O_{\mathbf{k}_s}(t)$ 和 $I_{\mathbf{k}_s}(t)$ 的模拟，且模拟的对象是长条形的原子样品（细节见本章节末尾）。在图 5.6 中，我们同时展示了长条形样品和近球形样品对应的集体辐射衰减速率的测量结果，它们都落在了 $I_{\mathbf{k}_s}(t)$ 模拟结果对应的蓝线附近，蓝线近似为直线： $\Gamma_N/\Gamma_{D2} = 1 + \chi \overline{OD}_s$ ，其中 $\chi \approx 0.34$ 。这里 χ 是一个和原子形状、密度分布相关的因子，我们发现对于高斯分布的原子气体， χ 近似为 0.34。实际上，因为不同方向的自旋波之间存在耦合（它们并不正交），相位匹配自旋波集体辐射的空间模式会随时间发生变化，这是导致 $\chi > 0.25$ 的一个重要的原因（见章节 5.2 中的论述）。我们在实验上能够对 χ 的值做定量的测量，这得益于自旋波调控创造的“无背景”条件。

○ $F = 2 - F' = 3$ 跃迁的 CDM 模拟

在实验中，我们的自旋波激发是在 $5^2S_{1/2}F = 2 - 5^2P_{3/2}F' = 3$ （后面将简

写为 $F = 2 - F' = 3$) 跃迁中, 该跃迁是循环跃迁, 其能级结构如图 5.7 所示。在弱激发的近似下, 我们忽略其他超精细结构的子能级, 仅在 $F = 2 - F' = 3$ 的子空间中研究自旋波的动力学。

在章节 2.3.3 中, 我们讨论了二能级原子的 CDM 方程 (式 (2.69)) 和 $J = 0 - J' = 1$ 四能级原子的 CDM 方程 (式 (2.73)), 在这两种情况中原子都只有一个基态。实际上, 基态的唯一性在很大程度上简化了弱激发 (或单激发) 的偶极-偶极相互作用问题。举例来说, N 个二能级原子的希尔伯特空间的维数是 2^N , 而其中单激发态的子空间的维数仅为 N , 在这种情况下 CDM 方程的求解其实是一个在 N 维线性空间内的数学问题。随便一提, 对于 $J = 0 - J' = 1$ 四能级原子而言, 单激发态子空间的维数是 $3N$ 。在本文的实验中, 原子的能级结构为 $F = 2 - F' = 3$, 它的基态有 5 个塞曼子能级且激发态有 7 个塞曼子能级。可以算出, 描述 N 个 $F = 2 - F' = 3$ 原子的单激发态的希尔伯特空间的维数是 $7N \times 5^{N-1}$ 。在这种情况下, 单激发态的偶极-偶极相互作用问题仍然难以被经典计算机有效地解决, 特别是在我们的实验条件下 ($N > 1000$)。

在实际计算中, 我们对该问题进行近似: 我们认为样品中的任一个原子在自旋波激发之前处在某一个基态的塞曼子能级上, 并且在自旋波激发后的演化过程中该原子不会在其他的基态塞曼子能级上有布居。在该近似中, 每一个原子所处的基态被“固定”了, 因此每一个原子都可看作是基态唯一的四能级原子。举个例子, 若样品中的某一原子初始所处的基态为 $|m_g = -2\rangle$, 那么, 考虑到弱激发条件和电偶极跃迁的选择定则, 我们把该原子近似成由能级 $\{|m_g = -2\rangle, |m_e = -3\rangle, |m_e = -2\rangle, |m_e = -1\rangle\}$ 组成的四能级原子, 并且该四能级原子的三个跃迁的相对强度可由图 5.7 中的 Clebsh-Gordan 系数求出。在对实验进行

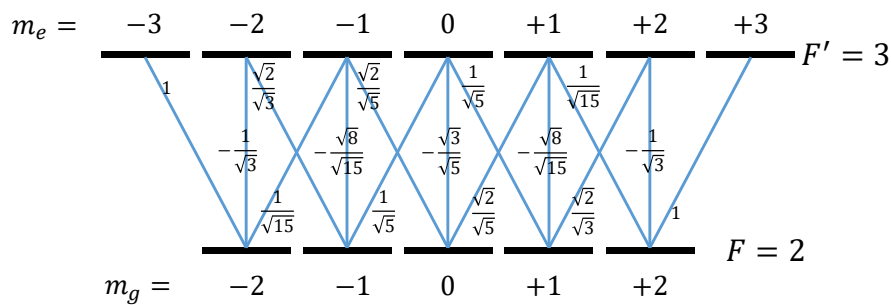


图 5.7 ^{87}Rb 原子 D_2 线的 $5^2S_{1/2}F = 2 - 5^2P_{3/2}F' = 3$ 跃迁的能级结构图。图中标注了不同跃迁对应的 Clebsh-Gordan 系数。根据电偶极跃迁的选择定则, $|m_e - m_g| > 1$ 的跃迁的 Clebsh-Gordan 系数均为 0, 它们未被标注在图上。

数值模拟时, 我们会对随机原子气体中的每一个原子进行基态的随机采样, 即随机确定每一个原子的 m_g 值, 考虑到初始时原子均匀地布居在 5 个基态的塞曼子能级上, 这里的随机采样是按照均匀分布来进行的。当所有原子的 m_g 值确定

后, 系统的 CDM 方程可以写为:

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt}\beta_{j\alpha} &= \left(i\Delta - \frac{\Gamma_e}{2}\right)\beta_{j\alpha} \\ &+ i\frac{3\pi\Gamma_e}{k_p} \sum_{l \neq j} \sum_{\alpha'} \mathbf{e}_{\alpha}^* \cdot \mathbf{G}(\mathbf{r}_j - \mathbf{r}_l, \omega_{eg}) \cdot \mathbf{e}_{\alpha'} \beta_{l\alpha'} C_{m_{g_j}}^{(\alpha)} C_{m_{g_l}}^{(\alpha')} \\ &+ iC_{m_{g_j}}^{(\alpha)} \Omega_{\alpha}(\mathbf{r}_j, t) \end{aligned} \quad (5.14)$$

在上式中有 $\Gamma_e = \Gamma_{D2}$ 。我们记 m_{g_j} 为第 j 个原子的基态磁量子数, $C_{m_{g_j}}^{(\alpha)}$ 表示磁量子数为 m_{g_j} 的基态所对应的 α 偏振跃迁的 Clebsh-Gordan 系数 (见图 5.7)。除了引入的 Clebsh-Gordan 系数外, 上式与式 (2.73) 是一致的。上述“固定”基态近似往往在考虑样品的远场辐射时是有效的, 但它不适用于研究原子的近场相互作用动力学 (见章节 5.4.2)。文献^[14-15]有对该基态随机采样方法进行讨论。

另一方面, 为进一步简化实际的计算过程, 我们还对原子样品的分布进行了标度变换。我们以图 5.5(b) 中的数值模拟为例进行说明。图 5.5(b) 中的长条形原子样品的尺寸为 $\{\sigma_x, \sigma_y, \sigma_z\} = \{4.7, 4.7, 40\} \mu\text{m}$, 测得的原子数为 $N = 4.7 \times 10^4$ 。对于这样的原子样品, 式 (5.14) 的数值求解是需要巨大的计算资源的。为了提高数值模拟的效率, 我们对原子样品作如下变换:

$$\begin{aligned} \tilde{\sigma}_x &= \iota\sigma_x \\ \tilde{\sigma}_y &= \iota\sigma_y \\ \tilde{\sigma}_z &= \iota\sigma_z \\ \tilde{N} &= \iota^2 N \end{aligned} \quad (5.15)$$

应当注意到, 上式变换改变了原子样品的密度, 但保持了光学深度 \overline{OD}_s 不变。当 $\iota = 0.36$ 时, $\tilde{N} = 6000$, 这很大程度上简化了计算。为验证上述变换的有效性, 我们扫描 ι 的值, 让它从 0.12 变到 0.4, 我们发生相应的 $I_{\mathbf{k}_s}$ (或 $O_{\mathbf{k}_s}$) 模拟结果是几乎不变的。实际上, 为保证式 (5.15) 中的变换的有效性, 变换后的 $\tilde{\sigma}_{x,y,z}$ 值不应远小于跃迁波长 λ_{eg} ^[2]。应当注意到, 由于在弱激发区域, CDM 方程可以描述 $D2$ 跃迁的自旋波激发 (式 (5.14) 中的 $\Omega_{\alpha}(\mathbf{r}_j, t)$), 但是不能描述 $D1$ 跃迁的电偶极调控过程。后者在我们研究自旋波的含时演化时常常是被忽略的。

5.3.3 相位失配自旋波的演化

利用本文的自旋波调控技术, 我们不仅能实现原子定向集体辐射的“转向”, 还能将原子样品制备到相位失配的自旋波态中, 并且可以在选定的时刻将其转换为相位匹配的自旋波态, 以“唤醒”原子的定向集体辐射 (见章节

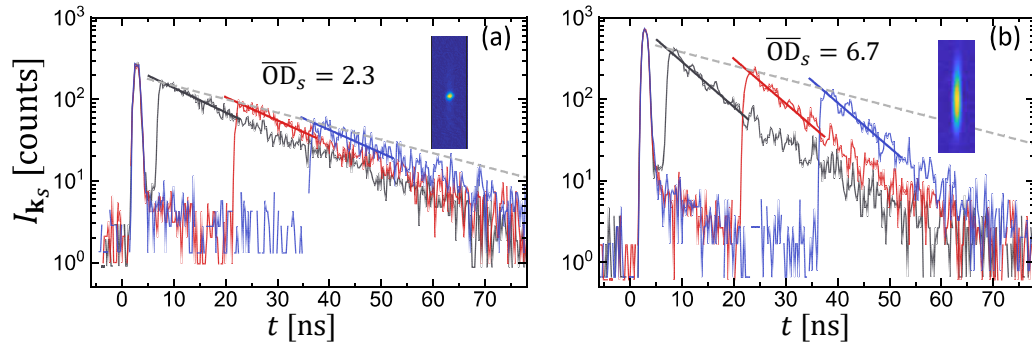


图 5.8 在原子样品中实施“自旋波激发 $-\hat{U}_c(-2\mathbf{k}_c) - \hat{U}_c(-2\mathbf{k}_c) - \hat{U}_c(+2\mathbf{k}_c)$ ”（见图 4.2(a)）的脉冲序列并收集整个过程中 \mathbf{k}_s 方向的荧光信号 $i_{\mathbf{k}_s}$ ，关于实验时序的细节见章节 4.2.2。图中的灰色虚线表示单原子的自发辐射衰减规律（ $\sim e^{-\Gamma_e t}$ ）。图 (a) 和图 (b) 分别表示近球形原子样品和长条形原子样品的实验结果。图中的黑、红、蓝色线段是荧光信号的指数拟合。黑、红、蓝色的荧光信号曲线分别对应着 $\Delta t_3 = 0.5, 15.2, 30$ ns，其余参数与图 4.4 的实验相同。

4.2.2)。现在我们利用该技术手段来研究相位失配自旋波的含时演化。在相位失配的自旋波态中，原子的辐射沿任何方向都不是相干相加的（见图 5.1(d)），此时定向荧光探测将难以收集到原子样品的辐射荧光。为研究相位失配自旋波的演化，我们采用图 4.4 的实验方法，首先利用两个 $\hat{U}_c(-2\mathbf{k}_c)$ 操作将原子样品制备到波矢为 $\mathbf{k}_p - 4\mathbf{k}_c$ 的相位失配的自旋波态上。接着，在系统演化了 Δt_3 的时间后，我们利用一个 $\hat{U}_c(+2\mathbf{k}_c)$ 操作将相位失配的自旋波转变成波矢为 $\mathbf{k}_p - 2\mathbf{k}_c$ 的相位匹配的自旋波，并通过探测被“唤醒”的集体辐射信号来得到相位失配自旋波的演化信息。

在实验中，我们重复制备冷原子样品，改变实验时序中的 Δt_3 （见图 4.2(a)），并且测量在不同的 Δt_3 下被“唤醒”的集体辐射（实验细节见章节 4.2.2）。图 5.8 展示了两种不同原子样品的实验结果，其中灰色虚线表示单原子的自发辐射衰减规律（ $\sim e^{-\Gamma_e t}$ ）。在图 5.8(a) 中，原子样品为近球形，它在 \mathbf{k}_s 方向的平均光学深度 $\overline{OD}_s = 2.3$ ，从图中的测量结果我们可以发现：相位失配的自旋波的衰减速率几乎与单原子的衰减速率相同。而在图 5.8(b) 中，原子样品为长条形且有 $\overline{OD}_s = 6.7$ ，此时它所对应的相位匹配自旋波的集体辐射衰减速率已明显大于单原子的自发辐射衰减速率 Γ_e ，但是其相位失配自旋波的衰减速率仍然非常接近 Γ_e 。在图 5.8 中有一点值得注意，被“唤醒”的定向集体辐射的衰减速率几乎不随 Δt_3 的改变而发生变化：图中的三种颜色的线段是荧光信号的指数拟合，对于不同的 Δt_3 ，它们几乎是平行的。

图 5.8 的结果表明，虽然光学深度可以明显地影响相位匹配自旋波的集体辐射衰减速率，但是它与相位失配自旋波的衰减几乎不呈现出依赖关系。实际上，相位失配的自旋波的衰减速率与原子样品的密度分布相关（式 (5.10)），在章节

5.4 中我们将对此进行理论上的探索和分析。现在，我们不妨先从实验上对相位失配自旋波衰减速率与原子样品密度的依赖关系进行测量。在图 5.9 的实验中，我们改变（近球形）原子样品的密度，并且重复类似图 5.8(a) 的荧光测量以得到不同 Δt_3 所对应的被“唤醒”的集体辐射的总光子数 $n(\Delta t_3)$ ，其中 $n(\Delta t_3)$ 为 $I_{\mathbf{k}_s}(t)$ 在 $\hat{U}_c(+2\mathbf{k}_c)$ 操作结束时刻 T_3 到 $T_3 + 50$ ns 的时间范围内的积分。我们对 $n(\Delta t_3)$ 进行指数拟合（拟合函数为 $A_0 e^{-\Gamma_{\mathbf{k}'_s} \Delta t_3}$ ）得到它随 Δt_3 的衰减速率 $\Gamma_{\mathbf{k}'_s}$ ，并将不同原子样品密度下的 $\Gamma_{\mathbf{k}'_s}$ 的结果展示在图 5.9 中。图中 ρ_0 是原子样品的峰值密度（测量方法见章节 5.3.1）。图 5.9 的结果表明，随着 ρ_0 （或 $\rho_0 \lambda_{eg}^3$ ）的增加，相位失配自旋波的衰减速率 $\Gamma_{\mathbf{k}'_s}$ 也会增加，这一现象是 MBE 方程无法预言的（章节 5.2）。在章节 5.4 中，我们将对相位失配自旋波的含时演化进行理论上的研究，并且会将理论模型的结果与图 5.9 的实验测量作对比。这里值得一提的是， $n(\Delta t_3)$ 是被“唤醒”的集体辐射的总光子数，它与 $\hat{U}_c(+2\mathbf{k}_c)$ 操作前原子在波矢为 $\mathbf{k}_p - 4\mathbf{k}_c$ 的自旋波态上的布居是成正比的，因此 $\Gamma_{\mathbf{k}'_s}$ 代表的是 $O_{\mathbf{k}'_s}$ 的衰减速率。

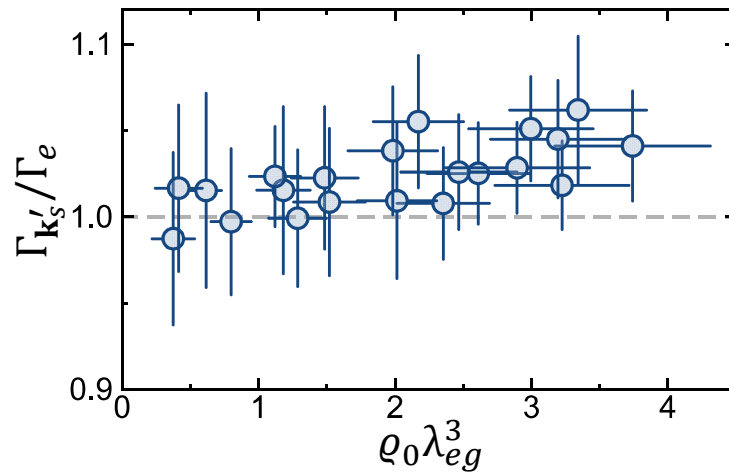


图 5.9 $O_{\mathbf{k}'_s}$ 的衰减速率 $\Gamma_{\mathbf{k}'_s}$ 在不同的原子样品峰值密度 ρ_0 下的测量结果。其中横轴的物理量是原子样品的无量纲峰值密度 $\rho_0 \lambda_{eg}^3$ ($\lambda_{eg} = 780.2$ nm)。

○ Δt_3 的实验选择

在上述实验中，自旋波的调控时序包含了若干个 $\hat{U}_c(\pm 2\mathbf{k}_c)$ 操作，我们利用这些操作实现了原子集体辐射的“转向”、“关闭”和“唤醒”。应当注意到，实验中的 $\hat{U}_c(\pm 2\mathbf{k}_c)$ 操作并不完美（见章节 4.3.3），在每一次 $\hat{U}_c(\pm 2\mathbf{k}_c)$ 操作后原子并非完全回到基态，会有一部分原子残留在 $D1$ 线的激发态上，它们与基态的原子之间会存在着 $D1$ 跃迁的偶极相干（dipole coherence）。当连续两个 $\hat{U}_c(\pm 2\mathbf{k}_c)$ 操作施加到原子样品时，它们分别产生的 $D1$ 跃迁的偶极相干会发生干涉，干涉的结果有可能是相干相长，使得总的偶极相干增加，或者是相干相消，使得总

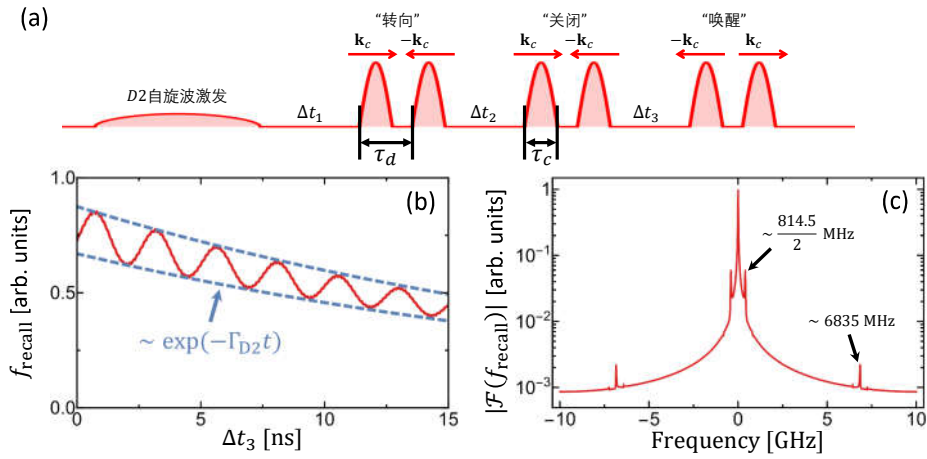


图 5.10 (a) 本章节实验所使用的脉冲时序。(b) 仅改变脉冲时序中的 Δt_3 ，并用“动量晶格”模型模拟最终集体辐射被“唤醒”的效率 $f_{\text{recall}} (\propto n(\Delta t_3))$ 。图中的蓝色虚线代表单原子自发辐射的衰减规律。(c) f_{recall} 的傅里叶变换的模。

的偶极相干减少。干涉的结果取决于两次操作的相对相位。值得一提的是，这种干涉效应在基于复合脉冲的容错量子调控领域中已被广泛地研究^[16-17]。

在图 5.8 的实验中，“关闭”集体辐射的 $\hat{U}_c(-2\mathbf{k}_c)$ 操作和“唤醒”集体辐射的 $\hat{U}_c(+2\mathbf{k}_c)$ 操作也会存在量子调控的干涉效应。“关闭”集体辐射的 $\hat{U}_c(-2\mathbf{k}_c)$ 操作的二个啁啾脉冲和“唤醒”集体辐射的 $\hat{U}_c(+2\mathbf{k}_c)$ 操作的第一个脉冲是同向传播的，它们对原子的调控会直接发生干涉，干涉的结果与它们之间的相对相位相关。在实验中，组成 $\hat{U}_c(\pm 2\mathbf{k}_c)$ 操作的啁啾脉冲的中心频率是 $5S_{1/2} F = 2 - 5P_{1/2} F' = 1, 2$ 跃迁的中点（见图 3.16），我们预期上述两个操作之间的干涉效应会随 Δt_3 的变化而振荡，其频率为 $\Delta_{D1, \text{hfse}}/4\pi = 814.5/2 \text{ MHz}$ （ $\Delta_{D1, \text{hfse}}$ 见图 3.6）。该振荡最终也会反映到“唤醒”的集体辐射的总光子数上。为了对此进行验证，我们利用章节 4.3.2 中的“动量晶格”模型对图 5.10(a) 的时序进行模拟。我们让模拟的参数符合本章节的实验条件，并改变 Δt_3 计算 $\hat{U}_c(+2\mathbf{k}_c)$ 操作后集体辐射被“唤醒”的效率 $f_{\text{recall}} \propto (|\mathbf{d}(\mathbf{k}_s)|^2)_{t=3\tau_c+3\tau_d+\Delta t_1+\Delta t_2+\Delta t_3} \propto n(\Delta t_3)$ ，结果如图 5.10(b) 所示。图 5.10(c) 展示的是图 5.10(b) 结果的傅里叶变换的模。模拟结果表明， $\hat{U}_c(+2\mathbf{k}_c)$ 操作“唤醒”的集体辐射强度随 Δt_3 有频率为 $\Delta_{D1, \text{hfse}}/4\pi$ 的振荡，这与理论预期相符。模拟甚至还预言了 f_{recall} 有 $\sim 6.8 \text{ GHz}$ 的振荡频率，它来源于基态超精细结构能级间的相干性，但其幅值在我们的实验条件下是非常小的，它对实验的影响可忽略。

由上面的讨论可知，被“唤醒”的集体辐射的总光子数 $n(\Delta t_3)$ 随 Δt_3 的变化还会受到自旋波调控本身的影响，这是不利于我们测量 $\Gamma_{\mathbf{k}'_s}$ 的。为了消除自旋波调控本身对 $\Gamma_{\mathbf{k}'_s}$ 测量造成的影响，我们在实验上会选取特定的 Δt_3 来进行测量。一般地，对于每一次 $\Gamma_{\mathbf{k}'_s}$ 的测量，我们会选取两套 Δt_3 进行实验。第一

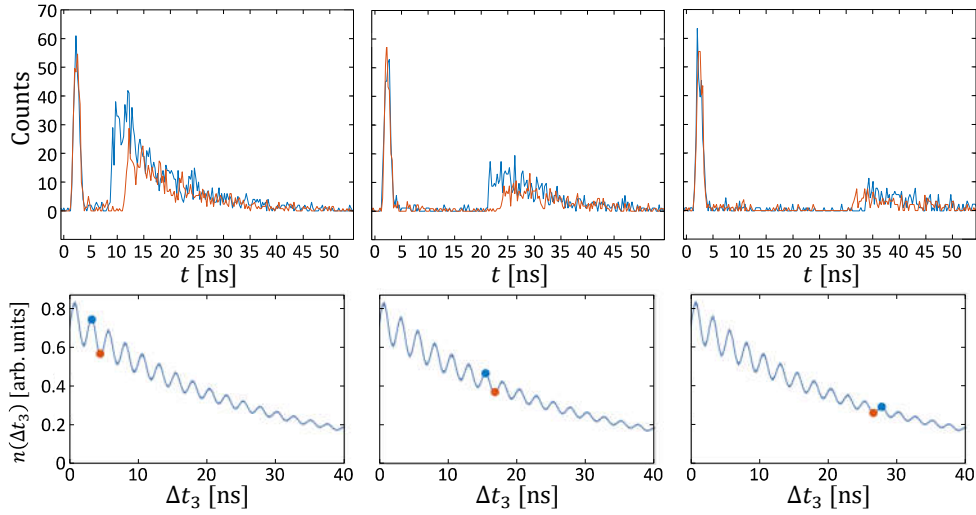


图 5.11 Δt_3 的采样策略的展示。图中的第一行是实验的荧光测量结果，第二行是对应的 $n(\Delta t_3)$ 的模拟结果。第一行的图与第二行的图是一一对应的。其中，第二行图中的圆点标记了两套 Δt_3 的选择，圆点的颜色与第一行图中曲线的颜色是对应的。

套的参数为 $\Delta t_3 = 4\pi m_1 / \Delta_{D1, \text{hfse}} + t_{\text{off}}$ ，它对应着 $f_{\text{recall}} (\propto n(\Delta t_3))$ 随 Δt_3 振荡的波峰，其中 t_{off} 是用以调节 Δt_3 位置的常数参量， m_1 为整数；第二套的参数为 $\Delta t_3 = 4\pi m_2 / \Delta_{D1, \text{hfse}} + t_{\text{off}}$ ，它对应着 $f_{\text{recall}} (\propto n(\Delta t_3))$ 振荡的波谷，其中 m_2 为半整数。图 5.11 展示了一个实验测量的例子，最终 $\Gamma_{\mathbf{k}'_s}$ 的测量值是这两套 $\{\Delta t_3, n(\Delta t_3)\}$ 拟合结果的平均值。

5.4 偶极-偶极近场相互作用下自旋波的失相行为

5.4.1 自旋波的近场弛豫——理论分析

在本章节中，我们将对相位失配自旋波的衰减速率进行理论上的分析，研究它与原子样品的密度依赖关系。为了简单起见，这里我们考虑 N 个能级结构为 $J = 0 - J' = 1$ 的原子（见章节 2.3.3），跃迁（圆）频率仍记为 ω_{eg} ，且有 $k_p = \omega_{eg}/c = 2\pi/\lambda_{eg}$ 。在没有外场的情况下，系统的（有效）哈密顿量为 $\hat{H}_{\text{eff}} = \sum_{j,e,l,e'} \hat{V}_{e,e'}^{jl}$ （参考章节 2.3.3），其中 $\hat{V}_{e,e'}^{jl}$ 的表达式为

$$\hat{V}_{e,e'}^{jl} = -\frac{k_p^2}{\epsilon_0} \mathbf{d}_{ge}^* \cdot \mathbf{G}(\mathbf{r}_j - \mathbf{r}_l, \omega_{eg}) \cdot \mathbf{d}_{ge} \hat{\sigma}_{eg}^j \hat{\sigma}_{ge'}^l \quad (5.16)$$

其中 j 和 l 是原子的指标。原子的激发态有三个能量简并的子能级（见章节 2.3.3）， e 和 e' 是激发态子能级的指标。上式有 $\hat{\sigma}_{ge'}^l = |g_l\rangle\langle e'_l|$ ， $\hat{\sigma}_{e'g}^l = (\hat{\sigma}_{ge'}^l)^\dagger$ 。 \mathbf{G} 的定义见章节 2.3.1。

在弱激发的极限下，我们仅考虑系统的单激发态子空间（见章节 2.3.3）。对于能级结构为 $J = 0 - J' = 1$ 的原子，电偶极跃迁有三种偏振。不失一般性，这里我们考虑原子样品在 $t = 0$ 时刻处在一个 z 方向线偏振激发的自旋波态上，即 $|\psi(0)\rangle = |\psi_{\mathbf{k}}^{(z)}\rangle$ 。那么，按照章节 5.2 中的定义，自旋波的序可写为 $O_{\mathbf{k}}(t) = |\langle \psi_{\mathbf{k}}^{(z)} | \psi(t) \rangle|^2 = |\langle \psi(0) | \psi(t) \rangle|^2$ 。根据章节 2.3.3 中的讨论， $O_{\mathbf{k}}(t)$ 的含时演化可由下式给出：

$$O_{\mathbf{k}}(t) = |\langle \psi(0) | \psi(t) \rangle|^2 = |\langle \psi(0) | e^{-iH_{\text{eff}}t} | \psi(0) \rangle|^2 \quad (5.17)$$

注意到有效哈密顿量 H_{eff} 是非厄米的，我们总是可以将其表达成厄米部分和反厄米部分的求和： $H_{\text{eff}} = H_{\text{re}} + H_{\text{im}}$ 。其中 $H_{\text{re}} = (H_{\text{eff}} + H_{\text{eff}}^\dagger)/2$ 是厄米的，且它的本征值是纯实数； $H_{\text{im}} = (H_{\text{eff}} - H_{\text{eff}}^\dagger)/2$ 是反厄米的，且它的本征值是纯虚数。有效哈密顿量的反厄米部分通常是与系统的能量耗散联系在一起，而厄米的部分则常和系统的能量移动以及波函数失相相关。在系统演化的过程中， H_{re} 和 H_{im} 产生的作用并非是完全相互独立的，它们之间的耦合会对系统的长时间演化产生影响。然而，在考虑系统初始阶段 ($t \ll 1/\Gamma_e$) 的演化时，我们可以近似地解耦有效哈密顿量的厄米部分和反厄米部分。在数学上，当 $t \rightarrow 0$ 时，有：

$$\begin{aligned} e^{-iH_{\text{eff}}t} &= e^{-i(H_{\text{re}}+H_{\text{im}})t} \\ &\approx e^{-iH_{\text{re}}t} e^{-iH_{\text{im}}t} \end{aligned} \quad (5.18)$$

若系统的初态 $|\psi(0)\rangle$ 为相位匹配的自旋波 ($|\mathbf{k}| = \omega_{eg}/c$)，有 $e^{-iH_{\text{im}}t}|\psi(0)\rangle \approx e^{-\Gamma_N t}|\psi(0)\rangle$ ，其中 Γ_N 为集体辐射的衰减速率，在随机原子气体中它与样品的光学深度呈线性关系（见式 (5.7)）。若系统的初态 $|\psi(0)\rangle$ 为相位失配的自旋波 ($|\mathbf{k}| \neq \omega_{eg}/c$)，则有 $e^{-iH_{\text{im}}t}|\psi(0)\rangle \approx e^{-\Gamma_e t}|\psi(0)\rangle$ [18]。现考虑 $|\mathbf{k}| \neq \omega_{eg}/c$ ，那么在式 (5.18) 的近似下，式 (5.17) 可写为

$$O_{\mathbf{k}}(t) = e^{-\Gamma_e t} |\langle \psi(0) | e^{-iH_{\text{re}}t} | \psi(0) \rangle|^2 \quad (5.19)$$

接下来，我们对角化 H_{re} 得到单激发态子空间中的一组正交本征态 $\{|\psi_n\rangle\}$ ($n = 1, \dots, 3N$)，并利用这些本征态表示系统的初态： $|\psi(0)\rangle = \sum_n C_n |\psi_n\rangle$ 。我们记 $|\psi_n\rangle$ 对应的本征值为 ω_n ，那么式 (5.19) 可进一步化为：

$$O_{\mathbf{k}}(t) \approx e^{-\Gamma_e t} \left| \sum_n |C_n|^2 \exp(-i\omega_n t) \right|^2 \quad (5.20)$$

在上式中，等号的右边由两部分组成，第一部分是单原子的自发辐射衰减规律 ($e^{-\Gamma_e t}$)，第二部分与系统的“能谱” $|C_n|^2$ 的傅里叶变换相关。当系统布居在

哈密顿量的各个本征态上时，这些本征态的能量不同会导致系统在各本征态上的分量的相位随时间演化的速度不一致，这最终导致系统波函数与其初态的内积不断下降，这是一种失相（dephasing）行为。在 $N \rightarrow \infty$ 的极限下，我们用 $|C(\omega)|^2 d\omega$ 来替代 $|C_n|^2$ 。下面，我们尝试分析系统的 $|C(\omega)|^2$ 。

不失一般性，我们首先考虑均匀分布的随机原子气体，我们设其密度为 ρ 。在随机原子气体中各原子的位置是独立同分布的。我们假设原子密度 ρ 足够低，以至于三个原子同时出现在 $(4\pi/3)(\lambda_{eg}/2\pi)^3$ 的体积内的概率可以忽略不计。由式 (5.20) 可知，自旋波的失相行为取决于 $|C(\omega)|^2$ 的傅里叶变换，而由傅里叶变换的原理可以进一步地知道， $O_{\mathbf{k}}(t)$ 的初始失相行为是取决于 $|C(\omega)|^2$ 的“高频” ($|\omega| \gg \Gamma_e$) 部分的。实际上，对于我们所考虑的原子样品，“高频”区域的 $|C(\omega)|^2$ 是由样品中原子距离非常近（相对距离 $r_{jl} \ll \lambda_{eg}/2\pi$ ）的原子对贡献的，我们称这些原子对为“近邻原子对”。对于样品中的某一近邻原子对而言，其中的两个原子会感受到彼此间的很强的近场偶极-偶极相互作用，相互作用随距离的形式为 $\sim 1/r_{jl}^3$ （见章节 2.3）。在很强的近场相互作用下，近邻原子对几乎感受不到来自样品中其他原子的影响。近邻原子对可被视作是孤立原子对^[19]。如此一来，对“高频”区域的 $|C(\omega)|^2$ 的求解可以被近似成一个量子的二体问题。当两个原子间的距离满足 $r_{jl} \ll \lambda_{eg}/2\pi$ 时，它们之间的偶极-偶极相互作用以近场相互作用（相互作用形式为 $\sim 1/r_{jl}^3$ ）为主，我们忽略式 (2.48) 中的 $\sim 1/r_{jl}$ 项和 $\sim 1/r_{jl}^2$ 项，可以得到描述原子近场相互作用的格林函数 \mathbf{G}_{near} ：

$$\mathbf{G}_{\text{near}}(\mathbf{r}_{jl}, \omega_{eg}) = \frac{1}{4\pi k_p^2 r_{jl}^3} \left(-\mathbb{1} + 3 \times \frac{\mathbf{r}_{jl} \otimes \mathbf{r}_{jl}}{r_{jl}^2} \right) \quad (5.21)$$

在上式中有 $\mathbf{r}_{jl} = \mathbf{r}_j - \mathbf{r}_l$ ， $r_{jl} = |\mathbf{r}_{jl}|$ 。现在，我们将式 (5.16) 中的格林函数 \mathbf{G} 替换成式 (5.21) 中的近场格林函数 \mathbf{G}_{near} ，得到 $\hat{V}_{e,e'}^{jl}$ 的近场形式：

$$\hat{V}_{e,e'}^{jl,\text{near}} = -\frac{k_p^2}{\epsilon_0} \mathbf{d}_{ge}^* \cdot \mathbf{G}_{\text{near}}(\mathbf{r}_{jl}, \omega_{eg}) \cdot \mathbf{d}_{ge} \hat{\sigma}_{eg}^j \hat{\sigma}_{ge'}^l \quad (5.22)$$

通过对角化哈密顿量 $\hat{H}_{\text{near}}^{jl} = \sum_{e,e'} \hat{V}_{e,e'}^{jl,\text{near}}$ ，我们可以近似地求出近邻原子对的本征态和本征能量。值得一提的是，近场相互作用势是保守势，因此近场相互作用的哈密顿量的本征能量是纯实数。这里考虑的近邻原子对是由两个能级结构为 $J = 0 - J' = 1$ 的原子组成的系统，该系统共有 6 个本征态，由于原子间的距离很近，其中三个近似为对称态 ($\sim (|g_j e_l\rangle + |e_j g_l\rangle)$)，另三个近似为反对称态 ($\sim (|g_j e_l\rangle - |e_j g_l\rangle)$)。另外，由于近邻原子对中的两个原子的距离很近 ($r_{jl} \ll \lambda_{eg}/2\pi$)，在本文的自旋波激发与调控过程中它们所能感受到的空间光学相位应该是一致的，因此近邻原子对的三个反对称的本征态是难以被激发的，我们只需考虑它们的三个对称的本征态。通过对角化近场相互作用的哈密顿量

$\hat{H}_{\text{near}}^{jl}$, 我们可以求得近邻原子对三个对称本征态的本征能量:

$$\omega_{\text{pair}}(r_{jl}) \approx \left\{ -2 \times \frac{3\Gamma_e}{4k_p^3 r_{jl}^3}, \frac{3\Gamma_e}{4k_p^3 r_{jl}^3}, \frac{3\Gamma_e}{4k_p^3 r_{jl}^3} \right\} \quad (5.23)$$

上式三个本征能量对应着三个对称的本征态 (或者本征模式), 在能量为 $-2 \times (3\Gamma_e)/(4k_p^3 r_{jl}^3)$ 的本征态中, 原子被激发的电偶极子的偏振是沿着 \mathbf{r}_{jl} 方向的, 另两个本征态对应的偏振则垂直于 \mathbf{r}_{jl} 方向。

对于一个均匀分布且密度为 ρ 的随机气体而言, 原子的二体径向分布为 $\rho \times 4\pi r^2 dr$; 另一方面, 原子在能量上的分布为 $|C(\omega)|^2 d\omega$ 。近邻原子对的能量 $\hbar\omega_{\text{pair}}$ 有 $\sim 1/r^3$ 的渐近形式 (见式 (5.23))。利用数学关系 $|C(\omega)|^2 d\omega = \rho \times 4\pi r^2 dr$ 我们可以求出 $|C(\omega)|^2$ 在 $|\omega| \gg \Gamma_e$ 时的渐近形式为 $\sim 1/\omega^2$ [20]。在 $|\omega| \gg \Gamma_e$ 的区域, $|C(\omega)|^2$ 的渐近形式与洛伦兹函数⁶的渐近形式是一致的, 都为 $\sim 1/\omega^2$ 。这暗示着 $|\int |C(\omega)|^2 \exp(-i\omega t) d\omega|^2$ 在初始阶段是随 t 指数衰减的函数。根据 $|C(\omega)|^2$ 的渐近形式, 我们不妨将其设为洛伦兹函数的形式:

$$|C(\omega)|^2 = \frac{1}{\pi} \frac{\gamma'/2}{\omega^2 + \gamma'^2/4}. \quad (5.24)$$

其中 $\gamma' > 0$ 是待定系数, 且不难验证: $\int_{-\infty}^{\infty} |C(\omega)|^2 d\omega = 1$ 。应当注意到, 上式在 $|\omega| \sim 0$ 的区域是不正确的, 该区域对应的是系统的长时间演化规律; 但上式在 $|\omega| \gg \Gamma_e$ 的区域是一个很好的近似, 我们可以利用它在大 $|\omega|$ 时的渐近行为 ($\sim 1/\omega^2$) 来研究系统初始阶段的演化规律, 下面我们作进一步的论述。

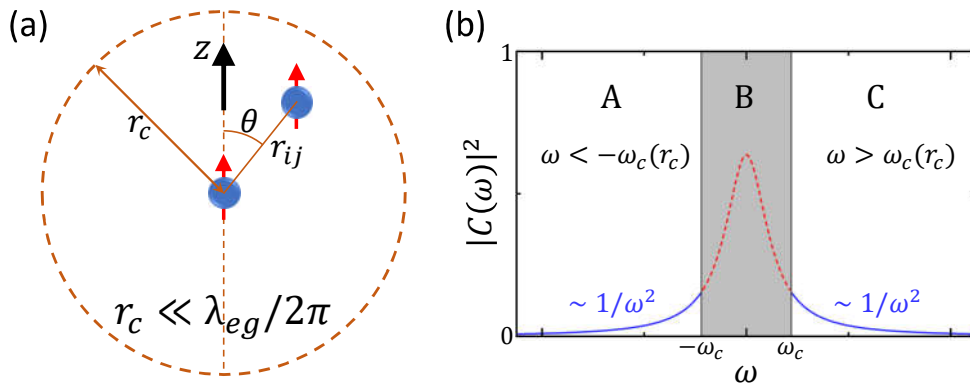


图 5.12 (a) 相对距离为 r_{ij} 的两个原子组成一个近邻原子对, 其中 $r_{ij} < r_c \ll \lambda_{eg}/2\pi$ 。(b) $|C(\omega)|^2$ 的示意图。图中的“**A**”和“**C**”区间是“高频”区间, 在其中 $|C(\omega)|^2$ 的渐近形式为 $\sim 1/\omega^2$ 。图中的洛伦兹函数 (见式 (5.24)) 在“**B**”区间用红色虚线表示, 因为它不能正确地反映 $|C(\omega)|^2$ 在“低频”区间的规律。

⁶洛伦兹函数的一般形式为 $f(\omega) \sim \frac{\gamma/2}{\omega^2 + \gamma^2/4}$, 其中 $\gamma > 0$, 它的傅里叶变换为指数衰减函数: $\tilde{f}(t) \sim e^{-\gamma|t|/2}$ 。

为了确定式 (5.24) 中的 γ' ，我们从原子的二体分布出发，考虑自旋波激发下的近邻原子对的本征态布居情况。如图 5.12(a) 所示，不妨设一个原子处在空间的原点上，那么在球坐标为 (r, θ, ϕ) 的位置处的体积元 $dV = r^2 \sin \theta dr d\theta d\phi$ 内找到另一个原子的概率为 $dP = \rho \times r^2 \sin \theta dr d\theta d\phi$ ，这里我们考虑 $r < r_c \ll \lambda/2\pi$ ，以保证所讨论的两个原子是近邻原子对。 r_c 是二体分布的截断距离， $r < r_c$ 对应着 ω 的低频截断，即 $\omega > \omega_c$ ， r_c 与 ω_c 的关系由式 (5.23) 决定。不失一般性，我们现考虑图 5.12(a) 所示的近邻原子对，并假设自旋波的激发的偏振沿着 z 方向，那么该近邻原子对在三个对称的本征态（本征能量列举在式 (5.23) 中）上的布居可通过投影的方法算出：以能量为 $-2 \times (3\Gamma_e)/(4k_p^3 r_{jl}^3)$ 的本征态为例，它对应的布居为 $\cos^2 \theta$ 。由此，我们可以计算出系统的 $|C(\omega)|^2$ 在 $\omega < -\omega_c$ 内的积分：

$$\begin{aligned} & \lim_{\omega_c \rightarrow \infty} \int_{-\infty}^{-\omega_c} |C(\omega)|^2 d\omega \\ &= \int_0^{r_c} \int_0^\pi \int_0^{2\pi} \rho \times r^2 \cos^2 \theta \sin \theta dr d\theta d\phi \\ &= \frac{1}{3} \times \frac{4}{3} \pi r_c^3 \rho \end{aligned} \quad (5.25)$$

另一方面，上式的积分可以通过式 (5.24) 等价地算出：

$$\lim_{\omega_c \rightarrow \infty} \int_{-\infty}^{-\omega_c} |C(\omega)|^2 d\omega = \int_{-\infty}^{-\omega_c} \frac{\gamma'}{2\pi\omega^2} = \frac{\gamma'}{2\pi\omega_c} \quad (5.26)$$

同时，根据式 (5.23) 我们可以得到 ω_c 与 r_c 的关系：

$$\omega_c = 2 \times \frac{3\Gamma_e}{4k_p^3 r_c^3} = \frac{6\lambda_{eg}^3 \Gamma_e}{4(2\pi)^3 r_c^3} \quad (5.27)$$

联立式 (5.25) – (5.27) 可以得到一个与原子密度相关的“失相”速率：

$$\gamma' = \frac{1}{6\pi} \rho \lambda_{eg}^3 \Gamma_e \quad (5.28)$$

利用上面这些结果，我们由式 (5.20) 可得到相位失配自旋波的“存活率”的衰减速率为

$$\Gamma_{\mathbf{k}'} = \left(1 + \frac{1}{6\pi} \rho \lambda_{eg}^3 \right) \Gamma_e \quad (5.29)$$

其中 $|\mathbf{k}'| \neq \omega_{eg}/c$ 。应当注意到，我们在推导式 (5.28) 的过程中并没有假定原子处于相位失配的自旋波态中，因此该结论也适用于相位匹配的自旋波态。当 $|\mathbf{k}| = \omega_{eg}/c$ 时，相位匹配自旋波的“存活率”的初始衰减速率应为

$$\Gamma_{\mathbf{k}} = \Gamma_N + \frac{1}{6\pi} \rho \lambda_{eg}^3 \Gamma_e \quad (5.30)$$

其中 Γ_N 由式 (5.7) 给出。式 (5.30) 表明，在相位匹配的自旋波中也同样存在着“失相”的现象，也就是说，式 (5.28) 的结论是具有普遍性的。但在实际情况中，要想在相位匹配的自旋波中测出 γ' 是十分困难的，因为 Γ_N 和 γ' 都与原子数相关，并且，在通常的原子样品中相位匹配自旋波的“失相”效应是容易被“超辐射”效应掩盖的，即 $(\Gamma_N - \Gamma_e) \gg \gamma'$ 。

在上面的推导过程中，我们为简单起见假设了原子在空间上是均匀分布的。实际上，式 (5.28) 的结论可以直接推广到密度分布为高斯分布的原子样品（或任意光滑分布的原子样品）中。我们设原子的密度分布为 $\varrho(\mathbf{r}) = \varrho_0 e^{-\frac{x^2}{2\sigma_x^2} - \frac{y^2}{2\sigma_y^2} - \frac{z^2}{2\sigma_z^2}}$ ，那么它对应的相位失配自旋波的衰减速率可以通过对密度分布求平均来得到：

$$\begin{aligned}\Gamma_{\mathbf{k}'} &= \left(1 + \frac{1}{6\pi} \overline{\varrho(\mathbf{r})} \lambda_{eg}^3\right) \Gamma_e \\ &= \left(1 + \frac{1}{12\sqrt{2}\pi} \varrho_0 \lambda_{eg}^3\right) \Gamma_e\end{aligned}\quad (5.31)$$

其中， $\overline{\varrho(\mathbf{r})}$ 的定义为：

$$\overline{\varrho(\mathbf{r})} \equiv \frac{\int (\varrho(\mathbf{r}))^2 d^3\mathbf{r}}{\int \varrho(\mathbf{r}) d^3\mathbf{r}} = \frac{\varrho_0}{2\sqrt{2}} \quad (5.32)$$

在式 (5.18) 所示的近似中，我们认为系统的相互作用哈密顿量的厄米部分和非厄米部分是能够直接分解的，这一近似在 $t \rightarrow 0$ 的时刻中是显然成立的，我们也由此推导出了相位失配自旋波的初始衰减速率 $\Gamma_{\mathbf{k}'}$ （见式 (5.29)）。实际上，“ $t \rightarrow 0$ ”这一条件过于保守，在图 5.1(f) 所示的模拟结果中我们可以看到，相位失配的自旋波从 $t = 0$ 到 $t \sim 1/\Gamma_e$ 的演化过程中一直近似地保持着其初始的衰减速率 $\Gamma_{\mathbf{k}'}$ ，尽管原子样品的峰值密度高达 $\varrho_0 \lambda_{eg}^3 \approx 5$ 。

为了进一步验证上述结论，我们利用 CDM 方程（式 (2.73)）对高斯分布的原子样品中的相位失配自旋波的含时演化进行模拟，结果如图 5.13 所示。在图 5.13 的模拟中，我们设原子的初态是波矢为 \mathbf{k}'_s ($|\mathbf{k}'_s| = 2.9\omega_{eg}/c$) 的自旋波态，并让其在无外场的条件下自由演化。我们固定 $\sigma_x = \sigma_y = \sigma_z = 2.5\lambda_{eg}$ ，并且通过改变样品的原子数 N 来改变其峰值密度 ϱ_0 。图 5.13(a) 展示了在 $\varrho_0 \lambda_{eg}^3 = 6.7$ 的条件下 $O_{\mathbf{k}'_s}(t)$ （定义详见章节 5.2）的含时演化，可以看出其衰减速率在较长的时间内是保持不变的，图中 $1/\Gamma_e = 26.2$ ns。我们改变原子数 N ($\propto \varrho_0 \lambda_{eg}^3$) 并算出相应的 $O_{\mathbf{k}'_s}(t)$ ，然后对 $O_{\mathbf{k}'_s}(t)$ 前 30 ns 的模拟结果进行指数拟合，得到衰减速率 $\Gamma_{\mathbf{k}'_s}$ 。 $\Gamma_{\mathbf{k}'_s}$ 与 $\varrho_0 \lambda_{eg}^3$ 的关系如图 5.13(b) 所示，其中黑色的虚线表示式 (5.31) 中的结论，它与数值模拟的结果吻合得很好。在图 5.13 的 CDM 模拟中，我们对每一个条件下的随机气体都做了 500 次采样，我们分别对这些不同的采样进行数值模拟，最终结果取系综平均。

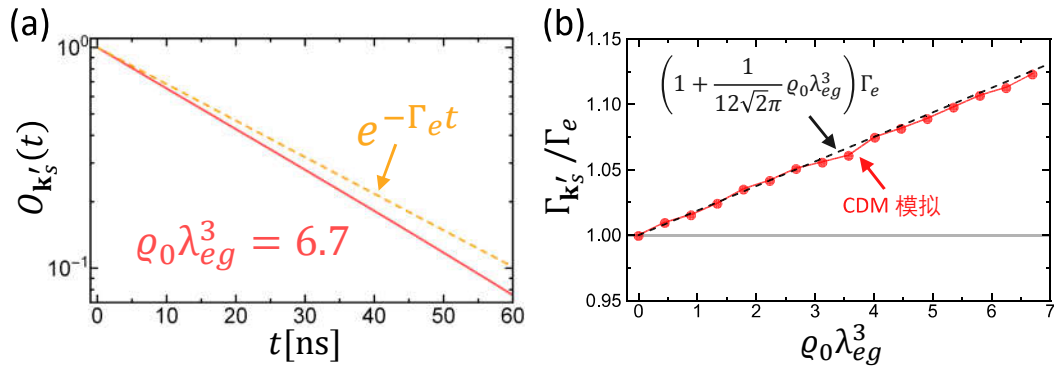


图 5.13 (a) 在 $\rho_0 \lambda_{eg}^3 = 6.7$ 的条件下 $O_{k'_s}(t)$ 的含时演化。(b) 相位失配自旋波衰减速率 $\Gamma_{k'_s}$ 与 $\rho_0 \lambda_{eg}^3$ 的关系。数值模拟的具体细节见正文相关讨论。

5.4.2 自旋波的近场弛豫——多能级修正

在章节 5.4.1 中，我们推导了 $J = 0 - J' = 1$ 原子的相位失配自旋波的衰减速率 $\Gamma_{k'}$ （见式 (5.29) 和式 (5.31)），它与原子样品的密度呈线性关系。然而，相关的理论结果仍不能直接用于定量研究章节 5.3.3 中的实验测量（见图 5.9），因为实验中原子的能级结构为 $F = 2 - F' = 3$ （见图 5.7）。对于能级结构为 $F = 2 - F' = 3$ 的原子，原则上我们也可以通过章节 5.4.1 的方法推导出相应的相位失配自旋波的衰减速率 $\Gamma_{k'}$ ，但这在数学上的难度会相当大。在本章节中，我们将结合章节 5.4.1 中的论述和数值计算的方法来求出 $F = 2 - F' = 3$ 原子的相位失配自旋波的衰减速率。

式 (5.20) 给我们的启示是，量子态在频域上的性质与它在时域上的演化是联系在一起的。在上一章节中，我们通过求近邻原子对的近场相互作用能 $\hbar\omega_{\text{pair}} \sim 1/r_{jl}^3$ （见式 (5.23)）得到了系统自旋波态的能量分布 $|C(\omega)|^2$ 在“高频”区域 ($|\omega| \gg \Gamma_e$) 的渐近行为： $\sim \gamma'/2\pi\omega^2$ 。对于 $J = 0 - J' = 1$ 的原子，我们解析地求出了系数 γ' 关于原子密度的表达式（见式 (5.28)），并由此得到了相位失配自旋波的衰减速率 $\Gamma_{k'}$ 。实际上，我们也可以通过数值计算的方法求得系统的 $|C(\omega)|^2$ 在“高频”区域的函数形式，下面我们首先以 $J = 0 - J' = 1$ 的原子为例进行说明。

当均匀分布的随机原子气体的密度为 ρ 时，其中的近邻原子对的相对位矢 \mathbf{r} 的概率分布在球坐标 (r, θ, ϕ) 的表示下的微分形式为 $dP = \rho \times r^2 \sin\theta dr d\theta d\phi$ ，其中 r 满足 $r < r_c$ 的条件， r_c 为截断距离（见章节 5.4.1）。我们可以根据近邻原子对相对位矢的概率分布进行多次数值采样，得到 N_{pair} 组不同位置构型的近邻原子对（图 5.12(a) 是近邻原子对的位置构型的一个例子），并让这些近邻原子对都处在 z 方向（原子量子化轴方向）偏振的对称单激发态 ($\sim (|g_j e_i\rangle + |e_j g_i\rangle)$) 上（见章节 5.4.1 的讨论）。这时，我们可以求出每一组近邻原子对在其近场相互作用哈密顿量 $\hat{H}_{\text{near}}^{jl}$ （见章节 5.4.1）的各个本征态上的布居，以及这些布居

对应的本征能量，并通过综合统计 N_{pair} 组采样的结果得到近邻原子对的能量分布 $|C_{\text{near}}(\omega)|^2$ 。根据章节 5.4.1 的论述不难得知，当 $|\omega| \gg \Gamma_e$ 时应有 $|C(\omega)|^2 \approx |C_{\text{near}}(\omega)|^2$ 。对于 $J = 0 - J' = 1$ 的原子， $|C_{\text{near}}(\omega)|^2$ 的一个数值计算的结果如图 5.14(a) 所示，相关的参数设置见图 5.14 的说明文字。图 5.14(a) 中的黑线是 $|C_{\text{near}}(\omega)|^2$ 的数值计算结果，而红色虚线是式 (5.24) 所示的洛伦兹曲线的拟合结果（拟合区域见图 5.14 的说明文字），拟合得到的参数为 $\gamma' = \xi \times \frac{1}{6\pi} \rho \lambda_{eg}^3 \Gamma_e$ ，其中 $\xi = 1.00$ ，这一结果与式 (5.28) 的结论是相符的。因为我们在数值计算过程中设定了近邻原子对的截断距离 r_c ，因此图 5.14(a) 中的 $|C_{\text{near}}(\omega)|^2$ 有低频截断，且截断的频率在正、负 ω 的区域不对称，这与式 (5.23) 所示的结果是吻合的。

现在，我们尝试将 $|C_{\text{near}}(\omega)|^2$ 的数值计算推广到 $F = 2 - F' = 3$ 的原子。对于两个能级结构为 $F = 2 - F' = 3$ 的原子而言，它们之间的偶极-偶极相互作用势为 $\hat{H}_{\text{int}}^{jl} = \sum_{g,g',e,e'} \hat{V}_{e'g',eg}^{jl}$ 。其中 j 和 l 是原子指标， $\hat{V}_{e'g',eg}^{jl}$ 的表示式为^[21]：

$$\hat{V}_{e'g',eg}^{jl} = -\frac{k_p^2 d_{F'F}^2}{\epsilon_0} \mathbf{e}_{ge}^* \cdot \mathbf{G}(\mathbf{r}_j - \mathbf{r}_l, \omega_{eg}) \cdot \mathbf{e}_{g'e'} C_e^g C_{e'}^{g'} \hat{\sigma}_{eg}^j \hat{\sigma}_{g'e'}^l \quad (5.33)$$

在上式中， $d_{F'F}$ 是 $F = 2 - F' = 3$ 跃迁的约化偶极矩阵元，有 $\Gamma_e = \frac{\omega_{eg}^3 d_{F'F}^2}{3\pi \hbar \epsilon_0 c^3}$ 。 Γ_e 是激发态的单原子自发辐射衰减速率（激发态中的每一个塞曼子能级的单原子自发辐射衰减速率都为 Γ_e ）。 g 和 e 分别为基态塞曼子能级和激发态塞曼子能级的指标， C_e^g 表示 g 、 e 对应的子能级之间的 Clebsh-Gordan 系数， C_e^g 的具体值见图 5.7。与式 (5.22) 类似，式 (5.33) 的近场形式为

$$\hat{V}_{e'g',eg}^{jl,\text{near}} = -\frac{k_p^2 d_{F'F}^2}{\epsilon_0} \mathbf{e}_{ge}^* \cdot \mathbf{G}_{\text{near}}(\mathbf{r}_{jl}, \omega_{eg}) \cdot \mathbf{e}_{g'e'} C_e^g C_{e'}^{g'} \hat{\sigma}_{eg}^j \hat{\sigma}_{g'e'}^l \quad (5.34)$$

于是，近邻原子对的近场相互作用哈密顿量为 $\hat{H}_{\text{near}}^{jl} = \sum_{g,g',e,e'} \hat{V}_{e'g',eg}^{jl,\text{near}}$ 。现在，对于能级结构为 $F = 2 - F' = 3$ 的原子（我们认为原子在自旋波激发之前处在 5 个基态塞曼子能级的均匀混合态上，见式 (4.10)），我们同样可以数值计算出当原子密度为 ρ 时近邻原子对的能量分布 $|C_{\text{near}}(\omega)|^2$ ，结果如图 5.14(b) 所示。在图 5.14(b) 中，红色虚数也为洛伦兹函数（式 (5.24)）的拟合（拟合区域见图 5.14 的说明文字），其结果为 $\gamma' = \xi \times \frac{1}{6\pi} \rho \lambda_{eg}^3 \Gamma_e$ ，其中 $\xi = 0.64$ 。与“ $J = 0 - J' = 1$ ”的结果（图 5.14(a)）不同的是，即使我们在计算过程中设置了相同的截断距离 r_c ，图 5.14(b) 中的 $|C_{\text{near}}(\omega)|^2$ 在 $|\omega| \sim 0$ 的区域仍有较大的值，它并未表现出明显的“低频截断”，其根源是 $F = 2 - F' = 3$ 跃迁的 Clebsh-Gordan 系数打破了近场相互作用哈密顿量 $\hat{H}_{\text{near}}^{jl}$ 的空间对称性，这使得两个 $F = 2 - F' = 3$ 原子即使在靠得很近的情况下也有可能产生能量很低的本征态。 $\xi = 0.64$ 是一个重要的数值计算的结论，它表明在 $F = 2 - F' = 3$ 原子的随机气体中（线偏振）相位

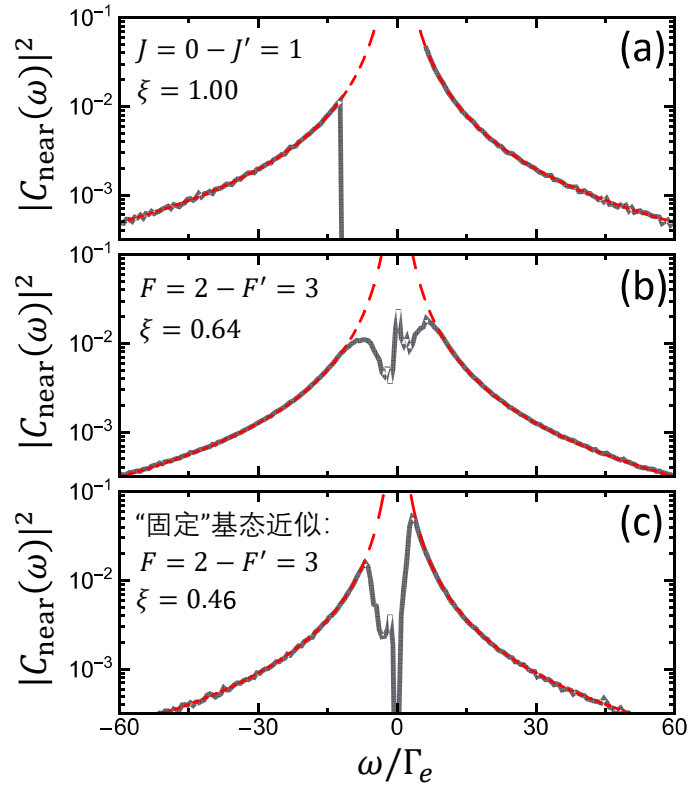


图 5.14 图中的黑线为近邻原子对的能量分布 $|C_{\text{near}}(\omega)|^2$ 的数值计算结果。在数值计算中，原子的密度设为 $\rho = 8/\lambda_{eg}^3$ ，近邻原子对相对位矢的截断距离为 $r_c = \lambda_{eg}/4\pi$ ，近邻原子对位置构型的采样次数为 $N_{\text{pair}} = 5 \times 10^5$ 。图中的红色虚线是对黑线的拟合结果，拟合的函数为式 (5.24) 所示的洛伦兹函数， γ' 是唯一的拟合参数，拟合的结果用 $\xi = \gamma' / (\frac{1}{6\pi}\rho\lambda_{eg}^3\Gamma_e)$ 表示在图上，进行拟合的频率区间为 $|\omega/\Gamma_e| \geq 15$ 。相关的讨论见正文。

失配自旋波的衰减速率为

$$\begin{aligned} \Gamma_{\mathbf{k}'} &= \left(1 + \xi \times \frac{1}{6\pi}\rho\lambda_{eg}^3\right) \Gamma_e \\ &= \left(1 + 0.64 \times \frac{1}{6\pi}\rho\lambda_{eg}^3\right) \Gamma_e \end{aligned} \quad (5.35)$$

它随原子密度 ρ 变化的斜率比式 (5.29) 所示的斜率小。值得一提的是，式 (5.35) 中的系数 ξ 实际上与自旋波激发的偏振有关， $\xi = 0.64$ 是在线偏振自旋波激发下的计算结果，对于圆偏振的自旋波激发，相应的数值计算结果为 $\xi = 0.66$ 。而对于任意的偏振， ξ 介于 0.64 与 0.66 之间。

在章节 5.3.2 中，我们介绍了求解多个弱激发 $F = 2 - F' = 3$ 原子含时演化的一种近似方法，即假设样品中的每一个原子在演化过程中都可被视为基态唯一的四能级原子。在这种近似下，原子的基态被“固定”了，相应的近邻

原子对的近场相互作用哈密顿量为 $\hat{H}_{\text{near},gg'}^{jl} = \sum_{e,e'} \hat{V}_{e'g',eg}^{jl,\text{near}}$ ，其中的 $\hat{V}_{e'g',eg}^{jl,\text{near}}$ 仍由式 (5.34) 给出。由于哈密顿量是已知的，我们结合原子基态磁量子数的随机采样（见式 (5.14) 的相关讨论）同样可以算出相应的 $|C_{\text{near}}(\omega)|^2$ ，其结果如图 5.14(c) 所示。在这种“固定”基态的近似下， ξ 的拟合值相比图 5.14(b) 的结果变小了，仅为 0.46。另一方面，通过对式 (5.14) 进行时域上的求解我们也能得到 $\xi = 0.46$ ，这与频域上的计算结果（见图 5.14(c)）是一致的。我们能从图 5.5 和图 5.14(b,c) 的结果中得到启示：一方面，在“固定”基态的近似下我们可以得到式 (5.14) 所示的描述多个弱激发多能级原子含时演化的方程，它能较为准确地描述由远场相互作用主导的相位匹配自旋波的集体辐射行为（见章节 5.3.2）；另一方面，在近邻原子对的近场相互作用问题中，原子不同基态之间的相干性是重要的，因此“固定”基态的近似会在定量研究相位失配自旋波的衰减速率的过程中引入较为明显的误差（对于 $F = 2 - F' = 3$ 的原子，相对误差约为 $(0.64 - 0.46)/0.64 \approx 30\%$ ）。

5.4.3 对 $\Gamma_{\mathbf{k}'_s}$ 实验测量结果的分析

在章节 5.4.2 中，我们结合理论分析与数值计算的方法求出了 $F = 2 - F' = 3$ 原子的相位失配自旋波衰减速率与样品密度的关系（见式 (5.35)），现在我们将它与图 5.9 的实验测量结果进行对比（见图 5.15）。图 5.15 表明，实验测得的 $\Gamma_{\mathbf{k}'_s}$ 随密度 $\rho_0 \lambda_{eg}^3$ 的增长趋势基本与理论预期相符，我们通过对图中的实验数据进行拟合分析可以得到 ξ 的实验测量值为 $\xi_{\text{exp}} = 0.7 \pm 0.3$ 。下面我们从若干个方面对 $\Gamma_{\mathbf{k}'_s}$ 的实验测量进行讨论分析。

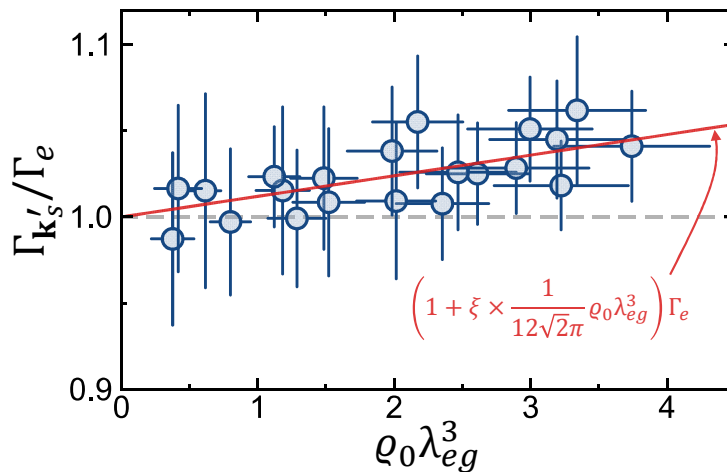


图 5.15 $O_{\mathbf{k}'_s}$ 的衰减速率 $\Gamma_{\mathbf{k}'_s}$ 与 $\rho_0 \lambda_{eg}^3$ 的关系。图中的蓝色数据点为实验的测量结果，同图 5.9。红色直线为理论预期的结果，其中 $\xi = 0.64$ （见式 (5.35)），相关讨论见章节 5.4.2。

○ $\hat{U}_c(\pm 2\mathbf{k}_c)$ 操作的失真导致的再吸收效应

在章节 4.3.3 中，我们结合“动量晶格”的数值模拟对实验中的单次 $\hat{U}_c(\pm 2\mathbf{k}_c)$ 操作的失真度进行了分析。现在，同样借助“动量晶格”的数值模拟，我们可以估算出在集体辐射“关闭”操作完成后的瞬间会有 $l \approx 20\%$ 比例的原子仍留在 $D1$ 线的激发态上。这些原子会在 Δt_3 （见图 4.2(a)）的时间内渐渐地衰减到基态。这些衰减到基态上的原子虽然不贡献到 $D2$ 线的自旋波中，但它们会成为“吸收体”，部分地吸收在 Δt_3 时间间隔后被“唤醒”的集体辐射。随着 Δt_3 的增加，在集体辐射被“唤醒”的前一刻已从 $D1$ 激发态衰减到基态的原子数会越来越多，那么上述吸收效应也会随着 Δt_3 的增加而变强，这使得被“唤醒”的集体辐射的光子数随 Δt_3 的衰减会比理论的预期（见章节 5.4.1 和 5.4.2）快，最终导致实验测得的 $\Gamma_{\mathbf{k}'_s}$ 偏大。

为了估计上述效应对 $\Gamma_{\mathbf{k}'_s}$ 测量的影响，我们数值计算式 (2.73) 所示的 CDM 方程，并在计算的每一个时间步长中按照原子的密度分布随机地往原子样品中添加基态的原子。在数值模拟中，原子样品的密度分布与实验中的近球形样品相近。我们设原子样品的初态为相位失配的自旋波态 $|\psi_{\mathbf{k}'_s}\rangle$ ，并且设添加的基态原子的总数量随时间的关系为 $N_{\text{add}} = \frac{5}{8}\Delta N(1 - e^{-\Gamma_{D1}t})$ ，其中因子 $5/8$ 是 $|5^2S_{1/2}F = 2\rangle$ 态的塞曼子能级数和 $|5^2S_{1/2}\rangle$ 态的总塞曼子能级数的比值，它表示 $D1$ 激发态的原子在衰减到基态时回到 $|5^2S_{1/2}F = 2\rangle$ 态（自旋波的基态 $|g\rangle$ ）的概率。在模拟中我们设 ΔN 的值为总原子数的 20%。为了模拟这些衰减到基态的原子对被“唤醒”的集体辐射的吸收效应，我们在系统演化了 Δt_3 的时间后给原子乘上一个相位因子 $e^{i\Delta\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}_j}$ 以近似模拟实验时序中的 $\hat{U}_c(+2\mathbf{k}_c)$ 操作（见图 4.2(a)），然后再计算其定向集体辐射的光子数 $n(\Delta t_3)$ （ $n(\Delta t_3)$ 的定义见章节 5.3.3）。最后，我们计算 $n(\Delta t_3)$ 随 Δt_3 的衰减速率，并与无 N_{add} 时的结果进行对比。对比的结果表明，在我们的实验条件下，这些从 $D1$ 的激发态衰减到基态的原子对 $D2$ 集体辐射的吸收效应会导致 $n(\Delta t_3)$ 随 Δt_3 的衰减速率增加约 20%。值得注意的是，在上述的模拟中我们认为 $\hat{U}_c(+2\mathbf{k}_c)$ 操作（即“唤醒”操作）是完美的，这实际上会高估吸收效应的影响⁷。该模拟的方法虽然比较粗糙，但是它能给予我们一个比较重要的启示：即自旋波调控的失真会在 $\Gamma_{\mathbf{k}'_s}$ 的测量中引入系统误差。在我们的实验条件下，我们估计该效应导致的 $\Gamma_{\mathbf{k}'_s}$ 测量值的偏大不超过 20%（这在我们的实验测量不确定度范围以内）。

○ 自旋波激发的高频截断

在章节 5.4.1 和章节 5.4.2 中，我们通过分析自旋波的能量分布 $|C(\omega)|^2$ 求出了 $\Gamma_{\mathbf{k}'_s}$ 与原子密度的关系，其中 $|C(\omega)|^2$ 在“高频”区域的行为是我们所关注的，

⁷ 我们可以通过对表示 $\hat{U}_c(+2\mathbf{k}_c)$ 操作的相位因子 $e^{i\Delta\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}_j}$ 添加人为的噪声（模拟操作的失真度）来验证这一点。

它与自旋波的初始失相行为是联系在一起的。在理论分析的过程中，我们考虑的是理想的自旋波激发，而在实验上，由于自旋波激发脉冲的带宽有限，它所能激发的 $|C(\omega)|^2$ 的能量分布范围也是有限的。从微观的角度来看，当两个原子的距离非常近以至于它们之间的偶极-偶极相互作用导致的共振频率移动远超出激发脉冲的频率带宽时，这两个原子是难以被激发的。这使得 $|C(\omega)|^2$ 会在频域上有一个高频截断，即当 $|\omega| > \omega_h$ 时 $|C(\omega)|^2 = 0$ 。该高频截断意味着原子的自旋波态在 $t \lesssim 1/\omega_h$ 的时间里是不发生失相的，而在 $t > 1/\omega_h$ 的时间里自旋波的“失相速率”仍由 γ' （见章节 5.4.1 和 5.4.2）描述。在我们的自旋波实验中， D_2 线的自旋波激发脉冲的（圆）频率带宽为 $\sim 2\pi \times 200$ MHz ($\tau_p = 5$ ns)，这对应着 $1/\omega_h \lesssim 1$ ns。在测量 $\Gamma_{\mathbf{k}'_s}$ 的实验中，我们选取的 Δt_3 的值从 0.5 ns 一直增加到 $\sim \tau_{D_2}$ ，这里 $\tau_{D_2} = 26.2$ ns $\gg 1/\omega_h$ ，因此自旋波激发的高频截断产生的影响几乎不体现在我们的实验测量结果当中。

○ 偶极-偶极相互作用导致的运动效应

在章节 4.3.3 中，我们分析了原子热运动导致的多普勒失相以及自旋波调控导致的运动效应对实验的影响。现在，我们考虑由偶极-偶极相互作用导致的原子加速效应对 $\Gamma_{\mathbf{k}'_s}$ 的实验测量产生的影响，其中近邻原子对中的近场偶极-偶极相互作用产生的加速效应是主要的，我们接下来对此进行分析。由式 (5.23) 可知，近邻原子对中的近场相互作用势为 $\hbar|\omega_{\text{pair}}| \sim \Gamma_e/k_p^3 r^3$ ， r 为两个原子的相对距离，那么其中的原子感受到的力的大小应为 $|\mathbf{F}_{\text{near}}| \sim |\nabla(\Gamma_e/k_p^3 r^3)| = 3\Gamma_e/k_p^3 r^4$ 。那么，在实验的观测时间 $\sim \tau_{D_2}$ 内，原子的速度增量的大小为 $\Delta v \sim |\mathbf{F}_{\text{near}}|\tau_{D_2}/m \sim \tau_{D_2}v_{D_2,r} \times 3\Gamma_e/k_p^4 r^4$ ，这里 $v_{D_2,r} = \hbar k_p/m \approx 6$ mm/s 是 D_2 线的单光子反冲速率， m 是原子质量。进一步地，不妨设原子的初始速度为 0，那么它的位置改变量为 $\Delta r \sim \tau_{D_2}\Delta v/2 \sim \tau_{D_2}^2 v_{D_2,r} \times 3\Gamma_e/2k_p^4 r^4$ 。当 $r \sim 50$ nm 时， $|\omega_{\text{pair}}| \sim 2\pi \times 100$ MHz，同时由上面的估算式子可知 $\Delta r \sim 0.1r \ll r$ ，可见此时的运动效应是很小的。该估算结果表明，近场相互作用诱导的运动效应至少不会对在 $|\omega| \lesssim 2\pi \times 100$ MHz 区域的 $|C(\omega)|^2$ 产生明显的影响，换句话说，它不会对 $t \gtrsim (2\pi \times 100 \text{ MHz})^{-1}$ 时的自旋波失相行为产生影响。在我们的实验条件下，上述效应产生的影响是难以体现在 $\Gamma_{\mathbf{k}'_s}$ 的实验测量结果当中的。

5.5 本章小结

本章从实验测量、理论分析和数值计算三个方面对偶极-偶极相互作用下的自旋波动力学行为进行了研究。在本章的开始部分，我们介绍了一个用以表征自旋波性质的重要物理量——自旋波的“存活率”（见章节 5.2）。自旋波的“存活率”的含时演化在微观上与原子间的偶极-偶极相互作用相关，在宏观上受原子样品的光学深度或原子数密度等性质影响，并且相位匹配自旋波和相位失配

自旋波的“存活率”会表现出明显不同的演化行为。为了对自旋波的动力学行为进行细致的定量研究，我们在实验上制备了两种形状（近球形和长条形）的冷原子样品，并对它们的原子数进行调控。原子样品的光学深度和密度分布可以通过章节 5.3.1 中的方法进行测量与定标。在章节 5.3.2 中，我们在“无背景”的环境下对相位匹配自旋波的定向集体辐射进行了直接探测，并研究了其性质与样品原子数、光学深度的关系。我们发现定向集体辐射的初始辐射光强正比于 N^2 (N 为样品的原子数)，我们同时测得了原子在自旋波波矢方向附近的小角度范围内的总辐射光强的衰减速率与样品沿自旋波波矢方向的平均光学深度的关系： $\Gamma_N/\Gamma_{D2} = 1 + \chi \overline{\text{OD}}_s$ ，其中 $\chi \approx 0.34$ 。与此同时，我们利用“固定”基态近似下的 CDM 方程对相位匹配自旋波的集体辐射行为进行了数值模拟，其结果与实验测量吻合得很好。接着，我们利用本文的光偶极自旋波调控技术在原子样品中激发出相位失配的自旋波并让它在自由空间中演化。相位失配的自旋波没有定向的集体辐射，为了高效地读取它的演化信息，我们同样利用自旋波调控技术将其在特定的时刻转换成相位匹配的自旋波，以“唤醒”原子的集体辐射。通过对被“唤醒”的集体辐射的测量我们提取出了相位失配自旋波的演化信息。实验中的一个重要的发现是，相位失配自旋波的衰减速率（这里指的是自旋波的“存活率”的衰减速率） $\Gamma_{\mathbf{k}'_s}$ 随着原子样品的密度增加呈上升的趋势（见章节 5.3.3）。为了理解这一物理现象，我们首先在理论上对 $J = 0 - J' = 1$ 的原子的自旋波态的能量分布 $|C(\omega)|^2$ 进行了分析（见章节 5.4.1）。有趣的是，对于分布在三维空间的随机原子气体而言，当 $|\omega| \gg \Gamma_e$ 时有 $|C(\omega)|^2 \sim 1/\omega^2$ ，这一渐近行为导致了相位失配自旋波态的衰减规律呈指数形式，而进一步的理论推导结果表明，相位失配自旋波态的（初始）衰减速率与原子样品的密度呈线性关系。接着，我们结合了数值模拟将相关的理论结果推广到能级结构为 $F = 2 - F' = 3$ 的原子中（见章节 5.4.2），并与实验的测量结果进行了对比（见章节 5.4.3）。最终的实验测量结果为： $\Gamma_{\mathbf{k}'_s}/\Gamma_e = 1 + \xi_{\text{exp}} \times \frac{1}{6\pi} \bar{\rho} \lambda_{eg}^3$ ，其中 $\bar{\rho}$ 为原子样品的平均密度， $\xi_{\text{exp}} = 0.7 \pm 0.3$ 是线偏振自旋波激发下 $F = 2 - F' = 3$ 多能级结构的修正系数，它的理论预期值为 $\xi = 0.64$ 。

参考文献

- [1] James D F V. Frequency shifts in spontaneous emission from two interacting atoms[J]. Phys. Rev. A, 1993, 47:1336–1346
- [2] Zhu B, Cooper J, Ye J, et al. Light scattering from dense cold atomic media[J]. Phys. Rev. A, 2016, 94:023612
- [3] Gross M, Haroche S. Superradiance: An essay on the theory of collective spontaneous emission[J]. Physics Reports, 1982, 93(5):301 – 396

- [4] Scully M O, Svidzinsky A A. The Super of Superradiance[J]. *Science*, 2009, 325(5947):1510–1511
- [5] Sutherland R T, Robicheaux F. Coherent forward broadening in cold atom clouds[J]. *Phys. Rev. A*, 2016, 93:023407
- [6] Roof S J, Kemp K J, Havey M D, et al. Observation of Single-Photon Superradiance and the Cooperative Lamb Shift in an Extended Sample of Cold Atoms[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2016, 117:073003
- [7] Steck D A. Rubidium 87 D Line Data. <http://steck.us/alkalidata>, 2019
- [8] Cottier F, Kaiser R, Bachelard R. Role of disorder in super- and subradiance of cold atomic clouds[J]. *Phys. Rev. A*, 2018, 98:013622
- [9] Reinaudi G, Lahaye T, Wang Z, et al. Strong saturation absorption imaging of dense clouds of ultracold atoms[J]. *Opt. Lett.*, 2007, 32(21):3143–3145
- [10] Hueck K, Luick N, Sobirey L, et al. Calibrating high intensity absorption imaging of ultracold atoms[J]. *Opt. Express*, 2017, 25(8):8670–8679
- [11] Weiss D S, Riis E, Shevy Y, et al. Optical molasses and multilevel atoms: experiment[J]. *J. Opt. Soc. Am. B*, 1989, 6(11):2072–2083
- [12] Brzozowski T M, Maczynska M, Zawada M, et al. Time-of-flight measurement of the temperature of cold atoms for short trap-probe beam distances[J]. *Journal of Optics B: Quantum and Semiclassical Optics*, 2002, 4(1):62–66
- [13] Bromley S L, Zhu B, Bishof M, et al. Collective atomic scattering and motional effects in a dense coherent medium[J]. *Nature Communications*, 2016, 7:11039
- [14] Lee M D, Jenkins S D, Ruostekoski J. Stochastic methods for light propagation and recurrent scattering in saturated and nonsaturated atomic ensembles[J]. *Phys. Rev. A*, 2016, 93:063803
- [15] Jennewein S, Besbes M, Schilder N J, et al. Coherent Scattering of Near-Resonant Light by a Dense Microscopic Cold Atomic Cloud[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2016, 116:233601
- [16] Genov G T, Schraft D, Halfmann T, et al. Correction of Arbitrary Field Errors in Population Inversion of Quantum Systems by Universal Composite Pulses[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2014, 113:043001
- [17] Low G H, Yoder T J, Chuang I L. Methodology of Resonant Equiangular Composite Quantum Gates[J]. *Phys. Rev. X*, 2016, 6:041067
- [18] Scully M O. Single Photon Subradiance: Quantum Control of Spontaneous Emission and Ultrafast Readout[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2015, 115:243602

-
- [19] Andreoli F, Gullans M J, High A A, et al. Maximum Refractive Index of an Atomic Medium[J]. *Phys. Rev. X*, 2021, 11:011026
- [20] Bellando L, Gero A, Akkermans E, et al. Cooperative effects and disorder: A scaling analysis of the spectrum of the effective atomic Hamiltonian[J]. *Phys. Rev. A*, 2014, 90:063822
- [21] Munro E, Asenjo-Garcia A, Lin Y, et al. Population mixing due to dipole-dipole interactions in a one-dimensional array of multilevel atoms[J]. *Phys. Rev. A*, 2018, 98:033815

第六章 总结与展望

6.1 本文总结

自从原初的 Dicke 模型提出后，科学家们意识到多原子的集体效应能够在很大程度上改变系统的自发辐射行为（见章节 1.1.1）。一般地，宏观体系的集体辐射行为由满足相位匹配条件 ($|\mathbf{k}| = \omega/c$) 的光偶极自旋波激发（章节 1.1.2）刻画。光偶极自旋波驱动的定向相干辐射原理是量子存储和量子通讯的重要技术基础。事实上，从更加一般的背景来说，相位匹配光偶极自旋波和光场的耦合是宏观线性、非线性光学的基础概念，主导着从线性光传播到非线性混频的绝大多数宏观光学现象，其特征可以由经过微观平均的 Maxwell-Bloch 方程描述^[1]。突破该宏观描述，还原光和原子系综相互作用多体物理的本质，正成为当代物理学家思考的前沿问题之一。在近年来的前沿理论研究当中，满足 $|\mathbf{k}| \neq \omega/c$ 条件的相位失配的光偶极自旋波因其“亚辐射”的性质而逐渐成为了大家关注的焦点。由于“屏蔽”了系统的远场辐射，相位失配的自旋波态可涌现出许多由近场偶极-偶极相互作用导致的新奇多体物理现象，同时它在新型的光存储技术、光波导以及精密原子光钟中有着重要的潜在应用（详见章节 1.1.2）。然而，绝大多数与相位失配光偶极自旋波相关的重要应用和新奇物理都依赖于原子基态的唯一性，因此，它们的实现并不能借助传统的、基于多个基态能级的拉曼跃迁自旋波调控技术。从这一点来看，对包含激发态在内的强光学跃迁进行直接的调控是至关重要的，这一过程不需要借助额外的基态的辅助能级，它是调控光偶极自旋波的最直接、有效的技术手段。在此背景下，本文研究的目的在于实现强光学跃迁的高保真度量子调控，以对光偶极自旋波态进行高效的调控——其中包括了实现相位失配自旋波态的高效激发。

在本文研究中，我们设计并搭建了一套基于高速电光调制的高带宽任意波形激光系统（章节 3.4.1），它能够产生带宽高达 13 GHz 的任意波形脉冲序列，且输出光的开关比高达 1000 : 1。我们将峰值功率为 20mW 的啁啾脉冲序列通过特定的光路设计（章节 4.2.1）聚焦到实验制备的冷原子样品中，脉冲与原子耦合的峰值 Rabi 频率高达 GHz 的级别。借助高带宽任意波形激光系统的性能，我们优化啁啾脉冲的波形参数使其能在原子的电偶极跃迁中完成高效的绝热布居翻转，以此为基础，我们通过多个啁啾脉冲在时域上的特定组合实现了对光偶极自旋波在时域上的复杂、高效的调控。本文的自旋波调控技术能实现相位匹配光偶极自旋波与相位失配光偶极自旋波之间的高效、可逆的转换，这为原子系统集体效应的研究提供了新的重要途径。

在本工作以前，对光偶极自旋波调控的相关工作包括：利用短至飞秒的脉冲进行光学微扰调控以操控样品的集体辐射^[2-5]；利用连续激光的光缀饰在频域上激发不同波矢的自旋波态^[6-8]。这些工作在物态的多维相干光谱测量以及量子模拟领域中取得了巨大的成功，但由于它们的自旋波转换效率以及可逆性都受到限制，相关的技术难以用来实现许多与光偶极自旋波相关的重要量子光学应用。在本文的自旋波调控中，我们通过利用亚纳秒级的啁啾脉冲循环地驱动自旋波基态与辅助激发态能级间的布居转换，高效地将空间相关、量子态相关的几何相位以亚波长分辨的精度写入到了原子基态的波函数中（章节 4.2.2）。利用几何相位的容错特性，我们在空间光强不均匀的聚焦光束的量子调控中实现了效率高达 $f_d = (75 \pm 5)\%$ 的（单次）自旋波转换操作。截止到本论文的撰写阶段，该自旋波调控效率仍然是所有已发表的科研成果中最高的。另外，值得一提的是，利用本文基于几何相位的调控方案（章节 3.2），自旋波调控效率的理论上限值原则上能接近100%。另外，在原子系统中，激发态总是存在多个，因此利用辅助激发态能级的调控方法是具有普适性的。实验上，我们还观测了自旋波调控过程中亚纳秒啁啾脉冲对原子施加的自旋相关的光力（章节 4.3.1）。这种光力是由原子对调控光光子的受激吸收和受激辐射产生的，实验测出，在自旋波调控过程中原子平均受到的光力达到 $\hbar k_c/\text{ns}$ 的级别（ $\hbar k_c$ 是调控光的光子动量），它约为 10^6 倍的重力。单次理想的自旋波调控操作会让原子获得 $2\hbar k_c$ 的动量改变，实验测量出的动量改变 ΔP 的效率达到了 $f_a = \Delta P/2\hbar k_c = (89 \pm 4)\%$ 。

为了对实验中的自旋波调控过程及其伴随的原子加速进行深入分析，我们利用无原子-原子相互作用的“动量晶格”（章节 4.3.2）对原子样品与 D_1 、 D_2 脉冲的耦合过程进行建模和数值计算（章节 4.3.3）。数值计算的结果不仅与实验测量结果吻合得很好，它还帮助我们分析了原子超精细结构的消相干效应以及原子激发态的自发辐射对自旋波调控实验的影响。我们由此确定了限制自旋波调控效率和自旋相关光子动量转移效率的实验因素，并提出了相应的可行的改进方案。我们预期所提出的（具有近期可行性的）方案能让自旋波的调控效率达到 $f_d \sim 98\%$ （章节 4.3.3）。

本文的自旋波调控技术允许我们以想要的方式高效地改变原子光偶极自旋波的波矢，从而实现对原子集体辐射行为的调控，这为我们研究偶极-偶极相互作用下的有趣物理现象提供了重要的途径。在章节 4.2.2 中，我们展示了原子定向超辐射的“转向”、“关闭”和“唤醒”操作。通过“转向”操作，我们能在空间上分离原子的定向超辐射和自旋波的激发光，从而实现“无背景”的超辐射荧光探测。进一步地，超辐射的“关闭”操作允许我们将原子制备到相位失配的自旋波态中，并让原子间近场偶极-偶极相互作用产生的效应在此过程中积累，我们最终通过“唤醒”操作将原子重新转换为超辐射态，然后通过“无背景”的超辐射荧光探测将近场偶极-偶极相互作用的信息提取出来。通过上述实验技术，我们可以对（相位匹配或相位失配）光偶极自旋波的动力学行为进行

细致研究。对于相位匹配的自旋波，我们定量地测出了它在前向（自旋波波矢方向）的衍射极限立体角内的空间辐射模式的初始衰减速率 Γ_N 与样品前向平均光学深度 \overline{OD} 的关系，并且我们通过“固定”基态近似下的 CDM 方程对测量结果进行了验证（章节 5.3.2）：对于高斯分布的原子样品，有 $\Gamma_N/\Gamma_e \approx 1 + 0.34\overline{OD}$ (Γ_e 为单原子激发态自发辐射衰减速率)。

另一方面，同样借助高效的自旋波调控技术，我们测出了随机原子气体中相位失配自旋波的衰减速率 $\Gamma_{\mathbf{k}'_s}$ 与原子密度的关系（见章节 5.4.3）： $\Gamma_{\mathbf{k}'_s}/\Gamma_e = 1 + \xi_{\text{exp}} \times \frac{1}{6\pi} \bar{\rho} \lambda_{eg}^3$ ，其中 $\xi_{\text{exp}} = 0.7 \pm 0.3$ ， $\bar{\rho}$ 为原子样品的平均密度， λ_{eg} 为跃迁波长。相位失配自旋波的密度相关的衰减行为与原子间的偶极-偶极相互作用相关，它实际上是一种量子态的失相（dephasing）——一种局域的、微观的效应。为解释实验结果，我们在频域上对近邻原子对中的近场相互作用进行了理论分析（章节 5.4.1），并结合量子二体系统的数值模拟得到了 $F = 2 - F' = 3$ 多能级修正下的 $\Gamma_{\mathbf{k}'_s}$ 的理论预期： $\Gamma_{\mathbf{k}'_s}/\Gamma_e = 1 + 0.64 \times \frac{1}{6\pi} \bar{\rho} \lambda_{eg}^3$ （章节 5.4.2）。在光与原子样品相互作用的一个宏观的图像中（例如 Maxwell-Bloch 方程，见章节 2.3.4），原子样品常被视作光滑连续的极化介质，这种处理方法不仅降低了数值计算的复杂度，而且在描述极化原子的宏观辐射效应上是成功的，它能很好地解释相位匹配自旋波的前向集体辐射行为（章节 5.2）。但是，这种宏观图像忽略了原子的“粒子性”以及光子在原子间的多重散射等微观细节，这使得它不能有效地描述相位失配自旋波的演化行为（章节 5.2）。可以说，通过将原子样品激发到相位失配的自旋波态中，我们成功地抑制了样品的辐射的宏观效应，这使得原子间偶极-偶极相互作用的微观细节凸显了出来，其中原子的“粒子性”成为了不可忽略的因素。相位匹配自旋波和相位失配自旋波间的含时切换是一种探测偶极-偶极相互作用微观动力学的有效方法，利用该方法，我们观测了在光学波段的电偶极跃迁中随机原子气体的密度依赖的自旋波失相速率。可以预期的是，自旋波的失相在有序的晶格体系中将被抑制，这时原子间偶极-偶极相互作用的微观细节将变得可控且能成为有用的资源。

6.2 对本文研究工作的一些展望

本文研究的核心对象是线性激发的光偶极自旋波。在章节 5.3.3 的实验中，我们利用本工作发展出的自旋波调控技术将超辐射的光偶极自旋波转换到“亚辐射”的状态。相比超辐射，亚辐射状态的原子有更长的寿命以积累相互作用导致的波函数相位变化，这其中可蕴藏丰富的相互作用物理（比如章节 5.4 中的自旋波近场弛豫）。在这之后，我们通过将自旋波“切换”到超辐射态上高效地读取了原子的相互作用信息。从多体系统元激发模式调控的角度，上述技术手段是研究多原子体系相互作用物理的普适方法。在实验上，我们可以直接通过增加自旋波激发脉冲的光强来实现对原子的强激发，并通过对自旋波元激发进

行相干操控来制备出亚辐射的多激发态，借此研究更为复杂有趣的多体相互作用物理。不少前沿研究已表明，多原子系统的强激发有着新奇、重要的物理现象^[9-15]。目前我们在这一方向正在进行相关的实验研究。

另外，我们也可以将章节 5.3.3 中对相位失配自旋波失相速率的测量技术应用到原子的简并气体中。注意到，当我们在分析随机原子气体的自旋波失相速率（章节 5.4.1）时，我们假设了样品中各个原子的位置是独立同分布的，但这一假设在简并原子气体中并不成立。比如，在波色-爱因斯坦凝聚或费米简并的超冷原子气体^[16-18]中，原子在空间上会存在有趣的量子关联^[19]，而这将会反映到自旋波态的失相行为中。我们有望通过对自旋波失相行为的观测来探索简并原子气体（或临界简并的原子气体）中的新奇物理。

在未来，本文研究工作的另一个重要推进方向是将光偶极自旋波的调控技术与目前已发展成熟的冷原子光晶格技术结合。比如，利用本文的自旋波调控技术在亚波长二维原子光晶格^[20]或者纳米光纤界面的一维原子链^[21]中激发“光锥”之外（ $|\mathbf{k}| > \omega/c$ ）的强亚辐射相位失配自旋波态^[22]。这有望用以实现新一代的非线性量子存储技术。这里可能存在的难点包括：光晶格势引起的空间不均匀跃迁频移会导致自旋波的消相干；自旋波的电偶极调控会引起原子加速，这同样会导致自旋波的消相干并限制亚辐射态的寿命。对此，可能的解决方案是利用“魔术波长”的光晶格来装载原子^[23]，并通过增加光晶格的势能让原子处在“无反冲动量”的 Lamb-Dicke 区域^[24]。

参考文献

- [1] Shen Y R. The Principles of Nonlinear Optics[M]. Hoboken: Wiley-Interscience, 1984
- [2] Tian P, Keusters D, Suzuki Y, et al. Femtosecond Phase-Coherent Two-Dimensional Spectroscopy[J]. Science, 2003, 300(5625):1553–1556
- [3] Li H, Bristow A D, Siemens M E, et al. Unraveling quantum pathways using optical 3D Fourier-transform spectroscopy[J]. Nature Communications, 2013, 4:1390
- [4] Lomsadze B, Cundiff S T. Frequency combs enable rapid and high-resolution multidimensional coherent spectroscopy[J]. Science, 2017, 357(6358):1389–1391
- [5] Lomsadze B, Cundiff S T. Frequency-Comb Based Double-Quantum Two-Dimensional Spectrum Identifies Collective Hyperfine Resonances in Atomic Vapor Induced by Dipole-Dipole Interactions[J]. Phys. Rev. Lett., 2018, 120:233401

- [6] Chen L, Wang P, Meng Z, et al. Experimental Observation of One-Dimensional Superradiance Lattices in Ultracold Atoms[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2018, 120:193601
- [7] Cai H, Liu J, Wu J, et al. Experimental Observation of Momentum-Space Chiral Edge Currents in Room-Temperature Atoms[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2019, 122:023601
- [8] Wang P, Chen L, Mi C, et al. Synthesized magnetic field of a sawtooth superradiance lattice in Bose-Einstein condensates[J]. *NPJ Quantum Information*, 2020, 6(1)
- [9] Zhang Y X, Mølmer K. Theory of Subradiant States of a One-Dimensional Two-Level Atom Chain[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2019, 122:203605
- [10] Henriot L, Douglas J S, Chang D E, et al. Critical open-system dynamics in a one-dimensional optical-lattice clock[J]. *Phys. Rev. A*, 2019, 99:023802
- [11] Williamson L A, Borgh M O, Ruostekoski J. Superatom Picture of Collective Nonclassical Light Emission and Dipole Blockade in Atom Arrays[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2020, 125:073602
- [12] Masson S J, Ferrier-Barbut I, Orozco L A, et al. Many-Body Signatures of Collective Decay in Atomic Chains[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2020, 125:263601
- [13] Williamson L A, Ruostekoski J. Optical response of atom chains beyond the limit of low light intensity: The validity of the linear classical oscillator model[J]. *Phys. Rev. Research*, 2020, 2:023273
- [14] Bettles R J, Lee M D, Gardiner S A, et al. Quantum and nonlinear effects in light transmitted through planar atomic arrays[J]. *Commun. Phys.*, 2020, 3(1)
- [15] Cipris A, Moreira N A, Espirito Santo T S, et al. Subradiance with Saturated Atoms: Population Enhancement of the Long-Lived States[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2021, 126:103604
- [16] Anderson M H, Ensher J R, Matthews M R, et al. Observation of Bose-Einstein Condensation in a Dilute Atomic Vapor[J]. *Science*, 1995, 269(5221):198–201
- [17] Davis K B, Mewes M O, Andrews M R, et al. Bose-Einstein Condensation in a Gas of Sodium Atoms[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 1995, 75:3969–3973
- [18] DeMarco B, Jin D S. Onset of Fermi Degeneracy in a Trapped Atomic Gas[J]. *Science*, 1999, 285(5434):1703–1706
- [19] Jelte T, McNamara J M, Hogervorst W, et al. Comparison of the Hanbury Brown-Twiss effect for bosons and fermions[J]. *Nature*, 2007, 445(7126):402–405
- [20] Sherson J F, Weitenberg C, Endres M, et al. Single-atom-resolved fluorescence imaging of an atomic Mott insulator[J]. *Nature*, 2010, 467(7311):68–72

-
- [21] Corzo N V, Gouraud B, Chandra A, et al. Large Bragg Reflection from One-Dimensional Chains of Trapped Atoms Near a Nanoscale Waveguide[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2016, 117:133603
- [22] Asenjo-Garcia A, Moreno-Cardoner M, Albrecht A, et al. Exponential Improvement in Photon Storage Fidelities Using Subradiance and “Selective Radiance” in Atomic Arrays[J]. *Phys. Rev. X*, 2017, 7:031024
- [23] Campbell S L, Hutson R B, Marti G E, et al. A Fermi-degenerate three-dimensional optical lattice clock[J]. *Science*, 2017, 358(6359):90–94
- [24] Ido T, Katori H. Recoil-Free Spectroscopy of Neutral Sr Atoms in the Lamb-Dicke Regime[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2003, 91:053001

致 谢

从本科开始，我在复旦大学已学习、生活了九年。如今博士生涯即将结束，我不由感慨万分。在博士阶段的科研经历既丰富了我的专业知识，也培养了我作为“物理人”的思维方式。尽管过程有不少曲折，但我获益匪浅。本论文的完成离不开许许多多的帮助和支持，我对此满怀感激。

感谢我的导师吴赛骏教授。从论文选题、实验设计与搭建到最后的毕业论文撰写，吴老师对我悉心指导，给予了许多宝贵的建议，使我最终能完成博士课题研究。在博士研究阶段，与吴老师的学术讨论对我来说尤为重要，这常常能给予我启发，让我获得“解题思路”。同时也感谢吴老师为我创造了很多与国内外优秀同行交流的机会，这很大程度地增长了我的见识。吴老师从不吝啬地为学生提供各种科研所需资源，也从不吝啬地将时间花在对学生的指导上，我从他身上学到了许多东西。

感谢复旦物理系的周磊教授和 ICFO 的 Darrick E. Chang 教授，他们对光与物质相互作用的物理有着独到的见解，他们的宝贵建议对本文研究工作至关重要。在他们的指导和帮助下，我接触并学习到了不少前沿理论知识，同时也学到了不少关于学术表达的技巧。感谢复旦现代物理研究所的赵凯锋教授，他为我们实验室提供了高质量的热原子池，这为我们发展新型近共振高带宽脉冲激光技术提供了巨大的便利。感谢 Holger Müller 教授和吴学健教授，他们在脉冲式电光调制技术方面的出色工作给予了我们很大的启发，他们也为我们脉冲激光系统的设计提供了许多宝贵的建议。感谢袁海东教授，他在量子调控理论方面教会了我们许多东西。感谢 Charles S. Adams 教授，他为我提供了到英国 Durham 大学交流访问的机会，让我有机会学习到先进的纳米原子池技术。

感谢马普所的 Immanuel Bloch 教授和 NIST 的 Trey Porto 教授对我们研究工作的肯定和认可。能有机会与这样的顶级科学家进行学术交流是我莫大的荣幸。同时我十分感谢 Bloch 教授愿意提供我工作机会，虽然我最后做了一个“愚蠢”的决定，但这丝毫不减我对 Bloch 教授的敬仰之情。

感谢田传山教授、李晓鹏教授一直以来对我的关心和帮助，他们让我受到了很大鼓舞，学到了许多东西，并且也让我有幸获得一些难得的机会。感谢芮俊师兄，与他的交流解除了我心中不少困惑，虽然十分遗憾没有从他手中接过“接力棒”，但我仍是对他心怀感激，祝愿他新实验室的建设一切顺利。

感谢方亚毡师兄、王梦冰师兄、赵健师兄、王玉琢师兄，以及裘李阳、季灵晶、马昱迪、黄幸、胡江勇、刘瑞娟、周一稼、柴凌云、柴啸、康明宇、陶俊衡、王晓青等同学的帮助，实验室从无到有的建设以及后续实验系统的正常

维护离不开他们的辛勤工作。尤其感谢季灵晶师弟，本论文许多实验数据的采集是在他的帮助和支持下完成的。感谢 ICFO 的 Stefano Grava 同学和复旦物理系的蔡青男同学在偶极-偶极相互作用理论计算上提供的重要支持和帮助。感谢 Durham 大学的 William Hamlyn，我在 Durham 大学交流访问期间受到了他许多帮助。

感谢国家重点研发计划项目（编号：2016YFA0302000、2017YFA0304204）、国家自然科学基金项目（编号：11574053）以及上海市自然科学基金项目（编号：15ZR1403200）对本论文工作提供的经费支持。

感谢父母的养育之恩，感谢他们对我所做决定的理解和支持。感谢我的妻子樊嘉雯，感谢你一直以来的陪伴和鼓励，愿我们一切顺利。

何亦尊

2021 年 04 月

于复旦大学