

激光与光电子学进展

脉冲双光场作用下里德伯原子的瞬态吸收特性

张贵银^{1*}, 赵轩¹, 李松涛¹, 郑海明²¹华北电力大学数理系, 河北 保定 071003;²华北电力大学机械工程系, 河北 保定 071003

摘要 基于光和物质相互作用的密度矩阵方程理论,研究了双光场作用下里德伯原子的瞬态吸收特性。当耦合场较弱时,探测吸收随时间增加到最大值后,再单调递减至零;随着耦合场拉比频率的增加,探测吸收的最大值增大;当拉比频率增加到一定程度时,吸收峰值逐渐减小,吸收随时间延长出现振荡。当耦合场拉比频率取值合适时,出现明显的负吸收现象。通过分析粒子数布居及相干项随时间的演变可知,耦合、探测场共同作用引起的相干项导致了负吸收现象的出现。

关键词 原子与分子物理学; 非线性光学; 密度矩阵方程; 里德伯原子; 负吸收

中图分类号 O433.54

文献标志码 A

DOI: 10.3788/LOP202259.1102001

Transient Absorption Properties of Rydberg Atom Driven by Two Pulsed Laser Fields

Zhang Guiyin^{1*}, Zhao Xuan¹, Li Songtao¹, Zheng Haiming²¹*School of Mathematics and Physics, North China Electric Power University, Baoding 071003, Hebei, China;*²*Department of Mechanical Engineering, North China Electric Power University, Baoding 071003, Hebei, China*

Abstract The transient absorption properties of Rydberg atoms driven by two pulsed laser fields are investigated herein on the basis of the theory of density matrix equation, which describes the interaction of photon and material. It is found that owing to the weak coupling field, the probe absorption first increases to the maximum value and then decreases monotonically to zero with time. The maximum value of the probe absorption increases with an increase in Rabi frequency until the largest value is obtained. Then, it decreases gradually and the absorption with time presents the character of oscillation at the same time. When the coupling field's Rabi frequency is appropriate, the phenomenon of negative absorption occurs. The analysis of the evolution of population and the coherent term with time reveals that the coherent term caused by the influence of the coupling and probe field results in a negative absorption.

Key words atomic and molecular physics; nonlinear optics; density matrix equation; Rydberg atom; negative absorption

1 引言

里德伯原子从被发现后就一直是人们关注和研究的重要内容之一。里德伯原子是主量子数很

大($n \gg 1$)的原子,具有许多特殊的物理性质,如极化率很大($\sim n^7$),具有很强的偶极-偶极相互作用($\sim n^4$)和非常长的辐射寿命($\sim n^3$)^[1-5]。正是由于里德伯原子特殊的物理性质,使其在许多领域具有极

收稿日期: 2021-07-28; 修回日期: 2021-08-30; 录用日期: 2021-09-24

基金项目: 国家自然科学基金(11174078)、河北省自然科学基金(A2019502044)

通信作者: *gyzhang65@aliyun.com

大应用价值。运用其特有的偶极-偶极相互作用所产生的偶极阻塞效应,可以实现自组织模拟以及量子纠缠光开关^[6-8];其较大的电偶极矩使得里德伯原子对外界电场非常敏感,利用这一特点可以实现对原子间相互作用的控制及对电场的测量^[9-11]。2012年 Sedlacek 等^[12]利用微波相干耦合相邻的两个里德伯能级,实现了基于里德伯原子的微波电场测量,最小可测微波电场强度为 $8 \mu\text{V}/\text{cm}$ 。2021年山西大学激光光谱研究所李伟等^[13]利用里德伯原子的电磁诱导透明(EIT)效应,实现了工频电场的可溯测量,并获得了工频电场频率的精确测量。

利用里德伯原子进行相关研究测量,需首先将原子制备到里德伯态,可采用电激发和光激发的方式。光激发制备里德伯态有单光子激发和级联多光子激发,从基态到里德伯态的单光子激发跃迁波长通常在紫外波段。刘硕等^[14]利用自发研制的瓦级输出窄线宽紫外激光系统,在室温铯原子气室中实现了 $6S_{1/2} \rightarrow nP_{3/2} (n=70\sim 94)$ 单光子跃迁,通过测量基态、激发态和里德伯态构成的 V 型三能级系统探测光束的吸收减弱信号,获得了里德伯态的量子亏损。考虑到单光子激发的概率较低,有时受跃迁选择定则的限制,不易于实现,多个研究组采用级联双光子或级联三光子激发的方式制备里德伯态^[15-17]。山西大学李昌勇等^[16]由铯原子基态、激发态和里德伯态构建的阶梯型三能级系统,采用耦合、探测场激发研究了系统的 EIT 现象,在实现 EIT 的基础上,进一步利用射频场实现了铯原子 $49S_{1/2} \rightarrow 47D_{3/2}$ 的双光子跃迁,测量了里德伯原子的射频双光子光谱,观察到了 EIT 光谱的分裂,利用该现象实现了对射频电场幅值和极化的精密测量。Kutsenko 等^[17]通过级联三光子激发实现了锌原子 $4s^21S_0 \rightarrow 4s4p^3P_1 \rightarrow 4s4d^3D_2 \rightarrow 4snf^3F_3$ 跃迁,利用光谱跃迁的频率获得了三重 F 态的相关信息。2007年,英国 Durham 大学的 Mohapatra 等^[18]首次利用 EIT 技术实现了对室温下里德伯原子的相干光学探测,并在 EIT 透射谱中得到了高激发态里德伯能级的精细结构。

多光子激发制备里德伯态是基于原子对激发光子的吸收,因此如何提高激发跃迁效率,使更多原子激发到里德伯态,对后续里德伯态原子的应用有极大影响。近几年研究报道的双光场作用下的里德伯原子三能级系统,通常用探测光将原子由基态泵浦到激发态,再用频率固定的耦合光把激发态的原子泵浦到里德伯态,通过扫描探测场的频率,

研究探测吸收随物理参数的变化,发现了 EIT 现象及基于 EIT 的实际应用。但在用双共振光谱技术研究高激发里德伯态能级结构的实验工作中,耦合、探测光的作用恰好相反,此时为了简化光谱结构,通常用频率固定的耦合光将光谱跃迁的台阶从基态提高到激发态,再用可调谐的探测光把激发态的原子泵浦到里德伯态,扫描探测光获得与里德伯态能级结构关联的光谱图,通过分析谱线获得能级结构的信息。为了详细了解物理参量对该探测吸收过程的影响,为实验方案的设计提供参考信息,前期工作运用光和物质相互作用的密度矩阵方程理论,研究了该作用过程中里德伯原子的稳态吸收特性,发现只有耦合、探测场强度取合适值时,探测场的共振吸收激发才能达到最大^[19]。考虑到在实际里德伯原子的制备及研究过程中,通常用脉冲激光做激发光源,本文在前期工作的基础上,研究了脉冲激光场激发制备里德伯态的过程中,原子的瞬态吸收特性。

2 理论分析方法

双光场与阶梯型三能级原子作用模型如图 1 所示,两束不同频率的激光(耦合和探测光)与物质系统相互作用, $|1\rangle$ 、 $|2\rangle$ 、 $|3\rangle$ 能级分别表示原子的基态、激发态和里德伯态,相邻能级跃迁频率表示为 ω_{21} 和 ω_{32} ,采用双光子共振方法,基态原子被耦合场(频率为 ω_c)激发到激发态,再被探测场(频率为 ω_p)激发到里德伯态,通过扫描探测场频率观察里德伯原子的瞬时吸收特性。 $|3\rangle$ 、 $|2\rangle$ 能级的纵向弛豫速率分别表示为 Γ_{32} 、 Γ_{21} ,反映各能级自发辐射衰减速率;横向弛豫速率表示为 γ_{32} 、 γ_{21} 、 γ_{31} ,代表能级的自然线宽。 $\Delta_c = \omega_{21} - \omega_c$ 和 $\Delta_p = \omega_{32} - \omega_p$ 分别是耦合场和探测场与对应能级跃迁之间的频率失谐量。

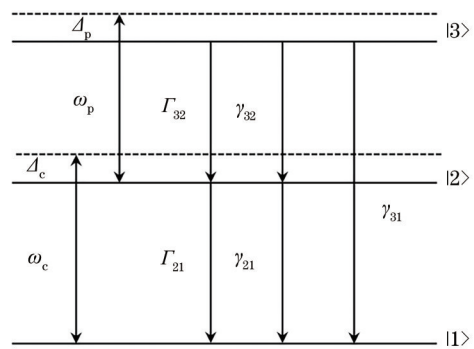


图 1 阶梯型三能级里德伯原子示意图

Fig. 1 Schematic diagram of a ladder-type three-level Rydberg atom

在激光与物质相互作用中,根据非线性光学中的密度矩阵方程理论,该系统的密度矩阵方程可写为

$$\frac{\partial \rho_{11}}{\partial t} = i \frac{\Omega_c}{2} (\rho_{21} - \rho_{12}) + \Gamma_{21} \rho_{22}, \quad (1)$$

$$\frac{\partial \rho_{22}}{\partial t} = i \frac{\Omega_p}{2} (\rho_{32} - \rho_{23}) + i \frac{\Omega_c}{2} (\rho_{12} - \rho_{21}) + \Gamma_{32} \rho_{33} - \Gamma_{21} \rho_{22}, \quad (2)$$

$$\frac{\partial \rho_{33}}{\partial t} = i \frac{\Omega_p}{2} (\rho_{23} - \rho_{32}) - \Gamma_{32} \rho_{33}, \quad (3)$$

$$\frac{\partial \rho_{32}}{\partial t} = \delta_{32} \rho_{32} - i \frac{\Omega_p}{2} (\rho_{33} - \rho_{22}) - i \frac{\Omega_c}{2} \rho_{31}, \quad (4)$$

$$\frac{\partial \rho_{31}}{\partial t} = \delta_{31} \rho_{31} + i \frac{\Omega_p}{2} \rho_{21} - i \frac{\Omega_c}{2} \rho_{32}, \quad (5)$$

$$\frac{\partial \rho_{21}}{\partial t} = \delta_{21} \rho_{21} - i \frac{\Omega_c}{2} (\rho_{22} - \rho_{11}) + i \frac{\Omega_p}{2} \rho_{31}, \quad (6)$$

式中: ω_{ij} 表示能级 $|i\rangle \leftrightarrow |j\rangle$ 之间的跃迁频率; δ_{ij} 为复失谐量, $\delta_{32} = i\Delta_p - \gamma_{32}$, $\delta_{21} = i\Delta_c - \gamma_{21}$, $\delta_{31} = i(\Delta_p + \Delta_c) - \gamma_{31}$; $\Omega_i = \mu_{ij} E_0 / \hbar$ 是相干场与原子系统相互作用的拉比频率; μ_{ij} 是能级 $|i\rangle, |j\rangle$ 之间的跃迁偶极矩阵元。密度矩阵对角矩阵元 ρ_{ii} 对应 $|i\rangle$ 能级的粒子数布居,非对角矩阵元 ρ_{32} 的实部和虚部分别反映系统对探测场的色散和吸收特性。模拟过程中取 $\Gamma_{21} = 1$ GHz 为基本单位,其余参数都相对 Γ_{21} 取值。

实际激光器输出脉冲波形常为高斯型,取耦合场和探测场均为高斯型脉冲,拉比频率可表示为

$$\Omega = \Omega_0 \exp\left[-(t - t_0)^2 / (\tau/2)^2\right], \quad (7)$$

式中: Ω_0 为拉比频率幅值; t_0 是激光脉冲中心相对 $t=0$ ns 时的延迟时间; τ 为激光的脉冲脉宽。利用 MATLAB 工具中经典的 Runge-Kutta 法可以数值模拟激光参量对探测吸收的影响和各能态粒子数的布居。在模拟过程中, $\Omega_0 = 1$ GHz, $t_0 = 10$ ns, $\tau = 10$ ns, 此时激光脉冲形状如图 2 所示。

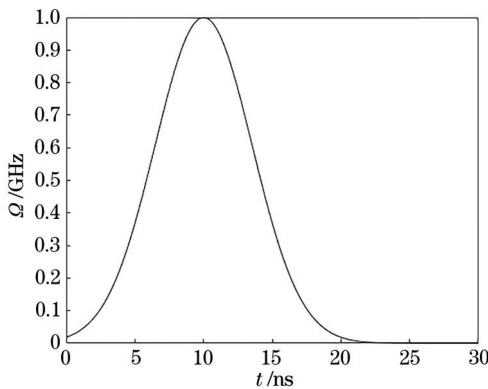


图 2 高斯型激光脉冲

Fig. 2 Laser pulse with Gaussian shape

3 结果与讨论

3.1 探测吸收随时间的变化

在耦合场、探测场共振的条件下,固定探测场拉比频率 $\Omega_p = 1$ GHz,弛豫速率分别为 $\Gamma_{21} = 1$, $\Gamma_{32} = 0.01$, $\gamma_{21} = \gamma_{32} = 0.5$, $\gamma_{31} = 0.01$,耦合场拉比频率取不同量值时探测吸收随时间演变的关系曲线如图 3 所示。图中四条曲线分别对应耦合场拉比频率 Ω_c 为 0.5, 1, 2, 4 GHz。可以发现,探测吸收随时间的变化与耦合场拉比频率密切相关。当耦合场较弱时,随时间延长,探测吸收从零单调增加到最大值,又逐渐减小到零。随着耦合场拉比频率的增加,探测吸收达到最大值所需的时间缩短,吸收值增大到一定程度后逐渐减小;同时随着时间延长,探测吸收出现减幅振荡,最终逐渐趋于零。振荡频率随耦合场拉比频率的增加而增大,且有负吸收现象出现。

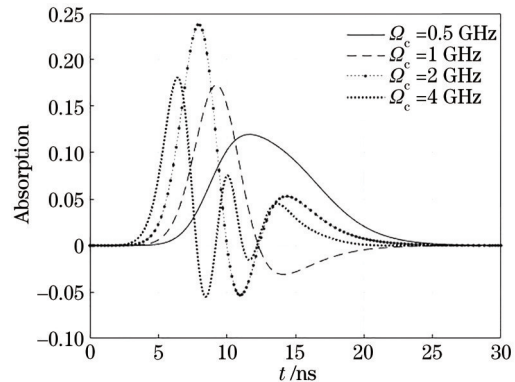


图 3 不同耦合场驱动下探测吸收随时间的变化

Fig. 3 Variation of probe absorption with time driven by different coupling fields

探测吸收随时间的演变受耦合场拉比频率的影响,可归因于耦合场的作用,使基态原子跃迁到激发态,为探测吸收跃迁的下态提供原子。随耦合场拉比频率的增加,跃迁到激发态的原子数增大,导致探测吸收峰值逐渐增大。又由于跃迁到激发态的原子部分吸收探测光子跃迁到里德伯态,部分弛豫到基态,激发态原子数的减少使得探测吸收增加到最大值后再逐渐减小。这期间返回基态的原子再吸收耦合光子跃迁到激发态,如此反复,使探测吸收形成振荡。耦合场拉比频率增加,意味着和系统相互作用的光子数增多,基态原子可快速吸收光子跃迁到激发态,使探测吸收达到最大值所需时间随耦合场拉比频率的增加而减少。激光脉冲结

束,吸收值减小到零。

3.2 耦合场强度对探测吸收的影响

为了进一步探究耦合场强度对探测吸收,尤其是对负吸收现象的影响,连续改变耦合场拉比频率,观测探测吸收随时间的演变,结果如图 4 所示。耦合场拉比频率幅值区间为 0~8。

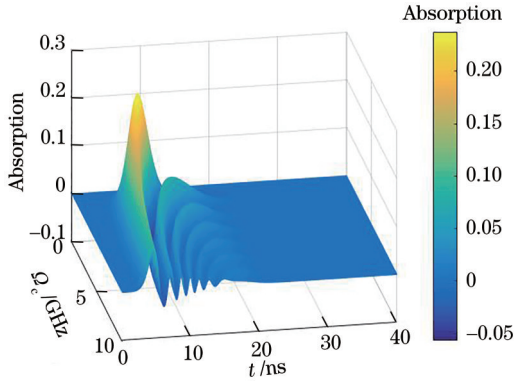


图 4 耦合场连续变化时探测吸收随时间的变化
Fig. 4 Variation of probe absorption with time when coupled fields change continuously

从图 4 可以看出,探测吸收曲线的峰值随着耦合场拉比频率的增加而增大,在 $\Omega_c=1.91$ GHz, $t=8.1$ ns 处吸收达最大值 0.2398;继续增大耦合场拉比频率,探测吸收峰值逐渐减小,同时出现振荡现象,耦合场拉比频率越大,振荡频率越大,负吸收现象越明显,在 $\Omega_c=3.88$ GHz, $t=8.7$ ns 处负吸收最大,为 -0.0569。负吸收现象对应着光放大,为了探究其起因,进一步分析与探测吸收相关联的各因素随时间的演变。

3.3 光放大现象的起因

由式(4)可知,影响探测吸收的因素有两个:一是 $|2\rangle, |3\rangle$ 能级的粒子数布居差值;二是 Ω_c 与相干项 ρ_{31} 的乘积,为了探究光放大现象的起因,进一步模拟这两个因素随时间的变化规律。

3.3.1 各能级粒子数布居随时间的变化

图 5 为耦合场拉比频率 $\Omega_c=4$ GHz,其他参数取值与 3.1 节相同条件下的粒子数布居随时间变化的关系曲线。其中实线、虚线、点线分别对应 $|1\rangle, |2\rangle, |3\rangle$ 能级的粒子数布居。图中布居曲线显示,在耦合场作用下, $|1\rangle, |2\rangle$ 能级的粒子数布居同时随时间变化, $|3\rangle$ 能级的布居变化滞后于前两能级。对比图 5 和图 3 中 $\Omega_c=4$ GHz 的吸收变化曲线可知,在存在负吸收现象的区间内, $|3\rangle$ 能级粒子数布居始终小于 $|2\rangle$ 能级,即 $-(\rho_{33} - \rho_{22})$ 始终大于零,所

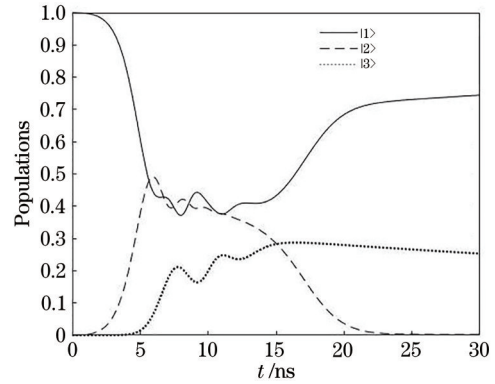


图 5 各能级粒子数布居随时间的变化
Fig. 5 Variation of population of each energy level with time

以在式(4)中,该项对探测吸收起促进作用,不是负吸收现象的起因。模拟结果还显示,由于里德伯能级的寿命长,泵浦到 $|3\rangle$ 能级的原子不能快速弛豫到低能级,激光脉冲作用结束后,仍有近 30% 的受激原子布居于里德伯能级 $|3\rangle$,能级 $|3\rangle$ 和 $|2\rangle$ 之间形成粒子数翻转,可用于实现光放大输出。

3.3.2 相干项 ρ_{31} 随时间的变化

耦合场拉比频率取值 $\Omega_c=4$ GHz,其他参数取值与 3.1 节相同的条件下,相干项随时间变化如图 6 所示。由图 6 可以看出,相干项随时间的变化呈现振荡的特征,将图 3 中 $\Omega_c=4$ GHz 的探测吸收随时间变化的曲线与相干项 ρ_{31} 随时间变化的振荡曲线进行对比,可以发现二者近似成镜像关系,存在负吸收的区间,相干项总体大于零,在式(4)中,该项小于零,说明探测吸收出现负吸收现象是耦合场、探测场共同作用引起的相干项 ρ_{31} 。

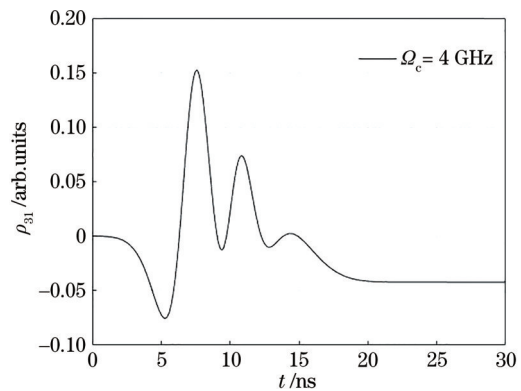


图 6 相干项随时间的变化
Fig. 6 Variation of coherence terms with time

4 结 论

通过双光场双共振方式制备及研究里德伯原

子,通常用频率固定的耦合场将原子激发到第一共振态,扫描探测场频率进行里德伯态的相关研究,由于探测吸收跃迁的初始能级粒子数布居与耦合场强度密切相关,所以探测吸收信号的强弱除与探测场拉比频率直接相关外,还和耦合场拉比频率相关。在耦合场较弱时,探测吸收随耦合场的增加而增大,存在临界值,之后继续增大耦合场拉比频率,探测吸收随时间延长出现振荡,并且有负吸收现象,通过分析影响探测吸收的各个因素发现,负吸收起因于耦合、探测场共同作用引起的相干现象,双脉冲光场共同作用可实现瞬态无反转光放大。

参 考 文 献

- [1] 张绮香. 高激发态里德堡原子[J]. 物理, 1981, 10(5): 273-277.
Zhang Q X. A highly excited Rydberg atom[J]. Physics, 1981, 10(5): 273-277.
- [2] Pritchard J D, Maxwell D, Gauguier A, et al. Cooperative atom-light interaction in a blockaded Rydberg ensemble[J]. Physical Review Letters, 2010, 105(19): 193603.
- [3] Schwarzkopf A, Sapiro R E, Raithel G. Imaging spatial correlations of Rydberg excitations in cold atom clouds[J]. Physical Review Letters, 2011, 107(10): 103001.
- [4] Schaub P, Cheneau M, Endres M, et al. Observation of spatially ordered structures in a two-dimensional Rydberg gas[J]. Nature, 2012, 491(7422): 87-91.
- [5] 张正源, 张天乙, 刘宗凯, 等. 里德堡原子多体相互作用的研究进展[J]. 物理学报, 2020, 69(18): 20200649.
Zhang Z Y, Zhang T Y, Liu Z K, et al. Research progress of Rydberg many-body interaction[J]. Acta Physica Sinica, 2020, 69(18): 20200649.
- [6] Ding D S, Busche H, Shi B S, et al. Phase diagram and self-organizing dynamics in a thermal ensemble of strongly interacting Rydberg atoms[J]. Physical Review X, 2020, 10(2): 021023.
- [7] Zhang Z Y, Ding D S, Shi B S. Review of quantum simulation based on Rydberg many-body system[J]. Chinese Physics B, 2021, 30(2): 020307.
- [8] Yu Y C, Dong M X, Ye Y H, et al. Experimental demonstration of switching entangled photons based on the Rydberg blockade effect[J]. Science China Physics, Mechanics & Astronomy, 2020, 63(11): 110312.
- [9] 贾光瑞, 张现周, 赵跃进, 等. 太赫兹场中里德堡铷原子的相干操控[J]. 原子与分子物理学报, 2013, 30(6): 959-964.
Jia G R, Zhang X Z, Zhao Y J, et al. Coherent control of Rydberg rubidium atoms in terahertz laser field[J]. Journal of Atomic and Molecular Physics, 2013, 30(6): 959-964.
- [10] 蒋亚静, 张现周. 微波调制的里德堡原子集体量子跳跃[J]. 原子与分子物理学报, 2020, 37(2): 255-260.
Jiang Y J, Zhang X Z. Collective quantum jumps of Rydberg atoms under microwave modulation[J]. Journal of Atomic and Molecular Physics, 2020, 37(2): 255-260.
- [11] 樊佳蓓, 郝丽萍, 白景旭, 等. 基于 Rydberg 原子的高灵敏微波探测与通信[J]. 物理学报, 2021, 70(6): 20201401.
Fan J B, Hao L P, Bai J X, et al. High-sensitive microwave sensor and communication based on Rydberg atoms[J]. Acta Physica Sinica, 2021, 70(6): 20201401.
- [12] Sedlacek J A, Schwettmann A, Kübler H, et al. Microwave electrometry with Rydberg atoms in a vapour cell using bright atomic resonances[J]. Nature Physics, 2012, 8(11): 819-824.
- [13] 李伟, 张淳刚, 张好, 等. 基于里德堡原子 AC-Stark 效应的工频电场测量[J]. 激光与光电子学进展, 2021, 58(17): 1702002.
Li W, Zhang C G, Zhang H, et al. Power-frequency electric field measurement based on AC-Stark effect of Rydberg atoms[J]. Laser & Optoelectronics Progress, 2021, 58(17): 1702002.
- [14] 刘硕, 白建东, 王杰英, 等. 铯原子 $nP_{3/2}(n=70-94)$ 里德伯态的紫外单光子激发及量子亏损测量[J]. 物理学报, 2019, 68(7): 20182283.
Liu S, Bai J D, Wang J Y, et al. Measurement of quantum defect of cesium $nP_{3/2}(n=70-94)$ Rydberg states by using ultraviolet single-photon Rydberg excitation[J]. Acta Physica Sinica, 2019, 68(7): 20182283.
- [15] 李敬奎, 杨文广, 宋振飞, 等. 49S 里德堡态的射频双光子光谱[J]. 物理学报, 2015, 64(16): 163201.
Li J K, Yang W G, Song Z F, et al. Two-photon radio frequency spectroscopy of 49S Rydberg state [J]. Acta Physica Sinica, 2015, 64(16): 163201.
- [16] 李昌勇, 张临杰, 赵建明, 等. 铯原子里德堡态 Stark 能量及电偶极矩的测量和理论计算[J]. 物理学报, 2012, 61(16): 163202.
Li C Y, Zhang L J, Zhao J M, et al. Measurement

- and theoretical calculation for Stark energy and electric dipole moment of Cs Rydberg state[J]. *Acta Physica Sinica*, 2012, 61(16): 163202.
- [17] Kutsenko A S, Dyubko S F, Pogrebnyak N L. Millimeter-wave spectroscopy of ZnI in triplet F Rydberg states[J]. *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy*, 2019, 160: 105674.
- [18] Mohapatra A K, Jackson T R, Adams C S. Coherent optical detection of highly excited Rydberg states using electromagnetically induced transparency [J]. *Physical Review Letters*, 2007, 98(11): 113003.
- [19] 张贵银, 李建杰, 靳一东, 等. 双光场作用下里德堡原子吸收特性的研究[J]. *光电子·激光*, 2020, 31(7): 713-718.
- Zhang G Y, Li J J, Jin Y D, et al. Investigation about the absorption of Rydberg atom under the driven of double laser field[J]. *Journal of Optoelectronics·Laser*, 2020, 31(7): 713-718.