

有三重态的四能级系统的光学双稳态

季 鹰 林福成

(中国科学院上海光学精密机械研究所, 上海 201800)

摘 要 对一种有着单重态和三重态的典型的有机物的四能级系统的光学双稳进行了研究。由密度矩阵的速率方程近似推导出了光学双稳的状态方程。对单重态和三重态吸收或色散情况下的双稳情况用数值解的方法进行了讨论。文中分析了单重态和三重态的合作参数、原子失谐参数和腔失谐参数对双稳的影响。

关键词 光学双稳, 四能级系统。

1 引 言

自从1969年光学双稳被提出以来^[1], 有关的理论工作已经研究了二能级系统^[2]、三能级系统^[3]和多量子阱系统^[4]等。最近对典型的四能级结构的固体激光器的双稳也进行了研究^[5]。理论研究工作已应用于金属蒸汽光学双稳^[6]和半导体光学双稳^[7]等方面。在有机材料的双稳实验研究方面, 已在一些有机材料上实现了双稳^[8]。富勒碳(C₆₀)的双稳也被观察到^[9]。为了进一步探讨有机材料光学双稳的机理, 本文提出了一种有单重态和三重态的典型的有机介质的四能级模型的双稳理论, 在推导出了光学双稳的状态方程的基础上, 分别对于单重态和三重态单光子共振吸收的不同情况, 通过数值解研究了有关的合作参数、原子失谐参数和腔的失谐参数对双稳的影响。

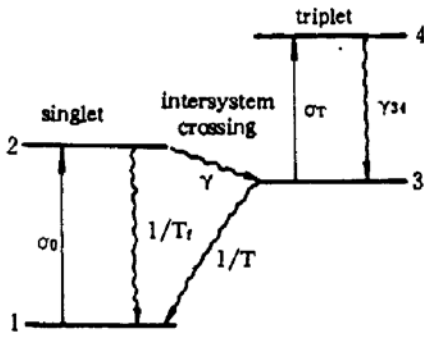
2 光学双稳的状态方程

能级模型如图1所示。能级1和能级2是单重基态和激发态, 能级3和能级4是三重态。从能级1到能级3的跃迁是光学禁戒的。 σ_0 为与频率有关的从能级1到能级2的电偶极矩跃迁的吸收横截面, σ_T 为三重态之间电偶极矩跃迁的吸收横截面。 T_f 为从能级2到基态能级1的电偶极矩跃迁的弛豫寿命。 r_{34} 为三重态之间能级4到能级3的电偶极矩跃迁的弛豫几率, r 为单重态到三重态系间的跃迁几率, T 为能级3到能级1弛豫寿命。

假设能级2和能级4上的粒子布居为零, 即 $r, 1/T_f\sigma_0I/h\omega$ 和 $r_{34} \gg \sigma_T I/h\omega$, I 为光强。由密度矩阵的速率方程近似和速率方程的稳态解, 得出极化强度 P 为^[10]:

$$P(\mathbf{r}, t) = \frac{i\epsilon_0 N}{k_0} \left[\sigma_T(1 + i\delta_{34}) + \frac{\sigma_0(1 + i\delta_{12} - \sigma_T(1 + i\delta_{34}))}{1 + |E|^2/|E_c|^2} \right] E(\mathbf{r}, t), \quad (1)$$

其中 E 为波数为 k_0 的电场强度, ϵ_0 为介电常数, N 为四能级介质的粒子数。光场与原子共振跃



ig. 1 Energy level diagram. σ_0 is the absorption cross section from level 1 to level 2. σ_T is the absorption cross section from level 3 to level 4. τ is the transition rate of an intersystem crossing, τ_{34} is the relaxation rate from level 4 to level 3. T_f and T are the relaxation lifetimes from level 2 and level 3 to ground level 1, respectively

迁的失谐参数 δ_{ij} 定义为:

$$\delta_{ij} = (\omega - \omega_{ij})T_{ij},$$

ω 是光的角频率, ω_{ij} 和 T_{ij} 分别为能级 i 和能级 j 之间的共振角频率和横向弛豫寿命. $i, j = 1, 2, 3, 4$. 饱和光强定义为:

$$I_s = \epsilon_0 c |E_s|^2 / 2 = \hbar \omega / (\sigma_0 q T),$$

式中 $q = \tau / (\tau + 1/T_f)$ 代表单重态和三重态之间的量子产率. c 为光速. 因而由(1)式得出极化率 χ 为:

$$\chi = - \frac{N}{k_0} \left(\frac{\sigma_0 \delta_{12} + \sigma_T \delta_{34} |E|^2 / |E_s|^2}{1 + |E|^2 / |E_s|^2} \right) + i \frac{N}{k_0} \left(\frac{\sigma_0 + \sigma_T |E|^2 / |E_s|^2}{1 + |E|^2 / |E_s|^2} \right). \quad (2)$$

考虑在平行平面腔中的四能级系统. 在低损耗和高 Q 值腔的情况下, 采用平均场近似, 由干涉理论, 入射光场 E_i 和透射光场 E_t 之间的关系为:

$$E_t = \frac{1 - R}{1 - R \exp(i\varphi)} E_i, \quad (3)$$

式中 R 为腔的反射率, φ 为光场在腔内循环一周的位相变化. $\varphi = 2nk_0L$, n 为复数折射率, $n = \chi/2 + 1$, L 为腔长. 则有

$$\exp(i\varphi) = \exp(2ik_0L) \exp(i\chi k_0L). \quad (4)$$

令光场位相变化与腔的谐振条件偏离位相角为 θ , $\theta = 2m\pi - 2k_0L$, m 为整数. 假定光场接近腔的谐振条件, 即 θ 比较小, 则

$$\exp(2ik_0L) = \exp[i(2m\pi - \theta)] = \exp(-i\theta) \approx 1 - i\theta. \quad (5)$$

由于非线性极化率对折射率的影响远小于 1, 故有

$$\exp(i\chi k_0L) \approx 1 + i\chi k_0L. \quad (6)$$

将(5)和(6)式代入(4)式, 则有

$$\exp(i\varphi) \approx (1 - i\theta)(1 + i\chi k_0L). \quad (7)$$

将(7)式代入(3)式, 则有

$$E_t = \frac{(1 - R)E_i}{1 - R(1 + i\chi k_0L - i\theta)}. \quad (8)$$

将(2)式的极化率表达式代入(8)式, 并令合作参数

$$C_{0,\tau} = \frac{1}{2} \frac{NLR\sigma_{0,\tau}}{1 - R} \approx \frac{LN\sigma_{0,\tau}}{2(1 - R)},$$

腔的失谐参数

$$\Theta = \theta \frac{R}{1 - R} \approx \theta / (1 - R),$$

以及 $|x|^2 = \frac{|E_t|^2}{(1 - R)|E_s|^2}$, $|y|^2 = \frac{|E_i|^2}{(1 - R)|E_s|^2}$, $|E|^2 = \frac{1}{1 - R} |E_t|^2$,

于是就得出光学双稳的状态方程为:

$$y^2 = x^2 \left\{ \left(1 + \frac{2C_0 + 2C_\tau x^2}{1 + x^2} \right)^2 + \left(\Theta + \frac{2C_0\delta_{12} + 2C_\tau\delta_{34}x^2}{1 + x^2} \right)^2 \right\}. \quad (9)$$

在双稳曲线中, 沿 X 增长方向上的第一个极值点 (X_{\min}, Y_{\max}) 为双稳的开点, 第二个极值

点 (X_{\max}, Y_{\min}) 为双稳的拐点。令 $\Delta Y_m = Y_{\max} - Y_{\min}$, 代表双稳与单稳差异的程度。

3 数值分析与讨论

3.1 完全吸收型双稳

取 $\delta_{12} = \delta_{34} = \theta = 0$, 由(9)式得到单重态之间和三重态之间都共振吸收, 光场与腔共振时的双稳状态方程

$$y = x \left(1 + \frac{2C_0 + 2C_T x^2}{1 + x^2} \right). \quad (10)$$

令 $dy/dx = 0$, 得(10)式取极值的条件方程为

$$(1 + 2C_T)^2(x^2 + 1)^3 + 4(C_0 - C_T)(3C_T - C_0 + 1)(x^2 + 1) + 8(C_0 - G)^2 = 0. \quad (11)$$

(11)式方程有实根的条件为

$$C_0 > 9C_T + 4. \quad (12)$$

当 $C_0 = 9C_T + 4$ 时, 出现单稳。而二能级系统的纯吸收双稳条件为 $C \geq 4^{[3]}$, 可见四能级系统的完全吸收双稳要求 C_0 取更大的值。 C_0 对光学双稳的影响如图 2 所示。取 $C_T = 0.2$, C_0 分别为 0.2, 6, 10, 15 和 20。随着 C_0 的减小, 开关点的 Y_{\max} 和 Y_{\min} 均减小, ΔY_m 也减小, 当 C_0 小到 6 时, 双稳已接近单稳了。 C_T 对双稳的影响如图 3 所示, 其中 $C_0 = 10$ 为常数, C_T 分别为 0.05, 0.2, 0.5, 0.7 和 10。由(12)式得当 $C_T < (1/9)(C_0 - 4)$ 时出现双稳, 当 $C_T = (1/9)(C_0 - 4)$ 时, 出现单稳。随着 C_T 的减小, Y_{\max} 和 Y_{\min} 均减小, 而 ΔY_m 却增大。所以, 单重态之间和三重态之间吸收越大, 双稳开关点 Y_{\max} 和 Y_{\min} 就越大。而对于双稳开关点的间隔 ΔY_m , 单重态之间吸收的增长使 ΔY_m 增长, 而三重态间的吸收增长使 ΔY_m 减小, 趋向单稳。由(12)式也得出一个结论, 反饱和吸收介质在单重态和三重态都共振吸收时不可能出现双稳, 即无完全吸收型双稳出现。

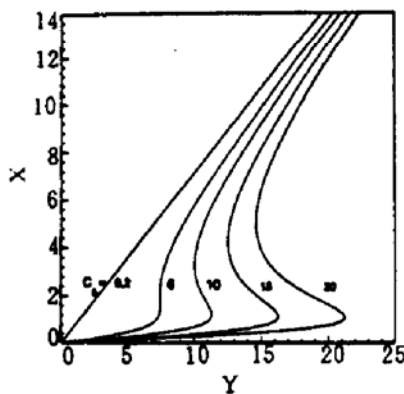


Fig. 2 Bistability curve for $C_T = 0.2$ and $\delta_{12} = \delta_{34} = \theta = 0$ with $C_0 = 0.2, 6, 10, 15$ and 20 respectively

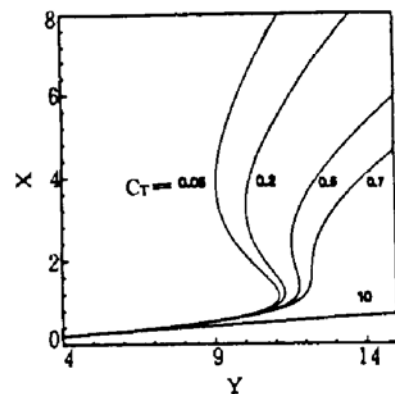


Fig. 3 Bistability curve for $C_0 = 10$ and $\delta_{12} = \delta_{34} = \theta = 0$ with $C_T = 0.05, 0.2, 0.5, 0.7$ and 10 respectively

3.2 仅单重态共振吸收的双稳

取 $\delta_{12} = \theta = 0$, 由(9)式得单重态之间共振吸收, 光场与腔共振时的双稳状态方程

$$y^2 = x^2 \left\{ \left(1 + \frac{2C_0 + 2C_T x^2}{1 + x^2} \right)^2 + \left(\frac{2C_T \delta_{34} x^2}{1 + x^2} \right)^2 \right\} \quad (13)$$

其中 δ_{34} 取绝对值相同的正负两个值时, 对双稳的贡献相同。双稳曲线如图 4 所示, 图中 $C_0 = 10$, $C_T = 0.2$, $\delta_{12} = \theta = 0$, δ_{34} 取不同的值, $|\delta_{34}| = 0, 1, 3$ 和 5 。随着 $|\delta_{34}|$ 从 0 到 5 变大,

双稳的开点 Y_{\max} 较双稳的关点 Y_{\min} 增长得小, 双稳开关点间隔 ΔY_m 减小。即增大 $|\delta_{34}|$ 使 ΔY_m 减小。在单重态之间共振吸收的情况, 反饱和吸收介质不能实现双稳。

3.3 仅三重态共振吸收的双稳

取 $\delta_{34} = \theta = 0$, 由(9)式得三重态之间共振吸收, 光场与腔共振的双稳状态方程

$$y^2 = x^2 \left\{ \left(1 + \frac{2C_0 + 2C_T x^2}{1 + x^2} \right)^2 + \left(\frac{2C_0 \delta_{12}}{1 + x^2} \right)^2 \right\}. \quad (14)$$

δ_{12} 取绝对值相同的正负两个值时, 对双稳的贡献相同。 $|\delta_{12}|$ 对双稳的影响如图 5 所示。图中取 $C_0 = 10$, $C_T = 0.2$ 和 $\delta_{34} = \theta = 0$, 各条曲线的 δ_{12} 分别为 $|\delta_{12}| = 0, 1, 3$, 和 5。随着 $|\delta_{12}|$ 的增长, 双稳开点的 Y_{\max} 增长较大, 关点的 Y_{\min} 增长较小, 开关点间隔 ΔY_m 增大。当 $|\delta_{12}|$ 足够大, 即使增大 C_T 会减小 ΔY_m , 也可能在 $C_T \geq C_0$ 时, 得到双稳。这完全不同于 3.1 节讨论的完全吸收双稳和 3.2 节中讨论的单重态共振吸收的双稳。

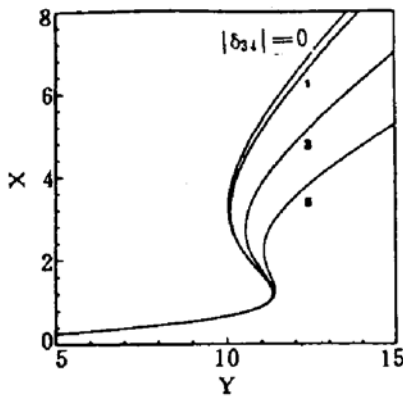


Fig. 4 Bistability curve for $C_0 = 10$, $C_T = 0.2$ and $\delta_{12} = \theta = 0$ with $|\delta_{34}| = 0, 1, 3$ and 5 respectively

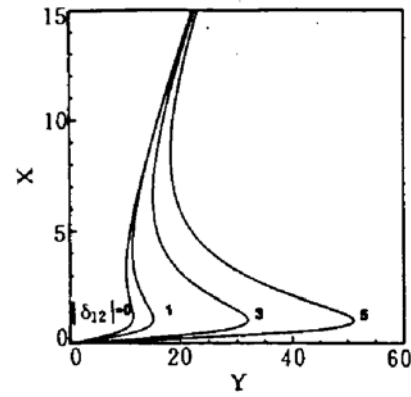


Fig. 5 Bistability curve for $C_0 = 10$, $C_T = 0.2$ and $\delta_{34} = \theta = 0$ with $|\delta_{12}| = 0, 1, 3$ and 5 respectively

当光场与腔不共振时, $\theta \neq 0$, (14)式成为

$$y^2 = x^2 \left\{ \left(1 + \frac{2C_0 + 2C_T x^2}{1 + x^2} \right)^2 + \left(\theta + \frac{2C_0 \delta_{12}}{1 + x^2} \right)^2 \right\}. \quad (15)$$

这时 θ 取值的正或负, 将会对双稳产生不同的影响。考察在 $C_T > C_0$ 时, 反饱和吸收介质的情况下, θ 对双稳的影响。取 $C_0 = 10$, $C_T = 11$, $\delta_{12} = 6$ 和 $\delta_{34} = 0$ 时, $\theta = -4, -2, 0, 1$ 和 2 的双稳曲线见图 6。可见随着 θ 从 -4 增大到 2, 开关点的 Y_{\max} 和 Y_{\min} 都增大, 开关点间隔 ΔY_m 减小, 双稳趋于单稳。所以 θ 增大使 ΔY_m 减小。

3.4 单重态和三重态的吸收与色数双稳

先讨论一个特殊情况, $C_0 = C_T$, $\theta = 0$, 但 $C_0 \delta_{12} \neq C_T \delta_{34}$ 。由(9)式得到双稳状态方程为

$$y^2 = x^2 \left\{ (1 + 2C_T)^2 + \left(\frac{2C_0 \delta_{12} + 2C_T \delta_{34}}{1 + x^2} \right)^2 \right\}. \quad (16)$$

为了研究 δ_{34} 对双稳的影响, 取 $C_0 = C_T = 6$, $\delta_{12} = 5$ 和 $\theta = 0$, 对于 $\delta_{34} = -2.5, -2, -1, -0.5$ 和 0 的不同值作双稳曲线如图 7 所示。这里 δ_{34} 取了负值, 不同于 3.2 中讨论的仅 δ_{34} 的绝对值 $|\delta_{34}|$ 对双稳起作用。随着 δ_{34} 从 -2.5 增长到 0, 双稳开关点 Y_{\max} 和 Y_{\min} 均增大, 开关点间隔 ΔY_m 减小, $\delta_{34} = 0$ 时, 双稳已成为单稳了。与图 4 单重态共振吸收双稳的情况比较, 增大 δ_{34} 都使 ΔY_m 减小。但图 4 中, 随着 δ_{34} 增长, 双稳开点的 Y_{\max} 增长不大。

下面分析 δ_{12} 对双稳的影响。取 $C_0 = 10$, $C_T = 0.2$, $\delta_{34} = 1$ 和 $\theta = 0$, 作 $\delta_{12} = -2, -1, 0, 1$ 和 2 的双稳曲线图如图 8 所示。当 δ_{12} 取绝对值相等的正负两个值时, 双稳曲线并不相同。

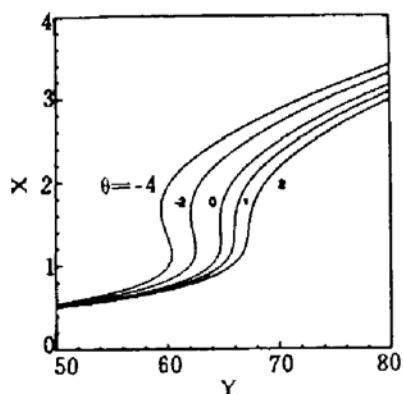


Fig. 6 Bistability curve for $C_0 = 10$, $C_T = 11$, $\delta_{12} = 6$ and $\delta_{34} = 0$ with $\theta = -4, -2, 0, 1$ and 2 respectively

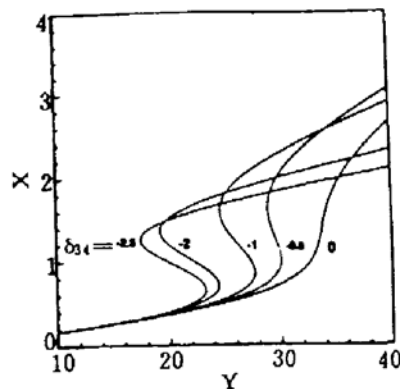


Fig. 7 Bistability curve for $C_0 = C_T = 6$, $\delta_{12} = 5$ and $\theta = 0$ with $\delta_{34} = -2.5, -2, -1, -0.5$ and 0 respectively

从图中看出，当 δ_{12} 取负的值时，开关点间隔 ΔY_m 比 δ_{12} 取正值时的更大。与图 5 比较，这里 $|\delta_{12}|$ 对双稳的作用类似于图 5 中三重态共振吸收双稳的情况，增大 $|\delta_{12}|$ 都使 ΔY_m 增大。

为了研究三重态吸收对双稳的影响，在 $C_0 = 6$, $\delta_{12} = 5$, $\delta_{34} = -1$, $\theta = 0$ 时， C_T 分别取 3, 4, 6, 7 和 9，作双稳曲线图如图 9 所示。其中 $C_T = 6$ 的曲线与图 7 中 $\delta_{34} = -1$ 的曲线是一样的。 $C_T = 7, 9$ 时的曲线为反饱和吸收介质的双稳曲线。随着 C_T 的增大，双稳开关点之间的间隔 ΔY_m 减小。不过与图 3 的完全吸收双稳中 Y_{\max} 和 Y_{\min} 同时增大的情况不同，这里 Y_{\max} 减小， Y_{\min} 增大。

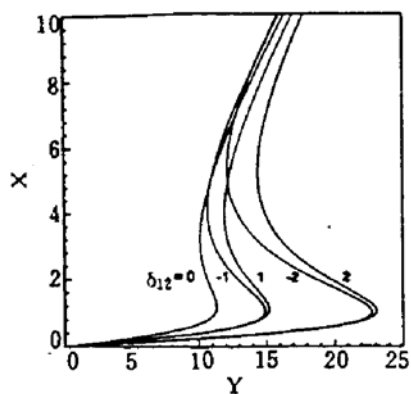


Fig. 8 Bistability curve for $C_0 = 10$, $C_T = 0.2$, $\delta_{34} = 1$, and $\theta = 0$ with $\delta_{12} = -2, -1, 0, 1$ and 2 respectively

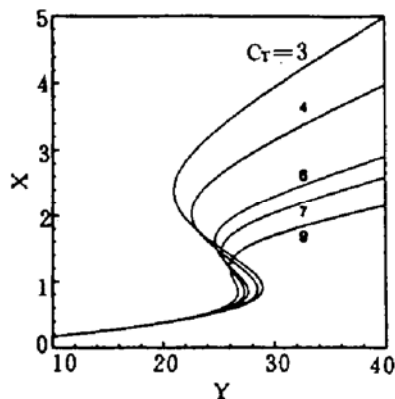


Fig. 9 Bistability curve for $C_0 = 6$, $\delta_{12} = 5$, $\delta_{34} = -1$ and $\theta = 0$ with $C_T = 3, 4, 6, 7$ and 9 respectively

总 结 1) 增大 C_0 会增大 ΔY_m ，但也使 Y_{\max} 增大。故 C_0 大的介质，虽然双稳的状态明显，但也要求入射光强更大。增大 C_T 会减小 ΔY_m ，使双稳趋于单稳，在 $\delta_{12} \neq 0$ 即单重态存在色散的情况下，当 $C_T \geq C_0$ 时，反饱和吸收介质在一定条件下也可实现双稳。

2) 增大 $|\delta_{12}|$ 会使 ΔY_m 增大，而增大 δ_{34} 却使 ΔY_m 减小。故单重态的色散越大，或三重态的色散越小，会使双稳状态越明显，反之则双稳趋于单稳。在 δ_{12} 和 δ_{34} 都不为零时，即单重态和三重态都存在色散时， δ_{12} 和 δ_{34} 取绝对值相同的正负两个值，对双稳的影响有差别。

参 考 文 献

- [1] A. Szoke, V. Daneu, J. Goldhar, *et al.*, Bistable optical element and its applications. *Appl. Phys. Lett.*, 1969, 15 (10): 376~379
- [2] S. L. McCall, Instabilities in continuous-wave light propagation in absorbing media. *Phys. Rev. A*, 1974, 9(4): 1515~1523
R. Bonifacio, L. A. Lugiato, Cooperative effects and bistability for resonance fluorescence. *Opt. Comm.*, 1976, 19(2): 172~176
J. H. Marburger, F. S. Felber, Theory of a lossless nonlinear Fabry-Perot interferometer. *Phys. Rev. A*, 1978, 17 (1): 335~342
G. P. Agrawal, H. J. Carmichael, Optical bistability through nonlinear dispersion and absorption. *Phys. Rev. A*, 1979, 19(5): 2074~2086
- [3] Daniel F. Walls, Peter Zoller, Moiral L. Steyn-Ross, Optical bistability from three-level atoms. *IEEE. J. Quant. Electron.*, 1981, QE-17(3): 380~383
- [4] G. P. Bava, F. Castelli, P. Debemardi *et al.*, Optical bistability in a multiple-quantum-well structure with Fabry-Perot and distributed-feedback resonators. *Phys. Rev. A*, 1992, 45(7): 5180~5192
- [5] T. C. Ralph, Bistability in a four-level laser with a resonant pump mode. *Phys. Rev. A*, 1994, 49(6): 4979~4984
- [6] H. M. Gibbs, S. L. McCall, T. N. C. Venkatesan, Differential gain and bistability using a sodium-filled Fabry-Perot interferometer. *Phys. Rev. Lett.*, 1976, 36(17): 1135~1138
- [7] H. M. Gibbs, S. L. McCall, T. N. C. Venkatesan *et al.*, Optical bistability in semiconductors. *Appl. Phys. Lett.*, 1979, 35(6): 451
- [8] A. D. Lloyd, B. S. Wherrett, All-optics bistability in nematic liquid crystals at 20 μ W power levels. *Appl. Phys. Lett.*, 1988, 53(6): 460~461
Bhanu P. Singh, Paras N. Prasad, Optical bistable behavior of a planar quasi-waveguide interferometer mode with a conjugated organic polymer film. *J. Opt. Soc. Am. B*, 1988, 5(2): 453~456
K. Sasaki, K. Fujii, T. Tomioka, All-optical bistabilities of polydiacetylene langmuir-blodgett film waveguides. *J. Opt. Soc. Am. B*, 1988, 5(2): 457~461
- [9] Fucheng Lin, Jiran Zhao, Ting Luo, *et al.*, Optical limitation and bistability in fullerenes. *J. Appl. Phys.*, 1993, 74(3): 2140~2142
- [10] Shigeki Miyayaga, Hiroaki Ohtateme, Katsunori Kawano *et al.*, Excited-state absorption and pump propagation effects on optical phase conjugation in a saturable absorber. *J. Opt. Soc. Am. B*, 1993, 10(6): 1069~1076

Optical Bistability of Four-Level System with Triple State

Ji Ying Lin Fucheng

(Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Academia Sinica, Shanghai 201800)

(Received 5 October 1994; revised 20 January 1995)

Abstract We studied the optical bistability for four-level system with single and triple state typical of organic media. By means of the rate-equation approximation of a density-matrix method, the state equation of optical bistability was derived. The bistability with absorption or dispersion of single state and triple state is numerically discussed. We analysed the effect of cooperative parameter, atomic and cavity detuning parameter on optical bistability.

Key words optical bistability, four-level system.