

产生缀饰原子三次谐波的探讨

丁 刚 林福成

(中国科学院上海光学精密机械研究所, 上海 201800)

摘 要 缀饰原子对独立能级的耦合改变了原子的本征态, 从而使某些禁戒跃迁成为可能, 本文对缀饰氮原子三次谐波产生的可能性作了探讨, 并将其转换效率理论计算值与裸原子作了比较。

关键词 缀饰原子, 非线性极化率, 三次谐波产生。

1 引 言

在强相干场的驱动下, 原子的各能级将发生相互作用而在外探测光作用下有许多新的行为, 比如无反转粒子数激光器^[1, 2]、光致透明^[3, 4]、光致折射率增强^[5]、以及动态不可逆过程等别的一些现象^[6, 7]。在缀饰原子表象(DAP)中, 新的本征波函数是自由原子和驱动电磁场本征波函数的乘积的线性叠加, 由此产生这样的想法是否可以通过细心地选择入射场以“剪裁”波函数来满足某些特定的要求, 如混和不同宇称态以使某些禁戒跃迁成为允许跃迁。

本文利用缀饰原子模型分析了两能级原子波函数的混和, 在缀饰原子表象下重写了三阶非线性极化率的表达式以期解释禁戒跃迁是如何被突破的。文中给出了缀饰氮原子对掺钕激光器三阶非线性极化率的相对大小, 通过与裸原子的比较, 此结果暗示着一个新的高转换效率的三次谐波产生方法。

2 缀饰态

一个两能级原子是一个很简单也很有用的模型, 因为很多情况下考虑的都是单色激光入射而与原子的某两特定能级共振或近共振的情况。

如果激光频率为 ω , 而跃迁频率为 ω_0 , 则在电偶极近似和旋转波近似(RWA)下, 原子在激光场中的哈密顿量是^[8, 9]:

$$H = \frac{1}{2} \hbar \omega_0 \sigma_z + \hbar \omega a^\dagger a - \hbar g (a \sigma_+ + a^\dagger \sigma_-) \quad (1)$$

式中 σ_z 、 σ_+ 、 σ_- 为泡利矩阵。 g 给出了原子和光场之间的相互作用强度, 其大小为

$$\sqrt{\frac{2\pi\hbar c^2}{\omega\mu} \frac{i\omega_0 d}{\hbar} \epsilon d}$$

而 $\omega_1 = 2g \sqrt{n+1}$ 就是拉比频率。因为强单色光可认为是相干态, 其光子数具有泊松分布。

可以假定光子数分步宽度 Δn 满足

$$1 \ll \Delta n \ll \bar{n}$$

因而下面忽略了 ω_1 对 n 的依赖。

现在推导一下 H 的矩阵元:

$$\langle g; n | H | g; n \rangle = \langle g; n | \frac{1}{2} \hbar \omega_0 \sigma_z + \hbar \omega a^\dagger a | g; n \rangle = -\frac{1}{2} \hbar \omega_0 + n \hbar \omega \quad (2)$$

$$\langle e; n | H | g; n' \rangle = \langle e; n | -\hbar g a \sigma_+ | g; n \rangle = -\hbar g \sqrt{n} \delta_{n', n-1} \quad (3)$$

$$\langle g; n | H | e; n' \rangle = -\hbar g \sqrt{n+1} \delta_{n', n+1} \quad (4)$$

上面这些结果表示 H 矩阵是一个 (2×2) 不变子空间组成的对角矩阵, 一个典型的子空间是:

$$\hbar \begin{pmatrix} (n-1)\omega_0 + \frac{1}{2}\omega_0 & -\sqrt{n}g \\ \sqrt{n}g & n\omega_0 - \frac{1}{2}\omega_0 \end{pmatrix} = (n - \frac{1}{2})\hbar \omega \mathbf{I} + \hbar \begin{pmatrix} -\Delta/2 & -\sqrt{n}g \\ \sqrt{n}g & \Delta/2 \end{pmatrix}$$

$\Delta = \omega - \omega_0$ 为失谐量。对矩阵的对角化就可以得到原子加场的缀饰态 $|1, 2; n\rangle$

$$|1; n\rangle = \cos(\Phi/2) |e, n\rangle + \sin(\Phi/2) |g, n+1\rangle \quad (5)$$

$$|2; n\rangle = -\sin(\Phi/2) |e, n\rangle + \cos(\Phi/2) |g, n+1\rangle \quad (6)$$

$$\text{tg } \Phi = \omega_1 / \Delta \quad (7)$$

从(5)~(7)式可以看到仔细的选择入射光可以得到某些确定的电子态, 它们是不同的宇称态的线性组合。

精确地解激光场中的多能级原子是一很困难的事情, 但对共振和近共振的情形, 可以认为只有共振能级独立地与激光场相作用。对于共振能级, $\Delta \rightarrow 0$, 所以 $\text{tg } 2\Phi \rightarrow \infty$, $\Phi \rightarrow 45^\circ$ 。而非共振能级, Δ 非常大, $\Phi \approx 0$, 所以 $\sin(\Phi/2)$ 约等于零, 波函数的混和也就可以忽略了。

3 三阶非线性极化率

三次谐波产生是一四光子过程, 其转换效率可由三阶非线性极化率来表示。利用含时微扰理论通过解刘维方程可以得到普通的三阶非线性极化率的表达式^[10], 此表达式是一对 48 项的求和。但在三次谐波产生情形下, 由于入射光的简并(实际上入射光的振幅, 频率, 相位等均无差别), 表达式已简化为对 8 项的求和

$$\begin{aligned} \chi^{(3)}(-3\omega, \omega, \omega, \omega) = & \frac{e^4 N}{4\epsilon_0 \hbar} \sum_{g, m, m', m''} \rho_{gg}^{(0)}(r) g_{m''}(r) m'' m'(r) m' m(r) m_g \\ & \times \{ [(\omega_{mg} - \omega - i\Gamma_{mg})(\omega_{m'g} - 2\omega - i\Gamma_{m'g})(\omega_{m''g} - 3\omega - i\Gamma_{m''g})]^{-1} \\ & + [(\omega_{m''g} + \omega + i\Gamma_{m''g})(\omega_{m'g} + 2\omega + i\Gamma_{m'g})(\omega_{mg} + 3\omega + i\Gamma_{mg})]^{-1} \\ & + [(\omega_{mg} - \omega - i\Gamma_{mg})(\omega_{m'g} - 2\omega - i\Gamma_{m'g})(\omega_{m''m'} + 3\omega + i\Gamma_{m''m'})]^{-1} \\ & + [(\omega_{mg} - \omega - i\Gamma_{mg})(\omega_{m''m} + 2\omega + i\Gamma_{m''m})(\omega_{m'm''} - 3\omega - i\Gamma_{m'm''})]^{-1} \\ & + [(\omega_{m''g} + \omega + i\Gamma_{m''g})(\omega_{mm''} - 2\omega - i\Gamma_{mm''})(\omega_{m'm''} - 3\omega - i\Gamma_{m'm''})]^{-1} \\ & + [(\omega_{m''g} + \omega + i\Gamma_{m''g})(\omega_{m'g} + 2\omega + i\Gamma_{m'g})(\omega_{mm'} - 3\omega - i\Gamma_{mm'})]^{-1} \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
& + [(\omega_{m'g} + \omega + i\Gamma_{m'g})(\omega_{mm''} - 2\omega - i\Gamma_{mm''})(\omega_{m'm} + 3\omega + i\Gamma_{m'm})]^{-1} \\
& + [(\omega_{mg} - \omega - i\Gamma_{mg})(\omega_{m''m} + 2\omega + i\Gamma_{m''m})(\omega_{m'm} + 3\omega + i\Gamma_{m'm})]^{-1} \quad (8)
\end{aligned}$$

在非共振条件下, (8) 式中阻尼因子可以忽略, 合并因式便可以得到通常所用 Armstrong 等人的三阶非线性极化率表达式^[11]。

注意到式子中有四个偶极跃迁矩阵元的乘积。因为电偶极子是一奇宇称算符, 它只能引起相反宇称之间的跃迁, 这就造成了某些跃迁被禁止。

对缀饰原子的情况。上面提到在缀饰原子表象中波函数和能量都发生了剧烈的变化, 但相对波函数的变化能量的变化可以忽略(能量的改变表现在缀饰原子的能级裂距, 大约 $\hbar\omega_1$)。因此(8)式中只需考虑电偶极矩阵元的变化。

假设缀饰场 $|\alpha\rangle$ 与 $|m''\rangle$ 态和另一 $|e\rangle$ 态共振(令 $|e\rangle$ 为低能级, 吸收光子), 则引入缀饰场后, 在缀饰原子表象下非共振态 $|g, \alpha\rangle$ 只是 $|g\rangle$ 和 $|\alpha\rangle$ 的简单乘积, $|m; \alpha\rangle, |m'; \alpha\rangle$ 同样如此。而对于共振态 $|m''; \alpha\rangle$, 它的每一福克态表示 $|m''; n\rangle$ 均应由(5)式的变换用 $|1; n\rangle$ 取代

$$\begin{aligned}
|m''; \alpha\rangle &= \exp\left(-\frac{1}{2}|\alpha|^2\right) \sum \frac{\alpha^n}{(n!)^{1/2}} |1; n\rangle \\
&= \exp\left(-\frac{1}{2}|\alpha|^2\right) \sum \frac{\alpha^n}{(n!)^{1/2}} [\cos(\Phi/2) |m''; n\rangle + \sin(\Phi/2) |e; n+1\rangle] \\
&= \cos(\Phi/2) \exp\left(-\frac{1}{2}|\alpha|^2\right) \sum \frac{\alpha^n}{(n!)^{1/2}} |m''; n\rangle \\
&\quad + \sin(\Phi/2) \exp\left(-\frac{1}{2}|\alpha|^2\right) \sum \frac{\alpha^n}{(n!)^{1/2}} |e; n+1\rangle \\
&= \cos(\Phi/2) |m''\rangle |\alpha\rangle + \sin(\Phi/2) |e\rangle |\alpha\rangle \quad (9)
\end{aligned}$$

因此, 缀饰后缀饰原子表象中(8)式求和号后面的部分变为:

$$\begin{aligned}
A_\Omega [\cos^2(\Phi/2) \langle g; \alpha | r | m''\rangle |\alpha\rangle \langle m'' | \alpha | r | m'\rangle \langle m'; \alpha | r | m; \alpha\rangle \langle m; \alpha | r | g; \alpha\rangle \\
+ \sin^2(\Phi/2) \langle g; \alpha | r | e\rangle |\alpha\rangle \langle e | \alpha | r | m'\rangle \langle m'; \alpha | r | m; \alpha\rangle \langle m; \alpha | r | g; \alpha\rangle] \quad (10)
\end{aligned}$$

式中 A_Ω 为频率因子。如果 $|m''\rangle$ 和 $|m'\rangle$ 有相同的宇称, 则它们之间的跃迁是被禁止的。但加上一个强场 $|\alpha\rangle$ 经过缀饰后, $|e; n+1\rangle$ 和 $|m''; n\rangle$ 纠缠在一起, 因而两能级之间仍可以有跃迁, 这样就使得禁戒跃迁变得可能, 并且计算上可以简单地用 $\sin^2(\Phi/2)r_{em'}$ 代替 $r_{m''m'}$ (严格共振时 $\Phi = \pi/2$, $\sin^2(\Phi/2)$ 值为 0.5)。上式的推导用了光子数分布 $\Delta n \ll \bar{n}$ 而假设 Φ 与 n 无关, 实际上正是在 $\bar{n} = |\alpha|^2$ 附近有大量福克态使得由某一具有特定宇称的非共振态到宇称混合的共振态总是可能的。

也许有人要怀疑在这里使用微扰论的合法性, 因为强缀饰场的引入使得原子以拉比频率在共振能级间振荡, 这样慢变振幅近似就不再合适。这的确是一很重要的问题, 本文没有考虑是因为 $|m''\rangle$ 是一禁戒能级, 从而认为它能级上的布居数的变化不会影响别的能级。

4 氮原子的三次谐波产生

一般说来氮原子的三次谐波产生转换效率很低因为很难找到合适的共振能级, (10)式的频率因子 A_Ω 要求 $\omega, 2\omega$ 与 3ω 至少有两个共振才能获得足够大的转换效率。氮的 $5s_{1/2}^0 (J=2)$,

$4d^{0}_{\frac{1}{2}}(J=2)$ 和 $8s^{0}_{\frac{1}{2}}(J=2)$ 是很好的共振能级, 它们的能级位置为 $79972.535 \text{ cm}^{-1}$, 98868.22 cm^{-1} 和 $108325.81 \text{ cm}^{-1}$, 基态 ($s_0 J=0$) 为 0。它们的能级间隔为 18895.7 cm^{-1} 和 9484.59 cm^{-1} (掺铈激光器发射波数大约是 $9200 \text{ cm}^{-1} - 9500 \text{ cm}^{-1}$), 前者约为后者的 2 倍。 $5s(J=2)$ 到 $4p^6(J=2)$ 的跃迁是被禁止的, 因此 $5s(J=2)$ 是一亚稳态, 通过放电可以在其上造成很大的布居数。而 $d(J=2) \rightarrow 8s(J=2)$, $5s(J=2) \rightarrow 8s(J=2)$ 的跃迁也是被禁止的, 这就需要加入另一激光场来缀饰 $8s(J=2)$ 能级例如另加一波长为 582.8 nm 的激光, 它将缀饰 $8s(J=2)$ 和 $5p(J=1)$ (因为此波长是它们的共振波长), 而 $4d(J=2) \rightarrow 5p(J=1)$, $5s(J=2) \rightarrow$

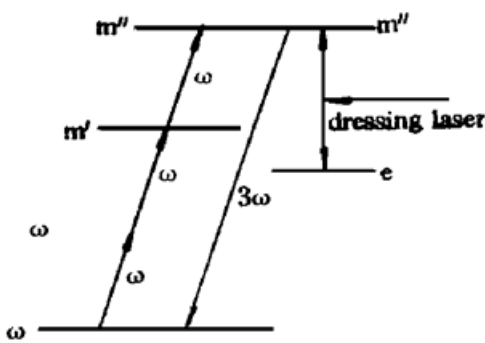


Fig. 1 Schematic of levels

$5p(J=1)$ 是允许的。有关的能级如图 1 所示。

现在开始计算有缀饰场和无缀饰场下的三阶非线性极化率, 因为主要对加了缀饰场后转换效率的提高, 所以为了计算简便忽略它们之间相同部分。

在共振和近共振条件下(8)式可被削减到只有几项, 而在这些项中, 非共振项中的阻尼因子与失谐量相比很小同样也被忽略。没有缀饰场的 $\chi^{(3)}[|g\rangle$ 代表 $5s^{0}_{\frac{1}{2}}(J=2)$ 而 $|m'\rangle$ 则是 $4d^{0}_{\frac{1}{2}}(J=2)$ (由于 $\omega_{m'g} \approx 2\omega$, 因此 $\omega_{m''m'} + 3\omega$ 可以用 $\omega_{m''g} + \omega$ 代替]:

$$\begin{aligned} \chi_{R,b}^{(3)}(-3\omega, \omega, \omega, \omega) &= \frac{e^4 N}{4\epsilon_0 \hbar} \sum_{m, m''} \rho_{gg}^{(0)}(r) g_{m''}(r) m'' m'(r) m' m(r) m_g \\ &\times \{ [(\omega_{mg} - \omega)(\omega_{m'g} - 2\omega - i\Gamma_{m'g})(\omega_{m''g} - 3\omega)]^{-1} \\ &+ [(\omega_{mg} - \omega)(\omega_{m'g} - 2\omega + i\Gamma_{m'g})(\omega_{m''m'} + 3\omega)]^{-1} \} \\ &= \frac{e^4 N}{4\epsilon_0 \hbar} \rho_{gg}^{(0)} (\omega_{m'g} - 2\omega - i\Gamma_{m'g})^{-1} \sum_{m''} (r)_{gm''}(r) m'' m'(r) \sum_m (r)_{gm}(r) m m' \\ &\times \{ [(\omega_{mg} - \omega)(\omega_{m''g} - 3\omega)]^{-1} + [(\omega_{mg} - \omega)(\omega_{m''g} + \omega)]^{-1} \} \\ &= \frac{e^4 N}{4\epsilon_0 \hbar} \rho_{gg}^{(0)} (\omega_{m'g} - 2\omega - i\Gamma_{m'g})^{-1} \sum_m \frac{(r)_{gm}(r) m m'}{\omega_{mg} - \omega} \\ &\times \sum_{m''} (r)_{gm''}(r) m'' m' [(\omega_{m''g} - 3\omega)^{-1} + (\omega_{m''g} + \omega)^{-1}] \end{aligned} \quad (11)$$

同样的近似, 经过缀饰以后 ($|m''\rangle$ 是 $8s[1\frac{1}{2}]^0(J=2)$, $|e\rangle$ 是 $5p[1\frac{1}{2}]^0(J=1)$):

$$\begin{aligned} \chi_{R,d}^{(3)}(-3\omega, \omega, \omega, \omega) &= \frac{e^4 N}{4\epsilon_0 \hbar} \sum_m \rho_{gg}^{(0)} \frac{\sin^2(\Phi/2) (r)_{ge}(r) e m'(r) m' m(r) m_g}{(\omega_{mg} - \omega)(\omega_{m'g} - 2\omega - i\Gamma_{m'g})(\omega_{m''g} - 3\omega - i\Gamma_{m''g})} \\ &= \frac{e^4 N}{4\epsilon_0 \hbar} \rho_{gg}^{(0)} (\omega_{m'g} - 2\omega - i\Gamma_{m'g})^{-1} \sum_m \frac{(r)_{gm}(r) m m'}{(\omega_{mg} - \omega)} \frac{(r)_{ge}(r) e m'}{(\omega_{m''g} - 3\omega) - i\Gamma_{m''g}} \end{aligned} \quad (12)$$

为了看得更清楚将(11)和(12)式中的相同部分用字母 A 代替

$$\chi_{R,b}^{(3)}(-3\omega, \omega, \omega, \omega) = A \sum_{m''} (r)_{gm''}(r) m'' m' [(\omega_{m''g} - 3\omega)^{-1} + (\omega_{m''g} + \omega)^{-1}] \quad (13)$$

$$\chi_{R,d}^{(3)}(-3\omega, \omega, \omega, \omega) = A \frac{\sin^2(\Phi/2) (r)_{ge}(r) e m'}{(\omega_{m''g} - 3\omega) - i\Gamma_{m''g}} \quad (14)$$

因为要想直接从氮原子的波函数计算它的偶极跃迁矩阵元几乎不可能, 所以从自发辐射谱线强度估计偶极跃迁矩阵元的相对大小, 用类氢原子偶极跃迁矩阵元的符号作为它的符号, 并且假设放电温度是 4000 K。从

$$I_{mn} = k \rho_{mm}^{(0)} g_m \omega_{mn}^4 |r|_{mn}^2 \quad (15)$$

可以得到 $(r)_{mn}$ 的相对强度, $\rho_{mm}^{(0)}$ 为在 $|m\rangle$ 态上的布居数, 由玻尔兹曼分布决定。 g_m 为统计权重, ω_{mn} 是跃迁频率。有些谱线的强度很弱, 文献上也就不给出其值, 因而(13)式有效项只有七项, 表 1 给出计算的中间值。

Table 1. Data of some correlative levels

$ m''\rangle$	$g_{m''}$	$\omega_{m''g}$ (cm^{-1})	$I_{m''g}$	$(r)_{m''g}$	$\omega_{m''m}$ (cm^{-1})	$I_{m''m'}$	$(r)_{m''m'}$
$5p \frac{1}{2}$	3	11200	2000	1.54×10^{-6}	7701	12	-7.84×10^{-7}
$5p \frac{3}{2}$	7	12326	6000	1.77×10^{-6}	6575.	42	-2.01×10^{-6}
$5p \frac{2}{2}$	5	12339	4000	1.71×10^{-6}	6562	900	-9.35×10^{-6}
$5p \frac{1}{2}$	3	12996	500	7.93×10^{-7}	5905	800	-1.09×10^{-5}
$6p \frac{2}{2}$	5	23156	400	1.08×10^{-6}	- 4255	17	-6.57×10^{-7}
$6p \frac{1}{2}$	3	23348	100	7.08×10^{-7}	- 4447.	38	-1.20×10^{-5}
$8p \frac{1}{2}$	3	29186	2	1.83×10^{-8}	- 10285	1	-1.04×10^{-6}

假设(14)式中的 $\Gamma_{m''g}$ 是 1 cm^{-1} 得到 $\chi_{R_d}^{(3)}(-3\omega, \omega, \omega, \omega)$ 大约是 $\chi_{R_b}^{(3)}(-3\omega, \omega, \omega, \omega)$ 的一千倍, 而转换效率是它的平方。因此加入缀饰场后变化会很明显而可以用实验观察到。

另外, 在本文的计算中最不精确的地方是偶极跃迁矩阵元相对大小的获得, 因为首先谱线强度就于很多因素有关, 所给的只是一大约的值, 其次放电气体中温度分布极复杂, 简单地设一温度不很确当。但本文计算只是为了给一定性的结果, 因而也差不离了。

结 论 本文讨论了缀饰氮原子的三次谐波产生, 给出了一些初步的计算结果证明此方法的可行性。如果能成功地做出实验, 则说明利用缀饰原子可以完许多以前无法完成的事情。但是, 由于缀饰场并没有改变气体的空间对称性, 因此仍不能用它产生气体的偶次谐波。

参 考 文 献

- [1] S. E. Harris, Lasers without inversion. *Phys. Rev. Lett.*, 1989, **62**(9) : 1033~ 1036
- [2] O. Kocharovskaya, Amplification and la sing without inversion. *Phys. Rep.*, 1992, **219**(3&6) : 175~ 190
- [3] K. J. Boller, A. Imamoglu, S. E. Harris, Observation of electromagnetically induced transparency. *Phys. Rev. Lett.*, 1991, **66**(20) : 2593~ 2596

- [4] S. E. Harris, Normal modes for electromagnetically induced transparency. *Phys. Rev. Lett.*, 1994, **72** (1) : 52~ 55
- [5] M. O. Scully, High-sensitivity magnetometer based on index-enhanced media. *Phys. Rev. Lett.*, 1992, **69**(9) : 1360~ 1363
- [6] K. K. Meduri *et al.*, Dynamically irreversibility in coherently driven systems. *Phys. Rev. Lett.*, 1989, **71**(26) : 4311~ 4314
- [7] 林福成, 黄优宏, 光和 Dressed 原子的相互作用. 光学学报, 1985, **5**(1) : 1009~ 1017
- [8] E. T. Jaynes, F. W. Cummings, Comparison of quantum and semiclassical radiation theories with application to the beam maser. *Proc. IEEE.*, 1963, **51**(1) : 89~ 109
- [9] J. R. Arkerhalt, J. H. Eberly, Quantum electrodynamics and radiation reaction: Nonrelativistic atomic frequency shifts and lifetimes. *Phys. Rev. (D)*, **10**(10) : 3350~ 3375
- [10] N. Bloembergen, H. Lotem, R. T. Lurch, Lineshapes in coherent resonant Raman scattering. *Indian J. Pure and Applied Physics*, 1978, **16**(3) : 151~ 158
- [11] J. A. Armstrong, N. Bloembergen, J. Ducuing *et al.*, Interaction between light waves in a nonlinear dielectric. *Phys. Rev.*, 1962, **127**(6) : 1918~ 1939

The Third Harmonic Generation of the Dressed Atoms

Ding Gang Lin Fucheng

(Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, The Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800)

(Received 29 October 1996; revised 24 December 1996)

Abstract The strong coherent laser can couple the discrete states, which changes the eigenstates of the atoms. It make some forbidden transitions possible. By this way we give a new direction of the generation of the 3rd harmonic wave of the krypton and compare its conversion efficiency to the normal one.

Key words dressed atoms, nonlinear susceptibility, third-harmonic generation.