

# 强耦合激子-声子系统中的三阶非线性 光学系数的理论计算\*

姚 鸣<sup>1</sup> 朱卡的<sup>2</sup> 袁晓忠<sup>2</sup> 蒋逸文<sup>2</sup> 吴卓杰<sup>2</sup>

(1 宁夏大学物理电气信息学院, 银川 750001)

(2 上海交通大学物理系, 上海 200030)

**摘 要** 应用 Dyson-Maleev 变换, 对强耦合激子-声子系统中非线性光学性质进行了理论研究. 结果表明, 当信号光场频率与激子频率的失谐量等于光学声子的频率时, 系统的非线性光学吸收和克尔(Kerr)系数显著增大, 从而证明了激子-声子的强相互作用对介质的非线性光学性质的影响相当大, 并且当考虑激子偏离玻色子模型时, 这种影响将进一步增大.

**关键词** 非线性光学效应; 克尔系数; 激子; 光学声子; 相空间填充因子

**中图分类号** O437.2 **文献标识码** A

## 0 引言

近几年来, 通过共振电磁场来控制物质系统的线性和非线性光学性质的手段已变得越来越重要了. 电磁诱导透明 (Electromagnetically Induced Transparency, 简称 EIT) 技术被证明是能够抑制介质的共振吸收、且同时仍能够获得显著的与共振有关的非线性光学性质非常好的方法<sup>[1,2]</sup>. 近年来令人瞩目的应用包括超慢光脉冲传播<sup>[3]</sup>和光的存储<sup>[4]</sup>. H. Schmidt 和 A. Imamoglu<sup>[5]</sup>提出了利用 EIT 技术在四能级原子系统中获得无噪声的很强的非线性光学效应(交叉-Kerr 效应)的设想. 最近, L. M. Kuang<sup>[6]</sup>发展了三能级原子系统( $\Lambda$ -模型)中 EIT 的全量子理论, 并指出在这样的体系中产生 EIT 时会出现很大的 Kerr 系数和很强的高阶非线性特性. H. Wang<sup>[7]</sup>及其合作者用实验的方法研究了三能级原子系统( $\Lambda$ -模型)在几种不同控制光作用下的非线性光学系数(即 Kerr 系数), 发现 Kerr 系数较二能级原子系统时明显增强了, 因为三能级原子系统中原子的相干作用更强. 更多的利用 EIT 技术进行非线性光学性质的研究见文献[8,9]. 另一方面, 对被限制在低维分子体系中激子的非线性光学性质的研究持续升温, 例如: 有机晶状超晶格、分子聚合物、共轭聚合物以及单分子层<sup>[10~16]</sup>. 这些有机材料具有潜在的实际应用, 特别是由有机共轭聚合物制成的薄膜在新型光电子器件中具有十分诱人的应用前景, 例如 LED 聚合物<sup>[12]</sup>. 通常来说, 这类有机系统以强激子-声子相互作用为特征, 这一作用通常能

够导致明显的非线性光学效应. B. I. Greene 等<sup>[13]</sup>用实验的方法证明了在 PTS (Polydiacetylene-Toluene Sulfonate) 材料中的异常光学非线性是由虚激子之间的声子调和作用导致的.

最近, 朱卡的等<sup>[17~20]</sup>在理论上证明了在有机低维体系(如有机晶状超晶格、分子聚合物、共轭聚合物以及单分子层)中, 激子-声子的强烈耦合作用对介质的非线性光学性质的影响非常大, 其中声子的辅助作用相当重要, 也就是说没有激子与声子的相互作用, 这种影响会大大减弱, 同时还可以利用外场来控制介质的非线性光学性质. 本文应用 Dyson-Maleev 变换, 对不能将激子直接做玻色近似即考虑激子间相互作用时, 有机低维系统中的激子-声子的相互作用对介质的非线性光学性质的影响进行讨论, 并证明了这时系统的激子-声子相互作用对介质的非线性光学性质仍有很大的影响. 与文献[17]相比, 修正后的影响表现为一个相空间填充因子, 该因子使激子-声子的相互作用对介质的非线性光学性质的影响进一步增大, 通过改变控制光场的强度, 介质的非线性光学性质也随着变化, 因此可以利用外光场来控制介质的非线性光学性质.

## 1 理论计算

考察一个强耦合激子-声子系统(如有机晶体薄膜), 外界信号光场( $\omega_s$ )和控制光场( $\omega_c$ )共同作用在该系统上, 这个系统中包括激子-声子之间的相互作用和外光场的影响. 考虑旋波近似和单模声子以及线性激子-声子相互作用, 则系统总的哈密顿量如<sup>[11,18]</sup>

$$H = \hbar(\omega_{ex} - \omega_c)S^z + \hbar\omega_{ph}b^+b - \hbar\lambda S^z Q - \hbar Q(S^+ + S^-) - \mu(S^+ E_s e^{-i\omega_s t} + S^- E_s^* e^{i\omega_s t}) \quad (1)$$

\*国家自然科学基金(No. 10274051)、上海市自然科学基金(No. 03ZR14060)资助课题  
Tel: 0951-4911583 Email: ym1823@yahoo.com.cn  
收稿日期: 2005-04-12

式中  $\hbar\omega_{ex}$  和  $\hbar\omega_{ph}$  分别为激子结合能和声子能量,  $\lambda$  是激子-声子耦合常数,  $\Omega = \mu E_c / \hbar$  是控制光场的 Rabi 频率,  $E_c$  为控制光场强,  $\mu$  是激子的电偶极矩, 并设为实数,  $b^+ b$  是声子数,  $E_s$  是信号光场强,  $S^z$ ,  $S^\pm$  为激子的赝自旋算符. 进一步假设  $Q = b^+ + b$  为声子振幅算符,  $b^+$  ( $b$ ) 为声子的产生(湮灭)算符,  $\delta = \omega_s - \omega_c$  为信号光场与控制光场的调制频率.

根据 Dyson-Maleev 变换, 自旋算符由式(2)给出<sup>[19]</sup>

$$\begin{aligned} S^+ &= a^+ (1 - a^+ a) \\ S^- &= a, S^z = a^+ a - \frac{1}{2} \end{aligned} \quad (2)$$

式中  $a^+$  ( $a$ ) 为激子的产生(湮没)算符. 则系统的哈密顿量变为

$$\begin{aligned} H &= \hbar(\omega_{ex} - \omega_c) a^+ a + \hbar\omega_{ph} b^+ b - \hbar\lambda a^+ a Q - \\ &\quad \hbar\Omega(a^+ - a^+ a^+ a + a) - \mu[a^+ (1 - a^+ a) \cdot \\ &\quad E_s e^{-i\delta t} + a E_s^* e^{i\delta t}] \end{aligned} \quad (3)$$

激子湮没算符  $a$  以及声子振幅算符  $Q$  随时间的变化由海森伯方程决定, 则得到方程组

$$\begin{aligned} \frac{da}{dt} &= -i\Delta a + i\lambda Q a + i\Omega(1 - 2a^+ a) + \\ &\quad i \frac{\mu E_s}{\hbar} e^{-i\delta t} (1 - 2a^+ a) \end{aligned} \quad (4)$$

$$\frac{d^2 Q}{dt^2} + \omega_{ph}^2 Q = 2\omega_{ph} \lambda a^+ a \quad (5)$$

式中  $\Delta = \omega_{ex} - \omega_c$ . 假定今后的计算中忽略  $a$  与  $Q$  的量子性<sup>[10,17]</sup>, 可以得到以下的方程

$$\begin{aligned} \frac{da}{dt} &= -(i\Delta + \Gamma)a + i\lambda Q a + i\Omega(1 - 2a^+ a) + \\ &\quad i \frac{\mu E_s}{\hbar} e^{-i\delta t} (1 - 2a^+ a) \end{aligned} \quad (6)$$

$$\frac{d^2 Q}{dt^2} + \gamma_{ph} \frac{dQ}{dt} + \omega_{ph}^2 Q = 2\omega_{ph} \lambda a^+ a \quad (7)$$

式中  $\Gamma$  与  $\gamma_{ph}$  分别是激子的退相干率和声子的退相干率, 这里是唯像地引入的. 与文献[17]相比, 式(6)中多了一个  $(1 - 2a^+ a)$  因子, 该因子即是所谓的相空间填充因子, 这是由于激子偏离玻色子模型而引起的(见方程(2)). 如果系统的激子浓度较低时(即  $\langle a^+ a \rangle \ll 1$ ), 则这一因子约等于 1, 此时激子可以视为玻色子. 下面的计算过程中考虑  $E_c$  的全部项修正, 以及  $E_s$  的一阶项修正. 利用以下展开式把  $a$  与  $Q$  展成<sup>[20]</sup>

$$a(t) = a_0 + a_+ e^{-i\delta t} + a_- e^{i\delta t} \quad (8)$$

$$Q(t) = Q_0 + Q_+ e^{-i\delta t} + Q_- e^{i\delta t} \quad (9)$$

代入式(6)和式(7)得

$$\begin{aligned} -(i\Delta + \Gamma)a_0 + i\lambda Q_0 a_0 + i\Omega(1 - 2|a_0|^2) - \\ 2i \frac{\mu E_s}{\hbar} (a_0^* a_- + a_0 a_+^*) = 0 \end{aligned} \quad (10)$$

$$\begin{aligned} -i\delta a_+ = -(i\Delta + \Gamma)a_+ + i\lambda(Q_0 a_+ + a_0 Q_+) + \\ i \frac{\mu E_s}{\hbar} (1 - 2|a_0|^2) - 2i\Omega(a_0^* a_+ + a_0 a_+^*) \end{aligned} \quad (11)$$

$$\begin{aligned} i\delta a_- = -(i\Delta + \Gamma)a_- + i\lambda(Q_0 a_- + a_0 Q_-) - \\ 2i\Omega(a_0^* a_- + a_0 a_-^*) \end{aligned} \quad (12)$$

$$\omega_{ph}^2 Q_0 = 2\lambda\omega_{ph} |a_0|^2 \quad (13)$$

$$(\omega_{ph}^2 - \delta^2 - i\gamma_{ph}\delta)Q_+ = 2\lambda\omega_{ph} (a_0^* a_+ + a_0 a_+^*) \quad (14)$$

$$(\omega_{ph}^2 - \delta^2 + i\gamma_{ph}\delta)Q_- = 2\lambda\omega_{ph} (a_0^* a_- + a_0 a_-^*) \quad (15)$$

由式(10)~(15)可以解出  $a_-$  并由此得到三阶非线性光极化系数为

$$\chi_{\text{eff}}^{(3)}(\omega_s) = \frac{N\mu a_-}{3E_c^3 E_s^*} = \frac{N\mu^4}{3\Gamma^3 \hbar^3} \chi^{(3)}(\omega_s) \quad (16)$$

这里  $N$  是激子的密度, 而无量纲的三阶非线性光极化系数为

$$\begin{aligned} \chi^{(3)}(\omega_s) = \frac{1}{Y} [\alpha\eta(\omega_s) D(iC - 1) - \\ 2i(C^2 + 1)] \Omega_c^2 D^2 \end{aligned} \quad (17)$$

式中

$$\begin{aligned} Y &= [(iB + A)(iC - 1) - 2\Omega_c^2 D] \times [(iB - A) \cdot \\ &\quad (iC + 1) - 2\Omega_c^2 D](iC + 1) - \{[\alpha\eta(\omega_s)\omega_0]^2 + \\ &\quad 4\Omega_c^2 \omega_0\}(iC + 1)(C^2 + 1) + 4\alpha\eta(\omega_s) \cdot \\ &\quad \Omega_c^2 \omega_0 CD(iC + 1) \end{aligned} \quad (18)$$

而

$$\begin{aligned} A &= 1 + i\delta_0, B = \Delta_c - \alpha\omega_0 - \alpha\eta(\omega_s)\omega_0, \\ C &= \Delta_c - \alpha\omega_0, D = 1 - 2\omega_0, \omega_0 = |a_0|^2, \\ \Delta_c &= \Delta/\Gamma, \delta_0 = \delta/\Gamma, \alpha = 2\lambda^2/(\omega_{ph0}\Gamma^2), \\ \omega_{ph0} &= \omega_{ph}/\Gamma, \gamma_{ph0} = \gamma_{ph}/\Gamma \end{aligned}$$

且辅助函数为

$$\eta(\omega_s) = \frac{\omega_{ph0}^2}{\omega_{ph0}^2 - \delta_0^2 + i\gamma_{ph0}\delta_0} \quad (19)$$

$\omega_0$  由三次方程给出

$$\omega_0 [(\Delta_c - \alpha\omega_0)^2 + 1] = \Omega_c^2 (1 - 2\omega_0)^2 \quad (20)$$

该方程有一个或者三个实根, 后面一种情况对应光学双稳态, 分别由激子-声子相互作用和激子-激子相互作用产生.

## 2 数值计算与讨论

B. I. Greene 等<sup>[13]</sup> 在 PTS 薄膜实验中, 清楚地观察到了非线性光谱, 而在 PTS 材料中, 激子-声子的耦合非常强( $\lambda = 0.1$  eV), 因此在下面的计算讨论中, 也选定 PTS 作为实例, 且假设系统的激子-声子的耦合非常强, 强到了显著的反斯塔克位移与激子的线宽可以比拟(即使失谐量等于声子频率时也是如此). 选定与 B. I. Greene 在 PTS 薄膜实验中相同的参量:  $\omega_{ph} = 0.2$  eV,  $\lambda = 0.1$  eV,  $\gamma_{ph} = 2$  meV,  $\omega_{ex} = 2$  eV,  $\Gamma = 50$  meV 则:  $\alpha = 2$ ,  $\omega_{ph0} = 4$ ,  $\gamma_{ph0} = 0.04$ .

由三阶非线性光极化系数  $\chi^{(3)}(\omega_s)$ , 可以得到

非线性光学吸收率( $\text{Im}\chi^{(3)}(\omega_s)$ )和克尔(Kerr)系数( $\text{Re}\chi^{(3)}(\omega_s)$ )在强耦合激子-声子系统中随信号光场频率与激子频率之间的失谐量  $\Delta_s = (\omega_s - \omega_{ex})/\Gamma$  的变化规律,结合文献[17],并对考虑与不考虑相空间填充因子的两种情况进行比较.

图1和图2分别给出了无量纲的非线性光学吸收率  $\text{Im}\chi^{(3)}(\omega_s)$  和 Kerr 系数  $\text{Re}\chi^{(3)}(\omega_s)$  随失谐量  $\Delta_s$  的变化规律. 图中实线是考虑相空间填充因子的情形,虚线是不考虑相空间填充因子的情形,点虚线是不考虑激子-声子的相互作用( $\alpha=0$ )的情形. 参量为:  $\alpha=2, \Omega_c^2=1, \Delta_c=0, \omega_{ph0}=4, \gamma_{ph0}=0.04$ . 图中考虑与不考虑相空间填充因子的两种情况中(见实线与虚线),在信号光场的失谐量近似等于光学声子的频率 ( $\Delta_s \approx \omega_{ph0}$ ) 处,非线性吸收率和 Kerr 系数曲线都出现了较大的峰值,表明考虑激子-声子的强相互作用后,介质的非线性显著增大了. 但是如果忽略激子-声子的相互作用,曲线峰值消失,非线性效应明显减小,并几乎等于零(见点虚线). 所以,在强耦合激子-声子系统中,激子-声子的相互作用对产生非线性光学性质的影响是非常大的,尤其在  $\Delta_s \approx \omega_{ph0}$  时更是如此. 另一方面,比较考虑与不考虑相空间填充因子的两种情况,发现在  $\Delta_s \approx \omega_{ph0}$  处,实线的曲线峰值更大,变化更

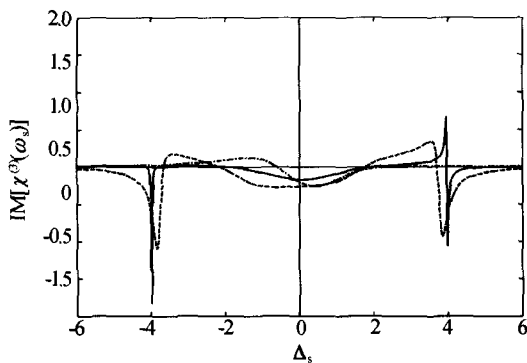


图1 无量纲的非线性光学吸收率  $\text{Im}\chi^{(3)}(\omega_s)$  随失谐量  $\Delta_s$  的变化

Fig. 1 The dimensionless nonlinear optical absorption  $\text{Im}\chi^{(3)}(\omega_s)$  as a function of the detuning  $\Delta_s$ .

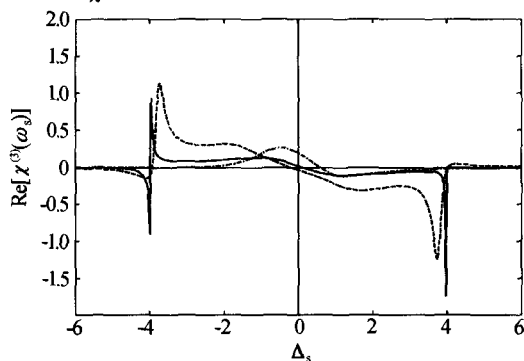


图2 无量纲的 Kerr 系数  $\text{Re}\chi^{(3)}(\omega_s)$  随失谐量  $\Delta_s$  的变化  
Fig. 2 The dimensionless Kerr coefficient  $\text{Re}\chi^{(3)}(\omega_s)$  as a function of the detuning  $\Delta_s$ .

迅速,说明对激子采用 Dyson-Maleev 变换后(即考虑激子-激子的相互作用,表现为考虑了相空间填充因子后),介质的非线性变得更大,这正是考虑了激子偏离玻色子模型即考虑了激子与激子间的相互作用而引起的必然结果.

图3和图4分别给出了不同的控制光场强下无量纲的非线性光学吸收率( $\text{Im}\chi^{(3)}(\omega_s)$ )和 Kerr 系数( $\text{Re}\chi^{(3)}(\omega_s)$ )随失谐量  $\Delta_s$  的变化规律. 实线是考虑相空间填充因子且  $\Omega_c^2=1$  的情形,虚线是考虑相空间填充因子且  $\Omega_c^2=4$  的情形,点虚线是不考虑相空间填充因子且  $\Omega_c^2=1$  的情形. 参量为:  $\alpha=2, \Delta_c=-1, \omega_{ph0}=4, \gamma_{ph0}=0.04$ . 图中可见,在考虑相空间填充因子的情况下(见实线与虚线),二者对应不同的  $\Omega_c^2$ ,实线与虚线的峰值不同,表明改变控制光场的强度可以明显地改变非线性光学吸收率和 Kerr 系数. 所以,在强耦合激子-声子系统中,介质的非线性光学性质可以通过控制光场来改变. 另一方面,比较考虑与不考虑相空间填充因子的两种情况(见实线与点虚线),二者对应相同的  $\Omega_c^2$ ,实线的峰值较点虚线的峰值有所减小,表明考虑相空间填充

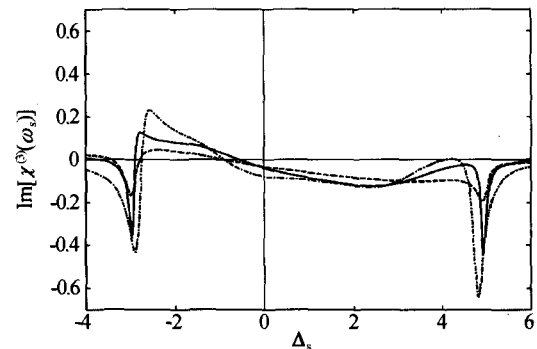


图3 不同的控制光场强下无量纲的非线性光学吸收率  $\text{Im}\chi^{(3)}(\omega_s)$  随失谐量  $\Delta_s$  的变化

Fig. 3 The dimensionless nonlinear optical absorption  $\text{Im}\chi^{(3)}(\omega_s)$  as a function of the detuning  $\Delta_s$  for different Rabi frequencies of the control field

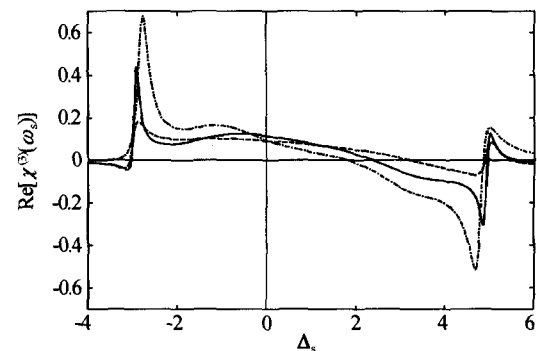


图4 不同的控制光场强下无量纲的 Kerr 系数  $\text{Re}\chi^{(3)}(\omega_s)$  随失谐量  $\Delta_s$  的变化

Fig. 4 The dimensionless Kerr coefficient  $\text{Re}\chi^{(3)}(\omega_s)$  as a function of the detuning  $\Delta_s$  for different Rabi frequencies of the control field

因子后,利用控制光场控制介质的非线性光学性质的能力略有减弱.

### 3 结论

在强耦合激子-声子系统中,激子-声子的相互作用对非线性光学性质的影响是非常大的,当信号场频率与激子频率的失谐量等于光学声子的频率时,非线性光学吸收率和 Kerr 系数显著增大,并且考虑相空间填充因子后,这种影响更进一步增大.此外,可以通过改变控制光场的强度,人为地控制介质的非线性光学性质,但考虑相空间填充因子后,这种控制能力略有减弱.

#### 参考文献

- Harris S E. Electromagnetically induced transparency. *Physics Today*, 1997, **50**(7): 36~42
- Lukin M D, Imamoglu A. Controlling photons using electromagnetically induced transparency. *Nature*, 2001, **413**(6853): 273~276
- Hau L V, Harris S E, Dutton Z, *et al.* Light speed reduction to 17 m/s in a ultracold atomic gas. *Nature*, 1999, **397**(6720): 594~598
- Turukhin A V, Sudarshanam V S, Shahriar M S, *et al.* Observation of ultraslow and stored light in a solid. *Phys Rev Lett*, 2002, **88**(2): 023602~023605
- Schmidt H, Imamoglu A. Giant Kerr nonlinearities obtained by electromagnetically induced transparency. *Opt Lett*, 1996, **21**(2): 1936~1939
- Kuang L M, Chen G H, Wu Y S. Nonlinear optical properties of an electromagnetically induced transparency medium interacting with two quantized fields. *J Opt B: Quant Semiclass Opt*, 2003, **5**(4): 341~438
- Wang H, Goorskey D, Xiao M. Dependence of enhanced kerr nonlinearity on coupling power in a three-level atomic system. *Opt Lett*, 2002, **27**(4): 258~260
- Zubairy M S, Matsko A B, Scully M D. Resonant enhancement of high-order nonlinearities based on atomic coherence. *Phys Rev A*, 2002, **65**(4): 043804~043807
- Matsko A B, Rostovtsev Y V, Fleischhauer M, *et al.* Anomalous stimulated brillouin scattering via ultraslow light. *Phys Rev Lett*, 2001, **86**(10): 2006~2009
- Agarwal G S. Electromagnetic-field-induced transparency in high-density exciton systems. *Phys Rev A*, 1995, **51**(4): R2711~R2714
- Zhu K D, Li W S. Electromagnetically induced transparency mediated by phonons in strongly coupled exciton-phonon systems. *App Phys B*, 2002, **75**(8): 861~864
- Friend R H, Gymer R W, Holmes A B, *et al.* Electroluminescence in conjugated polymers. *Nature*, 1999, **397**(6715): 121~128
- Greene B I, Mueller J F, Orenstein J, *et al.* Phonon-mediated optical nonlinearity in polydiacetylene. *Phys Rev Lett*, 1988, **61**(3): 325~328
- 徐旭明,刘念华. 一维 Kerr 非线性光子晶体中的场分布. *光子学报*, 2004, **33**(8): 1011~1013  
Xu X M, Liu U H. *Acta Photonica Sinica*, 2004, **33**(8): 1011~1013
- 周骏,贾振红. 一种新型非晶态分子材料的非线性光学折射率和吸收特性. *光子学报*, 2003, **32**(11): 1332~1334  
Zhou J, Jia Z H. *Acta Photonica Sinica*, 2003, **32**(11): 1332~1334
- 邓晓旭,陈历学,苗瑞,等. 有机分子系统非线性折射的类透镜效应. *光子学报*, 2001, **30**(8): 977~980  
Deng X X, Chen L X, Miao R, *et al.* *Acta Photonica Sinica*, 2001, **30**(8): 977~980
- Zhu K D, Yuan X Z, Dong J J, *et al.* Nonlinear optical responses due to exciton-phonon interactions in strongly coupled excitonphonon systems. *Eur Phys J D*, 2004, **30**(1): 117~121
- Zhu K D, Li W S. Electromagnetically induced transparency due to exciton-phonon interaction in an organic quantum well. *Journal of Phys B*, 2001, **34**(21): L679~L686
- Zhu K D, Kobayashi T. Intrinsic self-localized frenkel excitons in a linear chain of interacting frenkel excitons. *Phys Lett A*, 1994, **196**(12): 105~108
- Boyd R W. *Nonlinear Optics*. Boston: Academic, 1992

## Theoretical Calculation of the Third Order Nonlinear Optical Properties in Strongly Coupled Exciton-Phonon Systems

Yao Ming<sup>1</sup>, Zhu Kadi<sup>2</sup>, Yuan Xiaozhong<sup>2</sup>, Jiang Yiwen<sup>2</sup>, Wu Zhuojie<sup>2</sup>

*1 School of Physics and Electrical Information Science, Ningxia University, Yinchuan 750001*

*2 Department of Physics, Shanghai Jiao Tong University, Shanghai 200030*

Received date: 2005-04-12

**Abstract** The third order nonlinear optical properties in strongly coupled exciton-phonon systems are investigated theoretically. It is shown that as the signal field frequency detuning from the exciton frequency is equal to the optical phonon frequency the nonlinear optical absorptions and Kerr coefficient are enhanced significantly. The results also demonstrate that the phase-space filling effect has an evident impact on the nonlinear optical properties of the system.

**Keywords** Nonlinear optical effect; Kerr coefficient; Exciton; Optical phonon; Phase-space filling

**Yao Ming** was born in June 1957. He graduated from Department of Physics, Ningxia University in 1982. He was the visitor scholar of Shanghai Jiao Tong university from September 2004 to July 2005. During that period, he researched condensed matter physics and quantum optics under the instruction of professor Zhu Kadi.

