

原子气室中四波混频线型的实验研究

陈良超, 孟增明, 于旭东[†]

(量子光学与光量子器件国家重点实验室, 山西大学光电研究所, 山西 太原 030006)

摘要: 理论上利用双边费曼图对四波混频过程进行了研究, 该方法可直观清晰地展示光与原子相互作用的物理过程。计算了四波混频过程的色散性质。实验上研究了⁸⁵Rb原子D2线的四波混频线型, 并且对实验结果进行了拟合, 两者符合较好。对四波混频线型的研究可加深对四波混频过程的理解, 从而促进四波混频过程在量子信息研究中的应用。

关键词: 四波混频; 双边费曼图; 微扰近似

中图分类号: O431

文献标识码: A

DOI: 10.3788/ASQO20142002.0119

四波混频(four-wave mixing, FWM)是指三个光波与介质相互作用产生第四个光波(共轭光场)的过程。它是光与物质相互作用的三阶非线性效应。光与物质之间的非线性相互作用是量子光学领域的重要研究内容。而三阶非线性效应是光与物质相互作用中表现最明显的非线性效应, 尤其是对各向同性介质。在四波混频过程中, 产生一个共轭光子的同时, 会产生一个探测光子, 即共轭光子与探测光子总是成对出现, 探测光场与共轭光场之间存在很强的量子关联。四波混频的这些性质常被用于产生压缩光场^[1]或纠缠光场^[2]。而介质在四波混频过程中的色散性质则可用于量子信息存储^[3]或光减速^[4]的实验中。在实验中, 常常需要提高四波混频过程的效率^[5-8], 而自发辐射等过程则要抑制。本文理论上对四波混频过程透射谱的线型进行了分析, 并通过实验进行验证。

1 理论分析

通常用电偶极(或磁偶极)近似来处理光与原子相互作用问题。在偶极近似下, 原子系统的哈密顿量是,

$$\begin{aligned} \hat{H} &= \hat{H}_0 + \hat{H}_I, \\ \hat{H}_0 &= \sum_i \hbar\omega_i |i\rangle\langle i|, \\ \hat{H}_I &= -\tilde{\mathbf{E}}(\mathbf{r}, t) \cdot \sum_{i,j} |j\rangle\langle i| \cdot \langle i|(-\hat{\mathbf{e}}\mathbf{r})|i\rangle = \\ &= -\tilde{\mathbf{E}}(\mathbf{r}, t) \cdot \sum_{i,j} \boldsymbol{\mu}_{ji} |j\rangle\langle i|. \end{aligned} \quad (1)$$

其中, $\hbar\omega_i$ 是态矢量 $|i\rangle$ 的本征能量, $\tilde{\mathbf{E}}(\mathbf{r}, t)$ 是光场的电矢量, $\boldsymbol{\mu}_{ji}$ 是电偶极矩算符 $\hat{\boldsymbol{\mu}} = -e\hat{\mathbf{r}}$ 的矩阵元。系统的状态用密度算符 $\rho(t) = |\psi(t)\rangle\langle\psi(t)|$ 表示。在相互作用绘景下, 系统状态的演化方程是,

$$\dot{\rho}_I = \frac{-i}{\hbar} [\hat{H}'_I, \rho_I], \quad (2)$$

其中, $\rho(t) = U(t, t_0) \cdot \rho_I(t) \cdot U^\dagger(t, t_0)$, $\hat{H}'_I = U^\dagger$

收稿日期: 2014-04-15

基金项目: 高等学校博士学科点专项科研基金(No. 20111401130001)

作者简介: 陈良超(1987-), 男, 河南信阳人, 硕士研究生, 研究领域: 光与原子相互作用。E-mail: chenlchao@gmail.com

[†]通信作者: 于旭东, E-mail: jiance_yu@sxu.edu.cn

$(t, t_0) \cdot \hat{H}_I \cdot U(t, t_0)$, 而 $U(t, t_0) = \exp\left[-\frac{i}{\hbar} \hat{H}_0(t-t_0)\right]$ 是演化算符。由于外加光场的电场分量通常远小于原子的内部场强, 可以将 \hat{H}'_I 看作微扰项, 从而可将方程(2)做级数展开, 并且级数是收敛的。

$$\rho_I(t) = \rho_I(t_0) + \sum_{n=1}^{\infty} \left(\frac{-i}{\hbar}\right)^n \int_{t_0}^t d\tau_n \int_{t_0}^{\tau_n} d\tau_{n-1} \cdots \int_{t_0}^{\tau_2} d\tau_1 [\hat{H}'_I(\tau_n), [\hat{H}'_I(\tau_{n-1}), \cdots [\hat{H}'_I(\tau_1), \rho_I(t_0)]] \cdots] \quad (3)$$

将方程(3)的对易式展开可得 2^n 项, 每一项均清晰地表明一种物理过程。用双边费曼图可形象表示这种物理过程^[9,10]。方程(3)的积分中的每一项实质上代表了 \hat{H}'_I 对 $\rho_I(t)$ 的有次序地修正。由于 \hat{H}'_I 可能在 $\rho_I(t)$ 的两边, 所以需要两条竖直的线分别表示右矢和左矢的修正(或者说演化)过程, 左边的竖线代表右矢, 右边的竖线代表左矢, 竖线从下向上表示演化的方向。光场与系统的相互作用用箭头表示, 箭头指向竖线代表吸收光子的过程, 背离竖线代表放出光子的过程。光场可表示为,

$$\tilde{E}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{E}(\mathbf{r}) \{ \exp[i(\mathbf{k}\mathbf{r} - \omega t)] + \exp[-i(\mathbf{k}\mathbf{r} - \omega t)] \},$$

而采用旋波近似可使其只保留一个频率项。进一步分析可知, 作用在右矢上, 吸收光子保留 $-\omega$ 项, 放出光子保留 ω 项; 作用在左矢上, 吸收光子保留 ω 项, 放出光子保留 $-\omega$ 项。计算其中一项, 并画出其双边费曼图可显示计算中的规律。当知道了 $\hat{H}'_I(\tau_n)$ 的具体作用, 如使 $|i\rangle$ 变成 $|j\rangle$ 时, 可较为具体地写出其表示,

$$\begin{aligned} \hat{H}'_I(\tau_n) &= U^\dagger(\tau_n, t_0) \cdot \tilde{E}_n(\mathbf{r}, t) \boldsymbol{\mu}_{ji} \cdot \\ |j\rangle\langle i| \cdot U(\tau_n, t_0) &= \exp[i(\omega_j - \omega_i \pm \omega_n) \\ (\tau_n - t_0)] \cdot \exp(\mp i\mathbf{k}_n \mathbf{r}) \cdot \mathbf{E}_n(\mathbf{r}) \boldsymbol{\mu}_{ji} \cdot |j\rangle\langle i|, \end{aligned} \quad (4)$$

其中, ω_n 为第 n 次作用的光场频率, 根据旋波近似, 取正负号的原则是使 $|\omega_j - \omega_i \pm \omega_n|$ 的值最小(此时, $|\omega_j - \omega_i \pm \omega_n| = \Delta_n$ 即为第 n 次光场作用的失谐)。所以,

$$\begin{aligned} &\int_{t_0}^t d\tau_n \int_{t_0}^{\tau_n} d\tau_{n-1} \cdots \int_{t_0}^{\tau_2} d\tau_1 \hat{H}'_I(\tau_n) \hat{H}'_I(\tau_{n-1}) \cdots \\ &\hat{H}'_I(\tau_1) \rho_I(t_0) = \hbar^n \Omega_n \Omega_{n-1} \cdots \Omega_1 \\ &\exp[i(\mp \mathbf{k}_n \cdots \mp \mathbf{k}_1) \mathbf{r}] \int_{t_0}^t d\tau_n \int_{t_0}^{\tau_n} d\tau_{n-1} \cdots \int_{t_0}^{\tau_2} d\tau_1 \\ &\exp[i(\omega_j - \omega_i \pm \omega_n)(\tau_n - t_0)] \cdots \exp \\ &[i(\omega_p - \omega_q \pm \omega_m)(\tau_m - t_0)] \cdot |j\rangle\langle i| \cdots |p\rangle\langle q|, \end{aligned}$$

其中, $\Omega_n = \mathbf{E}_n(\mathbf{r}) \boldsymbol{\mu}_{ji} / \hbar$ 为第 n 次光场作用的 Rabi 频率。由于 $\tau_2, \tau_3, \cdots, \tau_n$ 之间存在相对大小关系, 会给积分运算造成困难, 所以做变换, $\tau_1 = 0, t_{n-1} = \tau_n - \tau_{n-1}$, 此时, t_1, t_2, \cdots, t_n 彼此无关。上述积分变为,

$$\begin{aligned} &\hbar^n \Omega_n \Omega_{n-1} \cdots \Omega_1 \exp[i(\mp \mathbf{k}_n \cdots \mp \mathbf{k}_1) \mathbf{r}] \\ &\int_0^\infty dt_n \int_0^\infty dt_{n-1} \cdots \int_0^\infty dt_1 \exp[i(\omega_j - \omega_i \pm \omega_n) \\ &(t - t_n)] \cdots \exp[i(\omega_p - \omega_q \pm \omega_m) \\ &(t - t_n - \cdots - t_m)] \cdot |j\rangle\langle i| \cdots |p\rangle\langle q| = \\ &\hbar^n \Omega_n \Omega_{n-1} \cdots \Omega_1 \exp[i(\mp \mathbf{k}_n \cdots \mp \mathbf{k}_1) \mathbf{r}] \\ &\int_0^\infty dt_n \int_0^\infty dt_{n-1} \cdots \int_0^\infty dt_1 \cdots \exp[-i(\omega_p - \omega_q \pm \\ &\omega_m + \cdots \omega_a - \omega_b \pm \omega_1)t_n] \cdots \cdot |j\rangle\langle i| \cdots |p\rangle\langle q|, \end{aligned}$$

又因为,

$$\int_0^\infty dt_m \exp[-i(\omega_p - \omega_q \pm \omega_m + \cdots \omega_a - \omega_b \pm \omega_1)t_m] = \frac{1}{i(\omega_p - \omega_q \pm \omega_m + \cdots \omega_a - \omega_b \pm \omega_1)}.$$

至此, 积分可较简单地求解。在上述计算中可以唯象地加入系统相干的衰减效应, 这样得到的积分结果是,

$$\begin{aligned} &\int_{t_0}^t d\tau_n \int_{t_0}^{\tau_n} d\tau_{n-1} \cdots \int_{t_0}^{\tau_2} d\tau_1 \hat{H}'_I(\tau_n) \hat{H}'_I(\tau_{n-1}) \cdots \\ &\hat{H}'_I(\tau_1) \rho_I(t_0) = \hbar^n \Omega_n \Omega_{n-1} \cdots \Omega_1 \cdot \exp \\ &[i(\mp \mathbf{k}_n \cdots \mp \mathbf{k}_1) \mathbf{r}] \cdot |j\rangle\langle i| \cdots |p\rangle\langle q| \cdot \\ &\frac{1}{i(\omega_p - \omega_q \pm \omega_n + \cdots \omega_a - \omega_b \pm \omega_1) + \Gamma_n} \cdots \\ &\frac{1}{i(\omega_p - \omega_q \pm \omega_m + \cdots \omega_a - \omega_b \pm \omega_1) + \Gamma_m} \cdots \quad (5) \end{aligned}$$

其中, Γ_n 是光场第 n 次作用所产生的相干性的衰减速率, 而 $|j\rangle\langle i| \cdots |p\rangle\langle q|$ 最终将化简成双边费

曼图的终态。

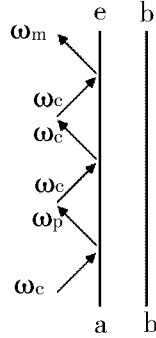


Fig. 1 Example of double-sided Feynman diagram. The diagram exhibits a path of four-wave mixing. $\omega_c, \omega_p, \omega_m$ are frequencies of pump (controlling) light, probe light, and conjugate (mixing) light, respectively.

图1 双边费曼图示例。图中所示为四波混频的一个通道。 $\omega_c, \omega_p, \omega_m$ 分别是控制光, 探测光和共轭光的频率。

按照上述方法, 计算出各通道对密度算符的修正, 求和即得总密度算符的值。用密度算符求具体某一物理量的值时, 只需计算符合特定条件的通道的值即可, 利用双边费曼图可以很方便地画出符合条件的通道。如图1所示, 在计算四波混频过程中探测光的增益时, 只需计算终态是 $|e\rangle\langle b|$ 的通道。计算表明, 探测光的电极化率是,

$$P^l = N_b \mu_{db} \frac{-i\Omega_p/2}{i\Delta_p + \gamma_{ab} + \frac{\Omega_c^2}{4i(\Delta_p - \Delta_c) + 4\gamma_{db}}}, \quad (6)$$

$$P^{nl} = \frac{iN_a \mu_{db} \Omega_c^2 \Omega_m/8}{i(\Delta_c + \Delta_{ba}) + \gamma_{db}} \frac{1}{i(\Delta_c + \Delta_{ba} - \Delta_m) + \gamma_{ba}} \frac{1}{i(2\Delta_c + \Delta_{ba} - \Delta_m) + \gamma_{ab}} \times \frac{1}{1 + \frac{\Omega_c^2}{4[i(\Delta_c + \Delta_{ba} - \Delta_m) + \gamma_{ab}][i(2\Delta_c + \Delta_{ba} - \Delta_m) + \gamma_{db}]}}. \quad (7)$$

方程式(6)表示的是 EIT 过程, 在实验中, EIT 过程常被用于抑制介质对探测光的吸收。由(6)式可知, 当 $\Delta_p - \Delta_c = 0$ 时, 探测光的电极化率会被

$$\chi_p^{nl} = \frac{iN_a \mu_{db} \mu_{db} \mu_{ab} \mu_{ab} / (8\hbar\epsilon_0)}{i(\Delta_c + \Delta_{ba}) + \gamma_{db}} \frac{1}{i(\Delta_c + \Delta_{ba} - \Delta_m) + \gamma_{ba}} \frac{1}{i(2\Delta_c + \Delta_{ba} - \Delta_m) + \gamma_{ab}} \times$$

控制光(Ω_c^2)减小, 从而介质对探测光的吸收减小。方程式(7)表示的是四波混频过程, 相应的电极化率包含三个光场项, 是三阶非线性量。因为实验中的探测光通常有较大失谐, 所以二能级结构对探测光的影响较小, 因此, 我们没有计算探测光在二能级结构下的色散性质(反映在电极化率中)。

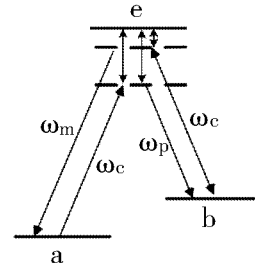


Fig. 2 Scheme of the energy level of four-wave mixing. $|a\rangle, |b\rangle$ are ground states, and $|c\rangle$ is excited state. $\omega_c, \omega_p, \omega_m$ are frequencies of pump light, probe light, and conjugate light, respectively. Intensity of pump light is much strong than probe light.

图2 四波混频能级图。 $|a\rangle, |b\rangle$ 是基态, $|c\rangle$ 是激发态。 $\omega_c, \omega_p, \omega_m$ 分别是控制光, 探测光和共轭光的频率。控制光光强很大, 探测光光强较小。

介质中光场的传播方程是,

$$\nabla^2 \mathbf{E} = \mu\epsilon_0 \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} + \mu \frac{\partial^2 \mathbf{P}}{\partial t^2}, \quad (8)$$

其中, $\mathbf{P} = \mathbf{P}^l + \mathbf{P}^{nl}$ 。对于探测光和共轭光, 它们的线型极化强度是,

$$P_p^l = N_a \mu_{db} \frac{-i\Omega_p/2}{i\Delta_p + \gamma_{db} + \frac{\Omega_c^2/4}{i(\Delta_p - \Delta_c) + \gamma_{ba}}} + c. c.,$$

$$P_m^l = N_a \mu_{ca} \frac{-i\Omega_m/2}{i\Delta_m + \gamma_{ca} + \frac{\Omega_c^2/4}{i(\Delta_m - \Delta_c) + \gamma_{ba}}} + c. c. \quad (9)$$

四波混频过程产生的极化强度是,

$$P^{nl}(\omega_p = 2\omega_c - \omega_m) = \chi_p^{nl} A_c A_c A_m^* \exp[i(\mathbf{k}_p \mathbf{r} - \omega_p t)] + c. c.$$

$$P^{nl}(\omega_m = 2\omega_c - \omega_p) = \chi_m^{nl} A_c A_c A_p^* \exp[i(\mathbf{k}_m \mathbf{r} - \omega_m t)] + c. c., \quad (10)$$

其中,

$$\chi_m^i = \frac{iN_{at} \mu_{ai} \mu_{ai} \mu_{ab} \mu_{ab} / (8\hbar \epsilon_0)}{i\Delta_c + \gamma_{ai}} \frac{1}{i(\Delta_c - \Delta_p) + \gamma_{ba}} \frac{1}{i(2\Delta_c + \Delta_{ba} - \Delta_p) + \gamma_{ai}} \times \frac{1}{1 + \frac{\Omega_c^2}{4[i(\Delta_c - \Delta_p) + \gamma_{ab}][i(2\Delta_c + \Delta_{ba} - \Delta_p) + \gamma_{ai}]}}$$

$$\frac{1}{1 + \frac{\Omega_c^2}{4[i(\Delta_c + \Delta_{ba} - \Delta_m) + \gamma_{ai}][i(2\Delta_c + \Delta_{ba} - \Delta_m) + \gamma_{ai}]}}$$
(11)

考虑介质是各向同性的,介质极化强度与电场强度方向相同。则可形式地写出各光场的电场强度,

$$E_i(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{2} A_i(\mathbf{r}) \exp[\mathbf{k}_i \mathbf{r} - \omega_i t] + c. c. \quad (12)$$

将方程(9-12)代入光场传播方程(8)可求得探测光和共轭光的稳态光场方程,进而画出它们在介质中的增益曲线。

2 实验结果

实验光路如图 3 所示。实验中,pump 光功率

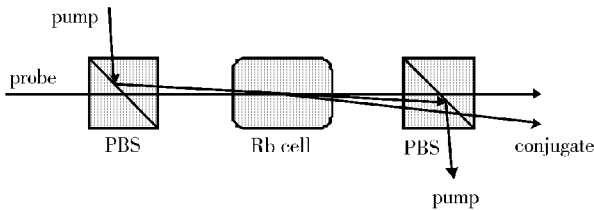


Fig. 3 Scheme of the optical path diagram. Intensity of pump light is much strong than probe light. The conjugate light appears when pump light and probe light have a proper angle.

图 3 四波混频实验光路图。pump 光较强,probe 光较弱。pump 光与 probe 光之间夹角合适时即可产生 conjugate 光。

约为 150 mW,频率调节到所需值后保持不变。probe 光功率约为 460 μW,扫描 probe 光的频率,可得 probe 光透射谱线。pump 光和 probe 光的频率均在⁸⁷Rb,⁸⁵Rb 原子的 D2 线附近。经过透镜组的汇聚,pump 光和 probe 光的腰斑在铷泡中间重合,二者的腰斑大小分别是 560 μm 和 280 μm。四波混频过程需要满足相位匹配条件,即是要求四波混频过程满足动量守恒与能量守恒条件。计算表明,probe 光与 pump 光夹角 θ 要满足 cosθ = n_{pm} / n_{pr},而 conjugate 光与 pump 光夹角 θ' 满足 cosθ' =

n_{pm}/n_{cn},其中,n_{pm},n_{pr},n_{cn}分别是 pump 光,probe 光,conjugate 光在铷原子蒸气中的折射率。实验中,probe 光与 pump 光夹角设为 4 mrad。

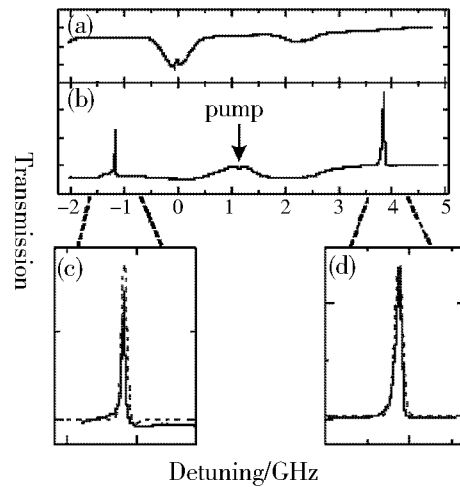


Fig. 4 Experimental results. (a) Saturated absorption spectrum of rubidium atomic vapor. (b) Spectrum of four-wave mixing. (c) Line shape of four-wave mixing at lower frequency. (d) Line shape of four-wave mixing at higher frequency. The blue dashed line is the result of theoretical calculation.

Temperature of the rubidium vapor is 140 °C. 图 4 四波混频实验数据图。(a)是铷原子蒸气的饱和吸收线。(b)显示出四波混频增益曲线。(c)是 probe 光在低频时的增益曲线。(d)是 probe 光在高频时的增益曲线。实验中铷原子蒸气的温度是 140 °C。

图 4 是实验中观察到的四波混频谱线。图 4 (a)为饱和吸收线,probe 光在⁸⁷Rb,⁸⁵Rb 原子的 D2 线附近扫描。pump 光在⁸⁵Rb 原子 5S_{1/2}, F = 2 → 5P_{3/2}, F = 1, 2, 3 和⁸⁷Rb 原子 5S_{1/2}, F = 1 → 5P_{3/2}, F = 0, 1, 2 之间。图 4(b)中在 probe 低频和高频位置均能看到 probe 光的四波混频增益谱线。注意到在低频附近,伴随有一个小的吸收坑,这是由在 pump 光作用在 Λ 型三能级跃迁的一臂,且与原子跃迁线

失谐较大时,在四波混频增益峰上会出现一个窄的吸收线型所造成。如图 4(c)和(d)中黑色实线为探测光的透射谱,蓝色虚线为理论拟合。其中图(c)为探测光在低频处的透射谱,图(d)为探测光在高频处的透射谱,可以看出相干吸收造成的影响在高频处已经变得很小,在谱线上看不见,这是由于 pump 光相对于原子跃迁线失谐更大的原因所造成,理论拟合所用的参数与实验中的参数条件相同,可以看出理论和实验符合较好。

参考文献:

- [1] SLUSHER R E, HOLLBERG L W, YURKE B, *et al.* Observation of Squeezed States Generated by Four-wave Mixing in an Optical Cavity [J]. *Phys Rev Lett*, 1985, **55**:2409-2412.
- [2] BOYER V, MARINO A M, POOSER R C, *et al.* Entangled Images from Four-wave Mixing [J]. *Science*, 2008, **321**:544-547.
- [3] CAMACHO R M, VUDYASETU P K, HOWELL J C. Four-wave-mixing Stopped Light in Hot Atomic Rubidium Vapour [J]. *Nature Photonics*, 2009, **3**:103-106.
- [4] WU Y, YANG X. Highly Efficient Four-wave Mixing in Double- Λ System in Ultraslow Propagation Regime [J]. *Phys Rev A*, 2004, **70**(5):053818.
- [5] LI Y, XIAO M. Enhancement of Nondegenerate Four-wave Mixing Based on Electromagnetically Induced Transparency in Rubidium Atoms [J]. *Optics Letters*, 1996, **21**:1064-1066.
- [6] WU Y, SALDANA J, ZHU Y. Large Enhancement of Four-wave Mixing by Suppression of Photon Absorption from Electromagnetically Induced Transparency [J]. *Phys Rev A*, 2003, **67**:013811.
- [7] KANG H, HERNANDEZ G, ZHU Y. Resonant Four-wave Mixing with Slow Light [J]. *Phys Rev A*, 2004, **70**(6):61804.
- [8] ZHANG Y, BROWN A W, XIAO M. Opening Four-wave Mixing and Six-wave Mixing Channels via Dual Electromagnetically Induced Transparency Windows [J]. *Phys Rev Lett*, 2007, **99**:123603.
- [9] MUKAMEL S. Principles of Nonlinear Optical Spectroscopy [M]. New York: Oxford University Press, 1995.
- [10] SU J J, YU I A. The Study of Coherence-induced Phenomena Using Double-sided Feynman Diagrams [J]. *Chinese Journal of Physics*, 2003, **41**(6):627-642.

The Experimental Investigation of the Line Shape of the Four-wave Mixing in the Atomic Vapor Cell

CHEN Liang-chao, MENG Zeng-ming, YU Xu-dong

(State Key Laboratory of Quantum Optics and Quantum Optics Devices,
Institute of Opto-Electronics, Shanxi University, Taiyuan 030006, China)

Abstract: Theoretically, the four-wave mixing process is studied according to the double-sided Feynman diagram, which can show the physical process of the atom-light interaction clearly. And the susceptibility is calculated. The line shape of the transmission of the four-wave mixing at ^{85}Rb D2 line is experimentally investigated, and the theoretical calculation fits well with the experimental data. The study of the line shape of the four-wave mixing process can enhance the understanding of the nonlinear process, and is helpful for the usage of four-wave mixing in the quantum information research.

Key words: four-wave mixing; double-sided Feynman diagram; perturbation method