arXiv:2602.11695v1 [quant-ph] 12 Feb 2026

量子增强能量转换的实验挑战与前景：与偏振非相干辐射相互作用的V型量子比特中的稳态法诺相干

Ludovica Donati,[1,2] Francesco Saverio Cataliotti,[3,4,2] 和 Stefano Gherardini[1,2]
[1]*Istituto Nazionale di Ottica, Consiglio Nazionale delle Ricerche (CNR-INO), Largo Enrico Fermi 6, 50125, Firenze, Italy.*
[2]*European Laboratory for Non-linear Spectroscopy (LENS), Università degli Studi di Firenze, via Nello Carrara 1, 50019, Sesto Fiorentino (FI), Italy.*[3]*Dipartimento di Fisica e Astronomia, Università degli Studi di Firenze, via Sansone 1, 50019, Sesto Fiorentino (FI), Italy.*[4]*Istituto dei Sistemi Complessi, Consiglio Nazionale delle Ricerche (CNR-ISC), Via Madonna del Piano 10, 50019, Sesto Fiorentino (FI), Italy.*
（日期：2026年2月13日）

目的： 量子相干最初主要在原子和光学系统中受到研究，如今则为能量转换技术带来了新的潜力。它会影响光吸收和发射，进而影响能量转换极限与效率。因此，人们正利用量子相干来提升量子热机、光电池和仿光合作用平台的性能。在这一背景下，法诺相干的产生尤其值得关注，即因与表征非相干过程的模式连续谱相互作用而形成量子相干性。我们的目标是从数学上阐明，如何利用偏振非相干辐射，在V型三能级量子系统中实现稳态法诺相干，而无需令激发能级之间的能量差 $\hbar\Delta$趋于零。具体而言，在这种情形下可以证明，稳态法诺相干的最大值取决于 Δ、激发能级的平均自发衰减率 $\bar{\gamma}$ 以及以平均光子数 $\bar{n}$量化的非相干辐射强度之间非平凡的相互作用。

方法： 我们通过对非相干辐射进行量子化，从第一性原理推导布洛赫-雷德菲尔德方程，以开展这项分析。我们分析由此得到的系统约化动力学，从而确定法诺相干的寿命，并识别其达到稳态的条件。

结果： 我们描述了从弱泵浦到强泵浦的不同动力学区域，在这些区域中会出现稳态法诺相干，并定量确定其大小。针对每个区域，我们分析法诺相干的生成如何随非相干泵浦强度和激发能级之间的能级劈裂而变化。我们还评估了对称或非对称衰减率如何影响法诺相干的获得。这些发现表明，由偏振非相干光驱动的三能级量子系统可以成为相干辅助能量转换与储存的稳健资源。最后，我们讨论了使用铷原子系综实现所提模型所面临的实验挑战。

结论： 这项工作为在相关实验装置中利用偏振非相干辐射开展法诺相干生成的实验测试铺平了道路，以实现量子增强能量储存和能量转换功能。

目录

I. 引言 2

II. 模型 3
A. 系统-非相干光相互作用哈密顿量 B. 开放系统动力学：布洛赫-雷德菲尔德方程 1. 开放量子系统理论中的一些概念 2. 布洛赫-雷德菲尔德动力学的完全正性 3. Weisskopf-Wigner近似的应用 4. 部分世俗近似的应用 5. 各向同性非相干辐射场 6. 各向异性偏振非相干辐射场 7. 线性形式的开放系统动力学 C. 动力学区域与Fano相干寿命 3 7 7 8 9 13 13 14 17 18

1. 弱泵浦区 2. 强泵浦区 19
20

III. 相关实验装置中的稳态法诺相干性 21
A. 铷原子系综 B. 在 ^{87}铷超精细结构中实现V型系统 1. 理论预测 22
22
24

IV. 结论 25
A. 展望 致谢 作者贡献 26
26
26

参考文献 26

I. 引言

量子相干性传统上在原子和光学系统中研究，是一种颇具前景的能量转换技术资源。它确实能够改变物质吸收和发射光的过程之间的平衡，而这一平衡传统上限制着能量转换性能，并参与熵产生、功提取和输运通量的定义。因此，人们提出了利用量子相干性的机制，以提升驱动量子系统、量子热机和光电池的输出功率与效率，并改善仿生及仿光合作用架构中的能量传递产率 [1–13]。

量子热机（QHE）是利用量子相干性作为热力学资源的一个鲜明例证。首先，可以通过相干驱动场在激发能级之间产生叠加态，从而在外部诱导量子相干性 [1]。这种驱动能够增加可提取功，进而显著提升热机性能。除了与外场的相干相互作用，量子相干性也可以源自两个量子系统之间的哈密顿量耦合；例如，基于简并双量子点的固态平台可并联耦合至两个热库 [2]。在这种构型中，量子点之间的相干隧穿会在其状态中产生稳态量子相干性。

关于太阳能转换器件，量子相干已被确认为一种能够减少辐射复合损失并提升光伏性能的机制。具体而言，早期理论提案提出了由太阳光谱中的单色分量驱动的基于量子点的光电池，为相干辅助运行奠定了基础，并预测转换效率将显著提升 [3, 4]。参考文献 [5]，探索了另一种策略，指出两个量子点之间的最佳隧穿能够维持局域态之间的量子相干，从而增强量子光伏效应，并在非相干照明下提高电流和功率输出。近来，研究者对量子点分子进行了研究，发现穿过有限势垒的相干隧穿可产生稳态量子相干；在马尔可夫主方程动力学下，这种相干可使最大功率效率提高至多 30% [6]。受光合反应中心的启发，Creatore等人在参考文献 [7] 中提出了一种由分子发色团构成的纳米尺度光电池模型，并表明，吸收和发射过程中的偶极-偶极介导的量子干涉，相较于缺乏此类相干效应的光伏电池，可使光电流和功率输出提高至多 35%。

值得注意的是，即使系统与非相干环境（如热储库或真空储库）相互作用，也可能产生量子相干 [14, 15]。特别是，正如参考文献 [16, 17], 所述，这种相干性源于系统动力学中衰变或激发路径的不可区分性，而这种不可区分性是由系统与环境的相互作用造成的。在能量转换领域，这种效应也称为噪声诱导相干性；它解释了为何基于量子点的光电池无需外部相干驱动 [1, 8], 也能提高光电流和功率输出，以及仿生系统在非相干太阳光泵浦下的能量转移效率为何会提升 [9]。实验上，在聚合物半导体异质结中，噪声诱导相干性推动了超快光生载流子生成动力学，彰显了其在真实光伏材料中的作用 [10]。近期一项理论研究进一步表明，环境相互作用不一定会削弱相干优势；相反，强系统-库耦合可借助光诱导相干性提高转换效率，从而拓展可实现相干光捕获的平台范围 [11]。

上述所有平台都可以有效地建模为与外部环境相互作用的多能级量子系统。产生量子干涉所需的最简情形是三能级系统。在本研究中，我们聚焦于V型三能级系统，该系统由一个共同基态和两个近简并的激发能级组成；每个激发能级都通过与非相干辐射场相互作用（例如宽带

热辐射或太阳辐射）与基态发生光学耦合。对具有近简并激发能级的V型系统进行非相干泵浦，可在激发态 [18–20] 之间产生噪声诱导量子相干。这种效应源于法诺干涉；当多个离散跃迁与共同的环境模连续谱耦合时，便会发生这种干涉 [21, 22]。在此情境下，连续谱由辐射场的宽带谱提供，或者等效地由系统与之交换能量的有效热储库提供。当非相干辐射的谱宽超过激发能级之间的频率劈裂时，连接这些能级与基态的激发和衰减路径便变得不可区分。这种不可区分性使相应的光学跃迁之间产生量子干涉，从而形成噪声诱导法诺相干，即使不存在外部相干驱动也是如此。

近期研究广泛考察了由各向同性、非偏振、非相干辐射驱动的多能级量子系统，尤其是 V 型三能级系统的动力学 [18–20, 23–26]。这些研究指出，系统存在不同的动力学区域，其演化由激发能级的频率劈裂 Δ与平均自发衰减率 $\bar{\gamma}$之比决定。入射辐射的平均光子数 $\bar{n}$也会进一步影响系统动力学；在这些模型中，该数值由平均非相干激发率$\bar{r}$ 与 $\bar{\gamma}$ [18, 20, 25, 26]之比决定。

以各向异性、偏振、非相干辐射作为输入源的情形则鲜有研究 [27, 28]。偏振和各向异性通过选择特定的场模式和耦合方向，使系统与环境之间的相互作用更为复杂。与各向同性非偏振辐射不同，各向异性偏振场不会对所有传播方向取平均，因此能够保留光学跃迁之间的相位关联，进而维持量子干涉效应。该机制能够在激发能级之间产生并稳定噪声诱导法诺相干，即使在各向同性驱动下量子干涉通常会消失，也不例外。

本文中，我们为各向异性偏振非相干辐射驱动的V型三能级系统动力学构建了第一性原理量子模型。具体而言，我们分析了这种泵浦形式如何在所有动力学区域中引发稳态噪声诱导法诺相干。我们特别关注如何确定使稳态相干性达到最大的条件，以期在原子系统中对其进行实验检测。据我们所知，尽管相关理论研究已十分广泛，且这一现象具有明确的技术应用价值，但迄今仍缺乏非相干泵浦产生法诺相干的实验证据。

本文结构如下。第二节通过推导与非相干辐射相互作用的V型三能级系统的开放量子系统动力学，介绍理论模型。第二节A小节给出系统与辐射场的相互作用哈密顿量，第二节B小节则概述用于描述系统约化动力学的布洛赫–雷德菲尔德形式。在此框架下，我们讨论推导马尔可夫主方程所需的全部近似，并仔细区分各向同性与各向异性非相干辐射场。由此得到的动力学方程被写成便于解析和数值分析的线性形式。在第二节C小节中，我们分析系统在不同区域内的动力学，确定弱泵浦和强泵浦条件，并考察法诺相干的寿命与行为。第三节聚焦于与实验相关的实现方案。具体而言，在第三节A小节中，我们说明选择由 ^{87}Rb原子组成的系综作为物理平台的原因；在第三节B小节中，我们介绍如何利用其超精细结构实现V型三能级系统。随后，我们给出关于所得稳态法诺相干的定量理论预测，并确定最有利于实验观测的参数范围。最后，在第四节中总结主要结果，并在第四节A小节讨论未来可能的研究方向。

II. 模型

A. 系统-非相干光相互作用哈密顿量

我们考虑一个由非相干辐射源（如热辐射或宽带辐射）驱动的V型三能级量子系统。该情景采用开放量子系统的形式体系进行建模 [29], ，该体系假设所研究的系统（S）与具有潜在宏观特征的外部库（R）相互作用。由此形成的复合系统S+R储库被视为一个封闭系统。

V型三能级系统的构型由两个激发态和一个基态组成，如图1所示。激发能级 $|a\rangle$ 和 $|b\rangle$ 分别以自发辐射速率 γ_a 和 γ_b衰变到基态 $|c\rangle$ 。此外，两个激发态均通过非相干泵浦（在我们的模型中为热辐射）与基态耦合，速率为$\mathbf{r}_a$,$\mathbf{r}_b$。两个上能级之间不存在直接的偶极矩耦合。角跃迁频率由 $\omega_{ac} = \omega_a - \omega_c$ 和 $\omega_{bc} = \omega_b - \omega_c$给出，二者之差 $\Delta = \omega_{ac} - \omega_{bc}$ 定义了激发能级之间的频率劈裂。两个激发态近乎简并，即劈裂 Δ 远小于光学跃迁频率（$\Delta \ll \omega_{ac}, \omega_{bc}$）。这样，能级间隔

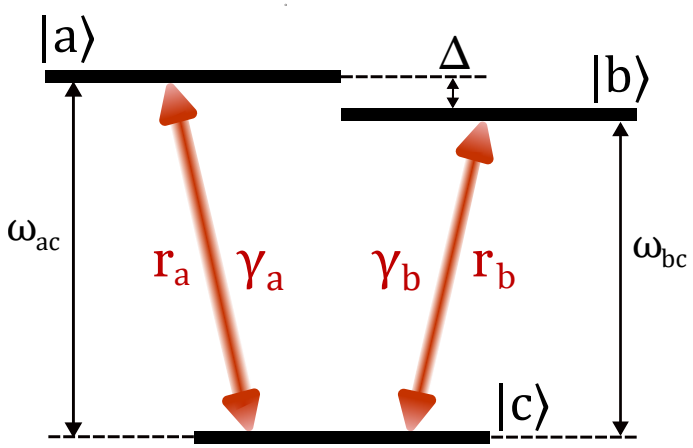

图 1：本文分析所考虑的 V型三能级系统示意图。其能级构型由两个近简并的激发能级组成，分别记为 $|a\rangle$ 和 $|b\rangle$ ，二者的频率劈裂为 Δ。这两个能级分别以速率 r_a 和 r_b 从基态 $|c\rangle$接受非相干泵浦。 $|a\rangle$和 $|b\rangle$ 均可分别以速率 γ_a 和 γ_b衰变至基态。

变得与系统–储库相互作用的特征能量尺度相当。因此，系统动力学可能表现出显著的储库诱导的干涉效应，正如先前若干研究 [18–20, 24, 25, 30, 31]所报道的那样。在我们将要推导的模型中，电磁场充当热储库，而组合的三能级系统 +非相干辐射的动力学完全在量子力学描述的框架内加以处理。

约化系统 S 的定态哈密顿量表示为：

$$\hat{H}_S = \sum_l \hbar\omega_{lc}\hat{\sigma}_{lc}^{+}\hat{\sigma}_{lc}^{-} = \hbar\left(\omega_{ac}\hat{\sigma}_{ac}^{+}\hat{\sigma}_{ac}^{-} + \omega_{bc}\hat{\sigma}_{bc}^{+}\hat{\sigma}_{bc}^{-}\right), \tag{1}$$

其中 $l = a,\ b$；不失一般性，我们将基态 $|c\rangle$ 的能量设为零。在式 (1) 中，$\hat{\sigma}_{lc}^{-}$ 和 $\hat{\sigma}_{lc}^{+}$ 分别为降算符和升算符，其定义如下：

$$\hat{\sigma}_{lc}^{+} \equiv |l\rangle\langle c| \quad \text{and} \quad \hat{\sigma}_{lc}^{-} \equiv \left(\hat{\sigma}_{lc}^{+}\right)^{\dagger} = |c\rangle\langle l|. \tag{2}$$

由于 $|l\rangle$ 是激发态，而 $|c\rangle$ 是基态，$\hat{\sigma}_{lc}^{+}$ 表示从基态到激发态的跃迁（升算符），$\hat{\sigma}_{lc}^{-}$ 表示从激发态到基态的跃迁（降算符）。相应地，量子化电磁场的哈密顿量为

$$\hat{H}_R = \sum_{\lambda=1,2}\sum_{\mathbf{k}} \hbar\nu_{\mathbf{k},\lambda}\hat{a}_{\mathbf{k},\lambda}^{\dagger}\hat{a}_{\mathbf{k},\lambda}, \tag{3}$$

其中，$\nu_{\mathbf{k},\,\lambda}$ 是波矢$\mathbf{k}$ 和偏振 λ对应模式的角频率。算符$\hat{a}_{\mathbf{k},\,\lambda}$ 和$\hat{a}^{\dagger}_{\ \mathbf{k}\,\lambda}$分别湮灭和产生相应模式中的光子。哈密顿量 H_R 表示所有场模中储存的总能量，但不包括真空能量$\frac{1}{2}\hbar\nu_{\mathbf{k},\,\lambda}$。通常会舍去真空能量，因为它只会使能量整体平移一个常数，不会影响可观测动力学；可观测动力学仅取决于能量差。接下来讨论如何模拟与各向异性非相干辐射的相互作用时，储库的模式可以（彼此独立地）发射和吸收从不同温度的热分布中抽取的光子，具体取决于各向异性的程度。特别说明一下，如果非相干辐射场是各向同性的，吸收和发射的光子均取自单一的有限温度热分布。否则，我们需要考虑系统与两个不同温度的热储库之间的有效相互作用：一个有限温度的各向异性偏振辐射场，负责吸收和受激发射；另一个则是建模为零温储库的各向同性辐射场，仅用于描述自发辐射。

复合系统 S+R 的哈密顿量 $H(t)$可以通过考虑

V型系统的电偶极矩算符$\hat{}\mu$与电场算符$\hat{}E(\mathbf{r}\ t)$ [29,32, 33]之间的耦合来推导。继续之前，请注意，全文中未标注下标 I的算符表示在薛定谔绘景中表达的量。在相互作用绘景中（以下标 I表示），可得以下表达式:

$$\hat{H}_I(t) = -\hat{\mu}_I(t) \cdot \hat{E}_I(\mathbf{R}, t), \tag{4}$$

其中

$$\hat{E}_I(\mathbf{R}, t) = i \sum_{\lambda=1,2} \sum_{\mathbf{k}} \sqrt{\frac{\hbar\nu_{\mathbf{k},\lambda}}{2\varepsilon_0 V}} \epsilon_{\mathbf{k},\lambda} \left[\hat{a}_{\mathbf{k},\lambda} e^{-i\nu_{\mathbf{k},\lambda}t + i\mathbf{k}\cdot\mathbf{R}} - \hat{a}^\dagger_{\mathbf{k},\lambda} e^{i\nu_{\mathbf{k},\lambda}t - i\mathbf{k}\cdot\mathbf{R}} \right], \tag{5}$$

其中， V是对体积为 V 的空间进行场量子化后得到的归一化前因子。在式（5）中，$\epsilon_{\mathbf{k},\lambda}$ 是单位偏振矢量，必须满足库仑规范所要求的横向条件:

$$\epsilon_{\mathbf{k},\lambda} \cdot \mathbf{k} = 0 \quad \forall\, \mathbf{k}, \lambda. \tag{6}$$

条件（6）确保了电磁场的横向性，排除了沿电磁波传播方向的任何纵向偏振分量。这意味着电场位于垂直于波矢 $\mathbf{k}$ 的平面内，因此可由两个相互独立的正交归一横向偏振矢量 $\epsilon_{\mathbf{k},1}$ 和 $\epsilon_{\mathbf{k},2}$ 表示。与给定波矢 $\mathbf{k}$ 相关的任意偏振态都可以表示为这两个横向模式的线性组合。它们的正交归一性表示为

$$\epsilon_{\mathbf{k},\lambda} \cdot \epsilon_{\mathbf{k}',\lambda'} = \delta_{\lambda,\lambda'} \quad \forall\, \mathbf{k}, \tag{7}$$

其中 δ 表示克罗内克δ。

在相互作用 p 如图 1 所示的 V型三能级系统的 is:

$$\hat{\mu}_I(\mathbf{R}, t) = \mu_{ac} \left(\hat{\sigma}^+_{ac} e^{i\omega_{ac}t} + \hat{\sigma}^-_{ac} e^{-i\omega_{ac}t} \right) + \mu_{bc} \left(\hat{\sigma}^+_{bc} e^{i\omega_{bc}t} + \hat{\sigma}^-_{bc} e^{-i\omega_{bc}t} \right), \tag{8}$$

其中 $\mu_{ac} \equiv \langle a|e\mathbf{R}|\mathbf{c}\rangle$ 和 $\mu_{bc} \equiv \langle b|e\mathbf{R}|\mathbf{c}\rangle$ 是电偶极矩算符的矩阵元， e 是元电荷，而 $\mathbf{R}$ 是位置矢量。式（8）由将薛定谔绘景映射到相互作用绘景的正则变换得出，即

$$\hat{\sigma}^\pm_{lc,I} = \hat{U}_0^\dagger(t, t_0) \hat{\sigma}^\pm_{lc} \hat{U}_0(t, t_0) = \hat{\sigma}^\pm_{lc} e^{\pm i\omega_{lc}(t - t_0)}, \tag{9}$$

其中

$$\hat{U}_0(t, t_0) \equiv \exp\left[-i \sum_l \omega_{lc} \hat{\sigma}^+_{lc} \hat{\sigma}^-_{lc} (t - t_0) \right], \tag{10}$$

这是一个相对于初始时刻 t_0 定义的幺正时间演化算符。将式（5）和式（8）代入式（4），
并假设 $t_0 = 0$，可得:

$$\begin{aligned}
\hat{H}_I(t) = &-i \sum_{\lambda=1,2} \sum_{\mathbf{k}} \sqrt{\frac{\hbar\nu_{\mathbf{k},\lambda}}{2\varepsilon_0 V}} \Big[\left(\mu_{ac} \cdot \epsilon_{\mathbf{k},\lambda}\right) \left(\hat{\sigma}^+_{ac} e^{i\omega_{ac}t} + \hat{\sigma}^-_{ac} e^{-i\omega_{ac}t} \right) \\
&\times \left(\hat{a}_{\mathbf{k},\lambda} e^{-i\nu_{\mathbf{k},\lambda}t + i\mathbf{k}\cdot\mathbf{R}} - \hat{a}^\dagger_{\mathbf{k},\lambda} e^{i\nu_{\mathbf{k},\lambda}t - i\mathbf{k}\cdot\mathbf{R}} \right) \Big] \\
&- i \sum_{\lambda=1,2} \sum_{\mathbf{k}} \sqrt{\frac{\hbar\nu_{\mathbf{k},\lambda}}{2\varepsilon_0 V}} \Big[\left(\mu_{bc} \cdot \epsilon_{\mathbf{k},\lambda}\right) \left(\hat{\sigma}^+_{bc} e^{i\omega_{bc}t} + \hat{\sigma}^-_{bc} e^{-i\omega_{bc}t} \right) \\
&\times \left(\hat{a}_{\mathbf{k},\lambda} e^{-i\nu_{\mathbf{k},\lambda}t + i\mathbf{k}\cdot\mathbf{R}} - \hat{a}^\dagger_{\mathbf{k},\lambda} e^{i\nu_{\mathbf{k},\lambda}t - i\mathbf{k}\cdot\mathbf{R}} \right) \Big].
\end{aligned} \tag{11}$$

此时，我们采用偶极近似。

- **偶极近似:**
  偶极近似假定电场的波长远大于系统 S 的特征空间尺度。因此，电场可视为恒定。电场算符 $\hat{}E(\mathbf{R}\ t)$ 因而在固定参考点处求值，为简便起见通常取为 $\mathbf{R}\ = 0$ ，从而得到:

$$\hat{E}(\mathbf{R}, t) \approx \hat{E}(0, t) = i \sum_{\lambda=1,2} \sum_{\mathbf{k}} \sqrt{\frac{\hbar\nu_{\mathbf{k},\lambda}}{2\varepsilon_0 V}} \epsilon_{\mathbf{k},\lambda} \left[\hat{a}_{\mathbf{k},\lambda} e^{-i\nu_{\mathbf{k},\lambda}t} - \hat{a}^\dagger_{\mathbf{k},\lambda} e^{i\nu_{\mathbf{k},\lambda}t} \right]. \tag{12}$$

因此，式 (11) 变为：

$$\begin{aligned}\hat{H}_I(t) = &-i\sum_{\lambda=1,2}\sum_{\mathbf{k}}\sqrt{\frac{\hbar\nu_{\mathbf{k},\lambda}}{2\varepsilon_0 V}}\Big[\left(\mu_{ac}\cdot\epsilon_{\mathbf{k},\lambda}\right)\left(\hat{\sigma}_{ac}^{+}e^{i\omega_{ac}t}+\hat{\sigma}_{ac}^{-}e^{-i\omega_{ac}t}\right)\left(\hat{a}_{\mathbf{k},\lambda}e^{-i\nu_{\mathbf{k},\lambda}t}-\hat{a}_{\mathbf{k},\lambda}^{\dagger}e^{i\nu_{\mathbf{k},\lambda}t}\right)\Big]\\ &-i\sum_{\lambda=1,2}\sum_{\mathbf{k}}\sqrt{\frac{\hbar\nu_{\mathbf{k},\lambda}}{2\varepsilon_0 V}}\left[\left(\mu_{bc}\cdot\epsilon_{\mathbf{k},\lambda}\right)\left(\hat{\sigma}_{bc}^{+}e^{i\omega_{bc}t}+\hat{\sigma}_{bc}^{-}e^{-i\omega_{bc}t}\right)\left(\hat{a}_{\mathbf{k},\lambda}e^{-i\nu_{\mathbf{k},\lambda}t}-\hat{a}_{\mathbf{k},\lambda}^{\dagger}e^{i\nu_{\mathbf{k},\lambda}t}\right)\right].\end{aligned} \tag{13}$$

通过应用旋波近似（RWA），可以进一步简化式（13），从而舍弃方程中包含的不守恒能量项，具体如下。

- **旋波近似：**
  C考虑式（13），展开乘积所得的四项并非都

$$\left(\hat{\sigma}_{lc}^{+}e^{i\omega_{lc}}+\hat{\sigma}_{lc}^{-}e^{-i\omega_{lc}}\right)\left(\hat{a}_{\mathbf{k},\lambda}e^{-i\nu_{\mathbf{k}}t}-\hat{a}_{\mathbf{k},\lambda}^{\dagger}e^{i\nu_{\mathbf{k}}t}\right)$$

，其中 $l=a,\ b$，能量守恒。具体而言，项 $\hat{}\sigma_{lc}^{-}\hat{}a_{\mathbf{k},\ \lambda}$ 描述了系统从激发态$|l\rangle$ 跃迁至基态 $|c\rangle$，同时场中湮灭一个光子。这导致能量净损失，其大小等于光子能量与系统各态之间能量差之和。相反，项 $\hat{}\sigma_{lc}^{+}\,\hat{a}^{\dagger}{}_{\mathbf{k}\,\lambda}$ 表示系统状态跃迁至激发态 $|l\rangle$，并在场中产生一个光子，因此导致能量增加。另一方面，其余两项在光与物质相互作用过程中 [29, 32, 33]守恒能量。旋波近似通过忽略不守恒能量项（或反旋转项）$\hat{}\sigma_{lc}^{-}\,\hat{}a_{\mathbf{k},\ \lambda}$ 和 $\hat{}\sigma_{lc}^{+}\,\hat{a}^{\dagger}{}_{\mathbf{k}\,\lambda}$来实现。因此，式（13）变为：

$$\begin{aligned}\hat{H}_I(t) = &-i\sum_{\lambda=1,2}\sum_{\mathbf{k}}\sqrt{\frac{\hbar\nu_{\mathbf{k},\lambda}}{2\varepsilon_0 V}}\left[\left(\mu_{ac}\cdot\epsilon_{\mathbf{k},\lambda}\right)\left(\hat{\sigma}_{ac}^{+}\hat{a}_{\mathbf{k},\lambda}e^{i\left(\omega_{ac}t-\nu_{\mathbf{k},\lambda}t\right)}-\hat{\sigma}_{ac}^{-}\hat{a}_{\mathbf{k},\lambda}^{\dagger}e^{-i\left(\omega_{ac}t-\nu_{\mathbf{k},\lambda}t\right)}\right)\right]\\ &-i\sum_{\lambda=1,2}\sum_{\mathbf{k}}\sqrt{\frac{\hbar\nu_{\mathbf{k},\lambda}}{2\varepsilon_0 V}}\left[\left(\mu_{bc}\cdot\epsilon_{\mathbf{k},\lambda}\right)\left(\hat{\sigma}_{bc}^{+}\hat{a}_{\mathbf{k},\lambda}e^{i\left(\omega_{bc}t-\nu_{\mathbf{k},\lambda}t\right)}-\hat{\sigma}_{bc}^{-}\hat{a}_{\mathbf{k},\lambda}^{\dagger}e^{-i\left(\omega_{bc}t-\nu_{\mathbf{k},\lambda}t\right)}\right)\right].\end{aligned} \tag{14}$$

式 (14) 也可以用耦合项 $g^{(l)}{}_{\mathbf{k}\,\lambda}$重写，它们量化了 S 与 R 之间相互作用的强度。耦合项的量纲为角频率：

$$g_{\mathbf{k},\lambda}^{(l)} \equiv -\frac{\mu_{lc}\cdot\epsilon_{\mathbf{k},\lambda}}{\hbar}\sqrt{\frac{\hbar\nu_{\mathbf{k},\lambda}}{2\varepsilon_0 V}}, \tag{15}$$

因此

$$\begin{aligned}\hat{H}_I(t) =&i\hbar\sum_{\lambda=1,2}\sum_{\mathbf{k}}g_{\mathbf{k},\lambda}^{(a)}\left(\hat{\sigma}_{ac}^{+}\hat{a}_{\mathbf{k},\lambda}e^{i\left(\omega_{ac}t-\nu_{\mathbf{k},\lambda}t\right)}-\hat{\sigma}_{ac}^{-}\hat{a}_{\mathbf{k},\lambda}^{\dagger}e^{-i\left(\omega_{ac}t-\nu_{\mathbf{k},\lambda}t\right)}\right)\\ &+i\hbar\sum_{\lambda=1,2}\sum_{\mathbf{k}}g_{\mathbf{k},\lambda}^{(b)}\left(\hat{\sigma}_{bc}^{+}\hat{a}_{\mathbf{k},\lambda}e^{i\left(\omega_{bc}t-\nu_{\mathbf{k},\lambda}t\right)}-\hat{\sigma}_{bc}^{-}\hat{a}_{\mathbf{k},\lambda}^{\dagger}e^{-i\left(\omega_{bc}t-\nu_{\mathbf{k},\lambda}t\right)}\right).\end{aligned} \tag{16}$$

在式 (15) 中，偶极矩阵元 $\mu_{lc}=e\langle l|\mathbf{R}|c\rangle$ 可以取为实数，使得 $\mu_{lc}=\mu_{cl}^{*}$ [33]。

耦合项 $g^{(l)}{}_{\mathbf{k}\,\lambda}$ 定义了谱密度函数 $J_l(\nu)$，该函数表征辐射场模式的分布。谱密度的形式定义为：

$$J_l(\nu) \equiv \sum_{\lambda=1,2}\sum_{\mathbf{k}}|g_{\mathbf{k},\lambda}^{(l)}|^2\delta(\nu-\nu_{\mathbf{k},\lambda}), \tag{17}$$

其中 $\delta(\cdot)$ 表示狄拉克δ函数。存在 $\delta(\nu-\nu_{\mathbf{k},\lambda})$ 可确保仅考虑频率等于 $\nu_{\mathbf{k},\lambda}$ 的辐射场模式。

当与和频 $\omega_{lc}+\nu_{\mathbf{k},\lambda}\,(l=a,b)$ 相关的快速振荡，与支配布居和相干动力学的较慢时间演化之间存在明确的时间尺度分离时，反旋项对系统动力学的贡献会受到抑制，因此采用旋波近似是合理的。后者发生的时间尺度由系统-储库耦合强度决定。在实际中，明确的时间尺度分离

需要满足：(i) 处于弱耦合区间 $g^{(l)}{}_{\mathbf{k}\,\lambda} \ll \omega_{lc}$，以及 (ii) 非相干辐射场的谱密度以系统的跃迁频率为中心，使得辐射场的主导模式满足 $|\omega_{lc} - \nu_{\mathbf{k},\lambda}| \ll \omega_{lc} + \nu_{\mathbf{k},\lambda}$ [29, 32, 33]。在这些条件下，反旋项以远短于退相干和弛豫过程对应的时间尺度振荡，其贡献可在系统动力学的时间尺度上进行粗粒化时取平均消去。因此，相互作用动力学由一阶吸收和发射过程主导，而散射过程和布洛赫–西格特频移等非共振二阶效应则受到强烈抑制 [34–36]。

B. 开放系统动力学：布洛赫-雷德菲尔德方程

1. *Some notions from open quantum systems' theory*

系统 S 被描述为一个与其环境 R 相互作用的开放量子系统。由于动力学过程中可能产生量子相干性，我们采用密度算符形式描述系统的状态。在本文的设定中，如下文所示，系统的密度算符 $\hat{\rho}_S(t)$ 的时间演化由量子马尔可夫主方程推导得出。该方程源自刘维尔–冯·诺伊曼方程，后者描述由 S 和 R 构成的复合系统的密度算符 $\hat{\rho}(t)$ 的动力学。迄今为止，该模型及其解已在多篇文献中讨论过 [8, 19, 20, 23–26, 28, 29]。下面我们将对该模型进行全面且深入浅出的推导。

系统+储库的时间演化由以下积分-微分形式的刘维尔–冯·诺伊曼微分方程支配，该方程描述复合系统的密度算符 $\hat{\rho}_I(t)$，并以相互作用绘景表示：

$$\frac{d\hat{\rho}_I(t)}{dt} = -\frac{i}{\hbar}\left[\hat{H}_I(t), \hat{\rho}_I(0)\right] - \frac{1}{\hbar^2}\int_0^t \left[\hat{H}_I(t), \left[\hat{H}_I(t'), \hat{\rho}_I(t')\right]\right] dt'. \tag{18}$$

对储库自由度取偏迹后，形式上可得：

$$\begin{aligned}\frac{d\hat{\rho}_{S,I}(t)}{dt} &= -\frac{i}{\hbar}\mathrm{Tr}_R\left(\left[\hat{H}_I(t), \hat{\rho}_{S,I}(0)\otimes\hat{\rho}_{R,I}(0)\right]\right) \\ &- \frac{1}{\hbar^2}\int_0^t \mathrm{Tr}_R\left(\left[\hat{H}_I(t), \left[\hat{H}_I(t'), \hat{\rho}_I(t')\right]\right]\right) dt',\end{aligned} \tag{19}$$

其中仍包含复合系统的密度算符 $\hat{\rho}_I(t)$。通过针对具体情形采用适当的近似，可以推导出一个仅取决于 S 在当前时刻 t 的状态的微分方程。所用的近似如下：

- **玻恩近似：**
  这种玻恩 （或弱耦合近似）假设系统与储库之间的耦合足够弱，以至于储库状态几乎不会因其与系统的相互作用而受到扰动。在这一假设下，由相互作用产生的系统–储库关联仍处于微扰量级，因此可以忽略。这意味着，系统+储库的密度算符可以近似为以下张量积：

$$\hat{\rho}(t) \approx \hat{\rho}_S(t)\otimes\hat{\rho}_R(0) \quad \forall\, t, \tag{20}$$

  with 在相互作用过程中，储库近似保持其初始状态 $\hat{\rho}_R(0)$.
  应用玻恩近似后，式（19）可写为

$$\begin{aligned}\frac{d\hat{\rho}_{S,I}(t)}{dt} &\approx -\frac{i}{\hbar}\mathrm{Tr}_R\left(\left[\hat{H}_I(t), \hat{\rho}_{S,I}(0)\otimes\hat{\rho}_{R,I}(0)\right]\right) \\ &- \frac{1}{\hbar^2}\int_0^t \mathrm{Tr}_R\left(\left[\hat{H}_I(t), \left[\hat{H}_I(t'), \hat{\rho}_{S,I}(t')\otimes\hat{\rho}_{R,I}(0)\right]\right]\right) dt'.\end{aligned} \tag{21}$$

  重要的是，这一近似并不意味着储库中不存在激发。相反，它假设相互作用产生的激发不会引发足够强的系统-储库关联，从而对系统动力学产生反作用 [29]。在玻恩近似下，积分-微分

方程中，系统约化密度算符仅保留相互作用哈密顿量的二阶贡献，这实际上导出了式（21）。该近似成立的条件是，系统-储库耦合强度相对于系统的本征频率足够小： $g^{(l)}{}_{\mathbf{k}\lambda} \ll \omega_{lc}$。

- **马尔可夫近似：**
  马尔可夫近似 假设储库自相关函数的衰变时间 τ_R 远短于系统的特征弛豫时间 τ_S ，即 $\tau_R \ll \tau_S$ [29]。在此条件下，记忆效应可以忽略：从系统传递到储库的信息会迅速耗散，不会回流。因此，系统约化密度算符的时间演化在时间上呈局域性，也就是说，$\hat{\rho}_S(t)$ 仅取决于 $\hat{\rho}_S(t)$，而与其过去的历史无关。这种近似会导致所谓的无记忆或马尔可夫过程。从数学上来说，鉴于记忆效应对 $t-t' > \tau_R$已不再重要，式 (21) 中来自时间 $t' < t-\tau_R$ 的积分贡献可以忽略。因此，可以将式 (21) 中积分的上限延伸至无穷大，并将 $\hat{\rho}_{S,I}(t')$ 替换为 $\hat{\rho}_{S,I}(t)$：

$$\begin{aligned}\frac{d\hat{\rho}_{S,I}(t)}{dt} \approx & -\frac{i}{\hbar}\mathrm{Tr}_R\left(\left[\hat{H}_I(t), \hat{\rho}_{S,I}(0)\otimes\hat{\rho}_{R,I}(0)\right]\right) \\ & - \frac{1}{\hbar^2}\int_0^\infty \mathrm{Tr}_R\left(\left[\hat{H}_I(t), \left[\hat{H}_I(t'), \hat{\rho}_{S,I}(t)\otimes\hat{\rho}_{R,I}(0)\right]\right]\right)dt'. \end{aligned} \tag{22}$$

辐射场的衰变时间 τ_R 与其谱带宽 $\tau_R \sim 1/\Delta\nu$成反比，结构化谱或多峰谱等特殊情况除外 [37]。因此，宽带辐射场的关联时间极短。对热辐射和太阳辐射的研究已对此进行了定量证实：它们的光学带宽使关联时间仅为数个飞秒 [38]。

式（22）同时采用了玻恩近似和马尔可夫近似，是一种马尔可夫量子主方程，通常称为*Redfield*方程或布洛赫-雷德菲尔德方程 [29]。

2. Complete positivity of the Bloch-Redfield dynamics

布洛赫-雷德菲尔德（BR）方程（22）为弱系统-储库相互作用提供了微观描述，但通常不能确保约化密度算符$\hat{\rho}_{S,\,I}(t)$的完全正性 [29, 39–42]。缺乏正性可能导致不符合物理实际的预测，例如负布居数。为恢复$\hat{\rho}_{S,\,I}(t)$的正性，通常会引入额外的近似；其中最常见的是世俗近似 [29, 41, 43, 44]。世俗近似通过对时间进行粗粒化平均，消除相互作用绘景中快速振荡的项，从而得到林德布拉德形式的生成元。然而，世俗化并非总是合理或准确的 [44–46]。当系统能级之间的间隔相对于系统-储库耦合强度而言很小时，世俗近似会忽略这些能级之间重要的量子干涉效应。因此，这种近似会抑制量子干涉项，无法捕捉关键的动力学特征 [27, 43, 44]。在由非相干辐射或宽带辐射驱动的多能级系统中 [8, 18–20, 23–25, 47], ，或在可能出现长寿命相干效应的非平衡条件下 [28, 30, 31] ，这些局限尤为严重。

近期的多项分析已证实，对于近简并的光学跃迁，只要储库关联矩阵正定且偶极几何结构支持非世俗耦合，那么在不施加完全世俗近似的情况下得到的布洛赫-雷德菲尔德方程仍具有可靠的物理效力。特别是，Farina 等人 [48] 表明，当辐射场在能级劈裂的尺度上具有平滑的频谱时，引发法诺相干的非久期项不会损害正性 Δ。这一结果也已在文献 [43]中得到独立验证。此外，当 Δ 相较于输入辐射的光学频率较小时，系统跃迁的频率 ω_{ac} 和 ω_{bc} 自然与储库自相关函数的时间尺度倒数相当或更小。正如 Trushechkin [49], 所论证的，这些跃迁处于统一量子主方程（*UQME*）的适用范围内；该方程保留一簇非世俗耦合，同时对所有其他能量跃迁之间的耦合进行世俗化。这一构造得到的动力学生成元具有戈里尼-科索夫斯基-林德布拉德-苏达尔尚（GKLS）形式，能够保持完全正性并确保热力学一致性。此外，Gerry 等人 [50]表明，UQME 还满足关于热传递的量子涨落关系，从而证实了这一形式体系在物理上的合理性。最后，文献 [51]中对处于热环境下的 V 型系统所做的分析表明，对于能量跃迁间隔很近的多能级系统，保留适当的非久期项会得到特征值非负的科索夫斯基矩阵，进而得到一个可以

写成正耗散形式的 GKLS 生成元。综上，这些结果证实，保留与近简并激发态相关的干涉项的布洛赫-雷德菲尔德方程能够保持完全正性，并为 V 型系统中非相干入射辐射引发的量子相干生成提供物理描述。

3. Application of the Weisskopf-Wigner approximation

接下来，我们进一步简化布洛赫-雷德菲尔德方程 (22)。方程 (22) 右侧的第一项对应于系统动力学的相干部分，它由相互作用哈密顿量 $\hat{}H_I(t)$ 驱动。我们将此项记为 $\left.\frac{d\hat{}\rho_{S,I}}{dt}\right|_{\rm coh}(t)$。将 $\hat{}H_I(t)$ 代入 (22)，可得:

$$\begin{aligned}\left.\frac{d\hat{\rho}_{S,I}(t)}{dt}\right|_{\rm coh} &= -\frac{i}{\hbar}\mathrm{Tr}_R\left(\left[\hat{H}_I(t),\hat{\rho}_{S,I}(0)\otimes\hat{\rho}_{R,I}(0)\right]\right)\\ &= -\sum_{\lambda=1,2}\sum_{\mathbf{k}} g^a_{\mathbf{k},\lambda}e^{i(\omega_{ac}-\nu_{\mathbf{k},\lambda})t}\langle\hat{a}_{\mathbf{k},\lambda}\rangle[\hat{\sigma}^+_{ac},\hat{\rho}_{S,I}(0)]\\ &\quad -\sum_{\lambda=1,2}\sum_{\mathbf{k}} g^b_{\mathbf{k},\lambda}e^{i(\omega_{bc}-\nu_{\mathbf{k},\lambda})t}\langle\hat{a}_{\mathbf{k},\lambda}\rangle[\hat{\sigma}^+_{bc},\hat{\rho}_{S,I}(0)]+\mathrm{h.c.},\end{aligned} \tag{23}$$

其中，$\langle\hat{}a_{\mathbf{k},\lambda}\rangle \equiv \mathrm{Tr}_R\left(\hat{}a_{\mathbf{k},\lambda}\hat{}\rho_{R,I}(0)\right)$ 是相对于储库态 $\hat{}\rho_{R,I}(0)$而言的 $\hat{}a_{\mathbf{k},\lambda}$的期望值。

热储库 R 处于温度为 T 的平衡态，这意味着其各个模式分布为温度为 T 的互不相关热平衡态的混合。因此，储库态可以用以下约化密度算符 [29, 32]表示:

$$\hat{\rho}_R(0)=\prod_{\mathbf{k},\lambda}\left[1-\exp\left(-\frac{\hbar\nu_{\mathbf{k},\lambda}}{k_BT}\right)\right]\exp\left(-\frac{\hbar\nu_{\mathbf{k},\lambda}\hat{a}^\dagger_{\mathbf{k},\lambda}\hat{a}_{\mathbf{k},\lambda}}{k_BT}\right), \tag{24}$$

其中，k_B 是玻尔兹曼常数。因此，相对于 $\hat{}\rho_R(0)$ 计算得到的储库算符的期望值和关联函数如下:

$$\langle\hat{a}_{\mathbf{k},\lambda}\rangle = \langle\hat{a}^\dagger_{\mathbf{k},\lambda}\rangle = 0 \quad \forall\,\mathbf{k},\lambda \tag{25}$$

$$\langle\hat{a}^\dagger_{\mathbf{k},\lambda}\hat{a}_{\mathbf{k}',\lambda'}\rangle = \bar{n}_{\mathbf{k},\lambda}\delta_{\mathbf{k},\mathbf{k}'}\delta_{\lambda,\lambda'} \tag{26}$$

$$\langle\hat{a}_{\mathbf{k},\lambda}\hat{a}^\dagger_{\mathbf{k}',\lambda'}\rangle = (\bar{n}_{\mathbf{k},\lambda}+1)\delta_{\mathbf{k},\mathbf{k}'}\delta_{\lambda,\lambda'} \tag{27}$$

$$\langle\hat{a}_{\mathbf{k},\lambda}\hat{a}_{\mathbf{k}',\lambda'}\rangle = \langle\hat{a}^\dagger_{\mathbf{k},\lambda}\hat{a}^\dagger_{\mathbf{k}',\lambda'}\rangle = 0 \quad \forall\,\mathbf{k},\mathbf{k}',\lambda,\lambda', \tag{28}$$

其中

$$\bar{n}_{\mathbf{k},\lambda}=\frac{1}{\exp\left(\frac{\hbar\nu_{\mathbf{k},\lambda}}{k_BT}\right)-1} \tag{29}$$

是偏振为 λ的$\mathbf{k}$ 模式中的平均光子数。这些关系表明，在热平衡态下，湮灭算符和产生算符的期望值均为零（式（25））。此外，式（26）—（27）给出了平均占据数，而式（28）表明各模式之间不存在关联。式（25）意味着系统约化动力学的相干部分为零:

$$\left.\frac{d\hat{\rho}_{S,I}(t)}{dt}\right|_{\rm coh}=0. \tag{30}$$

现在来考虑式（22）右侧的第二项，它与约化动力学的非相干部分相关:

$$\left.\frac{d\hat{\rho}_{S,I}(t)}{dt}\right|_{\rm incoh}=-\frac{1}{\hbar^2}\int_0^\infty \mathrm{Tr}_R\left(\left[\hat{H}_I(t),\left[\hat{H}_I(t'),\hat{\rho}_{S,I}(t)\otimes\hat{\rho}_{R,I}(0)\right]\right]\right)dt'. \tag{31}$$

该项与系统和储库之间的相互作用有关，并会导致耗散。将式 (16) 代入式 (31)，展开双重对易子并令 $t'=t-s$ 后，可将式 (31) 简化为:

$s > \tau_R$ 根据马尔可夫近似。我们分别考察式 (31) 中的各项。第一项为:

$$-\int_0^\infty \sum_{\lambda,\lambda'}\sum_{\mathbf{k},\mathbf{k}'} g^{(l)}_{\mathbf{k},\lambda} g^{(l)}_{\mathbf{k}',\lambda'}\, e^{-i(\omega_{lc}-\nu_{\mathbf{k},\lambda})t+i(\omega_{lc}-\nu_{\mathbf{k}',\lambda'})(t-s)}\Big[\langle \hat{a}^\dagger_{\mathbf{k},\lambda}\hat{a}_{\mathbf{k}',\lambda'}\rangle\Big(\hat{\sigma}^-_{lc}\hat{\sigma}^+_{lc}\hat{\rho}_{S,I}(t)$$
$$-\sigma^+_{lc}\rho_{S,I}(t)\sigma^-_{lc}\Big) + \langle \hat{a}_{\mathbf{k}',\lambda'}\hat{a}^\dagger_{\mathbf{k}\lambda}\rangle\Big(\hat{\rho}_{S,I}(t)\hat{\sigma}^+_{lc}\hat{\sigma}^-_{lc} - \hat{\sigma}^-_{lc}\hat{\rho}_{S,I}(t)\hat{\sigma}^+_{lc}\Big)\Big]ds \tag{32}$$

与系统的跃迁 $|a\rangle \leftrightarrow |c\rangle$ 和 $l = a$ 或 $|b\rangle \leftrightarrow |c\rangle$ 和 $l = b$相关。此外，方程 (31) 中还出现了以下涉及能级 $|a\rangle$ 和 $|b\rangle$的交叉项:

$$-\int_0^\infty \sum_{\lambda,\lambda'}\sum_{\mathbf{k},\mathbf{k}'} g^{(a)}_{\mathbf{k},\lambda} g^{(b)}_{\mathbf{k}',\lambda'}\, e^{i(\omega_{ac}-\nu_{\mathbf{k},\lambda})t-i(\omega_{bc}-\nu_{\mathbf{k}',\lambda'})(t-s)}\Big[\langle \hat{a}^\dagger_{\mathbf{k}',\lambda'}\hat{a}_{\mathbf{k},\lambda}\rangle\Big(\hat{\rho}_{S,I}(t)\hat{\sigma}^-_{bc}\hat{\sigma}^+_{ac}$$
$$-\hat{\sigma}^+_{ac}\hat{\rho}_{S,I}(t)\hat{\sigma}^-_{bc}\Big) + \langle \hat{a}_{\mathbf{k},\lambda}\hat{a}^\dagger_{\mathbf{k}',\lambda'}\rangle\Big(\hat{\sigma}^+_{ac}\hat{\sigma}^-_{bc}\hat{\rho}_{S,I}(t) - \hat{\sigma}^-_{bc}\hat{\rho}_{S,I}(t)\hat{\sigma}^+_{ac}\Big)\Big]ds\,. \tag{33}$$

Henc因此，将方程 (26)-(28) 中的期望值代入后，方程 (32)-(33) 可简化为 s

$$-\int_0^\infty \sum_{\lambda=1,2}\sum_{\mathbf{k}} |g^{(l)}_{\mathbf{k},\lambda}|^2 e^{-i(\omega_{lc}-\nu_{\mathbf{k},\lambda})s}\Big[\bar{n}_{\mathbf{k},\lambda}\Big(\hat{\sigma}^-_{lc}\hat{\sigma}^+_{lc}\hat{\rho}_{S,I}(t) - \hat{\sigma}^+_{lc}\hat{\rho}_{S,I}(t)\hat{\sigma}^-_{lc}\Big)$$
$$+(\bar{n}_{\mathbf{k},\lambda}+1)\Big(\hat{\rho}_{S,I}(t)\hat{\sigma}^+_{lc}\hat{\sigma}^-_{lc} - \hat{\sigma}^-_{lc}\hat{\rho}_{S,I}(t)\hat{\sigma}^+_{lc}\Big)\Big]ds \tag{34}$$

and

$$-\int_0^\infty \sum_{\lambda=1,2}\sum_{\mathbf{k}} g^{(a)}_{\mathbf{k},\lambda} g^{(b)}_{\mathbf{k},\lambda}\, e^{i(\omega_{ac}-\nu_{\mathbf{k},\lambda})t-i(\omega_{bc}-\nu_{\mathbf{k},\lambda})(t-s)}\Big[\bar{n}_{\mathbf{k},\lambda}\Big(\hat{\rho}_{S,I}(t)\hat{\sigma}^-_{bc}\hat{\sigma}^+_{ac} - \hat{\sigma}^+_{ac}\hat{\rho}_{S,I}(t)\hat{\sigma}^-_{bc}\Big)$$
$$+(\bar{n}_{\mathbf{k},\lambda}+1)\Big(\hat{\sigma}^+_{ac}\hat{\sigma}^-_{bc}\hat{\rho}_{S,I}(t) - \hat{\sigma}^-_{bc}\hat{\rho}_{S,I}(t)\hat{\sigma}^+_{ac}\Big)\Big]ds =$$
$$= -\int_0^\infty \sum_{\lambda=1,2}\sum_{\mathbf{k}} g^{(a)}_{\mathbf{k},\lambda} g^{(b)}_{\mathbf{k},\lambda}\, e^{i\Delta t} e^{i(\omega_{bc}-\nu_{\mathbf{k},\lambda})s}\Big[\bar{n}_{\mathbf{k},\lambda}\Big(\hat{\rho}_{S,I}(t)\hat{\sigma}^-_{bc}\hat{\sigma}^+_{ac} - \hat{\sigma}^+_{ac}\hat{\rho}_{S,I}(t)\hat{\sigma}^-_{bc}\Big)$$
$$+(\bar{n}_{\mathbf{k},\lambda}+1)\Big(\hat{\sigma}^+_{ac}\hat{\sigma}^-_{bc}\hat{\rho}_{S,I}(t) - \hat{\sigma}^-_{bc}\hat{\rho}_{S,I}(t)\hat{\sigma}^+_{ac}\Big)\Big]ds\,, \tag{35}$$

其中我们利用了 $\omega_{ac} - \omega_{bc} = \Delta$。此时，可以应用 *Weisskopf-Wigner*近似 .

- **Weisskopf-Wigner近似:**
  Weisskopf-Wigner近似假设电磁场的模在频域中密集分布。该假设允许将对波矢$\mathbf{k}$的离散求和替换为对$\mathbf{k}$空间中的连续模态密度的积分 [29, 32]:

$$\sum_{\mathbf{k}} \longrightarrow \frac{V}{(2\pi)^3}\int_0^\infty d^3\mathbf{k}. \tag{36}$$

  在 Weisskopf-Wigner 框架中，自发辐射通常描述为系统与电磁真空的耦合；电磁真空在传播方向和横向偏振上均具有各向同性。这种各向同性意味着发射图样在角度上均匀，因此可以在整个三维$\mathbf{k}$空间上取连续极限。当输入的非相干辐射使吸收、受激发射和自发辐射都以相同的各向同性模态密度发生时，所有这些过程便都可以通过与单一电磁库的相互作用来有效描述。因此，可以用球坐标表示$\mathbf{k}$ ，从而计算式 (36) 中的积分：$\mathbf{k} = |\mathbf{k}|(\sin\theta\cos\ \phi, \sin\ \theta\sin\ \phi, \cos\ \theta)$，其变化范围为无穷小球体积 $d^3\mathbf{k} = |\mathbf{k}|^2 d|\mathbf{k}|\sin\ \theta d\theta d\phi$。这样，将 $|\mathbf{k}|$ 替换为 $\frac{\nu_{\mathbf{k}}}{c}$ （色散关系）后，可得:

$$\sum_{\mathbf{k}} \longrightarrow \frac{V}{(2\pi c)^3}\int_0^{2\pi} d\phi \int_0^{\pi} d\theta \sin\theta \int_0^\infty \nu^2_{\mathbf{k}} d\nu_{\mathbf{k}}. \tag{37}$$

利用式 (37)，式 (17) 中定义的谱密度变为：

$$J_l(\nu) \approx \frac{V}{(2\pi c)^3}\sum_{\lambda=1,2}\int_0^{2\pi} d\phi \int_0^{\pi} d\theta \sin\theta \int_0^{\infty} |g_{\mathbf{k},\lambda}^{(l)}|^2 \delta(\nu-n) n^2 dn$$
$$= \frac{\nu^3}{16\hbar\pi^3\varepsilon_o c^3}\sum_{\lambda=1,2}\int_0^{2\pi} d\phi \int_0^{\pi} |\mu_{lc}\cdot\epsilon_{\mathbf{k},\lambda}|^2 \sin\theta d\theta, \tag{38}$$

其中我们 同时利用了狄拉克δ函数的性质以及式（15）的定义).
在宽带非相干辐射存在的情况下，只要带宽大于激发态劈裂和弛豫时间的倒数，谱密度就可视为在系统跃迁附近局部平坦。这样，对于任意 λ，我们都可以设定条件 $\nu_{\mathbf{k},\lambda} \approx \omega_{ac}$ 和 $\approx \omega_{bc}$，对所有与跃迁能量 $|a\rangle \leftrightarrow |c\rangle$ 和 $|b\rangle \leftrightarrow |c\rangle$分别相容的 $\mathbf{k}$ 均成立。因此，由于项 ν^3 在 ω_{lc}附近缓慢变化，在式（38）中可将其替换为 ω_{lc}^3 [32, 52]，于是

$$J_l(\omega_{lc}) = \frac{\omega_{lc}^3}{16\hbar\pi^3\varepsilon_o c^3}\sum_{\lambda=1,2}\int_0^{2\pi} d\phi \int_0^{\pi} |\mu_{lc}\cdot\epsilon_{\mathbf{k},\lambda}|^2 \sin\theta d\theta. \tag{39}$$

在 Weisskopf-Wigner近似和条件 ω_{ac}，$\omega_{bc} \gg \Delta$ 下，对于任意模式 $\mathbf{k}$，都可以在平均频率 $\frac{\omega_{ac}+\omega_{bc}}{2} = \omega_{bc} + \frac{\Delta}{2} = \omega_{ac} - \frac{\Delta}{2}$ 处计算热占据数，即

$$\bar{n} = \frac{1}{\exp\left(\frac{\hbar(\omega_{ac}+\omega_{bc})}{2k_B T}\right) - 1}. \tag{40}$$

此外，为了计算式（39）中的角积分，可以将偏振矢量表示为球坐标形式 [28, 52]。按照 [26, 28, 52]，中使用的方法，$\lambda = 1,2$ 对应的偏振矢量有以下两种情况 ϵ_1, ϵ_2 ：

$$\epsilon_1 = [-\cos\theta\cos\phi, -\cos\theta\sin\phi, \sin\theta] \tag{41}$$
$$\epsilon_2 = [\sin\phi, -\cos\phi, 0], \tag{42}$$

它们满足式（6）的横向条件和式（7）的正交归一关系。因此，对任意电偶极矩 μ_{ac} 和μ_{bc}，计算标量积（$\mu_{lc}\cdot\epsilon_1$）和（$\mu_{lc}\cdot\epsilon_2$）（$l = a, b$），并对球极角 θ 和 ϕ 积分后，式（39）可简化为

$$J_l(\omega_{lc}) = \frac{\omega_{lc}^3}{16\hbar\pi^3\varepsilon_o c^3}\int_0^{2\pi} d\phi \int_0^{\pi} \sin\theta d\theta \sum_{\lambda=1,2} \left|\mu_{lc}\cdot\epsilon_{\mathbf{k},\lambda}\right|^2$$
$$= \frac{\omega_{lc}^3}{16\hbar\pi^3\varepsilon_o c^3}\frac{8}{3}\pi |\mu_{lc}|^2 = \frac{\omega_{lc}^3}{6\hbar\pi^2\varepsilon_o c^3}|\mu_{lc}|^2. \tag{43}$$

此外，交叉项 $\sqrt{J_a(\omega_{ac})J_b(\omega_{bc})}$ 变为：

$$\sqrt{J_a(\omega_{ac})J_b(\omega_{bc})} = \frac{\omega_{ac}^3}{16\hbar\pi^3\varepsilon_o c^3}\int_0^{2\pi} d\phi \int_0^{\pi} \sin\theta d\theta \sum_{\lambda=1,2} \left(\mu_{ac}\cdot\epsilon_{\mathbf{k},\lambda}\right)\left(\mu_{bc}\cdot\epsilon_{\mathbf{k},\lambda}\right)$$
$$= \frac{\omega_{ac}^3}{16\hbar\pi^3\varepsilon_o c^3}\frac{8}{3}\pi\left(\mu_{ac}\cdot\mu_{bc}\right) = \frac{\omega_{ac}^3}{6\hbar\pi^2\varepsilon_o c^3}\pi\left(\mu_{ac}\cdot\mu_{bc}\right). \tag{44}$$

相比之下，当外辐射场仅限于一部分传播方向（例如各向异性辐射）时，必须在频域中明确处理储库的模式 [27, 28]。这需要有效地区分两类模式：一类导致各向同性自发辐射，另一类分别导致各向异性吸收和受激发射。各向同性自发辐射可以通过系统与电磁真空的相互作用来建模，而各向异性吸收和受激发射则由系统与定向激发热库的相互作用来描述。因此，对于后者，对球体积元 $d^3\mathbf{k} = |\mathbf{k}|^2 d|\mathbf{k}| \sin\theta\, d\theta\, d\phi$ 的积分可化为仅对波矢大小的积分，从而得到：

$$\sum_{\mathbf{k}} \longrightarrow \frac{V}{(2\pi)^3}\int_0^{\infty} |\mathbf{k}|^2\, d|\mathbf{k}|. \tag{45}$$

相应地，与定向激发热库相关的谱密度为 $J_l(\nu) = \frac{\nu^3}{16\hbar\pi^3\varepsilon_0 c^3}\sum_{\lambda=1,2}\left|\mu_{lc}\cdot\epsilon_{\mathbf{k},\lambda}\right|^2$，其还可进一步近似为

$$J_l(\omega_{lc}) = \frac{\omega_{lc}^3}{16\hbar\pi^3\varepsilon_0 c^3}\sum_{\lambda=1,2}\left|\mu_{lc}\cdot\epsilon_{\mathbf{k},\lambda}\right|^2. \tag{46}$$

根据 Weisskopf-Wigner近似，各向异性辐射的谱带宽在原子跃迁附近是平坦的，因此式 (46) 的有效性得到了证明。请注意，与各向同性输入辐射的情况一样，相应的平均光子占据数 $\bar{n}$ 由式 (40) 给出。这是因为 $\bar{n}$ 仅取决于输入辐射的光谱特性，而与其模式波矢在空间域中的角分布无关。

在式 (34)-(35) 中应用 Weisskopf-Wigner近似后，可将其写为

$$\begin{aligned}&-\int_0^\infty\int_0^\infty J_l(\omega_{lc})e^{-i(\omega_{lc}-\nu_{\mathbf{k},\lambda})s}\Big[\bar{n}\left(\hat{\sigma}_{lc}^-\hat{\sigma}_{lc}^+\hat{\rho}_{S,I}(t)-\hat{\sigma}_{lc}^+\hat{\rho}_{S,I}(t)\hat{\sigma}_{lc}^-\right)\\&+(\bar{n}+1)\left(\hat{\rho}_{S,I}(t)\hat{\sigma}_{lc}^+\hat{\sigma}_{lc}^--\hat{\sigma}_{lc}^-\hat{\rho}_{S,I}(t)\hat{\sigma}_{lc}^+\right)\Big]d\nu_{\mathbf{k},\lambda}ds\end{aligned} \tag{47}$$

and

$$\begin{aligned}&-\int_0^\infty\int_0^\infty\sqrt{J_a(\omega_{ac})J_b(\omega_{bc})}e^{i\Delta t}e^{i(\omega_{bc}-\nu_{\mathbf{k},\lambda})s}\Big[\bar{n}\left(\hat{\rho}_{S,I}(t)\hat{\sigma}_{bc}^-\hat{\sigma}_{ac}^+-\hat{\sigma}_{ac}^+\hat{\rho}_{S,I}(t)\hat{\sigma}_{bc}^-\right)\\&+(\bar{n}+1)\left(\hat{\sigma}_{ac}^+\hat{\sigma}_{bc}^-\hat{\rho}_{S,I}(t)-\hat{\sigma}_{bc}^-\hat{\rho}_{S,I}(t)\hat{\sigma}_{ac}^+\right)\Big]d\nu_{\mathbf{k},\lambda}ds\,.\end{aligned} \tag{48}$$

请注意，当 $\nu_{\mathbf{k},\,\lambda}\neq\omega_{lc}$时，式 (47)-(48) 中的指数项 $e^{i(\omega_{lc}-\nu_{\mathbf{k},\lambda})s}$ 会快速振荡。根据 Weisskopf-Wigner近似，只有接近系统跃迁频率的频率模式才相关。代入以下积分计算结果后，式 (47)-(48) 还可进一步简化：

$$\int_0^\infty e^{-i(\omega_{lc}-\nu_{\mathbf{k},\lambda})s}d\nu_{\mathbf{k},\lambda} = e^{-i\omega_{lc}s}\int_0^\infty e^{i\nu_{\mathbf{k},\lambda}s}d\nu_{\mathbf{k},\lambda} = e^{-i\omega_{lc}s}\left(\pi\delta(s)+i\mathbb{P}\frac{1}{s}\right) \tag{49}$$

and

$$\int_0^\infty e^{i\Delta t}e^{i(\omega_{bc}-\nu_{\mathbf{k},\lambda})s}d\nu_{\mathbf{k},\lambda} = e^{i\Delta t}e^{i\omega_{bc}s}\int_0^\infty e^{-i\nu_{\mathbf{k},\lambda}s}d\nu_{\mathbf{k},\lambda} = e^{i\Delta t}e^{i\omega_{bc}s}\left(\pi\delta(s)-i\mathbb{P}\frac{1}{s}\right), \tag{50}$$

w这里我们利用了狄拉克δ函数的单边傅里叶变换，即，

$$\int_0^\infty e^{\pm i\nu s}d\nu \equiv \pi\delta(s)\pm i\mathbb{P}\frac{1}{s}. \tag{51}$$

P 表示积分的柯西主值，它通过对 $s=0$ 处奇点导致的积分发散进行正则化。该项会产生兰姆位移效应，其源于系统与电磁场真空涨落之间的相互作用。这种效应会使系统的能级发生微小偏移 [29, 43]。正如参考文献 [19, 24, 28]，中也讨论的那样，在我们的分析中可以忽略兰姆位移项，因为对于较弱的系统-辐射耦合，该项可以忽略不计，远小于系统的跃迁频率。

将表达式 (49) 和 (50) 代入方程 (47)-(48)，得到：

$$-\pi J_l(\omega_{lc})\int_0^\infty e^{-i\omega_{lc}s}\Big[\bar{n}\left(\hat{\sigma}_{lc}^-\hat{\sigma}_{lc}^+\hat{\rho}_{S,I}(t)-\hat{\sigma}_{lc}^+\hat{\rho}_{S,I}(t)\hat{\sigma}_{lc}^-\right)+(\bar{n}+1)\left(\hat{\rho}_{S,I}(t)\hat{\sigma}_{lc}^+\hat{\sigma}_{lc}^--\hat{\sigma}_{lc}^-\hat{\rho}_{S,I}(t)\hat{\sigma}_{lc}^+\right)\Big]\delta(s)ds \tag{52}$$

其中 $l=a,\ b$，以及

$$\begin{aligned}&-\pi\sqrt{J_a(\omega_{ac})J_b(\omega_{bc})}\int_0^\infty e^{i\Delta t}e^{i\omega_{bc}s}\Big[\bar{n}\left(\hat{\rho}_{S,I}(t)\hat{\sigma}_{bc}^-\hat{\sigma}_{ac}^+-\hat{\sigma}_{ac}^+\hat{\rho}_{S,I}(t)\hat{\sigma}_{bc}^-\right)\\&+(\bar{n}+1)\left(\hat{\sigma}_{ac}^+\hat{\sigma}_{bc}^-\hat{\rho}_{S,I}(t)-\hat{\sigma}_{bc}^-\hat{\rho}_{S,I}(t)\hat{\sigma}_{ac}^+\right)\Big]\delta(s)ds\,.\end{aligned} \tag{53}$$

通过计算积分，这些项等于

$$-\pi J(\omega_{lc})\Big[\bar{n}\left(\hat{\sigma}_{lc}^-\hat{\sigma}_{lc}^+\hat{\rho}_{S,I}(t)-\hat{\sigma}_{lc}^+\hat{\rho}_{S,I}(t)\hat{\sigma}_{lc}^-\right)+(\bar{n}+1)\left(\hat{\rho}_{S,I}(t)\hat{\sigma}_{lc}^+\hat{\sigma}_{lc}^--\hat{\sigma}_{lc}^-\hat{\rho}_{S,I}(t)\hat{\sigma}_{lc}^+\right)\Big] \tag{54}$$

and

$$-\pi\sqrt{J(\omega_{ac})J(\omega_{bc})}e^{i\Delta t}\Big[\bar{n}\left(\hat{\rho}_{S,I}(t)\hat{\sigma}_{bc}^-\hat{\sigma}_{ac}^+-\hat{\sigma}_{ac}^+\hat{\rho}_{S,I}(t)\hat{\sigma}_{bc}^-\right)+(\bar{n}+1)\left(\hat{\sigma}_{ac}^+\hat{\sigma}_{bc}^-\hat{\rho}_{S,I}(t)-\hat{\sigma}_{bc}^-\hat{\rho}_{S,I}(t)\hat{\sigma}_{ac}^+\right)\Big]. \tag{55}$$

4. Application of the partial secular approximation

式（55）包含频率为 Δ的振荡分量。如果系统的两个激发态近乎简并，那么振荡周期 $1/\Delta$ 可能超过系统的特征时间尺度。在这种情况下，频率为 Δ 的振荡分量不能被平均掉，以免忽略系统动力学中涉及的相关干涉效应。采用部分世俗近似 可确保满足这一条件。

- **部分世俗近似：**
  部分世俗近似保留所有以 Δ 量级频率振荡的项，同时对以光学频率 ω_{ac} 和 ω_{bc} 振荡的项取平均。该方法广泛用于研究非相干辐射引发的相干性生成 [19, 27, 30, 45, 46], ，并保留了两条辐射跃迁路径之间的干涉：从激发态跃迁至基态，以及从基态跃迁至激发态。

  采用这一近似的依据是近简并条件 $\Delta \ll \omega_{ac}$， ω_{bc}。例如，对于满足 ω_{ac}， $\omega_{bc} \sim 100$ THz 的光学跃迁，该条件通常能够很好地满足。在部分世俗近似下，与 $e^{\pm i\omega_{ac}t}$ 和 $e^{\pm i\omega_{bc}t}$ 成正比的快速振荡项会在系统的时间尺度上取平均而消失，而以 $e^{\pm i\Delta t}$ 振荡的项演化较慢，必须予以保留。此外，由于 $\Delta \ll \omega_{ac}$， ω_{bc}，对于任意 t，我们可以令 $e^{i\Delta t} \approx 1$ 。

应用部分世俗近似后，交叉项 (55) 变为：

$$-\pi\sqrt{J_a(\omega_{ac})J_b(\omega_{ac})}\Big[\bar{n}\left(\hat{\rho}_{S,I}(t)\hat{\sigma}^-_{bc}\hat{\sigma}^+_{ac} - \hat{\sigma}^+_{ac}\hat{\rho}_{S,I}(t)\hat{\sigma}^-_{bc}\right) + (\bar{n}+1)\left(\hat{\sigma}^+_{ac}\hat{\sigma}^-_{bc}\hat{\rho}_{S,I}(t) - \hat{\sigma}^-_{bc}\hat{\rho}_{S,I}(t)\hat{\sigma}^+_{ac}\right)\Big]. \tag{56}$$

5. Isotropic incoherent radiation field

现在给出量子系统与各向同性非相干辐射相互作用时的主方程表达式。为此，我们将方程 (54)–(56) 代入 Born-Redfield方程 (22)，得到：

$$\begin{aligned}
&\frac{d\hat{\rho}_{S,I}(t)}{dt} = \frac{d\hat{\rho}_{S,I}(t)}{dt}\Big|_{\text{incoh}} = \\
&-\pi J_a(\omega_{ac})\Big[\bar{n}\big(\hat{\sigma}^-_{ac}\hat{\sigma}^+_{ac}\hat{\rho}_{S,I}(t) - \hat{\sigma}^+_{ac}\hat{\rho}_{S,I}(t)\hat{\sigma}^-_{ac}\big) + (\bar{n}+1)\big(\hat{\rho}_{S,I}(t)\hat{\sigma}^+_{ac}\hat{\sigma}^-_{ac} + -\hat{\sigma}^-_{ac}\hat{\rho}_{S,I}(t)\hat{\sigma}^+_{ac}\big)\Big] \\
&-\pi J_b(\omega_{ac})\Big[\bar{n}\big(\hat{\sigma}^-_{bc}\hat{\sigma}^+_{bc}\hat{\rho}_{S,I}(t) - \hat{\sigma}^+_{bc}\hat{\rho}_{S,I}(t)\hat{\sigma}^-_{bc}\big) + (\bar{n}+1)\big(\hat{\rho}_{S,I}(t)\hat{\sigma}^+_{bc}\hat{\sigma}^-_{bc} - \hat{\sigma}^-_{bc}\hat{\rho}_{S,I}(t)\hat{\sigma}^+_{bc}\big)\Big] \\
&-\pi\sqrt{J_a(\omega_{ac})J_b(\omega_{ac})}\bar{n}\big(\hat{\rho}_{S,I}(t)\hat{\sigma}^-_{bc}\hat{\sigma}^+_{ac} - \hat{\sigma}^+_{ac}\hat{\rho}_{S,I}(t)\hat{\sigma}^-_{bc}\big) \\
&-\pi\sqrt{J_a(\omega_{ac})J_b(\omega_{ac})}(\bar{n}+1)\big(\hat{\sigma}^+_{ac}\hat{\sigma}^-_{bc}\hat{\rho}_{S,I}(t) - \hat{\sigma}^-_{bc}\hat{\rho}_{S,I}(t)\hat{\sigma}^+_{ac}\big) \\
&-\pi\sqrt{J_a(\omega_{ac})J_b(\omega_{ac})}\bar{n}\big(\hat{\rho}_{S,I}(t)\hat{\sigma}^-_{ac}\hat{\sigma}^+_{bc} - \hat{\sigma}^+_{bc}\hat{\rho}_{S,I}(t)\hat{\sigma}^-_{ac}\big) \\
&-\pi\sqrt{J_a(\omega_{ac})J_b(\omega_{ac})}(\bar{n}+1)\big(\hat{\sigma}^+_{bc}\hat{\sigma}^-_{ac}\hat{\rho}_{S,I}(t) - \hat{\sigma}^-_{ac}\hat{\rho}_{S,I}(t)\hat{\sigma}^+_{bc}\big)\Big] + \text{h.c.},
\end{aligned} \tag{57}$$

其中， $J_l(\omega_{lc})$ $(l = a, b)$ 和 $\sqrt{J_a(\omega_{ac})J_b(\omega_{ac})}$ 分别由方程 (43)–(44) 给出。各向同性（且非偏振）的非相干场相互作用也已在文献 [18–20,23–26] 中进行过分析。

由于量子相干项（最后四行），主方程 (57) 偏离了标准 GKLS 形式；这些项源于两条光学跃迁路径之间的干涉。正如第 IIB2 小节所讨论的，这类非久期项并不一定会损害完全正性，前提是 (i) 它们涉及一组近简并跃迁，且 (ii) 辐射谱在激发态劈裂 [43, 48] 的尺度上足够平坦。本文报告的量子建模涵盖了 Trushechkin 分析的频率聚类区域 [49]。Jeske 等人 [45], 进一步为完全正性提供了支持：他们证明，在这一近简并极限下，Bloch-Redfield生成元会化为简并Lindblad生成元，其耗散子具有正Kossakowski表示。对于 V型量子系统这一特定情形，文献 [51] 证实了这一结论。

与先前对噪声诱导法诺相干的分析相一致 [18, 25, 27], ，我们还观察到，部分久期布洛赫-雷德菲尔德方程（57）在与V型原子系统中量子相干生成相关的参数范围内始终保持正性；另见下文第IIIA小节。

6. *Anisotropic and polarized incoherent radiation field*

现在让我们考虑一个各向异性且偏振的非相干入射辐射场。各向异性会影响非相干抽运项，从而影响吸收和受激发射过程。自发辐射仍保持各向同性，因为它主要受系统与真空电磁涨落耦合的支配，而真空电磁涨落在自由空间中是各向同性的。遵循Dodin等人 [27]所引入、并已在第II B 3小节中讨论过的方法，这一物理情形可通过将系统描述为与两个不同的热（光子）储库相互作用来有效建模：（i）负责自发衰变过程的各向同性真空储库，以及（ii）主要驱动吸收和受激发射的定向激发热库。利用这一表述，式（54）–（56）中的耗散项被改写为各向同性和各向异性贡献之和。对于对角项，可得：

$$-\pi J_{l,\mathrm{iso}}(\omega_{lc})\Big[\bar{n}_{\mathrm{iso}}\left(\hat{\sigma}_{lc}^{-}\hat{\sigma}_{lc}^{+}\hat{\rho}_{S,I}(t)-\hat{\sigma}_{lc}^{+}\hat{\rho}_{S,I}(t)\hat{\sigma}_{lc}^{-}\right)+(\bar{n}_{\mathrm{iso}}+1)\left(\hat{\rho}_{S,I}(t)\hat{\sigma}_{lc}^{+}\hat{\sigma}_{lc}^{-}-\hat{\sigma}_{lc}^{-}\hat{\rho}_{S,I}(t)\hat{\sigma}_{lc}^{+}\right)\Big] \tag{58}$$

and

$$-\pi J_{l,\mathrm{anis}}(\omega_{lc})\Big[\bar{n}_{\mathrm{anis}}\left(\hat{\sigma}_{lc}^{-}\hat{\sigma}_{lc}^{+}\hat{\rho}_{S,I}(t)-\hat{\sigma}_{lc}^{+}\hat{\rho}_{S,I}(t)\hat{\sigma}_{lc}^{-}\right)+(\bar{n}_{\mathrm{anis}}+1)\left(\hat{\rho}_{S,I}(t)\hat{\sigma}_{lc}^{+}\hat{\sigma}_{lc}^{-}-\hat{\sigma}_{lc}^{-}\hat{\rho}_{S,I}(t)\hat{\sigma}_{lc}^{+}\right)\Big]. \tag{59}$$

相反，交叉项的形式为

$$\begin{aligned}&-\pi\sqrt{J_{a,\mathrm{iso}}(\omega_{ac})J_{b,\mathrm{iso}}(\omega_{ac})}\Big[\bar{n}_{\mathrm{iso}}\left(\hat{\rho}_{S,I}(t)\hat{\sigma}_{bc}^{-}\hat{\sigma}_{ac}^{+}-\hat{\sigma}_{ac}^{+}\hat{\rho}_{S,I}(t)\hat{\sigma}_{bc}^{-}\right)\\&+(\bar{n}_{\mathrm{iso}}+1)\left(\hat{\sigma}_{ac}^{+}\hat{\sigma}_{bc}^{-}\hat{\rho}_{S,I}(t)-\hat{\sigma}_{bc}^{-}\hat{\rho}_{S,I}(t)\hat{\sigma}_{ac}^{+}\right)\Big]\end{aligned} \tag{60}$$

and

$$\begin{aligned}&-\pi\sqrt{J_{a,\mathrm{anis}}(\omega_{ac})J_{b,\mathrm{anis}}(\omega_{ac})}\Big[\bar{n}_{\mathrm{anis}}\left(\hat{\rho}_{S,I}(t)\hat{\sigma}_{bc}^{-}\hat{\sigma}_{ac}^{+}-\hat{\sigma}_{ac}^{+}\hat{\rho}_{S,I}(t)\hat{\sigma}_{bc}^{-}\right)\\&+(\bar{n}_{\mathrm{anis}}+1)\left(\hat{\sigma}_{ac}^{+}\hat{\sigma}_{bc}^{-}\hat{\rho}_{S,I}(t)-\hat{\sigma}_{bc}^{-}\hat{\rho}_{S,I}(t)\hat{\sigma}_{ac}^{+}\right)\Big].\end{aligned} \tag{61}$$

在式 (58)–(61) 中，标签‘iso’和‘anis’分别表示与各向同性真空储库和定向激发储库的相互作用。与各向同性储库相关的谱密度为

$$J_{l,\mathrm{iso}}(\omega_{lc})=\frac{\omega_{lc}^{3}}{6\hbar\pi^{2}\varepsilon_{o}c^{3}}\left|\mu_{lc}\right|^{2}, \tag{62}$$

我们已在式 (43) 中推导出该结果。相反，项 $\sqrt{J_{a,\mathrm{iso}}(\omega_{ac})J_{b,\mathrm{iso}}(\omega_{ac})}$ 由以下关系确定：

$$\sqrt{J_{a,\mathrm{iso}}(\omega_{ac})J_{b,\mathrm{iso}}(\omega_{bc})}=\frac{\omega_{ac}^{3}}{6\hbar\pi^{2}\varepsilon_{o}c^{3}}\pi\left(\mu_{ac}\cdot\mu_{bc}\right); \tag{63}$$

另见式 (44)。此外，定向激发储库的谱密度为

$$J_{l,\mathrm{anis}}(\omega_{lc})=\frac{\omega_{lc}^{3}}{16\hbar\pi^{3}\varepsilon_{0}c^{3}}\sum_{\lambda=1,2}\left|\mu_{lc}\cdot\epsilon_{\mathbf{k},\lambda}\right|^{2}, \tag{64}$$

一致　　与式（46）一致，反映了驱动场模式受限的角度范围　　.

另一方面，与两个有效储库相关的平均光子占据数 $\bar{n}_{\mathrm{iso}}$ 和 $\bar{n}_{\mathrm{anis}}$ 在形式上表示为：

$$\bar{n}_{\mathrm{iso}}=\frac{1}{\exp\left(\frac{\hbar(\omega_{ac}+\omega_{bc})}{2k_{B}T_{\mathrm{iso}}}\right)-1} \tag{65}$$

and

$$\bar{n}_{\mathrm{anis}}=\frac{1}{\exp\left(\frac{\hbar(\omega_{ac}+\omega_{bc})}{2k_{B}T_{\mathrm{anis}}}\right)-1}. \tag{66}$$

由于各向同性储库被建模为温度为 $T_{\rm iso}=0$ K 的真空储库，因此我们可以令 $\bar{n}_{\rm iso}=0$。这一选择源于需要模拟与热储库的相互作用，该相互作用仅导致自发辐射过程。相比之下，定向激发储库会导致吸收和受激发射过程，其温度为有限值 $T_{\rm anis}>0$ K，因此有 $\bar{n}_{\rm anis}>0$。下文中，我们将记作 $\bar{n}_{\rm anis}\equiv\bar{n}$，因为这是一项唯一负责非相干泵浦的项。

尽管原则上允许有限温度下向定向储库模式自发辐射，但其对应的衰减率远小于真空（零温储库）诱导的自发衰减率。这是因为，与各向异性偏振非相干场相互作用所形成的定向储库模式，其张成的角相空间受到限制。因此，我们将忽略这部分自发辐射贡献。此外，在最大各向异性的极限情形下（将在下文讨论），外部辐射仅具有一个传播方向和固定偏振，此时系统与有限温度有效储库的耦合强度远弱于其与真空的耦合强度；这会影响相应的谱密度。正如我们将在后续章节中展示的，最大各向异性是稳态法诺相干得以出现的关键条件。

现在有必要指定辐射场的偏振矢量 $\epsilon_{\mathbf{k},\lambda}$。不失一般性，我们考虑偏振方向沿 x 轴的线偏振非相干场。因此，相应的单位偏振矢量为

$$\epsilon_{\mathbf{k},\lambda}=\epsilon_x=[1,0,0]\,. \tag{67}$$

将式（67）代入式（64）中各向异性谱密度的表达式$J_{l,}$

$\omega_{lc}^3|\mu_{lc}\cdot\epsilon_x|^2/16\hbar\pi^3\varepsilon_0c^3$ $J_{l\ \rm iso}\ \omega_{lc}$ $J_{l\ \rm anis}\ \omega_{lc}$ 58 61 $^{\rm anis}\ \omega_{lc}$ =，可得 $J_{l,}(\,)$。将,( ) 和,( ) 的表达式代入式（ ）–（ ），即可得到系统的主方程。具体而言，有：

$$\begin{aligned}&\frac{\omega_{lc}^3|\mu_{lc}\cdot\epsilon_x|^2}{16\hbar\pi^2\varepsilon_0c^3}\Big[\bar{n}\left(\hat{\sigma}_{ac}^-\hat{\sigma}_{ac}^+\hat{\rho}_S(t)-\hat{\sigma}_{ac}^+\hat{\rho}_S(t)\hat{\sigma}_{ac}^-\right)+\bar{n}\left(\hat{\rho}_S(t)\hat{\sigma}_{ac}^+\hat{\sigma}_{ac}^--\hat{\sigma}_{ac}^-\hat{\rho}_S(t)\hat{\sigma}_{ac}^+\right)\Big]\\&+\frac{\omega_{lc}^3|\mu_{lc}|^2}{6\hbar\pi\varepsilon_0c^3}\left(\hat{\rho}_S(t)\hat{\sigma}_{ac}^+\hat{\sigma}_{ac}^--\hat{\sigma}_{ac}^-\hat{\rho}_S(t)\hat{\sigma}_{ac}^+\right),\end{aligned} \tag{68}$$

这是主方程中可归因于对角（布居）项的贡献。式（68）的第一行描述了与各向异性辐射储库相互作用所诱发的吸收和受激发射过程，而第二行则描述了与各向同性真空储库耦合所产生的自发辐射。至于系统主方程中的相干生成交叉项，我们得到：

$$\begin{aligned}&\frac{\omega_{ac}^3\left(\mu_{ac}\cdot\epsilon_x\right)\left(\mu_{bc}\cdot\epsilon_x\right)}{16\hbar\pi^2\varepsilon_0c^3}\Big[\bar{n}\left(\hat{\rho}_S(t)\hat{\sigma}_{bc}^-\hat{\sigma}_{ac}^+-\hat{\sigma}_{ac}^+\hat{\rho}_S(t)\hat{\sigma}_{bc}^-\right)\\&+\bar{n}\left(\hat{\sigma}_{ac}^+\hat{\sigma}_{bc}^-\hat{\rho}_S(t)-\hat{\sigma}_{bc}^-\hat{\rho}_S(t)\hat{\sigma}_{ac}^+\right)\Big]+\frac{\omega_{ac}^3\left(\mu_{ac}\cdot\mu_{bc}\right)}{6\hbar\pi\varepsilon_0c^3}\left(\hat{\sigma}_{ac}^+\hat{\sigma}_{bc}^-\hat{\rho}_S(t)-\hat{\sigma}_{bc}^-\hat{\rho}_S(t)\hat{\sigma}_{ac}^+\right),\end{aligned} \tag{69}$$

其中，与前文相同，方括号内方程的第一项源自各向异性驱动场，而第二项则决定了各向同性自发辐射。

总之，系统与各向异性偏振非相干辐射场相互作用的主方程具有如下形式：

$$\begin{aligned}&\frac{d\hat{\rho}_{S,I}(t)}{dt}=\left.\frac{d\hat{\rho}_{S,I}(t)}{dt}\right|_{\rm incoh}=\\&-\frac{1}{2}\Big[\gamma_a^{\rm pol}\bar{n}\big(\hat{\sigma}_{ac}^-\hat{\sigma}_{ac}^+\hat{\rho}_{S,I}(t)-\hat{\sigma}_{ac}^+\hat{\rho}_{S,I}(t)\hat{\sigma}_{ac}^-\big)+(\gamma_a^{\rm pol}\bar{n}+\gamma_a^{\rm iso})\big(\hat{\rho}_{S,I}(t)\hat{\sigma}_{ac}^+\hat{\sigma}_{ac}^-+-\hat{\sigma}_{ac}^-\hat{\rho}_{S,I}(t)\hat{\sigma}_{ac}^+\big)\Big]\\&-\frac{1}{2}\Big[\gamma_b^{\rm pol}\bar{n}\big(\hat{\sigma}_{bc}^-\hat{\sigma}_{bc}^+\hat{\rho}_{S,I}(t)-\hat{\sigma}_{bc}^+\hat{\rho}_{S,I}(t)\hat{\sigma}_{bc}^-\big)+(\gamma_b^{\rm pol}\bar{n}+\gamma_b^{\rm iso})\big(\hat{\rho}_{S,I}(t)\hat{\sigma}_{bc}^+\hat{\sigma}_{bc}^--\hat{\sigma}_{bc}^-\hat{\rho}_{S,I}(t)\hat{\sigma}_{bc}^+\big)\Big]\\&-\frac{1}{2}\sqrt{\gamma_a^{\rm pol}\gamma_b^{\rm pol}}\bar{n}\big(\hat{\rho}_{S,I}(t)\hat{\sigma}_{bc}^-\hat{\sigma}_{ac}^+-\hat{\sigma}_{ac}^+\hat{\rho}_{S,I}(t)\hat{\sigma}_{bc}^-\big)\\&-\frac{1}{2}\left(\sqrt{\gamma_a^{\rm pol}\gamma_b^{\rm pol}}\bar{n}+p\sqrt{\gamma_a^{\rm iso}\gamma_b^{\rm iso}}\right)\big(\hat{\sigma}_{ac}^+\hat{\sigma}_{bc}^-\hat{\rho}_{S,I}(t)-\hat{\sigma}_{bc}^-\hat{\rho}_{S,I}(t)\hat{\sigma}_{ac}^+\big)\\&-\frac{1}{2}\sqrt{\gamma_a^{\rm pol}\gamma_b^{\rm pol}}\bar{n}\big(\hat{\rho}_{S,I}(t)\hat{\sigma}_{ac}^-\hat{\sigma}_{bc}^+-\hat{\sigma}_{bc}^+\hat{\rho}_{S,I}(t)\hat{\sigma}_{ac}^-\big)\\&-\frac{1}{2}\left(\sqrt{\gamma_a^{\rm pol}\gamma_b^{\rm pol}}\bar{n}+p\sqrt{\gamma_a^{\rm iso}\gamma_b^{\rm iso}}\right)\big(\hat{\sigma}_{bc}^+\hat{\sigma}_{ac}^-\hat{\rho}_{S,I}(t)-\hat{\sigma}_{ac}^-\hat{\rho}_{S,I}(t)\hat{\sigma}_{bc}^+\big)+\text{h.c.}.\end{aligned} \tag{70}$$

其中使用了以下定义：

$$\gamma_l^{\rm iso} \equiv \frac{\omega_{lc}^3 \left|\mu_{lc}\right|^2}{3\hbar\pi\varepsilon_0 c^3} \tag{71}$$

$$p \equiv \frac{\mu_{ac}\cdot\mu_{bc}}{\left|\mu_{ac}\right|\left|\mu_{bc}\right|} = \cos(\Theta) \tag{72}$$

$$\gamma_l^{\rm pol} \equiv \frac{\omega_{lc}^3 |\mu_{lc}\cdot\epsilon_x|^2}{8\hbar\pi^2\varepsilon_0 c^3}. \tag{73}$$

量 $\gamma_l^{\rm iso}$表示激发态 $|l\rangle$ ($l = a,\ b$)到共同基态 $|c\rangle$的自发衰减率。参数 p 是能量跃迁的偶极矩矢量 μ_{ac} 与 μ_{bc} 之间的取向参数，并由它们之间的角度 Θ 唯一确定。 p 的取值范围为 -1到$+1$，其中 $p = +1$ 表示偶极子 μ_{ac} 与 μ_{bc} 平行，$p = -1$ 表示它们反平行，而 $p = 0$

表示它们彼此正交。当 $p = 0$时，与 p成正比的干涉项

$\gamma_a^{\rm iso}\gamma_b^{\rm iso}$消失。最后，量 $r_l^{\rm pol} \equiv \bar{n}\gamma_l^{\rm pol}$ 描述偏振输入场驱动的吸收和受激发射所对应的非相干泵浦速率。

最后，我们通过添加哈密顿量，在薛定谔绘景中推导$\hat{\rho}_S(t)$的运动方程

三能级系统在$\rho_S(t)$微分方程的相干部分中的H_S。这需要求解该微分方程

$$\begin{aligned}\frac{d\hat{\rho}_S(t)}{dt} &= -\frac{i}{\hbar}\mathrm{Tr}_R\left[\hat{H}_I(t) + \hat{H}_S\otimes\hat{I}_R, \hat{\rho}_S(0)\otimes\hat{\rho}_R(0)\right] \\ &- \frac{1}{\hbar^2}\int_0^t \mathrm{Tr}_R\left[\hat{H}_I(t), \left[\hat{H}_I(t'), \hat{\rho}_S(t')\otimes\hat{\rho}_R(0)\right]\right]dt',\end{aligned} \tag{74}$$

其中，$\hat{}\ I_R$ 表示定义在储库希尔伯特空间中的恒等算符。这样，将$\hat{}\rho_S(t)$按其元素 $\langle l|\hat{}\rho_S(t)|j\rangle \equiv \rho_{lj}(t)$展开，其中 $l,\ j = a,\ b,\ c$，即可得到每个 $\rho_{lj}(t)$对应的微分方程组：

$$\begin{cases}
\frac{d\rho_{aa}(t)}{dt} = -\left(\gamma_a^{\rm pol}\bar{n} + \gamma_a^{\rm iso}\right)\rho_{aa}(t) + \gamma_a^{\rm pol}\bar{n}\rho_{cc}(t) - \left(\sqrt{\gamma_a^{\rm pol}\gamma_b^{\rm pol}}\bar{n} + p\sqrt{\gamma_a^{\rm iso}\gamma_b^{\rm iso}}\right)\mathrm{Re}[\rho_{\rm ab}(t)] \\
\frac{d\rho_{bb}(t)}{dt} = -\left(\gamma_b^{\rm pol}\bar{n} + \gamma_b^{\rm iso}\right)\rho_{bb}(t) + \gamma_b^{\rm pol}\bar{n}\rho_{cc}(t) - \left(\sqrt{\gamma_a^{\rm pol}\gamma_b^{\rm pol}}\bar{n} + p\sqrt{\gamma_a^{\rm iso}\gamma_b^{\rm iso}}\right)\mathrm{Re}[\rho_{\rm ab}(t)] \\
\frac{d\rho_{cc}(t)}{dt} = -\left(\gamma_a^{\rm pol} + \gamma_b^{\rm pol}\right)\bar{n}\rho_{cc}(t) + \bar{n}\left(\gamma_a^{\rm pol}\rho_{aa}(t) + \gamma_b^{\rm pol}\rho_{bb}(t)\right) + \left(\gamma_a^{\rm iso}\rho_{aa}(t) + \gamma_b^{\rm iso}\rho_{bb}(t)\right) \\
\qquad\qquad + 2\left(\sqrt{\gamma_a^{\rm pol}\gamma_b^{\rm pol}}\bar{n} + p\sqrt{\gamma_a^{\rm iso}\gamma_b^{\rm iso}}\right)\mathrm{Re}[\rho_{\rm ab}(t)] \\
\frac{d\rho_{ab}(t)}{dt} = -\frac{1}{2}\left(\sqrt{\gamma_a^{\rm pol}\gamma_b^{\rm pol}}\bar{n} + p\sqrt{\gamma_a^{\rm iso}\gamma_b^{\rm iso}}\right)\left(\rho_{aa}(t) + \rho_{bb}(t)\right) + \sqrt{\gamma_a^{\rm pol}\gamma_b^{\rm pol}}\bar{n}\rho_{cc}(t) \\
\qquad\qquad - \left[\frac{\gamma_a^{\rm pol} + \gamma_b^{\rm pol}}{2}\bar{n} + \frac{\gamma_a^{\rm iso} + \gamma_b^{\rm iso}}{2} + i\Delta\right]\rho_{ab}(t),
\end{cases} \tag{75}$$

以及

$$\begin{cases}
\frac{d\rho_{ac}(t)}{dt} = -\frac{1}{2}\left(\sqrt{\gamma_a^{\rm pol}\gamma_b^{\rm pol}}\bar{n} + p\sqrt{\gamma_a^{\rm iso}\gamma_b^{\rm iso}}\right)\rho_{bc}(t) - \left[\frac{\gamma_b^{\rm pol}}{2}\bar{n} + \gamma_a^{\rm pol}\bar{n} + \frac{\gamma_a^{\rm iso}}{2} + i\frac{\omega_{ac}}{2}\right]\rho_{ac}(t) \\
\frac{d\rho_{bc}(t)}{dt} = -\frac{1}{2}\left(\sqrt{\gamma_a^{\rm pol}\gamma_b^{\rm pol}}\bar{n} + p\sqrt{\gamma_a^{\rm iso}\gamma_b^{\rm iso}}\right)\rho_{ac}(t) - \left[\frac{\gamma_a^{\rm pol}}{2}\bar{n} + \gamma_b^{\rm pol}\bar{n} + \frac{\gamma_b^{\rm iso}}{2} + i\frac{\omega_{bc}}{2}\right]\rho_{bc}(t).
\end{cases} \tag{76}$$

式（75）—（76）对应于量子系统 [47] 的两个相互独立的动力学子过程。式（75）描述了V型系统中两个近简并激发态 $|a\rangle$ 和 $|b\rangle$ 之间布居数与相干性的时间演化。这种相干性源于连接每个激发能级与共同基态 $|c\rangle$ 的辐射跃迁路径之间的干涉，该过程既发生在吸收过程中，也发生在自发发射或受激发射过程中（见图1）。尽管直接光学跃迁 $|a\rangle \leftrightarrow |b\rangle$ 属于偶极禁戒跃迁，但由于它们与 $|c\rangle$ 的共同耦合，仍可间接地产生相干性。当辐射场具有足够宽的带宽，使其谱宽超过激发态劈裂时，跃迁 $|a\rangle \leftrightarrow |c\rangle$ 和 $|b\rangle \leftrightarrow |c\rangle$ 将变得无法区分。因此，环境无法确定究竟涉及哪一个激发或衰减通道，从而导致两个光学通道之间发生干涉，并使法诺相干得以产生。相比之下，子过程（76）给出了单光子相干性 ρ_{ac} 和 ρ_{bc} 的时间演化；这些相干性与

布居动力学相解耦。这种解耦源于部分世俗近似：在保留以激发态劈裂 Δ [26, 28] 为频率的振荡项的同时，将光学跃迁频率处的快速振荡平均掉。

尽管方程 (75)–(76) 的形式结构与各向同性辐射下得到的结果类似（参见文献 [19,20, 23, 26]），但当前配置涉及两个不同的储库，其特征速率分别为 $\gamma_l^{\rm pol}$ 和 $\gamma_l^{\rm iso}$。波矢为 $\mathbf{k}$ 且偏振为 ϵ_x 的场模子集构成一个有效的热储库（$T_{\rm anis} > 0K$），驱动吸收和受激发射；其余场模则构成冷储库（$T_{\rm iso} = 0K$），负责自发衰变，正如前文所述 [27]。当 $\gamma_l^{\rm iso} \neq 0$ 时，V型系统实际上是<早点 id='12'>开放的，因为自发辐射可能布居所选三能级系统之外的场模或能级。从物理上看，偏振激发场只选择一组有限的辐射模式（因此也只涉及部分允许跃迁），而选择定则所允许、但驱动配置未涉及的其余自发辐射通道，则由 $\gamma_l^{\rm iso}$描述。在原子的实验实现中（另见第 III A 小节），可通过使布居在塞曼子能级之间重新分布的机制，减轻目标 V 型流形中的布居损失。例如，在存在横向磁场时，$F = 1$ 流形内的塞曼进动会引起磁子能级之间的布居混合，从而重新布居由 V 型系统张成的子空间，并在所关注的时间尺度内有效恢复闭系统行为。

为说明这些概念，我们现在考虑一个具有物理相关性的例子：选取与能量跃迁 $|a\rangle \leftrightarrow |c\rangle$ 和 $|b\rangle \leftrightarrow |c\rangle$相关联的两个特定偶极矩矢量 μ_{ac} 和 μ_{bc}。我们假设这些跃迁与在 x-y 平面内、沿 z 轴传播的圆偏振辐射耦合，这是原子系统中的常见构型。左旋和右旋圆偏振跃迁对应于单位偶极矢量：

$$\mu = \mu_+ = \left[-\frac{1}{\sqrt{2}}, -i\frac{1}{\sqrt{2}}, 0\right] \tag{77}$$

and

$$\mu = \mu_- = \left[\frac{1}{\sqrt{2}}, -i\frac{1}{\sqrt{2}}, 0\right], \tag{78}$$

分别为。我们假设跃迁 $|a\rangle \leftrightarrow |c\rangle$ 的偶极矩矢量 μ_{ac} 为 $\mu_{ac} = |\mu_{ac}|\mu_-$，跃迁 $|b\rangle \leftrightarrow |c\rangle$ 的偶极矩矢量 μ_{bc} 为 $\mu_{bc} = |\mu_{bc}|\mu_+$。值得注意的是 $\mu_{ac} \perp \mu_{bc}$。沿 x轴的线偏振辐射（$\epsilon_\lambda = \epsilon_x$），如式(67)所示，可改写为

$$\epsilon_x = \sqrt{2}\,(\mu_- - \mu_+)\,. \tag{79}$$

这意味着　　具有偏振 ϵ_x 的辐射可以驱动两个跃迁 $|a\rangle \leftrightarrow |c\rangle$ 和 $|b\rangle \leftrightarrow |c\rangle$。
两个选定跃迁 $|a\rangle \leftrightarrow |c\rangle$ 和 $|b\rangle \leftrightarrow |c\rangle$ 的偶极矩相互正交，因此对于各向同性自发辐射通道，有 $p = 0$。因此，在各向同性非偏振辐射的情况下，干涉项消失，动力学方程简化为标准泡利速率方程 [25, 27]。相比之下，偏振激发使吸收和受激发射过程中保留干涉，即使偶极矩相互正交，相干性 ρ_{ab} 也能因各向异性泵浦而持续存在。

最后，我们表明，偏振非相干场诱导的衰减率 $\gamma_l^{\rm pol}$ 显著小于各向同性真空所对应的自发衰减率 $\gamma_l^{\rm iso}$。对于此处考虑的构型，$\gamma_l^{\rm pol}$ 为：

$$\gamma_l^{\rm pol} = \frac{\omega_{lc}^3\,|\mu_{lc}|^2}{16\hbar\pi^2\varepsilon_0 c^3} = \gamma_l^{\rm iso}\frac{3}{16\pi} \quad \Longrightarrow \quad \gamma_l^{\rm pol} = \frac{3}{16\pi}\gamma_l^{\rm iso}.$$

该结果表明，与各向同性自发辐射的衰减率 [28]相比，偏振辐射诱导的衰减率降低了 $16\pi/3$ 倍。这些表达式适用于封闭V型系统，其中所有自发衰减通道都会使基态 $|c\rangle$重新获得布居。

7. *Open system dynamics in linear form*

方程（75）—（76）描述了与辐射模式连续体相互作用的 V型三能级系统的动力学，其波矢为$\mathbf{k}$，偏振为 ϵ_x。如前所述，这些方程对应两个相互独立的子过程。因此，可以通过求解两个不同的线性方程组得到解，即：

$$\frac{d\mathbf{x}(t)}{dt} = A\mathbf{x}(t) \quad \text{and} \quad \frac{d\mathbf{z}(t)}{dt} = C\mathbf{z}(t) \tag{80}$$

态矢量为

$$\mathbf{x}(t) \equiv \Big(\rho_{aa}(t), \rho_{bb}(t), \rho_{cc}(t), \mathrm{Re}[\rho_{ab}(t)], \mathrm{Im}[\rho_{ab}(t)]\Big)^T \tag{81}$$

$$\mathbf{z}(t) \equiv \Big(\mathrm{Re}[\rho_{ac}(t)], \mathrm{Im}[\rho_{ac}(t)], \mathrm{Re}[\rho_{bc}(t)], \mathrm{Im}[\rho_{bc}(t)]\Big)^T. \tag{82}$$

向量$\mathbf{x}$ 包含基态 $\rho_{cc}(t)$ 的布居，而不是施加约束 $\rho_{cc}(t) = 1 - \rho_{aa}(t) - \rho_{bb}(t)$ [26]。作出这一选择是为了能够在任意时刻 t通过直接对式（80）中的两个微分方程进行指数化，得到式（75）—（76）的正确密度算符 $\hat{\rho}_S(t)$。在式（80）中，矩阵 A, C 的第 ij 个（第 i 行和第 j 列）元素分别为:

$$\begin{aligned}
A_{11} &= -A_{31} = -\left(\gamma_a^{\mathrm{pol}}\bar{n} + \gamma_a^{\mathrm{iso}}\right) \\
A_{12} &= A_{51} = A_{21} = A_{52} = A_{53} = A_{15} = A_{25} = A_{35} = 0 \\
A_{41} &= A_{42} = \frac{A_{14}}{2} = \frac{A_{24}}{2} = -\frac{A_{34}}{4} = -\frac{1}{2}\left(\sqrt{\gamma_a^{\mathrm{pol}}\gamma_b^{\mathrm{pol}}}\bar{n} + p\sqrt{\gamma_a^{\mathrm{iso}}\gamma_b^{\mathrm{iso}}}\right) \\
A_{22} &= -A_{32} = -\left(\gamma_b^{\mathrm{pol}}\bar{n} + \gamma_b^{\mathrm{iso}}\right) \\
A_{13} &= \gamma_a^{\mathrm{pol}}\bar{n} \\
A_{23} &= \gamma_b^{\mathrm{pol}}\bar{n} \\
A_{33} &= \left(\gamma_a^{\mathrm{pol}} + \gamma_b^{\mathrm{pol}}\right)\bar{n} \\
A_{43} &= \sqrt{\gamma_a^{\mathrm{pol}}\gamma_b^{\mathrm{pol}}}\bar{n} \\
A_{44} &= A_{55} = \left(\frac{\gamma_a^{\mathrm{pol}} + \gamma_b^{\mathrm{pol}}}{2}\bar{n} + \frac{\gamma_a^{\mathrm{iso}} + \gamma_b^{\mathrm{iso}}}{2}\right) \\
A_{54} &= -A_{45} = -\Delta,
\end{aligned} \tag{83}$$

and

$$\begin{aligned}
C_{11} &= C_{22} = -\left[\bar{n}\left(\gamma_a^{\mathrm{pol}} + \frac{\gamma_b^{\mathrm{pol}}}{2}\right) + \frac{\gamma_a^{\mathrm{iso}}}{2}\right] \\
C_{21} &= -C_{12} = -\omega_{ac}; \\
C_{31} &= C_{42} = C_{13} = C_{24} = -\frac{1}{2}\left(\sqrt{\gamma_a^{\mathrm{pol}}\gamma_b^{\mathrm{pol}}}\bar{n} + p\sqrt{\gamma_a^{\mathrm{iso}}\gamma_b^{\mathrm{iso}}}\right) \\
C_{41} &= C_{32} = C_{23} = C_{14} = 0; \\
C_{33} &= C_{44} = -\left[\bar{n}\left(\gamma_b^{\mathrm{pol}} + \frac{\gamma_a^{\mathrm{pol}}}{2}\right) + \frac{\gamma_b^{\mathrm{iso}}}{2}\right] \\
C_{43} &= -C_{34} = \omega_{bc}.
\end{aligned} \tag{84}$$

齐次微分方程（80）通过指数化进行数值求解，即

$$\mathbf{x}(t) = e^{At}\mathbf{x}(0) \tag{85}$$

$$\mathbf{z}(t) = e^{Ct}\mathbf{z}(0) \tag{86}$$

其中，$\mathbf{x(0)}, \mathbf{z(0)}$ 表示该表示下的初始状态。矩阵 A, C 的指数通过 MATLAB 函数 expm 计算，该函数采用了 Higham [53] 的缩放平方算法。

C. 动力学区域与 Fano相干寿命

为了分析非相干驱动下法诺相干的生成，我们从系统初始化于无相干性的状态这一条件出发。参照文献 [18, 20, 25, 28], ，我们选择基态作为

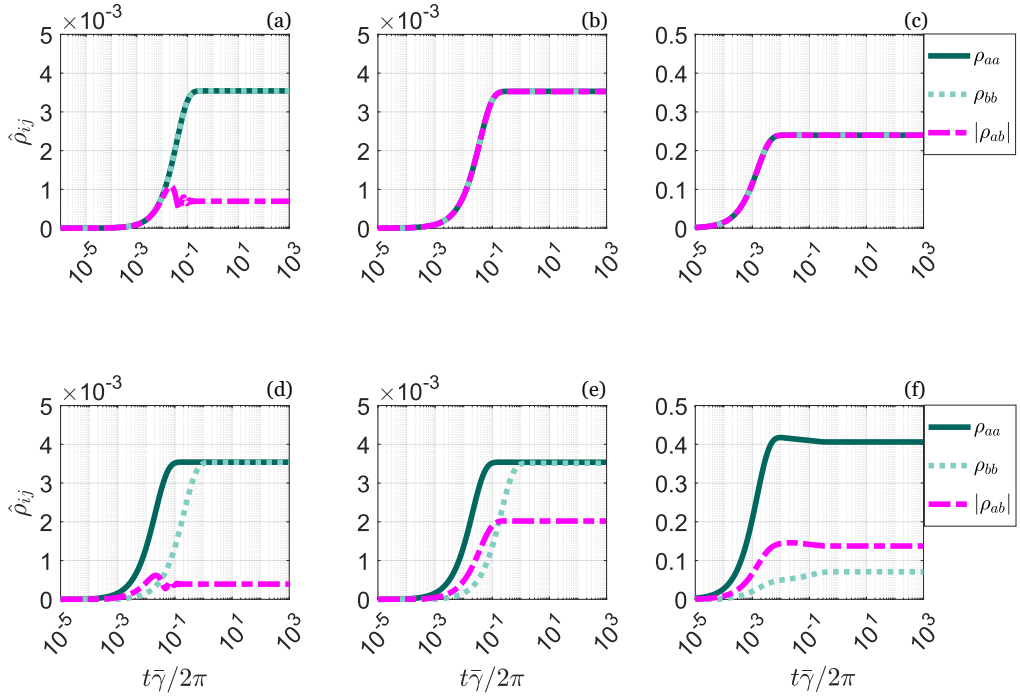

图 2：激发能级布居数和量子相干模的无量纲时间演化 $|\rho_{ab}|$。(a)：$\gamma_a^{\rm iso}/\gamma_b^{\rm iso}=1$, $\Delta/\bar{\gamma}=10$, $\bar{n}=0.06$；(b)：$\gamma_a^{\rm iso}/\gamma_b^{\rm iso}=1$, $\Delta/\bar{\gamma}=0.1$, $\bar{n}=0.06$；(c)：$\gamma_a^{\rm iso}/\gamma_b^{\rm iso}=1$, $\Delta/\bar{\gamma}=0.1$,$\bar{n}=100$ $\bar{n}=0.06$ $\bar{n}=0.06$ ；(d)：$\gamma_a^{\rm iso}/\gamma_b^{\rm iso}=10$, $\Delta/\bar{\gamma}=10$, ；(e)：$\gamma_a^{\rm iso}/\gamma_b^{\rm iso}=10$, $\Delta/\bar{\gamma}=0.1$, ；(f)：$\gamma_a^{\rm iso}/\gamma_b^{\rm iso}=10$,$\Delta/\bar{\gamma}=0.1$, $\bar{n}=100$。第一行的图对应对称系统，第二行的图则对应非对称系统。

初始条件，因此态矢量$\mathbf{x}(0)$仅包含一个非零项，即 $\rho_{cc}(0)=1$。这保证了动力学的解——密度算符——在任意时刻都保持半正定，正如文献 [18, 20, 25] 中明确展示的那样。

方程 (75)-(76) 的解析解已在文献 [27, 28]，中给出，其中法诺相干$\rho_{ab}(t)$ 的动力学分为三种截然不同的物理区间。这些区间由比值 $\Delta/\bar{\gamma}$ 控制，其中 Δ 为激发态能级劈裂，而 $\bar{\gamma}=(\gamma_a^{\rm iso}+\gamma_b^{\rm iso})/2$ 为平均自发发射率。具体而言，$\Delta/\bar{\gamma}\ll 1$ 对应于过阻尼，而 $\Delta/\bar{\gamma}\gg 1$ 对应于欠阻尼，其中 $\Delta/\bar{\gamma}\approx 1$ 定义了区分这两种情况的转变点。各区间中的行为还取决于驱动场的平均光子数 $\bar{n}$，该数值量化了辐射强度。因此，可以区分不同的驱动条件，通常称为弱泵浦区和强泵浦区。不失一般性，我们假设 $\gamma_a^{\rm iso}\geq\gamma_b^{\rm iso}$，但所有结果对相反的情况同样成立。

以下讨论的区间结构和数值行为遵循 Dodin等人 [27]和 Koyu等人 [28]的研究结果。

1. Weak-pumping regime

我们首先考虑弱泵浦区，其定义为 $\bar{n}\ll 1$，对应于低辐射功率，例如非聚光太阳光照。在此区间内，我们考察对称（$\gamma_a^{\rm iso}=\gamma_b^{\rm iso}$）和非对称（$\gamma_a^{\rm iso}>\gamma_b^{\rm iso}$；我们将考虑 $\gamma_a^{\rm iso}=10\gamma_b^{\rm iso}$）自发衰变构型。

(i) **欠阻尼，** $\Delta/\bar{\gamma}\gg 1$: Th
e real part of the coherence 相干性的 imagi
nary 部分 ρ_{ab} 随时间以频率 Δ振荡，并在时间尺度 $\tau_{\rm coh}\approx 1/\bar{\gamma}$上趋于稳态。值得注意的是，稳态幅值 $|\rho_{ab}|_{\rm steady}$ 非零，这表明法诺相干在偏振非相干驱动下不会衰变。如图2(a)和2(d)所示，这种行为在对称和非对称系统中都会出现。尽管这有悖直觉，但相干性的持续存在并不违反热力学原理：正如文献 [27], 所述，偏振辐射实际上相当于一个同时耦合到两个跃迁 $|a\rangle\leftrightarrow|c\rangle$ 和 $|b\rangle\leftrightarrow|c\rangle$的高温储库，而自发辐射是各向同性的

并且可以建模为系统与一个冷储库之间的有效相互作用。与这两个储库同时相互作用，使系统保持非平衡，从而让稳态相干性得以维持。

在弱泵浦的欠阻尼区间，久期近似能够很好地描述布居动力学。这主要是由于较大的激发态劈裂 $\Delta \gg \bar{\gamma}$，它会引发快速的相干振荡，使非久期项在平均后相互抵消；与此同时，弱泵浦也进一步限制了相干性生成的幅度。

(ii) **过阻尼，** $\Delta/\bar{\gamma} \ll 1$:

相干动力学与欠阻尼情形有定性差异。如图 2(b) 和图 2(e) 分别针对对称系统和非对称系统所示， ρ_{ab} 的大小逐渐趋向一个非零稳态值，且没有振荡行为。这一趋势也明显不同于各向同性、非偏振情形，在该情形下，只有在严格的简并极限 $\Delta = 0$下，稳态相干性才能持续存在。

输入偏振辐射的另一个显著特点是，对于对称 V型系统，相干性大小 $|\rho_{ab}|$ 实际上会变得与激发态布居相等，正如参考文献 [27]中的推导所示。在非对称构型中，衰减率的不平衡会导致激发态的弛豫速度不同：如图 2(e)所示，布居数 $\rho_{bb}(t)$趋向其稳态值的速度比 $\rho_{aa}(t)$更慢。这种不平衡会削弱产生相干性所需的干涉，因此，与对称情形相比， $|\rho_{ab}|$ 的稳态值更小。

2. Strong-pumping regime

在强泵浦区间（定义为 $\bar{n} \gg 1$）中，即使 $\Delta/\bar{\gamma}$的取值远大于弱泵浦区间 [25]中的取值，也可能出现过阻尼。过阻尼区域的扩大反映了高光子占据数下受激过程所发挥的重要作用。在此区间中，我们取 $\bar{n} = 100$ 和 $\Delta/\bar{\gamma} = 0.1$。如图 2(c) 和图 2(f) 分别针对对称系统和非对称系统所示，稳态相干性 $|\rho_{ab}|$达到的数值远高于弱泵浦下的数值。正如Koyu等人在文献 [25], 中所阐明的，条件 $\bar{n} \gg 1$ 意味着 $r_l^{\mathrm{pol}}/\gamma_l^{\mathrm{pol}} \gg 1$ ($l = a,\ b$)，且不会违反弱耦合假设，前提是非相干泵浦速率满足 $r_l^{\mathrm{pol}} \ll \omega_{lc}$。换言之，泵浦速率必须远小于相应的光学跃迁频率。对于 $\omega_{lc} \approx 100$ THz 的光学跃迁和 $\gamma_l^{\mathrm{iso}} \approx 10$ MHz 的自发衰减率，相应的偏振衰减率 $\gamma_l^{\mathrm{pol}} = \frac{3}{16\pi}\gamma_l^{\mathrm{iso}}$允许平均光子数达到 $\bar{n} \ll 10^8$，同时仍处于弱耦合区间内。关于系统动力学的马尔可夫性，只要泵浦速率 r_l^{pol} 小于储库关联时间 τ_R的倒数，马尔可夫性便得以维持。通常，在光学区间， $\tau_R \approx 10$ fs；因此， $\bar{n} \ll 10^8$ 是可接受的。不过，在下文中，我们将分析范围限制在最高不超过 $\bar{n} \approx 10^4$的取值，这些取值远在此有效范围之内，并构成一个保守的参数区间，可确保推导主方程时采用的所有近似均得到充分满足。

较大的平均光子数 $\bar{n}$ 与较小的激发态能级劈裂 Δ 共同确定了稳态相干性 $|\rho_{ab}|_{\mathrm{steady}}$ 达到最高值的区域。图3展示了 $|\rho_{ab}|_{\mathrm{steady}}$ 对 $\bar{n}$ 和 $\Delta/\bar{\gamma}$ 的依赖关系，分别对应对称V型系统（$\gamma_a/\gamma_b = 1$）和强非对称系统（$\gamma_a/\gamma_b = 10$）。在图(a)和(c)中，我们绘出了稳态相干性随 $\bar{n}$ 变化的曲线，其中 $\Delta/\bar{\gamma}$取若干固定值；在图(b)和(d)中，我们展示了不同固定 $\bar{n}$下 $|\rho_{ab}|_{\mathrm{steady}}$ 随 $\Delta/\bar{\gamma}$ 变化的情况。图(a)-(b)对应对称系统，图(c)-(d)对应非对称系统。这些互补的图示表明，在对称和非对称V型系统中，减小 Δ 或增大 $\bar{n}$ 都能提升可达到的稳态相干性。然而，对称和非对称构型所能达到的最大相干性有所不同。这一差异源于系统密度算符的正性约束，该约束要求$|\rho_{ab}| \le \sqrt{\rho_{aa}\rho_{bb}}$。在对称系统中，两个激发能级具有相近的稳态布居数，因此 $|\rho_{ab}|_{\mathrm{steady}}$ 可以接近其最大上界。相比之下, 一当衰减率严重失衡时，稳态布居数会变得不相等（$\rho_{aa} \neq \rho_{bb}$），上界的数值$\sqrt{\rho_{aa}\rho_{bb}}$ 随之减小。因此，非对称情形下可达到的最大相干性必然较小。

此外，如果系统初始处于基态，非相干泵浦在稳态下最多只能将总布居的四分之一转移到每个激发能级，因此得到上限 $|\rho_{ab}|_{\mathrm{stat}} \le 0.25$。这一事实与图3(a)中观察到的行为以及参考文献 [23] 中的分析一致。

有必要澄清的是，本文给出的解基于系统与非相干辐射场之间的相互作用瞬时开启这一假设。Dodin等人 在 [24] 中讨论了含时非相干辐射，表明如果开启时间超过系统最快的特征时间尺度

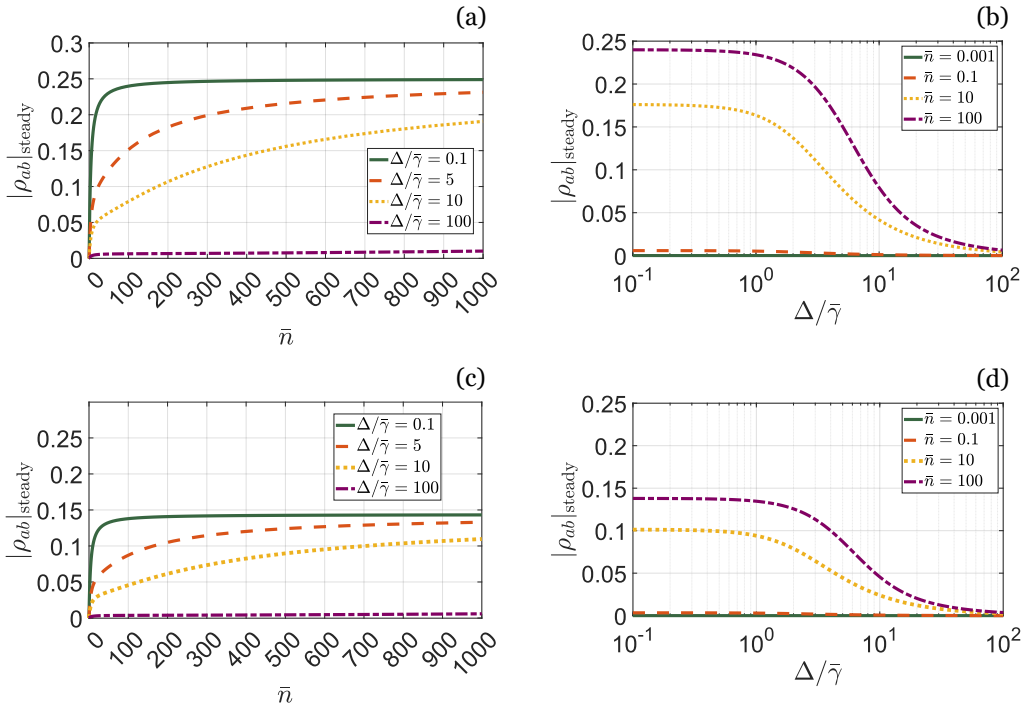

图3：长时间极限下的激发态相干性 ρ_{ab} $t \to \infty$ 与 $\bar{n}$ 和 $\Delta/\bar{\gamma}$的函数关系。(a) 对称系统中，$|\rho_{ab}|_{\text{steady}}$随 $\bar{n}$变化的图像，其中 $\Delta/\bar{\gamma}$ 取不同值。(b) 对称系统中，$|\rho_{ab}|_{\text{steady}}$ 随 $\Delta/\bar{\gamma}$变化的图像，其中 $\bar{n}$ 取不同值。(c) 非对称系统（$\gamma_a^{\text{iso}}/\gamma_b^{\text{iso}} = 10$）中，$|\rho_{ab}|_{\text{steady}}$ 随 $\bar{n}$变化的图像，其中 $\Delta/\bar{\gamma}$ 取不同值。(d) 非对称系统（$\gamma_a^{\text{iso}}/\gamma_b^{\text{iso}} = 10$）中，$|\rho_{ab}|_{\text{steady}}$ 随 $\Delta/\bar{\gamma}$变化的图像，其中 $\bar{n}$ 取不同值。

τ_S，所诱导法诺相干的幅度会显著减小。然而，如果非相干场由宽带激光实现，则可利用声光调制器实现足够快的开启。

III. 相关实验装置中的稳态法诺相干性

本节旨在报告相关实验装置中稳态法诺相干的计算结果，该装置可作为初步验证及后续应用的理想测试平台。此外，我们还将讨论这一设置可能面临的实验挑战，以及克服或至少缓解这些挑战的可行方案。

在“嘈杂”条件下，法诺相干的稳态（这是产生法诺相干所必需的）可在与热储库接触的系统中实现，例如量子热机 [1],，或像本案例研究及光转换器件 [3, 8]中那样暴露于热辐射的系统。具体而言，在后一种情况下，Svidzinsky 等人 [8]从理论上证明，法诺干涉或可减弱自发辐射，进而减少辐射复合现象。该光转换器件（光电池）以受非相干光源驱动的V型三能级系统建模，其中激发态代表导带态，并会衰变至一个共同的价带态。系统激发态之间的量子相干理论上可能提高器件的可提取电流，从而提升输出功率和转换效率。另一方面，正如Scully 等人在文献 [1]中使用量子热机模型所展示的那样，实现一个 Λ型系统可以增强光子吸收。原子从基态能级迅速跃迁至激发能级，可提高可提取功，从而实现更高的光子吸收率。无论是在光电池还是量子热机中，只要输入的非相干辐射具有足够宽的频谱，能够激发所有近简并能量跃迁并由此产生跃迁间的干涉，两种应用的性能都能得到提升。

在实验室中实现噪声诱导法诺相干，需要采用具备合适能级结构、可控非相干激发和可调动力学参数的物理平台。三大类物理系统满足这些条件：(i) 原子系综，例如热铷-87原子云或冷铷-87原子云；(ii) 固态量子点；以及 (iii) 基于电路量子电动力学（电路QED）的超导人工原子。

原子蒸气和冷原子系统都具有清晰的偶极允许的V型跃迁以及特性明确的退相干通道。这些平台适用于原理验证研究，其激发态劈裂可调（例如通过磁场调节），且能够兼容宽带非相干泵浦，与本文建立的理论框架高度契合。

超导电路是另一个很有前景的平台，这得益于其对能级跃迁频率、衰减率、偶极取向和工程化储库的高度可控性。实验已证明，多能级超导量子比特能够高保真地重现原子三能级现象，例如基于 Autler-Townes劈裂的电磁诱导透明 [54]。超导量子比特的可调性使其非常适合实现衰减不对称性可调的 V 型系统，并施加定制的宽带或类热微波场。因此，电路量子电动力学是一个理想的候选平台，可用于测试非相干驱动在原子系综或固态器件难以达到的参数范围内所导致的量子相干产生。

最后，半导体量子点作为光伏应用中的光转换技术，前景十分广阔。事实上，其工程化能带结构和光-物质耦合使其非常适合 Svidzinsky等人提出的 V型光电池架构 [8]。在这些系统中，导带态自然构成激发态流形，而价带则发挥基态的作用。非相干阳光或热辐射充当泵浦。多项理论研究预测，在这些条件下，相干性辅助的辐射复合抑制将会发生，同时光电流和开路电压也会提升 [3, 8, 9]。

在本节其余部分中，我们将进一步讨论如何利用铷原子平台实现由非相干辐射驱动的 V 型系统。我们将考察该平台的优势，以及在现实实验条件下观测法诺相干所面临的挑战。

A. 铷原子系综

尽管这一主题已得到广泛研究，但据我们所知，目前仍缺少明确证明非相干辐射能够生成法诺相干性的实验。

原子系统是演示噪声诱导法诺相干的理想实验平台。它们具有多项固有优势：其电子结构已得到精确确定，选择定则也十分明确。此外，退相干通道以及跃迁偶极矩、线宽和能级劈裂等关键参数均可被准确表征和调控。要使某种原子成为生成法诺相干的合适候选，其能级结构必须满足以下条件：（i）两个激发能级通过电偶极允许跃迁与同一个基态相连；（ii）激发能级之间的能级劈裂可在较大范围内调节，且不会引入额外耦合；（iii）跃迁频率与现有宽带非相干辐射相匹配。

产生法诺相干的一个特别有用的特性，是能够利用磁子能级构建激发态流形，从而通过改变外部磁场，连续且精确地调节能级劈裂 Δ 。这种可控性对于实现理论预测的欠阻尼和过阻尼动力学区域至关重要。同样，通过调节宽带非相干辐射的强度（例如改变宽带激光源的功率），可以探索弱泵浦区和强泵浦区（由平均光子数 $\bar{n}$定义）。

具有丰富超精细结构和塞曼流形的同位素，例如碱金属原子和碱土金属原子，自然符合上述条件。它们的光谱性质已有详尽记载，且在其跃迁频率下运行的激光系统技术成熟，这进一步简化了实验实现。此前，Dodin等人 [27] 以及随后Koyu等人 [28], 提出了实验方案：在均匀磁场中，使用宽带偏振激光照射钙原子束。此外，文献 [55]中，作者提出了一种实验方案，使用亚稳态He(2^3S_1)原子，在 Λ型三能级系统中测量稳态噪声诱导的Fano相干性。另有近期实验利用铷原子磁光阱 [56] ，发现拍频振幅有所增加；拍频振幅是发射辐射强度的振荡调制，源于系统激发能级之间存在量子相干。这一效应证实了真空诱导的量子相干性的产生；这种相干性源于离散原子态与电磁场真空模的耦合。

B. V型系统在 ^{87}铷超精细结构中的实现

基于铷-87（^{87}Rb）原子的原子平台适合用于开展原理验证实验，以探测噪声诱导法诺相干，这得益于其易于实现的光学跃迁和多样的超精细结构。 $5^2S_{1/2}$ 基态流形的超精细塞曼子能级，以及 $5^2P_{1/2}$ 和 $5^2P_{3/2}$ 激发态

流形可实现多种V型构型。这些能级在低磁场下呈现线性塞曼频移，从而能够精细调控激发态能级劈裂。这一要求对于探索V型系统的不同动力学区域至关重要。此外，所选超精细跃迁必须与相邻流形实现光谱隔离，以避免驱动非预期跃迁。这一条件对用作非相干泵浦的宽带辐射带宽提出了限制。具体而言，输入辐射在频域上必须足够宽，才能表现为非相干光源，同时又必须足够窄，以避免耦合到其他超精细或精细结构能级。满足上述要求的一种特别合适的选择是 $5^2S_{1/2} \leftrightarrow 5^2P_{1/2}$ （D_1）跃迁，其中基态的超精细流形（$F = 1$ 和 $F = 2$）相隔约6.83 GHz，而两个激发能级流形（$F' = 1$ 和$F' = 2$）相隔814 MHz [33, 57]。值得注意的是，即使在热蒸气中，尽管存在原子运动导致的多普勒展宽，仍能分辨出激发态和基态流形。最后，D1跃迁可使用标准二极管激光器在 $\lambda = 795$ nm处驱动，其衰减率约为$2\pi \times 5.75$ MHz。

在连接 $F = 1, 2$ 基态流形与 $F' = 1, 2$ 激发态流形的四种允许超精细跃迁中，值得考虑跃迁 $F = 1 \to F' = 1$，因为它包含的磁子能级数量最少，即每个流形中有 $2F + 1 = 3$ 个 [33, 57]。图 4 展示了如何在这一跃迁中实现 V型方案。基态 $|c\rangle$ 对应于原子能级 $|F = 1, m_F = 0\rangle$，而两个激发态 $|a\rangle$ 和 $|b\rangle$ 分别由能级 $|F' = 1, m_{F'} = -1\rangle$ 和 $|F' = 1, m_{F'} = +1\rangle$ 表示。跃迁 $|a\rangle \leftrightarrow |c\rangle$ 和 $|b\rangle \leftrightarrow |c\rangle$ 具有相同的自发衰减率（即 $\gamma_a^{\text{iso}} = \gamma_b^{\text{iso}}$），因此 V型系统呈对称衰变。此外，由于它们分别满足由差值 $\Delta m_F = -1$ 和 $\Delta m_F = +1$ 定义的选择定则，因此由 xy 平面内的圆偏振光驱动 [33]。因此，相应的偶极矩矢量 μ_{ac} 和 μ_{bc} 具有第 II B 6 小节推导的形式，且彼此正交，从而得到 $p = 0$。这意味着自发辐射通道之间不会发生量子干涉；而如果泵浦场具有适当的偏振，则吸收和受激发射中的干涉是允许的。为同时驱动这两个跃迁，宽带辐射必须在横向 xy 平面内具有线偏振；为与第 II B 6 小节的理论分析保持一致，我们取沿 x轴的线偏振，ϵ_x（见式（67））。这两个跃迁对应的泵浦速率为 $r_a^{\text{pol}} = r_b^{\text{pol}}$。在这些条件下，只要推导过程中使用的近似仍然有效，式（75）—（76）中的主方程就能准确描述所提出原子系统的动力学。因此，我们来逐一考察这些近似，并确定其在 ^{87}铷 D1 平台上的相应适用范围。

- **偶极近似的有效性：**
  对于铷的 D1跃迁，电子波函数的空间尺度约为玻尔半径 $a_0 \approx 0.053$ 纳米。这意味着原子的尺寸比光学波长 [57]小得多，超过 $10^3 - 10^4$ 倍。因此，在原子空间尺度内，光场可视为均匀；在与我们实验实现相关的所有工作区间内，相互作用哈密顿量均可由电偶极项准确描述。

- **旋波近似（RWA）的有效性：**
  对于铷的 D1跃迁，原子跃迁频率 $\omega_{ac} \simeq \omega_{bc} \approx 2\pi \times 400$ 太赫兹比自发衰减率（$\approx 2\pi \times 5.75$ 兆赫兹）和非相干泵浦速率（强泵浦区内为 $\approx 2\pi$ 吉赫兹）都高出几个数量级；这两者决定了系统-储库耦合的有效时间尺度。此外，当宽带辐射的频谱中心接近原子跃迁，且主要场模满足$|\omega_{lc} - \nu_{\mathbf{k},\ \epsilon_x}| \ll \omega_{lc} + \nu_{\mathbf{k},\ \epsilon_x}$时，反旋项的快速振荡与系统的缓慢动力学之间便形成了清晰的时间尺度分离。因此，与反旋项相关的非共振过程受到强烈抑制，旋波近似能够准确描述 ^{87}铷 D_1 超精细结构 V型系统与宽带非相干辐射场之间的相互作用。

- **玻恩-马尔可夫近似的有效性：**
  对于实施方案，我们考虑将宽带激光场用作非相干辐射源，其谱带宽为 $\Delta\nu_{\text{laser}}$。如第II B1小节所述，输入辐射的关联时间 τ_R 可估算为 $\tau_R \simeq 1/\Delta\nu_{\text{laser}}$。

  另一方面，基于 ^{87}铷 D1 线构建的原子系统的特征时间尺度 τ_S 由激发态流形的自发辐射速率决定，其平均衰减率为 $\bar{\gamma} \approx 2\pi \times 5.75$ 兆赫兹，对应于 $\tau_S = 2\pi/\bar{\gamma} \approx 200$ 纳秒。马尔可夫近似要求时间尺度明确分离，$\tau_R \ll \tau_S$，这意味着条件 $\Delta\nu_{\text{laser}} \gg \bar{\gamma}$。

  因此，数十至数百兆赫兹范围内的谱带宽可确保储库的关联时间 τ_R 远短于系统的弛豫时间 τ_S，从而证明马尔可夫近似适用于当前实验装置。同时，带宽必须足够窄，以避免显著

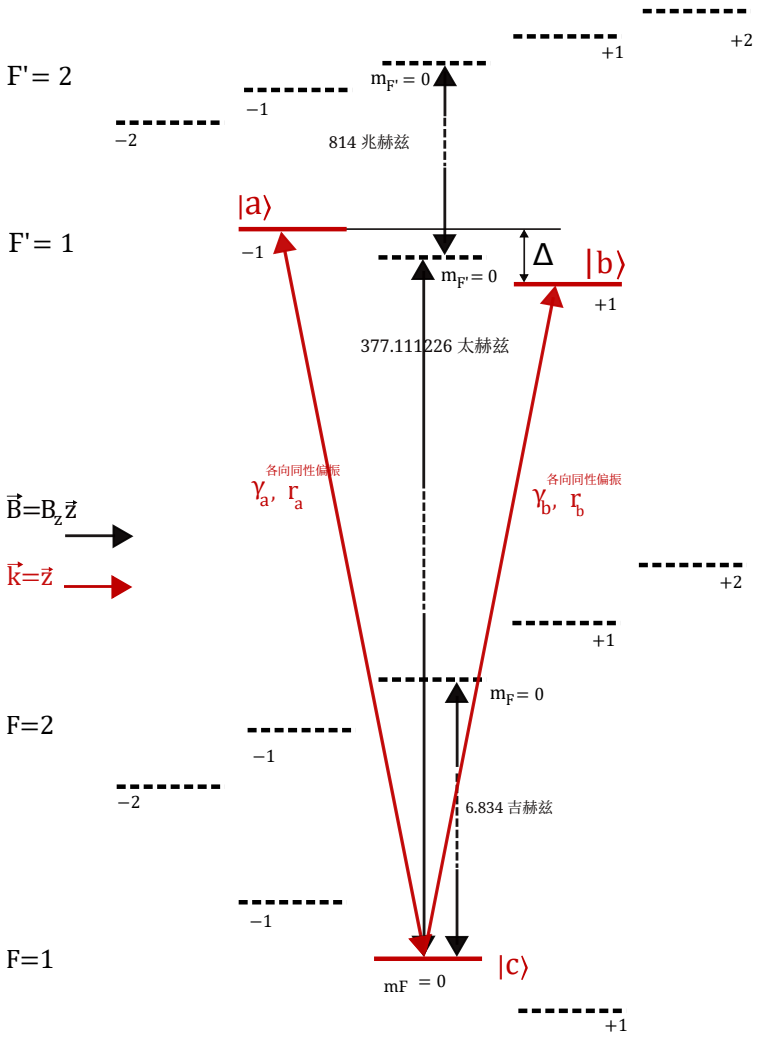

图 4： ^{87}铷 D1线跃迁中的 V型三能级系统。基态 $|c\rangle$ 对应于超精细磁子能级 $|F=1,\ m_F=0\rangle$，而两个激发态 $|a\rangle$ 和 $|b\rangle$ 分别由能级$|F'=1,\ m_{F'}=-1\rangle$和 $|F'=1,\ m_{F'}=+1\rangle$表示。红色箭头表示涉及的辐射过程：能级 $|a\rangle$ 和 $|b\rangle$ 以速率 $\gamma_a^{\mathrm{iso}}=\gamma_b^{\mathrm{iso}}$分别向能级 $|c\rangle$ 自发辐射；涉及跃迁 $|a\rangle\leftrightarrow|c\rangle$ 和 $|b\rangle\leftrightarrow|c\rangle$ 的非相干泵浦和受激发射，速率分别为 $r_a^{\mathrm{pol}}=r_b^{\mathrm{pol}}$。参数 Δ是激发能级之间的能级劈裂： $\Delta=\omega_{ac}-\omega_{bc}$。图中还标出了辐射的波矢 **k** 和均匀磁场矢量**B**，以及 $D1$ 线的超精细流形之间的频率差。

激发邻近的超精细能级。具体而言，D1 线的激发态流形 $F'=1$与 $F'=2$相隔约 814 兆赫兹。选择 50 兆赫兹 $\lesssim\Delta\nu_{\mathrm{laser}}\lesssim$ 500 兆赫兹可确保光谱选择性，同时满足玻恩-马尔可夫近似。室温下这两个跃迁 $F=1\to F'=1$与 $F=1\to F'=2$在光谱上仍可分辨，这进一步支持了这一点；此时多普勒展宽约为 500 兆赫兹。这意味着带有此带宽的辐射不会激发该超精细跃迁 $F=1\to F'=2$。

1. Theoretical predictions

由 ^{87}铷原子的超精细结构实现的V型三能级系统与宽带激光相互作用，激光的波矢**k** 沿z轴，偏振沿x轴且为线偏振。IIC小节分析了各向异性偏振辐射下的动力学区域，发现法诺相干在欠阻尼区间和过阻尼区间均达到非零稳态值。然而，在过阻尼区间，

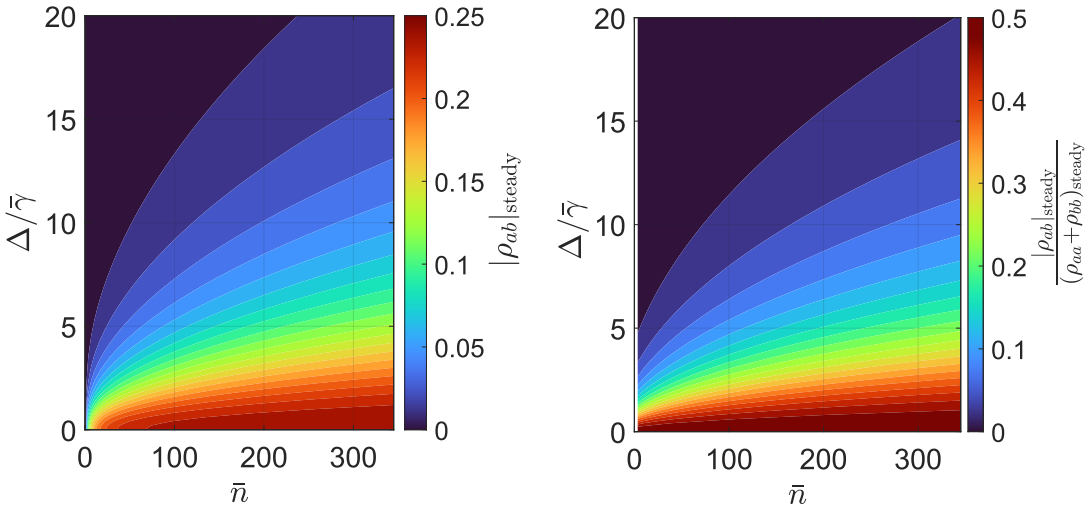

图 5: （a）量子相干性 $|\rho_{ab}|$ 的稳态幅值，作为平均光子数 $\bar{n}$ 和归一化激发态能级劈裂 $\Delta/\bar{\gamma}$的函数。（b）相对于激发态布居归一化的稳态相干性，作为 $\bar{n}$ 和 $\Delta/\bar{\gamma}$的函数。V型三能级系统由沿 x轴方向的线偏振辐射场驱动。

量子相干随时间单调演化而不发生振荡，因此可以优化其稳态值，以实现高效探测

现在，我们按照第 II C 2 小节介绍的方法分析 V型系统，研究在采用 ^{87}个铷原子实现的系统中，使稳态法诺相干 $|\rho_{ab}|_{\text{steady}}$ 最大化的条件。为此，我们在过阻尼区间内改变参数 $\Delta/\bar{\gamma}$ 和 $\bar{n}$。图 5 展示了不同 $\Delta/\bar{\gamma}$ 和 $\bar{n}$组合下 $|\rho_{ab}|$ 的稳态值。本分析所考虑的平均光子数最大值为 $\bar{n}_{\max} = 345$，超过该值后，辐射强度将超过原子跃迁的饱和强度。保持输入辐射的强度低于饱和强度至关重要，因为跃迁 $|a\rangle \leftrightarrow |c\rangle$ 和 $|b\rangle \leftrightarrow |c\rangle$ 的饱和会导致吸收减弱，并最终造成噪声诱导法诺相干性的退化。

从图 5(a) 可以明显看出，较大的激发态能级劈裂不利于形成稳态法诺相干，因此 $0 < \Delta/\bar{\gamma} < 1$ 所对应的区域最为有利。此外，增加平均光子数 $\bar{n}$ 会增强稳态下量子相干的强度。因此，为了在实验中观测和检测稳态法诺相干，需要将较小的激发态能级劈裂与中等强度的非相干泵浦相结合。图 5(b) 展示了相干比 $\frac{|\rho_{ab}|_{\text{steady}}}{(\rho_{aa}+\rho_{bb})_{\text{steady}}}$ 随 $\Delta/\bar{\gamma}$ 和 $\bar{n}$变化的情况。该量是衡量相干强度相对于激发态布居的便捷指标，可通过荧光发射强度 [18, 20, 28]等可观测量进行评估。该比值可达到的最大值为 $1/2$；在此情况下，该最大值同样出现在激发态劈裂较小且泵浦较强但尚未饱和时。

IV. 结论

在本研究中，我们建立了一个第一性原理量子模型，用于描述偏振非相干辐射驱动的V型三能级量子系统中法诺相干的产生与持续。通过推导未施加完全世俗近似的布洛赫-雷德菲尔德主方程，我们确认，在现实条件下，三能级系统近简并激发态之间的量子干涉可以保持稳定。我们的分析确定了动力学区域——这些区域由激发态能级劈裂与因同场相互作用产生的自发衰减率之比所界定——在这些区域内，法诺相干的产生达到最大。特别是，较小的能级劈裂结合中等强度的非相干泵浦，能够以稳健的方式维持法诺相干，即使存在自发发射通道也是如此。

我们在讨论模型的实验可行性时补充了理论预测，重点关注具有可控能级结构且可与宽带非相干光源兼容的铷-87原子系综。我们的讨论表明，噪声诱导量子相干可在实际

平台中加以利用，为量子增强能量转换和信息存储等应用铺平道路。

A. 展望

这项工作可引出若干研究方向：

i) 能量转换效率：
定量严谨地评估稳态法诺相干如何影响量子热机和光电池中的能量转换，仍是一项尚待解决的挑战。未来研究应探讨转换效率对输入非相干辐射场的各向异性程度和偏振的依赖性，以及其对激发态劈裂和泵浦强度的依赖性。应特别关注识别法诺相干可发挥热力学资源作用的参数范围，因为它可能降低熵产生并增加可提取功。

ii) 实验验证与控制策略：
设计能够在现实条件下检测和控制法诺相干的实验，是一项至关重要且仍有待推进的工作。原子平台（例如铷原子系综）凭借其特性明确的能级结构和可调性，为原理验证提供了天然平台。除原子系统外，超导电路和半导体量子点凭借其可扩展性和可控参数，也可能成为有前景的替代方案。探索这些平台将有助于把相干辅助机制整合到能量收集器件和量子热力学循环中。

iii) 将法诺相干作为非平衡过程中的资源加以利用：
未来研究应探讨如何通过与外部负载进行相干或非相干相互作用，系统地将法诺相干作为非平衡过程和能量转换方案中的一种资源加以利用。从这一角度来看，特别值得研究的是如何将法诺相干转化为负载中的光电流，继而将其储存起来或用于驱动设备。

致谢

作者感谢 Natalia Bruno 和 Chiara Mazzinghi 提供的宝贵讨论。本研究获得了欧盟“下一代欧盟”资助的 PNRR MUR 项目 PE0000023-NQSTI 的经费支持，并获得 ASI 和 CNR 通过联合项目“Laboratori congiunti ASI-CNR nel settore delle Quantum Technologies (QASINO)”（执行协议编号 2023-47-HH.0）提供的支持。

作者贡献

L.D. 和 S.G. 在 F.S.C. 提供的输入基础上完成了理论计算和数值模拟。所有作者共同构思了该项目，分析了结果，参与了讨论，并撰写了论文。

---

[1] M. O. Scully、K. R. Chapin、K. E. Dorfman 和 A. Svidzinsky，《噪声诱导的相干性可提高量子热机功率》，美国国家科学院院刊 **108**，15097（2011）。[2] J. Um、K. E. Dorfman 和 H. Park，《相干性增强的量子点热机》，Physical Review Research **4**，L032034（2022）。[3] M. O. Scully，《量子光电池：利用量子相干降低辐射复合并提高效率》，Physical Review Letters **104**，207701（2010）。[4] A. A. Svidzinsky 和 M. O. Scully，《量子点和量子阱太阳能转换器》，European Physical Journal Special Topics **230**，963 977 2021–（）。[5] C. Wang、J. Ren 和 J. Cao，《最佳隧穿增强双量子点中的量子光伏效应》，New Journal of Physics **16**，045019（2014）。[6] J. Lira、L. Sanz 和 A. Alcalde，《量子点分子在最大功率下的光伏效率》，Physics Letters A **442**，128179（2022）。

[7] C. Creatore、M. A. Parker、S. Emmott 和 A. Chin, 《由离域量子态增强的高效生物启发式光电池》, Phys. Rev. Lett. 111, 253601 (2013)。[8] A. A. Svidzinsky、K. E. Dorfman 和 M. O. Scully, 《通过法诺诱导相干增强光伏功率》, Phys. Rev. A 84, 053818 (2011)。[9] K. E. Dorfman、D. V. Voronine、S. Mukamel 和 M. O. Scully, 《作为量子热机的光合反应中心》, Proc. Natl. Acad. Sci. USA 110, 2746 (2013)。[10] E. Bittner 和 C. Silva, 《噪声诱导量子相干驱动聚合物异质结中的光生载流子生成动力学》, Nat. Commun. 5, 3119 (2014)。[11] S. Tomasi、D. M. Rouse、E. M. Gauger、B. W. Lovett 和 I. Kassal, 《相干性增强的量子点热机》, J. Phys. Chem. Lett. 12, 6143 (2021)。[12] F. Campaioli、S. Gherardini、J. Q. Quach、M. Polini 和 G. M. Andolina, 《专题综述：量子电池》, Rev. Mod. Phys. 96, 031001 (2024)。[13] S. Gherardini 和 G. De Chiara, 《量子热力学与多体系统中的准概率》, PRX Quantum 5, 030201 (2024)。[14] G. S. Agarwal, *Quantum Statistical Theories of Spontaneous Emissions and Their Relation to other Approaches*, 第70卷（H¨ohler, G. (编) 《量子光学》。《现代物理学施普林格丛书》, Springer Berlin, Heidelberg, 1974）。[15] G. C. Hegerfeldt 和 M. B. Plenio, 《非相干光下的相干性：单原子量子拍频的新类型》, Phys. Rev. A 47, 2186 (1993)。[16] C. L. Latune、I. Sinayskiy 和 F. Petruccione, 《热浴诱导相干的能量与熵效应》, Phys. Rev. A 99, 052105 (2019)。[17] C. L. Latune、I. Sinayskiy 和 F. Petruccione, 《从不可区分性出发的热力学：减弱和放大热浴的影响》, Phys. Rev. Research 1, 033192 (2019)。[18] T. V. Tscherbul 和 P. Brumer, 《非相干光驱动的 V 型系统中的长寿命准稳态相干性》, Phys. Rev. Lett. 113, 113601 (2014)。[19] T. V. Tscherbul 和 P. Brumer, 《用于多能级量子系统非相干激发的部分世俗布洛赫-雷德菲尔德主方程》, J. Chem. Phys. 142, 104107 (2015)。[20] A. Dodin、T. V. Tscherbul 和 P. Brumer, 《非相干驱动 V 型系统的量子动力学：超越世俗近似的解析解》, J. Chem. Phys. 144, 244108 (2016)。[21] U. Fano, 《惰性气体在弧光谱边缘附近的吸收光谱》, Nuovo Cim. 12, 154 (1935)。[22] U. Fano, 《组态相互作用对强度和相移的影响》, Phys. Rev. 124, 1866 (1961)。[23] V. V. Kozlov、Y. Rostovtsev 和 M. O. Scully, 《通过衰变和非相干泵浦诱导量子相干，并应用于布居俘获、无反转激光和自发辐射猝灭》, Phys. Rev. A 74, 063829 2006( )。[24] A. Dodin、T. V. Tscherbul 和 P. Brumer, 《时变非相干辐射驱动的 V 型系统的相干动力学》, J. Chem. Phys. 145, 244313 (2016)。[25] S. Koyu 和 T. V. Tscherbul, 《热环境强驱动的 V 型系统中的长寿命量子相干性》, Phys. Rev. A 98, 023811 (2018)。[26] L. Donati、F. S. Cataliotti 和 S. Gherardini, 《法诺相干生成的能量学与量子性》, Sci. Rep. 14, 20145 2024( )。[27] A. Dodin、T. Tscherbul、R. Alicki、A. Vutha 和 P. Brumer, 《非相干激发中的世俗与非世俗雷德菲尔德动力学及法诺相干：实验方案》, Phys. Rev. A 97, 013421 (2018)。[28] S. Koyu、A. Dodin、P. Brumer 和 T. V. Tscherbul, 《偏振非相干光驱动的 V 型系统中的稳态法诺相干》, Phys. Rev. Res. 3, 013295 (2021)。[29] H.-B. Breuer 和 F. Petruccione, *The Theory of Open Quantum Systems*（牛津大学出版社，纽约，2002）。[30] S.-W. Li、C. Cai 和 C. Sun, 《非平衡环境中的稳态量子相干》, Ann. Phys. 360, 19 (2015)。[31] F. Ivander、N. Anto-Sztrikacs 和 D. Segal, 《热能输运的量子相干调控：以 V 模型为例》, New Journal of Physics 24, 10.1088/1367-2630/ac9498 (2022)。[32] M. O. Scully 和 M. S. Zubairy, *Quantum Optics*（剑桥大学出版社，英国剑桥，1997）。[33] D. A. Steck, *Quantum and Atom Optics*, 技术报告（可在线访问：http://steck.us/alkalidata，2023）。[34] C. Fleming、N. I. Cummings、C. Anastopoulos 和 B. L. Hu, 《旋波近似：从开放量子系统分析看其一致性与适用性》, J. Phys. A: Math. Theor. 43, 405304 (2010)。[35] J. Larson 和 T. Mavrogordatos, *The Jaynes–Cummings Model and its Descendants*（IOP Publishing，2024），第2053–2563页。[36] A. F. Kockum、A. Miranowicz、S. De Liberato、s. Savasta 和 F. Nori, 《光与物质之间的超强耦合》, Nat. Rev. Phys. 1, 19 (2019)。[37] L. Mandel 和 E. Wolf, 《光学中带宽与相干时间的度量》, Proc. Phys. Soc. 80, 894 (1962)。[38] B. V. Ricketti、E. M. Gauger 和 A. Fedrizzi, 《自然与人工光捕获背景下的阳光相干时间》, Sci. Rep. 12, 10.1038/s41598-022-08693-0 (2022)。[39] R. D

¨ **34**, 419 1979

umcke 和 H. Spohn, 《弱耦合极限下生成元的恰当形式》, Z. Phys. B Condens. Matter ( )。[40] D. Kohen、C. C. Marston 和 D. J. Tannor, 《量子耗散理论的相空间方法》, J. Chem. Phys. 107, 5236 (1997)。[41] D. Manzano, 《林德布拉德主方程简明导论》, AIP Advances 10, 025106 (2020)。[42] C. Gardiner 和 P. Zoller, *Quantum Noise*（Springer，美国纽约，2010）。

[43] G. McCauley、B. Cruikshank、D. Bondar 和 K. Jacobs，《适用于所有区间弱阻尼量子系统的精确 Lindblad 形式主方程》，npj Quantum Inf. **6**, 10.1038/s41534-020-00299-6 (2020). [44] D. Fern´andez de la Pradilla、E. Moreno 和 J. Feist，《从 Bloch-Redfield 方程中恢复适用于一般开放量子系统的精确 Lindblad 方程》，Phys. Rev. A **109**, 062225 (2024). [45] J. Jeske、D. J. Ing、S. F. Huelga、M. B. Plenio 和 J. H. Cole，《用于模拟光捕获复合物的 Bloch-Redfield 方程》，J. Chem. Phys. **142**, 10.1063/1.4907370 (2015). [46] P. R. Eastham、P. Kirton、H. M. Cammack、B. W. Lovett 和 J. Keeling，《浴诱导相干性与世俗近似》，Phys. Rev. A **94**, 012110 (2016). [47] G. S. Agarwal 和 S. Menon，《量子干涉与热力学平衡问题》，Phys. Rev. A **63**, 023818 2001( ). [48] D. Farina 和 V. Giovannetti，《开放量子系统动力学：通过部分世俗近似恢复 Redfield 方程的正性》，Phys. Rev. A **100**, 012107 (2019). [49] A. Trushechkin，《超越世俗近似的统一 Gorini-Kossakowski-Lindblad-Sudarshan 量子主方程》，Phys. Rev. A **103**, 062226 (2021). [50] M. Gerry 和 D. Segal，《全计数统计与相干性：采用统一量子主方程研究热输运中的涨落对称性》，Phys. Rev. E **107**, 054115 (2023). [51] T. V. Tscherbul，《多能级量子系统的非世俗热化动力学：完全正性及来自科索夫斯基矩阵谱的启示》，Phys. Rev. A **112**, 012208 (2025). [52] R. Loudon，*The Quantum Theory of Light*（牛津大学出版社，纽约，2000）。[53] N. J. Higham，《重新审视矩阵指数的缩放与平方方法》，SIAM J. Matrix Anal. Appl. **26**, 1179 2005( ). [54] I.-C. Hoi、C. M. Wilson、G. Johansson、T. Palomaki、B. Peropadre 和 P. Delsing，《微波区单光子路由器的演示》，Phys. Rev. Lett. **107**, 073601 (2011). [55] S. Koyu 和 T. V. Tscherbul，《热环境驱动的 Λ 系统的长寿命量子相干动力学》，J. Chem. Phys. **157**, 124302 (2022). [56] H. S. Han、A. Lee、K. Sinha、F. K. Fatemi 和 S. L. Rolston，《真空诱导集体量子拍的观测》，Phys. Rev. Lett. **127**, 073604 (2021). [57] D. A. Steck，*Rubidium 87 D Line Data*，技术报告（可在线获取：http://steck.us/alkalidata，2023）。