arXiv:2602.19443v1 [physics.atom-ph] 23 Feb 2026

窄带原子系综吸收超宽带脉冲的优化相位掩模

L. B. A. Mélo、Daniel Felinto 和 Marcio H. G. de Miranda*

物理系，伯南布哥联邦大学，累西腓，伯南布哥，巴西

本文此前发表于 JOSA B [17]

*marcio.miranda@ufpe.br

摘要

通过结合遗传算法与空间光调制器，我们从理论上分析了如何提升原子系综中的双光子级联吸收，并考察了优化相位掩模中各种配置和参数的影响。在低原子密度下，我们比较了序贯跃迁的两种情况：两个光子来自同一脉冲，或来自两个不同的脉冲。对于前一种情况，我们预测吸收增强 9.5 倍，这与文献中此前的报道相似 [Phys. Rev. Lett. 86, 47 (2002)]。另一方面，对于后一种情况，我们得到的增强因子为 26 倍。由不同脉冲提供的两个光子的吸收，对于利用原子系综存储超宽带单光子尤为重要；在这种情况下，第二个光子将来自控制脉冲。我们研究了这一过程随原子密度的变化，并表明在光子经过较大光学深度后，双光子吸收的增强最高可达 3 倍。然而，对于 Carvalho 等人此前研究中的实验条件[Phys. Rev. A 101, 053426 (2020)], ，就控制功率和光学深度而言，我们表明，这种双光子吸收增强仍只会使弱探测脉冲的吸收略有增加。

1 引言

过去十年间，将超宽带光脉冲的信息存储在窄带宽原子存储器中的问题取得了显著进展 [6, 5, 14, 22]。这种方法有望解决自发参量下转换（SPDC）产生的光子在应用中的可扩展性问题 [7], ，也可能为卫星 [24] 产生的 SPDC 光子连接地面站的本地量子网络提供一种途径。考虑到这些 SPDC 光子存储应用，Carvalho等人 提出并展示了如何采用双光子级联跃迁，作为更常见的 Λ跃迁的替代方案，使致密窄带原子系综吸收弱超短脉冲 [7]。在级联跃迁中，弱场作用于下跃迁，而上跃迁中的较强控制场则满足双光子条件。然而，与简单线性吸收相比，文献 [7], 报道的吸收增强幅度相当小，约为 0.3%。文献 [7], 探讨了改进途径，包括优化光学深度和控制功率。本文探索另一种增强吸收的优化途径：利用相位掩模对光脉冲进行整形。在此过程中，我们重新探讨了利用相位掩模对双光子跃迁进行相干控制这一经典问题 [18, 12]。我们表明，与单个脉冲驱动序贯跃迁最著名的研究结果 [12]相比，文献 [7] 提出的用于光子存储的序贯跃迁更适合优化，可实现更高的增强因子。

通过光谱相位调节增强共振双光子级联吸收（TPCA）的可能性，早在2001年就由Dudovich等人 [12]予以证明。这一想法源于对基本TPCA建模方程的分析，其中发现，在跃迁中使用傅里叶变换极限（FTL）脉冲时会出现相消干涉。借助巧妙的光谱相位调制，Dudovich等人使最高激发态的荧光提高了7倍。这一结果得到了许多应用 [23]，并随着自适应算法 [16, 4, 8, 20, 3, 2, 11, 15]的日益使用，多年来沿多个方向不断发展。在本工作中，我们将展示如何使用两台脉冲激光器来改进TPCA，每台激光器激发不同的跃迁。就自适应相干控制而言，其优势在于能够研究复杂多参数问题的最优解，而无需检验所有拓扑可能性。在各种自适应技术中，遗传算法（GA）的特点是能够找到最优

全局解且概率很高，并且它对光谱相位优化 [11, 15]并不陌生。将这两种思路相结合，我们预测，与使用两个不同的傅里叶变换极限脉冲进行激发相比，单个原子的TPCA可增强约20倍。

在本研究中，我们的主要目标是将这些关于 TPCA 相干控制的进展应用于致密原子系综实现超宽带光子存储的问题。文献 [7] 中的研究聚焦于控制功率的微扰区间，因为这与其实验条件相符。在这种情况下，控制脉冲带来的吸收最大增强幅度相当小，但可以测量。上述关于利用相位掩模优化 TPCA 的讨论，同样适用于较低原子密度和较高控制功率下的这一问题。然而，对于任何控制功率上限，都可以通过提高样品中的原子密度来增强吸收。这种途径必须考虑介质的反作用：它会使弱脉冲发生畸变，从而显著降低其单光子吸收，形成所谓的零面积脉冲 [10, 21, 9]。弱脉冲的畸变会降低优化相位掩模所获得的增强因子。尽管如此，对于高达 720 的光学深度（OD），我们仍成功将 TPCA 提高了一倍。这表明，同时提高控制功率和原子数这一途径仍可通过相位掩模进一步优化。然而，当我们将相位掩模直接纳入文献 [7]的理论分析，并考虑其报告的实验条件时，得到的增幅要小得多，约为 50%。

下文中，第2节展示遗传算法如何优化来自单个脉冲的TPCA。在第3节中，同样的方法被应用于两个不同激光脉冲作用于单个原子的系统，使模拟更接近本工作的目标。同样在本节中，我们引入具有零面积包络的弱脉冲对TPCA的影响，同时将控制脉冲保持为傅里叶变换极限脉冲。在第4节中，我们利用前述结果来理解在不同光学深度下、致密原子介质中TPCA的相位掩模优化，条件与参考文献 [7]相同。最后，在第5节我们给出结论。

2 双光子级联吸收的相位掩模

遵循参考文献 [12], ，我们首先在第2节和第3节中采用共振双光子级联吸收模型。考虑一个三能级系统，其中 $|1\rangle$、 $|2\rangle$和 $|3\rangle$分别为最低能级、中间能级和最高激发能级。在电偶极近似下并在相互作用绘景中，相互作用势由下式给出

$$\hat{V}_I(t) = -\mu_{12} e^{-i\omega_{12}t} E_l(t) |1\rangle\langle 2| - \mu_{23} e^{-i\omega_{23}t} E_u(t-\tau) |2\rangle\langle 3| + h.c.. \tag{1}$$

其中， μ_{ij} 是跃迁 $i \longrightarrow j$ 的电偶极矩， E_l 是作用于下跃迁的场， E_u 是作用于上跃迁的场，而 τ 是两个场之间的延迟。 ω_{ij}是跃迁 $i \to j$ 的频率。

能级 $|i\rangle$ 的概率振幅为 c_i。在一阶近似下， c_3（t）可表示为

$$c_3(t) \approx -\frac{\mu_{12}\mu_{23}}{\hbar^2} \int_{-\infty}^{t} \int_{-\infty}^{t'} dt' dt" e^{i\omega_{12}t'} e^{i\omega_{23}t''} E_u^*(t'-\tau) E_l^*(t''). \tag{2}$$

考虑 $E_k(t) = \mathcal{E}_k(t) e^{i\omega_k t} + c.c.$，其中 $\mathcal{E}_k(t)$ 和 ω_k 是场 k的慢变包络和中心频率，在 $k = u$ 或 l 的情况下，旋转波近似得到

$$c_3(t) \approx -\frac{\mu_{12}\mu_{23}}{\hbar^2} e^{i\omega_{23}\tau} \int_{-\infty}^{t-\tau} \int_{-\infty}^{t'+\tau} e^{i(\omega_{23}-\omega_u)t'} e^{i(\omega_{12}-\omega_l)t''} \mathcal{E}_u^*(t') \mathcal{E}_l^*(t'') dt' dt'', \tag{3}$$

这将作为本节及下一节的基本建模方程。

2.1 相位匹配问题

参考文献 [12] 研究的系统是 ^{87}Rb原子蒸气，其能级和TPCA方案如图1(a)所示。在这种方法中，考虑一个作用于该系统的弱飞秒脉冲，同时激发两个跃迁。这等价于在式（3）中令 $E_u = E_l$和 $\tau = 0$ 。取激光器频率为 $\omega_u = \omega_l$ ，并定义失谐量$|\omega_{ij} - \omega_l| = \Delta_{ij}$:

$$c_3(t) \approx -\frac{\mu_{12}\mu_{23}}{\hbar^2} \int_{-\infty}^{t} \int_{-\infty}^{t'} e^{i\Delta_{23}t'} e^{-i\Delta_{21}t''} \mathcal{E}_l^*(t') \mathcal{E}_l^*(t'') dt' dt". \tag{4}$$

脉冲结束后的最终激发 $c_3(t \to \infty)$可在频率参考系中写为

$$c_3 \approx \frac{\mu_{12}\mu_{23}}{i\hbar^2} \left[i\pi \tilde{\mathcal{E}}^*(-\Delta_{23}) \tilde{\mathcal{E}}^*(\Delta_{12}) + \text{p.v.} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega \frac{\tilde{\mathcal{E}}^*(\Delta_{12} - \Delta_{23} - \omega) \tilde{\mathcal{E}}^*(\omega)}{\Delta_{12} - \omega} \right], \tag{5}$$

其中，p.v.表示柯西主值。式（5）突显了共振TPCA中的相位匹配问题。主要问题在于第二项，它对非共振项进行积分。共振频率以上的频率相对于共振频率以下的频率具有 π 的相移。因此，对于傅里叶变换极限脉冲，该积分会产生相消干涉，并限制总体激发 [12]。实验中，通过能级3的布居数 $\rho_{33} = c_3^* c_3$的荧光来观测其激发。

分析式(5)后，Dudovich等人在参考文献 [12]中提出，使用空间光调制器（SLM）来校正非共振频率的光谱相位失配。在相应的实验中，线宽为 $\Delta\lambda = 18$ nm的778.1纳米激光器与铷原子系综相互作用，使原子激发至能级 $5D$。为调节相位并改善这一过程，在共振频率（780.2 nm和776.0 nm）之间的激光束上施加了一个宽度为4 nm的 $\pi/2$ 相位掩模。在这些条件下，参考文献 [12] 报告称，与由傅里叶变换极限脉冲驱动的相同过程相比，TPCA的产出增加了600%；这一结果可由式(5)很好地描述。在使用两台不同的激光器优化TPCA之前，我们将介绍并应用针对单脉冲情形的自适应优化技术，以便用一个广为人知的问题检验我们的优化流程。

2.2 遗传算法

为了进行自适应优化，我们采用遗传算法，通过空间光调制器调制脉冲的光谱相位，从而优化感兴趣的参数。在第 2 节和第 3 节中，优化的量是激发态的布居数 ρ_{33} 。用于施加相位掩模的空间光调制器以 128 个矢量进行模拟，因为这对应于一种常见的商用空间光调制器型号 [19, 9]。每个矢量都能对特定频率分量施加 $[0, 2\pi]$ 的复数旋转。每个矢量的光谱分辨率为 1 rad/ps，以复现实验条件 [19, 9]。不过，在此类实验中，空间光调制器施加光谱相位调制的方式还涉及其他需要考虑的因素。我们在附录中讨论这些因素及其实现方式。

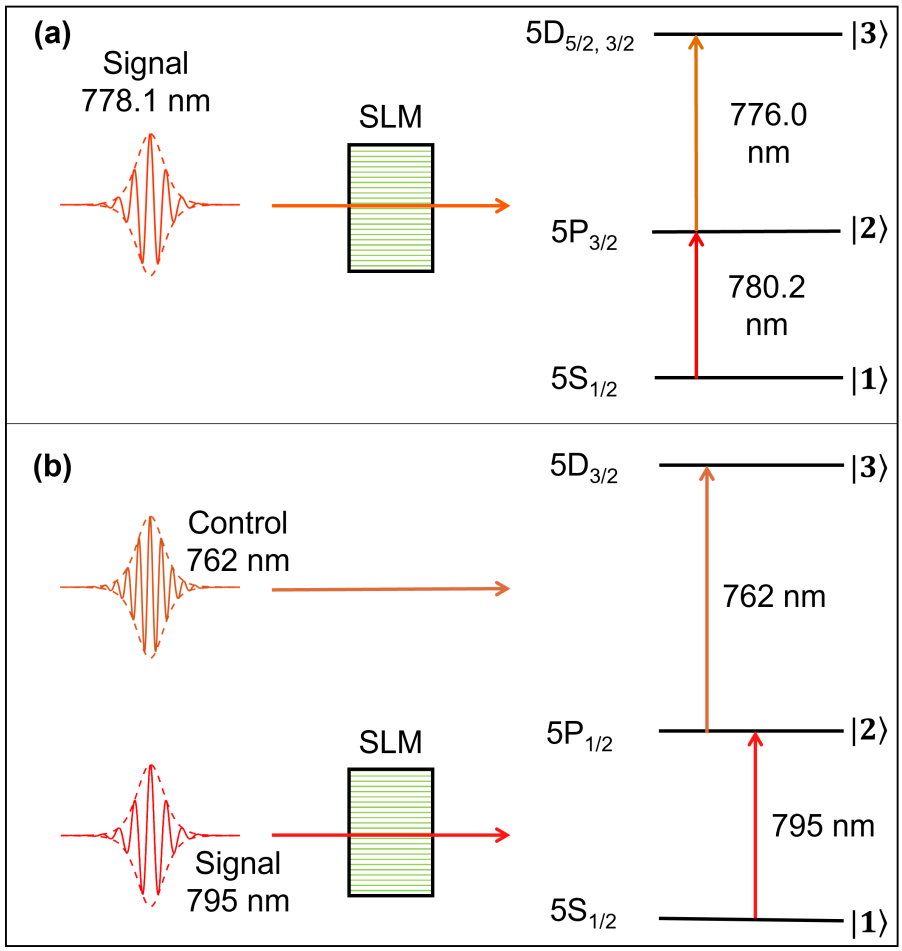

图 1：（a）单个激光器在铷原子中的双光子级联吸收。该激光器的中心波长为 778.1 nm，带宽为 18 nm，可激发 5S-5P（780.2 nm）和 5P-5D（776.0 nm）跃迁。（b）两个激光脉冲的双光子级联吸收。每个激光脉冲仅与一个跃迁共振，只有信号脉冲通过空间光调制器进行优化。控制脉冲的中心波长为 762 nm，带宽为 10.4 nm；信号脉冲的中心波长为 795 nm，带宽为 7.5 nm。

对于遗传算法，空间光调制器中每个矢量的旋转值表示为 8 个二进制位（8 位），仅在施加相位掩模时才转换为十进制（浮点数）。这样便可以用二进制格式执行所有遗传算法操作。每次运行中，算法按照以下步骤分析 20 个可能的相位掩模：

1. 应用相位掩模后，对脉冲进行测试（在本研究中，这意味着“使用建模方程进行积分”）。2. 测试结果与相位掩模的标签一同存储。3. 测试完全部 20 个相位掩模后，淘汰结果最差的一个，并复制最优的一个以填补空缺。4. 这 20 个相位掩模相互交换信息。交换按矢量进行，类似于染色体交叉，即随机选取一对相位掩模。将这对相位掩模中的每个矢量在某个二进制位处切开，并交换该特定频率对应的矢量信息。对选定的一对相位掩模中的所有矢量都执行这一操作，且每个矢量都有各自的切分点。

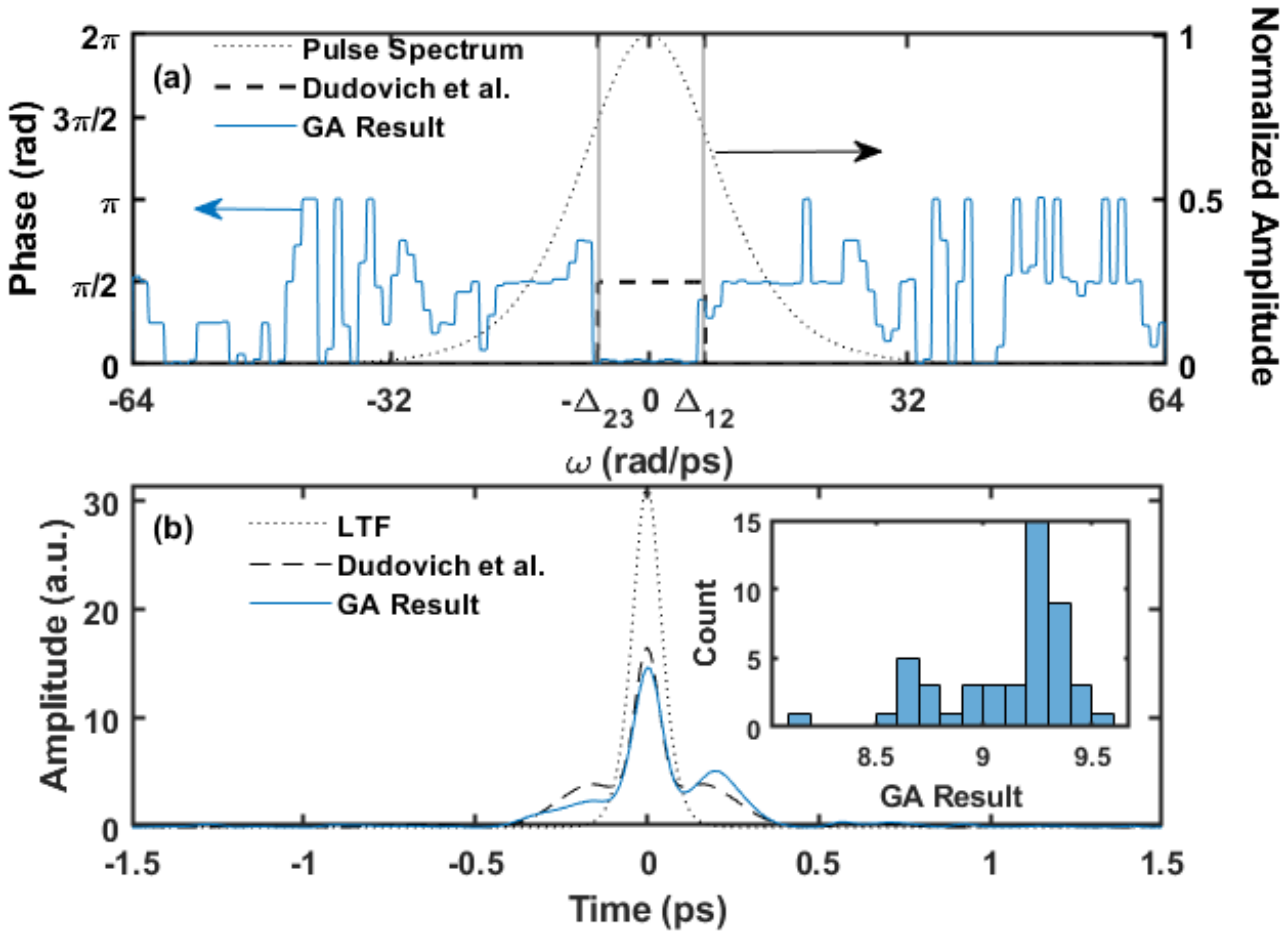

图2：遗传算法针对公式（4）和图1(a)中的参数优化得到的结果。面板(a)中，实线蓝色曲线表示在48次模拟中取得最佳结果的相位掩模。黑色点线表示脉冲光谱，黑色虚线表示参考文献 [12]中的相位掩模。箭头指向各条曲线对应的纵轴。面板(b)中，实线蓝色曲线表示由(a)中的掩模产生的脉冲形状。作为比较，黑色虚线表示参考文献 [12] 中所用相位掩模产生的脉冲，黑色点线表示原始的傅里叶变换极限脉冲。插图显示了全部48次模拟实现的吸收优化结果分布。

5. 交换完成后，随机选取所有相位掩模中的二进制位，并为这些位赋予随机二进制数。至此，一次遗传算法迭代完成。

6. 在下一次迭代中重复整个过程。

每次运行开始时，所有20个遗传算法相位掩模都相同，其脉冲中的所有矢量均未经过任何复数旋转。20个相位掩模之间的交换率为0.6，所有20480个（$20 \times 128 \times 8$）二进制位发生随机变更的概率为0.0003。

2.3 相位掩模优化

现在，我们展示根据公式（4）优化 ρ_{33} 的遗传算法结果，所用参数取自参考文献 [12]，并在图1(a)中展示。图2(a)以实线蓝色曲线显示了经过5000次迭代后得到的最佳遗传算法掩模。黑色点状曲线为脉冲光谱，旨在帮助读者理解相移与各个光谱分量之间的关系；黑色虚线曲线则是参考文献 [12]提出的相位窗口。遗传算法找到的解与

参考文献 [12], 提出的方案相似，即在共振频率之间插入一个 $\pi/2$ 相位窗口。两者的唯一区别在于相位窗口的表现形式。参考文献 [12]提出的是一个 $0 \to \pi/2 \to 0$ 窗口，而遗传算法得出的则是一个 $\pi/2 \to 0 \to \pi/2$ 窗口。尽管如此，对于这个系统而言，这两个相位窗口是相同的，因为这里只考虑相位差的绝对值。掩模在远离中心的光谱区域呈现随机形态，是因为这些频率对信号的贡献较小，而且单个脉冲顺序激发本身就存在困难。由于共振会使其上、下频率之间产生 π 的相位失配，当同一脉冲中有两个共振频率时，经过第一个共振后应调整 π ，经过第二个共振后再调整 π 。Dudovich等人正是这样改进 TPCA [12]的。他们采用了 $\pi/2$ 相位阶跃，因为公式（5）的积分中同一个场被计算了两次，两个 $\pi/2$ 相位相加后变为 π。另一方面，遗传算法会随机考察每个频率的相位。因此，对光谱一侧所做的每次改变都需要在另一侧作出妥协，而最初改变形成的随机模式会保留下来。为了确认这两种方法的相似性，我们比较了图2(b)中的脉冲形状。可以看到，遗传算法的输出（实线蓝色曲线）与参考文献 [12], 中的结果（黑色虚线曲线）十分接近。二者还可以与傅里叶变换极限脉冲（黑色点状曲线）进行比较。插图展示了我们所进行的全部48次模拟的结果分布。最值得注意的是，我们的方法预测到了增强效果。我们的模拟平均提升了9。3，而参考文献 [12] 中的实验达到了 ~ 7。由于我们使用的优化算法作用于一个非常敏感的系统，与任意解相比，出现一定程度的提升是可以预期的。此外，这些数据表明，遗传算法结果很有可能接近我们的方法所能达到的最佳结果。因此，在三次模拟中，有一次得到介于 $[9.2, 9.6]$ 之间的结果的概率为93%。这一信息非常有用，因为它免去了进行过多模拟的必要。仅需三次模拟，我们就很有可能找到非常接近遗传算法所能提供的最佳结果。从现在起，我们将进行三次而非48次模拟，并着重考察其中的最佳结果。

3 两个激光器问题

本节将研究图 1(b) 所示的情形：两个不同的相干激光脉冲激发至能级 $5D$ 的顺序跃迁。首先，一个中心波长为 795 nm、带宽为 7.5 nm（半峰全宽）的信号激光脉冲与跃迁 $5S_{1/2} \to 5P_{1/2}$ 共振。随后，一个中心波长为 762 nm、带宽为 10.4 nm（半峰全宽）的控制脉冲与 $5P_{1/2} \to 5D_{3/2}$ 跃迁共振。这意味着，与上一节不同，没有任何一个脉冲的带宽足以同时激发两个跃迁。因此，我们无需担心效应叠加，也不必满足参考文献 [7] 中的条件。τ 在图 1(b) 中表示两个脉冲之间的延迟。只有信号脉冲经过空间光调制器。在本节中，这一设置仅仅是形式上的；但在下一节中，当我们采用参考文献 [7], 提出的模型研究稠密系综问题时，为遵循该模型所采用的近似，这一设置将是必要的。为进行验证，我们还对系统进行了优化，分别考虑了由空间光调制器调制控制脉冲，以及在每个脉冲上各设置一个空间光调制器的情况；但与本文将展示的数据相比，这些方案既未带来任何改进，也未给遗传算法的响应增加任何困难。

我们现在分析的系统等价于在方程中令 $\omega_{23} - \omega_u = \omega_{12} - \omega_l = 0$ ，从而得到 (3),

$$c_3(t) \approx -\frac{\mu_{12}\mu_{23}}{\hbar^2} e^{i\omega_{23}\tau} \int_{-\infty}^{t-\tau} \int_{-\infty}^{t'+\tau} dt' dt" \, \mathcal{E}_u^*(t') \mathcal{E}_l^*(t"). \tag{6}$$

转换到场包络的频率参考系，并考虑长时间解（$t \to \infty$），我们可以写出

$$c_3 \approx \frac{\mu_{12}\mu_{23}}{i\hbar^2} e^{i\omega_{23}\tau} \left[i\pi \tilde{\mathcal{E}}_u^*(0)\tilde{\mathcal{E}}_l^*(0) + \text{p.v.} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega \frac{\tilde{\mathcal{E}}_u^*(\omega)\tilde{\mathcal{E}}_l^*(-\omega)e^{-i\omega\tau}}{\omega} \right], \tag{7}$$

其中，p.v. 表示柯西主值。同样，在积分中，共振上下两侧的项之间存在 π 相位差。不过，此时极点位于脉冲光谱的中心，而被积函数还包含一个由脉冲间延迟产生的指数项，该项带来的相位变化与 τ直接相关。方括号外的常数指数因子与 ρ_{33}无关。

3.1 优化结果

~采用遗传算法对公式（6）进行优化，仅对 $\mathcal{E}_l$（ω）分量施加相位变化。最相关的结果来自将 τ 固定为零进行优化的情形，即脉冲之间没有延迟。如图 3(a) 所示，最优相位掩模呈现出类似 π亥维赛函数的形态。在这种情况下，遗传算法仅作用于 $1/\omega$ 因子的奇异性。由于空间光调制器在公式（7）的积分中只调制单个脉冲，这与第 2 节的情况不同，因此相位调整为 π 而不是 $\pi/2$。这为修正公式（7）被积函数中的相位失配提供了更好的条件。因此，与图 2(a) 中的最优掩模相比，该相位掩模的轮廓更加清晰。

图 3(b) 中的蓝色实线描绘了应用 (a) 图中的相位掩模后得到的脉冲形状。黑色虚线表示原始的傅里叶变换极限脉冲。最终，所有运行都预测荧光增加超过 2600%，效果远胜于我们在第 (2) 节中观察到的结果，这表明对于 TPCA 问题，使用两台激光器比使用一台激光器能取得好得多的结果。

我们进行了 τ 扫描，以探究脉冲之间的延迟是否有影响，但差异微乎其微。获得的最大荧光相同，算法的收敛方式也没有任何不同。相位掩模仅作了相应调整以补偿延迟，因此在亥维赛函数上叠加形成了周期性的锯齿结构。因此，信号脉冲和控制脉冲再次同时到达原子。最终，对于参考文献 [7] 中用于优化的延迟变化范围， τ 证明并无影响。

3.2 零面积脉冲

迄今为止，我们只考虑了初始 FTL 信号脉冲与原子系统之间的 SLM。但在第 4 节中，我们将处理致密原子样品。文献 [7]中针对致密系综的模型得出的结论是，只有部分光路会参与 TPCA；这意味着信号脉冲在到达相互作用区域之前，会先穿过共振介质，从而在 TPCA 之前形成一个 0π-脉冲（零面积脉冲）。激发特定原子跃迁的脉冲面积 Θ 为

$$\Theta = \frac{1}{\hbar} \int_{-\infty}^{\infty} \boldsymbol{d} \cdot \boldsymbol{E}(t) dt, \tag{8}$$

其中， $\boldsymbol{d}$ 是跃迁的偶极矩， $\boldsymbol{E}$ 是电场的包络。脉冲面积直接给出脉冲作用后在二能级原子中发现原子处于激发态的概率 $P = \sin^2(\Theta/2)$。面积定理指出，任何具有

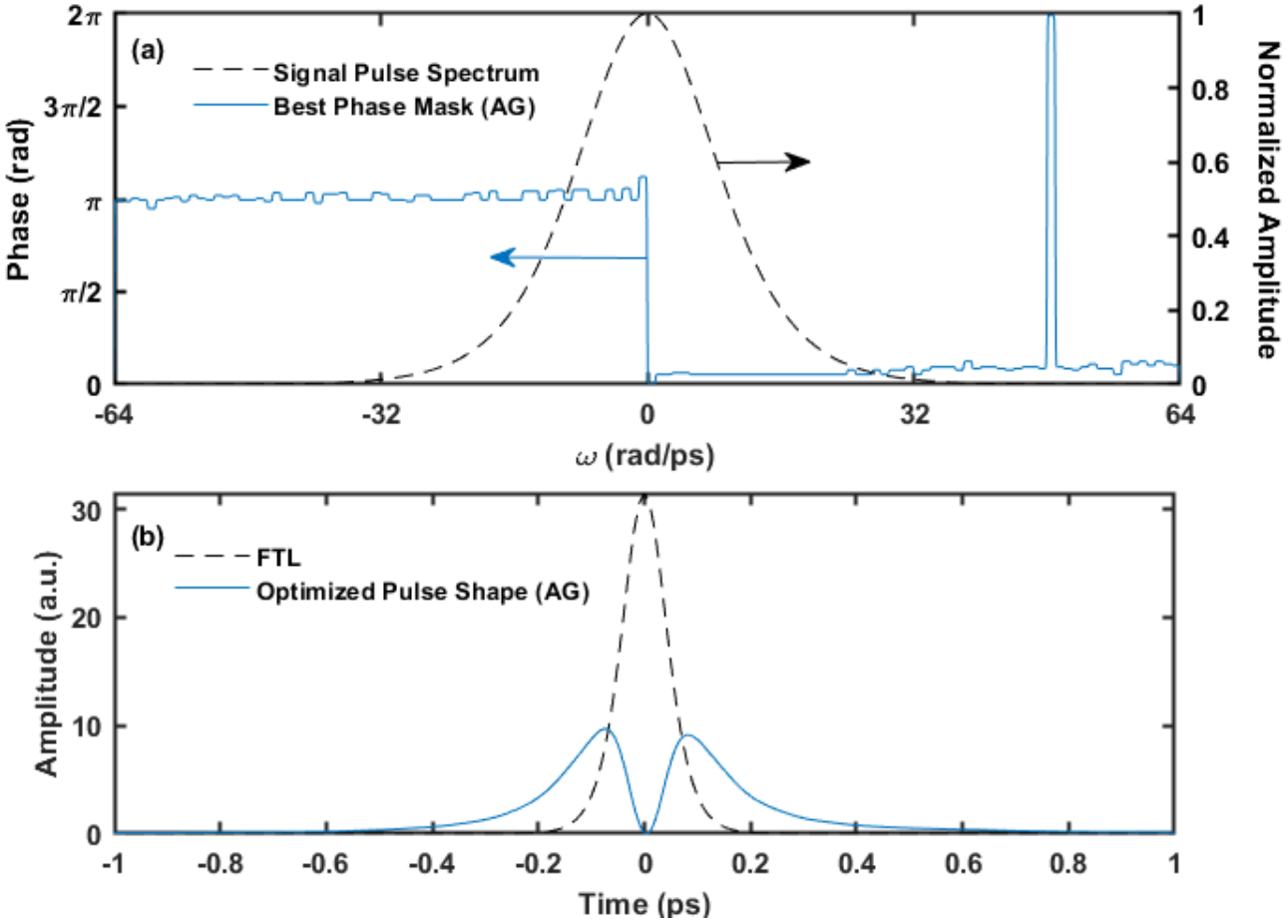

图 3：针对公式（7）和 $\tau = 0$，遗传算法优化所得的结果。图 (a) 中，实线蓝色曲线表示效果最佳的相位掩模。虚线黑色曲线表示脉冲光谱，以供参考。箭头指向各曲线对应的纵轴。图 (b) 展示了由 (a) 中相位掩模产生的脉冲形状，以实线蓝色曲线表示。虚线黑色曲线为初始傅里叶变换极限脉冲。该光谱相位掩模使吸收提高了 26 倍。

在由二能级原子系综组成的原子样品入口处具有较小面积的脉冲，都会演化为零面积脉冲 [1]。当初始脉冲的带宽远大于原子系统的带宽时，这种零面积是由脉冲包络的畸变造成的；脉冲作用期间会产生一些瞬态激发态布居，但整个脉冲作用结束后不会留下激发 [10]。产生零面积脉冲的常见方法是使光束通过一个初始共振的原子样品 [9, 13]。

在频域中，描述离开长度为 l 的样品的零面积脉冲的表达式为 [10, 7]

$$E(\omega, l) = E(\omega, 0) e^{\frac{-\alpha_0 l}{1 - i(\omega - \omega_a) T_2}}, \tag{9}$$

其中，ω_a 为跃迁频率，α_0 为光学密度，T_2 为非均匀时间衰减。介质的光学深度（OD）由 OD $= \alpha_0 l$ 给出。零面积脉冲具有多种鲜明特征。首先，当我们将取值限制在 $[0, 2\pi]$ 之间时，其脉冲相位呈现特征性的 S形曲线，并在原子共振附近出现大幅振荡，如图4(a)中的 $\omega_a = 0$ 所示。随着光学深度增加，共振附近的振荡区域扩展至光谱中越来越大的部分，这可由式 (9) 的虚部指数项描述。第二个特征是振荡的脉冲形状，如图4(a)插图所示。最终脉冲轮廓更宽，峰值振幅更低，并形成较小的尾随峰。峰序列标示出脉冲的

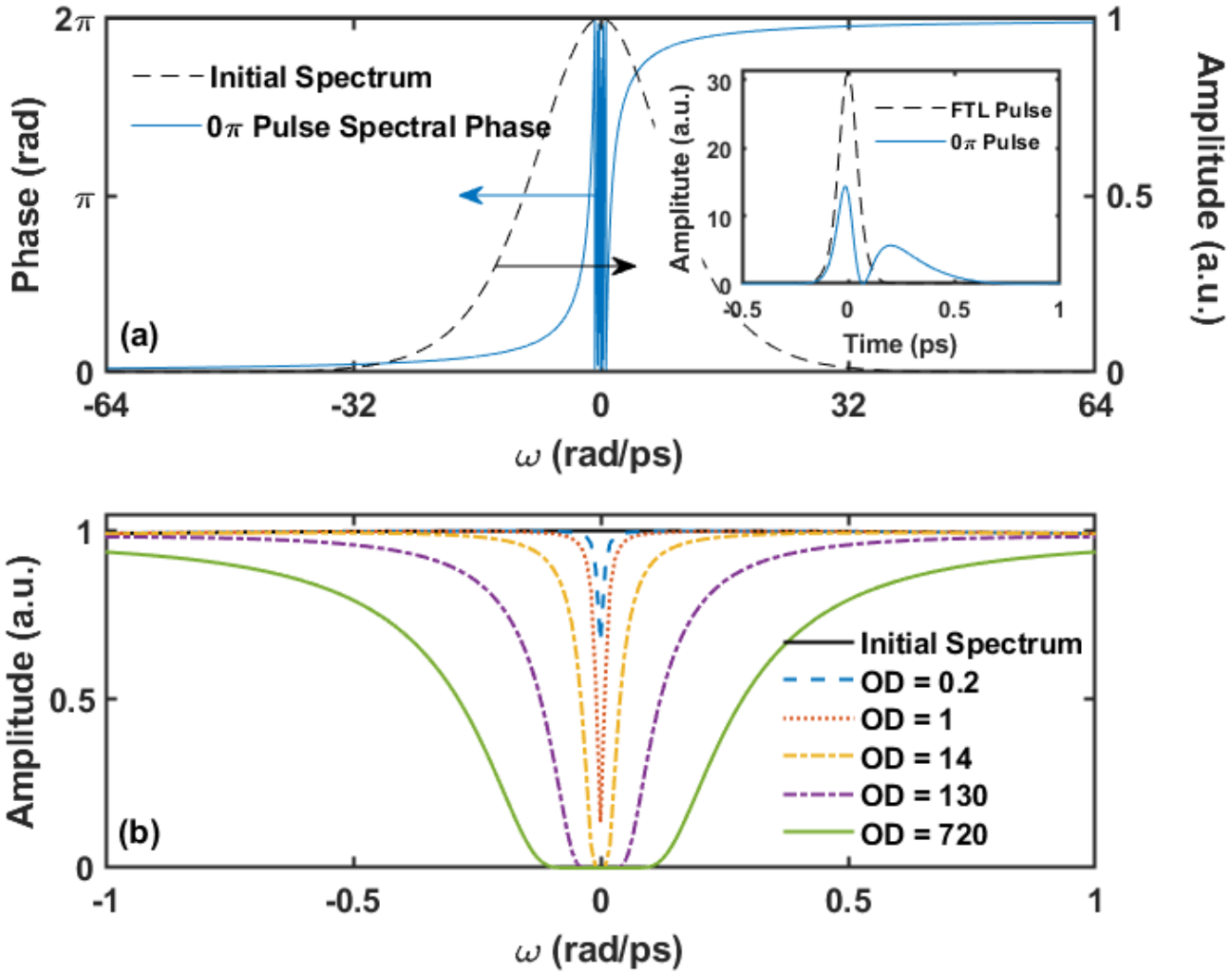

图 4：零面积脉冲的典型特性。(a) 蓝色实线绘出了脉冲离开长度为 l 的样品时的光谱相位，该相位由式 (9) 的虚部描述。原子共振（ω_a）设为零。光谱相位的变化可与表示脉冲光谱的虚线进行比较。箭头指向各曲线对应的纵轴。插图显示脉冲离开样品时的形状，以蓝色实线表示。黑色虚线表示进入原子样品前的傅里叶变换极限脉冲形状。(b) 不同光学深度下的零面积脉冲光谱，该光谱由式 (9) 的实部描述。

电场改变符号的时段，后续时段相对于原子激发 [7] 朝相反方向作用。最终得到的光谱由式 (9) 的实部描述，可见于图4(b)，其中绘出了不同光学深度的共振介质所产生的光谱变化。

3.3 零面积脉冲优化

如果我们仍然考虑单个原子，但现在让它受到来自稠密系综相互作用区域的脉冲（也就是说，它将与一个 0π脉冲相互作用），就会发现一些有趣的行为。图5展示了 TPCA 的五项结果：一个作用于下跃迁的 a 0π 脉冲，其结果随 OD 变化。黑色方块表示随着产生 0π 脉冲的介质光学深度增加， 0π 脉冲在原子中诱导的激发。这条曲线未经过优化。纵轴以傅里叶变换极限脉冲诱导的激发为基准进行归一化。请注意，随着我们使用更高的光学深度生成 a 0π 脉冲，诱导的激发会减弱。这种现象

可以用 0π 脉冲在稠密样品中传播时能量损失来解释。因此，图5可以有两种解读方式：一是原子对修改后的脉冲作出的响应；二是针对系综某一特定部分优化脉冲后所能诱导的最大可能激发（在进行优化时）。

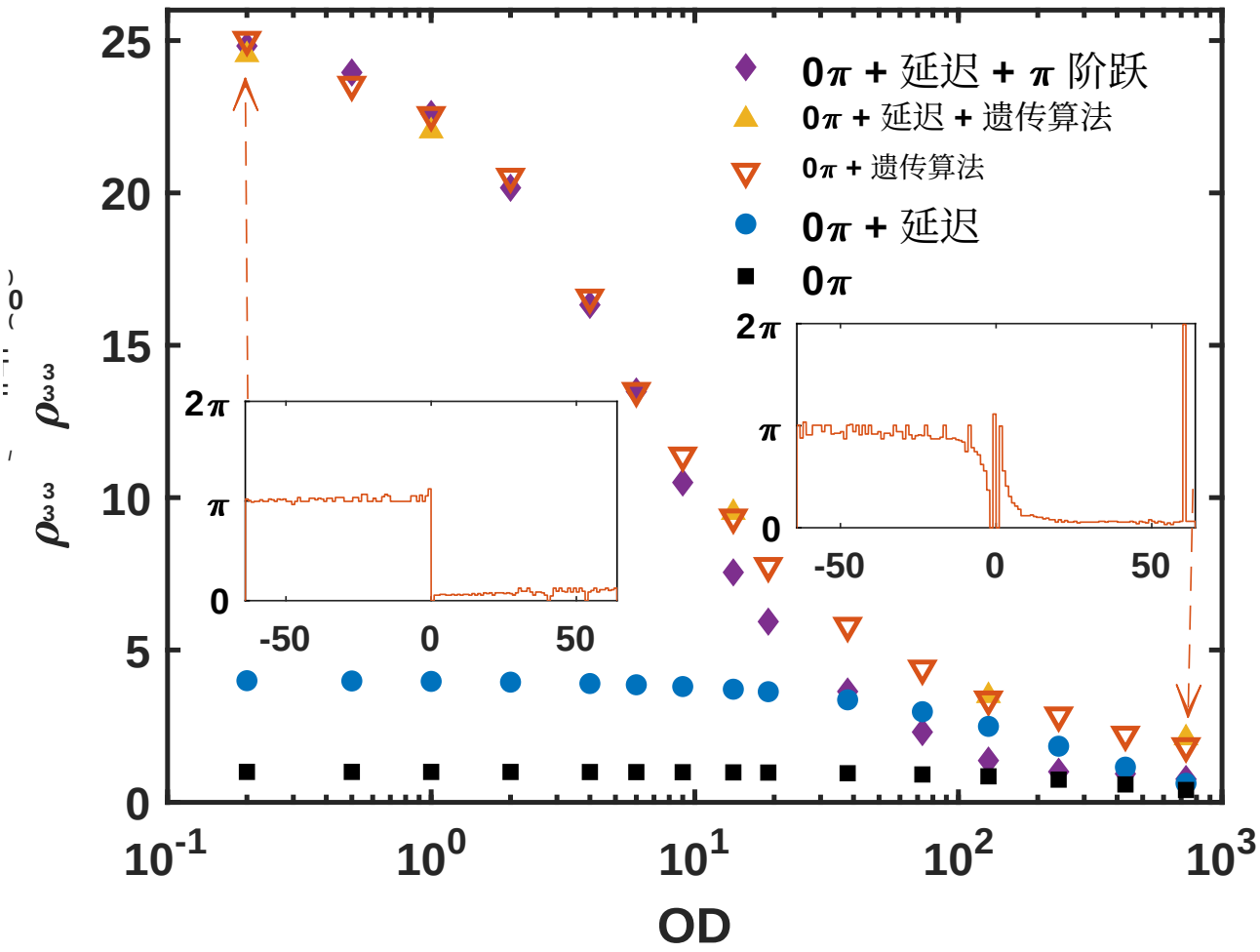

图 5：零面积脉冲下，光学深度对优化后的双光子级联吸收的影响。黑色方块表示未经优化的 a 0π 脉冲的结果。蓝色圆圈表示仅进行延迟（τ）优化后的吸收。红色向下三角形表示仅进行相位优化的结果（$\tau = 0$）。金色三角形表示进行相位和延迟优化后的结果。紫色菱形表示经 a π 阶跃相位调制并进行延迟优化的 0π 脉冲。归一化以傅里叶变换极限脉冲的吸收为基准。插图展示了遗传算法针对向下三角形得到的两个相位掩模示例。

如果在信号 0π 脉冲和控制脉冲之间加入一定的延迟（蓝色圆点），可以看到激发显著提升。对于较低的光学深度，与傅里叶变换极限脉冲相比，激发可提高四倍。对于较高的光学深度，提升仍然明显，但当光学深度超过 100 后，提升幅度下降得更快；在光学深度为 $= 720$时，提升几乎可以忽略。我们可以通过考察图4(b)和公式（7）来理解这一结果。在频域中，延迟相当于施加在线性相位于公式（7）的积分上。这意味着干涉不再处于相位最小（相消）状态，而是处于某个中间状态。这种变化使较低光学深度下的激发提高了四倍。较高光学深度下的变化，则是共振区域能量的缺失，而干涉在该区域至关重要。如图4(b)所示，当光学深度超过 $= 10$时，共振峰处已没有能量。此后，图5中可以看到激发下降；当光学深度超过 $= 100$时，这一趋势更加明显，此时共振附近频率的能量也逐渐耗尽。

对光谱相位进行遗传算法优化后（红色向下三角形），我们看到显著的提升。对于较低的光学深度，提升趋势显而易见，从而得到第3.1节所述的结果（对应光学深度为 $= 0$的情况）。将光谱相位优化结果与仅进行延迟优化的蓝色圆点相比，可以看出前者对光学深度变化的敏感性高得多。不仅绝对变化幅度更大，而且与蓝色圆点呈现出不同的定性趋势。蓝色圆点在光学深度超过 $= 100$后下降得更快，而向下三角形则在光学深度约为 $=$10时急剧下降，光学深度超过 $= 100$后下降速度减缓，趋于与蓝色圆点大致相同（但更慢）的水平。这种定性差异源于光谱优化。蓝色圆点对应的结果仅通过延迟带来了小幅光谱相位调整，而遗传算法为了提高激发，会彻底解决相消干涉问题。遗传算法的解能够利用共振附近的全部能量，从而在光学深度为 $= 0$时提高激发 $26\times$ 。但是，对于 0π 脉冲，共振区域的能量已经耗尽。这种情况无法通过任何光谱相位调整来改变，这解释了为什么随着光学深度增加，遗传算法无法达到同样的激发水平。与样品延迟优化相比，虽然当光学深度超过 100 时，圆点和向下三角形所代表的激发衰减似乎相似，但完全优化的脉冲衰减略慢，因为光谱相位优化在设计上总能带来更好的结果。归根结底，遗传算法结果始终优于单独进行延迟优化的所有结果；即使在光学深度为 $= 720$这样的极端情况下，表现也 $3\times$更好。

再次表明，如黄色三角形所示，同时采用遗传算法光谱相位优化和延迟扫描并不能提高激发效果。我们仅列出少数几个样品，以进一步说明遗传算法光谱相位优化已经能够涵盖所有延迟调整（在空间光调制器的范围和实验限制内）。与之前一样，脉冲之间的任何延迟都通过线性光谱相位进行补偿，其随频率变化的 $0 \to 2\pi$ 速率与以秒为单位的延迟互为倒数。这证实了在我们的分析中，延迟优化与相位优化是冗余的。我们确实继续探索了延迟对优化的影响，但得出的结论仍然相同。因此，本文将不再考虑延迟优化。

最后，如果我们只采用 π 阶跃光谱相位，并结合延迟调整，是否足以解决稠密系综中的干涉问题？图5中的紫色菱形展示了这种情况。我们可以看到，当光学深度低于 10 时， π 阶跃方案与遗传算法得到的结果相同。但超过这一点后，由于 0π 脉冲调整引起的光谱相位变化越来越大，它便无法取得同样的结果。对于每个紫色菱形，我们都进行了延迟优化，以确保获得尽可能好的结果（正如实验中会做的那样）。尽管如此，我们发现，在光学深度超过 $= 10$后，这种方法不仅无法维持遗传算法所达到的水平，而且在光学深度高于≈ 50时，效果甚至不如仅对 0π 脉冲进行延迟调整（蓝色圆点所示）。这是因为 0π 光谱变化最终会与 π阶跃相位叠加，形成的相位总和比单独调整延迟时更接近破坏性干涉。延迟无法补偿这种叠加，因此在紫色菱形所示的情况下，光学深度较高时激发程度较低。图5中的插图进一步印证了这一点，其中展示了向下三角形对应的两个优化相位掩模示例：一个对应光学深度为 $= 19$的情况，与图3(a)中的结果非常相似；另一个对应光学深度为 $= 720$ 的情况，其相位发生变化，以补偿图4(a)所示的相位。请注意，遗传算法的结果取决于空间光调制器的分辨率。分辨率越高，结果可能越好。不过，我们采用的是参考文献 [7]中实验所用的分辨率。

4 致密原子介质中的增强吸收

基于前面各节的讨论，我们接下来将分析整个致密原子介质的吸收光谱相位优化。所考虑的系统由图1(b)中讨论的多个单个原子组成。这对模型有重要影响；对于该系统，我们将遵循 Carvalho 等人提出的处理方法[7], ，因为该方法与实验数据吻合良好。下面简要介绍模型的重要方面；更多详情请参见 [7]。

考虑一对沿 z 方向传播、彼此延迟 τ 的脉冲，穿过长度为 l 的原子样品后，从样品出射的信号脉冲在频域中可表示为

$$\tilde{\Omega}_s^{(1)}(l,\omega) = \tilde{\Omega}_s^{(0)}(l,\omega) + \frac{\Theta_c}{8} e^{i\omega(\tau+\frac{l}{c})} \int_{-\infty}^{\tau} dt F(\omega,t), \tag{10}$$

其中

$$F(\omega,t) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega' e^{-i\omega' t} T(\omega,\omega') \tilde{\Omega}_s^*(0,\omega') \tilde{\Omega}_c^*(0,-\omega), \tag{11}$$

with

$$T(\omega,\omega') = \frac{A(\omega) e^{-OD[A(\omega)+A(\omega')]/2}}{[A(\omega)-A(\omega')]} \left\{ e^{OD_c[A(\omega)-A(\omega')]/2}. - e^{-OD_c[A(\omega)-A(\omega')]/2} \right\}, \tag{12}$$

and

$$A(\omega) = \frac{1}{1-i\omega T_2}. \tag{13}$$

$\tilde{\Omega}_s^{(1)}$ 是信号场傅里叶变换在 Θ_c 中的一阶微扰， Θ_c 是控制脉冲面积， ω 是角频率。$\tilde{\Omega}_s^{(0)}$ 是零面积信号脉冲的傅里叶变换，表示 Θ_c 中不存在微扰。Ω_c^* 是控制场傅里叶变换的复共轭， OD_c 是相互作用区域（位于样品中心）的光学深度，T_2 是非均匀时间衰减，由 $T_2 = 1/(2\omega_{21}\sqrt{2ln(2)k_bT/m_{Rb}c^2})$ 给出；其中 ω_{21} 是从激发态跃迁至基态的发射频率， k_b 是玻尔兹曼常数， T 是以开尔文为单位的温度， m_{Rb} 是铷的质量， c 是光速。

公式（10）表明，该脉冲具有我们之前讨论过的两个特征。第一个来自 $\tilde{\Omega}_s^{(0)}$，它是

$$\tilde{\Omega}_s^{(0)}(z,\omega) = \tilde{\Omega}_s(0,\omega) e^{\left[\frac{i\omega}{c} - \alpha_0 A(\omega)\right] z}, \tag{14}$$

第 3.2 节中讨论过的频域零面积脉冲。第二个特征来自 $e^{i\omega\tau}$，它会使脉冲的光谱相位呈线性变化，如第 3 节中的公式（7）所示。公式（10）是在一些近似条件下得出的。其中一项重要近似是对控制脉冲面积（Θ_c）进行展开，并假设控制脉冲在样品内的相互作用区域中传播时，其面积保持不变。基于这一关于控制场的假设，我们决定只使用一个空间光调制器来调制信号脉冲，如第 3 节所述。尽管存在一些近似，参考文献 [7] 中的结果显示，理论与实验数据在定性上相似。因此，我们将利用该理论，在遗传算法的辅助下预先确定实验优化方案。

系综对脉冲的吸收变化写为

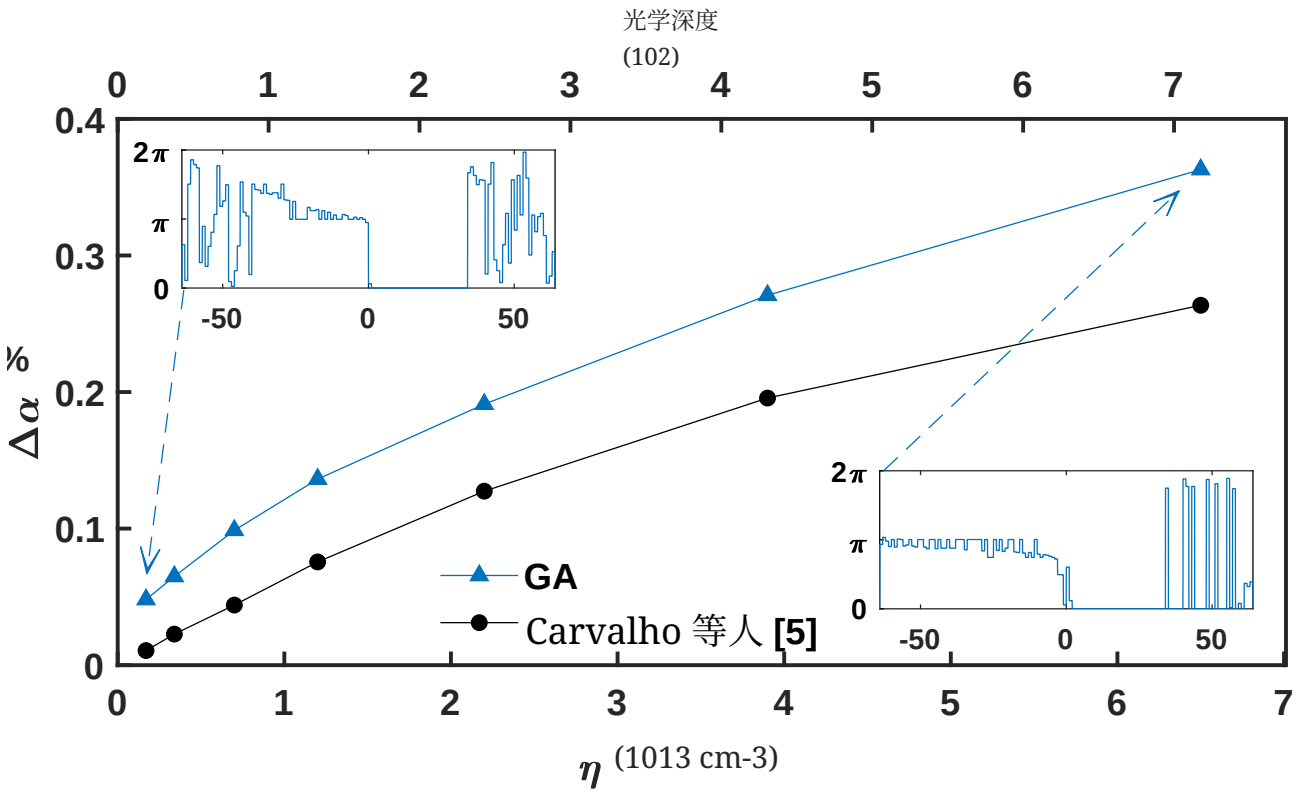

图 6：使用式 (10) 对不同光学深度值进行优化。我们比较傅里叶变换极限脉冲（位于原子样品前）的吸收（黑色圆点）与优化脉冲的吸收（蓝色三角形）。较低光学深度下的相对增益高于较高光学深度下的增益。对于光学深度 $= 19$，优化后~ 4 倍于 $\Delta\alpha$ 。对于光学深度 $= 720$，优化后 ~ 1.5 倍于 $\Delta\alpha$ 。所有光学深度值下的平均相对提升为 ~ 2.5。我们将光学深度值转换为原子密度，以便更容易地与参考文献 [7]中的结果进行比较。插图展示了遗传算法得到的优化相位掩模示例。

$$\Delta\alpha = \frac{U^{(0)}(l) - U^{(1)}(l)}{U^{(0)}(l)}, \tag{15}$$

其中

$$U^{(i)}(l) = \int_{-\infty}^{\infty} d\omega \tilde{\Omega}_s^{(i)}(l,\omega). \tag{16}$$

最终， $\Delta\alpha$ 是本节中遗传算法所采用的优化参数。

4.1 优化吸收

遗传算法在 Carvalho 等人所展示的最佳条件基础上，采用不同的光学深度（OD）值（或原子密度，η），对式（10）所述的 TPCA 进行了优化。图6展示了遗传算法优化 TPCA 的表现（蓝色三角形），并与参考文献 [7], 中的傅里叶变换极限脉冲结果（黑色圆圈）进行了比较。平均而言，$\Delta\alpha$ 提高到了略高于傅里叶变换极限值的两倍。不过，正如前文所预期的，光学深度较低时，相对提升幅度更大。这为实验带来了两种可能的方案：一种是直接提高光学深度，以提升吸收的绝对值；另一种是保持较低的光学深度，从而提高对光谱相位的敏感度，这一点也在

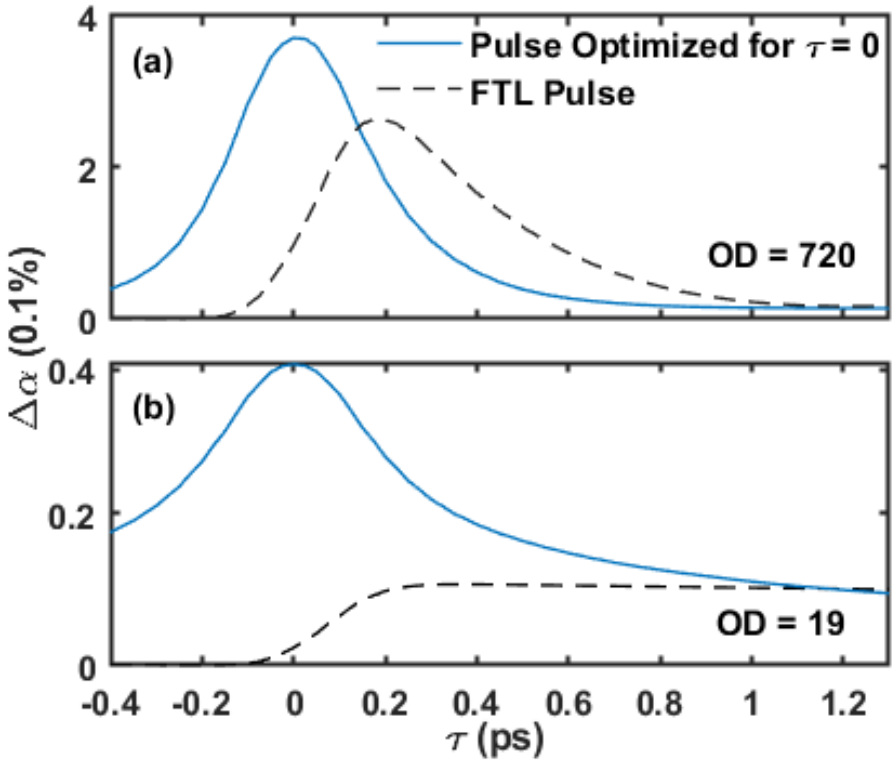

图 7：给定相位掩模时，吸收变化随脉冲延迟 $\Delta\alpha$（τ）的变化。蓝色实线表示优化脉冲的表现。黑色虚线表示傅里叶变换极限脉冲的结果，使用参考文献 [7] 提供的模型重新计算得出。我们以 (a) 光学深度 $= 720$ 和 (b) 光学深度 $= 19$ 的结果为例。这些详细曲线表明，光学深度越低，相对提升越大。

图5中指出。值得注意的是，优化后的吸收曲线形状与未优化曲线相似，并且随着 η 增大，吸收趋于达到一个极限值。插图展示了两个示例的优化相位掩模，它们都很容易与我们先前的结果联系起来，体现了我们分析方法的有效性。这些相位掩模中出现锯齿结构，是由于补偿了样品内 TPCA 之前的共振介质；该介质对信号脉冲起到延迟线的作用。

图 7 有助于理解优化对低光学深度和高光学深度的影响。图中展示了在选择并应用优化光谱相位掩模后，扫描脉冲之间的时间延迟（τ）时吸收如何变化。蓝色曲线表示采用优化相位掩模得到的结果，曲线峰值即为图 6 所示的数值。黑色虚线表示 Carvalho 等人 [7] 得到的结果。图中显示，经过光谱相位优化后，光学深度越低，相对提升越大。最后还需指出，蓝色实线曲线的峰值位于 $\tau = 0$。正如前文所述，遗传算法认为无需设置任何延迟（并且已对此进行测试），这与黑色虚线所示结果形成对比。

5 结论与展望

我们展示了如何通过光谱相位优化，将简单 TPCA 的增强提升至 2600%；同时借助 GA 了解改进的来源，最终无需采用延迟调整。对于参考文献 [7], 中所建模的 TPCA，我们也获得了积极结果，表明它确实可以通过光谱相位进行优化。尽管参数和模型较为复杂，但对于

单个原子模型的光谱相位优化观察结果，能够以一种简化的方式预示复杂系统中的部分优化效果。通过这种方法，我们展示了致密介质中 TPCA 的平均相对增强，是此前所展示结果的两倍以上。此外，我们的结果已经可以进行实验验证。

我们的结果还表明，对于所考虑的空间光调制器，光谱相位改进已达到某些极限。我们多次运行遗传算法，每次都运行至饱和，所有运行均得到了相同的结果。这让我们相信，在所施加的实验约束下，通过光谱相位调节来改进这些过程并无其他途径。不过，遗传算法本身仍可改进。例如，对于某些实验，可以采用根据光谱加权的修改，而非随机修改，从而加快运行速度；也可以使用分辨率更高的空间光调制器进行模拟；或许还可以像参考文献 [12] 中那样结合频率截断。即使这些改动无法大幅改进本文展示的结果，也可能使这项技术更适用于不同的应用。

附录

对于模拟，我们定义了以下参数：相位掩模光谱效率、时间窗口大小和时间分辨率。相位掩模光谱效率受光谱分辨率限制。由于我们希望将这些模拟与实验进行比较，因此采用了可用衍射光栅的分辨率，即 0.5 rad/ps。我们还必须考虑到，空间光调制器是离散的，其效率从边缘到中心会发生变化。因此，我们对相位掩模中每个频率点的分辨率限制进行了平滑处理，并将光谱分辨率作为相位掩模光谱效率的一个因子。因此，我们选择了一个逻辑斯蒂函数，其形式如下：

$$f(x) = \frac{M}{1 + e^{-A(x-x_0)}}, \tag{17}$$

其中，M 为函数最大值，A 为曲线斜率，x_0 为函数达到 $M/2$时的位置。

所考虑的时间窗口必须足够长，以确保模拟正确运行。对于图 2 中的模拟，我们通过改变点数测试了数值稳定性。结果如图 8(a) 所示。为了使解保持在同一区域，需要满足最低点数要求。由于自适应遗传算法具有概率性，预计会出现小幅波动。图中使用了 $2 \sim 32000$ 个点。每次改变模拟参数，都必须重新验证稳定性。

最后一个参数是时间分辨率。在本例中，时间窗口固定为 ~ 320 ps，并改变时间分辨率。为了将时间窗口保持在 320 ps，必须根据时间分辨率按比例增加点数。结果如图 8(b) 所示，这表明时间分辨率保持在 0.01 ps 以下至关重要。因此，图 2 中采用了 0.005 ps 的时间分辨率。每当问题条件发生变化时，都必须测试时间分辨率。

资助

本研究得到巴西资助机构 CNPq（INCT-IQ 项目，编号 465469/2014-0）、CAPES（PROEX 534/2018 项目，编号 23038.003382/2018-39）、FAPESP（2021/06535-0）和 FACEPE（PRONEM 08/2014 项目，编号 APQ-1178- 1.05/14）的支持。

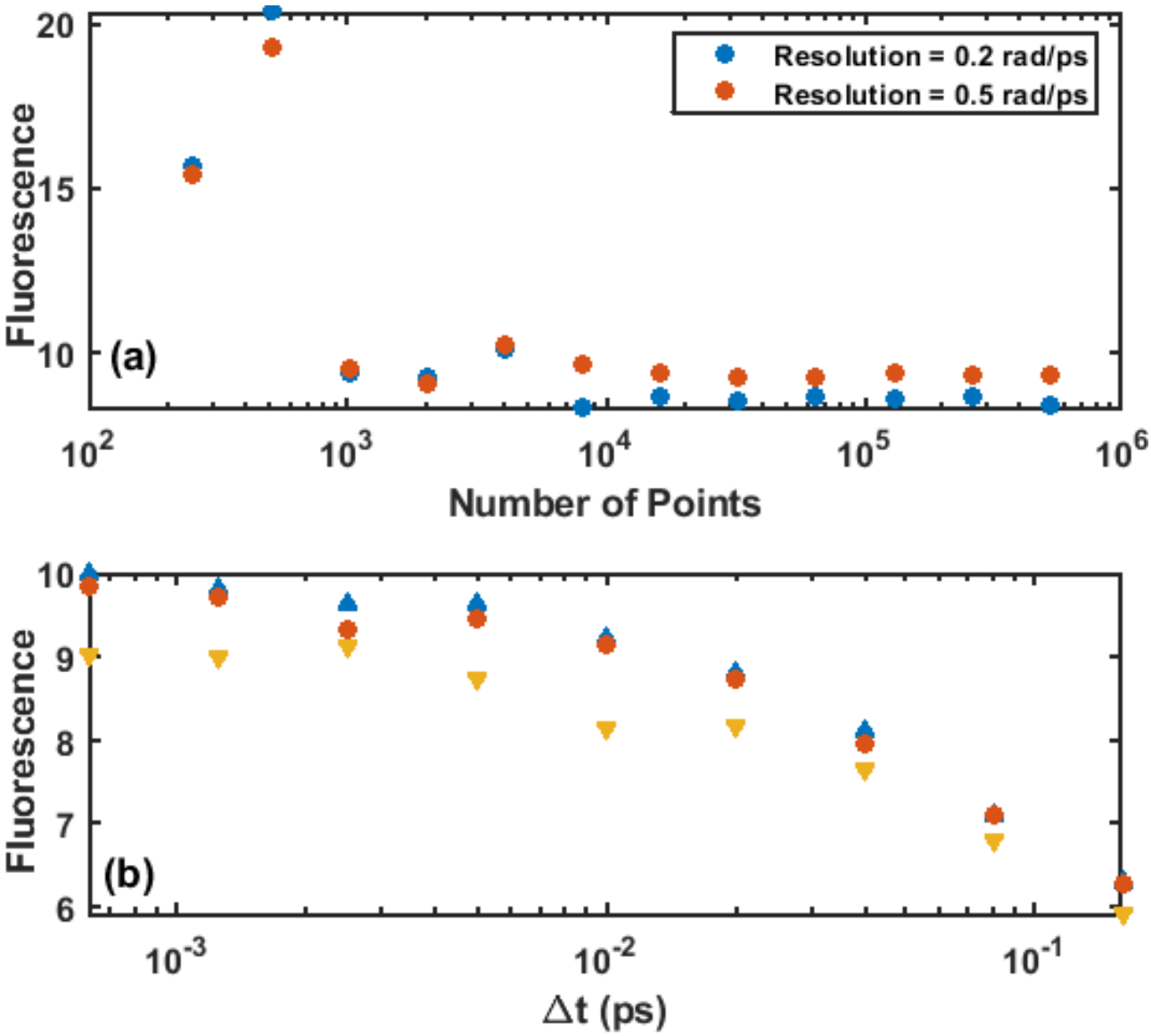

图8：（a）自适应遗传算法结果与模拟中的点数的关系。蓝色圆圈表示光谱分辨率高于红色圆圈（0.5 rad/ps）的模拟（0.2 rad/ps）。（b）自适应遗传算法结果与时间分辨率的关系。时间窗口为 ~320 ps。每种配置均进行了三次模拟。蓝色三角形表示最佳结果，黄色倒三角形表示最差结果，红色圆圈表示另一结果。

利益披露

作者声明不存在任何利益冲突。

参考文献

[1] Leslie Allen 和 JH Eberly。《光学共振与二能级原子》，第28卷。Courier Corporation，1987年。[2] Taro Ando、Tsuneyuki Urakami、Haruyasu Itoh 和 Yutaka Tsuchiya。利用自适应量子控制优化共振双光子吸收。《应用物理快报》，80(22):4265–4267，2002年。[3] Joshua B Ballard、Hans U Stauffer、Zohar Amitay 和 Stephen R Leone。利用进化算法优化 Li_2 中的波包系数：共振波长和非共振波长的作用。《化学物理学杂志》，116(4):1350–1360，2002年。[4] Joshua B Ballard、Hans U Stauffer、Elizabeth Mirowski 和 Stephen R Leone。利用整形超快脉冲同时控制 Li_2 中含时布居转移动力学和波包量子干涉。《物理评论A辑》，66(4):043402，2002年。[5] Philip J Bustard、Jennifer Erskine、Duncan G England、Josh Nunn、Paul Hockett、Rune Lausten、Michael Spanner 和 Benjamin J Sussman。氢分子中的转动量子介导的太赫兹带宽光子之间的非经典关联。《光学快报》，40(6):922–925，2015年。[6] Philip J Bustard、Rune Lausten、Duncan G England 和 Benjamin J Sussman。迈向分子量子处理：用于光的太赫兹带宽相干存储器。arXiv预印本 arXiv:1308.4373，2013年。[7] AJA Carvalho、RSN Moreira、J Ferraz、SS Vianna、LH Acioli 和 D Felinto。窄带原子介质对弱超短光脉冲的增强吸收。《物理评论A辑》，101(5):053426，2020年。[8] Matthew Comstock、Vadim V Lozovoy、Igor Pastirk 和 Marcos Dantus。多光子脉冲内干涉 6：二进制相位整形。《光学快报》，12(6):1061–1066，2004年。[9] Luca S Costanzo、Antonio S Coelho、Daniele Pellegrino、Milrian S Mendes、Lucio Acioli、Katiuscia N Cassemiro、Daniel Felinto、Alessandro Zavatta 和 Marco Bellini。零面积单光子脉冲。《物理评论快报》，116(2):023602，2016年。[10] MD Crisp。相干光小面积脉冲在共振介质中的传播。《物理评论A辑》，1(6):1604，1970年。[11] Lian-Zhong Deng、Yun-Hua Yao、Li Deng、Huai-Yuan Jia、Ye Zheng、Cheng Xu、Jian-Ping Li、Tian-Qing Jia、Jian-Rong Qiu、Zhen-Rong Sun 等。通过带有最优反馈控制的相位整形飞秒激光场，调控 Er $3+$ 掺杂玻璃陶瓷中的上转换发光。《物理学前沿》，14(1):1–7，2019年。[12]Nirit Dudovich、Barak Dayan、Sarah M Gallagher Faeder 和 Yaron Silberberg。傅里叶变换极限脉冲并非共振多光子跃迁的最优选择。《物理评论快报》，86(1):47，2001年。

[13] Nirit Dudovich、Dan Oron 和 Yaron Silberberg。光诱导共振跃迁的相干瞬态增强。《物理评论快报》，88(12):123004，2002年。[14] Duncan G England、Kent AG Fisher、Jean-Philippe W MacLean、Philip J Bustard、Rune Lausten、Kevin J Resch 和 Benjamin J Sussman。利用室温金刚石量子存储器存储和读取太赫兹带宽单光子。《物理评论快报》，114(5):053602，2015年。[15] Yunxia Huang、Shuwu Xu、Xianming Ji 和 Xiaohua Yang。优化飞秒激光诱导的上转换发光增强及 $Dy3+$ 掺杂玻璃中的抑制。《激光物理快报》，17(1):016001，2019年。[16] Vadim V Lozovoy、Igor Pastirk、Katherine A Walowicz 和 Marcos Dantus。多光子脉冲内干涉。II. 利用整形脉冲控制双光子和三光子激光诱导荧光。《化学物理学杂志》，118(7):3187–3196，2003年。[17] Lucas B. A. Mélo、Daniel Felinto 和 Marcio H. G. de Miranda。窄带原子系综吸收超宽带脉冲的优化相位掩模。《美国光学学会会志B》，40(10):2556–2565，2023年10月。[18] Doron Meshulach 和 Yaron Silberberg。利用飞秒激光脉冲对双光子跃迁进行相干量子控制。《自然》，396(6708):239–242，1998年。[19] Constantina Polycarpou、KN Cassemiro、G Venturi、A Zavatta 和 M Bellini。任意整形超短量子光态的自适应探测。《物理评论快报》，109(5):053602，2012年。[20] Jonathan Roslund 和 Herschel Rabitz。将梯度算法应用于实验室量子控制。《物理评论A辑》，79(5):053417，2009年。[21] Joshua E Rothenberg、D Grischkowsky 和 AC Balant。观察到 $0\ \pi$ 脉冲的形成。《物理评论快报》，53(6):552，1984年。[22] Kai Shinbrough、DR Pearson、B Fang、EA Goldschmidt 和 VO Lorenz。第五章——原子系综中的宽带量子存储。《原子、分子与光学物理进展》，第297–360页，2023年。[23] Yaron Silberberg。用于非线性光谱学和显微术的量子相干控制。《物理化学年评》，60:277–292，2009年。[24] Juan Yin、Yuan Cao、Yu-Huai Li、廖胜凯、张亮、任继刚、蔡文奇、刘尉悦、李波、戴辉等。通过卫星在1200千米距离上分发纠缠。《科学》，356(6343):1140–1144，2017年。