

各向同性介质中任意偏振光的 简并四波混频

顾 世 杰

(中国科学院物理研究所)

1983年4月29日收到

提 要

在各向同性介质的简并四波混频中,就共线(探测光波矢平行于泵浦光的波矢)和非共线装置,线偏振和圆偏振等情况,推导出反射波的复振幅(包括偏振)与探测光和泵浦光的振幅、偏振、介质的三阶非线性张量元之间的关系式.在非共线装置中,泵浦光为平行的线偏振光时,可利用探测波与反射波的偏振方向间的关系求出 χ_{1111} 与 χ_{1221} 的比值;泵浦光为同旋性的圆偏振光时,可获得理想的复共轭波.在共线装置中,在反射波中总含有一定的非共轭的成分,振幅反射系数与样品厚度的关系可能是正切、双曲正切或线性函数关系;泵浦光为平行的线偏振光时,若 $|\chi_{1221}| > |\chi_{1122}|$,可产生自振荡现象;在泵浦光为旋性相反的圆偏振光时,对圆偏振的探测光可产生理想的平面镜反射的效果,等等.结果可用来解释一些已知的实验结果,并对新的实验设计具有一定的指导作用.

引 言

近年来,无论在理论上还是技术上,简并四波混频都已有很大的进展^[1,2].它已成为研究材料性质的有力工具,和形成光学相位共轭波的有效方法^[1].图1是简并四波混频的一般装置^[3].信号光4与探测光3的空间相位互成复共轭,而它们的偏振态一般是不同的,其间的关系与光束1,2,3的偏振态以及非线性张量元 $\chi_{ijkl}^{(3)}$ 有关.作为一个理想的(或完全的)复共轭波,除了空间相位是互成复共轭,还要求它们的偏振态也是相同的^[1].Zel'dovich等人^[4,5]提出几种用简并四波混频方法得到理想的复共轭波的方案,并用实验证实了其中一个方案.他们的另一方案也已为Hellwarth^[6]在实验上证实了.

被讨论和应用得最多的装置是1,2,3波的偏振相互平行,并垂直于入射面的情况^[3].1,2,3波的偏振态不同的装置也有实用的价值,如Pepper等人^[7]在共线装置($\alpha = 0$)中使波3的偏振方向垂直1,2波的偏振方向,这样尽管信号波的传播方向与泵浦光的一致,而它们的偏振方向是互相垂直的,所以两者很易区分开来.共线装置的优点是波在非线性介质中的相互作用区域可以很长,因而增益较高,甚至可以达到振荡.用圆偏振光作为泵浦光的装置情况还很少作过讨论,叶佩弦等人^[8]曾在理论上对共线装置情况作过一些讨论.总之,在简并四波混频中,光的偏振态是一个十分重要的因素.本文将在理论上较

系统地讨论偏振态对简并四波混频的影响. 假定非线性介质是各向同性的, 分为非共线和共线装置两种情况, 讨论线偏振和圆偏振波的简并四波混频.

理 论 计 算

图 1 是一般简并四波混频装置的示意图. 四个波的频率都是 ω . 为使问题简化起

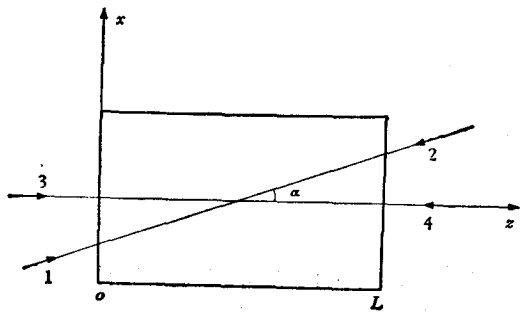


图 1

见, 取 3, 4 波的传播方向平行于 z 轴, 由于讨论的是各向同性介质, 这样做并不失一般性. 1, 2 波的传播方向与 z 轴成 α 角, $\alpha = 0$ 是共线的情况. 四个波的波矢满足如下条件:

$$\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 = 0, \quad \mathbf{k}_3 + \mathbf{k}_4 = 0. \quad (1)$$

取平面波的形式

$$\mathbf{E}_i(\mathbf{r}) = \frac{1}{2} \mathbf{E}_i(z) e^{i(\omega t - \mathbf{k}_i \cdot \mathbf{r})} + \text{c. c.} \quad (i = 1, 2, 3, 4).$$

这里我们已假定振幅 $\mathbf{E}_i(z)$ 只是 z 的慢变函数. 解 Maxwell 方程:

$$\nabla \times \nabla \times \mathbf{E} + \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} (\epsilon \mathbf{E}) = -\frac{4\pi}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathbf{P}_{NL} \quad (3)$$

就可得到所要求的信号波的复振幅 $\mathbf{E}_i(z)$. 采用标准的方法^[3], 即取横波近似, 这样

$\text{div } \mathbf{E} = 0$, 以及绝热近似 $\left| \frac{d^2 E_i}{dz^2} \right| \ll \left| k_i \frac{dE_i}{dz} \right|$. 因此 (3) 式的左边为

$$i\epsilon k_z \frac{dE(z)}{dz} e^{i(\omega t - \mathbf{k} \cdot \mathbf{r})} + \text{c. c.} \quad (4)$$

再假定 1, 2 波是很强的, 在介质中传播时的变化很小, 因而认为它们是不变的, 这样只需求出确定 E_3 和 E_4 的方程.

(3) 式右边对四波混频有贡献的是三次非线性极化 $\mathbf{P}_{NL}^{(3)}$. 略去非线性折射率变化的贡献, 即略去 $|E_i|^2 E_i$ 这样的项的贡献. 因而在非共线情况 ($\alpha \neq 0$), 只有 $E_1 E_2 E_3^*$ 和 $E_1 E_2 E_4^*$ 这样的项才有贡献. 在共线情况 (这时 $\mathbf{k}_1 = \mathbf{k}_3 = -\mathbf{k}_2 = -\mathbf{k}_4 = \mathbf{k}$), 还有像 $E_1^* E_2 E_3$ 和 $E_1 E_2^* E_4$ 这样的项的贡献. 例如在 $\alpha \neq 0$ 时有

$$\begin{aligned} P_{NL}^{(3)}(\omega, \mathbf{k}_4) &= \frac{3}{4} \chi_{ijkl}(-\omega, \omega, \omega, -\omega) E_{1i} E_{2j} E_{3k}^* \\ &\quad \times \exp\{i[\omega t - (\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_3) \cdot \mathbf{r}]\} + \text{c. c.} \\ &= \frac{3}{4} \chi_{ijkl}(-\omega, \omega, \omega, -\omega) E_{1i} E_{2j} E_{3k}^* e^{i(\omega t - \mathbf{k}_4 \cdot \mathbf{r})} + \text{c. c.}, \end{aligned} \quad (5)$$

其中要对重复的下标求和. 对于各向同性介质中的简并四波混频有^[9]

$$\chi_{ijkl} = \chi_1 (\delta_{ij} \delta_{kl} + \delta_{ik} \delta_{jl}) + \chi_2 \delta_{il} \delta_{jk}, \quad (6)$$

$$\chi_3 = 2\chi_1 + \chi_2, \quad (7)$$

其中 $\chi_1 = \chi_{1122}$, $\chi_2 = \chi_{1221}$, $\chi_3 = \chi_{1111}$, 这里频率的排列都是 $(-\omega, \omega, \omega, -\omega)$. 把(6)

式代入(5)式得到

$$\begin{aligned} P_{NL}^{(3)}(\omega, \mathbf{k}_1) = & \frac{3}{4} [\chi_1(\mathbf{E}_2 \cdot \mathbf{E}_3^*)\mathbf{E}_1 + \chi_1(\mathbf{E}_1 \cdot \mathbf{E}_3^*)\mathbf{E}_2 \\ & + \chi_2(\mathbf{E}_1 \cdot \mathbf{E}_2)\mathbf{E}_3^*] e^{i(\omega t - \mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{r})} + \text{c. c.} \end{aligned} \quad (8)$$

当 $\alpha = 0$ 时, 还有另一些项对 $P_{NL}^{(3)}$ 有贡献, 例如:

$$\begin{aligned} P_{NL}^{(3)}(\omega, \mathbf{k}_1) = & \frac{3}{4} [\chi_1(\mathbf{E}_1^* \cdot \mathbf{E}_2)\mathbf{E}_3 + \chi_1(\mathbf{E}_1^* \cdot \mathbf{E}_3)\mathbf{E}_2 \\ & + \chi_2(\mathbf{E}_2 \cdot \mathbf{E}_3)\mathbf{E}_1^*] e^{i(\omega t - \mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{r})} + \text{c. c.} \end{aligned} \quad (9)$$

上两式各项的物理意义是^[1,10](8)式的前两项表示探测束与一泵浦束之间干涉形成的折射率的空间调制, 使另一泵浦束产生衍射. 第三项表示相干项, 它可以是由双光子共振产生一个标量极化率的振荡(频率为 2ω) ($\mathbf{E}_1 \cdot \mathbf{E}_2$), 也可以是探测束与一泵浦束的相干耦合产生张量极化率 ($\mathbf{E}_1\mathbf{E}_3^*$) 或 ($\mathbf{E}_2\mathbf{E}_3^*$).

把(4), (8)和(9)式代入(3)式中, 令相同分量的、有相同 e 指数的项相等, 就可得到联系 3, 4 波四个振幅分量的微分方程组:

$$\begin{aligned} dE_{3x}/dz = & -i[AE_{4x}^* + BE_{4y}^* + (DE_{4x} + JE_{4y})\delta_{0\alpha}], \\ dE_{3y}/dz = & -i[BE_{4x}^* + CE_{4y}^* + (FE_{4x} + GE_{4y})\delta_{0\alpha}], \\ dE_{4x}/dz = & i[AE_{3x}^* + BE_{3y}^* + (D^*E_{3x} + F^*E_{3y})\delta_{0\alpha}], \\ dE_{4y}/dz = & i[BE_{3x}^* + CE_{3y}^* + (J^*E_{3x} + G^*E_{3y})\delta_{0\alpha}]. \end{aligned} \quad (10)$$

这里

$$\begin{aligned} A = & (2\mu_1 + \mu_2)E_{1x}E_{2x} + \mu_2(E_{1y}E_{2y} + E_{1z}E_{2z}), \\ B = & \mu_1(E_{1x}E_{2y} + E_{2x}E_{1y}), \\ C = & (2\mu_1 + \mu_2)E_{1y}E_{2y} + \mu_2(E_{1x}E_{2x} + E_{1z}E_{2z}), \\ D = & (2\mu_1 + \mu_2)E_{1x}E_{2x}^* + \mu_1(E_{1y}E_{2y}^* + E_{1z}E_{2z}^*), \\ J = & \mu_1E_{1x}E_{2y}^* + \mu_2E_{1y}E_{2x}^*, \\ F = & \mu_1E_{1y}E_{2x}^* + \mu_2E_{1x}E_{2y}^*, \\ G = & (2\mu_1 + \mu_2)E_{1y}E_{2y}^* + \mu_1(E_{1x}E_{2x}^* + E_{1z}E_{2z}^*), \end{aligned} \quad (11)$$

以及

$$\mu_1 = 3\pi\omega\chi_1/cn, \quad \mu_2 = 3\pi\omega\chi_2/cn. \quad (12)$$

c 为真空中的光速, n 为介质的折射率.

(10)式为 E_{3x} , E_{3y} , E_{4x} , E_{4y} 的齐次常系数微分方程组, 可用标准的方法求解^[11], 其中 $\delta_{0\alpha}$ 表示只当 $\alpha = 0$ 时这项才存在. 要写出(10)式的一般解是相当复杂的, 下面只就通常感兴趣的线偏振和圆偏振的情况求解(10)式, 而且只直接列出结果.

定义 $(\hat{x} \pm i\hat{y})\exp[i(\omega t \mp \mathbf{k} \cdot \mathbf{r})]$ 代表左旋偏振光, $(\hat{x} \mp i\hat{y})\exp[i(\omega t \mp \mathbf{k} \cdot \mathbf{r})]$ 为右旋偏振光. 确定泵浦光 1, 2 的偏振矢量的坐标系 $x'y'z'$ 定义为 $z' \parallel \mathbf{k}_1$, $y' \parallel y$, x' 在 xz 平面内.

在下面所讨论的问题中令波 4 在其入射面 ($z = L$ 处)的边界条件为 $\mathbf{E}_4(L) = 0$. 要求得到 3, 4 波在各自的出射面处的振幅 $\mathbf{E}_3(L)$ 和 $\mathbf{E}_4(0)$.

非共线的情况 ($\alpha \neq 0$)

在非共线的情况中,方程组(10)只取不带 $\delta_{0\alpha}$ 因子的项,并可取第一,二个方程的复共轭,即解四个函数 E_{3x}^* , E_{3y}^* 和 E_{4x} , E_{4y} 的微分方程组.

1. 将 $E_1 = E_1\hat{x}$, $E_2 = E_2\hat{y}$ 代入(11)式,得到

$$A = \xi_1, B = 0, C = 2\xi_1 + \xi_2,$$

其中

$$\xi_1 = \mu_1 E_1 E_2, \quad \xi_2 = \mu_2 E_1 E_2 \quad \text{以及} \quad \xi_3 = 2\xi_1 + \xi_2. \quad (13)$$

波 3 为线偏振光,偏振矢量与 y 轴成 θ 角, $E_3(0) = E_3(0)(\sin\theta\hat{x} + \cos\theta\hat{y})$, 这时得到

$$E_3(L) = E_3(0)[(\sin\theta/\cos|\xi_2|L)\hat{x} + (\cos\theta/\cos|\xi_3|L)\hat{y}], \quad (14)$$

$$E_4(0) = -iE_3^*(0)[(\xi_2 \sin\theta \tan|\xi_2|L/|\xi_2|)\hat{x} + (\xi_3 \cos\theta \tan|\xi_3|L/|\xi_3|)\hat{y}]. \quad (15)$$

显然,在 $\theta = 0$ 时(探测光的偏振平行于泵浦光的偏振), (15) 式就回到 Yariv^[3] 最早得到的共轭波振幅的表达式. 从(15)式可清楚地看出, $E_4(0)$ 在空间相位上同 $E_3(0)$ 是复共轭的,而偏振方向一般是不相同的. 令 $E_4(0)$ 与 y 轴的夹角为 δ , 则有

$$\tan\delta = (\xi_2|\xi_3| \tan|\xi_2|L/|\xi_3|\xi_2 \tan|\xi_3|L) \tan\theta. \quad (16)$$

(16)式表明,只当 $\theta = 0$ 或 $\pi/2$ 时, $\delta = \theta$. 而要在任意偏振方向使 $\delta = \theta$, 唯有 χ_1 为零(这时 $\xi_2 = \xi_3$). 现在还不清楚什么样情况下 $\chi_1(\chi_{1122})$ 为零.

在耦合系数很小的情况下,即 $|\xi_2|L$ 和 $|\xi_3|L \ll 1$ 时, (16)式可写成

$$\tan\delta = (\chi_2/\chi_3) \tan\theta. \quad (17)$$

因此,可以利用(17)式,从测量共轭波的偏振方向(δ)算出 χ_2 与 χ_3 的比值: $\chi_2/\chi_3 = \tan\delta/\tan\theta$.

从(14), (15)式看出, x 和 y 分量的系数是不一样的. 所以,如果 $|\chi_2| > |\chi_3|$, 则在开始振荡时,振荡波的偏振方向垂直于泵浦光的偏振方向. 反之,在 $|\chi_3| > |\chi_2|$ 时,振荡波的偏振方向平行于泵浦光的偏振方向.

2. E_1, E_2 是互相垂直的线偏振光,即 $E_1 = E_1\hat{x} = E_1(\cos\alpha\hat{x} - \sin\alpha\hat{y})$, $E_2 = E_2\hat{y}$, 代入(11)式,得 $A = C = 0$, $B = \xi_1 \cos\alpha$.

1) $E_3(0) = E_3(0)(\sin\theta\hat{x} + \cos\theta\hat{y})$, 则有

$$E_3(L) = E_3(0)/\cos|\xi_1 \cos\alpha|L, \quad (18)$$

$$E_4(0) = -i(\xi_1/|\xi_1|) \tan|\xi_1 \cos\alpha|L E_3^*(0)(\cos\theta\hat{x} + \sin\theta\hat{y}), \quad (19)$$

而

$$\tan\delta = \cot\theta, \quad \text{即} \quad \delta = \pi/2 - \theta. \quad (20)$$

$\theta = 0$ 时, $\delta = \pi/2$; $\theta = \pi/2$ 时, $\delta = 0$. 这两种特殊情况是早已为人们所知的. 而 $\theta = \pi/4$ 时, $\delta = \pi/4 = \theta$. 当考虑到扩散时,由于两束泵浦光分别与探测光相干所形成的光栅的光栅常数的差别,使它们的弛豫时间也不相同,这样, (8)式中前两项的系数就不再相等了. 故即使 $\theta = \pi/4$, δ 要偏离 $\pi/4$, 可以很容易从这种偏离的大小估计出它们的弛豫时间的差别,从而推算出扩散系数^[12].

从(20)式可看出,在自振荡现象发生时,振荡波的偏振方向与两束泵浦光的偏振方向都相交成 $\pi/4$ 角.

2) $\mathbf{E}_3(0)$ 为圆偏振光, $\mathbf{E}_3(0) = E_3(0)(\hat{x} \pm i\hat{y})/\sqrt{2}$, 则

$$\mathbf{E}_3(L) = \mathbf{E}_3(0)/\cos|\xi_1 \cos \alpha|L, \quad (21)$$

$$\mathbf{E}_4(0) = \mp (\xi_1/\sqrt{2}|\xi_1|)E_3^*(0)\tan|\xi_1 \cos \alpha|L(\hat{x} \pm i\hat{y}). \quad (22)$$

这时信号波 $\mathbf{E}_4(0)$ 的空间相位与 $\mathbf{E}_3(0)$ 是复共轭的,如同被一相共轭镜子 (PCM^[1]) 反射那样,而它的偏振的旋性同探测波的旋性相反,如同被一普通的平面镜所反射.

3. $\mathbf{E}_1 \parallel \mathbf{E}_2$, 并平行于入射面,即 $\mathbf{E}_{1,2} = E_{1,2}\hat{x} = E_{1,2}(\cos \alpha \hat{x} - \sin \alpha \hat{z})$. 这时有 $A = 2\xi_1 \cos^2 \alpha + \xi_2$, $B = 0$, $C = \xi_2$.

当 $\mathbf{E}_3(0) = E_3(0)(\sin \theta \hat{x} + \cos \theta \hat{y})$ 时,就有

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_4(0) = -iE_3^*(0)[(2\xi_1 \cos^2 \alpha + \xi_2) \sin \theta \cdot \tan|2\xi_1 \cos^2 \alpha + \xi_2|L\hat{x}/|2\xi_1 \cos^2 \alpha \\ + \xi_2| + (\xi_2/|\xi_2|)\tan|\xi_2|L \cos \theta \hat{y}]. \end{aligned} \quad (23)$$

从(23)式可以看出,当 $\alpha = \pi/2$ 时, $\delta = \theta$. 即当 1, 2 波传播方向垂直于波 3 的传播方向,并且它们的偏振方向平行于波 3 的传播方向时,可以获得理想的复共轭波. 这就是 Zel'dovich 等人^[4,5]提出的获得理想复共轭波的方案之一.

4. $\mathbf{E}_1, \mathbf{E}_2$ 为有旋性相同的圆偏振光:

$$\mathbf{E}_{1,2} = (E_{1,2}/\sqrt{2})(\hat{x}' \pm i\hat{y}') = (E_{1,2}/\sqrt{2})(\cos \alpha \hat{x} \pm i\hat{y} - \sin \alpha \hat{z}),$$

这时有 $A = \xi_1 \cos^2 \alpha + \xi_2$, $B = 0$, $C = \xi_1 + \xi_2$.

当 $\mathbf{E}_3(0) = E_3(0)(\sin \theta \hat{x} + \cos \theta \hat{y})$ 时,则有

$$\mathbf{E}_3(L) = E_3(0)(\hat{x} \sin \theta / \cos|\xi_1 \cos^2 \alpha + \xi_2|L + \hat{y} \cos \theta / \cos|\xi_1 + \xi_2|L) \quad (24)$$

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_4(0) = -iE_3^*(0)[\hat{x} \sin \theta (\xi_1 \cos^2 \alpha + \xi_2) \tan|\xi_1 \cos^2 \alpha + \xi_2|L / |\xi_1 \cos^2 \alpha \\ + \xi_2| + \hat{y} \cos \theta (\xi_1 + \xi_2) \tan|\xi_1 + \xi_2|L / |\xi_1 + \xi_2|]. \end{aligned} \quad (25)$$

从上式可得

$$\tan \delta = \frac{(\xi_1 \cos^2 \alpha + \xi_2)|\xi_1 + \xi_2| \tan|\xi_1 \cos^2 \alpha + \xi_2|L}{(\xi_1 + \xi_2)|\xi_1 \cos^2 \alpha + \xi_2| \tan|\xi_1 + \xi_2|L} \tan \theta. \quad (26)$$

当 χ_1 或 α 等于零时, $\delta = \theta$. 即可得到理想的复共轭波. 这里与情况 1 不同点在于,即使 $\chi_1 \approx 0$, 只要 α 很小就可能得到近于理想的复共轭波. 这就是 Hellwarth^[6] 实验的结果. 他所采用的材料是 CS_2 ($\chi_2 \approx 5\chi_1$), $\alpha = 2.5^\circ$, 从(26)式可算出 δ 同 θ 的最大相对偏差约为 10^{-4} . 而实验测到的结果约为 10^{-2} , 这差别来自不完全的圆偏振光. 虽然从(26)式可以看出, $\alpha \rightarrow 0$ 是有利于理想的复共轭波的获得,但下面我们将指出,在 $\alpha \rightarrow 0$ 时,由于(9)式那样的项起作用,结果反而不能得到理想的复共轭波.

5. $\mathbf{E}_1, \mathbf{E}_2$ 为旋性相反的圆偏振光:

$$\mathbf{E}_{1,2} = (E_{1,2}/\sqrt{2})(\hat{x}' + i\hat{y}') = (E_{1,2}/\sqrt{2})(\cos \alpha \hat{x} + i\hat{y} - \sin \alpha \hat{z}).$$

这时有 $A = \xi_1 \cos^2 \alpha$, $B = i\xi_1 \cos \alpha$, $C = -\xi_1$.

1) $\mathbf{E}_3(0) = (E_3(0)/\sqrt{2})(\hat{x} \pm i\hat{y})$, 则有

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_4(0) = \pm i[\xi_1 E_3^*(0)/\sqrt{2}|\xi_1|(1 + \cos^2 \alpha)](1 \pm \cos \alpha) \tan|\xi_1(1 \\ + \cos^2 \alpha)|L(\cos \alpha \hat{x} + i\hat{y}). \end{aligned} \quad (27)$$

2) $\mathbf{E}_3(0) = E_3(0)(\sin \theta \hat{x} + \cos \theta \hat{y})$, 则有

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_i(0) = - [\xi_1 E_3^*(0)/|\xi_1|(1 + \cos^2 \alpha)](\cos \theta - i \sin \theta \cos \alpha) \tan |\xi_1|(1 \\ + \cos^2 \alpha) L(\cos \alpha \hat{x} + i \hat{y}). \end{aligned} \quad (28)$$

从(27)式可看出,不管探测波是左旋还是右旋的圆偏振光,信号波都是近似的右旋圆偏振光. α 一般都很小, $(1 + \cos \alpha) > (1 - \cos \alpha)$, 所以左旋的探测波得到较强的信号波. 当 $\alpha \rightarrow \pi/2$ 时,信号波都是线偏振光,偏振方向垂直入射面.

(28)式说明,探测波为线偏振波时,信号波是一近似的右旋圆偏振光. 其效果如同被一相共轭镜子反射后再通过一个四分之一波片.

所以这类装置可以从线偏振光得到圆偏振的复共轭波 ($\alpha \rightarrow 0$) 或从任意偏振的光得到线偏振的复共轭波 ($\alpha \rightarrow \pi/2$).

共线情况($\alpha=0$)

现在讨论共线装置的情况,即考察整个(10)式. 先看一下(10)式中有 $\delta_{0\alpha}$ 因子的项单独作用的情况,因为在某些特定的条件下,这些项的作用可以同其它项的作用区分开的. 另一方面为了同文献[8]中的一些结果作比较. 很容易用光栅的耦合波理论^[13]证明文献[8]所讨论的就是(10)式中带 $\delta_{0\alpha}$ 因子的那些项的作用.

6. 共线装置中只考虑(10)式中带 $\delta_{0\alpha}$ 因子的项. $\mathbf{E}_1, \mathbf{E}_2$ 为圆偏振光: $\mathbf{E}_{1,2} = (E_{1,2}/\sqrt{2})(\hat{x} \pm i\hat{y})$. 这时有 $D = (\xi'_1 + \xi'_2)/2$, $J = F = i(\xi'_1 + \xi'_2)/2$, $G = -(\xi'_1 + \xi'_2)/2$, 其中

$$\xi'_1 = \mu_1 E_1 E_2^*, \quad \xi'_2 = \mu_2 E_1 E_2^* \quad (29)$$

以及

$$|\xi'_1| = |\xi_1| \text{ 和 } |\xi'_2| = |\xi_2|. \quad (30)$$

1) 当 $\mathbf{E}_3(0) = (E_3(0)/\sqrt{2})(\hat{x} + i\hat{y})$ 时,则有

$$\mathbf{E}_3(L) = \mathbf{E}_3(0)/\cosh|\xi'_1 + \xi'_2|L, \quad (31)$$

$$\mathbf{E}_4(0) = -i[(\xi'_1 + \xi'_2)/|\xi'_1 + \xi'_2|](E_3(0)/\sqrt{2})\tanh|\xi'_1 + \xi'_2|L(\hat{x} - i\hat{y}). \quad (32)$$

2) 当 $\mathbf{E}_3(0) = (E_3(0)/\sqrt{2})(\hat{x} - i\hat{y})$ 时,则有

$$\mathbf{E}_3(L) = \mathbf{E}_3(0), \quad \mathbf{E}_4(0) = 0. \quad (33)$$

(31)–(33)式说明,左旋圆偏振的探测波会被反射, $L \rightarrow \infty$ 时, $\mathbf{E}_3(L) \rightarrow 0$, 而反射波 $|\mathbf{E}_4(0)| \rightarrow |\mathbf{E}_3(0)|$, 即全反射. 右旋圆偏振的探测波却无变化地通过. 这些结论与文献[8]的结果是一致的.

但是,从下面的讨论中将看到,当考察整个(10)式时,所得的结果将与(31)–(33)式的不同(见(34)–(37)式). 因而文献[8]的结果只适用于泵浦光与探测光的频率不同(这时由于相位失配而使(10)式中不带 $\delta_{0\alpha}$ 因子的项不起作用)或探测波脉冲在时间上与泵浦光脉冲不相重(这时,若无双光子共振效应,(8)式为零)的情况.

当考察整个(10)式的解时,必须把方程中的函数写成复变函数的形式,即令 $E_{ij}(\mathbf{r}) = R_{ij}(\mathbf{r}) + iI_{ij}(\mathbf{r})$ ($i = 3, 4, j = x, y$), R, I 为实函数. 系数 $A-G$ 也写成复数的形式. 这样,(10)式中每个方程都分成 R 和 I 的微分方程. 因而方程组包含 8 个一阶常系数微分方程. 在我们感兴趣的一些情况中,还是可以得到解析解. 解的过程是相当繁复的,我们

只列出结果.

7. $\mathbf{E}_{1,2} = (E_{1,2}/\sqrt{2})(\hat{x} \pm i\hat{y})$. 这时有 $A = C = \xi_1 + \xi_2$, $B = 0$, $D = -G = (\xi'_1 + \xi'_2)/2$, $J = F = i(\xi'_1 + \xi'_2)/2$.

1) 当 $\mathbf{E}_3(0) = (E_3(0)/\sqrt{2})(\hat{x} + i\hat{y})$ 时, 则有

$$\mathbf{E}_3(L) = \mathbf{E}_3(0), \quad (34)$$

$$\mathbf{E}_4(0) = -i(L/2\sqrt{2})[(\xi_1 + \xi_2 + \xi'_1 + \xi'_2)\mathbf{E}_3^*(0) + (\xi_1 + \xi_2 + \xi'_1 + \xi'_2)^*\mathbf{E}_3(0)](\hat{x} - i\hat{y}). \quad (35)$$

(34), (35) 式与 (31), (32) 式的差别是明显的. 在情况 4 中 $E_3(L) \sim 1/\cos|\xi_1 + \xi_2|L$ ($\alpha = 0$), 随 L 增长; 在情况 6 中, $E_3(L) \sim 1/\text{ch}|\xi_1 + \xi_2|L$, 随 L 衰减. 两个作用合起来, 正好相消, 使探测波不变地通过介质. 对 $\mathbf{E}_4$ 的情况也很类似, 使正切与双曲正切函数合成 L 的线性关系. 显然, 在这种装置中是不会产生自振荡的. 反射波的旋性与入射波的相同, 但其振幅中含有非共轭的成份, 这曾经为 Marburger 等人^[4]所指出.

2) 当 $\mathbf{E}_3(0) = (E_3(0)/\sqrt{2})(\hat{x} - i\hat{y})$ 时, 则有

$$\mathbf{E}_3(L) = \mathbf{E}_3(0)/\cos|\xi_1 + \xi_2|L, \quad (36)$$

$$\mathbf{E}_4(0) = -i[(\xi_1 + \xi_2 + \xi'_1 + \xi'_2)/2|\xi_1 + \xi_2|]\tan|\xi_1 + \xi_2|L\mathbf{E}_3^*(0), \quad (37)$$

(37) 式表明, 这一情况 (也仅仅是这一特殊情况) 是理想的复共轭波. 从 (35) 和 (37) 式可看出, 线偏振的探测波不能得到线偏振的反射波. 因而, 在情况 4 中要得到理想的复共轭波, α 不能为零.

8. $\mathbf{E}_1 = E_1\hat{y}$, $\mathbf{E}_2 = E_2\hat{y}$, 这时有 $A = \xi_2$, $B = 0$, $C = 2\xi_1 + \xi_2$, $D = \xi'_1$, $J = F = 0$, $G = 2\xi'_1 + \xi'_2$.

1) $\chi_1 \approx \pm\chi_2$, $\mathbf{E}_3(0) = E_3(0)(\sin\theta\hat{x} + \cos\theta\hat{y})$ 时, 则有

$$E_{3x}(L) = E_3(0)\sin\theta/\text{ch}(\sqrt{|\xi_1|^2 - |\xi_2|^2}L), \quad (38)$$

$$E_{3y}(L) = E_3(0)\cos\theta, \quad (39)$$

$$E_{4x}(0) = -i(\sin\theta/\sqrt{|\xi_1|^2 - |\xi_2|^2})\text{th}(\sqrt{|\xi_1|^2 - |\xi_2|^2}L)[\xi_2\mathbf{E}_3^*(0) + \xi'_1\mathbf{E}_3(0)], \quad (40)$$

$$E_{4y}(0) = -i(L\cos\theta/2)[(2\xi_1 + \xi_2 + 2\xi'_1 + \xi'_2)\mathbf{E}_3^*(0) + (2\xi_1 + \xi_2 + 2\xi'_1 + \xi'_2)^*\mathbf{E}_3(0)]. \quad (41)$$

当 $\theta = 0$ 时, (39), (41) 式类似于 (34), (35) 式.

当 $\theta = \pi/2$ 时, 可能有两种情况. 第一种情况, $|\chi_1| > |\chi_2|$ (即 $|\xi_1| > |\xi_2|$). 这时 (38), (40) 式类似于 (31), (32) 式, 振幅中非共轭成分主要是. 第二种情况, $|\chi_2| > |\chi_1|$. 这时, (38) 式中的双曲余弦函数变成余弦函数, 而 (40) 式中的双曲正切函数变成正切函数 (乘以一个虚数 i). 这样它们就类似于 (14) 和 (15) 式, 而振幅中复共轭的成分是主要的. 这正是 Pepper 等人^[7]所得的实验结果. 但他们所采用的理论还是 Yariv^[3] 最早的非共线情况的理论 ((14) 和 (15) 式). 这当然是不恰当的. 然而, 他们正好用 CS_2 作为非线性介质. 而对 CS_2 , 正好有 $|\chi_2| > |\chi_1|$, 即 $\chi_2 \approx 5\chi_1$ ^[7,9]. 因而反射波中复共轭的成分约为非复共轭的 5 倍, 其强度比约为 25 倍. 所以 Pepper 等人得出反射波是与入射波复共轭的结论, 以及观察到自振荡现象都与现在的理论是一致的.

2) $\chi_1 = \pm\chi_2$, 这时 (39), (41) 式不变, 而 (38) 和 (40) 式变成

$$E_{3x}(L) = E_3(0) \sin \theta, \quad (42)$$

$$E_{4x}(0) = \mp iL[\xi_1 E_3^*(0) \pm \xi_1'^* E_3(0)] \sin \theta. \quad (43)$$

9. $\mathbf{E}_1 = E_1 \hat{x}$, $\mathbf{E}_2 = E_2 \hat{y}$, 这时有 $A = C = D = G = 0$, $B = \xi_1$, $J = \xi_1'$, $F = \xi_2'$. 而 $\mathbf{E}_3(0) = E_3(0)(\sin \theta \hat{x} + \cos \theta \hat{y})$, 则有

$$E_{3x}(L) = E_3(0) \sin \theta, \quad (44)$$

$$E_{3y}(L) = E_3(0) \cos \theta / \text{ch}(\sqrt{|\xi_2|^2 - |\xi_1|^2} L), \quad (45)$$

$$E_{4x}(0) = -i(\cos \theta / \sqrt{|\xi_2|^2 - |\xi_1|^2} \text{th}(\sqrt{|\xi_2|^2 - |\xi_1|^2} L)[\xi_1 E_3^*(0) + \xi_1'^* E_3(0)], \quad (46)$$

$$E_{4y}(0) = -i(L \sin \theta / 2)[(\xi_1 + \xi_1')E_3(0) + (\xi_1 + \xi_1')^* E_3^*(0)]. \quad (47)$$

从(45), (46)式可看出, 现在与情况 8 相反, 仅当 $|\chi_1| > |\chi_2|$ 时才有自振荡现象. 显然, 在相反方向上传播的两个自振荡波的偏振是正交的.

10. $\mathbf{E}_{1,2} = (E_{1,2}/\sqrt{2})(\hat{x} + i\hat{y})$, 这时有 $A = -C = \xi_1$, $B = i\xi_1$, $D = G = (3\xi_1' + \xi_2')/2$, $J = -F = i(\xi_2' - \xi_1')/2$.

1) 当 $\mathbf{E}_3(0) = (E_3(0)/\sqrt{2})(\hat{x} + i\hat{y})$ 时, 则有

$$\mathbf{E}_3(L) = \mathbf{E}_3(0), \quad (48)$$

$$\mathbf{E}_4(0) = -i\sqrt{2}L[(\xi_1 + \xi_1')E_3(0) + (\xi_1 + \xi_1')^* E_3^*(0)](\hat{x} + i\hat{y}). \quad (49)$$

2) 当 $\mathbf{E}_3(0) = (E_3(0)/\sqrt{2})(\hat{x} - i\hat{y})$ 时, 则有

$$\mathbf{E}_3(L) = \mathbf{E}_3(0) / \text{ch}(|\xi_1 + \xi_2|L), \quad (50)$$

$$\mathbf{E}_4(0) = -i \text{th}(|\xi_1 + \xi_2|L) \mathbf{E}_3(0). \quad (51)$$

(51)式表明, 在上面所讨论的诸情况中, 唯有现在这一情况, 简并四波混频现象如同一理想的平面镜反射.

结 论

在略去了非线性折射率变化, 泵浦光的衰减和介质吸收等近似下, 我们已经得到, 在共线和非共线情况下, 各向同性介质中简并四波混频的反射波的振幅(包括偏振)与泵浦光和探测光的振幅、偏振态以及 $\chi^{(3)}$ 之间的关系式.

在非共线的情况, 当泵浦光是偏振平行的线偏振光时, 可用信号光与探测光的偏振方向求出 χ_{1221} 与 χ_{1111} 的比值((17)式); 当泵浦光为两个同旋性的圆偏振光时, 可以得到理想的复共轭波((26)式); 当泵浦光为两个旋性相反的圆偏振光时, 可从线偏振探测波得到圆偏振的反射波或相反 ($\alpha = \pi/2$ 时), 等等.

在共线的情况, 一般在反射波中总含有一定的非共轭的成份. 振幅反射率与样品厚度的关系可能是正切、双曲正切或线性的函数关系. 当泵浦光是偏振平行的线偏振光时, 若 $|\chi_{1221}| > |\chi_{1111}|$, 反射波中复共轭成份是主要的, 并可产生自振荡((38)–(41)式); 当泵浦光是偏振正交的线偏振光时, 情况正好与上述平行的情况相反.

本文中所讨论的 10 种情况大致概括了简并四波混频中泵浦光和探测光为线偏振和圆偏振的各种组合的情况. 其结果与一些已知的实验结果是一致的, 对新的实验设计有一定的指导作用. 对非简并的或非稳态的四波混频现象也有一定的参考价值.

工作中同傅盘铭同志作过一些有益的讨论,在此表示感谢。

参 考 文 献

- [1] David M. Pepper, *Opt. Engineering*, **21**(1982), 156.
- [2] A. Yariv, *IEEE J. Q. E.*, **QE-14**(1978), 650; **QE-15**(1979), 256; 523.
- [3] A. Yariv, *Opt. Lett.*, **1**(1977), 16.
- [4] B. Ya. Zel'dovich *et al.*, *Sov. J. Quantum Electron.*, **9**(1979), 379.
- [5] V. N. Blashchuk, *et al.*, *Sov. J. Quantum Electron.*, **10**(1980), 356.
- [6] R. W. Hellwarth, *J. Opt. Soc. Am.*, **67**(1977), 1.
- [7] David M. Pepper *et al.*, *Appl. Phys. Lett.*, **33**(1978), 41.
- [8] P. Ye and Y. R. Shen, *Appl. Phys.*, **25**(1981), 49.
- [9] R. W. Hellwarth, *Prog. Quantum Electronics*, **5**(1977), 1.
- [10] D. G. Steel *et al.*, *Phys. Rev. A*, **23**(1981), 2513.
- [11] 数学手册,人民教育出版社,北京, (1979), 670.
- [12] D. S. Hamilton *et al.*, *Opt. Lett.*, **4**(1979), 124.
- [13] H. Kogelnik, *Bell Syst. Tech. J.*, **48**(1969), 2909.
- [14] John H. Marburger *et al.*, *Appl. Phys. Lett.*, **35**(1979), 249.

THE DEGENERATE FOUR-WAVE MIXING OF LIGHT WITH ARBITRARY POLARIZATIONS IN ISOTROPIC MEDIUM

GU SHI-JIE

(Institute of Physics, Academia Sinica)

ABSTRACT

The functional relations have been presented between the complex amplitude (including polarization) of reflected wave on the one hand and amplitudes, polarizations of pump and probe waves, the third-order nonlinear susceptibility on the other hand, for degenerate four-wave mixing (DFWM) in isotropic medium, in which the polarizations are linear and/or circular, and the geometry is collinear or non-collinear. In the non-collinear geometry, when the polarizations of pump waves are parallel to each other, one can determine the ratio χ_{1111}/χ_{1221} from the angles between polarization directions of probe and reflected waves; when the polarizations of pump are circular polarizations of the same handedness, one can get the ideal complex conjugate wave in this geometry. In the collinear geometry, there are always some non-conjugate component in the reflected wave, and the functional relation between reflection coefficient of amplitude and the thickness of sample can have the form of tangent function, hyperbolic tangent function and linear function; when the polarizations of pump waves are parallel to each other and $|\chi_{1221}| > |\chi_{1122}|$, this geometry is capable of generating self-oscillation; when polarizations of pump are circular ones of different handedness, DFWM acts as an ideal plane-mirror for probe wave with circular polarization, etc. The results can be used to explain some well-known experimental results and provide some theoretical guidance for designing new experiments.