

简并四波混频的速率方程理论

丁 宏 玉

(中国科学院安徽光学精密机械研究所)

吴百诗 殷大钧 李锦泉

(西安交通大学物理系)

1987 年 5 月 27 日收到

提 要

本文采用量子态跃迁速率公式及能量和动量守恒定律,对简并四波混频进行了理论处理,推导出光子密度运动方程并得到精确解.对饱和现象(泵浦抽空)、非线性反射率随探测波的变化以及参量振荡等给出了令人满意的定量描述.得到了比以往的经典理论更完善的结果.

一、引 言

简并四波混频是一类重要的非线性光学现象,近年来人们对它进行了广泛深入的研究^[1-5].但以往的经典理论都是建立在耦合波方程基础上的^[1,4,5],对简并四波混频的描述不够完善和精确,且未考虑零点场的作用,对参量振荡未给出定量的描述.本文首先根据能量和动量守恒定律分析了简并四波混频过程,得到了泵浦光、探测光和反射光之间的光子数转换形式,然后使用量子态跃迁速率公式推导出了光子密度的运动方程,并给出了精确解.其结果较好地描述了各光束光子密度的变化.

二、简并四波混频过程的跃迁速率

简并四波混频的几何示意图见图 1. 习惯上称光束 1 和 2 为泵浦光(二者反平行),光束 3 为探测波,光束 4 为反射波或位相共轭波(二者也反平行).

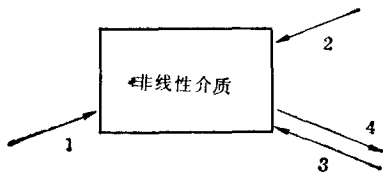


图 1 简并四波混频的几何示意图

首先考虑单个分子(或原子)的作用,设 m_1, m_2, m_3, m_4 分别表示光束 1, 2, 3, 4 中的光子数. 在介质无吸收情况下,光束和介质之间没有能量交换,则四束光本身要保持能量

和动量守恒,从而只能发生以下两类过程:

$$\begin{aligned} m_1, m_2, m_3, m_4 &\rightarrow m_1 - 1, m_2 - 1, m_3 + 1, m_4 + 1; \\ m_1, m_2, m_3, m_4 &\rightarrow m_1 + 1, m_2 + 1, m_3 - 1, m_4 - 1. \end{aligned} \quad (1)$$

四波混频是四光子过程,根据辐射场与物质相互作用的量子理论,四光子过程的量子态跃迁速率的一般公式为^[6]

$$\begin{aligned} \frac{1}{\tau} &= \frac{2\pi}{\hbar^2} \sum_f \left| \frac{1}{\hbar^3} \sum_h \sum_i \sum_j \frac{\langle f | \mathcal{H}_I | h \rangle \langle h | \mathcal{H}_I | i \rangle \langle i | \mathcal{H}_I | j \rangle \langle j | \mathcal{H}_I | u \rangle}{(\omega_u - \omega_h)(\omega_u - \omega_i)(\omega_u - \omega_j)} \right|^2 \\ &\times \delta(\omega_u - \omega_i), \end{aligned} \quad (2)$$

其中 $1/\tau$ 表示所考虑的系统由初态 $|u\rangle$ 跃迁到所有末态 $|f\rangle$ 的速率, $\hbar\omega_u$ 是系统初态的能量, $\hbar\omega_f$ 是系统末态的能量, $|i\rangle$ 是虚中间态, $\mathcal{H}_I$ 是相互作用哈密顿, 在偶极相互作用下,其形式为

$$\mathcal{H}_I = e\mathbf{D} \cdot \hat{\mathbf{E}}. \quad (3)$$

其中 $e\mathbf{D}$ 是介质分子(原子)的电偶极矩, $\mathbf{E}$ 是总电场

$$\mathbf{E} = \mathbf{E}_1 + \mathbf{E}_2 + \mathbf{E}_3 + \mathbf{E}_4, \quad (4)$$

其中 $\mathbf{E}_i$ 表示第 i 束光的电场强度,对应的量子算符为

$$\hat{\mathbf{E}}_i = \hat{\mathbf{E}}_i^- + \hat{\mathbf{E}}_i^+ \quad (i = 1, 2, 3, 4), \quad (5)$$

$$\hat{\mathbf{E}}_i^+(\mathbf{r}, t) = i(\hbar\omega_i/2\varepsilon_0 V)^{1/2} \boldsymbol{\epsilon}_i \hat{a}_i \exp[i(-\omega_i t + \mathbf{k}_i \cdot \mathbf{r})], \quad (6)$$

$$\hat{\mathbf{E}}_i^- = (\hat{\mathbf{E}}_i^+)^+, \quad (7)$$

其中 ω_i 表示第 i 束光的频率, $\boldsymbol{\epsilon}_i$ 是对应的偏振方向的单位矢量, $\hat{a}_i$ 和 $\hat{a}_i^+$ 分别表示第 i 束光的光子湮灭和产生算符, V 是所考虑的体积.

四波混频与二次谐波和三次谐波有一个共同点,即在相互作用前后介质分子的状态不变^[7]. 由(1)式可知, (2)式中只有包含算符组合 $\hat{E}_1^+ \hat{E}_2^+ \hat{E}_3^- \hat{E}_4^-$ 和 $\hat{E}_1^- \hat{E}_2^- \hat{E}_3^+ \hat{E}_4^+$ 的项才对四波混频过程有贡献. 这样的项共有 48 项,其中 24 项对过程 $m_1, m_2, m_3, m_4 \rightarrow m_1 - 1, m_2 - 1, m_3 + 1, m_4 + 1$ 有贡献; 另外 24 项对过程 $m_1, m_2, m_3, m_4 \rightarrow m_1 + 1, m_2 + 1, m_3 - 1, m_4 - 1$ 有贡献.

我们先推导对应于过程 $m_1, m_2, m_3, m_4 \rightarrow m_1 - 1, m_2 - 1, m_3 + 1, m_4 + 1$ 的跃迁速率. 将(3)–(6)式代入(2)式,保留算符组合 $\hat{E}_1^+ \hat{E}_2^+ \hat{E}_3^- \hat{E}_4^-$ 的项,并考虑到辐射场是统计混合态,则可得跃迁速率为

$$\frac{1}{\tau_1} = \xi \sum_{\mathbf{k}_i} |M_{\text{FWM1}}|^2 \delta(\omega_1 + \omega_2 - \omega_3 - \omega_4) \text{Tr}(\hat{\rho} \hat{E}_1^- \hat{E}_2^- \hat{E}_3^+ \hat{E}_4^+ \hat{E}_1^+ \hat{E}_2^+ \hat{E}_3^- \hat{E}_4^-), \quad (8)$$

其中 $\mathbf{k}_i$ 表示末态光束的波矢, $\hat{\rho}$ 表示辐射场的密度矩阵算符. 常数

$$\xi = \frac{2\pi e^8}{\hbar^8}, \quad (9)$$

矩阵元

$$M_{\text{FWM1}} = \sum_{k,h,l} S_T \left[\frac{(\mathbf{D}_{fk} \cdot \boldsymbol{\epsilon}_1)(\mathbf{D}_{kh} \cdot \boldsymbol{\epsilon}_2)(\mathbf{D}_{hl} \cdot \boldsymbol{\epsilon}_3)(\mathbf{D}_{lu} \cdot \boldsymbol{\epsilon}_4)}{(-\omega_4 - \omega_1 + \omega_2 - \omega_k)(-\omega_4 - \omega_3 - \omega_h)(-\omega_4 - \omega_l)} \right], \quad (10)$$

其中 S_T 表示四对数 $(\boldsymbol{\epsilon}_1, -\omega_1), (\boldsymbol{\epsilon}_2, -\omega_2), (\boldsymbol{\epsilon}_3, \omega_3), (\boldsymbol{\epsilon}_4, \omega_4)$ 之间互相置换并求和(共 24 项).

在以上推导中,我们曾令 $|u\rangle = |R_u\rangle|A_u\rangle$, $|f\rangle = |R_f\rangle|A_f\rangle$, $|l\rangle = |R_l\rangle|A_l\rangle$ 等,其中 $|R_u\rangle, |R_f\rangle, |R_l\rangle$ 等表示辐射场的态; $|A_u\rangle, |A_f\rangle, |A_l\rangle$ 等表示分子的态; $\hbar\omega_l, \hbar\omega_h, \hbar\omega_k$ 分别表示分子(原子)的虚激发态相对于初态 $|A_u\rangle$ 的能量差.

类似地可得对应于过程 $m_1, m_2, m_3, m_4 \rightarrow m_1 + 1, m_2 + 1, m_3 - 1, m_4 - 1$ 的跃迁速率为

$$\frac{1}{\tau_2} = \xi \sum_{k,l} |M_{\text{FWM2}}|^2 \delta(\omega_3 + \omega_4 - \omega_1 - \omega_2) \text{Tr}(\rho \hat{E}_1^+ \hat{E}_2^+ \hat{E}_3^- \hat{E}_4^- \hat{E}_4^+ \hat{E}_3^+ \hat{E}_2^- \hat{E}_1^-) \quad (11)$$

矩阵元

$$M_{\text{FWM2}} = \sum_{k,h,l} S_T \left[\frac{(\mathbf{D}_{fk} \cdot \mathbf{e}_4)(\mathbf{D}_{kh} \cdot \mathbf{e}_3)(\mathbf{D}_{hl} \cdot \mathbf{e}_2)(\mathbf{D}_{lu} \cdot \mathbf{e}_1)}{(-\omega_1 - \omega_2 + \omega_3 - \omega_k)(-\omega_1 - \omega_2 - \omega_h)(-\omega_1 - \omega_l)} \right] \quad (12)$$

很容易看出,在简并四波混频 ($\omega_1 = \omega_2 = \omega_3 = \omega_4$) 情况下,有

$$|M_{\text{FWM1}}|^2 = |M_{\text{FWM2}}|^2 = |M_{\text{FWM}}|^2. \quad (13)$$

从(10)式和(11)式出发,我们可对简并四波混频过程中光子密度变化及统计特性进行研究.

三、统计独立假设下简并四波混频的光子密度运动方程及其解

我们假设四束光是统计独立的,即 $\rho = \rho_1 \rho_2 \rho_3 \rho_4$, 其中 ρ_i 表示第 i 束光的密度矩阵算符. 设 $|m_i\rangle$ 表示第 i 束光的光子数本征态,利用算符 a, a^+ 的特性并在表象

$$\{|m_i\rangle\} = |m_1\rangle|m_2\rangle|m_3\rangle|m_4\rangle \quad (14)$$

中求迹,可得

$$\text{Tr}(\rho \hat{E}_1^- \hat{E}_2^- \hat{E}_3^+ \hat{E}_4^+ \hat{E}_4^- \hat{E}_3^- \hat{E}_2^+ \hat{E}_1^+) = A \bar{n}_1 \bar{n}_2 \left(\bar{n}_3 + \frac{1}{V} \right) \left(\bar{n}_4 + \frac{1}{V} \right), \quad (15)$$

$$\text{Tr}(\rho \hat{E}_1^+ \hat{E}_2^+ \hat{E}_3^- \hat{E}_4^- \hat{E}_4^+ \hat{E}_3^+ \hat{E}_2^- \hat{E}_1^-) = A \left(\bar{n}_1 + \frac{1}{V} \right) \left(\bar{n}_2 + \frac{1}{V} \right) \bar{n}_3 \bar{n}_4 \quad (16)$$

其中

$$\bar{n}_i = \frac{1}{V} \text{Tr}(\rho_i a_i^+ a_i) \quad (i = 1, 2, 3, 4) \quad (17)$$

是第 i 束光的平均光子密度. 常数

$$A = (\hbar\omega/2\epsilon_0)^4. \quad (18)$$

这样我们就有(为方便起见,令 $V = 1$)

$$\frac{1}{\tau_1} = \xi A \sum_{k,l} |M_{\text{FWM}}|^2 \delta(\omega_1 + \omega_2 - \omega_3 - \omega_4) \bar{n}_1 \bar{n}_2 (\bar{n}_3 + 1) (\bar{n}_4 + 1), \quad (19)$$

$$\frac{1}{\tau_2} = \xi A \sum_{k,l} |M_{\text{FWM}}|^2 \delta(\omega_4 + \omega_3 - \omega_1 - \omega_2) (\bar{n}_1 + 1) (\bar{n}_2 + 1) \bar{n}_3 \bar{n}_4. \quad (20)$$

上述结果仅是对单个分子的,实际情况必须考虑大量分子的集体效应. 我们知道在四波混频过程中,作用前后分子状态不变,故各个分子的贡献不可区分. 因而(2)式中模平方号中的项必须在平方以前对不同分子的贡献求和,以得到总的跃迁速率^[7],即

$$|M_{\text{FWM}}|^2 \rightarrow |\overline{M_{\text{FWM}}}|^2, \quad (21)$$

$$\text{Tr}(\rho \hat{E}_1^- \hat{E}_2^- \hat{E}_3^+ \hat{E}_4^+ \hat{E}_1^- \hat{E}_3^- \hat{E}_2^+ \hat{E}_4^+) \rightarrow \sum_{\mathbf{r}, \mathbf{r}'} \text{Tr}(\rho \hat{E}_1^-(\mathbf{r}) \hat{E}_2^-(\mathbf{r}) \hat{E}_3^+(\mathbf{r}) \hat{E}_4^+(\mathbf{r}) \hat{E}_1^-(\mathbf{r}) \hat{E}_3^-(\mathbf{r}) \hat{E}_2^+(\mathbf{r}) \hat{E}_4^+(\mathbf{r})), \quad (22)$$

(21)式中的一横划表示对分子取向进行平均,(22)式中对 $\mathbf{r}, \mathbf{r}'$ 的求和遍及作用区中所有分子的位置。将(6)式代入上式并经简单运算后可得总的跃迁速率为

$$\frac{1}{\tau_1'} = J \cdot \bar{n}_1 \bar{n}_2 (\bar{n}_1 + 1)(\bar{n}_2 + 1), \quad (23)$$

$$\frac{1}{\tau_2'} = J \cdot \bar{n}_3 \bar{n}_4 (\bar{n}_3 + 1)(\bar{n}_4 + 1), \quad (24)$$

其中

$$J = 2\pi N^2 \xi A |\bar{M}_{\text{FWM}}|^2. \quad (25)$$

上式中 N 是介质的分子密度。

各光束的光子密度变化速率分别为

$$\begin{aligned} \frac{\partial \bar{n}_1}{\partial t} &= \frac{1}{\tau_1'} - \frac{1}{\tau_1'} \\ &= J \cdot [\bar{n}_3 \bar{n}_4 (\bar{n}_2 + 1)(\bar{n}_1 + 1) - \bar{n}_1 \bar{n}_2 (\bar{n}_3 + 1)(\bar{n}_4 + 1)] \\ &= J \cdot [\bar{n}_3 \bar{n}_4 (\bar{n}_1 + \bar{n}_2 + 1) - \bar{n}_1 \bar{n}_2 (\bar{n}_3 + \bar{n}_4 + 1)], \end{aligned} \quad (26)$$

$$\frac{\partial \bar{n}_2}{\partial t} = \frac{\partial \bar{n}_1}{\partial t}, \quad (27)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial \bar{n}_3}{\partial t} &= \frac{1}{\tau_1'} - \frac{1}{\tau_2'} \\ &= J \cdot [\bar{n}_1 \bar{n}_2 (\bar{n}_3 + \bar{n}_4 + 1) - \bar{n}_3 \bar{n}_4 (\bar{n}_1 + \bar{n}_2 + 1)], \end{aligned} \quad (28)$$

$$\frac{\partial \bar{n}_4}{\partial t} = \frac{\partial \bar{n}_3}{\partial t}. \quad (29)$$

利用关系式

$$\begin{aligned} \frac{\partial \bar{n}_i}{\partial y_i} &= \frac{\partial \bar{n}_i}{\partial t} \cdot \frac{\partial t}{\partial y_i} \\ &= \frac{\eta}{c} \frac{\partial \bar{n}_i}{\partial t}, \end{aligned} \quad (30)$$

可将光子密度随时间变化的方程变换为随空间坐标变化的方程。上式中 c 是光速, η 是折射率, y_i 表示沿第 i 束光传播方向的坐标。设光束1和3,光束2和4之间的夹角为 2θ (见图2),并进行坐标变换

$$y_i = (-1)^{i+1} z / \cos \theta \quad (i = 1, 2, 3, 4), \quad (31)$$

则可得光子密度的运动方程为

$$\frac{\partial \bar{n}_1}{\partial z} = \frac{1}{\cos \theta} \frac{c}{\eta} J \cdot [\bar{n}_3 \bar{n}_4 (\bar{n}_1 + \bar{n}_2 + 1) - \bar{n}_1 \bar{n}_2 (\bar{n}_3 + \bar{n}_4 + 1)], \quad (32)$$

$$\frac{\partial \bar{n}_2}{\partial z} = -\frac{\partial \bar{n}_1}{\partial z}, \quad (33)$$

$$\frac{\partial \bar{n}_3}{\partial z} = \frac{\partial \bar{n}_1}{\partial z}, \quad (34)$$

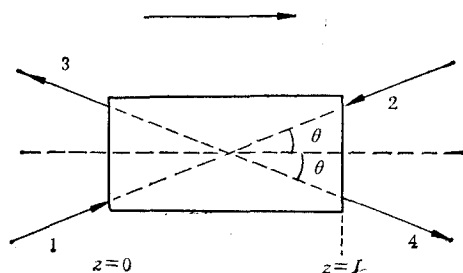


图 2

$$\frac{\partial \bar{n}_4}{\partial z} = -\frac{\partial \bar{n}_3}{\partial z}. \quad (35)$$

由以上几式可得如下关系:

$$\bar{n}_1 + \bar{n}_2 = c_1 = \bar{n}_1(0) + \bar{n}_2(0) = \bar{n}_1(L) + \bar{n}_2(L), \quad (36)$$

$$\bar{n}_3 + \bar{n}_4 = c_2 = \bar{n}_3(0) + \bar{n}_4(0) = \bar{n}_3(L) + \bar{n}_4(L), \quad (37)$$

$$\bar{n}_2 + \bar{n}_3 = c_3 = \bar{n}_2(0) + \bar{n}_3(0) = \bar{n}_2(L) + \bar{n}_3(L), \quad (38)$$

$$\bar{n}_1 + \bar{n}_4 = c_4 = \bar{n}_1(0) + \bar{n}_4(0) = \bar{n}_1(L) + \bar{n}_4(L), \quad (39)$$

其中 c_1, c_2, c_3, c_4 是积分常数, L 是介质中作用区域的长度.

利用(36)–(39)式可将(32)–(35)式化成形式相同的四个独立的方程. 其中反射波 $\bar{n}_4$ 的方程为

$$\frac{\partial \bar{n}_4}{\partial z} = \frac{1}{\cos \theta} \frac{c}{\eta} J(G_1 \bar{n}_4^2 + G_2 \bar{n}_4 + G_3), \quad (40)$$

其中

$$G_1 = c_1 - c_2,$$

$$G_2 = c_2(c_2 - c_1 + c_4 - c_3) + c_4 - c_3,$$

$$G_3 = c_4(c_2 + 1)(c_3 + c_2). \quad (41)$$

设边界条件为 $\bar{n}_4(0) = 0, \bar{n}_1(0) = \bar{n}_2(L) \gg \bar{n}_3(L)$ (一般实验均满足), 则方程(40)的解为

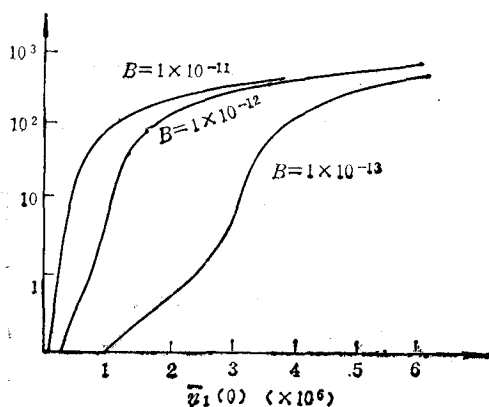


图 3 对于不同的介质参数 B , 非线性反射率随泵浦光子密度的变化

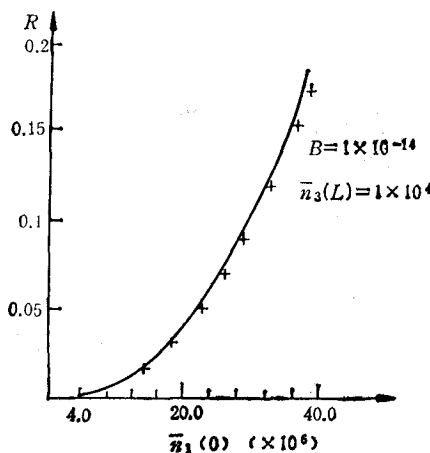


图 4 速率方程理论与 Yarov 的小信号理论比较 实线为速率方程理论结果; + 为经典小信号理论的计算值

$$\frac{2}{\sqrt{4G_1G_3 - G_2^2}} \left[\operatorname{arctg} \frac{2G_1\bar{n}_4(L) + G_2}{\sqrt{4G_1G_3 - G_2^2}} - \operatorname{arctg} \frac{G_2}{\sqrt{4G_1G_3 - G_2^2}} \right] \\ = \frac{1}{\cos \theta} \frac{c}{\eta} \cdot J \cdot L. \quad (42)$$

另外三束光在出射端面的光子密度为

$$\bar{n}_1(L) = \bar{n}_1(0) - \bar{n}_4(L), \quad (43a)$$

$$\bar{n}_2(0) = \bar{n}_2(L) - \bar{n}_4(L), \quad (43b)$$

$$\bar{n}_3(0) = \bar{n}_3(L) + \bar{n}_4(L). \quad (43c)$$

(42)式是一元函数的超越方程,我们可将它简写为

$$\left[\operatorname{arctg} \frac{2G_1\bar{n}_4(L) + G_2}{Q} - \operatorname{arctg} \frac{G_2}{Q} \right] = \frac{QB}{2}, \quad (44)$$

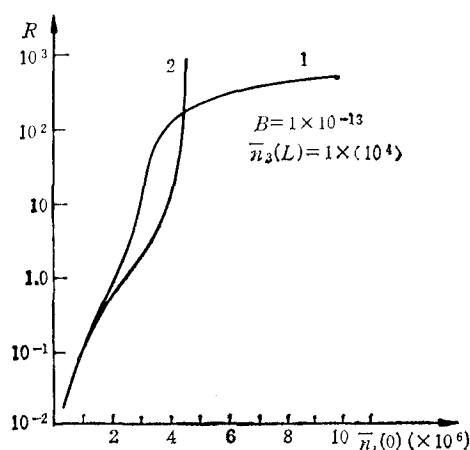


图5 曲线1为速率方程理论;曲线2为 Yariv 的经典理论

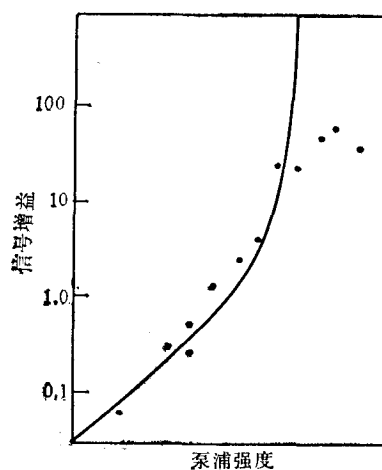


图6 Bloom 的大信号实验 实线为 Yariv 的经典理论;●为实验结果

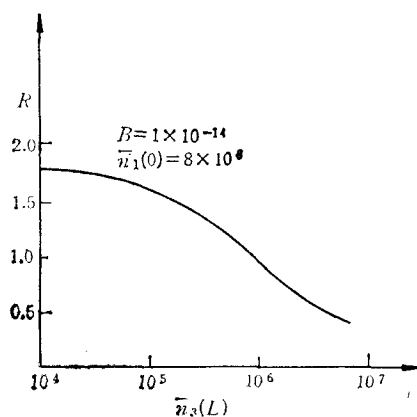


图7 非线性反射率随探测波的变化

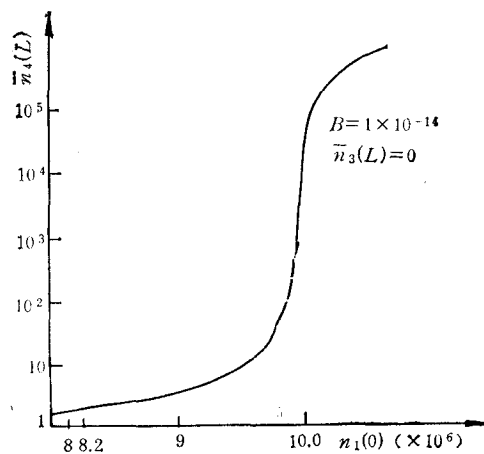


图8 参量振荡 ($\bar{n}_3(L) = 0$)

其中

$$B = \frac{1}{\cos \theta} \frac{c}{\eta} J \cdot L, \quad (45)$$

$$Q = \sqrt{4G_1 G_2 - G_2^2}. \quad (46)$$

我们使用二分法对方程(44)进行数值求解,结果如图3至图8所示,图中 R 为非线性反射率

$$R = \frac{\bar{n}_4(L)}{\bar{n}_3(L)}. \quad (47)$$

四、讨 论

图3表示在同样的人射探测波光子密度和不同的介质参数 B 情况下非线性反射率随泵浦波光子密度的变化。可以看出,介质参数 B 越大,反射率 R 上升得就越快,饱和现象也到来得越早。计算结果表明,当入射泵浦波光子密度足够大时,反射波光子密度可十分接近入射泵浦波光子密度,但总是要保持一定差别,这可从(23)和(24)式分析得出。

图4表明在小信号情况下我们的理论结果与Yariv^[1]的小信号经典理论结果基本一致。图中+号是根据公式

$$R = \operatorname{tg}^2[A\bar{n}_1(0)] \quad (48)$$

计算的数值。

图5表明随着入射泵浦波光子密度的增高,速率方程理论结果与经典理论结果的差别越来越大。首先,当泵浦还未抽空时,由速率方程理论得到的反射率比经典理论得到的要高。当入射泵浦光子密度增大到一定程度时,便出现饱和现象。关于这一点,经典的小信号理论是不能描述的,即使Hsiung Hsu^[4]的大信号经典理论也未能直接地描述。在此我们还引入了Bloom^[3](图6)的大信号实验结果进行了比较,可以看出,图6中实验结果的分布趋势与图5中速率方程理论曲线相一致。

图7表明随着入射探测波光子密度的增强,非线性反射率呈下降趋势。这是以往的理论所未能指出的。

图8表示参量振荡(入射探测波光子数为零)。在此我们假设振荡仅在一个方向上产生(实验中可通过一定手段而做到)。这种振荡的产生是由于零点场的存在。这也是经典理论不能正确解释的。可以看到,当入射泵浦波光子密度增加到一定数值时,反射波 $\bar{n}_4(L)$ 有一个很陡的增高。

从以上结果看,使用量子态跃迁速率方程对简并四波混频中各光束光子密度变化情况的描述比经典理论更合理更精确。此外,使用(8)式和(9)式还可以对光子统计特性进行讨论,今后将继续这方面的工作。

参 考 文 献

- [1] A. Yariv et al., *Opt. Lett.*, 1(1977), 16.
- [2] A. F. Robert, *Optical Phase Conjugation*, Academic Press, (1983).

- [3] D. M. Bloom *et al.*, *Opt. Lett.*, 2(1978), 58.
- [4] Hsiung Hsu, *Appl. Phys. Lett.*, 34(1979), 855.
- [5] Mark Gronin-Golomb *et al.*, *Opt. Lett.*, 7(1982), 313.
- [6] R. London, *The quantum theory of light*, (1975), p. 280.
- [7] R. London, *Ibid.*, p. 319.

RATE EQUATION THEORY OF DEGENERATE FOUR WAVE MIXING

DING HONG-YU

(*Anhui Institute of Optics and Fine Mechanics, Academia Sinica*)

WU BAI-SHI YIN DA-JUN LI JIN-QUAN

(*Department of Physics, Xian Jiaotong University*)

ABSTRACT

Degenerate four wave mixing is treated using the quantum theory of fradiation. Starting from the energy conservation and momentum conservation laws and using the transition rate formula for quantum states, the equation of motion for photon number densities of four beams is derived and exact solutions are obtained. With these solutions, change of nonlinear reflectivity with the pump waves and the probe wave, and saturation, and parameter oscillation are described. Besides, comparisons are made between our theory and classical theory as well as Bloom's large signal experiment. It is shown that our theory is more accurate and reasonable.