

和频/差频技术

非线性团队协助整理*

复旦大学物理系, 上海 200433, 中国。

本文档随教学进程跟新。

I. 上一讲回顾: 二阶和频过程

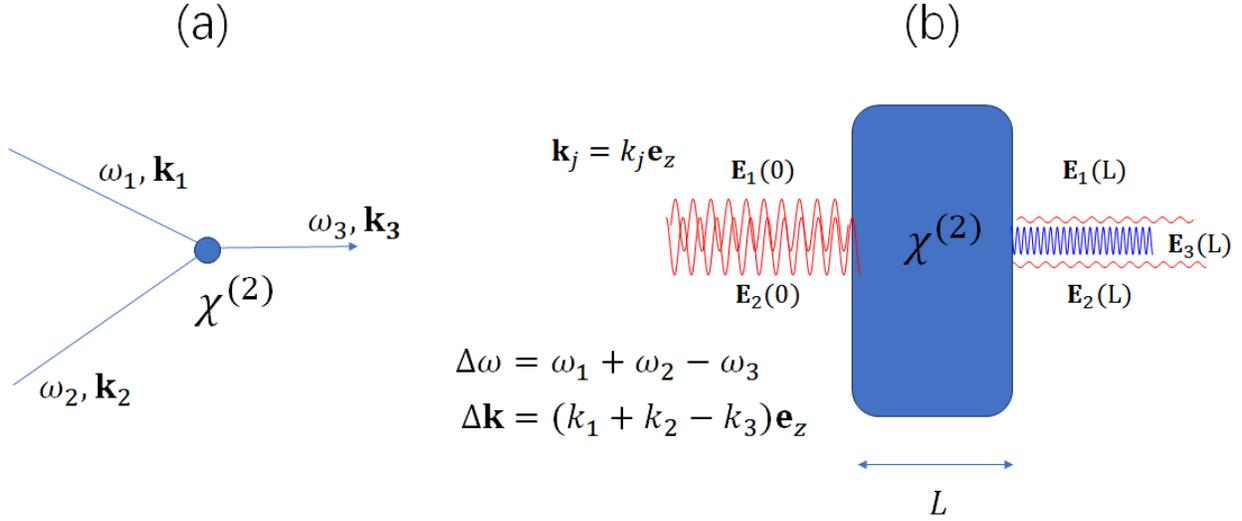


图 1. 2nd order Frequency-summing process.

我们考虑如图 (1b) 的二阶和频过程, 基频光 $j = 1, 2$ 及和频光 $j = 3$ 均表达为 $\mathbf{E}_j = \frac{1}{2}(\tilde{\mathbf{E}}_j e^{i(\mathbf{k}_j \cdot \mathbf{r} - \omega_j t)} + c.c.)$ 。为讨论便捷, 取稳恒平面波近似, $(\partial_x, \partial_y, \partial_t)\tilde{\mathbf{E}}_j = 0$ 。此外, 在实用方面, 共线传播最大程度的允许参与混频的激光在空间上重合, 增大非线性效果, 因此我们设 $\mathbf{k}_j = k_j \mathbf{e}_z$, 沿着共同的 z 方向传播。进而考虑均匀稳恒介质, $\chi(\mathbf{r}, t) = \text{const}$, 在上述近似下, 我们列出三波耦合方程

$$\begin{cases} i\partial_z \tilde{\mathbf{E}}_3 = -\frac{\omega_3^2}{k_3 c^2} \chi^{(2)}(\omega_3; \omega_1, \omega_2) \tilde{\mathbf{E}}_1 \tilde{\mathbf{E}}_2 e^{i\Delta k z}, \\ -i\partial_z \tilde{\mathbf{E}}_1^* = -\frac{\omega_1^2}{k_1 c^2} \chi^{(2)}(-\omega_1; -\omega_3, \omega_2) \tilde{\mathbf{E}}_3^* \tilde{\mathbf{E}}_2 e^{i\Delta k z}, \\ -i\partial_z \tilde{\mathbf{E}}_2^* = -\frac{\omega_2^2}{k_2 c^2} \chi^{(2)}(-\omega_2; \omega_1, -\omega_3) \tilde{\mathbf{E}}_1 \tilde{\mathbf{E}}_3^* e^{i\Delta k z} \end{cases} \quad (1)$$

在式 (1) 中, $k_j = n_j \frac{\omega_j}{c}$ 由 ω_j 光在非线性介质中的线性折射率决定。

如下我们考虑全置换对称性, 并记 $\tilde{\mathbf{E}}_j = \tilde{E}_j \mathbf{e}_j$, 引入等效非线性系数

$$d_{\text{eff}} = \frac{1}{2} \mathbf{e}_3^* \cdot \chi^{(2)}(\omega_3; \omega_1, \omega_2) \cdot \mathbf{e}_1 \mathbf{e}_2, \quad (2)$$

因此有

$$\begin{cases} i\partial_z \tilde{E}_3 = -\frac{2\omega_3^2 d_{\text{eff}}}{k_3 c^2} \tilde{E}_1 \tilde{E}_2 e^{i\Delta k z}, \\ i\partial_z \tilde{E}_1 = -\frac{2\omega_1^2 d_{\text{eff}}}{k_1 c^2} \tilde{E}_2^* \tilde{E}_3 e^{-i\Delta k z} \\ i\partial_z \tilde{E}_2 = -\frac{2\omega_2^2 d_{\text{eff}}}{k_2 c^2} \tilde{E}_1^* \tilde{E}_3 e^{-i\Delta k z} \end{cases} \quad (3)$$

* saijunwu@fudan.edu.cn

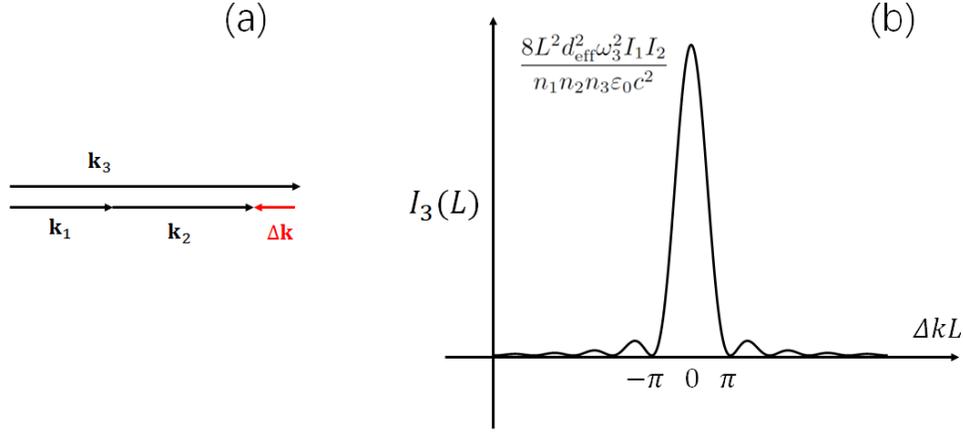


图 2. I_3 output under undepleted pumping approximation.

A. 强 $\omega_{1,2}$ 场近似下的基本解

我们考虑如图 (1b) 所示的边条件, $\tilde{E}_3(0) = 0$ 。显而易见的是, 如果 $n_j \approx 1$, 那么式 (3) 中 \tilde{E}_j 包络函数随着 z 的演化的特征长度为,

$$l_2 = \frac{\lambda}{|d_{\text{eff}} \tilde{E}_1(0) \tilde{E}_2(0)|} \quad (4)$$

如果我们考虑 $z \ll l_2$ 的演化, 那么必然有 $|\tilde{E}_{1,2}| \gg |\tilde{E}_3|$ 。该强 $\omega_{1,2}$ 场极限下, 对于 \tilde{E}_3 的演化, 我们可以近似 $\tilde{E}_{1,2}$ 不变, 在该 undepleted pump 近似下, 式 (3) 就是一个常微分方程, 非常好积分:

$$\begin{aligned} \tilde{E}_3(L) &= \frac{2\omega_3^2 d_{\text{eff}}}{k_3 c^2} \tilde{E}_1 \tilde{E}_2 \frac{e^{i\Delta k L} - 1}{\Delta k}, \\ I_3(L) &= \frac{8L^2 d_{\text{eff}}^2 \omega_3^2 I_1 I_2}{n_1 n_2 n_3 \epsilon_0 c^2} \text{sinc}^2\left(\frac{\Delta k L}{2}\right) \end{aligned} \quad (5)$$

注意上式中我们应用了光强的定义: $I_j = \epsilon_0 n_j |\tilde{E}_j|^2 c$ 。

B. 相位匹配: 问题在哪儿

从式(5)可知, 高效和频过程需要满足相位匹配条件

$$\begin{aligned} \Delta \mathbf{k} &= 0, \\ \Delta \omega &= 0 \end{aligned} \quad (6)$$

注意这两个条件的基础, 是我们假设了非线性介质的极化率 $\chi^{(n)}$ 空间、时间均匀分布。在如图 (2a) 共线情况下, 上式可以写为:

$$\begin{aligned} \omega_1 + \omega_2 &= \omega_3, \\ n_1 \omega_1 + n_2 \omega_2 &= n_3 \omega_3 \end{aligned} \quad (7)$$

这要求

$$\frac{n_3 - n_1}{n_3 - n_2} = -\frac{\omega_2}{\omega_1}$$

显而易见的是, n_3 需要取值在 $n_{1,2}$ 之间。

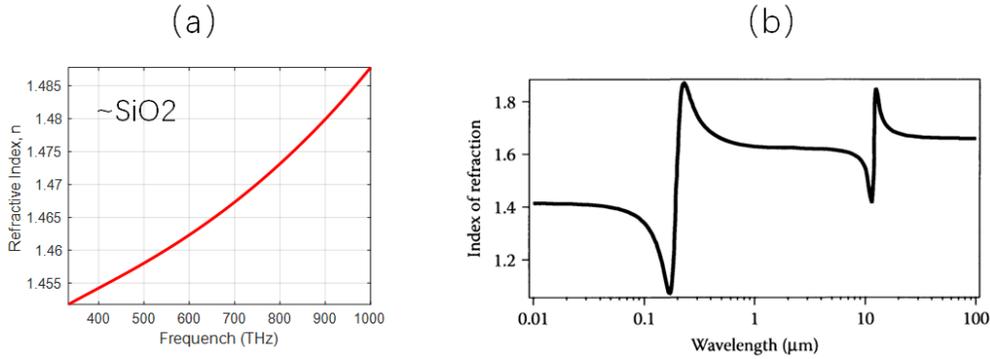


图 3. (a): Typical refractive index $n(\omega)$ for transparent medium (here close to silica). (b): A more broader view of the index as a function of wavelength (frequency), from Powers Book.

关于介质的线性折射率, 由 L12 的 Krammer-Kronig 关系可知, 和介质的吸收密切相关。透明介质的吸收带在紫外, 因此在可见光波段的折射率随波长(频率)变化常常如如图 (3)a, 是随频率单调递增的。也即 n_3 会比 $n_{1,2}$ 大, 无法支持式(7)。

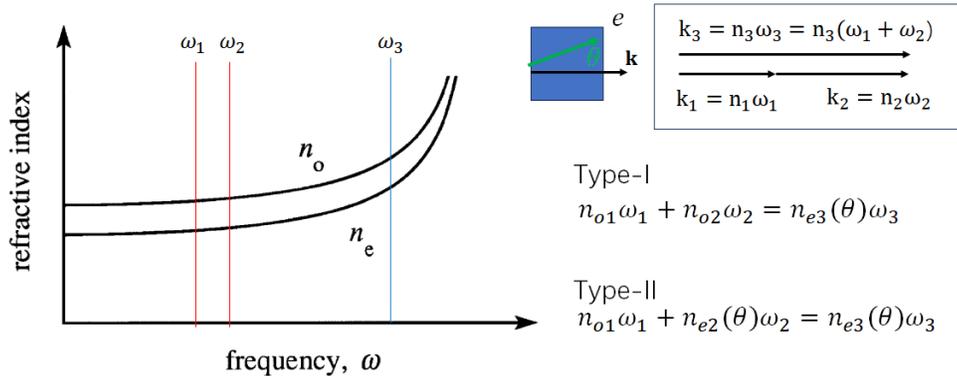


图 4. Phase-matching in a negative ($n_e < n_o$ birefringent crystal). The plot on the left is from Boyd Book.

C. 题外话: 气体中的相位匹配

还是从 Kramer-Kronig 关系出发, 如图(3)b, 我们知道如果光场的频率比原子共振频率大, 那么折射率会变小。因此, 在合适的近共振条件下, 式(7)似乎是可以满足的。

上述图像对于原子气体或分子气体是可行的, 是高频和频的重要技术。对于固体来说, 超越能隙的吸收带连成一篇, 很难找到透明且低折射的频率区间。

另一方面, 气体常常拥有中心反演对称性 ($\bar{1}$), 因此很难存在二阶效应。另一方面, 对于高阶效应来说, Δk 有时候也可以通过非共线匹配形成, 对 $n(\omega)$ 特定形式的要求反而小了。这些我们在后续课程会讲解。

D. 双折射晶体中的相位匹配

打破常规思路的第一个方法, 是运用各向异性晶体。如图(4)所示, 考察入射光场运用双折射晶体中光场传播的 Fresnell 公式

$$\frac{1}{n_e^2(\theta)} = \frac{\cos^2(\theta)}{n_e^2} + \frac{\sin^2(\theta)}{n_o^2} \quad (8)$$

1. 第一类相位匹配

通过调节光场传播方向和晶轴方向的夹角 θ , 并选择基频光 $E_{1,2}$ 沿着高折射率方向偏振, E_3 可沿着低折射率偏振方向出射。即可以实现式 (7)

2. 第二类相位匹配

通过调节光场传播方向和晶轴方向的夹角 θ , 并选择基频光 $E_{1,2}$ 中的一个沿着高折射率方向偏振, 另一个沿着低折射率偏振方向, E_3 也常常可沿着低折射率偏振方向出射。即可以实现式 (7)

3. 走离效应

由 L3, 对于如图(4)中的 e 光, 当匹配角 $\theta \neq 0, \pi/2$ 时, 其能流方向 (即光场包络面传播方向) 和 \mathbf{k} 方向存在走离角 $\rho = \dots$ 。而 o 光则不存在这个走离角。对于大小为 w 的光斑, 在 w/ρ 传播距离后 $o-$ 光和 $e-$ 光就分离了, 非线性耦合停止。这个问题的解决方案是在走离一段距离后, 更换晶轴方向, $\theta \rightarrow -\theta$ 。实际操作当然是比较麻烦的。

4. 接收角

基于式(8)双折射的角度匹配, 实际应用中的限制可以被量化为接受角

$$\begin{aligned} \Delta\theta &= \frac{(\Delta k)_{\text{half}}}{k \partial_\theta n}, \\ &\sim \frac{1}{kL} \frac{1}{\partial_\theta n} \end{aligned} \quad (9)$$

这里 $(\Delta k)_{\text{half}}$ 相当于图(2)中强度取一半的 Δk 偏差。从式(5)可知, 如果我们希望在相位匹配的时候有高的非线性效果, 那么自然希望晶体长度 L 大, 可是相应的, 在角度匹配中, 接受角 $\Delta\theta$ 就会比较小, 光路容错性差, 微小的光路变化可能会导致匹配度下降。此外, 如果将光斑聚焦到 w , 那么由波动光学, 相应的角度不确定性必然在 $\lambda/\pi w$ 级。为保证相位匹配, 需要

$$\lambda/\pi w < \Delta\theta \quad (10)$$

这个限制一定程度上局限了聚焦光斑的应用。

5. 双折射晶体中非临界角匹配

在如图 (4) 的相位匹配中, 如果恰好有 $\theta = 0$ 或者 $\pi/2$, 那么光场传播方向就是沿着晶体的晶轴方向, 这种“非临界角匹配”一般需要通过调节晶体温度才能实现, 其优点是匹配条件对入射光的角度变化不敏感 (式(9)一次导数 $\partial_\theta n$ 为零), 且不存在 walk-off 走离效应, 因此可支持更稳定高效的非线性混频应用。

当然, 不同于角度调节, 各向异性晶体的折射率椭球基本固定, 随温度可调范围小。非临界相位匹配应用常常是可遇而不可求的。

6. 等效非线性系数的优化

我们回到式(2)。在基于各向异性晶体的相位匹配中, 基频 $E_{1,2}$ 、和频 E_3 光的偏振选择常常由如图(4)的关系限制。当然, 对于双折射晶体, 即只有一个 e 轴的晶体来说, 对于特定 θ 角, 传播方向 \mathbf{k} 还是有一个和 e 轴夹角相同的”光锥“可以选择。这个情况下, 我们希望调节合适的角度, 最大化式(2)中的 d_{eff} , 详细讨论可见 Powers 书相关章节。

II. 强 ω_2 场近似下的基本解: BLOCH 球模型

以上我们考虑了基频光 $E_{1,2}$ 的无损耗强极限, 因此可以直接积分 E_3 , 获得式(5)。接下来我们放松这个近似, 考虑 E_2 的无损耗强极限, 而 $E_{1,3}$ 均可以是弱光。

1. 单光子的频率转换

在展开讲解以前, 我们首先讨论一下可能的应用。我们考虑某个量子光学实验产生了一个 $\lambda_1 = 780 \text{ nm}$ 的单光子, 需要传输 1 公里的距离, 最方便的方法是用光纤。问题是, 一般光纤在 780nm 的吸收很大。事实上石英光纤的吸收谷在通讯波段: $\lambda_c = 1310 \text{ nm}$ 或者 $\lambda_c = 1550 \text{ nm}$ 。我们非常希望在接入光纤以前, 将这个 λ_1 光子转换到 $\lambda_3 = 1550 \text{ nm}$, 在光纤输出端再给它转换回 $\lambda_1 = 780 \text{ nm}$ 。为此, 我们需要 $\lambda_2 = 1/(1/\lambda_1 - 1/\lambda_3) = 1570 \text{ nm}$ 的强 ω_2 光, 运用 $\chi^{(2)}$ 过程转换, 这样的转换效率可以有多高?

2. Bloch 球模型

我们从式(3)出发, 在强 ω_2 光条件下, 我们认为 $\tilde{E}_2 = \text{const.}$ 因此在对第一、第二个方程做计算的时候, 忽略 \tilde{E}_2 演化, 有,

$$\begin{cases} i\partial_z \tilde{E}_3 = -\frac{2\omega_3^2 d_{\text{eff}}}{k_3 c^2} \tilde{E}_2 \tilde{E}_1 e^{i\Delta k z}, \\ i\partial_z \tilde{E}_1 = -\frac{2\omega_1^2 d_{\text{eff}}}{k_1 c^2} \tilde{E}_2^* \tilde{E}_3 e^{-i\Delta k z} \end{cases} \quad (11)$$

在此, 我们的偏微分方程写法也可以稍微简化: 因为已经考虑稳恒平面波, \tilde{E}_j 仅是 z 的函数, 实际上上述方程是常微分方程。我们将系数合并, 定义,

$$K_1 = -\frac{4\omega_1^2}{k_1 c^2} \tilde{E}_2, \quad K_3 = -\frac{4\omega_3^2}{k_3 c^2} \tilde{E}_2^* \quad (12)$$

注意我们总可以通过调制光学相位，保证 $K_{1,3} > 0$ 为实数。此外，我们还考察远失谐“超快响应”下 d_{eff} 也是实数，于是有，

$$\begin{cases} i \frac{d\tilde{E}_3}{dz} = \frac{K_3 d_{\text{eff}}}{2} \tilde{E}_1 e^{i\Delta kz} \\ i \frac{d\tilde{E}_1}{dz} = \frac{K_1 d_{\text{eff}}}{2} \tilde{E}_3 e^{-i\Delta kz} \end{cases} \quad (13)$$

为解析求解(13)，我们做代换，

$$\tilde{A}_1 = \tilde{E}_1 e^{i\Delta kz/2}, \quad \tilde{A}_3 = \tilde{E}_3 \sqrt{K_1/K_3} e^{-i\Delta kz/2}. \quad (14)$$

将(14)代入(13)，整理过后我们得到更简单的方程，

$$\begin{aligned} i \frac{d}{dz} \begin{pmatrix} \tilde{A}_1 \\ \tilde{A}_3 \end{pmatrix} &= \frac{1}{2} \begin{pmatrix} -\Delta k & \sqrt{K_1 K_3} d_{\text{eff}} \\ \sqrt{K_1 K_3} d_{\text{eff}} & \Delta k \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \tilde{A}_1 \\ \tilde{A}_3 \end{pmatrix} \\ &= \frac{1}{2} (K\sigma_x - \Delta k\sigma_z) \begin{pmatrix} \tilde{A}_1 \\ \tilde{A}_3 \end{pmatrix}. \end{aligned} \quad (15)$$

这里

$$K = \sqrt{K_1 K_2} d_{\text{eff}} \quad (16)$$

我们用到了泡利矩阵，

$$\sigma_x = \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix}, \sigma_y = \begin{pmatrix} 0 & -i \\ i & 0 \end{pmatrix}, \sigma_z = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix}. \quad (17)$$

如果我们把 $(\tilde{A}_1, \tilde{A}_3)^T$ 视为二维希尔伯特空间中的一个未归一的量子态，那么对照(15)和薛定谔方程，

$$i \frac{\partial}{\partial t} |\psi\rangle = \hat{H} |\psi\rangle \quad (18)$$

我们发现这个体系的哈密顿量为，

$$\hat{H} = \frac{1}{2} (K\sigma_x - \Delta k\sigma_z) = \frac{1}{2} (\mathbf{K} \cdot \boldsymbol{\sigma}). \quad (19)$$

这里 $\mathbf{K} = (K, 0, -\Delta k)$, $\boldsymbol{\sigma} = (\sigma_x, \sigma_y, \sigma_z)$ 。可见这一哈密顿量是厄米的。我们得到这个体系的密度矩阵，

$$\hat{\rho} = \begin{pmatrix} \tilde{A}_1 \\ \tilde{A}_3 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \tilde{A}_1^* & \tilde{A}_3^* \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \tilde{A}_1 \tilde{A}_1^* & \tilde{A}_1 \tilde{A}_3^* \\ \tilde{A}_3 \tilde{A}_1^* & \tilde{A}_3 \tilde{A}_3^* \end{pmatrix}. \quad (20)$$

由于三个泡利矩阵 $\sigma_x, \sigma_y, \sigma_z$ 连同单位矩阵 I 一同构成 2×2 厄米矩阵的一组完备基，因此密度矩阵总能分解为，

$$\hat{\rho} = \frac{1}{2} A^2 (I + \mathbf{n} \cdot \boldsymbol{\sigma}). \quad (21)$$

这里 $A^2 = |\tilde{A}_1|^2 + |\tilde{A}_3|^2$ 是密度矩阵的迹。由于哈密顿量的厄米性质， $\dot{A}^2 = 0$ 不随时间变化。因此现在系统的状态只需由单位矢量 \mathbf{n} 描述。密度矩阵满足演化方程，

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{d}{dt} \hat{\rho} &= [\hat{H}, \hat{\rho}] \\ i\hbar \cdot \frac{1}{2} (\dot{\mathbf{n}} \cdot \boldsymbol{\sigma}) &= \left[\frac{1}{2} (\mathbf{K} \cdot \boldsymbol{\sigma}), \frac{1}{2} (\mathbf{n} \cdot \boldsymbol{\sigma}) \right] \\ i\hbar \cdot (\dot{\mathbf{n}} \cdot \boldsymbol{\sigma}) &= \frac{1}{2} [\mathbf{K} \cdot \boldsymbol{\sigma}, \mathbf{n} \cdot \boldsymbol{\sigma}] \\ i\hbar \cdot (\dot{\mathbf{n}} \cdot \boldsymbol{\sigma}) &= i (\mathbf{K} \times \mathbf{n}) \cdot \boldsymbol{\sigma} \end{aligned} \quad (22)$$

最后一步用到了泡利矩阵的性质 $\left[(\vec{a} \cdot \boldsymbol{\sigma}), (\vec{b} \cdot \boldsymbol{\sigma}) \right] = 2i (\vec{a} \times \vec{b}) \cdot \boldsymbol{\sigma}$ 。由于 $\boldsymbol{\sigma}$ 的每个分量线性无关，因此等式成立的条件对应每个分量前的系数分别相等，即，

$$\dot{\mathbf{n}} = \mathbf{K} \times \mathbf{n}. \quad (23)$$

等式(23)说明 \mathbf{n} 沿着矢量 \mathbf{K} 的指向为轴进动，这一等式包含了体系演化的全部信息。

Note:

$$\begin{aligned} \left[(\vec{a} \cdot \boldsymbol{\sigma}), (\vec{b} \cdot \boldsymbol{\sigma}) \right] &= [a_i \sigma_i, b_j \sigma_j] \\ &= a_i b_j [\sigma_i, \sigma_j] \\ &= a_i b_j \cdot (2i \varepsilon_{ijk} \sigma_k) \\ &= 2i (a_i b_j \varepsilon_{ijk} \hat{e}_k) \cdot (\sigma_\mu \hat{e}_\mu) \\ &= 2i (\vec{a} \times \vec{b}) \cdot \boldsymbol{\sigma}. \end{aligned}$$

当然，如果我們可以在笛卡尔坐标系下对 \mathbf{n} 参数化:

$$\mathbf{n} = (\sin \theta \cos \varphi, \sin \theta \sin \varphi, \cos \theta) \quad (24)$$

那么，我们也可以更加明显的以 θ, φ 把”二分量波函数“参数化。

$$\begin{pmatrix} \tilde{A}_1 \\ \tilde{A}_3 \end{pmatrix} = A \begin{pmatrix} \cos \left(\frac{\theta}{2} \right) e^{-i\varphi/2} \\ \sin \left(\frac{\theta}{2} \right) e^{i\varphi/2} \end{pmatrix}. \quad (25)$$

从(23)知道，单位矢量 \mathbf{n} 在演化中只改变指向，不改变长度，在单位球上演化。 θ 对应纬度， φ 对应经度。我们称这样一个三维空间里的单位球为 Bloch 球。态矢量在其上沿矢量 \mathbf{K} 所在的方向进动，进动角速度由长度 $|\mathbf{K}|$ 决定。另一方面，式(25)告诉我们单位矢量 \mathbf{n} 和光场 $\tilde{A}_{1,3}$ ，进而 $\tilde{E}_{1,3}$ 的关系。举例来说，当 $\theta = 0$ ， \mathbf{n} 在 Bloch 球上指向北极时， $\tilde{A}_3 = 0$ ，光场能量集中于 $\tilde{A}_1 = A e^{-i\varphi/2}$ 。当 \mathbf{n} 在赤道上时，光场处于 $\tilde{A}_{1,3}$ 的”等比例“相干叠加。

注意我们只用了三个实参数 A, θ, φ ，却表示了两个复数 \tilde{A}_1, \tilde{A}_3 。少掉的一个自由度在于，我们这里假设了 \tilde{A}_1 和 \tilde{A}_3 有刚好相反的幅角，可以这么做的原因在于，光场的总体相位因子总可以通过延时间来调整。

问题讨论: 780nm 光和 1560nm 光的”相干叠加“是什么意思？是说光场有确定的相位关系吗？

A. 非线性特解

式(3)是一个三阶非线性方程，即使是如我们假设的 d_{eff} 时空均匀，也没有一般解析解。但是可以有一些基于对称性守恒量的特解。

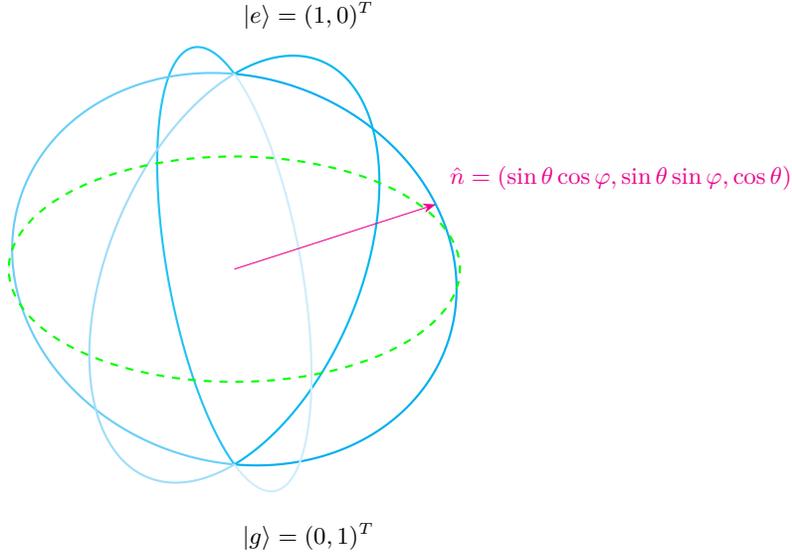


图 5. A sketch of Bloch Sphere (***)Please add a \mathbf{K} vector).

1. 二倍频

在和频过程中，一类重要的应用是二倍频， $\omega_1 = \omega_2$ 。我们考察

$$\begin{cases} i\partial_z \tilde{E}_3 = -\frac{2\omega_3^2 d_{\text{eff}}}{k_3 c^2} \tilde{E}_1^2 e^{i\Delta k z}, \\ i\partial_z \tilde{E}_1 = -\frac{4\omega_1^2 d_{\text{eff}}}{k_1 c^2} \tilde{E}_1^* \tilde{E}_3 e^{-i\Delta k z} \end{cases} \quad (26)$$

注意上式第二行，由于 $\tilde{E}_{1,2}$ 模式简并，我们需要更改简并因子，同时注意 $\omega_3 = 2\omega_1$ 。

2. 完美二次谐波

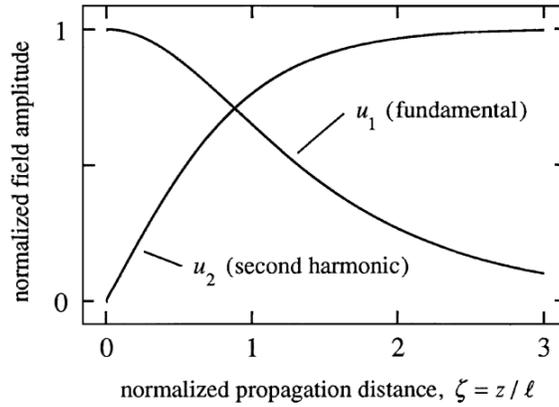


图 6. 非线性特解：完美相位匹配、平面波极限下的二次谐波完美转换 (取自 Boyd 书)

接下来我们令： $\rho_1 = \tilde{E}_1$, $\rho_3 = -i\tilde{E}_3$ 。选择 \tilde{E}_1 对应平面波的相位，可以保证 $\rho_1 \in R$ 是实数。此

外，我们假设倍频光 $\tilde{E}_3(0) = 0$ ，即在入射端 (图(1)) 光强为零。那么可以直接取其为虚数，因此也有 $\rho_3 \in R$ 是实数。以下我们考察 $\Delta k = 0$ 完美相位匹配，并规整实系数，可得：

$$\begin{cases} i\partial_z \rho_3 = D\rho_1^2, \\ i\partial_z \rho_1 = -D\rho_1\rho_3 \end{cases} \quad (27)$$

在守恒量方面，这个方程自然蕴含了我们此前说的”光子数流“Manley-Rowe 关系以及”电磁能量“守恒关系。此外，通过对第一式乘 ρ_2 ，第二式乘 ρ_1 ，我们还发现 $\partial_z(\rho_1^2 + \rho_2^2) = 0$ ，因此有另一个守恒量：

$$\rho_1^2 + \rho_2^2 = A_1^2(0) \quad (28)$$

由此可以解出：

$$\begin{aligned} \rho_1 &= A_1(0)\text{sech}(DA_1(0)z), \\ \rho_3 &= iA_1(0)\tanh(DA_1(0)z) \end{aligned} \quad (29)$$

式(29)的特征见图(6) (Boyd 书)。注意我们定义了完美二次谐波转换的特征长度

$$l = 1/D = \frac{(n_1 n_3)^{1/2} \lambda_1}{2d_{\text{eff}}|\tilde{E}_1(0)|} \quad (30)$$

和式(4)类似。

式(29)是非常惊人的：二次谐波原则上可以在无限弱的输入光强下完美进行。当然，这个过程需要晶体长度大于 l 。入射光强越弱， l 越长，技术难度越大。熟悉傅里叶变换的同学会了解，这个技术难度包括 $\Delta k = 0$ 相位匹配在长距离上是极难实现的 (图(2))。此外，我们不要忘记真实的晶体是有损耗的， $\alpha l \ll 1$ 需要保证。总结下来，由于 $d_{\text{eff}} \sim \text{pm}/V$ 常常是极小的，人们还是希望通过入射激光聚焦，增大 $\tilde{E}_1(0)$ 来减小非线性光学转换长度 l 。

III. 准相位匹配

我们回到式(13)及图(2)(4)。由第 1D 节讨论，相位匹配在双折射晶体中的实现还是有些不方便，包括式(2)的角度选择可能会降低 d_{eff} 大小。此外由 L4，存在一类各向同性、中心反演不对称晶体，即有 $\chi^{(2)}$ 却不存在双折射，这样的晶体能否实现相位匹配呢？

注意，式(6)要求本身的前提条件是我们假设 $\chi^{(2)}$ 时空均匀。显然的，通过打破 $\chi^{(2)}$ 的空间平移不变对称性，可能可以改变相位匹配条件。如下介绍基于周期性非线性系数调制的“准相位匹配”技术。

为理解这个技术，我们尝试回到式(19)，在 Bloch 球图像中，进动轴指向为，

$$\mathbf{K} = (K, 0, -\Delta k). \quad (31)$$

其长度为

$$|\mathbf{K}| = \sqrt{\Delta k^2 + K^2} \quad (32)$$

我们的任务是做完美和频：将 \tilde{E}_1 光完全转化到 \tilde{E}_3 模式，即在 Bloch 球面上将态矢量从南极 $\theta = 0$ 转到北极 $\theta = \pi$ 。这个任务对于 $\Delta k = 0$ ，相位匹配很简单，因为转轴 $\mathbf{K} = (K, 0, 0)$ 是沿着 x-轴的，沿大圆转动一个 π 角就可以了，实现上，控制晶体长度 $L_\pi = \pi/K$ (实际操作中，控制 \tilde{E}_2 光强)。

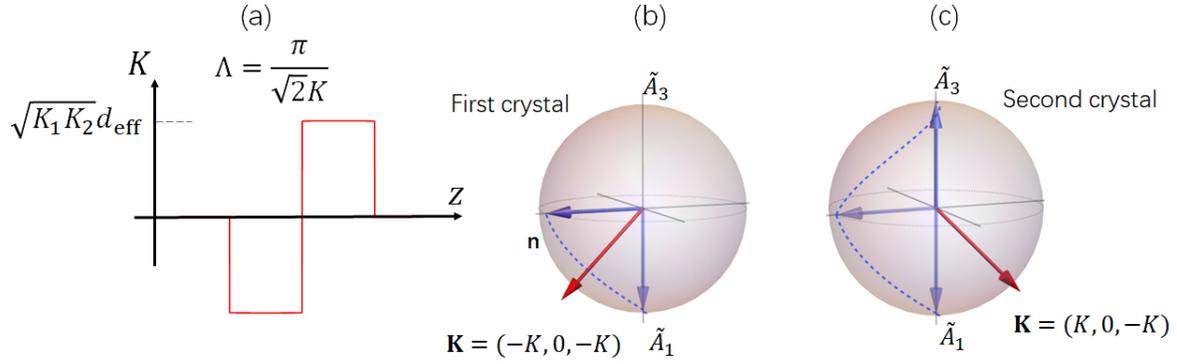


图 7. A two-crystal process for perfect frequency conversion

接下来我们考虑一个不大不小的 Δk , $\Delta k = -K$ 的特殊情形, 此时进动轴指向纬度 45° ,

$$\mathbf{K} = (-K, 0, -K). \quad (33)$$

如图(7)a 所示, 在这样的相位失配下, 非线性和频最好的可能也只是将态矢量转动到“赤道”, $\theta = \pi/2$, 也即式(II 2)中的 $|\tilde{A}_1| = |\tilde{A}_3|$, 光子转化效率为 50%, 对应晶体长度为 $L = \pi/\sqrt{2K}$ 。此后如果继续演化, 则 ω_3 光子又被转化回来了。

此时, 如果同学们的立体几何足够好, 那么可以想得出, 解决这个转轴的方法是在式 (31) 中把 $d_{\text{eff}} \rightarrow -d_{\text{eff}}$ 倒一下:

$$\mathbf{K}' = (K, 0, -K). \quad (34)$$

那么如图 7b, 位于赤道的态矢量就可以继续向北半球转了。

可见, 在进动方向指向纬度 45° 的情形里, 只需要颠倒一次波矢失配即可实现完美转换, 转换前后的晶体长度为 $\Lambda = \frac{\pi}{\sqrt{2K}}$, 总长度为 $L = \frac{\sqrt{2}\pi}{K}$ 。注意, 总长度还是比 $\Delta k = 0$ 相位匹配下, $L_\pi = \frac{\pi}{K}$ 要长。

上述“双晶体”案例可以推广到任意 $\Delta k > K/\eta$ 情形。为简单起见, 我们考虑 $\eta \ll 1$, 也即相位失配非常严重。可以周期性的调制 $d_{\text{eff}} \leftrightarrow -d_{\text{eff}}$, 得到

$$\mathbf{K} = \begin{cases} (K, 0, -\Delta k), & \text{for } (n-1)\Lambda < z < n\Lambda \\ (-K, 0, -\Delta k), & \text{for } n\Lambda < z < (n+1)\Lambda \end{cases} \quad (35)$$

其中 n 是整数。调制半周期

$$\Lambda = \pi/\sqrt{1 + \eta^2 \Delta k} \quad (36)$$

当然, 在 $\eta \ll 1$ 大失配极限下, 我们有准晶体的半周期 $\Lambda \approx \pi/\Delta k$ 。

周期性准相位匹配的 Bloch 球表示见图 8b。实际应用中, 如下我们讨论的周期准晶制备, 其半周期 Λ 常常是做出沿着 x 方向缓慢变化, 这样可以通过沿着 x 方向移动, 选择适合的 Λ 进行匹配(图(9)c)。

1. 铁电晶体, PPLN

准相位匹配的思想在上个实际 6, 70 年代已经提出, 然而工程学上的实现非常困难: 式(35)要求非线性晶体的等效极化系数 d_{eff} 沿着 z 做高度精确的方波调制(图(8)a), 工程上, 这个要求非常麻烦: 结

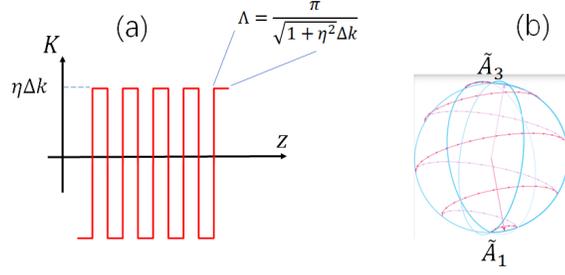


图 8. (a): Periodic d_{eff} -sign modulation for quasi-phase-matching (Eq.(35)). (b):Bloch sphere dynamics (***) 请按照式(35)修改)

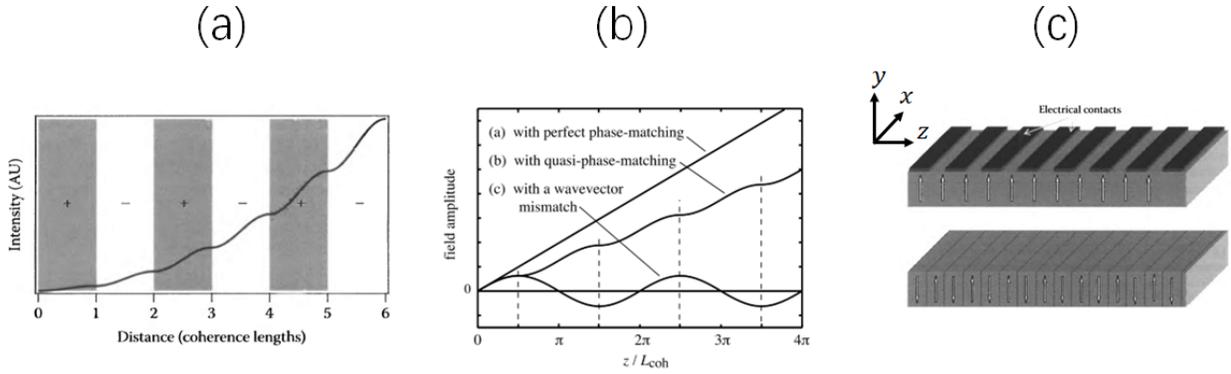


图 9. (a): 准相位匹配原理 (取自 Powers 书)。 (b): 完美匹配, 准匹配, 失配情形下的和频效率 (取自 Boyd 书)。 (c): 基于铁电效应的准相位匹配晶体制备 (取自 Powers 书)

合图(3), 考虑 $\Delta k = .01k$, 那么 Λ 在 50 微米级, 怎么能够在这个尺度上精确的形成非线性调制? 注意, 如果位置有错误积累, 那么从图(8)很容易看出, 非线性效率的相干积累会退化, 甚至反向演化。这个技术的重大突破是铁电晶体的应用。

在 L2 中我们已经提到, 晶体的非线性效应受晶体场的影响。铁电晶体的特点和铁磁性类似, 外加电场 E_{DC} 可以对晶体进行电极化, 而晶体电极化强度 P 在外场 E_{DC} 撤掉以后还有很大的“矫顽”成分, 形成很大的自发晶体电场 $E_{\text{crystal}} = E_{\text{res}}$ 。这个电场破坏了晶体的中心反演对称, 因此可支持二阶非线性效应。当然。对于线性极化来说, 这个电场也会导致双折射。

我们考虑如图(9)(c) 的左边第一个结构单元, 对电极加正压后, 下面的铁电晶体就会感受沿着 $-y$ 方向的电场, 撤出电压后, 就会形成沿着 $-y$ 方向的 E_{crystal} 。第二个单元加负, 那么会是沿着 $+y$ 方向的 E_{crystal} 。等等。

注意, $y \leftrightarrow -y$ 的变换, 很容易导致式(2)定义的 d_{eff} 变号, 只要 $\mathbf{e}_{1,2,3}$ 中有一个或者三个偏振是沿着 y 就好了。而对于线性偏振入射光来说, 无论是沿着 x 或者 y 入射, 如果 E_{crystal} 电场强度相同, 则线性折射率不会有改变。因此, 铁电效应可以非常方便的制造如图(9)a 的非线性系数超晶格而不改变线性光学响应, 形成如图(9)b 总结的准相位匹配效应。在光学材料方面, 目前应用最广的铁电晶体是铌酸锂 (LiNiO_3), 拥有极好的非线性系数, 光学透明性, 可加工性组合。基于 LiNiO_3 的周期性匹配晶体称为 PPLN. 类似准周期晶体还包括以磷酸氧钛钾 (Potassium titanyl phosphate) 加工的 PPKTP。

2. 光折变效应

基于铁电效应和二阶非线性效应的和频晶体常有一个不可忽视的连带效应，称为光折变效应。当入射光强变大时，热效应会导致电子依据局域温度迁移，形成空间电荷梯度及额外电场分布。这个电场反过来会影响线性折射率，造成和光强相关的折射，衍射效应。

光折变效应是一类非常特殊的非线性光学效应。由于是基于热扩散，光折变效应“超慢”，但是效率又特别高。除了极少数场合应用，是一种不方便，影响大平均功率激光非线性应用的负面效应。

IV. 非线性混频的”相控辐射-单模耦合“图像

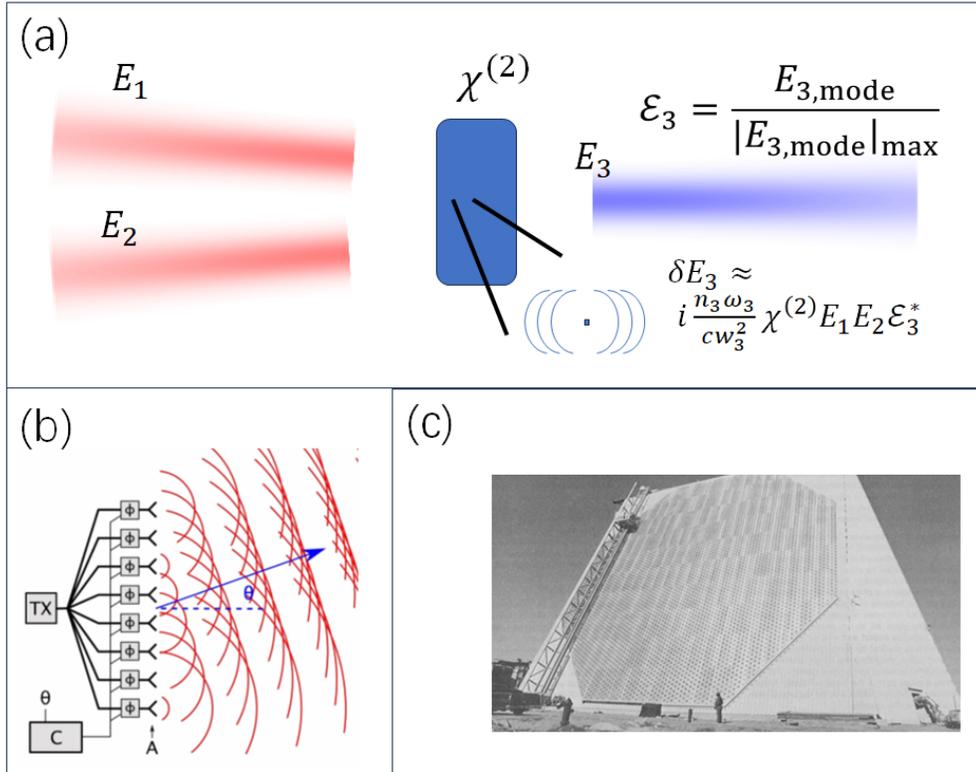


图 10. (a): 高斯光束二阶和频的“微元法”。(b): 相控天线。(c): 相控雷达

已经论述，因为激光功率有限，非线性系数 d_{eff} 小，虽然非线性过程的效率原则上可以如式(4)(30)的在特征长度上高效实现，实际情况是 L 越长，问题越多 (另见第 VII A 1 小节)。我们希望尽量聚焦基频光 $E_{1,2}$ ，增大强度，以最短的 L 实现高效。以上我们所有讨论均基于式(3)的平面波近似。是否有一个考察聚焦光场非线性混频过程的简单方法呢？有的，本节提供一个”相控辐射-单模耦合“图像，可用来近似考察任意光场，任意介质分布下的非线性混频效应。

A. 和频过程的单模耦合

我们考察如图(10)a 的二阶和频过程。不同于图(1), 这里我们考虑了基频 $E_{1,2}$ 的空间分布, 以高斯光为例,

$$E_j(\mathbf{r}) = E_{j,\text{mode}}(\mathbf{r})f_j(z) \quad (37)$$

其中 $f_j(z), j = 1, 2$ 是约化了的基频光电场强度 (除了真空介电常数 ϵ_0 , 电荷 e 外, 量纲是能量)。例如, 对于强 $\omega_{1,2}$ 极限, 我们有 $f_j(z) = w(0)E_j(0)$ 不变 (见下)。

1. 高斯模式

高斯光场模式函数表达式为:

$$E_{\text{mode}}(\mathbf{r}) = \frac{1}{w(z)} e^{-\frac{r_{\perp}^2}{w^2(z)} - ik\frac{r_{\perp}^2}{2R(z)} + i\varphi_G} e^{ikz} \quad (38)$$

这里, 不失一般性, 我们约定束腰位置 $\mathbf{r}_0 = 0$, 波矢 $\mathbf{k} = k\mathbf{e}_z$, 高斯腰宽 $w(0)$ 。这些参数决定了如下沿着传播方向变化的参量: 腰宽 $w(z)$, 波前曲率半径 $R(z)$, Gouy 相位 $\varphi_G(z)$,

$$\begin{aligned} w(z) &= w(0)\sqrt{1 + z^2/z_R^2}, \\ R(z) &= z + z_R^2/z, \\ \varphi_G(z) &= \arctan(z/z_R), \\ z_R &= \pi(w(0))^2/\lambda. \end{aligned} \quad (39)$$

其中 z_R 称为瑞丽长度。显然的是, 式(38)可以被推广到任意方向传播的高斯光。

2. Gouy 相位 $\varphi_G(z)$

由式(39), 显而易见的是, 在瑞丽长度内光斑聚焦性好。然而和平面波相比, 光学相位存在微妙的变化: 从 $-\pi/2$ 变到 $\pi/2$ 。

3. 和频光场的单模耦合

有了式(37)的基频光输入, E_3 输出怎么算呢? 我们可以拓展式(1), 从 L3 可知, 加上横向运动的微分算符 $-\nabla_{\perp}^2/2k_j$ 项来计算即可, 然而复杂度可想而知。

这里我们打算计算输出 E_3 光的具体形式, 而是将 E_3 光模式“投影”到我们觉得最合理的另一束高斯模式上。具体来说, 令 $j = 3$, 仍然强行用式(37)来“规定”输出 E_3 场的形式。

4. 微元法

我们考察图(10)a 中 $\chi^{(2)}$ 介质的一小块, 尺度远小于波长。其 ω_3 偶极振荡由 $E_{1,2}$ 驱动, 偶极矩为

$$\delta\mathbf{d} = \chi^{(2)} E_1 E_2 \delta V \quad (40)$$

偶极辐射如图所示。我们的问题是，这个体元的辐射对被规定的 $E_{3,\text{mode}}$ 贡献, δE_3 是多少? 在稳恒状态下通过边条件分析可知

$$\delta E_3 \approx i \frac{n_3 \omega_3}{c(w_3(0))^2} \chi^{(2)} E_1 E_2 \mathcal{E}_3^* \quad (41)$$

在上式中, 为描述腰宽的重要性, 我们引入了最大值归一的模场函数,

$$\mathcal{E} = \frac{E_{\text{mode}}}{|E_{\text{mode}}|_{\text{max}}} \quad (42)$$

式(41)值得思考: 偶极体元对输出和频高斯光场的贡献, 和频率 ω_3 成正比, 和我们强行规定高斯模场的聚焦腰宽 $w_3(0)$ 的平方成反比。且, 贡献的光场振幅有一个虚数单位 i , 即 $\pi/2$ 相移。

5. 式(41)的推导

6. 相控阵

图(10)a 的微元辐射是偶极辐射, 从远场来看, 除了有一个和偏振相关的角度因子外, 就是一个球面波。然而我们需要注意的是, 式(40)中的 $\delta \mathbf{d}$, 其相位由 $E_{1,2}$ 激发控制。如果 $\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 = \mathbf{k}_3$, 那么所有体元的偶极子辐射都会向 \mathbf{k}_3 方向相干相加。显而易见的是, 这个图像和图(10)(b,c) 中的相控天线, 相控雷达相通。

接下来, 我们对式(41)积分, 可得投影到约定模场内和频光场振幅为:

$$\begin{aligned} E_3(z > L) &= f_3(L) E_{3,\text{mode}}(\mathbf{r}), \text{ with} \\ f_3(L) &\approx i \int_V d^3 \mathbf{r} \frac{n_3 \omega_3}{c w_3(0)} \chi^{(2)}(\mathbf{r}) E_1(\mathbf{r}) E_2(\mathbf{r}) \mathcal{E}_3^*(\mathbf{r}) \\ &= i \int_V d^3 \mathbf{r} \frac{n_3 \omega_3}{c w_3(0)} \chi^{(2)}(\mathbf{r}) \tilde{E}_1(\mathbf{r}) \tilde{E}_2(\mathbf{r}) \tilde{\mathcal{E}}_3^*(\mathbf{r}) e^{i \Delta \mathbf{k} \cdot \mathbf{r}} \end{aligned} \quad (43)$$

为明显的表达传统意义上的相位匹配, 上式最后一行我们引入了模场函数的包络函数。

和式(1) 类似, 由于 $E_{1,2}(\mathbf{r})$ 随传播方向 z 有演化, 式(43)并不能直接积分。然而我们可以沿用第 IA 节的强 $\omega_{1,2}$ 光近似, 将上式转换为模式函数的积分:

$$f_3(L) \approx i \frac{E_1(0) E_2(0) n_3 \omega_3}{w_1(0) w_2(0) w_3(0) c} \int_V d^3 \mathbf{r} \chi^{(2)}(\mathbf{r}) \tilde{\mathcal{E}}_1(\mathbf{r}) \tilde{\mathcal{E}}_2(\mathbf{r}) \tilde{\mathcal{E}}_3^*(\mathbf{r}) e^{i \Delta \mathbf{k} \cdot \mathbf{r}} \quad (44)$$

再次强调, 和式(5)求解不同, 这里我们考察的是和频输出光分解到 $E_{3,\text{mode}}$ 模式中的振幅大小。实际应用中有两个情况:

- 1) 如果我们希望用高斯型光场来近似 E_3 , 那么需要调整式(38)中高斯参数, 对式(44)振幅最大化。
- 2) 做实验的同学知道, 有时候我们就是把输出光耦合到一根单模光纤里面的, 那么, 这个光纤模式本身就是 \mathcal{E}_3 , 我们的计算对应于耦合进入光纤的 E_3 振幅。

7. 高斯聚焦光的二阶和频

接下来我们考察式(44)。这个积分对任意 $\chi^{(n)}(\mathbf{r})$ 分布及 \mathcal{E}_j 激发都有指导意义, 然而即使是简单的高斯积分, 也有意想不到的结论。具体见 Boyd 书。

简单结论总结:

如果晶体长度 $L > z_R$, 那么由于 Gouy 相位, $\Delta \mathbf{k} = 0$, 频输出为功率仍然为零。因此, 聚焦需小心。

B. 如何用低功率激光获得高效和频

以下方案均试图高效利用低功率激光。相应的相位匹配能力均可用式(44)分析:

1. 聚焦
2. 波导
3. 多次通过
4. 光学腔

C. 界面上的相位匹配

由于 $\chi^{(2)}(\mathbf{r})$ 可以有空间分布, 式(44)当然可以用来分析第 III 的准相位匹配, 我们会发现该式即 $\chi^{(2)}$ 的傅里叶变换。而准相位匹配的要求是周期 $\chi^{(2)}(\mathbf{r})$ 在 $\Delta \mathbf{k}$ 分量上取极大。不再赘述。

这里我们考虑另一种“准相位匹配”: 三维介质的表面和界面是二阶非线性过程发生的极佳场景。原因有二:

- 1) 界面上很显然不存在中心反演对称, 偏振调节, 容易发生二阶极化。
- 2) 以下我们将看到, 界面上的相位匹配实际上是:

$$\Delta \mathbf{k} - \Delta \mathbf{k} \cdot \mathbf{s} \mathbf{s} = 0 \quad (45)$$

其中 \mathbf{s} 是界面的法向。式(45)是说, 相位匹配只需要在平移不变的面内维持即可, 大为方便。式(45)在界面的应用包括确定出射和透射方向和频光的方向, 见习题...

接下来, 我们用式(44)推导式(45)。我们考察界面两侧的介质有中心反演对称, 因此不存在二阶效应, $\chi^{(2)} = \chi^{(2)} \sigma \delta(y)$ 仅存在于 $y = 0$ 的 $x - z$ 平面。由式(44)先做 y - 方向积分可得,

$$f_3 \sim i \frac{\sigma E_1(0) E_2(0) n_3 \omega_3}{w_1(0) w_2(0) w_3(0) c} \int_S dx dz \chi^{(2)}(x, 0, z) \tilde{\mathcal{E}}_1(\mathbf{r}) \tilde{\mathcal{E}}_2(\mathbf{r}) \tilde{\mathcal{E}}_3^*(\mathbf{r}) e^{i \Delta \mathbf{k}_{//} \cdot \mathbf{r}_{//}} \quad (46)$$

其中 $\mathbf{r}_{//} = \mathbf{r} - \mathbf{r} \cdot \mathbf{s} \mathbf{s}$, $\mathbf{k}_{//} = \mathbf{k} - \mathbf{k} \cdot \mathbf{s} \mathbf{s}$ 。显然的是, 如果 $\chi^{(2)}$ 在面内是均匀的, 那么 $\Delta \mathbf{k}_{//} = 0$ 是相位匹配条件, 即式(45)。

由于参与介质少, 界面上的和频过程效率不会很高。然而界面物理极端重要, 界面和频是检测界面物态微观性质的重要光学手段。

===== Lecture 6

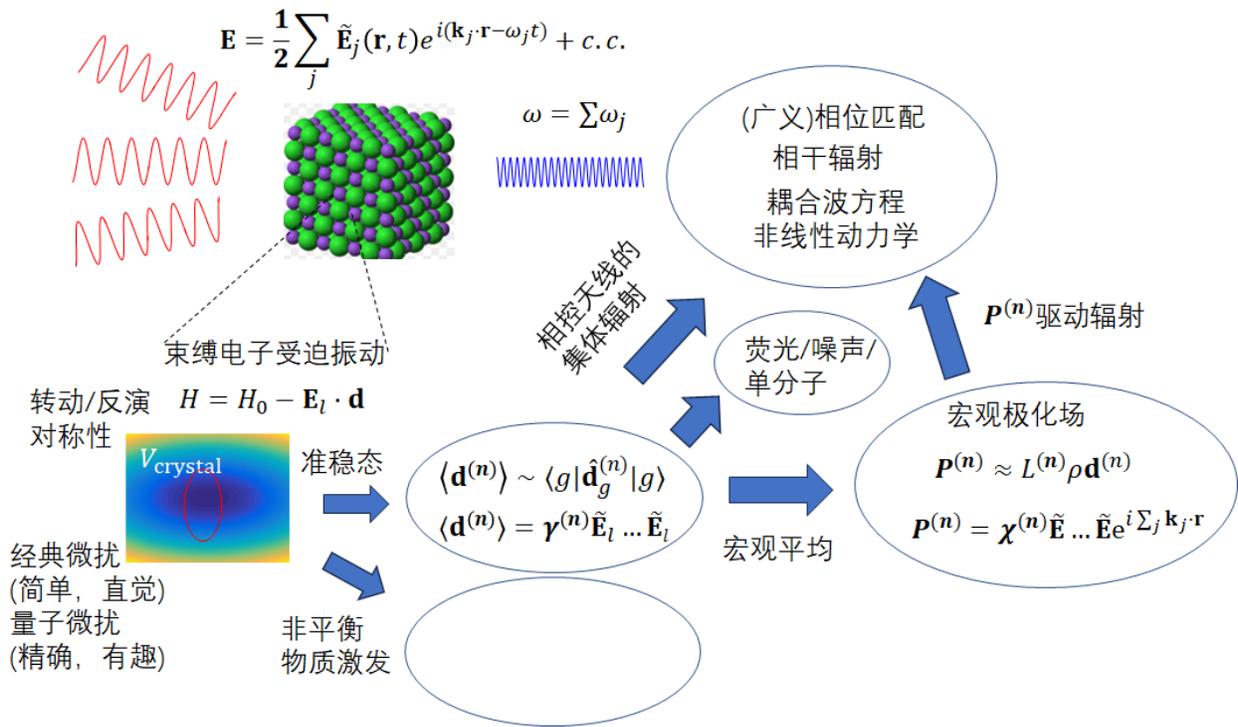


图 11. Framework of nonlinear optics

V. 非线性光学框架-中期回顾

A. 基本框架和核心技巧

非线性光学以光学和量子力学为基础，逻辑简单明了。图(11)以最重要的电偶极相互作用为例，展示其基本逻辑框架，包括：

- 1) 微观电荷体系的受迫振动
- 2) 宏观极化场的形成
- 3) 宏观极化场的相干辐射。

当然，在本节课中，我们还试图“绕过”宏观极化场，以相控天线的图像(图(10))直接连接(1)(3)。对于宏观相干辐射来说，两个方法当然是等价的，然而第二个方法的假设更少，因此也更加普适。例如我们可以通过相控天线的图像来考察相位不匹配的非线性激发形成的多光子荧光，以下会稍做介绍。这样的多光子荧光应用到微观的原子分子，是重要的非线性光学成像研究手段。

B. 非线性极化的微扰计算

如图(11), 对于(1)的数学推导我们可以用经典和量子微扰方案。任何一种微扰方法，在代数上都比较复杂，原因是光场是“实数”，必然包含正频和负频分量，因此 n -阶过程一定有 2^n 方个项需要计算，而 $\omega = \sum_j \omega_j$ 过程存在各种混频可能，等等。

有趣的是，这个复杂性在量子微扰图像中，用图形化表达后，变得比较直观。在量子微扰的图形化

计算技术方面，需要注意以下两点

1) $-\omega + \sum_j \omega_j = 0$ 的 $(n+1)!$ 全排列对应于 $(n+1)!$ 种量子演化过程，而每一个过程又需要对所有中间态求和。

2) 上述计算看似复杂，但常常存在中间能量（多光子失谐）比较守恒的近共振过程，振幅大，称为主要矛盾。当然，对于远失谐，“超快”现象，中间能量比较不守恒过程也需要全面考虑。

3) 中间态有可能包括基态，这个时候，直接套用公式有可能振幅会发散。导致这样发散的机制有两种：

3a) 简单发散：微扰发散项互相抵消，见我们第二次习题。

3b) 基态物质的其他自由度。例如我们目前只考虑电子运动，那么原子核，晶格，等可以被激发起来，这些激发如果不能到稳态，那么我们考虑的“微扰计算”就都不成立。

4) 更加一般的来说，我们的微扰计算，均是基于光和物质相互作用达到稳态这一基本假设。如果没有达到稳态，那么物质激发自由度需要被计入到运动方程。相应的处理方法分两类：唯象的处理方法可以是把物质激发作为“参量过程”（见布里渊散射）。更加细致的处理方法是联立光的波动方程和物质的薛定谔或者主方程，第二种联立方程被称为“Maxwell-Bloch 方程组”。本课程最后会稍做介绍。

C. 广义相位匹配：相控辐射单模耦合图像

如图(11)，从微观偶极振荡到宏观非线性辐射，可以由极化场来描述，也可以由相控天线集体辐射来描述。两种描述方法都可以得到式(43)。高效的宏观非线性辐射要求的“广义相位匹配”，是指这个积分的相位尽量不变，每个小体元的贡献对单模辐射场 \mathcal{E} 辐射的振幅相干相加。

当然，如果我们约定所有的光场模式都是平面波，而物质又是均匀的，那么自然可以恢复 $\Delta \mathbf{k} = 0$ 的相位匹配条件。

D. 宏观极化率的对称性

首先，基于相互作用非线性微扰展开， $\gamma^{(n)}$ 张量本身就存在指标的“内禀对称性”，“置换”，Kleinmann 对称性，等等。比较好理解。

如图(11)，另一大类对称性是体系的旋转对称性。由 Neumann 原理，这类对称性会体现到张量 $\gamma^{(n)}$, $\chi^{(n)}$ 中。

在具体掌握上，关注第二次习题的 $\chi^{(3)}$ 案例细节。

VI. 差频过程

A. 参量放大 OPA

在上一讲我们考察了如图(1)，式(1)过程中强 $\omega_{1,2}$ 光极限。现在我们考察强 ω_3 光极限，因此忽略泵浦光 \tilde{E}_3 演化。在对第三式取厄密共轭后，式(1)可以简化为：

$$\begin{cases} i\partial_z \tilde{E}_1 = -\frac{2\omega_1^2 d_{\text{eff}}}{k_1 c^2} \tilde{E}_2^* \tilde{E}_3 e^{-i\Delta k z} \\ -i\partial_z \tilde{E}_2^* = -\frac{2\omega_2^2 d_{\text{eff}}}{k_2 c^2} \tilde{E}_1 \tilde{E}_3^* e^{i\Delta k z} \end{cases} \quad (47)$$

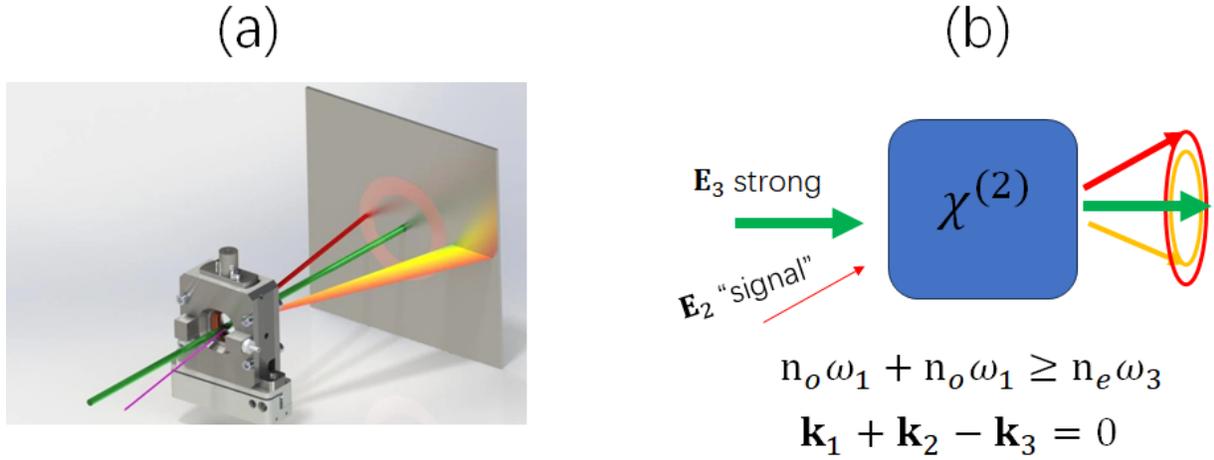


图 12. Optical parametric amplification, illustrated with a type-I phase-matching example. (a) is from online resource (see text on subtle details).

这个式子和式(11)非常类似。我们做类似的变量代换:

$$\tilde{A}_1 = \tilde{E}_1 e^{i\Delta k z/2}, \quad \tilde{A}_2^* = \tilde{E}_2^* \sqrt{K_1/K_2} e^{-i\Delta k z/2}. \quad (48)$$

其中

$$K_1 = -\frac{4\omega_1^2}{k_1 c^2} \tilde{d}_{\text{eff}} E_3, \quad K_2 = -\frac{4\omega_3^2}{k_3 c^2} \tilde{d}_{\text{eff}} E_3^* \quad (49)$$

注意, 这里为了表达方便, 我们重新定义光学相位等等, 并且把 d_{eff} 吸收到 $K_{1,2}$ 定义了。定义 $K = \sqrt{K_1 K_2}$ 带入到式 47, 得

$$i \frac{d}{dz} \begin{pmatrix} \tilde{A}_1 \\ \tilde{A}_2^* \end{pmatrix} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} -\Delta k & K \\ -K & \Delta k \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \tilde{A}_1 \\ \tilde{A}_2^* \end{pmatrix} \quad (50)$$

和式(15)稍微不同的是, 这里右边的矩阵不是厄密的, 而是反厄密的。式(50)的求解基本步骤是通过傅里叶或者拉普拉斯变换将之变为线性代数方程, 求解右边矩阵的特征向量和特征值, 我们有特征值的解法:

$$\det \begin{pmatrix} -\Delta k - \lambda & K \\ -K & \Delta k - \lambda \end{pmatrix} = 0 \quad (51)$$

得 $\lambda = \pm \sqrt{\Delta k^2 - K^2}$, 注意这个和式(32)的不同。显而易见的是, 如果 $K > \Delta k$, 那么特征值是虚数, 容易发现, 此时 $\tilde{A}_1, \tilde{A}_2^*$ 随 z 的演化呈指数放大或衰减。

1. 基本解

以下我们仅考察 $\Delta k = 0$, 相位匹配的情况。令 $g = |K|$ 为增益系数, 那么基本解为:

$$\begin{aligned} \tilde{A}_1(z) &= \tilde{A}_1(0) \cosh(gz) + \tilde{A}_2^*(0) \sinh(gz) \frac{\tilde{E}_3}{|E_3|}, \\ \tilde{A}_2^*(z) &= \tilde{A}_2^*(0) \cosh(gz) + \tilde{A}_1(0) \sinh(gz) \frac{\tilde{E}_3^*}{|E_3|}. \end{aligned} \quad (52)$$

这儿我们把 \tilde{E}_3 相位又写会来了。

B. 非共线匹配

见图(12)。这里我们以双折射晶体中的第一类相位匹配为例，因此，对于 $n_o(\omega_1)\omega_1 + n_o(\omega_2)\omega_2 \geq n_e(\omega_3)\omega_3$ 的折射条件来说，沿着泵浦光方向的 $\omega_{1,2}$ 光可以选取各自张角的光锥任意角度，只需 $\mathbf{k}_{1,2}$ 取角相反即可。

第二类相位匹配会稍微麻烦些，因为 e 光的折射率和角度是相关的。见后续讨论。

从图(12)同学们可以看到，放大的信号光模式尚好、闲置光有点不太好。且信号光旁边有一个圆形的光晕。这个光晕是如下要介绍的自发下转换荧光。该图(12)(a) 中其他细节是否正确，可以讨论一下。

C. 参量放大中的信号光和闲置光

见图(12)。这里我们考察输入端 \tilde{E}_1 为待放大的信号， \tilde{E}_2 为零输入，那么式(52)可以简化为：

$$\begin{aligned} \tilde{A}_1(z) &= \tilde{A}_1(0)\cosh(gz), \\ \tilde{A}_2^*(z) &= \tilde{A}_1(0)\sinh(gz)\frac{\tilde{E}_3^*}{|E_3|}. \end{aligned} \quad (53)$$

注意 $\sinh(gz)$, $\cosh(gz)$ 的指数表达（见图(13)）。式(53)是说，对光信号的指数放大是可行的，且会多出一路“闲置”光来。有这样的好事吗？

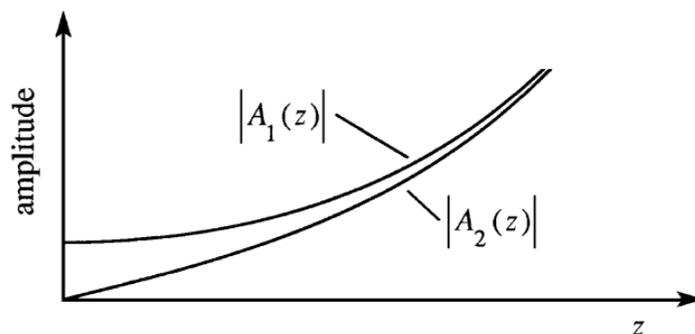


图 13. Parametric optical amplification of "signal". From Boyd book.

1. 啁啾脉冲放大技术 CPA

见图(14)。基本思路：对超强脉冲激光的（参量）放大必须避免非线性晶体的损害。为此，可以用线性光栅系统制造群速色散 (L2)，先把脉冲拉长，经过放大后在用另一个光栅系统将脉冲压缩回原长。

技术细节物理优美，同学们可以调研以下。因为发明此类原创技术，加拿大 Waterloo 大学的 Donna Strickland 教授及美国罗切斯特大学的 Gerard Mourou 获得 2018 年诺贝尔物理奖。同时获奖的还有在贝尔实验室发明光镊技术的 Alan Ashkin。

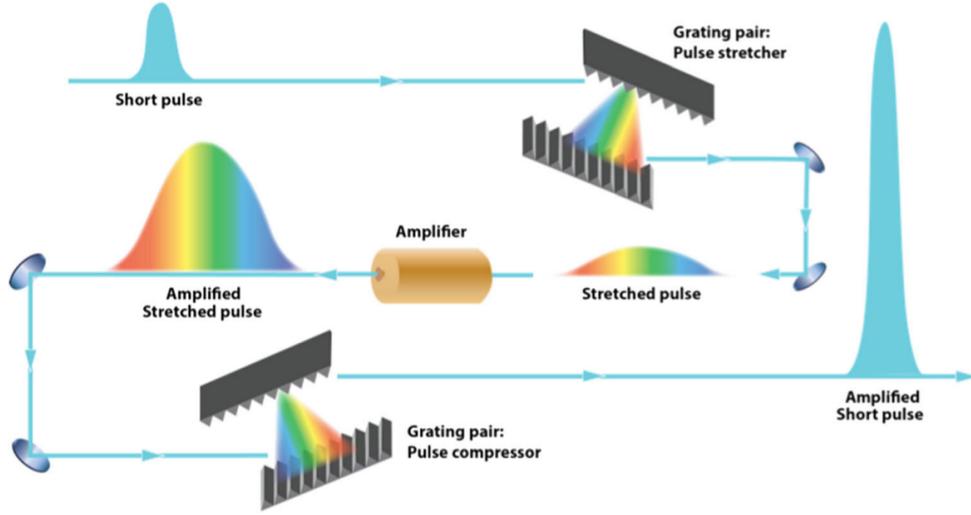


图 14. Chirped pulse amplification technique, from online.

D. 自发参量下转换 SPDC

如果在式(47)中我们的边条件是 $\tilde{E}_{1,2}(0) = 0$, 那么按式(52)解来看, 应该有 $\tilde{E}_{1,2}(L) = 0$ 。当然我们知道, 既然信号光和“闲置”光都有被指数放大的趋势, 这种光的“真空状态”是不稳定的, 任何热涨落, 甚至是真空量子涨落, 均有可能造成大量的光输出。这种无主动输入, 自发形成的参量输出, 称为 SPDC。

1. 自发涨落放大的强度关联

我们考察图(12)b 中的输入端 $\tilde{E}_{1,2} \propto \delta A_{1,2}$ 存在随机涨落, 具体到式(52), 引入 $\delta \tilde{A}_{1,2}$, 满足

$$\begin{aligned}
 \langle \delta \tilde{A}_{1,2} \rangle &= 0, \\
 \langle \delta \tilde{A}_1^* \delta \tilde{A}_1 \rangle &= \bar{n}_1 + \frac{1}{2}, \\
 \langle \delta \tilde{A}_2^* \delta \tilde{A}_2 \rangle &= \bar{n}_2 + \frac{1}{2},
 \end{aligned} \tag{54}$$

上式第一式是说, 入射光的振幅涨落是随机的。二、三行是说, 强度(功率)不为零, 由该模式的平均光子数 $\bar{n}_{1,2}$ 表征。注意, 在引入量子场后我们会发现, 即使是绝对零度的真空, 光学模式也存在 $1/2$ 个光子大小的强度涨落。

当然我们知道光子数满足玻色统计, 为 $\bar{n} = \frac{1}{e^{\beta \hbar \omega} - 1}$ 。在光学波段, 暗室中, 室温下有 $\bar{n} = 0$, 因此, 半个光子的真空涨落是最重要的。

2. SPDC 的噪声关联

我们把满足式(54)条件的涨落振幅 $\delta A_{1,2}$ 带入到式(52)，即可发现：

$$\begin{aligned}
 \langle \tilde{A}_{1,2}(L) \rangle &= 0 \\
 \langle |\tilde{A}_1(L)|^2 \rangle &= (\bar{n}_1 + \frac{1}{2}) \cosh^2(gL) + (\bar{n}_2 + \frac{1}{2}) \sinh^2(gL) \\
 \langle |\tilde{A}_2(L)|^2 \rangle &= (\bar{n}_2 + \frac{1}{2}) \cosh^2(gL) + (\bar{n}_1 + \frac{1}{2}) \sinh^2(gL) \\
 \langle \tilde{A}_1(L) \tilde{A}_2(L) \rangle &= (\bar{n}_1 + \bar{n}_2 + 1) \cosh(gL) \sinh(gL) \frac{\tilde{E}_3}{|\tilde{E}_3|}
 \end{aligned} \tag{55}$$

上式的第一行是说，无论是自发参量下转换的“信号”或者“闲置”端（事实上，显然的是，由于都没有信号输入，这两端已经没有任何区别），其输出振幅平均值是零。

上式的第二、三行是说，相比输入噪声，输出噪声的功率指数级增大 (e^{2gL})。

上式的第四行是最有意思的，是说输出光的噪声存在完美的强度和相位关联，具体来说，看似随机的 $\tilde{A}_{1,2}(L)$ 输出，其强度涨落关联，相位涨落反关联。乘积的相位由泵浦光相位 \tilde{E}_3 决定。

3. 简并 SPDC 的量子纠缠及应用

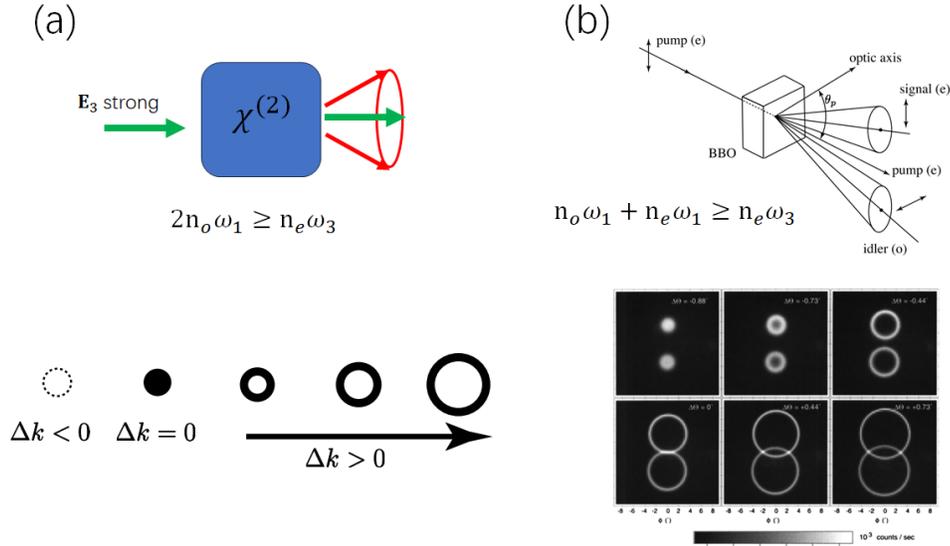


图 15. (a): Type-I SPDC and typical output, here $\Delta k = 2k_1 - k_2$ (From Boyd book). (a): Type-II SPDC and typical output (From Boyd book).

我们考察如图(15)a 的第一类相位匹配下的 SPDC，并假设“信号”及“闲置”光场的频率基本相同。简并 SPDC 相位匹配的必要条件为

$$2n_o(\omega_1)\omega_1 \geq n_e(\theta, \omega_3)\omega_3 \tag{56}$$

其中 θ 为泵浦光传播方向和晶轴的夹角。式(56)满足后，下转换光场可以在如图(15)a 的光锥内实现。

上述基于共线传播的式(55)可以轻易推广到如图(15)的非共线情况。我们发现输出荧光位于以 $\sin^{-1}(\frac{k_3}{k_3+\Delta k})$ 为夹角的相位匹配锥形曲 (注意这里和前面章节不同, $\Delta k = 2k_1 - k_3$ 和 Boyd 书一致, 是标量相减)。从振幅上来看是噪声。然而如果我们取环形的相反方向输出, 会发现输出强度和相位均存在如式(55)的关联。当入射为真空态, $\bar{n}_{1,2} = 0$ 时, 这样的关联是量子的。更加细致的分析可以发现, \tilde{A}_1, \tilde{A}_2 线性组合的涨落幅度可以小于 $\tilde{A}_{1,2}$ 真空涨落幅度 (式(55)第二、三行, 1/2), 在量子光学中被称为“真空压缩”。

另一方面, 我们考察图(15)b 的第二类相位匹配。细致分析表明, 此时的信号和“闲置”输出处于两个光锥, 偏振互相垂直。而当 $\Delta k = k_1 + k_2 - k_3$ 达到一定程度后, 两个光锥会重合。在交叉点处的输出光, 其偏振也是纠缠起来的。我们记左右两个光斑的模式为 l, r , 那么双光子偏振态可以写为

$$|\Psi\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|H_l V_r\rangle + |V_l H_r\rangle) \quad (57)$$

其中 H 代表水平偏振, V 代表垂直偏振。这样的光子对很有趣, 和爱因斯坦用于反驳 Bohr 诠释的 EPR 佯谬构架相通。然而, EPR 只是佯谬, 是可以验证、真实发生的物理现象。事实上, 如式(57)的量子纠缠是可以用于量子通讯/量子计算的重要资源: 经过长时间传播, 这两个光子的偏振仍然是互相垂直的。在测量中:

1) 如果 l 光子取 H , 则 r 光子取 V ,

2) 如果在测量以前用 1/2 波片把偏振转 45 度, 会发现如果 l 光子取 H' , 则 r 光子取 V' , 仍然是完美关联的。这一点是 EPR 及量子通讯的精髓。

由于没有对光场量子化, 本小节的讨论并不严格。详细讨论需要量子光学的知识。

4. 参量放大的量子噪声

如图(12)可见, 式(53)的信号放大并非免费午餐, 伴随信号的放大必然是如式(55)的噪声放大。对于“最完美”的信号波形输入, 也存在真空涨落, 并被放大, 因此输出光的“信噪比”反而会下降。

当然, 现实生活中, 信号放大常常对应信号探测中的“信噪比”上升, 原因是我们常常有各种测量类电子噪声。通过放大光学信号的幅值, 可以增大光电信号, 有利于超越电子噪声的信号读取。

然而在量子光学的层次上有两个重要结论:

1) 参量放大必然导致额外的噪声。

2) 参量放大的信号路噪声, 原则上可以通过对参量光路的精密测量, 读取, 实现相当程度的噪声修正 (只是难度很大)。

E. 参量振荡 OPO

1. *Fabry-Perot* 腔的模式分析
2. OPO 振荡条件
3. 模式竞争和单模振荡
4. 双共振和单共振 OPO

F. THz 产生和检测

1. 相位匹配条件

VII. 脉冲光的测量技术

Jeffery New book Chap 7.9, 7.10

A. 脉冲光的自相关测量

1. 相位匹配带宽

1. 超快响应: 频域: $\chi^{(2)}(\omega; \omega_1, \omega_2) \sim \text{const}$ within e.g., $0 \sim 2\omega$, 时域 $\chi^{(2)}(t; t_1, t_2) \sim \delta(t-t_1)\delta(t-t_2)$
2. 宽带相位匹配:

$$\begin{aligned}\Delta\omega &\sim \frac{1}{L\partial_\omega\Delta k} \\ &= \frac{1}{L\Delta 1/v_g}\end{aligned}\tag{58}$$

B. 光强测量

$$I(t) = \langle |\tilde{E}(t)|^2 \rangle$$

C. 自相关强度测量

$$I_2(\tau) = \left| \int_{-\infty}^{\infty} \tilde{E}(t)\tilde{E}(t-\tau) dt \right|^2$$

D. FROG

E. SPIDER

Spectral Phase Interferometry for Direct Electric-field Reconstruction (SPIDER):

F. 非线性晶体

Jeffery New book Chap 4.5, 4.6

Property	LBO (LiB_3O_5)	BBO ($\beta\text{-BaB}_2\text{O}_4$)	KBBF ($\text{KBe}_2\text{BO}_3\text{F}_2$)
Transparency Range (μm)	0.15 - 2.6	0.19 - 3.3	0.147 - 3.66
Nonlinear Optical Coefficients (pm/V)	$d_{32} = 1.04$	$d_{22} = 1.6$	$d_{11} = 0.49$
Damage Threshold (GW/cm^2)	~ 18 (1064 nm, 10 ns)	~ 10 (1064 nm, 10 ns)	~ 5 (248 nm, 20 ns)
Phase Matching Type	Type I and Type II	Type I and Type II	Deep-UV phase matching
Unique Features	High damage threshold, wide transparency range	High nonlinearity, wide transparency range	High nonlinearity, capable of generating deep UV light

表 I. Summary of Key Nonlinear Optical Properties of LBO, BBO, and KBBF

VIII. 第三次作业第一部分

(1) 我们考虑空气和玻璃界面的和频过程。基频 $\lambda_1 = 800 \text{ nm}$, $\lambda_2 = 600 \text{ nm}$ 的激光从空气入射, 入射角为 $\theta_{\text{in}} = 45^\circ$ 。试给出和频光的波长 λ_3 , 并通过分析式(46), 结合折射率网站 refractiveindex.info 提供石英玻璃折射率数据, 推导射向空气和玻璃的和频光方向。

(2) 式(52)给出了波什匹配 $\Delta k = 0$ 情形下参量放大解。请从式(47)出发, 严格推导, 将这个解推广到 $\Delta k \neq 0$ 的情况。

(3) 试讨论图(12)a 的细节, 包括信号光波长上的荧光环, 闲置光的分布, 等。分析你认为这些细节的物理来源, 及可能的不合理之处。

(4) 考察 LiNiO_3 单模波导器件中的二次谐波, $\omega_1 + \omega_2 = \omega_3$ 。基频 ($j = 1, 2$) 及和频 ($j = 3$) 光场模式为 $\mathbf{E}_{j,\text{mode}}(\mathbf{r}_\perp, z) = \tilde{\mathbf{E}}_j(\mathbf{r}_\perp)e^{i\beta_j z}$, $\beta_j = \beta(\omega_j)$, $j = 1, 2, 3$ 是波导光的传播常数。试结合式(44), 证明导波和频的相位匹配条件为 $\Delta\beta = 0$, 并结合单模/多模波导光学物理知识, 讨论导波非线性混频的技术特点, 可能的实用价值和局限。