

目 录

引 言	1
第一章 电极化率的经典描述	3
一、电极化率的频率色散与空间色散	3
二、一维振子响应的经典理论	6
三、三维空间的非线性电极化强度	13
四、电极化率张量的一般性质	17
五、几点说明	21
第二章 非线性电极化率的量子力学描述	25
一、密度算符及其运动方程	25
二、密度算符的微扰级数	32
三、电极化率张量的表示式	38
四、近独立分子体系的电极化率张量	43
五、电极化率张量的完全对易对称性	56
六、完全对易对称性的若干物理结果	58
七、电极化率张量的时间反演对称性	64
八、有效场电极化率	67
九、分子间弱相互作用的效应	68
十、共振电极化率	72
十一、准单色辐射的非线性电极化	81
十二、带电粒子能在介质中自由移动情况下的电极化率张量的表示式	88
第三章 晶体的对称类型和电极化率张量的形式	98
一、对称变换	98
二、晶体的分类	101
三、电极化率张量的空间对称性	108
第四章 电磁波在介质内的传播	123
一、电磁波在各向异性晶体内的传播	123
二、折射率椭球	138
三、介质有耗对波的传播的影响	143
四、非线性相互作用的电磁公式	141

五、相位匹配	147
第五章 二阶电极化所引起的非线性现象	157
一、旋光性理论	157
二、法拉第效应	161
三、线性电光效应	163
四、光整流效应	174
五、三波耦合, 和频与差频的产生	175
六、二次谐波产生和二次谐波的有效非线性光学系数	182
七、参量变换	190
八、参量放大与振荡	193
九、背向参量放大与振荡	203
第六章 三阶电极化引起的非线性现象	207
一、克尔效应	207
二、光束的自聚焦现象	210
三、三次谐波产生	217
四、双光子吸收	224
五、受激喇曼散射	230
六、双谱泵浦过程和相干反斯托克斯喇曼散射	239
七、受激布里渊散射	243
八、受激光散射现象的一般考虑	252
第七章 非线性光学现象的全量子理论	255
一、辐射场的量子化理论	255
二、原子哈密顿的二次量子化	262
三、参量相互作用的量子力学处理	265
四、一阶电极化率的全量子理论	271
五、辐射跃迁速率的一般表示式	280
六、克雷默斯-海森堡公式	286
七、光子相干性	289
八、双光子吸收(双光束)	294
九、双光子吸收(单光束)	299
十、受激喇曼散射	301
十一、三次谐波产生	308
十二、光子的统计性质和非线性光学	313
第八章 光学相位共轭技术	319
一、引言	319

二、三波混频光学相位共轭技术·····	323
三、四波混频光学相位共轭技术·····	331
四、受激散射(SRS、SBS)光学相位共轭技术·····	359
五、光子回波光学相位共轭技术·····	363
六、光学相位共轭技术实验·····	370
七、相位共轭谐振腔·····	374
八、光学相位共轭技术的应用·····	391

引 言

众所周知，在激光出现以前，并没有非线性光学这一名词，大量的光学现象是线性光学现象。在线性光学范围内，描述电磁辐射在介质中传播规律的麦克斯韦方程组是一组线性的微分方程组，它们只包括场强矢量的一次项。因此，当单一频率的辐射入射到非吸收的透明介质时，除喇曼散射外，其频率是不会发生变化的。如果不同频率的光同时入射到介质时，它们彼此之间不会产生耦合，不可能产生新的频率。这是激光问世以前普通光学现象所描述的规律。用数学形式表示时，具有线性的关系。但在激光出现以后，介质在强激光作用下产生的电极化强度 \mathbf{P} 与入射辐射的场强 \mathbf{E} 的关系，不是简单的线性关系，还含有二次、三次、……等非线性关系，如下式所示：

$$\mathbf{P} = \epsilon_0 \chi^{(1)} \cdot \mathbf{E} + \epsilon_0 \chi^{(2)} : \mathbf{E}\mathbf{E} + \epsilon_0 \chi^{(3)} \vdots \mathbf{E}\mathbf{E}\mathbf{E} + \dots$$

式中

$\chi^{(1)}$ 是一阶电极化率或线性电极化率，是二阶张量；

$\chi^{(2)}$ 是二阶电极化率，是三阶张量；

$\chi^{(3)}$ 是三阶电极化率，是四阶张量。

关于极化强度 \mathbf{P} 更一般的表示式，可展开为电场、磁场和电场空间导数的幂级数，即

$$\begin{aligned} P_{\mu}^{\alpha} = & P_{\mu}^{\alpha} + \epsilon_0 \chi_{\mu\alpha} E_{\alpha} + \epsilon_0 \chi_{\mu\alpha\beta} \nabla_{\beta} E_{\alpha} + \epsilon_0 \chi_{\mu\alpha\beta} E_{\alpha}^1 E_{\beta}^2 \\ & + \epsilon_0 \chi_{\mu\alpha\beta\gamma} E_{\alpha}^1 E_{\beta}^1 E_{\gamma}^1 + \epsilon_0 \chi_{\mu\alpha\beta} E_{\alpha}^1 B_{\beta}^2 + \epsilon_0 \chi_{\mu\alpha\beta\gamma} E_{\alpha}^1 B_{\beta}^2 B_{\gamma}^3 + \dots \end{aligned}$$

非线性光学效应的出现，并不是光束线性效应的一个小小的补充，而是一些很明显而且很重要的效应，它反映了介质与强激光束相互作用的基本规律。（注意式中不同项所用相同的 $\chi_{\mu\alpha\beta}^{(2)}$ 和 $\chi_{\mu\alpha\beta\gamma}^{(3)}$ 代表不同的物理过程所引入的量，它们的意义和量纲都是不同的。）

激光出现之后，非线性光学发展十分迅速。人们所以对非线性光学感兴趣，究其原因，第一，人们可能利用非线性光学效应作成某种器件。例如变频器，从而有可能提供从远红外（这里仅指波长为 $8 \sim 14 \mu\text{m}$ 的光波）到亚毫米波、从真空紫外到 x 射线的各种波段的相干光源。第二，由于某些非线性光学效应，例如双光子吸收、受激喇曼散射、受激布里渊散射等，会引起入射到介质中的光束的衰减，这就限制了通过介质的光通量；又如自聚焦现象会引起入射光束的畸变，强度太强时，甚至会导致介质的不可逆损伤，这就从实际中向人们提出了急需解决的问题。第三，由于非线性光学效应是通过强激光与组成非线性介质的原子或分子的相互作用体现的，因而非线性光学现象是获得这些原子或分子的微观性质信息的一种手段。

早期，研究非线性光学现象所使用的非线性介质大多是凝聚物质。近年来，人们对气体介质的非线性效应的研究渐感兴趣。这是因为晶体的双折射效应虽然可以用来补偿材料的色散效应，而且利用相位匹配可使谐波转换效率达到 80%，但是，要达到这种令人鼓舞的结果，就要求晶体具有大的 $\chi^{(2)}$ 和足够大的双折射效应，在 1cm 的范围内晶体的光学质量要非常好，能承受高的光学强度以及对入射光及被产生的光都有很好的透明度等。遗憾的是只有少数晶体材料才能满足上述要求，而最大的限制是晶体的红外和紫外吸收。此外，

对具有中心对称的晶体来说 $\chi^{(2)} = 0$ ，其非线性效应是一种更高阶的效应，效应较小。由于上述原因，就促使人们对气体和蒸汽的非线性效应进行研究。对蒸汽和气体来说，其明显的优点是，在大范围内有很好的光学质量，在高强度下不会受到不可逆损伤，并且对紫外和红外有很好的透明性。当然它与凝聚物质相比，由于单位体积内粒子数少，并且这种介质是中心对称的，最重要的非线性效应是由三阶非线性效应引起的（当只考虑电偶极矩对非线性的贡献时），因而为了能在这种介质中观察到由 $\chi^{(3)}$ 所引起的非线性现象，或者需要十分大的场强 E （例如用十分强的锁模激光脉冲），或者利用共振增强使得 $\chi^{(3)}$ 增大。

自1961年首次出现利用红宝石激光器观察到产生二次谐波以来，短短的二十多年，非线性光学已发展为光学中的一支新的学科分支，研究范围十分广泛，如波的混频，参量振荡与放大，受激散射过程，自聚焦，自相位调制，多光子效应，瞬态相干光学效应，非线性激光光谱学以及表面非线性光学等。并且在研究上述各种非线性光学现象的基础上，已提供和发展了一些实际可用的新方法和新技术。例如，非线性饱和吸收效应用于染料调Q开关、被动锁模、激光稳频和吸收光谱学；双光子吸收用于超短脉冲测量、消多卜勒加宽光谱术以及红外光子计数器；激光感应折射率变化用于信息存储和制作双稳态元件；光学相位共轭技术用于波前畸变的自动补偿和光学信息处理等。此外，非线性光学对其它学科也有很大的影响，促进了等离子体物理、声学、无线电物理学中对非线性波现象的研究。最近又深入到利用非线性光学现象研究固体表面，把非线性光学和表面物理结合了起来。

总之，非线性光学是激光问世以后在光学领域中出现的一门崭新而又内容极为丰富、科学技术价值相当大的学科分支，其理论和实践已经并继续渗透到许多学科领域。因此，学习和研究这门学科，无疑是十分重要的。

本书内容主要有：（一）论述非线性电极化率的经典、半经典和全量子理论，以及非线性电极化率的性质；（二）讨论电磁波在非线性质内的传播规律，以及由于电磁波与介质的非线性相互作用所引起的二阶和三阶的各种非线性光学现象；（三）详细介绍非线性光学相位共轭的有关理论、技术和潜在应用。

第一章 电极化率的经典描述

本章主要内容是从经典振子模型导出各阶电极化率的表示式，并简单地介绍电极化率的一些基本性质，如真实性条件，本征对易对称性，完全对易对称性，以及晶体的空间对称性对极化率张量 $\chi^{(1)}$ 、 $\chi^{(2)}$ 和 $\chi^{(3)}$ 等的限制。

一、电极化率的频率色散与空间色散

1. 频率色散

电磁辐射在任何介质中的规律由麦克斯韦方程组

$$\left. \begin{aligned} \nabla \times \mathbf{E} &= -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t}, \\ \nabla \times \mathbf{H} &= \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t} + \mathbf{j}, \\ \nabla \cdot \mathbf{D} &= \rho, \\ \nabla \cdot \mathbf{H} &= 0 \end{aligned} \right\} \quad (1.1-1)$$

确定。这里我们用的是MKS单位制。任何形式的电磁场均可按傅里叶展开，在线性光学范围内，这些傅里叶分量之间是没有相互作用的。因此，我们只需讨论其中某个频率分量的场在传播中随时间变化的规律即可。如果某个频率分量的电磁辐射的电场强度为

$$\mathbf{E} = \mathbf{E}_0 \cos(\omega t + \varphi), \quad (1.1-2)$$

则写成复数振幅的形式为

$$\mathbf{E} = \mathbf{E}(\omega) \exp(-i\omega t) + \mathbf{E}^*(\omega) \exp(i\omega t). \quad (1.1-3)$$

式中 $\mathbf{E}(\omega) = \mathbf{E}_0 \exp(-i\varphi)/2$ ， \mathbf{E}_0 是电场的实数振幅。与电场 $\mathbf{E}(\omega)$ 相联系的几个电磁场量 $\mathbf{D}(\omega)$ 、 $\mathbf{B}(\omega)$ 和 $\mathbf{j}(\omega)$ 有如下的关系：

$$\left. \begin{aligned} \mathbf{D}(\omega) &= \boldsymbol{\epsilon}(\omega) \cdot \mathbf{E}(\omega), \\ \mathbf{B}(\omega) &= \boldsymbol{\mu}(\omega) \cdot \mathbf{H}(\omega), \\ \mathbf{j}(\omega) &= \boldsymbol{\sigma}(\omega) \cdot \mathbf{E}(\omega), \\ \mathbf{P}^{(1)}(\omega) &= \epsilon_0 \boldsymbol{\chi}^{(1)}(\omega) \cdot \mathbf{E}(\omega). \end{aligned} \right\} \quad (1.1-4)$$

式中 $\boldsymbol{\epsilon}(\omega)$ 、 $\boldsymbol{\mu}(\omega)$ 、 $\boldsymbol{\sigma}(\omega)$ 和 $\boldsymbol{\chi}^{(1)}(\omega)$ 都是与频率有关的二阶张量，分别为介电张量、导磁率张量、电导率张量以及线性电极化率张量。

对于上式中的 $\mathbf{P}^{(1)}(\omega) = \epsilon_0 \boldsymbol{\chi}^{(1)}(\omega) \cdot \mathbf{E}(\omega)$ ，其分量可表为

$$P_i^{(1)} = \sum_{\mu=\alpha, \beta, \gamma} \epsilon_0 \chi_{\alpha\beta}^{(1)} E_{\beta}, \quad (1.1-5)$$

写成矩阵的形式即

$$\begin{cases} P_x^{(1)} = \chi_{11}^{(1)} E_x + \chi_{12}^{(1)} E_y + \chi_{13}^{(1)} E_z \\ P_y^{(1)} = \chi_{21}^{(1)} E_x + \chi_{22}^{(1)} E_y + \chi_{23}^{(1)} E_z \\ P_z^{(1)} = \chi_{31}^{(1)} E_x + \chi_{32}^{(1)} E_y + \chi_{33}^{(1)} E_z \end{cases} \quad (1.1-6)$$

在以后我们会体会到把电极化强度分量表示为(1.1-5)式的形式,对描述非线性光学的现象和规律是特别方便的。在MKS单位制中, $\chi^{(1)}$ 是一个无量纲的量, $\chi^{(2)}$ 的单位为(m/V), $\chi^{(3)}$ 的单位为(m/V)²。

(1.1-4)式中的电极化率 $\chi^{(1)}$ 与频率有关,这种关系就叫做频率色散。

2. 因果性原理

在这里,我们将说明频率色散 $\chi^{(1)}(\omega)$ 乃是物理学中因果性原理的一个必然的结果。

当介质受到电磁辐射的作用时,在某给定时刻 t ,在介质中所感应的线性电极化强度 $\mathbf{P}(t)$,由该时刻 t 以前各个时刻的电场 \mathbf{E} 所确定,而不是简单地由该时刻 t 的瞬时电场 $\mathbf{E}(t)$ 所确定。也就是说, t 时刻的总极化强度与产生电极化的场的历史有关。只有对于非色散介质或场的包络变化足够慢, t 时刻介质中所感应的电极化 $\mathbf{P}(t)$ 才只与瞬时场 $\mathbf{E}(t)$ 有关。这种情况叫做绝热极限,它将在第二章中详细分析讨论。

现假定在时刻 t 以前任一时刻 τ 时的电场为 $\mathbf{E}(\tau)$,它对在时间间隔 $(t-\tau)$ 以后的电极化强度的贡献为 $dP(t)$, $dP(t)$ 与 $\mathbf{E}(\tau)$ 成正比,写成等式时,表示为

$$dP^{(1)}(t) = \epsilon_0 R(t-\tau) \mathbf{E}(\tau) d\tau. \quad (1.1-7)$$

式中因子 $R(t-\tau)$ 被称作介质的线性电极化强度的响应函数(与电路理论中的脉冲响应函数相类似),上式对时间积分,便得到 t 时刻的线性电极化强度为

$$\mathbf{P}^{(1)}(t) = \int_{-\infty}^t \epsilon_0 R(t-\tau) \mathbf{E}(\tau) d\tau. \quad (1.1-8)$$

如果考虑到电极化强度与电场强度的矢量性,则基本关系变为

$$\mathbf{P}^{(1)}(t) = \int_{-\infty}^t \epsilon_0 \mathbf{R}^{(1)}(t-\tau) \cdot \mathbf{E}(\tau) d\tau. \quad (1.1-9)$$

式中 $\mathbf{R}^{(1)}(t-\tau)$ 是一个二阶张量。

现对上式作变量代换。将 $(t-\tau)$ 用 τ' 代替,则有

$$\int_{-\infty}^t \epsilon_0 \mathbf{R}^{(1)}(t-\tau) \cdot \mathbf{E}(\tau) d\tau = - \int_0^{\infty} \epsilon_0 \mathbf{R}^{(1)}(\tau') \cdot \mathbf{E}(t-\tau') d\tau'.$$

然后再用 τ 替换 τ' ,则(1.1-9)式变为

$$\mathbf{P}^{(1)}(t) = \int_0^{\infty} \epsilon_0 \mathbf{R}^{(1)}(\tau) \cdot \mathbf{E}(t-\tau) d\tau. \quad (1.1-10)$$

这就是说,在介质中,在时刻 t 所感应的电极化强度 $\mathbf{P}^{(1)}(t)$ 由以前各时刻 $t-\tau$ ($\tau > 0$)时的场振幅所确定。在电磁理论中,我们会经常碰到所谓的因果性条件,实际上(1.1-10)式所表示的电极化强度与场强之间的普遍关系,就是因果性条件的数学表达式。

因为电场 $\mathbf{E}(t)$ 是实函数,响应函数 $\mathbf{R}(\tau)$ 必须是实函数才能保证 $\mathbf{P}(t)$ 也是实函数。这个条件就是所谓的真实性条件。

取 $\mathbf{P}^{(1)}(t)$ 和 $\mathbf{E}(t)$ 的傅里叶变换

$$E(t) = \int E(\omega) \exp(-i\omega t) d\omega, \quad (1.1-11)$$

$$P^{(1)}(t) = \int P^{(1)}(\omega) \exp(-i\omega t) d\omega, \quad (1.1-12)$$

并将它们代入(1.1-10)式, 有

$$\begin{aligned} & \int P^{(1)}(\omega) \exp(-i\omega t) d\omega \\ &= \int_0^\infty \epsilon_0 \mathbf{R}^{(1)}(\tau) d\tau \cdot \int E(\omega) \exp(-i\omega(t-\tau)) d\omega \\ &= \iint_0^\infty \epsilon_0 \mathbf{R}^{(1)}(\tau) \exp(i\omega\tau) d\tau \cdot E(\omega) \exp(-i\omega t) d\omega. \end{aligned}$$

所以

$$\begin{aligned} P^{(1)}(\omega) &= \left[\int_0^\infty \epsilon_0 \mathbf{R}^{(1)}(\tau) \exp(i\omega\tau) d\tau \right] \cdot E(\omega) \\ &= \epsilon_0 \chi^{(1)}(\omega) \cdot E(\omega). \end{aligned} \quad (1.1-13)$$

式中

$$\chi^{(1)}(\omega) = \int_0^\infty \mathbf{R}^{(1)}(\tau) \exp(i\omega\tau) d\tau. \quad (1.1-14)$$

由此可见, 由于(1.1-14)式来自(1.1-8)式, 这就说明 $\chi^{(1)}$ 是频率的函数乃是因果性原理的直接结果。再由(1.1-14)式可见, 如果频率 ω 是复数, 即 $\omega = \omega_0 + i\omega_1$, 则当 $\omega_1 > 0$ 时, 在复数频率平面的上半个平面内就有

$$\chi^{(1)}(\omega) = \int_0^\infty \mathbf{R}^{(1)}(\tau) \exp(i\omega_0\tau - \omega_1\tau) d\tau. \quad (1.1-15)$$

式中被积函数含有指数衰减因子 $\exp(-\omega_1\tau)$, 因而积分(1.1-15)式是收敛的。这样, 在上半个复数频率平面内, $\chi^{(1)}(\omega)$ 是一个解析函数。

3. 克雷默斯-克朗尼 (Kramers-Kronig) 关系^[1]

线性电极化率 $\chi^{(1)}(\omega)$ 是一个复数, 其实部与虚部之间的关系叫做色散关系, 由所谓克雷默斯-克朗尼关系给出为

$$\chi(\omega) = \chi'(\omega) + i\chi''(\omega), \quad (1.1-16)$$

$$\chi'(\omega) = \frac{1}{\pi} \text{P.V.} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\chi''(\omega')}{\omega' - \omega} d\omega', \quad (1.1-17)$$

$$\chi''(\omega) = -\frac{1}{\pi} \text{P.V.} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\chi'(\omega')}{\omega' - \omega} d\omega'. \quad (1.1-18)$$

式中P.V.叫做柯西主值积分。

如果电极化率 $\chi(\omega)$ 满足所谓交叉对称关系

$$\chi^*(\omega) = \chi(-\omega), \quad (1.1-19)$$

则有

$$\chi'(\omega) = \chi'(-\omega), \quad (1.1-20)$$

$$\chi''(\omega) = -\chi''(-\omega). \quad (1.1-21)$$

即 $\chi'(\omega)$ 是 ω 的偶函数, $\chi''(\omega)$ 是 ω 的奇函数。这时(1.1-17)式和(1.1-18)式便分别变为

$$\chi'(\omega) = \frac{2}{\pi} P.V. \int_0^{\infty} \frac{\chi''(\omega') \omega'}{(\omega')^2 - \omega^2} d\omega', \quad (1.1-22)$$

$$\chi''(\omega) = -\frac{2\omega}{\pi} P.V. \int_0^{\infty} \frac{\chi'(\omega')}{(\omega')^2 - \omega^2} d\omega'. \quad (1.1-23)$$

由 $\chi(\omega)$ 的色散关系可知, 只要我们知道电极化率实部或虚部的任何一个, 那么通过色散关系便可求得另一个, 从而获得电极化的全部知识。

4. 空间色散^{[3][4]}

除电极化率的频率色散外, 还有一些现象表现出光学效应与场的空间变化率有关, 例如旋光效应。这时电极化率张量 χ 与波矢 k 有关。这种 χ 与波矢 k 的依赖关系, 叫做 χ 的空间色散。和 χ 的频率色散结合起来, 电极化率张量 χ 应是频率和波矢 k 的函数, 可表示为 $\chi(\omega, k)$ 。

在光频情况下, 因为光频辐射的波长比电子轨道半径和晶格间距离大得多, 因而在大多数情况下, $\chi(\omega, k)$ 对波矢的依赖关系或空间色散可以不考虑。但是在下列两种情况下, 空间色散便变得很重要: (i) 效应虽然小, 但由于它的存在所引起的现象却是唯一的, 如电磁辐射沿某些各向异性介质的光轴传播时所表现的旋光现象, 而其它光学现象不存在。(ii) 效应十分大, 大到可以和其它光学现象相竞争。例如, 在反常色散区域内折射率可以变得很大, 而大的折射率意味着在介质中传播的波的波长很短, 这时, 在原子范围内的场就不能看作恒量。在折射率很大的情况下, 除正常的传播模之外, 还允许传播附加的模式, 并与正常模式干涉而产生新的效应^[4]。

总之, 产生空间色散的原因, 是由于在介质内给定点的电极化强度不仅与该点的场强有关, 而且与邻近点的场强有关, 即与场的空间导数有关, 这就导致介电张量以及电极化率张量与波矢有关。

二、一维振子响应的经典理论

1. 波动方程

在任何介质内电磁场的行为由(1.1-1)式的麦克斯韦方程组所确定, 在各向同性的均匀非电磁介质内, 对于无自由电荷的空间区域来说,

$$\nabla \cdot \mathbf{D} = 0, \quad (1.2-1)$$

由(1.1-1)式中第一式和第二式, 并考虑到介质是均匀的和(1.2-1)式, 经过简单的运算可得

$$\nabla^2 \mathbf{E} - \mu_0 \sigma \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} + \mu_0 \epsilon_0 \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} + \mu_0 \frac{\partial^2 \mathbf{P}}{\partial t^2} = 0. \quad (1.2-2)$$

式中 ϵ_0 和 μ_0 分别是真空中介电常数和导磁率, σ 是电导率, \mathbf{P} 是电极化强度, 有关系

$$\mathbf{j} = \sigma \mathbf{E}, \quad (1.2-3)$$

$$\mathbf{D} = \epsilon_0 \mathbf{E} + \mathbf{P}. \quad (1.2-4)$$

式中 \mathbf{j} 是电流密度。(1.2-2)式就是我们所要求的电场源 \mathbf{P} 产生的光波电场 \mathbf{E} 随时间、空间变化的方程——波动方程。它形式上类似于经典的强迫振动方程, 式中右边第一项是阻尼

项，第三项是激励项，也就是说，电极化强度 \mathbf{P} 作为场的激励源，由它激发电磁场。由 (1.2-2) 式可见，如果我们知道了场源 \mathbf{P} ，那么求解方程就可求得场 \mathbf{E} 。

在线性光学范围内，电极化强度 \mathbf{P} 与场强 \mathbf{E} 之间具有线性的关系，它可以用来描述线性光学一类的光学现象，但不能用来描述诸如电光效应、磁光效应、圆双折射、波的混合以及受激散射效应等非线性光学现象。只有认为 \mathbf{P} 与 \mathbf{E} 之间具有更普通的或者非线性关系时，才能解释非线性光学现象。代替 \mathbf{P} 与 \mathbf{E} 之间的线性关系 $P_i = \epsilon_0 \chi_{ij} E_j$ ，电极化强度 \mathbf{P} 分量的一般表示式为^[5]

$$P_{\mu}^{\omega} = P_{\mu}^0 + \epsilon_0 \gamma_{\mu\alpha} E_{\alpha}^{\omega} + \epsilon_0 \gamma_{\mu\alpha\beta} E_{\alpha}^{\omega} E_{\beta}^{\omega} + \epsilon_0 \gamma_{\mu\alpha\beta\gamma} E_{\alpha}^{\omega} E_{\beta}^{\omega} E_{\gamma}^{\omega} + \epsilon_0 \gamma_{\mu\alpha\beta\gamma\delta} E_{\alpha}^{\omega} E_{\beta}^{\omega} E_{\gamma}^{\omega} E_{\delta}^{\omega} + \dots \quad (1.2-5)$$

式中各量左上角的指标表示频率，右下角指标表示笛卡尔坐标，具有重复的指标要求和。展开式中每一项可用来描述一种或几种效应，这些将在第五章和第六章中进行详细的讨论。注意式中右边第三、第四和第六项代表不同的物理过程，所以它们虽用相同的符号 $\gamma_{\mu\alpha\beta}$ ，但有着不同的意义和量纲。同理，对右边第五项和第七项所用相同的符号 $\gamma_{\mu\alpha\beta\gamma}$ 也具有不同的意义和量纲。

下面分别讨论一维振子的线性响应和非线性响应的规律。

2. 一维线性响应

设介质是一个含有固有振动频率为 ω_0 的振子集合。振子模型代表着原子中电子运动的一种粗略的模型，即认为介质中的每一个原子中的电子受到一个弹性恢复力使其保持在平衡位置，当原子受到外加电场作用时，原子中电子作强迫振动，运动方程为

$$\ddot{r} + 2h\dot{r} + \omega_0^2 r = -\frac{e}{m} E. \quad (1.2-6)$$

式中 h 是阻尼系数， r 是电子离开其平衡位置的位移， e 是电子电荷， m 是电子的质量。现将 r 和 E 按傅里叶展开

$$\left. \begin{aligned} r(t) &= \int r(\omega) \exp(-i\omega t) d\omega, \\ E(t) &= \int E(\omega) \exp(-i\omega t) d\omega. \end{aligned} \right\} \quad (1.2-7)$$

由于方程 (1.2-6) 式是一个线性微分方程，因此其解 $r(t)$ 只与电场 $E(t)$ 有线性关系，那么对任何一个频率分量来说，可以得到

$$-\omega^2 r(\omega) - 2ih\omega r(\omega) + \omega_0^2 r(\omega) = -\frac{e}{m} E(\omega).$$

所以

$$r(\omega) = -\frac{e}{m} E(\omega) \frac{1}{\omega_0^2 - \omega^2 - 2ih\omega}. \quad (1.2-8)$$

根据介质电极化强度的定义，单位体积内的电偶极矩 $P(\omega)$ 为

$$P(\omega) = -ne r(\omega) = \frac{ne^2}{m} E(\omega) \frac{1}{\omega_0^2 - \omega^2 - 2ih\omega}. \quad (1.2-9)$$

式中 n 是单位体积内的振子数。再代入线性电极化率的表示式(1.1-4)并考虑到一维的情况, 可得

$$\chi^{(1)}(\omega) = \frac{P(\omega)}{\epsilon_0 F(\omega)} = \frac{ne^2}{\epsilon_0 m} \frac{1}{\omega_0^2 - \omega^2 - 2i\hbar\omega} \quad (1.2-10)$$

如果引入符号

$$\begin{aligned} F(\omega) &= \omega_0^2 - \omega^2 - 2i\hbar\omega \\ &= \frac{\omega_0^2 - \omega^2}{(\omega_0^2 - \omega^2)^2 + 4\hbar^2\omega^2} + i \frac{2\hbar\omega}{(\omega_0^2 - \omega^2)^2 + 4\hbar^2\omega^2}, \end{aligned} \quad (1.2-11)$$

则

$$\begin{aligned} \chi^{(1)}(\omega) &= \frac{ne^2}{\epsilon_0 m} F(\omega) \\ &= \chi'(\omega) + i\chi''(\omega). \end{aligned} \quad (1.2-12)$$

式中

$$\begin{aligned} \chi'(\omega) &= \frac{ne^2}{\epsilon_0 m} \frac{\omega_0^2 - \omega^2}{(\omega_0^2 - \omega^2)^2 + 4\hbar^2\omega^2}, \\ \chi''(\omega) &= \frac{ne^2}{\epsilon_0 m} \frac{2\hbar\omega}{(\omega_0^2 - \omega^2)^2 + 4\hbar^2\omega^2}. \end{aligned} \quad (1.2-13)$$

很明显, 线性电极化率 $\chi^{(1)}(\omega)$ 的实部与虚部都是 ω 的函数, 虚部 $\chi''(\omega)$ 在 $\omega = \omega_0$ 处有一个峰值, 具有洛仑兹线型。 $\chi'(\omega)$ 和 $\chi''(\omega)$ 随频率变化的曲线如图1-1所示。由 $\chi''(\omega)$ 随频率 ω 的关系很容易求出 $\chi''(\omega) - \omega$ 曲线的半宽度为 h 。而且 h 也是 $\chi'(\omega)$ 曲线峰值处的频率与 $\chi''(\omega)$ 的中心频率 ω_0 之差。如果频率 ω 远离共振频率 ω_0 , 即如果 $(\omega - \omega_0)$ 大于几个线宽时, $\chi''(\omega) \ll \chi'(\omega)$, $\chi''(\omega)$ 可忽略不计, 这表明频率为 ω 的波在介质中传播时与介质之间没有能量交换, 亦即无吸收地传播。

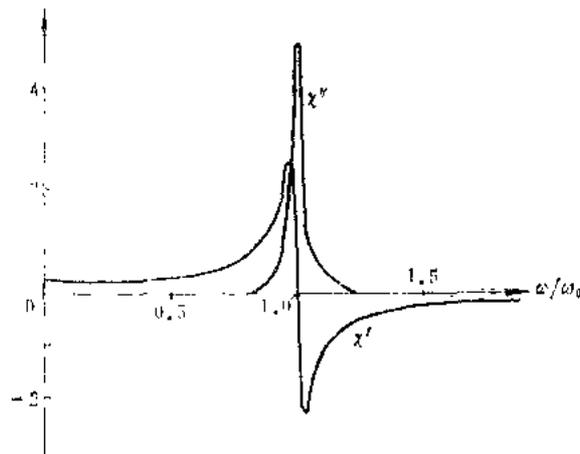


图 1-1 电极化率 $\chi(\omega)$ 的实部 $\chi'(\omega)$ 和虚部 $\chi''(\omega)$ 与频率的关系曲线示意图

3. 一维非线性响应

正如前面所指出的, 方程(1.2-6)式是一个线性微分方程, 其解(1.2-8)式与电场 E 有

线性的关系，因此它不能用来描述非线性效应。如果考虑到在振子恢复力中存在着小的非谐和项时，即如果用非谐和力

$$-\omega_0^2 r + Ar^2 + Br^3$$

代替谐和力 $-\omega_0^2 r$ 时，便可以引入非线性电极化强度，并能用来讨论非线性效应。式中 A 和 B 是表征非谐和效应的参数。这时基本的运动方程(1.2-6)式变为

$$\frac{d^2 r}{dt^2} + 2h \frac{dr}{dt} + \omega_0^2 r - Ar^2 - Br^3 = -\frac{e}{m} E. \quad (1.2-14)$$

给定电场 E ，可解出 r ，再由 $P = -ner$ ，就可以求得电极化强度 P 。现在为简单起见，暂时只考虑单个频率 ω 的电场

$$E = E(\omega)\exp(-i\omega t) + E^*(\omega)\exp(i\omega t). \quad (1.2-15)$$

由于方程(1.2-14)式是非线性的，因此求解是十分困难的。但可以将 r 展开为幂级数的形式

$$r = \sum_{k=1}^{\infty} r_k. \quad (1.2-16)$$

将此式代入(1.2-14)式后，可以得到一系列 r_k 所满足的方程。在每一个方程中所包含的项，对电场来说都具有相同的阶次。这一系列方程中最低阶次的三个方程是

$$\begin{aligned} \frac{d^2 r_1}{dt^2} + 2h \frac{dr_1}{dt} + \omega_0^2 r_1 \\ = -\frac{e}{m} (E(\omega)\exp(-i\omega t) + E^*(\omega)\exp(i\omega t)), \end{aligned} \quad (1.2-17)$$

$$\frac{d^2 r_2}{dt^2} + 2h \frac{dr_2}{dt} + \omega_0^2 r_2 = Ar_1^2, \quad (1.2-18)$$

$$\frac{d^2 r_3}{dt^2} + 2h \frac{dr_3}{dt} + \omega_0^2 r_3 = 2Ar_1 r_2 + Br_1^3. \quad (1.2-19)$$

关于(1.2-17)式的解在前面已讨论过，其形式由(1.2-8)式给出为

$$r_1 = -\frac{e}{m} E(\omega) \frac{\exp(-i\omega t)}{\omega_0^2 - \omega^2 - 2ih\omega} + C.C. \quad (1.2-20)$$

式中 $C.C.$ 是式中右边第一项的复数共轭项。为求解(1.2-18)式，可将

$$\begin{aligned} r_1^2 = \frac{e^2}{m^2} E^2(\omega) \frac{\exp(-2i\omega t)}{(\omega_0^2 - 2ih\omega - \omega^2)^2} + \frac{e^2}{m^2} E(\omega)E^*(\omega) \\ \times \frac{1}{(\omega_0^2 - 2ih\omega - \omega^2)(\omega_0^2 + 2ih\omega - \omega^2)} + C.C. \end{aligned} \quad (1.2-21)$$

代入(1.2-18)式，并考虑到该式是线性的，可对 r_2^2 项中每一项分别代入求解，例如(1.2-21)式中第一项代入(1.2-18)式时，其作用相当于使振子作频率为 2ω 的强迫振动，因此相应的解为

$$\begin{aligned} r_2^2(t) = r_2^2(2\omega)\exp(-2i\omega t) \\ = \frac{A(e^2/m^2)E^2(\omega)}{(\omega_0^2 - 4ih\omega - 4\omega^2)(\omega_0^2 - 2ih\omega - \omega^2)^2} \exp(-2i\omega t). \end{aligned} \quad (1.2-22)$$

(1.2-21)式中的第二项与时间无关,将这一项代入后,可求得

$$r_2' = A \frac{e^2}{m^2} E(\omega) E^*(\omega) \frac{1}{\omega_0^2(\omega_0^2 - 2i\hbar\omega - \omega^2)(\omega_0^2 + 2i\hbar\omega - \omega^2)} \quad (1.2-23)$$

这样(1.2-18)式的解便为

$$r_2(t) = A \frac{e^2}{m^2} E^2(\omega) \frac{\exp(-2i\omega t)}{(\omega_0^2 - 2i\hbar\omega - \omega^2)^2(\omega_0^2 - 4i\hbar\omega - 4\omega^2)} + A \frac{e^2}{m^2} E(\omega) E^*(\omega) \times \frac{1}{\omega_0^2(\omega_0^2 - 2i\hbar\omega - \omega^2)(\omega_0^2 + 2i\hbar\omega - \omega^2)} + C.C. \quad (1.2-24)$$

和上面求解 r_2 的方法相似,将乘积 $r_1 r_2$ 以及 r_2^2 中各项分别代入(1.2-19)式求解,不难求得(1.2-19)式的解为

$$r_3(t) = -\frac{e^3}{m^3} E^3(\omega) \left[\frac{2A^2}{\omega_0^2 - 4i\hbar\omega - 4\omega^2} + B \right] \times \frac{\exp(-3i\omega t)}{(\omega_0^2 - 6i\hbar\omega - 9\omega^2)(\omega_0^2 - 2i\hbar\omega - \omega^2)^3} - \frac{e^2}{m^2} E^2(\omega) E^*(\omega) \left[\frac{2A^2}{\omega_0^2 - 4i\hbar\omega - 4\omega^2} + \frac{4A^2}{\omega_0^2} + 3B \right] \times \frac{\exp(-i\omega t)}{(\omega_0^2 - 2i\hbar\omega - \omega^2)^3(\omega_0^2 + 2i\hbar\omega - \omega^2)} + C.C. \quad (1.2-25)$$

根据 $F(\omega)$ 的定义(1.2-11)式,有

$$F(2\omega) = \frac{1}{\omega_0^2 - 4i\hbar\omega - 4\omega^2} \quad (1.2-26)$$

$$F(3\omega) = \frac{1}{\omega_0^2 - 6i\hbar\omega - 9\omega^2} \quad (1.2-27)$$

在引入 $F(\omega)$ 、 $F(2\omega)$ 和 $F(3\omega)$ 以后,解 r_1 、 r_2 和 r_3 分别可表示为

$$r_1(t) = -\frac{e}{m} E(\omega) \exp(-i\omega t) F(\omega) + C.C. \quad (1.2-28)$$

$$r_2(t) = \frac{e^2}{m^2} A E^2(\omega) \exp(-2i\omega t) F(2\omega) F(\omega) F(\omega) + \frac{e^2}{m^2} A E(\omega) E^*(\omega) F(\omega) F(-\omega) F(0) + C.C. \quad (1.2-29)$$

$$r_3(t) = -\frac{e^2}{m^2} E^3(\omega) (2A^2 F(2\omega) + B) \exp(-3i\omega t) F(3\omega) F^3(\omega) - \frac{e^3}{m^3} E^2(\omega) E^*(\omega) \left[2A^2 F(2\omega) + \frac{4A^2}{\omega_0^2} + 3B \right] \times \exp(-i\omega t) F^3(\omega) F(-\omega) + C.C. \quad (1.2-30)$$

如果我们将电极化强度 P 写成如下形式:

$$P(t) = \sum_{k=1}^{\infty} P^{(k)}(t), \quad (1.2-31)$$

式中

$$P^{(k)}(t) = -ner_k(t) \quad (1.2-32)$$

是第 k 阶电极化强度, 那么二阶电极化强度为

$$\begin{aligned} P^{(2)}(t) &= -ner_2(t) \\ &= -\frac{ne^3}{m^2} AE^2(\omega) \exp(-2i\omega t) F(\omega) F(\omega) F(2\omega) \\ &\quad - \frac{ne^3}{m^2} AE(\omega) E^*(\omega) F(\omega) F(-\omega) F(0) + C.C. \end{aligned} \quad (1.2-33)$$

按电极化强度与电场强度的关系, 可将上式写成如下的形式:

$$\begin{aligned} P^{(2)}(t) &= \epsilon_0 \chi^{(2)}(\omega, \omega) E^2(\omega) \exp(-2i\omega t) \\ &\quad + \epsilon_0 \chi^{(2)}(\omega, -\omega) E(\omega) E^*(\omega) + C.C. \end{aligned} \quad (1.2-34)$$

式中 $\chi^{(2)}(\omega, \omega)$ 和 $\chi^{(2)}(\omega, -\omega)$ 叫做二阶电极化率。比较(1.2-33)式和(1.2-34)式, 可得二阶电极化率为

$$\chi^{(2)}(\omega, \omega) = -nA \frac{e^3}{\epsilon_0 m^2} F(\omega) F(\omega) F(\omega + \omega) \quad (1.2-35)$$

$$\chi^{(2)}(\omega, -\omega) = -nA \frac{e^3}{\epsilon_0 m^2} F(\omega) F(-\omega) F(0) \quad (1.2-36)$$

以上两式是一般形式

$$\chi^{(2)}(\omega_1, \omega_2) = -nA \frac{e^3}{\epsilon_0 m^2} F(\omega_1) F(\omega_2) F(\omega_1 + \omega_2) \quad (1.2-37)$$

的特殊情况。同理可得

$$\begin{aligned} P^{(3)}(t) &= -ner_3(t) \\ &= \frac{ne^4}{m^3} E^3(\omega) [2A^2 F(2\omega) + B] \exp(-3i\omega t) F^3(\omega) F(3\omega) \\ &\quad + \frac{ne^4}{m^3} E^2(\omega) E^*(\omega) \left[2A^2 F(2\omega) + \frac{4A^2}{\omega^3} + 3B \right] \\ &\quad \times \exp(-i\omega t) F^3(\omega) F(-\omega) + C.C. \end{aligned} \quad (1.2-38)$$

亦可将(1.2-38)式改写为

$$\begin{aligned} P^{(3)}(t) &= \epsilon_0 \chi^{(3)}(\omega, \omega, \omega) E^3(\omega) \exp(-3i\omega t) \\ &\quad + 3\epsilon_0 \chi^{(3)}(\omega, \omega, -\omega) E^2(\omega) E^*(\omega) \exp(-i\omega t) + C.C. \end{aligned} \quad (1.2-39)$$

此式右边第二项中的因子3是考虑到电极化率张量的对称性而引入的, 在讨论了本章四的内容后便可以理解其意义。式中三阶非线性电极化率为

$$\chi^{(3)}(\omega, \omega, \omega) = \frac{ne^4}{\epsilon_0 m^3} [2A^2 F(2\omega) + B] F^3(\omega) F(3\omega) \quad (1.2-40)$$

$$\chi^{(3)}(\omega, \omega, -\omega) = \frac{ne^4}{3\epsilon_0 m^3} [2A^2 F(2\omega) + 4A^2 F(0) + 3B] F^3(\omega) F(-\omega) \quad (1.2-41)$$

(1.2-40)式和(1.2-41)式可通过下面一般的三阶非线性电极化率的表示式

$$\chi^{(3)}(\omega_1, \omega_2, \omega_3) = \frac{ne^4}{\epsilon_0 m^3} \left[B + \frac{2}{3} A^2 \{ F(\omega_1 + \omega_2) + F(\omega_1 + \omega_3) + F(\omega_2 + \omega_3) \} \right] F(\omega_1) F(\omega_2) F(\omega_3) F(\omega_1 + \omega_2 + \omega_3) \quad (1.2-42)$$

并令 $\omega_1 = \omega_2 = \omega$, $\omega_3 = \pm\omega$ 来求得。

由(1.2-9)、(1.2-34)式和(1.2-39)式所表示的 $P^{(1)}(t)$ 、 $P^{(2)}(t)$ 和 $P^{(3)}(t)$ 可以看到,非线性响应的基本特点是:频率为 ω 的场振荡在介质中引起的电极化强度不仅具有频率为 ω 的分量,而且具有频率为 2ω 、 3ω 的以及在时间上是常数的分量。相应这些不同频率的电极化强度,按(1.2-2)式,辐射二次谐波和三次谐波的场分量。如果考虑更高次的非线性电极化,那么就有更高次的谐波产生。但是,目前实际上一般不会涉及高于三阶非线性效应的问题,不过应清楚地知道,更高次效应是存在的。

因为一般情况下所被研究的辐射场总是包含着若干个频率不同的分量,那么在介质中所产生的感应电极化中,除包含着每个频率的分量外,还包含着每个频率的二次谐波、三次谐波以及所有可能的和频与差频的分量。相应的非线性电极化率表示为

$$\begin{aligned} &\chi^{(2)}(\omega_1, \omega_2), \\ &\chi^{(3)}(\omega_1, \omega_2, \omega_3), \\ &\vdots \\ &\chi^{(r)}(\omega_1, \omega_2, \dots, \omega_r). \end{aligned}$$

现设辐射场 E 含有若干个频率分量,用复数表示时,可以写成如下的形式:

$$E = \sum_n E(\omega_n) \exp(-i\omega_n t). \quad (1.2-43)$$

式中 n 可正可负, $E(\omega_n)$ 是复数振幅。并规定

$$\omega_{-n} = -\omega_n, \quad (1.2-44)$$

$$E(\omega_{-n}) = E(-\omega_n) = E^*(\omega_n). \quad (1.2-45)$$

这样,便有

$$P^{(1)}(t) = \epsilon_0 \sum_n \chi^{(1)}(\omega_n) E(\omega_n) \exp(-i\omega_n t), \quad (1.2-46)$$

$$P^{(2)}(t) = \epsilon_0 \sum_{m, n} \chi^{(2)}(\omega_m, \omega_n) E(\omega_m) E(\omega_n) \exp[-i(\omega_m + \omega_n)t], \quad (1.2-47)$$

$$P^{(3)}(t) = \epsilon_0 \sum_{m, n, l} \chi^{(3)}(\omega_m, \omega_n, \omega_l) E(\omega_m) E(\omega_n) E(\omega_l) \exp[-i(\omega_m + \omega_n + \omega_l)t], \quad (1.2-48)$$

要强调指出的是,式中对 m, n, l 求和时,应包括所有的正值与负值。这里以 $P^{(2)}(t)$ 为例来说明如何展开。设有两个频率分量 ω_1 和 ω_2 ,则(1.2-47)式中 n 和 m 可取值为

$$\begin{aligned} n &= 1, 2, -1, -2, \\ m &= 1, 2, -1, -2. \end{aligned}$$

所以 $P^{(2)}(t)$ 的展开式中共有16项, 即

$$\begin{aligned}
 P^{(2)}(t) &= \varepsilon_0 \sum_{m, n} \chi^{(2)}(\omega_m, \omega_n) E(\omega_m) E(\omega_n) \exp[-i(\omega_m + \omega_n)t] \\
 &= \varepsilon_0 \chi^{(2)}(\omega_1, \omega_2) E(\omega_1) E(\omega_2) \exp[-i(\omega_1 + \omega_2)t] \\
 &\quad + \varepsilon_0 \chi^{(2)}(\omega_1, -\omega_2) E(\omega_1) E^*(\omega_2) \exp[-i(\omega_1 - \omega_2)t] \\
 &\quad + \varepsilon_0 \chi^{(2)}(\omega_1, -\omega_1) E(\omega_1) E^*(\omega_1) \\
 &\quad + \varepsilon_0 \chi^{(2)}(\omega_1, \omega_1) E(\omega_1) E(\omega_1) \exp[-2i\omega_1 t] \\
 &\quad + \varepsilon_0 \chi^{(2)}(-\omega_1, \omega_2) E^*(\omega_1) E(\omega_2) \exp[-i(\omega_2 - \omega_1)t] \\
 &\quad + \varepsilon_0 \chi^{(2)}(-\omega_1, -\omega_2) E^*(\omega_1) E^*(\omega_2) \exp[i(\omega_1 + \omega_2)t] \\
 &\quad + \varepsilon_0 \chi^{(2)}(-\omega_1, -\omega_1) E^*(\omega_1) E^*(\omega_1) \exp[2i\omega_1 t] \\
 &\quad + \varepsilon_0 \chi^{(2)}(-\omega_1, \omega_1) E^*(\omega_1) E(\omega_1) \\
 &\quad + \varepsilon_0 \chi^{(2)}(\omega_2, \omega_2) E(\omega_2) E(\omega_2) \exp[-2i\omega_2 t] \\
 &\quad + \varepsilon_0 \chi^{(2)}(\omega_2, -\omega_2) E(\omega_2) E^*(\omega_2) \\
 &\quad + \varepsilon_0 \chi^{(2)}(\omega_2, -\omega_1) E(\omega_2) E^*(\omega_1) \exp[-i(\omega_2 - \omega_1)t] \\
 &\quad + \varepsilon_0 \chi^{(2)}(\omega_2, \omega_1) E(\omega_2) E(\omega_1) \exp[-i(\omega_1 - \omega_2)t] \\
 &\quad + \varepsilon_0 \chi^{(2)}(-\omega_2, \omega_1) E^*(\omega_2) E(\omega_1) \exp[-i(\omega_1 - \omega_2)t] \\
 &\quad + \varepsilon_0 \chi^{(2)}(-\omega_2, -\omega_1) E^*(\omega_2) E^*(\omega_1) \exp[i(\omega_1 + \omega_2)t] \\
 &\quad + \varepsilon_0 \chi^{(2)}(-\omega_2, -\omega_2) E^*(\omega_2) E^*(\omega_2) \exp[2i\omega_2 t] \\
 &\quad + \varepsilon_0 \chi^{(2)}(-\omega_2, \omega_2) E^*(\omega_2) E(\omega_2). \tag{1.2-49}
 \end{aligned}$$

在本章四讨论了电极化率张量的基本性质之后, 可以知道(1.2-49)式中有些项是相同的, 可以合并, 这样, 项数便可减少。

三、三维空间的非线性电极化强度

在二·一中我们已讨论了在三维空间内的线性电极化强度 $P^{(1)}(t)$ 与电场 $E(t)$ 之间的关系为

$$\begin{aligned}
 P^{(1)}(t) &= \int_{-\infty}^t \varepsilon_0 \mathbf{R}^{(1)}(t-\tau) \cdot E(\tau) d\tau \\
 &= \int_0^{\infty} \varepsilon_0 \mathbf{R}^{(1)}(\tau) \cdot E(t-\tau) d\tau. \tag{1.3-1}
 \end{aligned}$$

在这里已考虑到电场强度和电极化强度都是矢量这个事实。由因果性原理, $t' > t$ 时的电场强度 $E(t')$ 对 $P^{(1)}(t)$ 是没有贡献的, 即 $\tau > t$ 时, $E(\tau)$ 对 $P^{(1)}(t)$ 的贡献为零。换言之

$$\mathbf{R}^{(1)}(t-\tau) = 0 \quad \tau > t. \tag{1.3-2}$$

所以

$$\begin{aligned}
 P^{(1)}(t) &= \int_{-\infty}^t \varepsilon_0 \mathbf{R}^{(1)}(t-\tau) \cdot E(\tau) d\tau \\
 &= \int_{-\infty}^{\infty} \varepsilon_0 \mathbf{R}^{(1)}(t-\tau) \cdot E(\tau) d\tau
 \end{aligned}$$

$$= \int_{-\infty}^{\infty} \epsilon_0 \mathbf{R}^{(1)}(\tau) \cdot \mathbf{E}(t-\tau) d\tau, \quad (1.3-3)$$

现对电场 $\mathbf{E}(t-\tau)$ 作傅里叶变换

$$\mathbf{E}(t-\tau) = \int_{-\infty}^{\infty} \mathbf{E}(\omega) \exp[-i\omega(t-\tau)] d\omega, \quad (1.3-4)$$

并代入(1.3-3)式后有

$$\mathbf{P}^{(1)}(t) = \int_{-\infty}^{\infty} \epsilon_0 \mathbf{R}^{(1)}(\tau) \cdot \int_{-\infty}^{\infty} \mathbf{E}(\omega) \exp[-i\omega(t-\tau)] d\tau d\omega, \quad (1.3-5)$$

而对 $\mathbf{P}^{(1)}(t)$ 作傅里叶变换后有

$$\begin{aligned} \mathbf{P}^{(1)}(t) &= \int_{-\infty}^{\infty} \mathbf{P}(\omega) \exp(-i\omega t) d\omega \\ &= \int_{-\infty}^{\infty} \epsilon_0 \chi^{(1)}(\omega) \cdot \mathbf{E}(\omega) \exp(-i\omega t) d\omega, \end{aligned} \quad (1.3-6)$$

所以

$$\chi^{(1)}(\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} \mathbf{R}^{(1)}(\tau) \exp(i\omega\tau) d\tau, \quad (1.3-7)$$

(1.3-6)式和(1.3-7)式是一阶电极化强度 $\mathbf{P}^{(1)}(t)$ 和一阶电极化率张量 $\chi^{(1)}(\omega)$ 的表示式。

对于二阶电极化强度 $\mathbf{P}^{(2)}(t)$ 来说, 它与电场强度 $\mathbf{E}(t)$ 有二次关系。在三维空间内, 按因果性原理, 应有

$$\mathbf{P}^{(2)}(t) = \epsilon_0 \int_{-\infty}^{\infty} d\tau_1 \int_{-\infty}^{\infty} d\tau_2 \mathbf{R}^{(2)}(\tau_1, \tau_2) : \mathbf{E}(t-\tau_1) \mathbf{E}(t-\tau_2), \quad (1.3-8)$$

式中 $\mathbf{R}^{(2)}(\tau_1, \tau_2)$ 是一个三阶张量。如将(1.3-8)式写成形式

$$\mathbf{P}^{(2)}(t) = \epsilon_0 \int_{-\infty}^{\infty} d\omega_1 \int_{-\infty}^{\infty} d\omega_2 \chi^{(2)}(\omega_1, \omega_2) : \mathbf{E}(\omega_1) \mathbf{E}(\omega_2) \exp[-i(\omega_1 + \omega_2)t], \quad (1.3-9)$$

并将(1.3-8)式中的 $\mathbf{E}(t-\tau_1)$ 和 $\mathbf{E}(t-\tau_2)$ 按傅里叶展开后代回(1.3-8)式中, 便有

$$\begin{aligned} \mathbf{P}^{(2)}(t) &= \epsilon_0 \int_{-\infty}^{\infty} d\tau_1 \int_{-\infty}^{\infty} d\tau_2 \mathbf{R}^{(2)}(\tau_1, \tau_2) : \int_{-\infty}^{\infty} d\omega_1 \\ &\quad \times \int_{-\infty}^{\infty} \mathbf{E}(\omega_1) \mathbf{E}(\omega_2) \exp[-i(\omega_1 + \omega_2)t] \\ &\quad \times \exp[i(\omega_1\tau_1 + \omega_2\tau_2)] d\omega_2. \end{aligned} \quad (1.3-10)$$

比较(1.3-9)式和(1.3-10)式可得二阶电极化率张量

$$\chi^{(2)}(\omega_1, \omega_2) = \int_{-\infty}^{\infty} d\tau_1 \int_{-\infty}^{\infty} \mathbf{R}^{(2)}(\tau_1, \tau_2) \exp[i(\omega_1\tau_1 + \omega_2\tau_2)] d\tau_2, \quad (1.3-11)$$

同理, 可得在三维空间内的第 r 阶电极化强度为

$$\begin{aligned} \mathbf{P}^{(r)}(t) &= \epsilon_0 \int_{-\infty}^{\infty} d\omega_1 \int_{-\infty}^{\infty} d\omega_2 \cdots \\ &\quad \times \int_{-\infty}^{\infty} \chi^{(r)}(\omega_1, \omega_2, \cdots, \omega_r) : \mathbf{E}(\omega_1) \mathbf{E}(\omega_2) \cdots \mathbf{E}(\omega_r) \end{aligned}$$

$$\times \exp\left[-i\left(\sum_{m=1}^r \omega_m\right)t\right]d\omega_r. \quad (1.3-12)$$

式中 $\chi^{(r)}(\omega_1, \omega_2, \dots, \omega_r)$ 与 $E(\omega_l)$ 之间的一竖表示 r 个点。第 r 阶电极化率张量为

$$\begin{aligned} & \chi^{(r)}(\omega_1, \omega_2, \dots, \omega_r) \\ &= \int_{-\infty}^{\infty} d\tau_1 \int_{-\infty}^{\infty} d\tau_2 \cdots \int_{-\infty}^{\infty} \mathbf{R}^{(r)}(\tau_1, \tau_2, \dots, \tau_r) \\ & \quad \times \exp[i(\omega_1\tau_1 + \omega_2\tau_2 + \cdots + \omega_r\tau_r)]d\tau_r. \end{aligned} \quad (1.3-13)$$

如果组成辐射场的各个频率分量不是连续的,那么 \mathbf{P} 的表示式用求和号代替积分后,在三维空间内最低三阶电极化强度的表示式为

$$\mathbf{P}^{(1)}(t) = \sum_n \varepsilon_0 \chi^{(1)}(\omega_n) \cdot \mathbf{E}(\omega_n) \exp(-i\omega_n t), \quad (1.3-14)$$

$$\begin{aligned} \mathbf{P}^{(2)}(t) &= \sum_{m, n} \varepsilon_0 \chi^{(2)}(\omega_m, \omega_n) : \mathbf{E}(\omega_m) \mathbf{E}(\omega_n) \\ & \quad \times \exp[-i(\omega_m + \omega_n)t], \end{aligned} \quad (1.3-15)$$

$$\begin{aligned} \mathbf{P}^{(3)}(t) &= \sum_{m, n, l} \varepsilon_0 \chi^{(3)}(\omega_m, \omega_n, \omega_l) : \mathbf{E}(\omega_m) \mathbf{E}(\omega_n) \mathbf{E}(\omega_l) \\ & \quad \times \exp[-i(\omega_m + \omega_n + \omega_l)t]; \end{aligned} \quad (1.3-16)$$

第 r 阶电极化强度 $\mathbf{P}^{(r)}(t)$ 的表示式为

$$\begin{aligned} \mathbf{P}^{(r)}(t) &= \sum_{\alpha_1, \alpha_2, \dots, \alpha_r} \varepsilon_0 \chi^{(r)}(\omega_{\alpha_1}, \omega_{\alpha_2}, \dots, \omega_{\alpha_r}) | \mathbf{E}_{\alpha_1}(\omega_{\alpha_1}) \\ & \quad \times \mathbf{E}(\omega_{\alpha_2}) \cdots \mathbf{E}(\omega_{\alpha_r}) \exp[-i \sum_{m=1}^r \omega_{\alpha_m} t], \end{aligned} \quad (1.3-17)$$

式中 $m, n, l, \alpha_1, \alpha_2, \dots, \alpha_r$ 包括所有的正值和负值。

亦可写出上述电极化强度的分量表达式,例如有

$$\begin{aligned} P_{\beta}^{(2)}(t) &= \sum_{\alpha, \beta} \varepsilon_0 \int_{-\infty}^{\infty} d\omega_1 \int_{-\infty}^{\infty} \chi_{\beta\alpha\beta}^{(2)}(\omega_1, \omega_2) \\ & \quad \times E_{\alpha}(\omega_1) E_{\beta}(\omega_2) \exp[-i(\omega_1 + \omega_2)t] d\omega_2, \end{aligned} \quad (1.3-18)$$

或

$$\begin{aligned} P_{\beta}^{(2)}(t) &= \varepsilon_0 \sum_{\substack{m, n \\ \alpha, \beta}} \chi_{\beta\alpha\beta}^{(2)}(\omega_m, \omega_n) E_{\alpha}(\omega_m) E_{\beta}(\omega_n) \\ & \quad \times \exp[-i(\omega_m + \omega_n)t]. \end{aligned} \quad (1.3-19)$$

式中 $\chi_{\beta\alpha\beta}^{(2)}(\omega_m, \omega_n)$ 是二阶电极化率张量元素; $\mu, \alpha, \beta = x, y, z$ 。

二阶电极化率张量 $\chi^{(2)}(\omega_m, \omega_n)$ 共有27个元素,列成表的形式有

$$\begin{pmatrix} \chi_{xxx}^{(2)} & \chi_{xyy}^{(2)} & \chi_{xzz}^{(2)} & \chi_{xyx}^{(2)} & \chi_{xzy}^{(2)} & \chi_{xzx}^{(2)} & \chi_{xxz}^{(2)} & \chi_{xzz}^{(2)} & \chi_{xyx}^{(2)} \\ \chi_{yyx}^{(2)} & \chi_{yyy}^{(2)} & \chi_{yzz}^{(2)} & \chi_{yyx}^{(2)} & \chi_{yyz}^{(2)} & \chi_{yyx}^{(2)} & \chi_{yyz}^{(2)} & \chi_{yyx}^{(2)} & \chi_{yyz}^{(2)} \\ \chi_{zxx}^{(2)} & \chi_{zyy}^{(2)} & \chi_{zzz}^{(2)} & \chi_{zxy}^{(2)} & \chi_{zyx}^{(2)} & \chi_{zxx}^{(2)} & \chi_{zxy}^{(2)} & \chi_{zxy}^{(2)} & \chi_{zxy}^{(2)} \end{pmatrix}, \quad (1.3-20)$$

或简写为

$$\begin{array}{cccccccc}
 xxx & xyx & xzx & xyz & xzy & xzx & xxz & xxy & xyx \\
 yxx & yyy & yzz & yyz & yzy & yzx & yxz & yxy & yyy \\
 zxx & zyy & zzz & zyz & zzy & zzx & zxz & zxy & zyx
 \end{array} \quad (1.3-21)$$

给定频率 ω_m 和 ω_n , 例如 $m=1, n=2$, 则

$$\mathbf{P}^{(2)}(t) = \epsilon_0 \chi^{(2)}(\omega_1, \omega_2) : \mathbf{E}(\omega_1) \mathbf{E}(\omega_2) \exp[-i(\omega_1 + \omega_2)t] \quad (1.3-22)$$

写成矩阵的形式有

$$\begin{array}{l}
 P_x^{(2)}(t) \\
 P_y^{(2)}(t) \\
 P_z^{(2)}(t)
 \end{array} = \epsilon_0 \chi_{\alpha\beta\gamma}^{(2)}(\omega_1, \omega_2) \begin{array}{l}
 E_x(\omega_1) E_x(\omega_2) \\
 E_y(\omega_1) E_y(\omega_2) \\
 E_z(\omega_1) E_z(\omega_2) \\
 E_y(\omega_1) E_z(\omega_2) \\
 E_z(\omega_1) E_y(\omega_2) \\
 E_x(\omega_1) E_z(\omega_2) \\
 E_z(\omega_1) E_x(\omega_2) \\
 E_x(\omega_1) E_y(\omega_2) \\
 E_y(\omega_1) E_x(\omega_2)
 \end{array} \exp[-i(\omega_1 + \omega_2)t] \quad (1.3-23)$$

上式中的因子

$$\epsilon_0 \chi_{xzy}^{(2)}(\omega_1, \omega_2) E_y(\omega_1) E_z(\omega_2) \exp[-i(\omega_1 + \omega_2)t]$$

表示由频率为 ω_1 、偏振方向为 y 方向的场分量 $E_y(\omega_1)$ 和频率为 ω_2 、偏振方向为 z 方向的场分量 $E_z(\omega_2)$ 之间的非线性相互作用所引起的在 x 方向上的一个二阶非线性电极化强度分量。

同理, 对三阶电极化来说, 电极化强度分量的一般表示式为

$$\begin{aligned}
 P_x^{(3)}(t) = \epsilon_0 \sum_{\substack{\alpha, \beta, \gamma = x, y, z \\ m, n, l}} \chi_{\alpha\beta\gamma}^{(3)}(\omega_m, \omega_n, \omega_l) E_x(\omega_m) E_y(\omega_n) \\
 \times E_z(\omega_l) \exp[-i(\omega_m + \omega_n + \omega_l)t], \quad (1.3-24)
 \end{aligned}$$

其中某一项

$$\epsilon_0 \chi_{xzy}^{(3)}(\omega_m, \omega_n, \omega_l) E_x(\omega_m) E_y(\omega_n) E_z(\omega_l) \exp[-i(\omega_m + \omega_n + \omega_l)t]$$

表示由频率为 ω_m 、场振动方向为 x 方向的场分量 $E_x(\omega_m)$, 频率为 ω_n 、场振动方向为 y 方向的场分量 $E_y(\omega_n)$ 以及频率为 ω_l 、场振动方向为 z 方向的场分量 $E_z(\omega_l)$ 三者间的非线性相互作用所引起的在 x 方向上的三阶非线性电极化强度的一个分量。

类似(1.2-31)式, 在三维空间内, 一般电极化强度 $\mathbf{P}(t)$ 可以写为

$$\mathbf{P}(t) = \mathbf{P}(0) + \mathbf{P}^{(1)}(t) + \mathbf{P}^{(2)}(t) + \cdots + \mathbf{P}^{(n)}(t) \quad (1.3-25)$$

式中 $\mathbf{P}(0)$ 表示自发极化项。不过只有铁电体和热电体才发生自发极化。它是一个与外场无关的在介质内自发产生的恒定极化。这种自发的恒定极化是由于晶体的晶胞是极性的, 即由于晶体晶胞具有净电偶极矩而引起的。因为在这种极性的晶体中, 正负电荷中心并不重合在一起。具有这种极性的晶体有热电晶体(如电气石)和铁电晶体(如酒石酸钾钠、钛酸钡)。严格讲, 这种自发极化的效应并不属于光学的效应, 因为它是在频率为零的情况下的极化,

而不是在光频下的极化，然而它的存在对晶体的光学性质却是有影响的。

四、电极化率张量的一般性质

从微观观点，实际介质中感生的电极化是由于介质中电子和离子对外加电磁场的响应引起的。根据量子力学的计算，可以确切地给出介质的一阶或线性电极化率张量的表示式，利用高阶微扰理论可以给出介质的高阶电极化率张量的表示式。这些电极化率张量可以同表征介质中电子和离子运动的微观参数联系起来。在第二章中我们将利用量子力学的密度算符的方法，导出各阶电极化率张量的表示式，并详细讨论它们的性质。但在这一章里，我们并不需要将 $\chi^{(r)}$ ($r=1, 2, \dots$)与微观参数联系起来，而直接可以从上面我们所得到的经典结果讨论它们的一些基本性质。这些基本的性质有：

1. 真实性条件

根据一维情况下的线性和非线性电极化率的表示式(1.2-12)式、(1.2-37)式、(1.2-42)式和 $F(\omega)$ 的表示式

$$\begin{aligned}\chi^{(1)}(\omega) &= \frac{ne^2}{\epsilon_0 m} F(\omega), \\ \chi^{(2)}(\omega_1, \omega_2) &= -nA \frac{e^3}{\epsilon_0 m^2} F(\omega_1)F(\omega_2)F(\omega_1 + \omega_2), \\ \chi^{(3)}(\omega_1, \omega_2, \omega_3) &= n \frac{e^4}{\epsilon_0 m^3} \left[B + \frac{2}{3} A^2 \{ F(\omega_1 + \omega_2) + F(\omega_2 + \omega_3) \right. \\ &\quad \left. + F(\omega_3 + \omega_1) \} \right] F(\omega_1)F(\omega_2)F(\omega_3)F(\omega_1 + \omega_2 + \omega_3), \\ F(\omega) &= \frac{1}{\omega_0^2 - 2i\hbar\omega - \omega^2}.\end{aligned}\tag{1.4-1}$$

很容易得到

$$\begin{aligned}[\chi^{(1)}(\omega)]^* &= \chi^{(1)}(-\omega), \\ [\chi^{(2)}(\omega_1, \omega_2)]^* &= \chi^{(2)}(-\omega_1, -\omega_2), \\ [\chi^{(3)}(\omega_1, \omega_2, \omega_3)]^* &= \chi^{(3)}(-\omega_1, -\omega_2, -\omega_3).\end{aligned}\tag{1.4-2}$$

上式所表示的关系就是电极化率的真实性条件。可以将(1.4-2)式电极化率的真实性条件直接推广到相应的电极化率张量中去，即有

$$\begin{aligned}[\chi^{(1)}(\omega)]^* &= \chi^{(1)}(-\omega), \\ [\chi^{(2)}(\omega_1, \omega_2)]^* &= \chi^{(2)}(-\omega_1, -\omega_2), \\ [\chi^{(3)}(\omega_1, \omega_2, \omega_3)]^* &= \chi^{(3)}(-\omega_1, -\omega_2, -\omega_3), \\ &\vdots \\ [\chi^{(r)}(\omega_1, \omega_2, \dots, \omega_r)]^* &= \chi^{(r)}(-\omega_1, -\omega_2, \dots, -\omega_r).\end{aligned}\tag{1.4-3}$$

此式也相应地叫做极化率张量的真实性条件。因为它保证了各阶电极化强度 $\mathbf{P}^{(1)}$ ， $\mathbf{P}^{(2)}$ ， \dots ， $\mathbf{P}^{(r)}$ ， \dots ，等都是实数。如以 $\mathbf{P}^{(1)}(t)$ 为例，因为

$$P^{(1)}(t) = \sum_n \epsilon_0 \chi^{(1)}(\omega_n) \cdot E(\omega_n) \exp(-i\omega_n t),$$

而某一频率分量 ω_n 的线性电极化强度 $P^{(1)}(\omega_n, t)$ 为

$$\begin{aligned} P^{(1)}(\omega_n, t) &= \epsilon_0 \chi^{(1)}(\omega_n) \cdot E(\omega_n) \exp(-i\omega_n t) \\ &\quad + \epsilon_0 \chi^{(1)}(-\omega_n) \cdot E(-\omega_n) \exp(i\omega_n t) \\ &= \epsilon_0 \chi^{(1)}(\omega_n) \cdot E(\omega_n) \exp(-i\omega_n t) \\ &\quad + \epsilon_0 [\chi^{(1)}(\omega_n)]^* \cdot E^*(\omega_n) \exp(i\omega_n t) \\ &= \epsilon_0 \chi^{(1)}(\omega_n) \cdot E(\omega_n) \exp(-i\omega_n t) \\ &\quad + \epsilon_0 [\chi^{(1)}(\omega_n) \cdot E(\omega_n) \exp(-i\omega_n t)]^*, \end{aligned}$$

所以 $P^{(1)}(\omega_n, t)$ 是实数，从而 $P^{(1)}(t)$ 也是实数。

如果频率 ω 是复数，则由(1.3-13)式可得电极化率张量的真实性条件为

$$[\chi^{(r)}(\omega_1, \omega_2, \dots, \omega_r)]^* = \chi^{(r)}(-\omega_1^*, -\omega_2^*, \dots, -\omega_r^*) \quad (1.4-4)$$

2. 本征对易对称性

由一维的非线性电极化率的表示式(1.4-1)式可以看到有如下的关系：

$$\left. \begin{aligned} \chi^{(2)}(\omega_1, \omega_2) &= \chi^{(2)}(\omega_2, \omega_1), \\ \chi^{(3)}(\omega_1, \omega_2, \omega_3) &= \chi^{(3)}(\omega_3, \omega_1, \omega_2). \end{aligned} \right\} \quad (1.4-5)$$

在上式中，我们只考虑了场的振动频率 ω_1 和 ω_2 等，因为在一维情况下不需要考虑场的振动方向。在推广到三维电极化率张量的情况时，不仅要考虑场的振动频率，而且还要考虑场的偏振方向。因为关系

$$\epsilon_0 \chi_{\mu\alpha}^{(2)}(\omega_1, \omega_2) E_\alpha(\omega_1) E_\beta(\omega_2) \exp[-i(\omega_1 + \omega_2)t]$$

表示偏振方向为 α 的场分量，其频率为 ω_1 ，与偏振方向为 β 的分量，其频率为 ω_2 ，两者一起在 μ 方向感生的二次非线性电极化强度。这就告诉我们，在三维情况下描述电场时，应该用配对 (α, ω_1) 和 (β, ω_2) 等，即既应给出场的偏振方向，又应给出场的频率，而不能单用频率 ω_1 和 ω_2 等来描述。如果我们将配对 (α, ω_1) 和 (β, ω_2) 交换次序，则相应的二阶电极化率张量元素为

$$\chi_{\mu\beta\alpha}^{(2)}(\omega_2, \omega_1).$$

但是，我们在定义二阶非线性电极化率张量的关系

$$P^{(2)}(t) = \epsilon_0 \sum_{m,n} \chi^{(2)}(\omega_m, \omega_n) : E(\omega_m) E(\omega_n) \exp[-i(\omega_m + \omega_n)t]$$

时，已设其与复数电场的次序是无关系的。这样，二阶电极化率张量 $\chi^{(2)}(\omega_1, \omega_2)$ 的任何一对元素

$$\chi_{\mu\alpha\beta}^{(2)}(\omega_1, \omega_2)$$

和

$$\chi_{\mu\beta\alpha}^{(2)}(\omega_2, \omega_1)$$

都是相等的，即

$$\chi_{\mu\alpha\beta}^{(2)}(\omega_1, \omega_2) = \chi_{\mu\beta\alpha}^{(2)}(\omega_2, \omega_1). \quad (1.4-6)$$

因为这种性质是电极化率张量本身所固有的，故称为电极化率张量的本征对易对称性。

对由三阶非线性电极化强度所定义的二阶非线性电极化率张量 $\chi^{(3)}(\omega_1, \omega_2, \omega_3)$ ，也有与(1.4-6)式相类似的关系。即其元素 $\chi_{\mu\alpha\beta\gamma}^{(3)}(\omega_1, \omega_2, \omega_3)$ 也具有本征对易对称性，就是说元

素 $\chi_{\mu\alpha\beta\gamma}^{(3)}(\omega_1, \omega_2, \omega_3)$ 中的配对 (α, ω_1) , (β, ω_2) 和 (γ, ω_3) 在任何排列下, 相应的张量元素都相等, 即有

$$\begin{aligned} \chi_{\mu\alpha\beta\gamma}^{(3)}(\omega_1, \omega_2, \omega_3) &= \chi_{\mu\beta\alpha\gamma}^{(3)}(\omega_2, \omega_1, \omega_3) \\ &= \chi_{\mu\alpha\gamma\beta}^{(3)}(\omega_1, \omega_3, \omega_2) = \chi_{\mu\beta\gamma\alpha}^{(3)}(\omega_2, \omega_3, \omega_1) \\ &= \chi_{\mu\gamma\beta\alpha}^{(3)}(\omega_3, \omega_1, \omega_2) = \chi_{\mu\alpha\gamma\beta}^{(3)}(\omega_3, \omega_2, \omega_1). \end{aligned} \quad (1.4-7)$$

在(1.2-39)式中出现的因子3, 也就是因为三阶非线性电极化率张量元素 $\chi^{(3)}(\omega, \omega, -\omega)$ 具有本征对易对称性

$$\chi^{(3)}(\omega, \omega, -\omega) = \chi^{(3)}(\omega, -\omega, \omega) = \chi^{(3)}(-\omega, \omega, \omega)$$

的结果。

对于任意阶非线性电极化来说, 如对 r 阶非线性电极化而言, 其本征对易对称性表现在 r 阶电极化率张量元素 $\chi_{\mu\alpha_1\alpha_2\cdots\alpha_r}^{(r)}(\omega_1, \omega_2, \cdots, \omega_r)$ 在所有配对 (α_1, ω_1) , (α_2, ω_2) , \cdots , (α_r, ω_r) 的 $r!$ 个对易下是不变的。

3. 完全对易对称性

对于(1.2-11)式, 即

$$F(\omega) = \frac{\omega^2 - \omega_0^2}{(\omega_0^2 - \omega^2)^2 + 4h^2\omega^2} + i \frac{2h\omega}{(\omega_0^2 - \omega^2)^2 + 4h^2\omega^2},$$

当外加辐射场的频率 ω 远离共振频率 ω_0 时, 式中虚部可以忽略不计, 这就是我们前面所说明的介质与外加场之间没有能量交换。这时, $F(\omega)$ 是实数, 即有

$$F(\omega) = F(-\omega).$$

由此根据我们由经典振子模型所导出的一维情况下的电极化率 $\chi^{(1)}(\omega)$, $\chi^{(2)}(\omega_1, \omega_2)$ 和 $\chi^{(3)}(\omega_1, \omega_2, \omega_3)$ 的表示式(1.4-1)式, 可以得到如下的结论:

在 $\chi^{(1)}(\omega)$ 的表示式中, 用 $-\omega$ 代替 ω 时, $\chi^{(1)}(\omega)$ 不变, 即有

$$\chi^{(1)}(-\omega) = \chi^{(1)}(\omega); \quad (1.4-8)$$

在 $\chi^{(2)}(\omega_1, \omega_2)$ 的表示式中, 用 $-(\omega_1 + \omega_2)$ 代替 ω_1 或 ω_2 , $\chi^{(2)}(\omega_1, \omega_2)$ 不变, 即有

$$\chi^{(2)}[-(\omega_1 + \omega_2), \omega_2] = \chi^{(2)}(\omega_1, \omega_2); \quad (1.4-9)$$

在 $\chi^{(3)}(\omega_1, \omega_2, \omega_3)$ 的表示式中, 用 $-(\omega_1 + \omega_2 + \omega_3)$ 代替 ω_1 , ω_2 或 ω_3 时, $\chi^{(3)}(\omega_1, \omega_2, \omega_3)$ 不变, 即有

$$\begin{aligned} \chi^{(3)}(\omega_1, \omega_2, \omega_3) &= \chi^{(3)}[-(\omega_1 + \omega_2 + \omega_3), \omega_2, \omega_3] \\ &= \chi^{(3)}[\omega_1, -(\omega_1 + \omega_2 + \omega_3), \omega_3] \\ &= \chi^{(3)}[\omega_1, \omega_2, -(\omega_1 + \omega_2 + \omega_3)] \end{aligned} \quad (1.4-10)$$

在这里须再次强调指出: 如果介质与辐射场之间没有能量交换, 即介质是无耗的, 则电极化率是实数。此外(1.4-8)式到(1.4-10)式是一维时的情况来说的。对于三维的情况, 可以从二阶电极化强度分量 $P_{\mu}^{(2)}(t)$ 的表示式

$$\begin{aligned} P_{\mu}^{(2)}(t) &= \epsilon_0 \chi_{\mu\alpha\beta}^{(2)}(\omega_1, \omega_2) E_{\alpha}(\omega_1) E_{\beta}(\omega_2) \\ &\quad \times \exp[-i(\omega_1 + \omega_2)t] \end{aligned}$$

出发来进行分析(这里已省略了对重复指标 α, β 求和的符号)。可以看到频率 $(\omega_1 + \omega_2)$ 是与指标 μ 相对应的。所以在(1.4-8)式到(1.4-10)式中引入的附加频率 $-\omega$ (一阶情况下引入

的), $-(\omega_1 + \omega_2)$ (二阶情况下引入的) 和 $-(\omega_1 + \omega_2 + \omega_3)$ (三阶情况下引入的), 都是对应于早已存在的频率之和的负值, 是与电极化率张量元素中的第一个指标相联系的。这样, 我们就可以由张量元素 $\chi_{\mu\alpha\beta}^{(2)}(\omega_1, \omega_2)$ 通过配对 (α, ω_1) , (β, ω_2) 与配对 $(\mu, -\omega_1 - \omega_2)$ 交换后并使之相等而得到如下的关系:

$$\begin{aligned}\chi_{\mu\alpha\beta}^{(2)}(\omega_1, \omega_2) &= \chi_{\alpha\beta\mu}^{(2)}(-\omega_1 - \omega_2, \omega_2) \\ &= \chi_{\beta\alpha\mu}^{(2)}(\omega_1, -\omega_1 - \omega_2).\end{aligned}\quad (1.4-11)$$

如果将对应三个指标 μ, α, β 的频率 $(-\omega_1 - \omega_2), \omega_1$ 和 ω_2 都在电极化率张量元素中表示出来, 则二阶电极化率张量元素有如下的表示方法和关系:

$$\begin{aligned}\chi_{\mu\alpha\beta}^{(2)}(-\omega_1 - \omega_2, \omega_1, \omega_2) &= \chi_{\alpha\beta\mu}^{(2)}(\omega_1, -\omega_1 - \omega_2, \omega_2) \\ &= \chi_{\beta\alpha\mu}^{(2)}(\omega_2, \omega_1, -\omega_1 - \omega_2).\end{aligned}\quad (1.4-12)$$

到此, 结合(1.4-6)式和(1.4-12)式可以看到, 如果介质是无耗的, 将电极化率张量元素中的第一个指标 μ , 也包括到对易的配对中去时, 那么电极化率张量元素 $\chi_{\mu\alpha\beta}^{(2)}(\omega_1, \omega_2)$ 在 $(\mu, -\omega_1 - \omega_2)$, (α, ω_1) 和 (β, ω_2) 这些配对的任何对易下是不变的。

同理, 对三阶非线性电极化来说, 通过 $(\mu, -\omega_1 - \omega_2 - \omega_3)$, (α, ω_1) , (β, ω_2) 和 (γ, ω_3) 这些配对之间的任何对易, 由三阶非线性电极化率张量元素 $\chi_{\mu\alpha\beta\gamma}^{(3)}(\omega_1, \omega_2, \omega_3)$ 所得到的三阶电极化率张量 $\chi^{(3)}$ 的所有元素也都是相等的, 即有

$$\begin{aligned}\chi_{\mu\alpha\beta\gamma}^{(3)}(\omega_1, \omega_2, \omega_3) &= \chi_{\alpha\beta\gamma\mu}^{(3)}(-\omega_1 - \omega_2 - \omega_3, \omega_2, \omega_3) \\ &= \gamma_{\alpha\beta\gamma\mu}^{(3)}(\omega_2, -\omega_1 - \omega_2 - \omega_3, \omega_3) \\ &= \dots\end{aligned}\quad (1.4-13)$$

同样, 类似于(1.4-12)式的表示方法, 三阶非线性电极化率张量元素可以表示为 $\chi_{\mu\alpha\beta\gamma}^{(3)}(-\omega_1 - \omega_2 - \omega_3, \omega_1, \omega_2, \omega_3)$, 于是, (1.4-13)式变为

$$\begin{aligned}\chi_{\mu\alpha\beta\gamma}^{(3)}(-\omega_1 - \omega_2 - \omega_3, \omega_1, \omega_2, \omega_3) \\ = \chi_{\alpha\beta\gamma\mu}^{(3)}(\omega_1, -\omega_1 - \omega_2 - \omega_3, \omega_2, \omega_3) = \dots\end{aligned}\quad (1.4-14)$$

这种包括电极化率张量元素中的第一个指标在内进行对易时所具有的对称性, 叫做完全对易对称性。

4. 空间对称性

由于晶体的基本特征是晶格的周期性, 也就是说晶体具有空间对称性, 因而便对电极化率张量 $\chi^{(1)}(\omega)$, $\chi^{(2)}(\omega_1, \omega_2)$, $\chi^{(3)}(\omega_1, \omega_2, \omega_3)$ 等给予了限制。例如, $\chi^{(2)}(\omega_1, \omega_2)$ 的元素本应有27个, 考虑到空间对称性, 非零元素小于等于27个。非零元素的多少与晶体的对称类型有关。对称性愈高, 非零元素愈少。同样, 对 $\chi^{(3)}(\omega_1, \omega_2, \omega_3)$ 来说, 本应有81个非零元素, 考虑到晶体对称性的限制, 非零元素小于等于81个。关于各种晶体类型的一阶到三阶电极化率张量的具体结果, 将在第三章中详细讨论给出。现在我们只从具有中心对称的晶体没有偶阶电极化率张量这个事实, 说明晶体的空间对称性对电极化率张量的具体形式是有影响的。

如果介质具有反演中心(或中心对称), 则由(1.3-14)式到(1.3-16)式所表示的 $\mathbf{P}^{(1)}(t)$, $\mathbf{P}^{(2)}(t)$ 和 $\mathbf{P}^{(3)}(t)$ 的关系式在 $x \rightarrow -x, y \rightarrow -y, z \rightarrow -z$ 的坐标变换下, 相对于两个坐标系来说, \mathbf{E} 和 \mathbf{P} 都改变了方向, 结果 $\mathbf{P}^{(1)}(t)$ 和 $\mathbf{P}^{(3)}(t)$ 的表示式不变; 但对 $\mathbf{P}^{(2)}(t)$ 来说, 恰变为

$$-P^{(2)}(t) = \sum_{m,n} \chi^{(2)}(\omega_m, \omega_n) : E(\omega_m) E(\omega_n) \exp[-i(\omega_m + \omega_n)t]$$

不过根据对称性要求, $P^{(2)}(t)$ 是不应改变的。这样, 唯一的可能只能是 $P^{(2)}(t) = 0$, 但 $E(\omega_m) \neq 0$, $E(\omega_n) \neq 0$, 故只有 $\chi^{(2)}(\omega_1, \omega_2) = 0$ 。所以我们得到一个十分重要的结论, 即具有反演中心的介质, 偶阶非线性电极化率为零。

还有一个事实很重要, 即凡具有压电效应的晶体都没有反演中心, 因而它们的二阶非线性电极化率不可能等于零。

除上述电极化率的各种性质外, 还有所谓克兰曼(Kleinman)对称性和时间反演对称性, 这将在第二章中介绍讨论。

五、几点说明

最后说明三点:

1. 关于电极化率的单位^[8]

关于电极化率的单位, SI制和c.g.s./e.s.u.单位制都广泛地被应用, 但目前倾向采用SI制(目前使用高斯单位制和使用SI单位制的文献几乎同样多)。此外, 除电极化率表示宏观介质的外, 在文献中也经常用到每个原子的电极化率, 本书用符号 $\chi^{(r)\text{mic}}$ 表示(符号中mic是microscopic的缩写)。

宏观电极化率 $\chi^{(r)}$ 与每个原子的电极化率 $\chi^{(r)\text{mic}}$ 之间的关系为

$$\chi^{(r)} = n\chi^{(r)\text{mic}} \quad (1.5-1)$$

式中 n 是介质中每单位体积内的原子数或分子数。

在SI单位制中, $\chi^{(r)}$ 和 $\chi^{(r)\text{mic}}$ 的单位分别为

$$\chi^{(r)} = \left(\frac{\text{m}}{\text{V}}\right)^{r-1},$$

$$\chi^{(r)\text{mic}} = \text{m}^3 \left(\frac{\text{m}}{\text{V}}\right)^{r-1}.$$

在c.g.s./e.s.u.单位制中, $\chi^{(r)}$ 和 $\chi^{(r)\text{mic}}$ 的单位分别为

$$\chi^{(r)} = (\text{cm}^3/\text{erg})^{(r-1)/2},$$

$$\chi^{(r)\text{mic}} = \text{cm}^3(\text{cm}^3/\text{erg})^{(r-1)/2}.$$

注意, 在两种单位制中的一阶电极化率张量 $\chi^{(1)}$ 都是无量纲的, 其它阶非线性电极化率张量之间的关系有

$$\frac{\chi^{(r)}(\text{SI})}{\chi^{(r)}(\text{e.s.u.})} = \frac{4\pi}{(3 \times 10^4)^{r-1}}, \quad (1.5-2)$$

$$\frac{\chi^{(r)\text{mic}}(\text{SI})}{\chi^{(r)\text{mic}}(\text{c.s.u.})} = \frac{4\pi}{10^6(3 \times 10^4)^{r-1}}. \quad (1.5-3)$$

为方便起见, 表1-1列出几个 $\chi^{(r)}$ 和 $\chi^{(r)\text{mic}}$ 的比值

表 1-1 几个 $\chi^{(r)}$ 和 $\chi^{(r)ml}$ 的比值

	$r=1$	$r=2$	$r=3$	$r=5$
$\frac{\chi^{(r)}(\text{SI})}{\chi^{(r)}(\text{e.s.u.})}$	12.6	4.19×10^{-4}	1.40×10^{-8}	1.56×10^{-17}
$\frac{\chi^{(r)ml}(\text{SI})}{\chi^{(r)ml}(\text{e.s.u.})}$	12.6×10^{-6}	4.19×10^{-10}	1.40×10^{-14}	1.56×10^{-23}

2. 非线性电极化率与线性电极化率之间的关系

在第四章中，我们将引入非线性系数 d_{ijk} ，它与二阶非线性电极化率有如下的关系^[7]：

$$\chi_{ijk}^{(2)}(\omega_2, \omega_1) = d_{ijk}(\omega_2, \omega_1), \quad (1.5-4)$$

$$\chi_{ijk}^{(2)}(\omega_1, \omega_1) = 2d_{ijk}(\omega_1, \omega_1). \quad (1.5-5)$$

米勒(Miller)已经得到非线性系数 d_{ijk} 与线性电极化率之间有如下的关系^[8]：

$$d_{ijk}(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2) = \chi_{ii}^{(1)}(\omega_3) \chi_{jj}^{(1)}(\omega_1) \chi_{kk}^{(1)}(\omega_2) \delta_{ijk}. \quad (1.5-6)$$

式中 $\chi_{ii}^{(1)}$ 、 $\chi_{jj}^{(1)}$ 和 $\chi_{kk}^{(1)}$ 表示线性电极化率张量的对角分量， δ_{ijk} 叫做米勒 δ 。

如果我们考虑(1.2-37)式和(1.2-12)式，可见二阶非线性电极化率 $\chi^{(2)}(\omega_1, \omega_2)$ 与线性电极化率 $\chi^{(1)}(\omega)$ 之间的关系有

$$\chi^{(2)}(\omega_1, \omega_2) = -A \frac{m \epsilon_0^3}{n^2 e^3} \chi^{(1)}(\omega_1) \chi^{(1)}(\omega_2) \chi^{(1)}(\omega_1 + \omega_2). \quad (1.5-7)$$

比较(1.5-6)式和(1.5-7)式，说明由经典理论所导出的(1.5-7)式与米勒规则(1.5-6)式的形式是一致的。

米勒 δ 可以由(1.5-6)式根据实验求得，对给定的晶体对称类型，其值差不多相等。对于若干晶体在二次谐波、光整流效应以及线性电光效应下的非线性系数 d_{ijk} 和 δ_{ijk} 的值列于表1-2中^[9]。

表 1-2 不同晶体下的二次谐波、光整流效应和线性电光效应的非线性系数和米勒 δ

晶体	二次谐波		整流效应		线性电光效应	
	$d_{ijk}^{(2)}$	$\frac{\delta_{ijk}^{(2)}}{(4\pi)^3}$	$d_{ijk}^{(0)}$	$\frac{\delta_{ijk}^{(0)}}{(4\pi)^3}$	$d_{ijk}^{(1)}$	$\frac{\delta_{ijk}^{(1)}}{(4\pi)^3}$
KH ₂ PO ₄	$d_{312} = 100$	0.55	8.3	0.26	8.5	0.15
	$d_{123} = 1.01 \pm 0.05$	0.55			10.7	0.35
KD ₂ PO ₄ ^(a)	$d_{312} = 0.92 \pm 0.04$	0.51				
	$d_{123} = 0.91 \pm 0.03$	0.50			23.6	0.34
NH ₄ H ₂ PO ₄	$d_{312} = 0.99 \pm 0.06$	0.50			21	0.24
	$d_{123} = 0.98 \pm 0.05$	0.51			8.4	0.45

接下页

续表

晶体	二次谐波		整流效应		线性电光效应	
	d_{ijk}^0	$\frac{\delta_{ijk}^0}{(4\pi)^3}$	d_{mij}^0	$\frac{\delta_{ijk}^0}{(4\pi)^3}$	d_{ij}^0	$\frac{\delta_{ijk}^0}{(4\pi)^3}$
KH ₂ AsO ₄	$d_{312} = 1.06 \pm 0.06$	0.41				
	$d_{123} = 1.12 \pm 0.05$	0.42			6.5	0.22
石英 ^(a)	$d_{111} = 0.82 \pm 0.04$	0.32			0.52	0.08
	$d_{123} < 0.02$	< 0.01			0.22	0.03
AlPO ₄	$d_{111} = 0.84 \pm 0.07$	0.35				
	$d_{123} < 0.02$	< 0.01				
ZnO	$d_{333} = 14.3 \pm 0.4$	0.56				
	$d_{311} = 4.3 \pm 0.4$	0.17				
	$d_{113} = 4.7 \pm 0.4$	0.19				
CdS	$d_{333} = 63 \pm 4$	0.52				
	$d_{311} = 32 \pm 2$	0.27	300	1.39		
	$d_{113} = 35 \pm 3$	0.31			2.9	0.13
GaP	$d_{123} = 175 \pm 30$	0.21			6.3	0.01
GaAs	$d_{123} = 560 \pm 140$	0.24			53	0.04
BaTiO ₃	$d_{333} = 14 \pm 1$	0.18				
	$d_{331} = 37 \pm 3$	0.42				
	$d_{113} = 35 \pm 3$	0.39			12300	0.24

表1-2中, (a) 假定KD₂PO₄和KH₂PO₄有相同的折射率; (b) d_{123} 在二次谐波产生中是一个禁用系数。

将上述结果乘以 3×10^{-9} 便可转换到e.s.u.单位制。

最后由(1.5-6)式得到的一个重要结论是: 在所讨论的频率处, 具有较大的线性电极化率的晶体, 也显示出具有较大的非线性电极化率。

3. 非线性电极化强度的另一表示形式

在有些文献和著作中, 频率为 ω 的场的电场强度的表示式写为

$$E(t) = E_0 \cos(\omega t + \varphi) \\ = \frac{1}{2} E(\omega) \exp(-i\omega t) + \frac{1}{2} E^*(\omega) \exp(i\omega t).$$

式中 $E(\omega) = E_0 \exp(-i\varphi)$ 。这样, 由(1.3-24)式所表示的三阶电极化强度的分量 $P^{(3)}(t)$ 应变为

$$P^{(3)}(t) = \frac{1}{4} \epsilon_0 \sum_{\substack{m, n, l \\ a, \beta, \gamma = x, y, z}} \chi_{\alpha\beta\gamma}^{(3)}(\omega_m, \omega_n, \omega_l)$$

$$\times E_{\alpha}(\omega_m)E_{\beta}(\omega_n)E_{\gamma}(\omega_l)\exp[-i(\omega_m + \omega_n + \omega_l)t] \quad (1.5-8)$$

注意, (1.5-8)式中 $E(\omega)^1$ 与(1.3-24)式中的 $E(\omega)$ 符号虽然一样,但相差一个1/2的因子。

考虑到极化率张量的本征对易对称性,对给定频率 ω_m , ω_n 和 ω_l ,则有

$$P_{\beta}^{(\alpha)}(\omega_{\sigma}) = 2^{-(1-\sigma)} 3! \sum_{\alpha, \beta, \gamma = x, y, z} \epsilon_0 \chi_{\beta\alpha}^{(\sigma)}(\omega_{\sigma} - (\omega_l - \omega_m + \omega_n), \omega_m, \omega_n, \omega_l) \\ \times E_{\alpha}(\omega_m)E_{\beta}(\omega_n)E_{\gamma}(\omega_l) \quad (1.5-9)$$

对于 r 阶电极化强度的(1.3-17)式,则变为

$$P^{(r)}(t) = 2^{(1-r)} \sum_{\alpha_1, \alpha_2, \dots, \alpha_r} \epsilon_0 \chi^{(r)}(\omega_{\alpha_1}, \dots, \omega_{\alpha_r}) |E(\omega_{\alpha_1}) \\ \times E(\omega_{\alpha_2}) \dots E(\omega_{\alpha_r}) \exp \left[-i \sum_{m=1}^r \omega_{\alpha_m} t \right] \quad (1.5-10)$$

参 考 文 献

- [1] A.Maitland and M.H.Dunn, Laser Physics, North-Holland Publishing Company, Amsterdam, 1969, Appendix A, p.340.
- [2] Interaction of Radiation with Condensed Matter, IAEA, VIENNA, Vol.1, 1977, p.13.
- [3] 江.几.朗道, E.M.栗弗席兹: 《连续媒质电动力学》(周奇译), 人民教育出版社, 1979年, § 83, 第461页。
- [4] Agranovich, V.M, Ginzburg, V.I., Sov Phys. USP, 5(1962) 323, 5(1963) 675.
- [5] Allen Nussbaum, Richard A. Phillips, Contemporary Optics for Scientists and Engineers, Prentice-Hall, Inc. Englewood (Cliffs, New Jersey) p.379.
- [6] D.C.Hanna, M.A.Yuratic, D.Cotter, Nonlinear Optics of Free Atoms and Molecules, Springer-Verlag Berlin Heidelberg New York 1979, Appendix.
- [7] Y-R.Shen, Nonlinear Infrared Generation, Springer-Verlag Berlin Heidelberg New York 1977, p.82.
- [8] 同[7], p.24.
- [9] R.C.Miller, Appl Phys Lett, 5 17 (1964), p.44.

第二章 非线性电极化率的量子力学描述

本章将从介质中带电粒子在电场作用下的量子力学规律出发,利用密度算符及其运动方程,导出电极化率张量的一般表示式。在此之前,首先给出所要用到的量子力学和量子统计的一些基本概念和知识。

一、密度算符及其运动方程

1. 量子力学中的一些基本概念和结论

(a) 一个动力学体系的态可以用一个归一化的波函数 ψ 描述。 ψ 是系统位置和自旋坐标的函数。有

$$\int \psi^* \psi d\tau = 1. \quad (2.1-1)$$

式中积分 $\int d\tau$ 表示对系统所有坐标积分并对自旋求和。

(b) 系统的每一个动力学变量如坐标、动量、能量等,在量子力学中有一个线性算符相对应,这可用一般的符号 \hat{O} 表示。那么当系统处于态 ψ 时,对系统进行重复测量力学量 O 的平均值,就是系统处于态 ψ 中的 \hat{O} 的期望值,即

$$\langle \hat{O} \rangle = \int \psi^* \hat{O} \psi d\tau. \quad (2.1-2)$$

(c) 如果某时刻系统的状态已被确定,那么在以后时刻态随时间变化的规律,由与时间有关的薛定谔方程

$$i\hbar \frac{\partial \psi}{\partial t} = \hat{H} \psi \quad (2.1-3)$$

所确定。这是波函数的运动方程,式中 \hat{H} 代表系统能量的哈密顿算符。 \hat{H} 的形式,通常可根据经典的哈密顿导出,只要将其中笛卡尔坐标和动量用相应的算符代替即可。例如

$$\begin{aligned} x &\rightarrow \hat{x}, \\ P_x &\rightarrow \hat{P}_x = -i\hbar \frac{\partial}{\partial x}. \end{aligned} \quad (2.1-4)$$

(d) 态的表象。在量子力学中,具体描述态和力学量的方式可以不同。如可以用以坐标为变量的波函数来描述态,也可以用以动量为变量的函数作为波函数来描述态。相应的力学量算符也不同。所谓表象,就是量子力学中对态和力学量的具体表达方式。一个表象就是一组完全、正交的波函数 $\{u_i\}$ 。所谓正交,就是

$$\int u_i^* u_j d\tau = \delta_{ij} \quad \left. \begin{aligned} &= 1 && i = j, \\ &= 0 && i \neq j. \end{aligned} \right\} \quad (2.1-5)$$

所谓完全,就是任意波函数 ψ 可以用 $\{u_i\}$ 展开为

$$\psi(\mathbf{r}, t) = \sum_i a_i(t) u_i(\mathbf{r}). \quad (2.1-6)$$

我们知道，在量子力学中表象的选择是任意的，完全取决于所讨论的问题，选择得适当，可以使问题的讨论大为简化。

(2.1-6)式的意义是：如果 $\psi = \psi(\mathbf{r}, t)$ 是在坐标表象中的波函数， $u_i(\mathbf{r})$ 是在另一特定表象中的本征函数，该式说明在坐标表象中所描述的态，在另一特定表象中是用一组数 $a_i(a_1 \cdots a_n)$ 来描述的。在量子力学中，将 $\{a_i(t)\}$ 称作是这个态在特定表象中的波函数。数 a_i 有

$$a_i = \int u_i^* \psi d\tau. \quad (2.1-7)$$

(e) 力学量算符的矩阵元 O_{ij} 。按量子力学，力学量算符 \hat{O} 的矩阵元为

$$O_{ij} = \int u_i^* \hat{O} u_j d\tau. \quad (2.1-8)$$

如果动力学变量 O 是实数，那么期望值 $\langle \hat{O} \rangle$ 亦必是实数，则矩阵元素满足

$$O_{ij}^* = O_{ji}. \quad (2.1-9)$$

满足(2.1-9)式的矩阵 $[O_{ij}]$ 叫做厄米 (Hermit) 矩阵。相应的算符是厄米算符。

在量子力学中，实数的动力学变量都可以用一个厄米算符来表示，相应有一个厄米矩阵。一个厄米算符满足如下一般形式的关系，即

$$\left[\int \psi^* \hat{O} \phi d\tau \right]^* = \int \phi^* \hat{O} \psi d\tau. \quad (2.1-10)$$

式中 ϕ 和 ψ 是两个任意的波函数，它们不一定属于相同的表象。

(f) 力学量算符的矩阵的迹。一个力学量算符 \hat{O} 的矩阵的迹表示为

$$\text{tr}\{\hat{O}\} = \sum_i \hat{O}_{ii}. \quad (2.1-11)$$

即矩阵的对角元素之和。

(g) 么正变换。一个态矢量从一个表象经过一个变换 \mathbf{S} 变换到另一表象，如变换 \mathbf{S} 满足

$$\mathbf{S}\mathbf{S}^+ = \mathbf{I}, \quad (2.1-12)$$

则变换 \mathbf{S} 叫做么正变换。式中 \mathbf{S}^+ 是 \mathbf{S} 的共轭矩阵， \mathbf{I} 是单位矩阵。

量子力学证明，在么正变换下，矩阵的迹不变。在以后我们经常要用到以下两条规则：

(i) 几个算符线性组合的迹等于单个算符的迹的线性组合，即有

$$\begin{aligned} & \text{tr}\{c_1 \hat{O}_1 + c_2 \hat{O}_2 + \cdots\} \\ &= c_1 \text{tr}\{\hat{O}_1\} + c_2 \text{tr}\{\hat{O}_2\} + \cdots. \end{aligned} \quad (2.1-13)$$

(ii) 循环对易规则。几个算符乘积的迹，在循环对易下是不变的，即有

$$\begin{aligned} & \text{tr}\{\hat{A} \hat{B} \hat{C} \cdots \hat{X} \hat{Y}\} \\ &= \text{tr}\{\hat{Y} \hat{A} \hat{B} \hat{C} \cdots \hat{X}\} \\ &= \text{tr}\{\hat{X} \hat{Y} \hat{A} \hat{B} \hat{C} \cdots\}. \end{aligned} \quad (2.1-14)$$

对迹的讨论具有实际的意义，因为量子力学的物理内容常用迹来表示。

(h) 薛定谔方程的矩阵表示。由量子力学可知，波函数 $\psi(\mathbf{r}, t)$ 在某表象中看作为一列矩阵，即

$$\Psi = \begin{pmatrix} a_1(t) \\ a_2(t) \\ \vdots \\ a_n(t) \\ \vdots \end{pmatrix} \quad (2.1-15)$$

现将(2.1-6)式代入(2.1-3)式，并以 $u_m^*(\mathbf{r})$ 左乘算式两边，再对 \mathbf{r} 变化的整个空间积分，可得

$$i\hbar \frac{d}{dt} \begin{pmatrix} a_1(t) \\ a_2(t) \\ \vdots \\ a_n(t) \\ \vdots \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} H_{11} & H_{12} & \cdots & H_{1n} & \cdots \\ H_{21} & H_{22} & \cdots & H_{2n} & \cdots \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots & \vdots \\ H_{n1} & H_{n2} & \cdots & H_{nn} & \cdots \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots & \vdots \end{pmatrix} \begin{pmatrix} a_1(t) \\ a_2(t) \\ \vdots \\ a_n(t) \\ \vdots \end{pmatrix}$$

并可简写为

$$i\hbar \frac{d}{dt} \Psi = \hat{H}\Psi \quad (2.1-16)$$

(2.1-16)式就是薛定谔方程的矩阵表示。

(i) 薛定谔表象、相互作用表象和海森堡(Heisenberg)表象^[1]。考虑到物质与场的相互作用，哈密顿 \hat{H} 包括未微扰哈密顿 \hat{H}_0 和相互作用哈密顿 \hat{H}_1 ，即

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{H}_1 \quad (2.1-17)$$

相应的薛定谔方程为

$$i\hbar \frac{\partial \Psi}{\partial t} = (\hat{H}_0 + \hat{H}_1)\Psi(t) \quad (2.1-18)$$

解为

$$\Psi(t) = \Psi(0) \exp(-i\hat{H}t/\hbar) \quad (2.1-19)$$

对任何问题来说，我们最终有兴趣的是代表可观察的量的某些算符的期望值。一般讲，该期望值是时间的函数，即有 $\langle \hat{O} \rangle(t)$ 。所谓薛定谔表象，就是在这表象中，函数 $\Psi(t)$ 是时间的函数，但算符不随时间而变，所以有

$$\langle \hat{O} \rangle(t) = \int \Psi^*(t) \hat{O}(0) \Psi(t) d\tau \quad (2.1-20)$$

式中 $\hat{O}(0)$ 表示算符本身是不随时间变化的。

如果将(2.1-19)式代入(2.1-20)式，则有

$$\langle \hat{O} \rangle(t) = \int \Psi^*(0) \exp(i\hat{H}_1 t/\hbar) \exp(i\hat{H}_0 t/\hbar)$$

令
$$\times \hat{O}(0) \exp(-i\hat{H}_0 t/\hbar) \exp(-i\hat{H}_1 t/\hbar) \Psi(0) d\tau. \quad (2.1-21)$$

则
$$\Psi^I(t) = \exp(-i\hat{H}_1 t/\hbar) \Psi(0), \quad (2.1-22)$$

$$\langle \hat{O} \rangle(t) = \int [\Psi^I(t)]^* \hat{O}^I(t) \Psi^I(t) d\tau. \quad (2.1-23)$$

式中 $\Psi^I(t)$ 就是相互作用表象中的态矢量; $\hat{O}^I(t)$ 是相互作用表象中的力学量算符。

在海森堡表象中, 态矢量与时间无关, 但算符与时间有关, 即

$$\begin{aligned} \langle \hat{O} \rangle(t) &= \int \Psi^*(0) \exp(i\hat{H}t/\hbar) \hat{O}(0) \exp(-i\hat{H}t/\hbar) \Psi(0) d\tau \\ &= \int \Psi^*(0) \hat{O}(t) \Psi(0) d\tau. \end{aligned} \quad (2.1-24)$$

式中

$$\hat{O}(t) = \exp(i\hat{H}t/\hbar) \hat{O}(0) \exp(-i\hat{H}t/\hbar). \quad (2.1-25)$$

由上式所定义的海森堡算符 $\hat{O}(t)$ 服从如下的运动方程:

$$\frac{d}{dt} \hat{O}(t) = \frac{i}{\hbar} [\hat{H} \hat{O} - \hat{O} \hat{H}] = \frac{i}{\hbar} [\hat{H}, \hat{O}]. \quad (2.1-26)$$

式中 $[\hat{H}, \hat{O}]$ 是泊松括号。

2. 投影算符

设 Φ 是一个任意的波函数, ψ 是一正交完全集合中的一个元素, 那么 Φ 可以按正交完全组展开。我们可以用符号 $\hat{P}(\psi)\Phi$ 表示从 Φ 的展开式中挑选出属于态 ψ 的贡献。符号 $\hat{P}(\psi)$ 称为投影算符, 其定义为

$$\hat{P}(\psi)\Phi = \psi \int \psi^* \Phi d\tau. \quad (2.1-27)$$

投影算符的矩阵元为

$$\begin{aligned} [\hat{P}(\psi)]_{ij} &= \int u_i^* \hat{P}(\psi) u_j d\tau \\ &= \int u_i^* [\psi \int \psi^* u_j d\tau] d\tau \\ &= \int u_i^* \psi d\tau \int \psi^* u_j d\tau \\ &= a_i a_j^*. \end{aligned} \quad (2.1-28)$$

式中 $\{u_i\}$ 是某一表象的完全正交集。

这样, 我们可以利用投影算符来表示期望值 $\langle \hat{O} \rangle$, 即有

$$\begin{aligned} \langle \hat{O} \rangle &= \int \Psi^* \hat{O} \Psi d\tau \\ &= \int \sum_j a_j^* u_j^* \hat{O} \sum_i a_i u_i d\tau \\ &= \sum_i \sum_j a_j^* a_i \int u_j^* \hat{O} u_i d\tau \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
&= \sum_i \sum_j a_i^* a_j O_{ji} \\
&= \sum_i \sum_j [P(\Psi)]_{ij} O_{ji} \\
&= \sum_i [\hat{P}(\Psi) \hat{O}]_{ii} = \text{tr}\{\hat{P}(\Psi) \hat{O}\}.
\end{aligned} \tag{2.1-29}$$

由此可见，引入投影算符 $\hat{P}(\Psi)$ 后，可以按照 (2.1-29) 式计算期望值 $\langle \hat{O} \rangle$ 。

下面我们导出投影算符 $\hat{P}(\Psi)$ 的运动方程。假定 Φ 是一个与时间无关的任意函数，由投影算符的定义 (2.1-27) 式，有

$$\begin{aligned}
i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \hat{P}(\Psi)\Phi &= i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \left[\Psi \int \Psi^* \Phi d\tau \right] \\
&= \left(i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \Psi \right) \int \Psi^* \Phi d\tau + \Psi \int i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \Psi^* \Phi d\tau.
\end{aligned}$$

利用 (2.1-3) 式和 \hat{H} 是厄米算符的性质，上式变为

$$\begin{aligned}
i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \hat{P}(\Psi)\Phi &= \hat{H} \hat{P}(\Psi)\Phi - \Psi \int \Phi \hat{H}^* \Psi^* d\tau \\
&= \hat{H} \hat{P}(\Psi)\Phi - \Psi \int \Psi^* \hat{H} \Phi d\tau \\
&= \hat{H} \hat{P}(\Psi)\Phi - \hat{P}(\Psi) \hat{H} \Phi.
\end{aligned} \tag{2.1-30}$$

因为函数 Φ 是任意的，所以在上式中可将 Φ 略去，从而求得投影算符的运动方程为

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \hat{P}(t) = \hat{H} \hat{P}(\Psi) - \hat{P}(\Psi) \hat{H} = [\hat{H}, \hat{P}(\Psi)]. \tag{2.1-31}$$

现在投影算符 $\hat{P}(\Psi)$ 的运动方程完全代替了 Ψ 的运动方程——薛定谔方程。可见，投影算符除用来计算期望值 $\langle \hat{O} \rangle$ 外，还提供了描述系统物理状态的一种方法。

3. 密度算符及其运动方程

有了以上所给的量子力学的一些基本概念和结论，现在可以引入一个所谓密度算符 $\hat{\rho}$ ，并确定其运动方程。

我们知道要求得量子力学体系的某个力学量 O 的宏观表现，即期望值 $\langle \hat{O} \rangle$ ，必须精确知道系统的状态 Ψ ，最多只能相差一个不重要的相位因子。可是很少有可能精确地得到这种知识。譬如我们研究一个由 N 个无自旋的粒子所组成的系统，因为系统有 $3N$ 个自由度，要精确确定该系统的状态，就要测量 $3N$ 个量，譬如 $3N$ 个粒子的动量。可见，对于一个具有 $N \approx 10^{23}$ 个分子所组成的宏观系统来说，上述任务是毫无可能完成的。我们至多只能得到系统有关的统计知识，譬如说系统处在可能状态 Ψ_n 的几率有多少。如果系统可能的状态有

$$\Psi_1, \Psi_2, \dots, \Psi_n, \dots,$$

相应的几率为

$$P_1, P_2, \dots, P_n, \dots,$$

则在这种情况下,我们就要从量子力学范围过渡到量子统计的范围去讨论问题。按(2.1-29)式,系统处在态 $\Psi_1, \Psi_2, \dots, \Psi_n, \dots$ 的力学量 O 的平均值分别为

$$\begin{aligned} & \text{tr}\{\hat{P}(\Psi_1)O\}, \\ & \text{tr}\{\hat{P}(\Psi_2)O\}, \\ & \vdots \\ & \text{tr}\{\hat{P}(\Psi_n)O\}, \\ & \vdots \end{aligned}$$

所以现在力学量 O 的期望值 $\langle \hat{O} \rangle$ 变为

$$\begin{aligned} \langle \hat{O} \rangle &= \sum_n p_n \text{tr}\{\hat{P}(\Psi_n)\hat{O}\} \\ &= \sum_n \text{tr}\{p_n \hat{P}(\Psi_n)O\} \\ &= \text{tr}\left\{ \sum_n p_n \hat{P}(\Psi_n)O \right\}. \end{aligned} \quad (2.1-32)$$

令

$$\hat{\rho} = \sum_n p_n \hat{P}(\Psi_n), \quad (2.1-33)$$

称为系统的密度算符, (2.1-32)式便变为

$$\langle \hat{O} \rangle = \text{tr}\{\hat{\rho} \hat{O}\}. \quad (2.1-34)$$

要强调指出的是,对于只知道系统状态的统计知识的情况来说,必须用密度算符去描述,并用它去计算期望值 $\langle \hat{O} \rangle$ 。

现在我们来求密度算符 $\hat{\rho}$ 随时间变化的规律。因为 p_n 表示系统处在可能态 Ψ_n 的几率,当然与时间是无关的^[2]。由(2.1-33)式,有

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \hat{\rho} = i\hbar \sum_n p_n \frac{\partial \hat{P}(\Psi_n)}{\partial t}.$$

利用投影算符的运动方程(2.1-31)式,则上式变为

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \hat{\rho} &= \sum_n p_n [\hat{H}, \hat{P}(\Psi_n)] \\ &= [\hat{H}, \sum_n p_n \hat{P}(\Psi_n)] \\ &= [\hat{H}, \hat{\rho}]. \end{aligned} \quad (2.1-35)$$

最后要指出的是,我们上面所给出的一些关系,如(2.1-34)式的期望值公式

$$\langle \hat{O} \rangle = \text{tr}\{\hat{\rho} \hat{O}\},$$

密度算符的(2.1-33)式

$$\hat{\rho} = \sum_n p_n \hat{P}(\Psi_n),$$

以及密度算符的运动方程(2.1-35)式

$$i\hbar \frac{\partial \hat{\rho}}{\partial t} = [\hat{H}, \hat{\rho}],$$

是以后计算电极化率张量 χ'' 表示式的基础。

4. 密度算符的迹

在应用上述方程去讨论实际问题时的物理条件，总是系统开始处于热平衡状态，然后受到外加电磁场的微扰，而且在求解密度算符的运动方程时，把热平衡状态下的密度算符 $\hat{\rho}_0$ 作为边界条件。

因为对某个系统求力学量的期望值 $\langle \hat{O} \rangle$ 时，总有 $\langle \hat{O} \rangle = \text{tr} \{ \hat{\rho} \hat{O} \}$ 。又因为力学量 O 是任意的，所以，如果令 $O = 1$ ，也应成立。这样就有

$$\langle 1 \rangle = 1 = \text{tr} \{ \hat{\rho} \}. \quad (2.1-36)$$

即密度算符的迹

$$\text{tr} \{ \hat{\rho} \} = 1, \quad (2.1-37)$$

在热平衡状态下的密度算符 $\hat{\rho}_0$ 的迹为

$$\text{tr} \{ \hat{\rho}_0 \} = 1. \quad (2.1-38)$$

现设没有外加电磁场时系统的哈密顿算符为 \hat{H}_0 ；有外加电磁场时，并考虑了外场与系统相互作用后的哈密顿为 \hat{H} 。按量子力学，未微扰哈密顿 \hat{H}_0 的本征值方程为

$$\hat{H}_0 \psi_n = E_n \psi_n.$$

在量子力学中已经证明，这一组能量本征态 $\{\psi_n\}$ 是完全正交的，根据表象理论，这一组完全正交的能量本征态形成一个表象，通常称为能量表象。

在热平衡条件下，系统处在能量本征态 ψ_n 的几率 p_n 也就是系统处在具有能量为 E_n 的本征态 ψ_n 的几率，由众所周知的波尔兹曼分布给出为

$$p_n = A \exp(-E_n/KT). \quad (2.1-39)$$

式中 A 是归一化常数，由 $\sum_n p_n = 1$ 确定。 K 是波尔兹曼常数， T 是系统的绝对温度。所以在热平衡温度 T 下，系统的密度算符 $\hat{\rho}_0$ 按(2.1-33)式有

$$\hat{\rho}_0 = A \sum_n \exp(-E_n/KT) P(\psi_n). \quad (2.1-40)$$

现在，我们引入一个指数算符 $\exp(-\hat{H}_0/KT)$ ，并将其展开为幂级数

$$\exp(-\hat{H}_0/KT) = \sum_{s=0}^{\infty} \frac{1}{s!} \left(-\hat{H}_0/KT\right)^s, \quad (2.1-41)$$

则

$$\begin{aligned} \exp(-\hat{H}_0/KT) \psi_n &= \sum_{s=0}^{\infty} \frac{1}{s!} \left(\frac{-\hat{H}_0}{KT}\right)^s \psi_n \\ &= \sum_{s=0}^{\infty} \frac{1}{s!} \left(\frac{-E_n}{KT}\right)^s \psi_n \\ &= \exp(-E_n/KT) \psi_n. \end{aligned} \quad (2.1-42)$$

如果现在有一个任意的波函数

$$\theta = \sum_n b_n \Psi_n,$$

则有

$$\hat{P}(\Psi_n)\theta = \Psi_n \int \Psi_n^* \theta d\tau = b_n \Psi_n,$$

并有

$$\hat{\rho}_0 \theta = A \sum_n \exp(-E_n/KT) \hat{P}(\Psi_n)\theta = A \exp(-\hat{H}_0/KT)\theta. \quad (2.1-43)$$

因为若假定 θ 是任意的波函数, 有

$$\hat{\rho}_0 = A \exp(-\hat{H}_0/KT), \quad (2.1-44)$$

将上式代入(2.1-38)式, 有

$$\text{tr}\{\hat{\rho}_0\} = \text{tr}\{A \exp(-\hat{H}_0/KT)\} = 1,$$

所以求得归一化常数

$$A = [\text{tr}\{\exp(-\hat{H}_0/KT)\}]^{-1}. \quad (2.1-45)$$

5. 能量表象中 H_0 和 ρ_0 的矩阵的对角化形式

在量子力学中已知, 可以在任何表象中计算矩阵的迹。但在能量表象中, 哈密顿矩阵有对角化的形式, 即

$$(\hat{H}_0)_{mn} = \int \Psi_m^* H_0 \Psi_n d\tau = \int \Psi_m^* E_n \Psi_n d\tau = E_n \delta_{mn} \quad (2.1-46)$$

因为按(2.1-44)式

$$\hat{\rho}_0 = A \exp(-\hat{H}_0/KT) = [\text{tr}\{\exp(-\hat{H}_0/KT)\}]^{-1} \exp(-\hat{H}_0/KT), \quad (2.1-47)$$

$$\text{tr}\{\exp(-\hat{H}_0/KT)\} = \sum_n \int \Psi_n^* \exp(-\hat{H}_0/KT) \Psi_n d\tau = \sum_n \exp(-E_n/KT), \quad (2.1-48)$$

所以

$$(\hat{\rho}_0)_{mn} = \int \Psi_m^* A \exp(-\hat{H}_0/KT) \Psi_n d\tau = \frac{\exp(-E_n/KT)}{\sum_n \exp(-E_n/KT)} \delta_{mn}. \quad (2.1-49)$$

由此可见, 在能量表象中密度算符 $\hat{\rho}_0$ 的矩阵也具有对角化的形式。

如果 $f(\hat{H}_0)$ 是 \hat{H}_0 的任意函数, 并且可以展开为幂级数的形式, 那么就有

$$f(\hat{H}_0)\Psi_n = f(E_n)\Psi_n$$

以及

$$[f(\hat{H}_0)]_{mn} = \int \Psi_m^* f(H_0) \Psi_n d\tau = \int \Psi_m^* f(E_n) \Psi_n d\tau = f(E_n) \delta_{mn}.$$

这表明哈密顿 \hat{H}_0 的任意函数 $f(\hat{H}_0)$ 的矩阵, 在能量表象中都是对角化的。

二、密度算符的微扰级数

这一节将以上节所给出的密度算符的运动方程

$$i\hbar \frac{\partial \hat{\rho}}{\partial t} = [\hat{H}, \hat{\rho}]$$

为基础, 给出密度算符 ρ 的微扰级数, 为下一节计算电极化率张量 $\chi^{(n)}$ 作准备。

1. 密度算符的微扰级数

前面已经得到: 一个系统在任何时刻 t 的宏观物理特性, 由该时刻的密度算符 $\hat{\rho}(t)$ 所决定, 即有

$$\langle \hat{O} \rangle = \text{tr} \{ \hat{\rho} \hat{O} \}.$$

现在我们讨论一个原来处于热平衡状态下的系统在受到外加场作用后的密度算符。例如固体中荷电粒子所组成的系统在受到光波场作用后的情况。系统的哈密顿为

$$\hat{H}(t) = H_0 + \hat{H}_1(t), \quad (2.2-1)$$

式中 H_0 是没有外场作用时系统的哈密顿, $\hat{H}_1(t)$ 是由于外加场作用所引起的微扰。

假定在遥远的过去, 即 $t \rightarrow -\infty$ 时, 系统处于热平衡状态, 温度为 T , 这时有

$$\hat{H}_1(t) = \hat{H}_1(-\infty) = 0, \quad (2.2-2)$$

$$\hat{\rho}(t) = \hat{\rho}(-\infty) = \hat{\rho}_0. \quad (2.2-3)$$

并由 ρ 的运动方程 (2.1-35) 式给出

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \hat{\rho}(t) &= [\hat{H}, \hat{\rho}(t)] \\ &= [\hat{H}_0 + \hat{H}_1(t), \hat{\rho}(t)] \\ &= [\hat{H}_0, \hat{\rho}(t)] + [\hat{H}_1(t), \hat{\rho}(t)]. \end{aligned} \quad (2.2-4)$$

因为 $\hat{H}_1(t)$ 通常是一个微扰, 因而可以用一个微扰级数表示 (2.2-4) 式的解 (在强激光作用和近共振时, 不能展开成级数。只有当 $|\langle \psi | e r \cdot E | \psi \rangle / [\hbar(\omega - \omega_i)]| \ll 1$ 时才可用级数展开), 即解 $\hat{\rho}(t)$ 可表示为

$$\hat{\rho}(t) = \hat{\rho}_0 + \hat{\rho}_1(t) + \hat{\rho}_2(t) + \cdots + \hat{\rho}_r(t) + \cdots. \quad (2.2-5)$$

式中

$\hat{\rho}_0$ 是热平衡系统的密度算符,

$\hat{\rho}_1(t)$ 是微扰 $\hat{H}_1(t)$ 的线性函数,

$\hat{\rho}_2(t)$ 是与微扰 $\hat{H}_1(t)$ 有二次关系的项,

\vdots

$\hat{\rho}_r(t)$ 是与微扰 $\hat{H}_1(t)$ 有 r 次关系的项。

边界条件有

$$\left. \begin{aligned} \hat{\rho}(-\infty) &= \hat{\rho}_0, \\ \hat{\rho}_r(-\infty) &= 0 \quad r = 1, 2, \dots \end{aligned} \right\} \quad (2.2-6)$$

2. $\hat{\rho}_r(t)$ 所满足的微分方程及其求解的方法

将(2.2-4)式的级数解(2.2-5)式代入(2.2-4)式,有

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{\partial}{\partial t} (\hat{\rho}_0 + \hat{\rho}_1(t) + \dots + \hat{\rho}_r(t) + \dots) \\ = [\hat{H}_0, \hat{\rho}_0 + \hat{\rho}_1(t) + \dots + \hat{\rho}_r(t) + \dots] \\ + [\hat{H}_1(t), \hat{\rho}_0 + \hat{\rho}_1(t) + \dots + \hat{\rho}_r(t) + \dots]. \end{aligned} \quad (2.2-7)$$

使上面等式两边具有相同 $\hat{H}_i(t)$ 的幂的项相等,那么就可以得到密度算符 $\hat{\rho}(t)$ 的微扰级数中各项所满足的微分方程为

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \hat{\rho}_0 = [\hat{H}_0, \hat{\rho}_0], \quad (2.2-8)$$

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \hat{\rho}_1(t) = [\hat{H}_0, \hat{\rho}_1(t)] + [\hat{H}_1(t), \hat{\rho}_0], \quad (2.2-9)$$

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \hat{\rho}_2(t) = [\hat{H}_0, \hat{\rho}_2(t)] + [\hat{H}_1(t), \hat{\rho}_1(t)], \quad (2.2-10)$$

⋮

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \hat{\rho}_r(t) = [\hat{H}_0, \hat{\rho}_r(t)] + [\hat{H}_1(t), \hat{\rho}_{r-1}(t)], \quad (2.2-11)$$

⋮

因为 \hat{H}_0 和 $\hat{\rho}_0$ 是可对易的,所以(2.2-8)式是一个恒等式,不能由此方程解出 $\hat{\rho}_0$ 来。 $\hat{\rho}_0$ 是热平衡下系统的密度算符,是已知的。将已知的 $\hat{\rho}_0$ 代入(2.2-9)式并求解,考虑到边界条件 $\hat{\rho}_1(t)|_{t=-\infty} = 0$,求得解 $\hat{\rho}_1(t)$ 。再将求得的解 $\hat{\rho}_1(t)$ 代入(2.2-10)式再求解,并考虑到边界条件 $\hat{\rho}_2(-\infty) \rightarrow 0$,求得解 $\hat{\rho}_2(t)$ 。依次便可求得微扰级数中的各项。现假定 $\hat{\rho}_{r-1}(t)$ 已知,我们求解(2.2-11)式。关于求解(2.2-11)式这一类微分方程,与求解常微分方程

$$\frac{dy}{dt} = f(t)y + g(t) \quad (2.2-12)$$

的方法相似。对于求解(2.2-12)式的方法如下。

先寻找一个积分因子 $I(t)$,使得

$$I(t) \frac{dy}{dt} - I(t)f(t)y = \frac{d}{dt} (I(t)y) = y \frac{dI(t)}{dt} + I(t) \frac{dy}{dt},$$

则积分因子 $I(t)$ 必须满足微分方程

$$\frac{dI(t)}{dt} = -I(t)f(t).$$

即有

$$I(t) = \exp \left\{ - \int_0^t f(\tau) d\tau \right\}.$$

现在在(2.2-12)式两边乘积分因子 $I(t)$, 有

$$I(t) \frac{dy}{dt} - f(t)I(t)y = g(t)I(t) = -\frac{d}{dt}(I(t)y),$$

所以

$$yI(t) = \int_{t_0}^t g(\tau)I(\tau) d\tau.$$

式中 t_0 由边界条件 $y|_{t=t_0} = 0$ 确定。这样, 最后求得

$$y = \left[\exp \int_0^t f(\tau) d\tau \right] \int_{t_0}^t \exp \left(- \int_0^\tau f(\tau') d\tau' \right) g(\tau) d\tau. \quad (2.2-13)$$

现在回到求解(2.2-11)式的方程。因为(2.2-11)式中的 \hat{H}_0 和 $\hat{\rho}_r(t)$ 等都是算符, 在利用上面的方法求解方程时, 开始我们并不知道利用积分因子相乘时, 是左乘呢还是右乘? 或者还是同时在两边都相乘一个积分因子? 当然后者即两边相乘积分因子的情况包含前者。

所以不失其普遍性, 我们可以寻找一对积分因子 $\hat{V}_0(t)$ 和 $\hat{U}_0(t)$, 使得

$$\begin{aligned} & \hat{V}_0(t) \left\{ i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \hat{\rho}_r(t) - (\hat{H}_0, \hat{\rho}_r(t)) \right\} \hat{U}_0(t) \\ & = i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \{ \hat{V}_0(t) \hat{\rho}_r(t) \hat{U}_0(t) \}. \end{aligned} \quad (2.2-14)$$

将左边的泊松括号展开, 并作出右边的微分, 整理后得到

$$\begin{aligned} & \left\{ i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \hat{V}_0(t) + \hat{V}_0(t) \hat{H}_0 \right\} \hat{\rho}_r(t) \hat{U}_0(t) \\ & + \hat{V}_0(t) \hat{\rho}_r(t) \left\{ i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \hat{U}_0(t) - \hat{H}_0 \hat{U}_0(t) \right\} = 0. \end{aligned} \quad (2.2-15)$$

从上式可以看到, 如果两个大括号中的量都等于零, 显然满足方程。这样, 我们便得到一对非耦合的积分因子所满足的微分方程:

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \hat{V}_0(t) = -\hat{V}_0(t) \hat{H}_0, \quad (2.2-16)$$

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \hat{U}_0(t) = \hat{H}_0 \hat{U}_0(t). \quad (2.2-17)$$

(2.2-16)式和(2.2-17)式的解为

$$\hat{V}_0(t) = \exp(i\hat{H}_0 t/\hbar), \quad (2.2-18)$$

$$\hat{U}_0(t) = \exp(-i\hat{H}_0 t/\hbar) = \hat{V}_0(-t). \quad (2.2-19)$$

积分因子 $\hat{U}_0(t)$ 称为未微扰与时间有关的么正算符(演化算符), 这个名词来源于未微扰与时间有关的薛定谔方程^[1]

$$\hat{H}_0 \psi(t) = i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \psi(t) \quad (2.2-20)$$

的解。因为(2.2-20)式的解可以用 $\hat{U}_0(t)$ 作用在时刻 $t=0$ 时的波函数 $\psi(0)$ 上得到。将

$\Psi(t) = \hat{U}_0(t)\Psi(0)$ 代入(2.2-20)式有

$$\hat{H}_0\hat{U}_0(t)\Psi(0) = i\hbar \frac{\partial \hat{U}_0(t)}{\partial t} \Psi(0).$$

因为 $\Psi(0)$ 是任意波函数,所以

$$\hat{H}_0\hat{U}_0(t) = i\hbar \frac{\partial \hat{U}_0(t)}{\partial t}.$$

上式的解即(2.2-19)式。

关于积分因子 $\hat{U}_0(t)$ 和 $\hat{V}_0(t)$ 的一些性质综合如下:

- (i) $\hat{U}_0(t)$ 与 $\hat{V}_0(t')$ 是可对易的, t 和 t' 表示任意时间;
- (ii) 设 $f(\hat{H}_0)$ 是 \hat{H}_0 的任意函数, 则 $\hat{U}_0(t)$ 、 $\hat{V}_0(t)$ 与任何 $f(\hat{H}_0)$ 可对易;
- (iii) $\hat{U}_0(t)\hat{U}_0(t') = \exp(-i\hat{H}_0 t/\hbar)\exp(-i\hat{H}_0 t'/\hbar)$
 $= \exp(-i\hat{H}_0(t+t')/\hbar)$
 $= \hat{U}_0(t+t'),$ (2.2-21)

所以

$$\hat{U}_0(t)\hat{U}_0(-t) = \hat{U}_0(0) = 1. \quad (2.2-22)$$

现在我们可以利用上面所引入的积分因子 $\hat{U}_0(t)$ 和 $\hat{V}_0(t)$ 来求解(2.2-11)式了。用 $\hat{V}_0(t) = \hat{U}_0(-t)$ 和 $\hat{U}_0(t)$ 分别左乘和右乘(2.2-11)式, 有

$$\hat{V}_0(t)i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \hat{\rho}_r(t) \hat{U}_0(t) = \hat{V}_0(t)[\hat{H}_0, \hat{\rho}_r(t)]\hat{U}_0(t) + \hat{V}_0(t)[\hat{H}_1(t), \hat{\rho}_{r-1}(t)]\hat{U}_0(t).$$

按(2.2-14)式, 上式变为

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \{ \hat{V}_0(t) \hat{\rho}_r(t) \hat{U}_0(t) \} \\ = \hat{V}_0(t)[\hat{H}_1(t), \hat{\rho}_{r-1}(t)] \hat{U}_0(t) \\ = \hat{U}_0(-t)[\hat{H}_1(t), \hat{\rho}_{r-1}(t)] \hat{U}_0(t). \end{aligned}$$

积分上式, 有

$$i\hbar \hat{U}_0(-t) \hat{\rho}_r(t) \hat{U}_0(t) = \int_{-\infty}^t \hat{U}_0(-t_1)[\hat{H}_1(t_1), \hat{\rho}_{r-1}(t_1)] \hat{U}_0(t_1) dt_1. \quad (2.2-23)$$

式中积分下限是根据边界条件 $\hat{\rho}_r(-\infty) = 0$ 确定的。由此可见, 只要 $\hat{\rho}_{r-1}(t)$ 已知, 由(2.2-23)式就可求得 $\hat{\rho}_r(t)$ 。如果在上式两边分别左乘 $\hat{U}_0(t)$ 和右乘 $\hat{U}_0(-t)$, 则利用 $\hat{U}_0(t)$ 的性质就可以立即求得 $\hat{\rho}_r(t)$ 的表示式。但是, 我们暂时仍保留着(2.2-23)式的左边的形式, 再经过一些运算之后, 才给出 $\hat{\rho}_r(t)$ 最后的表示式。

由(2.2-23)式给出

$$\begin{aligned} \hat{U}_0(-t) \hat{\rho}_r(t) \hat{U}_0(t) = (i\hbar)^{-1} \int_{-\infty}^t [\hat{U}_0(-t_1) \hat{H}_1(t_1) \hat{\rho}_{r-1}(t_1) \hat{U}_0(t_1) \\ - \hat{U}_0(-t_1) \hat{\rho}_{r-1}(t_1) \hat{H}_1(t_1) \hat{U}_0(t_1)] dt_1. \end{aligned} \quad (2.2-24)$$

现在, 在 $\hat{H}_1(t_1)$ 和 $\hat{\rho}_{r-1}(t_1)$ 之间插入 $U_0(t_1)\hat{U}_0(-t_1)$, 则有

$$\begin{aligned}
\hat{U}_0(-t)\hat{\rho}_r(t)\hat{U}_0(t) &= (i\hbar)^{-1} \int_{-\infty}^t [\hat{U}_0(-t_1)\hat{H}_1(t_1)\hat{U}_0(t_1)\hat{U}_0(-t_1)\hat{\rho}_{r-1}(t_1)\hat{U}_0(t_1) \\
&\quad - \hat{U}_0(-t_1)\hat{\rho}_{r-1}(t_1)\hat{U}_0(t_1)\hat{U}_0(-t_1)\hat{H}_1(t_1)\hat{U}_0(t_1)] dt_1 \\
&= (i\hbar)^{-1} \int_{-\infty}^t \{ [\hat{H}'_1(t_1)\hat{U}_0(-t_1)\hat{\rho}_{r-1}(t_1)\hat{U}_0(t_1) \\
&\quad - \hat{U}_0(-t_1)\hat{\rho}_{r-1}(t_1)\hat{U}_0(t_1)\hat{H}'_1(t_1)] \} dt_1 \\
&= (i\hbar)^{-1} \int_{-\infty}^t [\hat{H}'_1(t_1), \hat{U}_0(-t_1)\hat{\rho}_{r-1}(t_1)\hat{U}_0(t_1)] dt_1. \quad (2.2-25)
\end{aligned}$$

式中

$$\hat{H}'_1(t) = \hat{U}_0(-t)\hat{H}_1(t)\hat{U}_0(t). \quad (2.2-26)$$

按(2.1-25)式, $\hat{H}'_1(t)$ 就是在相互作用表象中的微扰哈密顿算符。(当一个算符右乘一个未微扰与时间有关的么正算符 $\hat{U}_0(t)$ 、左乘一个其倒数 $\hat{U}_0(-t)$ 后变换成另一个算符时,我们就称之为进入相互作用表象。)

现令 $r=1$, 则由(2.2-25)式, 得

$$\hat{U}_0(-t)\hat{\rho}_1(t)\hat{U}_0(t) = (i\hbar)^{-1} \int_{-\infty}^t [\hat{H}'_1(t_1), \hat{U}_0(-t_1)\hat{\rho}_0\hat{U}_0(t_1)] dt_1.$$

因为密度算符 $\hat{\rho}_0$ 和未微扰与时间有关的么正算符 $\hat{U}_0(t)$ 是可对易的, 所以

$$\hat{U}_0(-t)\hat{\rho}_1(t)\hat{U}_0(t) = (i\hbar)^{-1} \int_{-\infty}^t [\hat{H}'_1(t_1), \hat{\rho}_0] dt_1. \quad (2.2-27)$$

现将(2.2-27)式代入令 $r=2$ 的(2.2-25)式, 则有

$$\begin{aligned}
\hat{U}_0(-t)\hat{\rho}_2(t)\hat{U}_0(t) &= (i\hbar)^{-1} \int_{-\infty}^t [\hat{H}'_1(t_1), \hat{U}_0(-t_1)\hat{\rho}_1(t_1)\hat{U}_0(t_1)] dt_1 \\
&= (i\hbar)^{-1} \int_{-\infty}^t dt_1 [\hat{H}'_1(t_1), (i\hbar)^{-1} \int_{-\infty}^{t_1} [\hat{H}'_2(t_2), \hat{\rho}_0] dt_2] \\
&= (i\hbar)^{-2} \int_{-\infty}^t dt_1 \int_{-\infty}^{t_1} [\hat{H}'_1(t_1), (\hat{H}'_2(t_2), \hat{\rho}_0)] dt_2. \quad (2.2-28)
\end{aligned}$$

再将(2.2-28)式代入令 $r=3$ 的(2.2-25)式, 便可得 $\hat{U}_0(-t)\hat{\rho}_3(t)\hat{U}_0(t)$ 的表示式。依次进行下去, 可得

$$\begin{aligned}
&\hat{U}_0(-t)\hat{\rho}_r(t)\hat{U}_0(t) \\
&= (i\hbar)^{-r} \int_{-\infty}^t dt_1 \int_{-\infty}^{t_1} dt_2 \cdots \\
&\quad \times \int_{-\infty}^{t_{r-1}} (\hat{H}'_1(t_1), (\hat{H}'_1(t_2), (\cdots, (\hat{H}'_1(t_r), \hat{\rho}_0)) \cdots)) dt_r. \quad (2.2-29)
\end{aligned}$$

现在用 $\hat{U}_0(t)$ 和 $\hat{V}_0(t) = \hat{U}_0(-t)$ 分别左乘和右乘(2.2-29)式, 则最后求得 $\hat{\rho}_r(t)$ 的表示式为

$$\begin{aligned}
\hat{\rho}_r(t) &= (i\hbar)^{-r} \hat{U}_0(t) \int_{-\infty}^t dt_1 \int_{-\infty}^{t_1} dt_2 \cdots \\
&\quad \times \int_{-\infty}^{t_{r-1}} (\hat{H}'_1(t_1), (\hat{H}'_1(t_2), (\cdots, (\hat{H}'_1(t_r), \hat{\rho}_0)) \cdots)) \hat{U}_0(-t) dt_r. \quad (2.2-30)
\end{aligned}$$

当令 $r=1, 2, \cdots$, 便可求得相应的 $\hat{\rho}_1(t), \hat{\rho}_2(t), \cdots, \hat{\rho}_r(t) \cdots$ 。由此可见, 系统对外加场的响应, 不管是线性响应还是非线性响应, 完全由密度算符所确定。在这里我们得到

了密度算符微扰级数中项的一个普遍公式(2.2-30)式。它可以被用来研究所要讨论的各种特殊的情况。

三、电极化率张量的表示式

1. 用密度算符表示的电极化强度的一般表示式

设有一个小体积 V 的介质, 假定该体积 V 足够小, 以致在其中的电场 $\mathbf{E}(t)$ 的空间变化可以不考虑。另外, 与电场相联系的磁场所引起的效应也不考虑。再假定 V 内含有 N 个荷电粒子(电子和离子), 并用 q_j 和 \mathbf{r}_j 分别表示第 j 个粒子所带的电荷和它的位置矢量, 那么荷电粒子系统的偶极矩为

$$\mathbf{R} = \sum_j q_j \mathbf{r}_j \quad q_j \text{ 有正有负.} \quad (2.3-1)$$

设介质的宏观电极化强度为 $\mathbf{P}(t)$, 按定义, $\mathbf{P}(t)$ 是单位体积内的偶极矩的期望值, 即

$$\mathbf{P}(t) = \frac{1}{V} \langle \hat{\mathbf{R}} \rangle = \frac{1}{V} \text{tr}\{\hat{\rho} \hat{\mathbf{R}}\}. \quad (2.3-2)$$

式中 $\hat{\rho} = \hat{\rho}(t)$ 就是荷电粒子系统的密度算符(假定 V 内有足够多的粒子, 可以不考虑电极矩密度的起伏)。可见, 要得到 $\mathbf{P}(t)$, 必须得知 $\hat{\rho}(t)$ 。这里的 $\hat{\rho}(t)$ 就是本章二中所讨论的密度算符微扰级数(2.2-5)式。将(2.2-5)式代入(2.3-2)式, 则 $\mathbf{P}(t)$ 可写为

$$\mathbf{P}(t) = \mathbf{P}^{(0)} + \mathbf{P}^{(1)} + \mathbf{P}^{(2)} + \dots + \mathbf{P}^{(r)} + \dots \quad (2.3-3)$$

式中

$$\left. \begin{aligned} \mathbf{P}^{(0)} &= V^{-1} \text{tr}\{\hat{\rho}_0 \hat{\mathbf{R}}\}, \\ \mathbf{P}^{(1)} &= V^{-1} \text{tr}\{\hat{\rho}_1(t) \hat{\mathbf{R}}\}, \\ \mathbf{P}^{(2)} &= V^{-1} \text{tr}\{\hat{\rho}_2(t) \hat{\mathbf{R}}\}, \\ &\vdots \\ \mathbf{P}^{(r)} &= V^{-1} \text{tr}\{\hat{\rho}_r(t) \hat{\mathbf{R}}\}, \\ &\vdots \end{aligned} \right\} \quad (2.3-4)$$

2. 一阶电极化率张量公式的推导

现在的任务是将

$$\mathbf{P}^{(r)}(t) = V^{-1} \text{tr}\{\hat{\rho}_r(t) \hat{\mathbf{R}}\} \quad (2.3-5)$$

化成

$$\begin{aligned} \mathbf{P}^{(r)}(t) &= \epsilon_0 \int_{-\infty}^{\infty} d\omega_1 \int_{-\infty}^{\infty} d\omega_2 \dots \int_{-\infty}^{\infty} \chi_{\alpha_1}^{(r)} \dots \alpha_r(\omega_1, \omega_2, \dots, \omega_r) \\ &\quad \times E_{\alpha_1}(\omega_1) E_{\alpha_2}(\omega_2) \dots E_{\alpha_r}(\omega_r) \exp\left[-i \sum_{m=1}^r \omega_m t\right] d\omega_r \end{aligned} \quad (2.3-6)$$

的形式（注意这里省略了对重复指标 α_i 等求和的 $\sum_{\alpha_1 \alpha_2 \dots \alpha_r}$ 符号，下同），从而求出电极化

率张量元素

$$\chi_{\mu\alpha_1 \dots \alpha_r}^{(r)}(\omega_1, \omega_2, \dots, \omega_r)$$

的具体表示式。

由于对不同的阶数 r 值求 $P_i^{(r)}(t)$ 的方法基本上是相同的（只是对一般的情况讨论起来比较繁杂一些而已），因此，我们可以稍为详细地讨论 $r=1$ 和 $r=2$ 的情况，然后将结果推广到任意的 r 值的情况中去。

当 $r=1$ 时，有

$$\begin{aligned} P^{(1)}(t) &= V^{-1} \text{tr} \{ \hat{\rho}_1(t) \hat{\mathbf{R}} \}, \\ P_i^{(1)}(t) &= V^{-1} \text{tr} \{ \hat{\rho}_1(t) \hat{R}_\mu \}, \end{aligned} \quad (2.3-7)$$

由(2.2-30)式并令 $r=1$ 时有

$$\hat{\rho}_1(t) = (i\hbar)^{-1} \hat{U}_0(t) \int_{-\infty}^t [\hat{H}'_1(t_1), \hat{\rho}_0] \hat{U}_0(-t) dt_1. \quad (2.3-8)$$

代入(2.3-7)式，则

$$P_i^{(1)}(t) = V^{-1} \text{tr} \{ (i\hbar)^{-1} \hat{U}_0(t) \int_{-\infty}^t [\hat{H}'_1(t_1), \hat{\rho}_0] \hat{U}_0(-t) \hat{R}_\mu dt_1 \}. \quad (2.3-9)$$

因为按(2.2-26)式有

$$\hat{H}'(t) = \hat{U}_0(-t) \hat{H}_1(t) \hat{U}_0(t) = \hat{U}_0(-t) (-\hat{\mathbf{R}} \cdot \mathbf{E}(t)) \hat{U}_0(t), \quad (2.3-10)$$

式中

$$\hat{H}_1(t) = -\hat{\mathbf{R}} \cdot \mathbf{E}(t) \quad (2.3-11)$$

是电偶极矩 \mathbf{R} 在电场 $\mathbf{E}(t)$ 中的附加能量，如果再引入符号

$$\hat{\mathbf{R}}(t) = \hat{U}_0(-t) \hat{\mathbf{R}} \hat{U}_0(t), \quad (2.3-12)$$

这是在相互作用表象中系统的电偶极矩算符，并考虑到经典物理量电场 \mathbf{E} 与算符 $\hat{U}_0(t)$ 两者是可对易的，这样，在相互作用表象中的微扰算符则为

$$\begin{aligned} \hat{H}'_1(t) &= \hat{U}_0(-t) \hat{H}_1(t) \hat{U}_0(t) \\ &= \hat{U}_0(-t) (-\mathbf{E}(t) \cdot \hat{\mathbf{R}}) \hat{U}_0(t) \\ &= -\mathbf{E}(t) \cdot \hat{U}_0(-t) \hat{\mathbf{R}} \hat{U}_0(t) \\ &= -\hat{\mathbf{R}}_a(t) E_a(t) \end{aligned} \quad (2.3-13)$$

以及

$$\begin{aligned} [\hat{H}'_1(t), \hat{\rho}_0] &= (-\hat{\mathbf{R}}_a(t) E_a(t), \hat{\rho}_0) \\ &= -E_a(t) (\hat{\mathbf{R}}_a(t), \hat{\rho}_0), \end{aligned} \quad (2.3-14)$$

所以

$$\begin{aligned} P_i^{(1)}(t) &= V^{-1} \text{tr} \{ (i\hbar)^{-1} \hat{U}_0(t) \int_{-\infty}^t \{ -(\hat{\mathbf{R}}_a(t_1), \hat{\rho}_0) E_a(t_1) \hat{U}_0(-t) \hat{R}_\mu \} dt_1 \\ &= -(i\hbar V)^{-1} \text{tr} \{ \hat{U}_0(t) \int_{-\infty}^t E_a(t) (\hat{\mathbf{R}}_a(t_1), \hat{\rho}_0) \hat{U}_0(-t) \hat{R}_\mu dt_1 \}. \end{aligned} \quad (2.3-15)$$

因为 $\hat{U}_0(t)$ 与 $E_a(t_1)$ 可对易，又矩阵线性组合的迹等于矩阵迹的线性组合，所以

$$P_{\mu}^{(1)}(t) = -(i\hbar V)^{-1} \int_{-\infty}^t E_{\alpha}(t_1) \times \text{tr}\{\hat{U}_0(t)(\hat{R}_{\alpha}(t_1), \hat{\rho}_0)\hat{U}_0(-t)\hat{R}_{\mu}\} dt_1, \quad (2.3-16)$$

现将 $E_{\alpha}(t_1)$ 按傅里叶展开

$$E_{\alpha}(t_1) = \int_{-\infty}^{\infty} E_{\alpha}(\omega) \exp(-i\omega t_1) d\omega \\ = \int_{-\infty}^{\infty} E_{\alpha}(\omega) \exp(-i\omega t) \exp(-i\omega(t_1 - t)) d\omega,$$

并代入 (2.3-16) 式后得

$$P_{\mu}^{(1)}(t) = (-i\hbar V)^{-1} \int_{-\infty}^t dt_1 \int_{-\infty}^{\infty} E_{\alpha}(\omega) \exp(-i\omega t) \exp(-i\omega(t_1 - t)) \\ \times \text{tr}\{\hat{U}_0(t)(\hat{R}_{\alpha}(t_1), \hat{\rho}_0)\hat{U}_0(-t)\hat{R}_{\mu}\} d\omega \\ = (-i\hbar V)^{-1} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega \int_{-\infty}^t \exp(-i\omega(t_1 - t)) \\ \times \text{tr}\{\hat{U}_0(t)(\hat{R}_{\alpha}(t_1), \hat{\rho}_0)\hat{U}_0(-t)\hat{R}_{\mu}\} E_{\alpha}(\omega) \exp(-i\omega t) dt_1. \quad (2.3-17)$$

现将 (2.3-17) 式与形式

$$P_{\mu}^{(1)}(t) = \int_{-\infty}^{\infty} \epsilon_0 \chi_{\mu\alpha}^{(1)}(\omega) E_{\alpha}(\omega) \exp(-i\omega t) d\omega \quad (2.3-18)$$

的关系相比较, 便可求得一阶电极化率张量元素

$$\chi_{\mu\alpha}^{(1)}(\omega) = -\frac{1}{\epsilon_0} (i\hbar V)^{-1} \int_{-\infty}^t \text{tr}\{\hat{U}_0(t)(\hat{R}_{\alpha}(t_1), \hat{\rho}_0)\hat{U}_0(-t)\hat{R}_{\mu}\} \\ \times \exp(-i\omega(t_1 - t)) dt_1. \quad (2.3-19)$$

展开式中的泊松括号, 并利用关系

$$\hat{U}_0(t)\hat{R}_{\alpha}(t_1)\hat{U}_0(-t) = \hat{R}_{\alpha}(t_1 - t) \quad (2.3-20)$$

和改变积分变量 (即用 t_1 代替 $t_1 - t$), 最后可得

$$\chi_{\mu\alpha}^{(1)}(\omega) = -\frac{1}{\epsilon_0} (i\hbar V)^{-1} \int_{-\infty}^0 \exp(-i\omega t_1) \text{tr}\{\hat{\rho}_0(\hat{R}_{\mu}, \hat{R}_{\alpha}(t_1))\} dt_1. \quad (2.3-21)$$

3. 二阶电极化率张量公式的推导

推导的步骤与方法基本上与推导一阶电极化率张量公式 (2.3-21) 式是相同的。由 (2.3-6) 式并令 $r=2$ 时可写出二阶电极化强度 $P^{(2)}(t)$ 的分量表示式为

$$P_{\mu}^{(2)}(t) = \epsilon_0 \int_{-\infty}^{\infty} d\omega_1 \int_{-\infty}^{\infty} \chi_{\mu\alpha\beta}^{(2)}(\omega_1, \omega_2) \\ \times E_{\alpha}(\omega_1) E_{\beta}(\omega_2) \exp(-i(\omega_1 + \omega_2)t) d\omega_2. \quad (2.3-22)$$

另外, 由 (2.3-4) 式和 (2.2-28) 式有

$$P_{\mu}^{(2)}(t) = V^{-1} \text{tr}\{\hat{\rho}_2(t)\hat{R}_{\mu}\} \\ = V^{-1} \text{tr}\{(i\hbar)^{-2} \hat{U}_0(t) \int_{-\infty}^t dt_1 \\ \times \int_{-\infty}^{t_1} (\hat{H}'_1(t_1), (\hat{H}'_1(t_2), \hat{\rho}_0)) \hat{U}_0(-t) \hat{R}_{\mu}\} dt_2. \quad (2.3-23)$$

再利用(2.3-13)式和(2.3-14)式有

$$\begin{aligned}\hat{H}'_1(t_1) &= -\hat{R}_\alpha(t_1)E_\alpha(t_1), \\ \hat{H}'_1(t_2) &= -\hat{R}_\beta(t_2)E_\beta(t_2), \\ (\hat{H}'_1(t_2), \hat{\rho}_0) &= -E_\beta(t_2)(\hat{R}_\beta(t_2), \hat{\rho}_0).\end{aligned}$$

代入(2.3-23)式后得

$$\begin{aligned}P_\mu^{(2)}(t) &= V^{-1}(-i\hbar)^{-2} \text{tr} \left\{ \int_{-\infty}^t \int_{-\infty}^{t_2} dt_2 E_\alpha(t_1) E_\beta(t_2) \right. \\ &\quad \times \hat{U}_0(t) [\hat{R}_\alpha(t_1), (\hat{R}_\beta(t_2), \hat{\rho}_0)] \hat{U}_0(-t) \hat{R}_\mu dt_1 \}. \quad (2.3-24)\end{aligned}$$

在这里, 将 $E_\alpha(t_1)$ 和 $E_\beta(t_2)$ 拿到 $\hat{U}_0(t)$ 之前是利用了它们之间的可对易和如下的恒等对易规则:

$$\left(\sum_i a_i \hat{O}_i, \sum_j b_j \hat{O}_j \right) = \sum_i \sum_j a_i b_j (\hat{O}_i, \hat{O}_j).$$

再将(2.3-24)式中的积分符号、因子 $E_\alpha(t_1)$ 和 $E_\beta(t_2)$ 拿到迹的符号外面, 并利用 $E_\alpha(t_1)$ 和 $E_\beta(t_2)$ 的傅里叶变换

$$E_\alpha(t_1) = \int_{-\infty}^{\infty} d\omega_1 E_\alpha(\omega_1) \exp(-i\omega_1 t) \exp(-i\omega_1(t_1 - t))$$

和

$$E_\beta(t_2) = \int_{-\infty}^{\infty} d\omega_2 E_\beta(\omega_2) \exp(-i\omega_2 t) \exp(-i\omega_2(t_2 - t)),$$

代入后得

$$\begin{aligned}P_\mu^{(2)}(t) &= V^{-1}(-i\hbar)^{-2} \int_{-\infty}^t dt_1 \int_{-\infty}^{t_1} dt_2 \int_{-\infty}^{\infty} E_\alpha(\omega_1) \\ &\quad \times \exp(-i\omega_1 t) \exp(-i\omega_1(t_1 - t)) d\omega_1 \\ &\quad \times \int_{-\infty}^{\infty} E_\beta(\omega_2) \exp(-i\omega_2 t) \exp(-i\omega_2(t_2 - t)) \\ &\quad \times \text{tr} \{ \hat{U}_0(t) [\hat{R}_\alpha(t_1), (\hat{R}_\beta(t_2), \hat{\rho}_0)] \hat{U}_0(-t) \hat{R}_\mu \} d\omega_2. \quad (2.3-25)\end{aligned}$$

将式中的泊松括号展开后, 迹表示为

$$\begin{aligned}& \text{tr} \{ \hat{U}_0(t) (\hat{R}_\alpha(t_1), (\hat{R}_\beta(t_2), \hat{\rho}_0)) \hat{U}_0(-t) \hat{R}_\mu \} \\ &= \text{tr} \{ \hat{U}_0(t) (\hat{R}_\alpha(t_1) \hat{R}_\beta(t_2) \hat{\rho}_0 - \hat{R}_\alpha(t_1) \hat{\rho}_0 \hat{R}_\beta(t_2) \\ &\quad - \hat{R}_\beta(t_2) \hat{\rho}_0 \hat{R}_\alpha(t_1) + \hat{\rho}_0 \hat{R}_\beta(t_2) \hat{R}_\alpha(t_1)) \hat{U}_0(-t) \hat{R}_\mu \}. \quad (2.3-26)\end{aligned}$$

现在在 $\hat{R}_\alpha(t_1)$ 、 $\hat{R}_\beta(t_2)$ 和 $\hat{\rho}_0$ 之间乘进 $\hat{U}_0(-t)\hat{U}_0(t)(=1)$ 之后, 并应用(2.3-12)式定义的 $\hat{R}(t)$, 可将(2.3-26)式变为

$$\begin{aligned}& \text{tr} \{ \hat{R}_\alpha(t_1 - t) \hat{R}_\beta(t_2 - t) \hat{\rho}_0 \hat{R}_\mu - \hat{R}_\alpha(t_1 - t) \hat{\rho}_0 \hat{R}_\beta(t_2 - t) \hat{R}_\mu \\ &\quad - \hat{R}_\beta(t_2 - t) \hat{\rho}_0 \hat{R}_\alpha(t_1 - t) \hat{R}_\mu + \hat{\rho}_0 \hat{R}_\beta(t_2 - t) \hat{R}_\alpha(t_1 - t) \hat{R}_\mu \}.\end{aligned}$$

再代入(2.3-25)式和作变量代换

$$t_1 \rightarrow t'_1 + t \quad t_2 \rightarrow t'_2 + t,$$

则有

$$\begin{aligned} P_{\mu}^{(2)}(t) = & V^{-1}(-i\hbar)^{-2} \int_{-\infty}^0 dt'_1 \int_{-\infty}^{t'_1} dt'_2 \int_{-\infty}^{\infty} d\omega_1 \int_{-\infty}^{\infty} d\omega_2 E_{\alpha}(\omega_1) E_{\beta}(\omega_2) \\ & \times \exp(-i(\omega_1 + \omega_2)t) \exp[-i(\omega_1 t'_1 + \omega_2 t'_2)] \text{tr}\{\hat{R}_{\alpha}(t'_1) \hat{R}_{\beta}(t'_2) \hat{\rho}_0 \hat{R}_{\mu} \\ & - \hat{R}_{\alpha}(t'_1) \hat{\rho}_0 \hat{R}_{\beta}(t'_2) \hat{R}_{\mu} - \hat{R}_{\beta}(t'_2) \hat{\rho}_0 \hat{R}_{\alpha}(t'_1) \hat{R}_{\mu} \\ & + \hat{\rho}_0 \hat{R}_{\beta}(t'_2) \hat{R}_{\alpha}(t'_1) \hat{R}_{\mu}\} d\omega_2. \end{aligned} \quad (2.3-27)$$

式中

$$\begin{aligned} & \text{tr}\{\hat{R}_{\alpha}(t'_1) \hat{R}_{\beta}(t'_2) \hat{\rho}_0 \hat{R}_{\mu} - \hat{R}_{\alpha}(t'_1) \hat{\rho}_0 \hat{R}_{\beta}(t'_2) \hat{R}_{\mu} \\ & - \hat{R}_{\beta}(t'_2) \hat{\rho}_0 \hat{R}_{\alpha}(t'_1) \hat{R}_{\mu} + \hat{\rho}_0 \hat{R}_{\beta}(t'_2) \hat{R}_{\alpha}(t'_1) \hat{R}_{\mu}\} \\ & = \text{tr}\{(\hat{R}_{\alpha}(t'_1), (\hat{R}_{\beta}(t'_2), \hat{\rho}_0)) \hat{R}_{\mu}\} \\ & = \text{tr}\{\hat{\rho}_0[(\hat{R}_{\mu}, \hat{R}_{\alpha}(t_1)), \hat{R}_{\beta}(t_2)]\}. \end{aligned} \quad (2.3-28)$$

上式最后的等号已利用了(2.1-14)式并将 t'_1 和 t'_2 分别用 t_1 和 t_2 替代。

现将(2.3-28)式代入(2.3-25)式后得二阶电极化强度分量的表示式为

$$\begin{aligned} P_{\mu}^{(2)}(t) = & V^{-1}(-i\hbar)^{-2} \int_{-\infty}^0 dt_1 \int_{-\infty}^{t_1} dt_2 \int_{-\infty}^{\infty} d\omega_1 \int_{-\infty}^{\infty} d\omega_2 E_{\alpha}(\omega_1) E_{\beta}(\omega_2) \exp(-i(\omega_1 + \omega_2)t) \\ & \times \exp(-i(\omega_1 t_1 + \omega_2 t_2)) \text{tr}\{\hat{\rho}_0[(\hat{R}_{\mu}, \hat{R}_{\alpha}(t_1)), \hat{R}_{\beta}(t_2)]\} d\omega_2. \end{aligned} \quad (2.3-29)$$

再将上式与(2.3-22)式相比较, 便得二阶电极化率张量元素的表示式为

$$\begin{aligned} \chi_{\mu\alpha}^{(2)}(\omega_1, \omega_2) = & \frac{1}{\varepsilon_0} V^{-1}(-i\hbar)^{-2} \int_{-\infty}^0 dt_1 \int_{-\infty}^{t_1} dt_2 \text{tr}\{\hat{\rho}_0[(\hat{R}_{\mu}, \hat{R}_{\alpha}(t_1)), \hat{R}_{\beta}(t_2)]\} \\ & \times \exp(-i(\omega_1 t_1 + \omega_2 t_2)) dt_2 \end{aligned} \quad (2.3-30)$$

在第一章我们已讲到电极化率张量具有本征对易对称性, 即有

$$\chi_{\mu\alpha}^{(2)}(\omega_1, \omega_2) = \chi_{\mu\beta}^{(2)}(\omega_2, \omega_1).$$

但现在从我们导出的 $\chi_{\mu\alpha}^{(2)}(\omega_1, \omega_2)$ 的表示式(2.3-30)式可以看到, 在配对 (α, ω_1) 和 (β, ω_2) 交换后, $\chi_{\mu\alpha}^{(2)}(\omega_1, \omega_2) \neq \chi_{\mu\beta}^{(2)}(\omega_2, \omega_1)$ 。也就是说, (2.3-30)式所表示的 $\chi_{\mu\alpha}^{(2)}(\omega_1, \omega_2)$ 并不具有本征对易对称性。为使 $\chi_{\mu\alpha}^{(2)}(\omega_1, \omega_2)$ 具有本征对易对称性, 我们可以用

$$\frac{1}{2} [\chi_{\mu\alpha}^{(2)}(\omega_1, \omega_2) + \chi_{\mu\beta}^{(2)}(\omega_2, \omega_1)] \quad (2.3-31)$$

代替 $\chi_{\mu\alpha}^{(2)}(\omega_1, \omega_2)$ 。这样, (2.3-31)式在配对 (α, ω_1) 和 (β, ω_2) 的对易下是不变的, 也即具有本征对易对称的性质。所以具有本征对易对称性的二阶电极化率张量元素的表示式应变为

$$\begin{aligned} \chi_{\mu\alpha}^{(2)}(\omega_1, \omega_2) = & \frac{1}{\varepsilon_0} V^{-1}(-i\hbar)^{-2} \frac{1}{2!} \hat{S} \int_{-\infty}^0 dt_1 \int_{-\infty}^{t_1} dt_2 \text{tr}\{\hat{\rho}_0[(\hat{R}_{\mu}, \hat{R}_{\alpha}(t_1)), \hat{R}_{\beta}(t_2)]\} \\ & \times \exp(-i(\omega_1 t_1 + \omega_2 t_2)) dt_2. \end{aligned} \quad (2.3-32)$$

式中 \hat{S} 表示一种对称化算符, 在这里, 它表示在(2.3-32)式中对配对 (α, ω_1) 和 (β, ω_2) 可能的对易求和。

4. 第r阶电极化率张量的表示式

由一阶和二阶电极化率张量元素 $\chi_{\mu\alpha}^{(1)}(\omega)$ 和 $\chi_{\mu\alpha\beta}^{(2)}(\omega_1, \omega_2)$ 的表示式 (2.3-21) 式和 (2.3-32) 式, 我们可以立即写出三阶电极化率张量元素 $\chi_{\mu\alpha\beta\gamma}^{(3)}(\omega_1, \omega_2, \omega_3)$ 和 r 阶电极化率张量元素 $\chi_{\mu\alpha_1\alpha_2\cdots\alpha_r}^{(r)}(\omega_1, \omega_2, \cdots, \omega_r)$ 的表示式分别为^[5]

$$\begin{aligned} \chi_{\mu\alpha\beta\gamma}^{(3)}(\omega_1, \omega_2, \omega_3) = & \frac{1}{\epsilon_0} V^{-1} \hat{S}_3 (-i\hbar)^{-3} \int_{-\infty}^0 dt_1 \int_{-\infty}^{t_1} dt_2 \int_{-\infty}^{t_2} dt_3 \\ & \times \text{tr} \{ \hat{\rho}_0 [[[\hat{R}_\mu, \hat{R}_\alpha(t_1)], \hat{R}_\beta(t_2)], \hat{R}_\gamma(t_3)] \} \\ & \times \exp[-i(\omega_1 t_1 + \omega_2 t_2 + \omega_3 t_3)] dt_3, \end{aligned} \quad (2.3-33)$$

$$\begin{aligned} \chi_{\mu\alpha_1\alpha_2\cdots\alpha_r}^{(r)}(\omega_1, \omega_2, \cdots, \omega_r) \\ = & \frac{1}{\epsilon_0} \frac{\hat{S}_r}{r!} V^{-1} (-i\hbar)^{-r} \int_{-\infty}^0 dt_1 \int_{-\infty}^{t_1} dt_2 \cdots \\ & \times \int_{-\infty}^{t_{r-1}} \text{tr} \{ \hat{\rho}_0 [\cdots [[\hat{R}_\mu, \hat{R}_{\alpha_1}(t_1)], \hat{R}_{\alpha_2}(t_2)], \cdots \hat{R}_{\alpha_r}(t_r)] \} \\ & \times \exp \left[-i \sum_{m=1}^r \omega_m t_m \right] dt_r. \end{aligned} \quad (2.3-34)$$

式中 \hat{S} 是对称化算符, 在 (2.3-33) 式中表示对配对 (α, ω_1) 、 (β, ω_2) 和 (γ, ω_3) 所有可能的 3! 个对易求和, 在 (2.3-34) 式中表示对配对 (α_1, ω_1) 、 (α_2, ω_2) 、 \cdots 、 (α_r, ω_r) 所有可能的 $r!$ 个对易求和。

至此, 我们已得到了用密度算符方法导出的各阶电极化率张量元素的表示式, 这些表示式可应用于任何介质, 它们是研究介质光学性质的基础。

四、近独立分子体系的电极化率张量

本节的主要内容是利用上节的普遍结论去讨论一个不可区分的、独立的、取向相同的全同分子体系。这种模型对任何实际的介质来说是一个十分理想的模型, 其概念简单, 易于理解。

在本章三(即上一节)中所讲的电极化率张量的表示式中的算符, 都是与介质的小体积 V 内整个粒子系统相联系的。现在若进一步假定这种粒子系统是由独立的分子集合组成, 那么就可以很容易地证明上节中的多粒子算符可用单个分子的算符来表示。单个分子算符只与单个分子相联系, 而且与不同分子相联系的算符之间是可对易的。这种关系在下面的讨论中常常要用到。

1. 多粒子系统的算符用单分子算符表示

假定在体积 V 中有 M 个分子, 第 m 个分子的未微扰哈密顿算符和电偶极矩算符分别为 \hat{H}_m 和 \hat{R}_m , 那么整个集合的未微扰哈密顿算符和电偶极矩算符分别为

$$\hat{H}_0 = \sum_m \hat{H}_m, \quad (2.4-1)$$

$$\hat{R} = \sum_m \hat{R}_m. \quad (2.4-2)$$

因为单个分子的哈密顿算符之间是相互对易的，所以整个集合在热平衡下的密度算符为

$$\begin{aligned} \hat{\rho}_0 &= A \exp(-\hat{H}_0/KT) \\ &= A \exp\left(-\sum_m \hat{H}_m/KT\right) \\ &= (A^{1/M})^M \left[\exp(-\hat{H}_1/KT) \exp(-\hat{H}_2/KT) \cdots \exp(-\hat{H}_M/KT) \right] \\ &= \hat{\rho}_1 \hat{\rho}_2 \cdots \hat{\rho}_m \cdots \hat{\rho}_M. \end{aligned} \quad (2.4-3)$$

式中

$$\begin{aligned} \hat{\rho}_m &= A^{1/M} \exp(-\hat{H}_m/KT) \\ &= A' \exp(-\hat{H}_m/KT) \end{aligned} \quad (2.4-4)$$

是在热平衡状态下第 m 个分子的密度算符，这里的 $A^{1/M}$ 用 A' 表示。

同样，整个集合的未微扰与时间有关的么正算符 $\hat{U}_0(t)$ 为

$$\hat{U}_0(t) = \exp(-i\hat{H}_0 t/\hbar) = \hat{U}_1(t) \hat{U}_2(t) \cdots \hat{U}_m(t) \cdots \hat{U}_M(t). \quad (2.4-5)$$

式中

$$\hat{U}_m(t) = \exp(-i\hat{H}_m t/\hbar) \quad (2.4-6)$$

是第 m 个分子的未微扰与时间有关的么正算符。显然有

$$\hat{U}_m(-t) \hat{U}_m(t) = 1 \quad (2.4-7)$$

以及

$$[\hat{U}_m(t), \hat{R}_l] = 0 \quad m \neq l. \quad (2.4-8)$$

在相互作用表象中，整个集合的电极偶极矩算符为

$$\begin{aligned} \hat{R}(t) &= \hat{U}_0(-t) \hat{R} \hat{U}_0(t) \\ &= \hat{U}_0(-t) \sum_m \hat{R}_m \hat{U}_0(t) \\ &= \sum_m \hat{R}_m(t). \end{aligned} \quad (2.4-9)$$

式中

$$\hat{R}_m(t) = \hat{U}_m(-t) \hat{R}_m \hat{U}_m(t) \quad (2.4-10)$$

是在相互作用表象中第 m 个分子的电极偶极矩算符。

2. 电极化张量公式中的适用单个分子的算符表示

由(2.3-21)式、(2.3-32)式、(2.3-33)式和(2.3-34)式所表示的一阶、二阶、三阶和 r 阶电极化率张量元素的表示式可见，它们分别含有如下的因子：

$$[\hat{R}_\mu, \hat{R}_\nu(t_1)], \quad (2.4-11)$$

$$[[\hat{R}_\mu, \hat{R}_\sigma(t_1)], \hat{R}_\beta(t_2)], \quad (2.4-12)$$

$$[[[\hat{R}_\mu, \hat{R}_\sigma(t_1)], R_\beta(t_2)], \hat{R}_\gamma(t_2)], \quad (2.4-13)$$

$$\text{和} \quad [[\cdots[[\hat{R}_\mu, \hat{R}_{\alpha_1}(t_1)], \hat{R}_{\alpha_2}(t_2)], \cdots], \hat{R}_{\alpha_r}(t_r)] \quad (2.4-14)$$

等。现利用本带 1 中的关系，对 (2.4-11) 式有

$$\begin{aligned} (\hat{R}_\mu, \hat{R}_\sigma(t)) &= [\sum_m \hat{R}_{m\mu}, \sum_m \hat{R}_{m\sigma}(t_1)] \\ &= \sum_m [[\hat{R}_{m\mu}, R_{m\sigma}(t_1)]]; \end{aligned} \quad (2.4-15)$$

同样，对 (2.4-12) 式有

$$\begin{aligned} &[[R_\mu, R_\sigma(t_1)], R_\beta(t_2)] \\ &= [[\sum_m \hat{R}_{m\mu}, \sum_m R_{m\sigma}(t_1)], \sum_m \hat{R}_{m\beta}(t_2)] \\ &= \sum_m [[[\hat{R}_{m\mu}, R_{m\sigma}(t_1)], \hat{R}_{m\beta}(t_2)]]; \end{aligned} \quad (2.4-16)$$

所以对第 r 阶电极化率张量元素表示式有

$$\begin{aligned} &[[\cdots[[\hat{R}_\mu, \hat{R}_{\sigma_1}(t_1)], R_{\sigma_2}(t_2)], \cdots], \hat{R}_{\sigma_r}(t_r)] \\ &= \sum_{m=1}^N [[\cdots [[\hat{R}_{m\mu}, \hat{R}_{m\sigma_1}(t_1)], \hat{R}_{m\sigma_2}(t_2)], \cdots], \hat{R}_{m\sigma_r}(t_r)]. \end{aligned} \quad (2.4-17)$$

式中 $[[\cdots[[\hat{R}_{m\mu}, R_{m\sigma_1}(t_1)], \hat{R}_{m\sigma_2}(t_2)], \cdots], R_{m\sigma_r}(t_r)]$ 是单个分子电偶极矩算符的 r 阶换位子。(2.4-17) 式表示整个粒子体系的电偶极矩算符的 r 阶换位子等于单个分子电偶极矩算符的 r 阶换位子之和。由此可见，对独立分子体系来说，其电极化率张量元素公式中的迹，不管哪一阶，都有如下的形式：

$$F = \text{tr}\{\hat{\rho}_0 \sum_m \hat{C}_m\}. \quad (2.4-18)$$

对一阶电极化率张量元素，有

$$\hat{C}_m = [R_{m\mu}, \hat{R}_{m\sigma}(t_1)];$$

对二阶电极化率张量元素，有

$$\hat{C}_m = [[R_{m\mu}, \hat{R}_{m\sigma}(t_1)], R_{m\beta}(t_2)].$$

总之， \hat{C}_m 表示与第 m 个分子相联系的电偶极矩算符的一个多重换位子。也就是说， \hat{C}_m 是一个与第 m 个分子相联系的算符。

为得到独立分子体系的电极化率张量元素的具体表示式，我们必须计算 (2.4-18) 式形式的迹。对于迹的计算，我们知道可以在任何表象中进行。因为在这里我们假定分子是不可区分的、独立的，在这种情况下比较方便地利用如下的表象，在这表象中多分子体系的波函数用单个分子的波函数的乘积来表示。

若假定 \mathbf{r}_m 表示第 m 个分子的所有内部坐标（假定质心是静止的）， $\{u(\alpha, \mathbf{r}_m)\}$ 表示第 m

个分子 a 表象的分子波函数集合 (a 表示集合中不同成员的一种符号)。亦即

第一个分子的波函数集合为 $\{u(a_1, r_1)\}$;

第二个分子的波函数集合为 $\{u(a_2, r_2)\}$;

⋮

第 M 个分子的波函数集合为 $\{u(a_M, r_M)\}$ 。

则整个分子集合的表象便可由如下—组波函数乘积

$$\{\Phi_A\} = \{u(a_1, r_1)u(a_2, r_2)\cdots u(a_m, r_m)\cdots u(a_M, r_M)\} \quad (2.4-19)$$

给出。式中 A 表示单分子符号 a_1, a_2, \dots, a_M 的集合, 每一个符号 a_m 包括单分子波函数集合中所有可能的成员。

现在我们可以利用(2.4-19)式来计算(2.4-18)式的迹了。因为迹是矩阵的对角元素之和, 所以有

$$\begin{aligned} F &= \text{tr}\{\hat{\rho}_0 \sum_m C_m\} \\ &= \sum_A \int d\tau_1 \int d\tau_2 \cdots \\ &\quad \times \int \Phi_A^* \hat{\rho}_1 \hat{\rho}_2 \cdots \hat{\rho}_M \left(\sum_m \hat{C}_m \Phi_A \right) d\tau_m. \end{aligned} \quad (2.4-20)$$

式中 $d\tau_m$ 表示在第 m 个分子所占有的空间内的体积元。

因为单个分子密度算符是互相对易的, 所以(2.4-20)式变为

$$\begin{aligned} F &= \sum_A \int d\tau_1 \int d\tau_2 \cdots \int d\tau_M \Phi_A^* \hat{\rho}_1 \hat{\rho}_2 \cdots \hat{\rho}_M \sum_m \hat{C}_m \Phi_A \\ &= \sum_m \sum_A \int d\tau_1 \int d\tau_2 \cdots \int d\tau_M \Phi_A^* \hat{\rho}_1 \hat{\rho}_2 \cdots \hat{\rho}_M \hat{C}_m \Phi_A \\ &= \sum_m \sum_A \left[\int d\tau_1 u^*(a_1, r_1) \hat{\rho}_1 u(a_1, r_1) \right. \\ &\quad \times \int d\tau_2 u^*(a_2, r_2) \hat{\rho}_2 u(a_2, r_2) \\ &\quad \vdots \\ &\quad \times \int d\tau_m u^*(a_m, r_m) \hat{\rho}_m \hat{C}_m u(a_m, r_m) \\ &\quad \vdots \\ &\quad \left. \times \int d\tau_M u^*(a_M, r_M) \hat{\rho}_M u(a_M, r_M) \right]. \end{aligned} \quad (2.4-21)$$

其中形式为

$$\int u^*(a_n, r_n) \hat{\rho}_n u(a_n, r_n) d\tau_n \quad (2.4-22)$$

的积分是第 n 个分子的单分子密度算符的对角矩阵元。

所以, 如暂时不考虑(2.4-21)式中的求和 \sum_m , \sum_A 就有 a^M 项, 每一项有 $(M-1)$ 个形式

为(2.4-22)式的积分和一个形式为

$$\int u^*(u_m, r_m) \rho_m C_m u(u_m, r_m) d\tau_m \quad (2.4-23)$$

的积分的乘积。这样，(2.4-21)式变为

$$F = \sum_m \text{tr}\{\rho_1\} \text{tr}\{\rho_2\} \cdots \text{tr}\{\hat{C}_m \rho_m\} \text{tr}\{\hat{\rho}_m\}. \quad (2.4-24)$$

式中

$$\text{tr}\{\rho_n\} = \sum_{\alpha_n} \int u^*(u_n, r_n) \hat{\rho}_n u(u_n, r_n) d\tau_n. \quad (2.4-25)$$

因为假定分子是全同的，并且取向是相同的，应有

$$\text{tr}\{\hat{\rho}_1\} = \text{tr}\{\hat{\rho}_2\} = \cdots = \text{tr}\{\hat{\rho}_m\} = \cdots = \text{tr}\{\hat{\rho}_M\}. \quad (2.4-26)$$

所以代入(2.4-24)式后，得

$$F = M[\text{tr}\{\hat{\rho}_1\}]^{M-1} \text{tr}\{\hat{\rho}_1 \hat{C}_1\}. \quad (2.4-27)$$

上式已利用第一个分子代替了所有其它分子。

下面，我们进一步对单分子密度算符归一化。因为(2.4-18)式对任何的 \hat{C}_m 都成立，所以可首先在假定 \hat{C}_m 为某一个值时确定 F 值，然后由(2.4-27)式确定 $\text{tr}\{\hat{\rho}_1\}$ ，最后再对任何 \hat{C}_m 去确定迹 F 。例如我们可先假定 $C_m = 1/M$ ，则按(2.4-18)式有

$$F = \text{tr}\left\{\hat{\rho}_0 M \cdot \frac{1}{M}\right\} = \text{tr}\{\rho_0\} = 1.$$

这里已利用了(2.1-38)式。然后由(2.4-27)式

$$F = 1 = M[\text{tr}\{\hat{\rho}_1\}]^{M-1} \text{tr}\{\hat{\rho}_1 \hat{C}_1\} = [\text{tr}\{\hat{\rho}_1\}]^M$$

可确定

$$\text{tr}\{\rho_1\} = 1,$$

这表示，单分子密度算符 $\hat{\rho}_1$ 是归一化的。因而对任意的 \hat{C}_m 来说，有

$$\begin{aligned} F &= M[\text{tr}\{\hat{\rho}_1\}]^{M-1} \text{tr}\{\hat{\rho}_1 \hat{C}_1\} \\ &= M \text{tr}\{\hat{\rho}_1 \hat{C}_1\}. \end{aligned} \quad (2.4-28)$$

由此可见，为计算不可区分的、独立的分子系统所组成的介质的电极化率张量表示式中的迹，只要计算单分子的 $\text{tr}\{\hat{\rho}_1 \hat{C}_1\}$ 即可。其中 $\hat{\rho}_1$ 是单分子密度算符， \hat{C}_1 是相应的单个分子的多重换位子算符。

3. 单个分子的迹 $\text{tr}\{\hat{\rho}_1 \hat{C}_1\}$ 的表示式

以上我们用 \hat{H}_0 、 $\hat{\rho}_0$ 和 \hat{R} 分别表示多粒子系统的未微扰哈密顿算符、热平衡密度算符和电偶极矩算符， $\hat{U}_0(t)$ 和 $\hat{R}(t)$ 分别表示多粒子系统的未微扰与时间有关的么正算符和相互作用表象中的电偶极矩算符。但从现在起，我们用它们来表示单个分子的相应的量。

由(2.4-28)式可知，要计算迹 $\text{tr}\{\hat{\rho}_1 \hat{C}_1\}$ ，需要给出 $\hat{\rho}_1$ 和 \hat{C}_1 的矩阵元，这就涉及到用什么表象的问题。因为表象的选择是任意的，为计算方便起见，可以利用能量表象。在能量表象中，我们上面所引入的单分子表象 $u(a, r)$ 中的 $u(a, r)$ 是 \hat{H}_0 的本征函数，相应的能量本征值为 E_a ，它们由本征方程

$$\hat{H}_0 u(a, \mathbf{r}) = E_a u(a, \mathbf{r}) \quad (2.4-29)$$

确定。

利用能量表象的优点是：凡是哈密顿 \hat{H}_0 的函数的算符，在这表象中都是对角化的。所以，对密度算符来说有

$$\begin{aligned} [\rho_0]_{ba} &= \int u^*(b, \mathbf{r}) \hat{\rho}_0 u(a, \mathbf{r}) d\tau \\ &= \int u^*(b, \mathbf{r}) A' \exp(-\hat{H}_0/KT) u(a, \mathbf{r}) d\tau \\ &= A' \exp(-E_a/KT) \int u^*(b, \mathbf{r}) u(a, \mathbf{r}) d\tau \\ &= A' \exp(-E_a/KT) \delta_{ab} \\ &= \rho_{aa}^0 \delta_{ab} \end{aligned} \quad (2.4-30)$$

式中

$$\rho_{aa}^0 = A' \exp(-E_a/KT) \quad (2.4-31)$$

又利用(2.2-19)式和(2.1-12)式， $\hat{U}_0(t)$ 的矩阵元素

$$\begin{aligned} [\hat{U}_0(t)]_{ab} &= \int u^*(a, \mathbf{r}) \hat{U}_0(t) u(b, \mathbf{r}) d\tau \\ &= \int u^*(a, \mathbf{r}) \exp(-i\hat{H}_0 t/\hbar) u(b, \mathbf{r}) d\tau \\ &= \int u^*(a, \mathbf{r}) \exp(-iE_a t/\hbar) u(b, \mathbf{r}) d\tau \\ &= \exp(-iE_a t/\hbar) \delta_{ab} \end{aligned} \quad (2.4-32)$$

同理有

$$[\hat{U}_0(t)]_{ba} = \exp(-iE_b t/\hbar) \delta_{ab} \quad (2.4-33)$$

现利用(2.4-32)式和(2.4-33)式可以得到

$$\begin{aligned} [\hat{R}_\alpha(t)]_{ab} &= [\hat{U}_0(-t) R_\alpha \hat{U}_0(t)]_{ab} \\ &= \sum_c \sum_d [\hat{U}_0(-t)]_{ac} R_{cd}^\alpha [\hat{U}_0(t)]_{db} \\ &= \sum_c \sum_d \exp(iE_c t/\hbar) \delta_{ac} R_{cd}^\alpha \exp(-iE_d t/\hbar) \delta_{db} \end{aligned}$$

显然，只有 $c=a$, $d=b$ 时， $[\hat{R}_\alpha(t)]_{ab}$ 才不为零，故

$$\begin{aligned} [\hat{R}_\alpha(t)]_{ab} &= \exp(iE_a t/\hbar) R_{ab}^\alpha \exp(-iE_b t/\hbar) \\ &= \exp[iE_c (a - E_b) t/\hbar] R_{ab}^\alpha \\ &= \exp[i\omega_{ab} t] R_{ab}^\alpha \end{aligned} \quad (2.4-34)$$

式中 R_{ab}^α 是电偶极矩分量 \hat{R}_α 算符的第 ab 个矩阵元素（第 a 行和第 b 列相交处的矩阵元素）， $\hbar\omega_{ab}$ 是两个态 a 和 b 之间的能量差。现在我们可以给出各阶电极化率张量元素公式中的迹的表示式了。

一阶电极化率张量元素公式中的迹，

根据(2.3-21)式

$$\begin{aligned}
\text{tr}\{\hat{\rho}_0\hat{C}\} &= \text{tr}\{\hat{\rho}_0[\hat{R}_\mu, \hat{R}_\alpha(t_1)]\} \\
&= \text{tr}\{\hat{\rho}_0\hat{R}_\mu\hat{R}_\alpha(t_1) - \hat{\rho}_0\hat{R}_\alpha(t_1)\hat{R}_\mu\} \\
&= \sum_a [\hat{\rho}_0\hat{R}_\mu R_\alpha(t_1) - \hat{\rho}_0\hat{R}_\alpha(t_1)\hat{R}_\mu]_{aa} \\
&= \sum_a \sum_{a'} \sum_b \{[\hat{\rho}_0]_{aa'}\delta_{aa'}(\hat{R}_\mu)_{a'b}[\hat{R}_\alpha(t_1)]_{ba} \\
&\quad - [\hat{\rho}_0]_{aa'}\delta_{aa'}[\hat{R}_\alpha(t_1)]_{a'b}(\hat{R}_\mu)_{ba}\}.
\end{aligned}$$

显然，只有 $a' = a$ 时，上式才不为零，所以

$$\begin{aligned}
\text{tr}\{\hat{\rho}_0\hat{C}\} &= \sum_{ab} [(\hat{\rho}_0)_{aa}R_{ab}^a \exp(i\omega_{ba}t_1)R_{ba}^a - (\hat{\rho}_0)_{aa}R_{ab}^a \exp(i\omega_{ab}t_1)R_{ba}^a] \\
&= \sum_{ab} \rho_{aa}^0 \{R_{ab}^a R_{ba}^a \exp(-i\omega_{ab}t_1) - R_{ab}^a R_{ba}^a \exp(i\omega_{ab}t_1)\}, \quad (2.4-35)
\end{aligned}$$

式中末行表达式已用 ρ_{aa}^0 代替了 $(\hat{\rho}_0)_{aa}$ ， R_{ab}^a 代替了 $(\hat{R}_\mu)_{ab}$ ， (R_{aa}^a) 代替了 $(\hat{R}_\alpha)_{ba}$ ，……。

二阶电极化率张量元素公式中的迹：

$$\begin{aligned}
\text{tr}\{\hat{\rho}_0\hat{C}\} &= \text{tr}\{\hat{\rho}_0[[\hat{R}_\mu, \hat{R}_\alpha(t_1)], \hat{R}_\beta(t_2)]\} \\
&= \text{tr}\{\hat{\rho}_0[\hat{R}_\mu\hat{R}_\alpha(t_1)\hat{R}_\beta(t_2) - \hat{R}_\alpha(t_1)\hat{R}_\mu\hat{R}_\beta(t_2) \\
&\quad + \hat{R}_\beta(t_2)\hat{R}_\alpha(t_1)\hat{R}_\mu - \hat{R}_\beta(t_2)\hat{R}_\mu\hat{R}_\alpha(t_1)]\}, \\
&= \sum_a \{ \hat{\rho}_0[\hat{R}_\mu\hat{R}_\alpha(t_1)\hat{R}_\beta(t_2) - \hat{R}_\alpha(t_1)\hat{R}_\mu\hat{R}_\beta(t_2) \\
&\quad + \hat{R}_\beta(t_2)\hat{R}_\alpha(t_1)\hat{R}_\mu - \hat{R}_\beta(t_2)\hat{R}_\mu\hat{R}_\alpha(t_1)]_{aa} \} \\
&= \sum_{abc} \rho_{aa}^0 \{ R_{ab}^a R_{bc}^a R_{ca}^a \exp[i(\omega_{ba}t_1 + \omega_{ca}t_2)] \\
&\quad - R_{ab}^a R_{bc}^a R_{ca}^a \exp[i(\omega_{ab}t_1 + \omega_{ca}t_2)] \\
&\quad + R_{ab}^a R_{bc}^a R_{ca}^a \exp[i(\omega_{ab}t_2 + \omega_{bc}t_1)] \\
&\quad - R_{ab}^a R_{bc}^a R_{ca}^a \exp[i(\omega_{ab}t_2 + \omega_{ca}t_1)] \}. \quad (2.4-36)
\end{aligned}$$

利用相同的方法亦可求得三阶电极化率张量元素表示式中的迹：

$$\begin{aligned}
\text{tr}\{\hat{\rho}_0\hat{C}\} &= \sum_{abcd} \rho_{aa}^0 \{ R_{ab}^a R_{bc}^a R_{cd}^a R_{da}^a \exp(i(\omega_{bc}t_1 + \omega_{cd}t_2 + \omega_{da}t_3)) \\
&\quad - R_{ab}^a R_{bc}^a R_{cd}^a R_{da}^a \exp(i(\omega_{ab}t_1 + \omega_{cd}t_2 + \omega_{da}t_3)) \\
&\quad - R_{ab}^a R_{bc}^a R_{cd}^a R_{da}^a \exp(i(\omega_{ab}t_2 + \omega_{cd}t_1 + \omega_{da}t_3)) \\
&\quad + R_{ab}^a R_{bc}^a R_{cd}^a R_{da}^a \exp(i(\omega_{ab}t_2 + \omega_{bc}t_1 + \omega_{da}t_3)) \\
&\quad - R_{ab}^a R_{bc}^a R_{cd}^a R_{da}^a \exp(i(\omega_{ab}t_3 + \omega_{cd}t_1 + \omega_{da}t_2)) \\
&\quad + R_{ab}^a R_{bc}^a R_{cd}^a R_{da}^a \exp(i(\omega_{ab}t_3 + \omega_{bc}t_1 + \omega_{da}t_2)) \\
&\quad + R_{ab}^a R_{bc}^a R_{cd}^a R_{da}^a \exp(i(\omega_{ab}t_3 + \omega_{bc}t_2 + \omega_{da}t_1)) \}
\end{aligned}$$

$$-R_{ab}^r R_{bc}^s R_{cd}^t R_{da}^u \exp\{i(\omega_{ab}t_1 + \omega_{bc}t_2 + \omega_{cd}t_1)\}. \quad (2.4-37)$$

因为通常只需考虑到三阶非线性电极化的效应，故从实际考虑，我们只讨论到三阶非线性电极化率张量元素的表示式。当然，对于更高阶的电极化率张量元素表示式中的迹也可以按上述方法求得。

4. 电极化率张量元素的表示式

因为(2.3-21)式的一阶电极化率张量元素 $\chi_{\mu\alpha}^{(1)}(\omega)$ 是对整个分子系统而言的，所以根据(2.4-28)式， $\chi_{\mu\alpha}^{(1)}(\omega)$ 的表示式可以改写为

$$\chi_{\mu\alpha}^{(1)}(\omega) = -\frac{1}{\epsilon_0} M (iV\hbar)^{-1} \int_{-\infty}^0 \text{tr}\{\hat{\rho}_0(\hat{R}_\mu, \hat{R}_\alpha(t_1))\} \\ \times \exp(-i\omega t) dt_1.$$

将(2.4-35)式代入上式后，有

$$\chi_{\mu\alpha}^{(1)}(\omega) = -\frac{1}{\epsilon_0} n (i\hbar)^{-1} \int_{-\infty}^0 \left\{ \sum_{a,b} \rho_{aa}^0 R_{ab}^\mu R_{ba}^\alpha \exp(-i(\omega + \omega_{ab})t_1) \right. \\ \left. - \sum_{a,b} \rho_{aa}^0 R_{ab}^\alpha R_{ba}^\mu \exp(-i(\omega - \omega_{ab})t_1) \right\} dt_1. \quad (2.4-38)$$

式中

$$n = \frac{M}{V}$$

是分子密度。在(2.4-38)式作出积分后得

$$\chi_{\mu\alpha}^{(1)}(\omega) = -\frac{1}{\epsilon_0} n (i\hbar)^{-1} \sum_{a,b} \rho_{aa}^0 \left\{ R_{ab}^\mu R_{ba}^\alpha \frac{\exp[-i(\omega + \omega_{ab})t_1]}{-i(\omega + \omega_{ab})} \Big|_{-\infty}^0 \right. \\ \left. - R_{ab}^\alpha R_{ba}^\mu \frac{\exp[-i(\omega - \omega_{ab})t_1]}{-i(\omega - \omega_{ab})} \Big|_{-\infty}^0 \right\}.$$

式中的频率 ω_{ab} 是实数。由此可见，当 ω 是实数时， $\chi_{\mu\alpha}^{(1)}(\omega)$ 不是收敛的。但当频率 ω 取在上半个复数频率平面内时，积分则是收敛的（这与讨论(1.1-15)式时的结论是一致的）。在这种情况下，积分的最后结果为

$$\chi_{\mu\alpha}^{(1)}(\omega) = -\frac{n}{\epsilon_0 \hbar} \sum_{a,b} \rho_{aa}^0 \left[\frac{R_{ab}^\mu R_{ba}^\alpha}{\omega + \omega_{ab}} - \frac{R_{ab}^\alpha R_{ba}^\mu}{\omega - \omega_{ab}} \right]. \quad (2.4-39)$$

这就是我们所要求的一阶电极化率张量元素的表示式。

对二阶电极化率张量元素 $\chi_{\mu\alpha\beta}^{(2)}(\omega_1, \omega_2)$ 来说，将(2.4-36)式代入(2.3-32)式，并考虑到 $n = M/V$ ，则(2.3-32)式为

$$\chi_{\mu\alpha\beta}^{(2)}(\omega_1, \omega_2) = \frac{\hat{S}}{2} \frac{n}{\epsilon_0} (-i\hbar)^{-2} \int_{-\infty}^0 dt_1 \int_{-\infty}^{t_1} \text{tr}\{\hat{\rho}_0((\hat{R}_\mu, \hat{R}_\alpha(t_1)), \hat{R}_\beta(t_2))\} \\ \times \exp(-i(\omega_1 t_1 + \omega_2 t_2)) dt_2 \\ = \frac{\hat{S}}{2} \frac{n}{\epsilon_0} (-i\hbar)^{-2} \int_{-\infty}^0 dt_1 \int_{-\infty}^{t_1} \exp(-i(\omega_1 t_1 + \omega_2 t_2))$$

$$\begin{aligned}
& \times \sum_{abc} \rho_{aa}^0 \{ R_{ab}^\mu R_{bc}^\alpha R_{ca}^\beta \exp[i(\omega_{bc}t_1 + \omega_{ca}t_2)] \\
& \quad \cdot R_{ab}^\alpha R_{bc}^\mu R_{ca}^\beta \exp[i(\omega_{ab}t_1 + \omega_{ca}t_2)] \\
& \quad + R_{ab}^\mu R_{bc}^\alpha R_{ca}^\beta \exp[i(\omega_{ab}t_2 + \omega_{bc}t_1)] \\
& \quad - R_{ab}^\alpha R_{bc}^\mu R_{ca}^\beta \exp[i(\omega_{ab}t_2 + \omega_{ca}t_1)] \} dt_2 \\
= & \frac{\hat{S}}{2} \cdot \frac{n}{\epsilon_0} (-i\hbar)^{-2} \sum_{abc} \rho_{aa}^0 \\
& \times \left\{ \frac{R_{ab}^\mu R_{bc}^\alpha R_{ca}^\beta}{[i(\omega_2 - \omega_{ca})][i(\omega_2 - \omega_{ca} - \omega_{bc} + \omega_1)]} \right. \\
& - \frac{R_{ab}^\alpha R_{bc}^\mu R_{ca}^\beta}{[i(\omega_2 - \omega_{ca})][i(\omega_2 - \omega_{ca} - \omega_{ab} + \omega_1)]} \\
& - \frac{R_{ab}^\mu R_{bc}^\alpha R_{ca}^\beta}{[i(\omega_2 - \omega_{ab})][i(\omega_2 + \omega_1 - \omega_{ab} - \omega_{ca})]} \\
& \left. + \frac{R_{ab}^\alpha R_{bc}^\mu R_{ca}^\beta}{[i(\omega_2 - \omega_{ab})][i(\omega_2 + \omega_1 - \omega_{ab} - \omega_{bc})]} \right\}.
\end{aligned}$$

利用关系

$$\begin{aligned}
\omega_{ba} &= -\omega_{ab} \\
\omega_{ab} + \omega_{bc} &= \omega_{ac}
\end{aligned}$$

及

则上式变为

$$\begin{aligned}
\chi_{\mu\alpha\beta}^{(\alpha\beta)}(\omega_1, \omega_2) = & \frac{\hat{S}}{2} \cdot \frac{n}{\epsilon_0 \hbar^2} \sum_{abc} \rho_{aa}^0 \left\{ \frac{R_{ab}^\mu R_{bc}^\alpha R_{ca}^\beta}{(\omega_2 + \omega_{ac})(\omega_1 + \omega_2 + \omega_{ab})} \right. \\
& - \frac{R_{ab}^\alpha R_{bc}^\mu R_{ca}^\beta}{(\omega_2 + \omega_{ac})(\omega_1 + \omega_2 + \omega_{bc})} - \frac{R_{ab}^\mu R_{bc}^\alpha R_{ca}^\beta}{(\omega_2 + \omega_{ba})(\omega_1 + \omega_2 + \omega_{bc})} \\
& \left. + \frac{R_{ab}^\alpha R_{bc}^\mu R_{ca}^\beta}{(\omega_2 + \omega_{ba})(\omega_1 + \omega_2 + \omega_{ca})} \right\}. \quad (2.4-40)
\end{aligned}$$

因为在上式中含有对称化算符 \hat{S} , 对二阶电极化率张量来说, \hat{S} 表示对配对 (α, ω_1) 和 (β, ω_2) 的可能对易求和。因此, 式中任何一项在 (α, ω_1) 和 (β, ω_2) 的对易下, 并不影响最后的结果。现在, 如将 (2.4-40) 式第三项中的 (α, ω_1) 和 (β, ω_2) 进行对易, 并与第二项相加, 有

$$\begin{aligned}
- \frac{R_{ab}^\mu R_{bc}^\alpha R_{ca}^\beta}{(\omega_2 + \omega_{ac})(\omega_1 + \omega_2 + \omega_{bc})} - \frac{R_{ab}^\alpha R_{bc}^\mu R_{ca}^\beta}{(\omega_1 + \omega_{ba})(\omega_1 + \omega_2 + \omega_{bc})} \\
= - \frac{R_{ab}^\mu R_{bc}^\alpha R_{ca}^\beta}{(\omega_2 + \omega_{ac})(\omega_1 + \omega_{ba})}.
\end{aligned}$$

所以最后求得二阶电极化率张量元素

$$\chi_{\mu\alpha\beta}^{(\alpha\beta)}(\omega_1, \omega_2) = \frac{\hat{S}}{2} \cdot \frac{n}{\epsilon_0 \hbar^2} \sum_{abc} \rho_{aa}^0 \left\{ \frac{R_{ab}^\mu R_{bc}^\alpha R_{ca}^\beta}{(\omega_{ab} + \omega_1 + \omega_2)(\omega_{ac} + \omega_2)} \right.$$

$$+ \left. \left\{ \frac{R_{ab}^{\alpha} R_{bc}^{\beta} R_{ca}^{\gamma}}{(\omega_{ab} - \omega_1)(\omega_{ac} + \omega_2)} + \frac{R_{ab}^{\alpha} R_{bc}^{\beta} R_{ca}^{\gamma}}{(\omega_{ab} - \omega_1)(\omega_{ac} - \omega_1 - \omega_2)} \right\}. \quad (2.4-41)$$

关于三阶电极化率张量元素，可采用与上述求得 $\chi_{\mu\alpha}^{(1)}(\omega)$ 和 $\chi_{\mu\alpha\beta}^{(2)}(\omega_1, \omega_2)$ 的相同的方法和步骤获得。由 (2.3-33) 式和 (2.4-37) 式可得

$$\begin{aligned} \chi_{\mu\alpha\beta\gamma}^{(3)}(\omega_1, \omega_2, \omega_3) = & \frac{S n}{3! \epsilon_0 \hbar^3} \sum_{abcd} \rho_{abcd}^0 \\ & \times \left\{ \frac{R_{ab}^{\mu} R_{bc}^{\alpha} R_{cd}^{\beta} R_{da}^{\gamma}}{(\omega_2 + \omega_{ad})(\omega_2 + \omega_3 + \omega_{ac})(\omega_1 + \omega_2 + \omega_3 + \omega_{ab})} \right. \\ & + \frac{R_{ab}^{\alpha} R_{bc}^{\beta} R_{cd}^{\gamma} R_{da}^{\mu}}{(\omega_3 + \omega_{ad})(\omega_2 + \omega_3 + \omega_{ac})(\omega_1 + \omega_2 + \omega_3 + \omega_{bc})} \\ & + \frac{R_{ab}^{\beta} R_{bc}^{\alpha} R_{cd}^{\gamma} R_{da}^{\mu}}{(\omega_3 + \omega_{ad})(\omega_2 + \omega_3 + \omega_{bd})(\omega_1 + \omega_2 + \omega_3 + \omega_{bc})} \\ & - \frac{R_{ab}^{\beta} R_{bc}^{\alpha} R_{cd}^{\mu} R_{da}^{\gamma}}{(\omega_3 + \omega_{ad})(\omega_2 + \omega_3 + \omega_{bd})(\omega_1 + \omega_2 + \omega_3 + \omega_{ca})} \\ & + \frac{R_{ab}^{\gamma} R_{bc}^{\alpha} R_{cd}^{\beta} R_{da}^{\mu}}{(\omega_3 - \omega_{ab})(\omega_2 + \omega_3 + \omega_{bd})(\omega_1 + \omega_2 + \omega_3 + \omega_{bc})} \\ & - \frac{R_{ab}^{\gamma} R_{bc}^{\beta} R_{cd}^{\alpha} R_{da}^{\mu}}{(\omega_3 - \omega_{ab})(\omega_2 + \omega_3 + \omega_{bd})(\omega_1 + \omega_2 + \omega_3 + \omega_{ca})} \\ & - \frac{R_{ab}^{\gamma} R_{bc}^{\beta} R_{cd}^{\mu} R_{da}^{\alpha}}{(\omega_3 - \omega_{ab})(\omega_2 + \omega_3 - \omega_{ac})(\omega_1 + \omega_2 + \omega_3 + \omega_{ca})} \\ & \left. + \frac{R_{ab}^{\gamma} R_{bc}^{\beta} R_{cd}^{\mu} R_{da}^{\alpha}}{(\omega_3 - \omega_{ab})(\omega_2 + \omega_3 - \omega_{ac})(\omega_1 + \omega_2 + \omega_3 - \omega_{ad})} \right\}. \quad (2.4-42) \end{aligned}$$

因为 \hat{S} 是对称化算符，所以 (α, ω_1) ， (β, ω_2) 和 (γ, ω_3) 这三个配对在任意对易下，(2.4-42) 式中任何一项都是不变的。由 (2.4-42) 式可以看出，当第三项作 $(\alpha, \omega_1) \leftrightarrow (\beta, \omega_2)$ 的对易时，第二项和第三项分子相同；当第五项作 $(\gamma, \omega_3) \rightarrow (\alpha, \omega_1)$ ， $(\alpha, \omega_1) \rightarrow (\beta, \omega_2)$ 和 $(\beta, \omega_2) \rightarrow (\gamma, \omega_3)$ 的对易后，其分子又与第二项相同。所以 (2.4-42) 式中的第二项、第三项和第五项相加后有

$$\begin{aligned} & \frac{R_{ab}^{\alpha} R_{bc}^{\beta} R_{cd}^{\gamma} R_{da}^{\mu}}{(\omega_3 + \omega_{ad})(\omega_2 + \omega_3 + \omega_{ac})(\omega_1 + \omega_2 + \omega_3 + \omega_{bc})} \\ & + \frac{R_{ab}^{\alpha} R_{bc}^{\mu} R_{cd}^{\beta} R_{da}^{\gamma}}{(\omega_3 + \omega_{ad})(\omega_1 + \omega_3 + \omega_{bd})(\omega_1 + \omega_2 + \omega_3 + \omega_{bc})} \\ & + \frac{R_{ab}^{\alpha} R_{bc}^{\mu} R_{cd}^{\gamma} R_{da}^{\beta}}{(\omega_1 - \omega_{ab})(\omega_1 + \omega_3 + \omega_{bd})(\omega_1 + \omega_2 + \omega_3 + \omega_{bc})} \\ & - \frac{R_{ab}^{\alpha} R_{bc}^{\gamma} R_{cd}^{\beta} R_{da}^{\mu}}{(\omega_1 - \omega_{ab})(\omega_3 + \omega_{ad})(\omega_{ac} + \omega_2 + \omega_3)} \end{aligned} \quad (2.4-43)$$

依照同样的道理，若(2.4-42)式中第四项作 $(\alpha, \omega_1) \leftrightarrow (\beta, \omega_2)$ 的对易，第六项作 $(\gamma, \omega_3) \rightarrow (\alpha, \omega_1)$ ， $(\alpha, \omega_1) \rightarrow (\beta, \omega_2)$ 和 $(\beta, \omega_2) \rightarrow (\gamma, \omega_3)$ 的对易，第七项作 $(\gamma, \omega_3) \leftrightarrow (\alpha, \omega_1)$ 的对易，则三项相加后得

$$\begin{aligned}
 & - \frac{R_{ab}^{\beta} R_{bc}^{\alpha} R_{cd}^{\beta} R_{da}^{\gamma}}{(\omega_3 + \omega_{ad})(\omega_2 + \omega_3 + \omega_{bd})(\omega_1 + \omega_2 + \omega_3 + \omega_{cd})} \\
 & - \frac{R_{ab}^{\gamma} R_{bc}^{\alpha} R_{cd}^{\beta} R_{da}^{\beta}}{(\omega_3 - \omega_{ab})(\omega_2 + \omega_3 + \omega_{bd})(\omega_1 + \omega_2 + \omega_3 + \omega_{cd})} \\
 & - \frac{R_{ab}^{\gamma} R_{bc}^{\beta} R_{cd}^{\alpha} R_{da}^{\alpha}}{(\omega_3 - \omega_{ab})(\omega_2 + \omega_3 - \omega_{ac})(\omega_1 + \omega_2 + \omega_3 + \omega_{cd})} \\
 = & - \frac{R_{ab}^{\alpha} R_{bc}^{\beta} R_{cd}^{\alpha} R_{da}^{\gamma}}{(\omega_3 + \omega_{ad})(\omega_1 - \omega_{ab})(\omega_1 + \omega_2 - \omega_{ac})} \quad (2.4-44)
 \end{aligned}$$

将(2.4-43)式和(2.4-44)式代入(2.4-42)式后，便得到三阶电极化率张量元素的表式

$$\begin{aligned}
 \chi_{\mu\alpha}^{\{\beta\}} \chi_{\beta\gamma}^{\{\alpha\}}(\omega_1, \omega_2, \omega_3) = & \frac{\hat{S}}{3! \epsilon_0} \frac{n}{\hbar^3} \sum_{abcd} \rho_{aa}^0 \\
 & \times \left\{ - \frac{R_{ab}^{\mu} R_{bc}^{\alpha} R_{cd}^{\beta} R_{da}^{\gamma}}{(\omega_3 + \omega_{ad})(\omega_2 + \omega_3 + \omega_{ac})(\omega_1 + \omega_2 + \omega_3 + \omega_{ab})} \right. \\
 & - \frac{R_{ab}^{\alpha} R_{bc}^{\mu} R_{cd}^{\beta} R_{da}^{\gamma}}{(\omega_{ab} - \omega_1)(\omega_2 + \omega_3 + \omega_{ac})(\omega_{ad} + \omega_3)} \\
 & - \frac{R_{ab}^{\alpha} R_{bc}^{\beta} R_{cd}^{\mu} R_{da}^{\gamma}}{(\omega_{ab} - \omega_1)(\omega_{ac} - \omega_1 - \omega_2)(\omega_{ad} + \omega_3)} \\
 & \left. - \frac{R_{ab}^{\mu} R_{bc}^{\beta} R_{cd}^{\alpha} R_{da}^{\gamma}}{(\omega_{ab} - \omega_1)(\omega_{ac} - \omega_1 - \omega_2)(\omega_{ad} - \omega_1 - \omega_2 - \omega_3)} \right\} \quad (2.4-45)
 \end{aligned}$$

5. 求任意阶电极化率张量元素表示式的费曼(Feynman)图示法^[13]

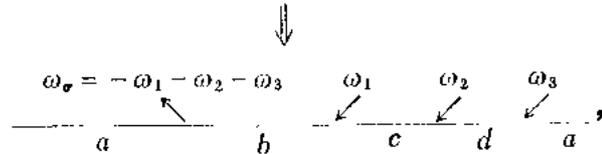
首先将(2.4-45)式改写为

$$\begin{aligned}
 \chi_{\mu\alpha}^{\{\beta\}} \chi_{\beta\gamma}^{\{\alpha\}}(\omega_1, \omega_2, \omega_3) = & \frac{\hat{S}}{3! \epsilon_0} \frac{n}{\hbar^3} \sum_{abcd} \rho_{aa}^0 \left\{ \frac{R_{ab}^{\mu} R_{bc}^{\alpha} R_{cd}^{\beta} R_{da}^{\gamma}}{(\omega_{ba} - \omega_1 - \omega_2 - \omega_3)(\omega_{ca} - \omega_2 - \omega_3)(\omega_{da} - \omega_3)} \right. \\
 & + \frac{R_{ab}^{\alpha} R_{bc}^{\mu} R_{cd}^{\beta} R_{da}^{\gamma}}{(\omega_{ba} + \omega_1)(\omega_{ca} - \omega_2 - \omega_3)(\omega_{da} - \omega_3)} + \frac{R_{ab}^{\alpha} R_{bc}^{\beta} R_{cd}^{\mu} R_{da}^{\gamma}}{(\omega_{ba} + \omega_1)(\omega_{ca} + \omega_1 + \omega_2)(\omega_{da} - \omega_3)} \\
 & \left. + \frac{R_{ab}^{\alpha} R_{bc}^{\beta} R_{cd}^{\gamma} R_{da}^{\mu}}{(\omega_{ba} + \omega_1)(\omega_{ca} + \omega_1 + \omega_2)(\omega_{da} + \omega_1 + \omega_2 + \omega_3)} \right\} \quad (2.4-46)
 \end{aligned}$$

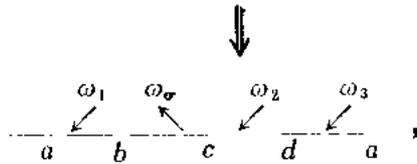
现在，我们用向下的箭头表示正的频率，并对应于光子的湮灭，用向上的箭头表示负的频率，并对应于光子的产生。这样，(2.4-46)式分母中的形式为 $\hbar(\omega_{\beta_n} - \omega_n)$ 的因子，表示

粒子从态 b_n 跃迁到态 a 时, 粒子向辐射场中发射一个频率为 ω_a 的光子。例如(2.4-46)式中 $(\omega_{ba} - \omega_1 - \omega_2 - \omega_3)$ 的因子, 表示粒子从态 b 跃迁到态 a 时, 产生一个频率为 $(\omega_1 + \omega_2 + \omega_3)$ 的光子, 并用向上的箭头表示, 以频率 $\omega_\sigma = -(\omega_1 + \omega_2 + \omega_3)$ 表征。又如 $(\omega_{ca} - \omega_2 - \omega_3)$ 的因子表示粒子从态 c 跃迁到态 a 时, 产生一个频率为 $(\omega_2 + \omega_3)$ 的光子(等价于一个频率为 ω_σ 的光子和一个频率为 ω_1 的光子的能量差)。于是(2.4-46)式求和中的各项可以分别地用如下的费曼图表示

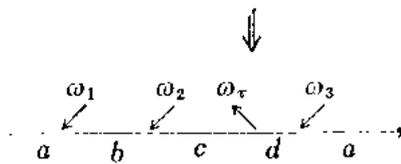
$$\text{第一项} \quad \frac{R_{ab}^\mu R_{bc}^\alpha R_{cd}^\beta R_{da}^\gamma}{(\omega_{ba} - \omega_1 - \omega_2 - \omega_3)(\omega_{ca} - \omega_2 - \omega_3)(\omega_{da} - \omega_3)}$$



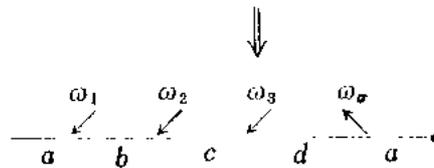
$$\text{第二项} \quad \frac{R_{ab}^\alpha R_{bc}^\mu R_{cd}^\beta R_{da}^\gamma}{(\omega_{ba} + \omega_1)(\omega_{ca} - \omega_2 - \omega_3)(\omega_{da} - \omega_3)}$$



$$\text{第三项} \quad \frac{R_{ab}^\alpha R_{bc}^\beta R_{cd}^\mu R_{da}^\gamma}{(\omega_{ba} + \omega_1)(\omega_{ca} + \omega_1 + \omega_2)(\omega_{da} - \omega_3)}$$



$$\text{第四项} \quad \frac{R_{ab}^\alpha R_{bc}^\beta R_{cd}^\gamma R_{da}^\mu}{(\omega_{ba} + \omega_1)(\omega_{ca} + \omega_1 + \omega_2)(\omega_{da} + \omega_1 + \omega_2 + \omega_3)}$$



仿照上述费曼图的方法, 我们可以立即写出具有两个泵浦的受激超喇曼散射过程的

五阶电极化率张量元素 $\chi_{\mu\alpha_1\alpha_2\alpha_3\alpha_4\alpha_5}^{(5)}(-\omega_s, \omega_{p_1}, \omega_{p_2}, -\omega_{p_2}, -\omega_{p_1}, \omega_s)$ 的表示式为

$$\chi_{\mu\alpha_1\alpha_2\alpha_3\alpha_4\alpha_5}^{(5)}(-\omega_s, \omega_{p_1}, \omega_{p_2}, -\omega_{p_2}, -\omega_{p_1}, \omega_s)$$

$$= \frac{\hat{S}}{5! \epsilon_0 \hbar^5} \sum_{a b c d e f} \rho_{\sigma\alpha}^0$$

$$\begin{aligned}
& \times \left\{ \begin{array}{l}
\omega_s = -\omega_s \quad \omega_{p_1} \quad \omega_{p_2} \quad -\omega_{p_2} \quad -\omega_{p_1} \quad \omega_s \\
\swarrow \quad \searrow \quad \swarrow \quad \searrow \quad \swarrow \quad \searrow \\
a \quad b \quad c \quad d \quad e \quad f \quad a \\
+ \begin{array}{l}
\omega_{p_1} \quad -\omega_s \quad \omega_{p_2} \quad -\omega_{p_2} \quad -\omega_{p_1} \quad \omega_s \\
\swarrow \quad \searrow \quad \swarrow \quad \searrow \quad \swarrow \quad \searrow \\
a \quad b \quad c \quad d \quad e \quad f \quad a \\
+ \begin{array}{l}
\omega_{p_1} \quad \omega_{p_2} \quad -\omega_s \quad -\omega_{p_2} \quad -\omega_{p_1} \quad \omega_s \\
\swarrow \quad \searrow \quad \swarrow \quad \searrow \quad \swarrow \quad \searrow \\
a \quad b \quad c \quad d \quad e \quad f \quad a \\
+ \begin{array}{l}
\omega_{p_1} \quad \omega_{p_2} \quad -\omega_{p_2} \quad -\omega_s \quad -\omega_{p_1} \quad \omega_s \\
\swarrow \quad \searrow \quad \swarrow \quad \searrow \quad \swarrow \quad \searrow \\
a \quad b \quad c \quad d \quad e \quad f \quad a \\
+ \begin{array}{l}
\omega_{p_1} \quad \omega_{p_2} \quad -\omega_{p_2} \quad -\omega_{p_1} \quad -\omega_s \quad \omega_s \\
\swarrow \quad \searrow \quad \swarrow \quad \searrow \quad \swarrow \quad \searrow \\
a \quad b \quad c \quad d \quad e \quad f \quad a \\
+ \begin{array}{l}
\omega_{p_1} \quad \omega_{p_2} \quad -\omega_{p_2} \quad -\omega_{p_1} \quad \omega_s \quad -\omega_s \\
\swarrow \quad \searrow \quad \swarrow \quad \searrow \quad \swarrow \quad \searrow \\
a \quad b \quad c \quad d \quad e \quad f \quad a
\end{array}
\end{array}
\end{array}
\end{array}
\right\} \\
= \frac{\hat{S}}{5! \epsilon_0} \frac{n}{\hbar^6} \sum_{a b c d e f} \rho_a^0 \\
\times \left\{ \begin{array}{l}
\frac{R_{ab}^e R_{bc}^{\alpha_1} R_{cd}^{\alpha_2} R_{de}^{\alpha_3} R_{ef}^{\alpha_4} R_{fa}^{\alpha_5}}{(\omega_{ba} - \omega_s)(\omega_{ca} - \omega_s + \omega_{p_1})(\omega_{da} - \omega_s + \omega_{p_1} + \omega_{p_2})(\omega_{ea} + \omega_{p_1} - \omega_s)(\omega_{fa} - \omega_s)} \\
+ \frac{R_{cb}^{\alpha_1} R_{bc}^e R_{cd}^{\alpha_2} R_{de}^{\alpha_3} R_{ef}^{\alpha_4} R_{fa}^{\alpha_5}}{(\omega_{ba} + \omega_{p_1})(\omega_{ca} - \omega_s + \omega_{p_1})(\omega_{da} - \omega_s + \omega_{p_1} + \omega_{p_2})(\omega_{ea} + \omega_{p_1} - \omega_s)(\omega_{fa} - \omega_s)} \\
+ \frac{R_{ab}^{\alpha_1} R_{bc}^{\alpha_2} R_{cd}^e R_{de}^{\alpha_3} R_{ef}^{\alpha_4} R_{fa}^{\alpha_5}}{(\omega_{ba} + \omega_{p_1})(\omega_{ca} + \omega_{p_1} + \omega_{p_2})(\omega_{da} - \omega_s + \omega_{p_1} + \omega_{p_2})(\omega_{ea} + \omega_{p_1} - \omega_s)(\omega_{fa} - \omega_s)} \\
+ \frac{R_{ab}^{\alpha_1} R_{bc}^{\alpha_2} R_{cd}^{\alpha_3} R_{de}^e R_{ef}^{\alpha_4} R_{fa}^{\alpha_5}}{(\omega_{ba} + \omega_{p_1})(\omega_{ca} + \omega_{p_1} + \omega_{p_2})(\omega_{da} + \omega_{p_1})(\omega_{ea} - \omega_s + \omega_{p_1})(\omega_{fa} - \omega_s)} \\
+ \frac{R_{ab}^{\alpha_1} R_{bc}^{\alpha_2} R_{cd}^{\alpha_3} R_{de}^{\alpha_4} R_{ef}^e R_{fa}^{\alpha_5}}{(\omega_{ba} + \omega_{p_1})(\omega_{ca} + \omega_{p_1} + \omega_{p_2})(\omega_{da} + \omega_{p_1})(\omega_{ea})(\omega_{fa} - \omega_s)} \\
+ \frac{R_{ab}^{\alpha_1} R_{bc}^{\alpha_2} R_{cd}^{\alpha_3} R_{de}^{\alpha_4} R_{ef}^{\alpha_5} R_{fa}^e}{(\omega_{ba} + \omega_{p_1})(\omega_{ca} + \omega_{p_1} + \omega_{p_2})(\omega_{da} + \omega_{p_1})(\omega_{ea})(\omega_{fa} + \omega_s)}
\end{array} \right\} \quad (2.4-47)
\end{aligned}$$

对于任意 r 阶电极化率张量元素 $\chi_{\mu\alpha_1\alpha_2\cdots\alpha_r}^{(r)}$ ($\omega_1, \omega_2, \cdots, \omega_r$) 应有

$$\chi_{\mu\alpha_1\alpha_2\cdots\alpha_r}^{(r)}(\omega_1, \omega_2, \cdots, \omega_r)$$

二

号

李

察

发

$$\begin{aligned}
 & - \frac{S}{r! \epsilon_0} \frac{n}{(\hbar)^r} \sum_{a b_1 b_2 \dots b_r} \rho_{a a}^n \\
 & \times \left\{ \frac{R_{a b_1}^{\alpha} R_{b_1 b_2}^{\alpha_1} R_{b_2 b_3}^{\alpha_2} \dots R_{b_r a}^{\alpha_r}}{(\omega_{b_1 a} - \omega_1 - \omega_2 - \dots - \omega_r) (\omega_{b_2 a} - \omega_2 - \dots - \omega_r) \dots (\omega_{b_r a} - \omega_r)} \right. \\
 & + \frac{R_{a b_1}^{\alpha_1} R_{b_1 b_2}^{\alpha_2} R_{b_2 b_3}^{\alpha_3} \dots R_{b_r a}^{\alpha_r}}{(\omega_{b_1 a} + \omega_1) (\omega_{b_2 a} - \omega_2 - \dots - \omega_r) \dots (\omega_{b_r a} - \omega_r)} \\
 & + \dots \\
 & \left. + \frac{R_{a b_1}^{\alpha_1} R_{b_1 b_2}^{\alpha_2} R_{b_2 b_3}^{\alpha_3} \dots R_{b_r a}^{\alpha_r}}{(\omega_{b_1 a} + \omega_1) (\omega_{b_2 a} + \omega_1 + \omega_2) (\omega_{b_3 a} + \omega_1 + \omega_2 + \omega_3) \dots (\omega_{b_r a} + \dots + \omega_r)} \right\}. \tag{2.4-48}
 \end{aligned}$$

(2.4-48) 式中共有 $r+1$ 项。

五、电极化率张量的完全对易对称性

在第一章的四中我们已初步讨论了电极化率张量的完全对易对称的性质。现在我们可以由上节所导出的电极化率张量元素的具体表示式来说明这种性质。进而将上节所得的表示式改变一下形式，使之能明显地表示出电极化率张量元素的完全对易对称的性质。

1. 一阶电极化率张量元素

由 (2.4-39) 式的一阶电极化率张量元素

$$\chi_{\mu\alpha}^{(1)}(\omega) = \frac{n}{\epsilon_0 \hbar} \sum_{a,b} \rho_{aa}^0 \left[\frac{R_{ab}^{\mu} R_{ba}^{\alpha}}{\omega_{ba} - \omega} + \frac{R_{ab}^{\alpha} R_{ba}^{\mu}}{\omega_{ba} + \omega} \right]$$

可以看出，交换指标 α 和 μ ，并用 $-\omega$ 代替 ω 时，式中第二项可以从第一项求得。即在 $(\alpha, \omega) \leftrightarrow (\mu, -\omega)$ 的情况下，上式右边的结果不变，有

$$\chi_{\mu\alpha}^{(1)}(-\omega) = - \frac{n}{\epsilon_0 \hbar} \sum_{a,b} \rho_{aa}^0 \left[\frac{R_{ab}^{\alpha} R_{ba}^{\mu}}{\omega_{ab} - \omega} + \frac{R_{ab}^{\mu} R_{ba}^{\alpha}}{\omega_{ab} + \omega} \right] = \chi_{\mu\alpha}^{(1)}(\omega). \tag{2.5-1}$$

这就是一阶电极化率张量的完全对易对称性。

为了能够一目了然地表示出完全对易对称性这种性质，我们令 ω_0 表示 $-\omega$ ，并且 ω_0 与指标 μ 相联系，频率 ω 与指标 α 相联系，这样 (2.5-1) 式可简化为如下的形式：

$$\chi_{\mu\alpha}^{(1)}(\omega) = - \frac{n}{\epsilon_0 \hbar} \hat{S}_T \sum_{a,b} \rho_{aa}^0 \left(\frac{R_{ab}^{\alpha} R_{ba}^{\mu}}{\omega_{ab} + \omega} \right). \tag{2.5-2}$$

式中符号 \hat{S}_T 叫做完全对称化算符，它表示对配对 (μ, ω_0) 和 (α, ω) 可能的对易求和。对一阶电极化率张量来说，有两种可能的对易，第一种是恒等对易，即 $(\mu, \omega_0) \rightarrow (\mu, \omega_0)$ ， $(\alpha, \omega) \rightarrow (\alpha, \omega)$ ，在这种对易下，所得到的项是上式括号中的本身，也就是 (2.5-1) 式中的第二项；第二种可能的对易是 $(\mu, \omega_0) \leftrightarrow (\alpha, \omega)$ ，即配对 (μ, ω_0) 与配对 (α, ω)

互换, 这时给出(2.5-1)式中的第一项。

因为 \hat{S}_T 表示对这两种对易求和, 所以有

$$\chi_{\mu\alpha}^{(1)}(\omega) = \chi_{\beta\gamma}^{(1)}(\omega_0) \quad (2.5-3)$$

2. 二阶电极化率张量的完全对易对称性

由(2.4-41)式的二阶电极化率张量元素

$$\chi_{\mu\alpha}^{(2)}(\omega_1, \omega_2) = \frac{\hat{S}_T}{2\epsilon_0\hbar^2} \sum_{a,b,c} \rho_{aa}^0 \left\{ \begin{aligned} & \frac{R_{ab}^\mu R_{bc}^\nu R_{ca}^\lambda}{(\omega_{ab} + \omega_1 + \omega_2)(\omega_{ac} + \omega_2)} \\ & + \frac{R_{ab}^\mu R_{bc}^\nu R_{ca}^\lambda}{(\omega_{ab} - \omega_1)(\omega_{ac} + \omega_2)} - \frac{R_{ab}^\mu R_{bc}^\nu R_{ca}^\lambda}{(\omega_{ab} - \omega_1)(\omega_{ac} - \omega_1 - \omega_2)} \end{aligned} \right\} \quad (2.5-4)$$

出发, 令 $\omega_0 = -(\omega_1 + \omega_2)$, 并对式中第一项作 $(\mu\omega_0, \alpha\omega_1, \beta\omega_2) \leftrightarrow (\alpha\omega_1, \mu\omega_0, \beta\omega_2)$ 的对易, 则(2.5-4)式中的第二项可由第一项求得。如对式中第一项再作 $(\mu\omega_0, \alpha\omega_1, \beta\omega_2) \leftrightarrow (\mu\omega_0, \alpha\omega_1, \beta\omega_2)$ 的对易, 这便是恒等对易, 对易后仍是式中的第一项。如果再对式中第一项作 $(\mu\omega_0, \alpha\omega_1, \beta\omega_2) \rightarrow (\alpha\omega_1, \beta\omega_2, \mu\omega_0)$ 的对易, 则(2.5-4)式中的最后一项也可由第一项求得。

又因(2.5-4)式中包括本征对称化算符 \hat{S}_T , 即包括配对 $(\alpha, \omega_1) \leftrightarrow (\beta, \omega_2)$ 的项。这样, (2.5-4)式大括号中实际上有六项, 这六项都可以从第一项的表示式在配对 (μ, ω_0) , (α, ω_1) 和 (β, ω_2) 的各种可能的对易下求得, 所以(2.5-4)式可以写成更加简单的形式, 为

$$\chi_{\mu\alpha}^{(2)}(\omega_1, \omega_2) = \hat{S}_T \frac{1}{2\epsilon_0\hbar^2} \sum_{a,b,c} \rho_{aa}^0 \frac{R_{ab}^\mu R_{bc}^\nu R_{ca}^\lambda}{(\omega_{ab} + \omega_1 + \omega_2)(\omega_{ac} + \omega_2)} \quad (2.5-5)$$

式中 \hat{S}_T 仍是完全对称化算符, 它表示(2.5-5)式中的项在 (μ, ω_0) , (α, ω_1) 和 (β, ω_2) 所有六种可能的对易下所得到的项求和。因为它包含了一切可能的对易, 因而在任何一种对易下, $\chi_{\mu\alpha}^{(2)}(\omega_1, \omega_2)$ 是不变的, 这就是二阶电极化率张量的完全对易对称性。例如

$$\chi_{\mu\alpha}^{(2)}(\omega_1, \omega_2) = \chi_{\alpha\mu}^{(2)}(\omega_0, \omega_2) - \dots$$

3. 三阶电极化率张量的完全对易对称性

由(2.4-45)式的三阶电极化率张量元素的表示式在配对 (μ, ω_0) , (α, ω_1) , (β, ω_2) 和 (γ, ω_3) 作如下的对易下, 可分别地由第一项得到第二项、第三项和第四项。即: 当

$$(\mu\omega_0, \alpha\omega_1, \beta\omega_2, \gamma\omega_3) \leftrightarrow (\mu\omega_0, \alpha\omega_1, \beta\omega_2, \gamma\omega_3)$$

时, 是恒等对易, 由第一项得到的仍是第一项; 当

$$(\mu\omega_0, \alpha\omega_1, \beta\omega_2, \gamma\omega_3) \rightarrow (\alpha\omega_1, \mu\omega_0, \beta\omega_2, \gamma\omega_3)$$

时, 由第一项得到第二项; 当

$$(\mu\omega_0, \alpha\omega_1, \beta\omega_2, \gamma\omega_3) \rightarrow (\alpha\omega_1, \beta\omega_2, \mu\omega_0, \gamma\omega_3)$$

时, 由第一项得到第三项; 当

$$(\mu\omega_0, \alpha\omega_1, \beta\omega_2, \gamma\omega_3) \rightarrow (\alpha\omega_1, \beta\omega_2, \gamma\omega_3, \mu\omega_0)$$

时, 由第一项得到第四项。

由于共有以上四种对易,且(2.4-15)式中含有本征对称化算符 \hat{S} ,式中每一项对应于有配对 (α, ω_1) , (β, ω_2) 和 (γ, ω_3) 的六种可能的对易,因此,(2.4-45)式的展开式一共有24项,所以(2.4-45)式可改写为

$$\chi_{\mu\alpha}^{(3)}(\omega_1, \omega_2, \omega_3) = \hat{S}_T \frac{1}{3! \varepsilon_0 \hbar^3} \sum_{abcd} \rho_{aa}^0 \times \left[\frac{R_{ab}^\mu R_{bc}^\alpha R_{ca}^\beta R_{da}^\gamma}{(\omega_{ba} - \omega_1 - \omega_2 - \omega_3)(\omega_{cb} - \omega_2 - \omega_3)(\omega_{da} - \omega_3)} \right] \quad (2.5-6)$$

式中完全对称化算符 \hat{S}_T 表示对(2.5-6)式中的项在配对 (μ, ω_0) , (α, ω_1) , (β, ω_2) 和 (γ, ω_3) 所有24种可能的对易下求和。显然,在任何一种对易下, $\chi_{\mu\alpha}^{(3)}(\omega_1, \omega_2, \omega_3)$ 是不变的。例如

$$\chi_{\mu\alpha}^{(3)}(\omega_1, \omega_2, \omega_3) = \chi_{\alpha\mu}^{(3)}(\omega_1, \omega_2, \omega_3) = \dots$$

这就是三阶电极化率张量的完全对易对称性。

4. 第r阶电极化率张量的完全对易对称性

将上述结果推广到第r阶电极化率张量的情况时,有

$$\chi_{\mu\alpha_1\alpha_2\dots\alpha_r}^{(r)}(\omega_1, \omega_2, \dots, \omega_r) = \hat{S}_T \frac{1}{r! \varepsilon_0 \hbar^r} \sum_{ab_1b_2\dots b_r} \rho_{aa}^0 \times \frac{R_{ab_1}^\mu R_{b_1b_2}^{\alpha_1} R_{b_2b_3}^{\alpha_2} \dots R_{b_r a}^{\alpha_r}}{D(a, b_1, \dots, b_r; \omega_1, \dots, \omega_r)} \quad (2.5-7)$$

式中 $D(a, b_1, \dots, b_r; \omega_1, \dots, \omega_r) = (\omega_{b_1 a} - \omega_1 - \omega_2 - \dots - \omega_r)$

$$\times (\omega_{b_2 a} - \omega_2 - \dots - \omega_r) \dots (\omega_{b_r a} - \omega_r) \quad (2.5-8)$$

\hat{S}_T 也是上述的完全对称化算符。

六、完全对易对称性的若干物理结果

电极化率张量的完全对易对称性有几个很重要的结果,为便于讨论这些问题,需将各阶电极化强度 $P^{(1)}(t)$, $P^{(2)}(t)$, \dots 等的表示式改写一下形式。我们以前假定外加场 $E(t)$ 是任意的,然而对我们感兴趣的情况是,电磁场只是由若干个单色波所组成。如果场中各个不同的频率分量用符号 m 表示, m 可正可负,那么一阶、二阶和r阶电极化强度的表示式可以写为

$$P^{(1)}(t) = \varepsilon_0 \sum_m \chi^{(1)}(\omega_m) \cdot E_m \exp(-i\omega_m t), \quad (2.6-1)$$

$$P^{(2)}(t) = \varepsilon_0 \sum_{m_1 m_2} \chi^{(2)}(\omega_{m_1}, \omega_{m_2}) : E_{m_1} E_{m_2} \exp(-i(\omega_{m_1} + \omega_{m_2})t), \quad (2.6-2)$$

$$P^{(r)}(t) = \varepsilon_0 \sum_{m_1 \dots m_r} \chi^{(r)}(\omega_{m_1}, \omega_{m_2}, \dots, \omega_{m_r}) | E_{m_1} E_{m_2} \dots E_{m_r} \exp\left[-i \sum_{i=1}^r \omega_{m_i} t\right]. \quad (2.6-3)$$

式中 E_{α} 表示电磁场中具有时间因子 $\exp(-i\omega_{\alpha}t)$ 的频率为 ω_{α} 的场分量的空间变化部分。

另外，我们需要指出的是，在前面我们推导电极化率张量元素 $\chi_{\mu\alpha}^{(1)}(\omega)$ 、 $\chi_{\mu\alpha}^{(2)}(\omega_1, \omega_2)$ 和 $\chi_{\mu\alpha}^{(3)}(\omega_1, \omega_2, \omega_3)$ 等表示式时，看到电极化率张量元素在实数频率轴上有奇点。事实上总存在着弛豫效应，这时，在电极化率张量元素表示式的各项分母中要附加一阻尼项。不考虑附加阻尼项的介质叫做非弛豫介质。因此，可以认为非弛豫介质是弛豫趋于零的一种理想化的介质，在达到这种极限情况以前，表示式 (2.6-1) ~ (2.6-3) 都是有效的。由此可见，如果电磁场中存在着的分立频率没有一个能使电极化率张量有奇点，那么即使在极限情况下，即对于非弛豫介质，仍能保证电极化率张量 χ 不发散，(2.6-1) ~ (2.6-3) 式仍保持有效。注意这里所讲的没有奇点的意思，是指任何一个频率分量以及频率分量的组合不与粒子的任何跃迁频率相一致。在下面所讨论的问题中，如果是远离共振区的情况，那么奇点都是可以避免了的。

下面我们给出完全对易对称性的几个物理结果。

1. 克兰曼 (Kleinman) 对称性^[7]

克兰曼已经证明，如果非线性电极化起源于电子而不是离子，并当晶体对所讨论的非线性过程中的所有频率都是透明的，即如果在 ω_1 、 ω_2 和 ω_3 的频率范围内，介质是无耗的，折射率的色散现象可以忽略不计，那么二阶非线性电极化率张量元素 $\chi_{\mu\alpha}^{(2)}(-\omega_3, \omega_1, \omega_2)$ 在所有指标 μ 、 α 和 β 对易下是不变的。因为这种对称性首先由克兰曼所研究，故名为克兰曼对称性。

2. 同一参数可表示不同的物理过程

由 $r+1$ 个实数频率 $\omega_1, \omega_2, \dots, \omega_r, \omega_0 (= -(\omega_1 + \omega_2 + \dots + \omega_r))$ 中的任何 r 个，在通过第 r 阶电极化所产生的 $r+1$ 个不同的物理过程，都是由相同的参数决定的。

如以二阶电极化效应为例，频率为 ω_1 和 ω_2 的两个场会产生和频 $-\omega_0 = \omega_1 + \omega_2$ 的电极化强度

$$P_{\mu}^{(2)}(\omega_0) = 2\epsilon_0 \chi_{\mu\alpha}^{(2)}(-\omega_0, \omega_1, \omega_2) E_{\alpha}(\omega_1) E_{\beta}(\omega_2).$$

另外，频率 ω_0 和 ω_2 的两个场可产生频率 $-\omega_1 = \omega_0 + \omega_2$ 的电极化强度

$$P_{\alpha}^{(2)}(\omega_1) = 2\epsilon_0 \chi_{\alpha\mu}^{(2)}(\omega_0, \omega_2) E_{\mu}(\omega_0) E_{\beta}(\omega_2).$$

因为二阶电极化率张量 $\chi^{(2)}(\omega_1, \omega_2)$ 具有完全对易对称性

$$\chi_{\mu\alpha}^{(2)}(\omega_1, \omega_2) = \chi_{\alpha\mu}^{(2)}(\omega_0, \omega_2).$$

由此可见，上述两种过程，由相同的参数即由相同的二阶电极化率张量元素 $\chi_{\mu\alpha}^{(2)}(\omega_1, \omega_2)$ 所确定。

又如利用红宝石激光频率 (6943 \AA) ($1 \text{ \AA} = 10 \text{ nm}$) 在 KDP 和 KD*P 晶体中产生的光整流效应和电光效应分别由二阶电极化率张量元素 $\chi_{\beta\alpha}^{(2)}(-\omega, \omega)$ 和 $\chi_{\alpha\beta}^{(2)}(0, \omega)$ 所确定。但是按照电极化率张量的完全对易对称的性质有

$$\chi_{\mu\alpha}^{(2)}(-\omega, \omega) = \chi_{\alpha\mu}^{(2)}(0, \omega).$$

由此可见，光整流效应和电光效应这两个过程由相同的参数 $\chi_{\mu\alpha}^{(2)}(-\omega, \omega)$ 所确定。

3. 曼利-罗 (Manley-Rowe) 功率关系

(1) 二阶电极化强度分量的表示式

假定介质开始受到不可公约的两个频率 ω' 和 ω'' 的简谐场的作用，那么由于非线性相互作用，有可能产生如下的组合频率：

$$\omega_{mn} = m\omega' + n\omega''.$$

式中 m 和 n 是整数，它可正，可负，或为零。这时，在非线性质质内的总电场为

$$E(t) = \sum_{m,n} E_{m,n} \exp(-i\omega_{mn}t). \quad (2.6-4)$$

因为 $E(t)$ 是实数，而且

$$\omega_{-m,-n} = -m\omega' - n\omega'' = -\omega_{mn}, \quad (2.6-5)$$

所以要求

$$E_{-m,-n} = E_{m,n}^* \quad (2.6-6)$$

下面我们从(2.6-2)式的二阶电极化强度

$$P^{(2)}(t) = \sum_{m_1, m_2} \epsilon_0 \chi^{(2)}(\omega_{m_1}, \omega_{m_2}) : E_{m_1} E_{m_2} \exp(-i(\omega_{m_1} + \omega_{m_2})t) \quad (2.6-7)$$

出发，给出频率为 ω_{mn} 的二阶电极化强度的 μ 分量的表示式。(2.6-7)式中的 ω_{m_1} 和 ω_{m_2} 是频率 ω' 和 ω'' 的各种可能的组合频率，可写为

$$\omega_{m_1} = p\omega' + q\omega'' = \omega_{pq}, \quad (2.6-8)$$

$$\omega_{m_2} = r\omega' + s\omega'' = \omega_{rs}. \quad (2.6-9)$$

二阶电极化强度 $P^{(2)}(t)$ 还可以写成如下的形式，即

$$P^{(2)}(t) = \sum_{m,n} P_{m,n}^{(2)} \exp(-i\omega_{mn}t). \quad (2.6-10)$$

与(2.6-7)式相比较时，因为

$$\omega_{m_1} + \omega_{m_2} = (p+r)\omega' + (q+s)\omega''$$

和

$$\omega_{mn} = m\omega' + n\omega'',$$

因此，当满足关系

$$\left. \begin{aligned} p+r &= m, \\ q+s &= n \end{aligned} \right\} \quad (2.6-11)$$

时，(2.6-7)式与(2.6-10)式一致。因为给定 m 和 n 时， p 、 q 、 r 和 s 可以取不同的值，所以(2.6-7)式的 μ 分量可写为

$$P_{\mu}^{(2)}(t) = \sum_{m,n} \sum_{p,q,r,s} \{ \epsilon_0 \chi_{\mu\alpha\beta}^{(2)}(\omega_{pq}, \omega_{rs}) E_{p,q} E_{r,s} \exp(-i(\omega_{pq} + \omega_{rs})t) \times \delta_{\kappa}(m, p+r) \delta_{\kappa}(n, q+s) \}. \quad (2.6-12)$$

式中含有两个克朗尼克(Kronecker) δ 符号 $\delta_{\kappa}(m, p+r)$ 和 $\delta_{\kappa}(n, q+s)$ 。它们有

$$\delta_{\kappa}(m, p+r) = \begin{cases} 1 & m = p+r, \\ 0 & m \neq p+r, \end{cases} \quad (2.6-13)$$

$$\delta_{\kappa}(n, q+s) = \begin{cases} 1 & n = q+s, \\ 0 & n \neq q+s. \end{cases} \quad (2.6-14)$$

由(2.6-12)式, 可立即给出频率为 ω_m 的二阶电极化强度的 μ 分量为

$$\begin{aligned} P_{m\mu}^{(2)}(t) &= \sum_{pqrs} \epsilon_0 \chi_{\alpha\beta}^{(2)}(\omega_{pq}, \omega_{rs}) E_{p\alpha} E_{r\beta} \\ &\quad \times \delta_k(m, p+r) \delta_k(n, q+s) \exp(-i\omega_m t) \\ &= P_{m\mu}^{(2)} \exp(-i\omega_m t). \end{aligned} \quad (2.6-15)$$

式中

$$\begin{aligned} P_{m\mu}^{(2)} &= \sum_{pqrs} \epsilon_0 \chi_{\alpha\beta}^{(2)}(\omega_{pq}, \omega_{rs}) E_{p\alpha} E_{r\beta} \\ &\quad \times \delta_k(m, p+r) \delta_k(n, q+s). \end{aligned} \quad (2.6-16)$$

注意, 因为 $\mathbf{P}(t)$ 是一个实在的物理量, (2.6-10)式中的 $\mathbf{P}_{m\mu}^{(2)}$ 应有关系

$$(\mathbf{P}_{m\mu}^{(2)})^* = \mathbf{P}_{-m, -\mu}^{(2)}. \quad (2.6-17)$$

(2) 输入到单位体积介质中的功率表示式

根据电磁场麦克斯韦方程组

$$\nabla \times \mathbf{H} = \mathbf{J} + \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t},$$

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t},$$

$$\mathbf{D} = \epsilon_0 \mathbf{E} + \mathbf{P},$$

$$\mathbf{B} = \mu_0 (\mathbf{H} + \mathbf{M}),$$

式中 \mathbf{M} 是磁极化强度, 其它各量的意义同前, 并利用矢量代数关系式

$$\nabla \cdot (\mathbf{a} \times \mathbf{b}) = \mathbf{b} \cdot \nabla \times \mathbf{a} - \mathbf{a} \cdot \nabla \times \mathbf{b},$$

可得

$$\begin{aligned} -\nabla \cdot (\mathbf{E} \times \mathbf{H}) &= \mathbf{E} \cdot \nabla \times \mathbf{H} - \mathbf{H} \cdot \nabla \times \mathbf{E} \\ &= \mathbf{E} \cdot \mathbf{J} + \mathbf{E} \cdot \epsilon_0 \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} + \mathbf{E} \cdot \frac{\partial \mathbf{P}}{\partial t} \\ &\quad + \mathbf{H} \cdot \mu_0 \frac{\partial \mathbf{H}}{\partial t} + \mu_0 \mathbf{H} \cdot \frac{\partial \mathbf{M}}{\partial t} \end{aligned}$$

和

$$\begin{aligned} -\int_V \nabla \cdot (\mathbf{E} \times \mathbf{H}) dv &= -\int_S (\mathbf{E} \times \mathbf{H}) \cdot \mathbf{n} dS \\ &= \int_V \left[\mathbf{E} \cdot \mathbf{J} + \frac{\partial}{\partial t} \frac{\epsilon_0}{2} (\mathbf{E} \cdot \mathbf{E}) + \frac{\partial}{\partial t} \frac{\mu_0}{2} (\mathbf{H} \cdot \mathbf{H}) \right. \\ &\quad \left. + \mathbf{E} \cdot \frac{\partial \mathbf{P}}{\partial t} + \mu_0 \mathbf{H} \cdot \frac{\partial \mathbf{M}}{\partial t} \right] dv. \end{aligned} \quad (2.6-18)$$

式中右边各项的物理意义是:

第一项是场对运动电荷所消耗的功率;

第二项和第三项是介质体积 V 中真空电磁场贮能的增加率;

第四项 $\mathbf{E} \cdot \frac{\partial \mathbf{P}}{\partial t}$ 表示场对单位体积内电偶极矩所消耗的功率, 也就是场对介质电极化

所消耗的功率,

第五项 $\mathbf{H} \cdot \frac{\partial \mathbf{M}}{\partial t}$ 表示场对介质磁极化所消耗的功率。

(2.6-18)式左边 $-\int_V (\mathbf{E} \times \mathbf{H}) \cdot \mathbf{n} dS$ 表示流进曲面 S 为边界的体积 V 内场的总功率。

因为这里对我们感兴趣的是第四项, 由该项可给出场对介质电极化所消耗的平均功率为

$$\frac{\text{功率}}{\text{体积}} = \langle \mathbf{E} \cdot \frac{\partial \mathbf{P}}{\partial t} \rangle. \quad (2.6-19)$$

式中符号 $\langle \rangle$ 表示对时间求平均值。因此通过二阶电极化输入到单位体积介质中的频率为 ω_{mn} 辐射的总功率为

$$\begin{aligned} W_{mn} &= \langle \{ \mathbf{E}_{mn} \exp(-i\omega_{mn}t) + \mathbf{E}_{mn}^* \exp(i\omega_{mn}t) \} \\ &\quad \cdot \frac{d}{dt} \{ \mathbf{P}_{mn}^{(2)} \exp(-i\omega_{mn}t) + (\mathbf{P}_{mn}^{(2)})^* \exp(i\omega_{mn}t) \} \rangle \\ &= 2\text{Re} [i\omega_{mn} \mathbf{E}_{mn} \cdot (\mathbf{P}_{mn}^{(2)})^*] \\ &= 2\text{Re} [i\omega_{mn} \mathbf{E}_{mn} \cdot \mathbf{P}_{mn}^{(2)}] \\ &\quad - 2\text{Re} [i\omega_{mn} \mathbf{E}_{mn} \cdot \mathbf{P}_{mn}^{(2)}]. \end{aligned} \quad (2.6-20)$$

在得出上式时, 已利用了频率为 $2\omega_{mn}$ 的项对时间的平均值为零。上式又可写为

$$\frac{W_{mn}}{\omega_{mn}} = 2\text{Re} [i \mathbf{E}_{mn} \cdot \mathbf{P}_{mn}^{(2)}].$$

(3) 曼利-罗功率关系

现在我们来计算 $\sum_{mn} (mW_{mn}/\omega_{mn})$ 。按(2.6-16)式有

$$\begin{aligned} P_{mn}^{(2)} = \sum_{pqrs} \epsilon_0 \chi_{\alpha\beta}^{(2)}(\omega_{pq}, \omega_{rs}) E_{pq\alpha} E_{rs\beta} \\ \times \delta_{\mathbf{k}}(-m, p+r) \delta_{\mathbf{k}}(-n, q+s), \end{aligned} \quad (2.6-21)$$

则

$$\begin{aligned} \sum_{mn} \frac{mW_{mn}}{\omega_{mn}} = 2\text{Re} \left\{ i \sum_{mnpqrs} [\epsilon_0 m \chi_{\alpha\beta}^{(2)}(\omega_{pq}, \omega_{rs}) \right. \\ \left. \times E_{m,\mu} E_{p,\alpha} E_{r,\beta} \delta_{\mathbf{k}}(-m, p+r) \delta_{\mathbf{k}}(-n, q+s)] \right\}. \end{aligned} \quad (2.6-22)$$

如果对上式两边交换求和的变量, 即 $mn\mu \leftrightarrow pq\alpha$, 则有

$$\begin{aligned} \sum_{pq} \frac{pW_{pq}}{\omega_{pq}} = 2\text{Re} \left\{ i \sum_{mnpqrs} [\epsilon_0 p \chi_{\alpha\beta}^{(2)}(\omega_{mn}, \omega_{rs}) \right. \\ \left. \times E_{p,\alpha} E_{m,\mu} E_{r,\beta} \delta_{\mathbf{k}}(-p, m+r) \delta_{\mathbf{k}}(-q, n+s)] \right\}. \end{aligned} \quad (2.6-23)$$

因为 m 、 n 和 p 、 q 是任意整数, 可正可负, 也可为零, 所以有

$$\sum_{p,q} \frac{pW_{pq}}{\omega_{pq}} = \sum_{m,n} \frac{mW_{mn}}{\omega_{mn}}. \quad (2.6-24)$$

又

$$\begin{aligned} \delta_{\mathbf{k}}(-p, m+r) &= \delta_{\mathbf{k}}(-m, p+r), \\ \delta_{\mathbf{k}}(-q, n+s) &= \delta_{\mathbf{k}}(-n, q+s), \end{aligned}$$

所以(2.6-23)式可改写为

$$\begin{aligned} \sum_{m,n} \frac{mW_{mn}}{\omega_{mn}} &= 2\text{Re} \left\{ i \sum_{m,n,p,q,r,s} [\varepsilon_0 p \chi_{\alpha\beta}^{(2)}(\omega_{mq}, \omega_{rs}) \right. \\ &\quad \left. \times E_{p\alpha} E_{m\beta} E_{rs} \delta(-m, p+r) \delta_{\mathbf{k}}(-n, q+s)] \right\}. \quad (2.6-25) \end{aligned}$$

比较(2.6-22)式和(2.6-25)式可见, 除两式求和号中因子 p 与 m 不同外, 其它一切因子都相同。因为按电极化率张量 $\chi^{(2)}$ 的完全对易对称的性质有

$$\chi_{\alpha\beta}^{(2)}(\omega_{pq}, \omega_{rs}) = \chi_{\alpha\beta}^{(2)}(\omega_{mn}, \omega_{rs}).$$

按同样的步骤和方法, 如用 $rs\beta \leftrightarrow mn\mu$ 时, 则所得结果只是在(2.6-22)式中将求和号中的因子 m 用 r 代替, 而其它因子都不变。即所得结果为

$$\begin{aligned} \sum_{m,n} \frac{mW_{mn}}{\omega_{mn}} &= 2\text{Re} \left\{ i \sum_{m,n,p,q,r,s} [\varepsilon_0 r \chi_{\beta\mu}^{(2)}(\omega_{pq}, \omega_{mn}) \right. \\ &\quad \left. \times E_{m\mu} E_{p\alpha} E_{rs} \delta(-m, p+r) \delta_{\mathbf{k}}(-n, q+s)] \right\}. \quad (2.6-26) \end{aligned}$$

既然(2.6-22)式, (2.6-25)式和(2.6-26)式都等于 $\sum_{m,n} (mW_{mn}/\omega_{mn})$, 所以可将

$\sum_{m,n} (mW_{mn}/\omega_{mn})$ 改写为

$$\begin{aligned} \sum_{m,n} \frac{mW_{mn}}{\omega_{mn}} &= \frac{1}{3} [(2.6-22)式的右边 \\ &\quad + (2.6-25)式的右边 \\ &\quad + (2.6-26)式的右边] \\ &= \frac{2}{3} \text{Re} \left\{ i \sum_{m,n,p,q,r,s} [\varepsilon_0 (p+r+m) \chi_{\alpha\beta}^{(2)}(\omega_{pq}, \omega_{rs}) \right. \\ &\quad \left. \times E_{m\mu} E_{p\alpha} E_{rs} \delta(-m, p+r) \delta_{\mathbf{k}}(-n, q+s)] \right\}. \quad (2.6-27) \end{aligned}$$

但由 $\delta_{\mathbf{k}}(-m, p+r)$ 的性质可知, 只有当 $-m = p+r$ 时, $\delta_{\mathbf{k}}(-m, p+r)$ 才不为零; 而 $-m = p+r$ 时, 又有关系 $m+p+r=0$ 。由(2.6-27)式可见, 不管 m 、 p 和 r 的值如何, 因子 $(m+p+r)\delta_{\mathbf{k}}(-m, p+r)$ 始终等于零。这样, (2.6-27)式总为零, 即有

$$\sum_{m,n} \frac{mW_{mn}}{\omega_{mn}} = 0. \quad (2.6-28)$$

类似地可以得到

$$\sum_{m,n} \frac{nW_{mn}}{\omega_{mn}} = 0. \quad (2.6-29)$$

应该明确,上面所引入的 W_{mn} 是在频率 ω_{mn} 上通过二阶电极化输入到单位体积介质中的功率。但是,如果把 W_{mn} 理解为通过 r 阶电极化在频率 ω_{mn} 上输入到单位体积介质中的功率时,(2.6-28)式和(2.6-29)式仍有效^[3]。如再把所有阶电极化相对应的关系加起来,那么 W_{mn} 就应被理解为是在 ω_{mn} 频率上,通过所有阶电极化输入到单位体积介质内的总功率。在这样的理解下,(2.6-28)式和(2.6-29)式就是我们所要求的曼利-罗功率关系。

曼利-罗功率关系还可以写成其它形式。由(2.6-20)式,当 $(-m, -n)$ 代替 mn 时,便有

$$\begin{aligned} W_{-m-n} &= 2\omega_{-m-n} \operatorname{Re}[iE_{-m-n} \cdot (P_{-m-n}^{(2)})^*] \\ &= -2\omega_{mn} \operatorname{Re}[iE_{mn}^* \cdot (P_{mn}^{(2)})^*] \\ &= W_{mn}; \end{aligned} \quad (2.6-30)$$

又

$$\omega_{-m-n} = m\omega' + n\omega'' = -\omega_{mn}, \quad (2.6-31)$$

$$W_{-m-n} = W_{mn}, \quad (2.6-32)$$

这样就有

$$\begin{aligned} \sum_{m,n} \frac{mW_{mn}}{\omega_{mn}} &= \sum_{m=-\infty}^{-1} \sum_{n=-\infty}^{\infty} \frac{mW_{mn}}{\omega_{mn}} + \sum_{m=1}^{\infty} \sum_{n=-\infty}^{\infty} \frac{mW_{mn}}{\omega_{mn}} \\ &= \sum_{m=1}^{\infty} \sum_{n=-\infty}^{\infty} \frac{-mW_{-m-n}}{\omega_{-m-n}} + \sum_{m=1}^{\infty} \sum_{n=-\infty}^{\infty} \frac{mW_{mn}}{\omega_{mn}} \\ &= \sum_{m=1}^{\infty} \sum_{n=-\infty}^{\infty} \frac{-mW_{-m-n}}{\omega_{-m-n}} + \sum_{m=1}^{\infty} \sum_{n=-\infty}^{\infty} \frac{mW_{mn}}{\omega_{mn}}. \end{aligned}$$

考虑到(2.6-30)式和(2.6-5)式,代入上式后,有

$$\sum_{m,n} \frac{mW_{mn}}{\omega_{mn}} = 2 \sum_{m=1}^{\infty} \sum_{n=-\infty}^{\infty} \frac{mW_{mn}}{\omega_{mn}} = 0. \quad (2.6-33)$$

同理可以求得

$$\sum_{m,n} \frac{nW_{mn}}{\omega_{mn}} = 2 \sum_{n=1}^{\infty} \sum_{m=-\infty}^{\infty} \frac{nW_{mn}}{\omega_{mn}} = 0. \quad (2.6-34)$$

由此可得曼利-罗功率关系的另一种形式为

$$\sum_{m=1}^{\infty} \sum_{n=-\infty}^{\infty} \frac{mW_{mn}}{\omega_{mn}} = \sum_{n=1}^{\infty} \sum_{m=-\infty}^{\infty} \frac{nW_{mn}}{\omega_{mn}} = 0. \quad (2.6-35)$$

在以后我们还会遇到一些具体过程的曼利-罗关系,它们是这里所讨论的曼利-罗功率关系的一些特殊情况。

七、电极化率张量的时间反演对称性

在这一节里,我们要介绍电极化率张量的另一种对称性,即所谓电极化率张量的时间

反演对称性。

1. 时间反演的意义

在经典力学中，时间反演的意思就是用 $-t$ 代替 t ，即改变时间的测量方向。

有两类重要的经典动力学变量。第一类经典动力学变量有：位置坐标，位置坐标的函数，动量的偶函数如动能等，这一类动力学变量在时间反演下符号不变。第二类经典动力学变量有动量、动量的奇函数的量以及角动量等，这一类动力学变量在时间反演下要改变符号。

当由经典力学过渡到量子力学的时候，每一个力学量都有一个力学量算符相对应。但第一类动力学变量在薛定谔表象中是实数算符，例如

坐标算符 \hat{x} ；

哈密顿算符 $\hat{H} = \hat{T} + \hat{U}(x, y, z) = -\frac{\hbar^2}{2\mu} \nabla^2 + U(x, y, z)$ ；

动量矩平方算符 $\hat{L}^2 = \hat{L}_x^2 + \hat{L}_y^2 + \hat{L}_z^2$

$$= -\hbar^2 \left\{ \left(y \frac{\partial}{\partial z} - z \frac{\partial}{\partial y} \right)^2 + \left(z \frac{\partial}{\partial x} - x \frac{\partial}{\partial z} \right)^2 + \left(x \frac{\partial}{\partial y} - y \frac{\partial}{\partial x} \right)^2 \right\}.$$

第二类动力学变量在薛定谔表象中是纯虚数算符，例如

动量算符 $\hat{p}_x = \frac{\hbar}{i} \frac{\partial}{\partial x}$ ，

动量矩算符 $\hat{L}_x = \frac{\hbar}{i} \left(y \frac{\partial}{\partial z} - z \frac{\partial}{\partial y} \right)$ 。

由以上的说明可以看出，在量子力学中，时间反演的运算，对一个无自旋的粒子系统来说，在薛定谔表象中等效于将算符变成其复数共轭，即实数算符在时间反演下符号不变，虚数算符在时间反演下改变符号。

2. 电极化率张量的时间反演对称性

现分析由(2.5-8)式所表示的第 r 阶电极化率张量元素

$$\chi_{\alpha_1 \alpha_2 \dots \alpha_r}^{(r)}(\omega_1, \omega_2, \dots, \omega_r) = \hat{S}_T \frac{1}{\epsilon_0 \hbar^r r!} \sum_{a, b_1, \dots, b_r} \rho_{aa}^a R_{a b_1}^a R_{b_1 b_2}^a \dots R_{b_{r-1} b_r}^a D(a, b_1, \dots, b_r; \omega_1, \dots, \omega_r) \quad (2.7-1)$$

中各个因子的特征。

(1) 电偶极矩算符的矩阵元素例如 R_{ab}^a 等都是实数

按定义，电偶极矩阵元

$$R_{ab}^a = \int u^*(a, \mathbf{r}) \hat{R}_a u(b, \mathbf{r}) d\tau. \quad (2.7-2)$$

式中 $u(a, \mathbf{r})$ 是分子哈密顿算符 \hat{H}_0 的本征函数，即

$$\hat{H}_0 u(a, \mathbf{r}) = E_a u(a, \mathbf{r}).$$

如果带电粒子无自旋并分子不受外加恒定磁场的作用, 则哈密顿 \hat{H}_0 在时间反演下是不变的, 因为这时 \hat{H}_0 等于粒子动能和相互作用势能之和, 而后者又是坐标的实函数。这样, 哈密顿 \hat{H}_0 是实数, 其能量本征函数 $u(a, r)$ 可被选择为实数。另外, 电偶极矩 R_a 有

$$R_a = \sum_i q_i r_{i,a}$$

式中 q_i 和 $r_{i,a}$ 分别是第 i 个粒子的电荷和该粒子的第 a 个位置坐标。显然 R_a 也是实数。因此(2.7-2)式中的电偶极矩阵元是实数, 这样, (2.7-1)式中所有的电偶极矩阵元都是实数。

(2) 密度算符矩阵元 ρ_{aa}^0 是实数

由(2.1-49)式给出

$$\rho_{aa}^0 = A \exp(-E_a/KT)$$

式中 A 由(2.1-45)式 $A = [\text{tr}\{\exp(-\hat{H}_0/KT)\}]^{-1}$ 给出, 因为哈密顿算符 \hat{H}_0 是实数, 故 A 也是实数。这样, 密度算符矩阵元 ρ_{aa}^0 也是实数。

(3) (2.7-1)式分母中的跃迁频率 ω_a 等也都是实数

根据以上分析, 如果取(2.7-1)式的复数共轭时, 其结果仅仅是用 $\omega_1, \omega_2, \dots, \omega_r$ 的复数共轭 $\omega_1^*, \omega_2^*, \dots, \omega_r^*$ 分别代替 $\omega_1, \omega_2, \dots, \omega_r$, 即有

$$[\chi_{\mu\alpha_1 \dots \alpha_r}^{(r)}(\omega_1, \omega_2, \dots, \omega_r)]^* = \chi_{\mu\alpha_1 \dots \alpha_r}^{(r)}(\omega_1^*, \omega_2^*, \dots, \omega_r^*) \quad (2.7-3)$$

考虑到电极化率张量的真实性条件(1.4-4)式, 有

$$[\chi_{\mu\alpha_1 \dots \alpha_r}^{(r)}(\omega_1, \omega_2, \dots, \omega_r)]^* = \chi_{\mu\alpha_1 \dots \alpha_r}^{(r)}(-\omega_1^*, -\omega_2^*, \dots, -\omega_r^*) \quad (2.7-4)$$

结合(2.7-3)式和(2.7-4)式可得

$$\chi_{\mu\alpha_1 \dots \alpha_r}^{(r)}(\omega_1^*, \omega_2^*, \dots, \omega_r^*) = \chi_{\mu\alpha_1 \dots \alpha_r}^{(r)}(-\omega_1^*, -\omega_2^*, \dots, -\omega_r^*) \quad (2.7-5)$$

也即有

$$\chi_{\mu\alpha_1 \dots \alpha_r}^{(r)}(\omega_1, \omega_2, \dots, \omega_r) = \chi_{\mu\alpha_1 \dots \alpha_r}^{(r)}(-\omega_1, -\omega_2, \dots, -\omega_r) \quad (2.7-6)$$

这表示当所有频率 $\omega_1, \omega_2, \dots, \omega_r$ 都变为负值时, $\chi^{(r)}$ 是不变的。这种对称性, 就称为电极化率张量的时间反演对称性。

3. 一个重要的结论—— $\chi^{(1)}$ 是一个对称张量

由电极化率张量具有时间反演对称性这种性质出发, 我们可以得到一个十分重要的结论, 即一阶电极化率张量是一个对称张量。

由(2.7-6)式, 令 $r=1$ 时有

$$\chi_{\mu\alpha}^{(1)}(\omega) = \chi_{\mu\alpha}^{(1)}(-\omega) \quad (2.7-7)$$

又根据一阶电极化率张量 $\chi^{(1)}$ 的完全对易对称性, 有

$$\chi_{\mu\alpha}^{(1)}(\omega) = \chi_{\alpha\mu}^{(1)}(-\omega) \quad (2.7-8)$$

比较(2.7-7)式和(2.7-8)式可得

$$\chi_{\mu\alpha}^{(1)}(-\omega) = \chi_{\alpha\mu}^{(1)}(-\omega)$$

或

$$\chi_{\mu\alpha}^{(1)}(\omega) = \chi_{\alpha\mu}^{(1)}(\omega) \quad (2.7-9)$$

由此可见, 一阶电极化率张量 $\chi^{(1)}(\omega)$ 是一个对称张量。

八、有效场电极化率

当我们写出 $\mathbf{P}^{(1)} = \epsilon_0 \chi^{(1)} \mathbf{E}$ 的关系时,应该十分明确式中 \mathbf{E} 是介质内平均的宏观电场强度, $\mathbf{P}^{(1)}$ 是物理上无限小的介质体积内每单位体积内的电偶极矩。它们都是在物理上无限小的体积内的平均值,是宏观量。对单个电偶极子来说,平均电偶极矩为

$$\mathbf{p} = \frac{\mathbf{P}^{(1)}}{n} = \frac{\epsilon_0 \chi^{(1)}}{n} \mathbf{E}. \quad (2.8-1)$$

式中 n 是单位体积内电偶极子的数目。其实作用在单个电偶极子处(简单地讲,在电偶极子的中心处)的场强并不是介质内的平均电场强度 \mathbf{E} (我们直接所测量到的是宏观电场强度 \mathbf{E}), 而应该是作用在单个电偶极子中心处的平均外电场强度,即有效电场强度 \mathbf{E}_{eff} , 也叫做局部场强。实质上, \mathbf{E} 和 \mathbf{E}_{eff} 的差别是由于介质内电偶极子的相互作用引起的^[9]。因而对气体介质来说,由于气体分子之间的距离较大,分子可以被看作彼此是相互独立的,它们之间的电的相互作用可以忽略不计。这样,在气体介质中的 \mathbf{E} 和 \mathbf{E}_{eff} 之间的差别很小,可以忽略不计。我们以上所讨论的独立分子体系也就是这种情况。对于凝聚物质来说,就必须区分作用在介质内单个分子上的场与介质内平均宏观场之间的差别。洛仑兹已经证明:作用在液体内和介质电偶极子分布在立方空间点阵结点上的粒子的有效电场强度 \mathbf{E}_{eff} 为^[10]

$$\mathbf{E}_{eff} = \mathbf{E} + \frac{\mathbf{P}}{3\epsilon_0} \quad (2.8-2)$$

(在高斯单位制中, $\mathbf{E}_{eff} = \mathbf{E} + \frac{4\pi}{3} \mathbf{P}$)。式中 \mathbf{E} 和 \mathbf{P} 是宏观电场与电极化强度。利用关系

$$\mathbf{P} = \epsilon_0 \chi^{(1)} \mathbf{E} = \epsilon_0 \chi_{eff}^{(1)} \mathbf{E}_{eff}, \quad (2.8-3)$$

并代入(2.8-2)后,便可求得宏观电极化率 $\chi^{(1)}$ 与响应有效场的电极化率 $\chi_{eff}^{(1)}$ 之间的关系为

$$\chi^{(1)}(\omega) = \frac{3}{3 - \chi_{eff}^{(1)}(\omega)} \chi_{eff}^{(1)}(\omega). \quad (2.8-4)$$

有效电场 \mathbf{E}_{eff} 与宏观场 \mathbf{E} 之间的关系为

$$\mathbf{E}_{eff} = \frac{3}{3 - \chi_{eff}^{(1)}(\omega)} \mathbf{E}. \quad (2.8-5)$$

如果上述具有立方空间点阵的介质的二阶电极化率不等于零,那么关于宏观二阶非线性电极化率张量 $\chi^{(2)}(\omega_1, \omega_2)$ 与对有效场响应的二阶电极化率张量 $\chi_{eff}^{(2)}(\omega_1, \omega_2)$ 之间的关系可求得如下:当用有效场表示二阶电极化强度时(考虑三波耦合产生和频的情况),有

$$\mathbf{P}^{(2)}(\omega_1 + \omega_2) = \epsilon_0 \chi_{eff}^{(2)}(\omega_1, \omega_2) : \mathbf{E}_{eff}(\omega_1) \mathbf{E}_{eff}(\omega_2), \quad (2.8-6)$$

而频率为 $\omega_1 + \omega_2$ 的电极化强度 $\mathbf{P}(\omega_1 + \omega_2)$ 为

$$\mathbf{P}(\omega_1 + \omega_2) = \epsilon_0 \chi_{eff}^{(2)}(\omega_1 + \omega_2) \mathbf{E}_{eff}(\omega_1 + \omega_2) + \mathbf{P}^{(2)}(\omega_1 + \omega_2). \quad (2.8-7)$$

因为

$$\mathbf{E}_{eff}(\omega_1 + \omega_2) = \mathbf{E}(\omega_1 + \omega_2) + \frac{\mathbf{P}(\omega_1 + \omega_2)}{3\epsilon_0}, \quad (2.8-8)$$

由(2.8-7)式和(2.8-8)式解得

$$\begin{aligned}
 \mathbf{P}(\omega_1 + \omega_2) &= \frac{3\epsilon_0 \chi_{eff}^{(1)}(\omega_1, \omega_2)}{3 - \chi_{eff}^{(1)}(\omega_1 + \omega_2)} \mathbf{E}(\omega_1 + \omega_2) \\
 &\quad - \frac{3\epsilon_0}{3 - \chi_{eff}^{(1)}(\omega_1 + \omega_2)} \chi_{eff}^{(2)}(\omega_1, \omega_2) : \mathbf{E}_{eff}(\omega_1) \mathbf{E}_{eff}(\omega_2).
 \end{aligned}
 \tag{2.8-9}$$

将上式右边第二项与 $\mathbf{P}^{(2)}(\omega_1 + \omega_2) = \epsilon_0 \chi^{(2)}(\omega_1, \omega_2) : \mathbf{E}(\omega_1) \mathbf{E}(\omega_2)$ 相比较, 并利用(2.8-5)式可得

$$\chi^{(2)}(\omega_1, \omega_2) = \frac{3}{3 - \chi_{eff}^{(1)}(\omega_1 + \omega_2)} \cdot \frac{3}{3 - \chi_{eff}^{(1)}(\omega_1)} \cdot \frac{3}{3 - \chi_{eff}^{(1)}(\omega_2)} \chi_{eff}^{(2)}(\omega_1, \omega_2).
 \tag{2.8-10}$$

式中 $\chi_{eff}^{(2)}(\omega_1, \omega_2)$ 的元素实际上就是我们在本章四中计算的(2.4-41)式。

同理我们可以求得三阶宏观非线性电极化率张量 $\chi^{(3)}(\omega_1, \omega_2, \omega_3)$ 与对有效场响应的三阶电极化率张量 $\chi_{eff}^{(3)}(\omega_1, \omega_2, \omega_3)$ 之间的关系为

$$\begin{aligned}
 \chi^{(3)}(-\omega_4, \omega_1, \omega_2, \omega_3) &= \frac{3}{3 - \chi_{eff}^{(1)}(\omega_4)} \frac{3}{3 - \chi_{eff}^{(1)}(\omega_3)} \\
 &\quad \times \frac{3}{3 - \chi_{eff}^{(1)}(\omega_2)} \frac{3}{3 - \chi_{eff}^{(1)}(\omega_1)} \chi_{eff}^{(3)}(-\omega_4, \omega_1, \omega_2, \omega_3).
 \end{aligned}
 \tag{2.8-11}$$

比较(2.8-10)式和(2.8-11)式即可看出, 可以将(2.8-11)式直接推广到更高阶的非线性电极化率的情况中去, 阶数每增加一次, 就增加一项局部场的修正因子 $3/(3 - \chi_{eff}(\omega_n))$ 。

如果某种介质内单个粒子处的局部场和平均宏观场之间有类似于(2.8-5)式

$$E_{eff} = f(\omega)E
 \tag{2.8-12}$$

的关系, 则类似(2.8-4)式, (2.8-10)式和(2.8-11)式分别有

$$\chi^{(1)}(\omega) = f(\omega) \chi_{eff}^{(1)}(\omega);
 \tag{2.8-13}$$

$$\chi^{(2)}(\omega_1, \omega_2) = f(\omega_1 + \omega_2) f(\omega_1) f(\omega_2) \chi_{eff}^{(2)}(\omega_1, \omega_2);
 \tag{2.8-14}$$

$$\chi^{(3)}(-\omega_4, \omega_1, \omega_2, \omega_3) = f(\omega_4) f(\omega_1) f(\omega_2) f(\omega_3) \chi_{eff}^{(3)}(-\omega_4, \omega_1, \omega_2, \omega_3).
 \tag{2.8-15}$$

九、分子间弱相互作用的效应

在本章三的4中我们得到了关于第 r 阶电极化率张量元素 $\chi_{\alpha_1 \dots \alpha_r}^{(r)}(\omega_1, \omega_2, \dots, \omega_r)$ 的一般表示式(2.3-34)式。在这基础上, 在本章四(即本章第四节)中得到了在完全忽略介质中分子间相互作用条件下的、独立的、不可区分的、取向完全相同的全同粒子系统的各阶电极化率张量元素的表示式(2.4-39)、(2.4-41)、(2.4-45)式和(2.4-48)式。考虑到电极化率张量的完全对易对称性后, 上述各式分别变为(2.5-2)、(2.5-5)、(2.5-6)式和(2.5-7)式。

在这一节里, 我们将要讨论如果分子间有弱的相互作用时, 如何修正电极化率张量的表示式。对于分子间相互作用很强的情况, 则必须利用(2.3-34)式的一般表示式。

1. 一阶电极化率张量表示式的修正

在本章四中, 在忽略分子间相互作用下我们得到的一阶电极化率张量元素的表示式

(2.4-39)式为

$$\chi_{ab}^{(1)}(\omega) = -\frac{n}{\epsilon_0 \hbar} \sum_{a,b} \rho_{aa}^0 \left[\frac{R_{ab}^* R_{ba}^*}{\omega_{ab} + \omega} + \frac{R_{ba}^* R_{ab}^*}{\omega_{ab} - \omega} \right]. \quad (2.9-1)$$

式中

$$\omega_{ab} = \frac{E_a - E_b}{\hbar} = \omega_a - \omega_b. \quad (2.9-2)$$

E_a 和 E_b 分别是单个分子能态 a 和能态 b 的能量。如果现在考虑到分子之间有弱的相互作用，那么它也会引起单个分子能级位置的一个不确定量，这个不确定量的大小与分子间相互作用能量的量级相同。

设能态 a 的能量 $E_a = \hbar\omega_a$ 的不确定量为 $\hbar\Gamma_a$ ，能态 b 的能量 $E_b = \hbar\omega_b$ 的不确定量为 $\hbar\Gamma_b$ ，则在分子能态 a 和能态 b 之间跃迁频率的不确定量为

$$\Gamma_{ab} = \Gamma_a + \Gamma_b = \Gamma_{ba}. \quad (2.9-3)$$

这表示在分子能态 a 和 b 之间跃迁的共振频率有一定的宽度，此宽度的数量级为 $\Gamma_{ab} = \Gamma_{ba}$ 。

另外，我们从量子力学得知，如果能级的能量有一个不确定量 ΔE ，就表明粒子在能级上有一定的寿命 Δt ，按测不准关系有

$$\Delta E \Delta t \geq \hbar. \quad (2.9-4)$$

从经典的振子模型来说，粒子在能级上有一定的寿命即相当于振子受到一定的阻尼，因而在共振响应表示式的分母中要附加一阻尼项，如(1.2-8)式中的 $-2i\hbar\omega$ 项（这里的阻尼系数 \hbar 实际上就是原子跃迁谱线的宽度）。

由此可见，由于分子间存在弱的耦合，其结果相当于在振子响应的表示式的分母中附加一阻尼项。在这里其作用相当于在 $\chi_{ab}^{(1)}$ 的表示式中，将实数频率 ω_{ab} 用复数频率 $\omega_{ab} + i\Gamma_{ab}$ 代替。由此便得到在考虑了分子间存在弱的耦合情况下的电极化率张量元素为

$$\chi_{ab}^{(1)}(\omega) = -\frac{n}{\epsilon_0 \hbar} \sum_{a,b} \rho_{aa}^0 \left(\frac{R_{ab}^* R_{ba}^*}{\omega_{ab} + \omega + i\Gamma_{ab}} + \frac{R_{ba}^* R_{ab}^*}{\omega_{ab} - \omega - i\Gamma_{ab}} \right). \quad (2.9-5)$$

要指出的是，在式中引进虚部 $+i\Gamma_{ab}$ 后，便把 $\chi_{ab}^{(1)}$ 的极点从实数频率轴上的 $\pm\omega_{ab}$ 处移到一对复数频率 $\pm\omega_{ab} - i\Gamma_{ab}$ 处，即这时极点位于下半个复数频率平面内。

下面我们可以从每单位体积的介质通过线性电极化吸收的功率来证明 Γ_{ab} 实际上就是态 a 和态 b 之间跃迁的共振线宽。

假定介质受到一单色场 $E(\omega)\exp(-i\omega t) + E^*(\omega)\exp(i\omega t)$ 的作用，又假定场的频率 ω 接近某一对能态1和2之间的跃迁频率 ω_{12} 。根据本章(2.6-20)式，通过线性电极化每单位体积介质吸收的功率为

$$\begin{aligned} W &= 2\text{Re}(i\omega \mathbf{E} \cdot (\mathbf{P}^{(1)})^*) \\ &= 2\text{Re}(-i\omega \mathbf{E}^* \cdot \mathbf{P}^{(1)}) \\ &= 2\text{Re}(-i\omega E_{\mu}^* P_{\mu}^{(1)}) \\ &= 2\text{Re}(-i\omega \epsilon_0 \chi_{\mu\alpha}^{(1)}(\omega) E_{\mu}^* E_{\alpha}). \end{aligned} \quad (2.9-6)$$

因为 $\omega_{12} = -\omega_{21}$,

又 $\Gamma_{12} = \Gamma_{21}$,

所以由(2.9-5)式有

$$\begin{aligned}
 \chi_{\mu a}^{(1)}(\omega) = & - \sum_{a,b} \frac{n}{\epsilon_0 \hbar} \rho_{aa}^0 \left[\frac{R_{ab}^* R_{ba}^0}{\omega_{ab} + \omega + i\Gamma_{ab}} + \frac{R_{ba}^* R_{ab}^0}{\omega_{ab} - \omega - i\Gamma_{ab}} \right] \\
 = & - \frac{n}{\epsilon_0 \hbar} \left\{ \rho_{11}^0 \left[\frac{R_{11}^* R_{11}^0}{\omega_{11} + \omega + i\Gamma_{11}} + \frac{R_{11}^* R_{11}^0}{\omega_{11} - \omega - i\Gamma_{11}} \right] \right. \\
 & + \rho_{12}^0 \left[\frac{R_{12}^* R_{21}^0}{\omega_{12} + \omega + i\Gamma_{12}} + \frac{R_{21}^* R_{12}^0}{\omega_{12} - \omega - i\Gamma_{12}} \right] \\
 & + \rho_{21}^0 \left[\frac{R_{21}^* R_{12}^0}{\omega_{21} + \omega + i\Gamma_{21}} + \frac{R_{12}^* R_{21}^0}{\omega_{21} - \omega - i\Gamma_{21}} \right] \\
 & \left. + \rho_{22}^0 \left[\frac{R_{22}^* R_{22}^0}{\omega_{22} + \omega + i\Gamma_{22}} + \frac{R_{22}^* R_{22}^0}{\omega_{22} - \omega - i\Gamma_{22}} \right] \right\}. \quad (2.9-7)
 \end{aligned}$$

显然 $\omega_{11} = \omega_{22} = 0$ ，并且电偶极矩的对角矩阵元素 R_{aa}^0 等都为零。又因电偶极矩算符是厄米算符，有

$$\begin{aligned}
 R_{ab}^0 &= \int u^*(a, \mathbf{r}) \hat{R}_\mu u(b, \mathbf{r}) d\tau \\
 &= \int (\hat{R}_\mu u(a, \mathbf{r}))^* u(b, \mathbf{r}) d\tau \\
 &= \int (u^*(b, \mathbf{r}) \hat{R}_\mu u(a, \mathbf{r}))^* d\tau \\
 &= (R_{ba}^0)^*, \quad (2.9-8)
 \end{aligned}$$

所以(2.9-7)式中第一项和第四项等于零，并考虑到第二项和第三项中分母为 $\omega_{12} + \omega + i\Gamma_{12}$ 的项与分母为 $\omega_{12} - \omega - i\Gamma_{12}$ 的项相比可以忽略不计（假定 $E_1 > E_2$ ），则有

$$\begin{aligned}
 \chi_{\mu a}^{(1)}(\omega) &= - \frac{n}{\epsilon_0 \hbar} \left\{ \rho_{11}^0 \frac{R_{12}^* R_{12}^0}{\omega_{12} - \omega - i\Gamma_{12}} - \rho_{21}^0 \frac{R_{21}^* R_{21}^0}{\omega_{12} - \omega - i\Gamma_{12}} \right\} \\
 &= \frac{n}{\epsilon_0 \hbar} (\rho_{21}^0 - \rho_{11}^0) \left(\frac{R_{21}^* R_{12}^0}{\omega_{12} - \omega - i\Gamma_{12}} \right).
 \end{aligned}$$

写成一般的形式为

$$\chi_{\mu a}^{(1)}(\omega) = \frac{n}{\epsilon_0 \hbar} (\rho_{bb}^0 - \rho_{aa}^0) \left(\frac{R_{ba}^* R_{ab}^0}{\omega_{ab} - \omega - i\Gamma_{ab}} \right). \quad (2.9-9)$$

将上式代入(2.9-6)式后给出

$$W = \frac{2n\omega}{\hbar} (\rho_{bb}^0 - \rho_{aa}^0) \operatorname{Re} \left[-i \frac{E_a^* E_a R_{ba}^* R_{ab}^0}{\omega_{ab} - \omega - i\Gamma_{ab}} \right]. \quad (2.9-10)$$

上式方括号中分子 $-i E_a^* R_{ba}^* E_a R_{ab}^0$ 可写成

$$\begin{aligned}
 & -i (E_a^* R_{ba}^*) (E_a R_{ab}^0) \\
 &= -i (\mathbf{E}^* \cdot \mathbf{R}_{ba}^*) (\mathbf{E} \cdot \mathbf{R}_{ab}^0) \\
 &= -i |\mathbf{E} \cdot \mathbf{R}_{ab}^0|^2. \quad (2.9-11)
 \end{aligned}$$

在求得上式时已利用了(2.9-8)式的关系。将(2.9-11)式代入(2.9-10)式后，我们便得到最后的结果是

$$W = \frac{2n\omega}{\hbar} (\rho_{bb}^0 - \rho_{aa}^0) |\mathbf{E} \cdot \mathbf{R}_{ab}^0|^2 \frac{\Gamma_{ab}}{(\omega_{ab} - \omega)^2 + \Gamma_{ab}^2}. \quad (2.9-12)$$

如果 $\omega \approx \omega_{ab}$ ，并且 $\omega_{ab} > 0$ （这表示 $E_a > E_b$ ），则波尔兹曼因子 $\rho_{bb}^0 > \rho_{aa}^0$ ，由此可得

$W > 0$, 这表示介质从场中吸收能量, 在 $\omega \approx \omega_{ab}$ 处有一个共振吸收峰值。吸收与频率的关系由因子 $\Gamma_{ab}/[(\omega_{ab} - \omega)^2 + \Gamma_{ab}^2]$ 所确定, 即由洛仑兹线型函数所确定, 在半高度处的半宽度即为 Γ_{ab} 。

此外, 在考虑了分子间的相互作用以后, 由(2.9-5)式可得

$$\chi_{\mu\alpha}^{(1)}(-\omega) = -\frac{n}{\epsilon_0 \hbar} \sum_{ab} \rho_{aa}^0 \left[\frac{R_{ab}^\mu R_{ba}^\alpha}{(\omega_{ab} - \omega + i\Gamma_{ab})} + \frac{R_{ab}^\alpha R_{ba}^\mu}{(\omega_{ab} + \omega - i\Gamma_{ab})} \right]. \quad (2.9-13)$$

比较(2.9-5)式和(2.9-13)式, 显然可见

$$\chi_{\mu\alpha}^{(1)}(-\omega) \neq \chi_{\mu\alpha}^{(1)}(\omega).$$

这说明在计及分子之间的相互作用后, 电极化率张量的时间反演对称性就不再成立了。

如果 ω 远离共振区, 即 $(\omega - \omega_{ab}) \gg \Gamma_{ab}$, 那么这时可以将线宽忽略不计, 便有

$$\chi_{\mu\alpha}^{(1)}(\omega) = -\frac{n}{\epsilon_0 \hbar} \sum_{ab} \rho_{aa}^0 \left[\frac{R_{ab}^\mu R_{ba}^\alpha}{\omega_{ab} - \omega} + \frac{R_{ab}^\alpha R_{ba}^\mu}{\omega_{ab} + \omega} \right], \quad (2.9-14)$$

$$\chi_{\mu\alpha}^{(1)}(-\omega) = -\frac{n}{\epsilon_0 \hbar} \sum_{ab} \rho_{aa}^0 \left[\frac{R_{ab}^\mu R_{ba}^\alpha}{\omega_{ab} - \omega} + \frac{R_{ab}^\alpha R_{ba}^\mu}{\omega_{ab} + \omega} \right].$$

但是由(2.9-8)式和由电偶极矩矩阵元素都是实数的概念, 有

$$R_{ab}^\mu = (R_{ba}^\mu)^* = R_{ba}^\mu,$$

因而(2.9-14)式中的

$$\begin{aligned} R_{ab}^\mu R_{ba}^\alpha &= R_{ba}^\mu R_{ab}^\alpha, \\ R_{ab}^\alpha R_{ba}^\mu &= R_{ba}^\alpha R_{ab}^\mu. \end{aligned}$$

由此便得

$$\chi_{\mu\alpha}^{(1)}(\omega) = \chi_{\mu\alpha}^{(1)}(-\omega).$$

这说明在远离共振区的情况下, 电极化率张量才有时间反演对称性。

同样可以分析说明当 $\Gamma_{ab} \neq 0$ 时, 电极化率张量的完全对易对称性也不再成立, 即

$$\chi_{\mu\alpha}^{(1)}(\omega) \neq \chi_{\alpha\mu}^{(1)}(-\omega) \quad \Gamma_{ab} \neq 0.$$

但是可以分析说明, 不管频率是复数还是实数, 一阶电极化率张量 $\chi^{(1)}(\omega)$ 是一个对称张量, 即有

$$\begin{aligned} \chi_{\mu\alpha}^{(1)}(\omega) &= -\frac{n}{\epsilon_0 \hbar} \sum_{ab} \rho_{aa}^0 \left[\frac{R_{ab}^\mu R_{ba}^\alpha}{(\omega_{ab} + \omega + i\Gamma_{ab})} + \frac{R_{ab}^\alpha R_{ba}^\mu}{(\omega_{ab} - \omega - i\Gamma_{ab})} \right] \\ &= -\frac{n}{\epsilon_0 \hbar} \sum_{ab} \rho_{aa}^0 \left[\frac{R_{ab}^\mu R_{ba}^\alpha}{(\omega_{ab} + \omega + i\Gamma_{ab})} + \frac{R_{ab}^\alpha R_{ba}^\mu}{(\omega_{ab} - \omega - i\Gamma_{ab})} \right] \\ &= \chi_{\alpha\mu}^{(1)}(\omega). \end{aligned}$$

2. 二阶和三阶电极化率张量元素表示式的修正

修正二阶和三阶电极化率张量表示式的方法和以上修正一阶电极化率张量元素的方法相类似。当考虑分子间相互作用时, 只要将表示式(2.4-41)式和(2.4-45)式中的跃迁频率 ω_{ab} 等用 $\omega_{ab} \pm i\Gamma_{ab}$ 代替即可。至于用 $\omega_{ab} + i\Gamma_{ab}$ 还是用 $\omega_{ab} - i\Gamma_{ab}$ 代替, 由因果律条件所确定, 也就是要求电极化率张量的极点必须在下半个复数频率平面内。所以有

$$\chi_{\mu\alpha\beta}^{(2)}(\omega_1, \omega_2) = \hat{S} \frac{n}{2! \epsilon_0 \hbar^2} \sum_{abc} \rho_{aaa}^0 \times \left[\frac{R_{ab}^\mu R_{bc}^\alpha R_{ca}^\beta}{(\omega_{ab} + i\Gamma_{ab} + \omega_1 + \omega_2)(\omega_{bc} + i\Gamma_{bc} + \omega_2)} \right]$$

$$\begin{aligned}
 & + \frac{R_{ab}^{\alpha} R_{bc}^{\beta} R_{ca}^{\gamma}}{(\omega_{ab} - i\Gamma_{ab} - \omega_1)(\omega_{ac} + i\Gamma_{ac} + \omega_2)} \\
 & + \frac{R_{ab}^{\alpha} R_{bc}^{\beta} R_{ca}^{\gamma}}{(\omega_{ab} - i\Gamma_{ab} - \omega_1)(\omega_{ac} - i\Gamma_{ac} - \omega_1 - \omega_2)} \Big], \quad (2.9-15) \\
 & \chi_{\alpha\beta}^{(3)}(\omega_1, \omega_2, \omega_3) \\
 & = -\hat{S} \frac{n}{3! \epsilon_0 \hbar^3} \sum_{abcd} \rho_{\alpha\alpha}^0 \\
 & \times \left[\frac{R_{ab}^{\alpha} R_{bc}^{\beta} R_{cd}^{\gamma} R_{da}^{\delta}}{(\omega_{ab} + i\Gamma_{ab} - \omega_1 + \omega_2 + \omega_3)(\omega_{ac} - i\Gamma_{ac} + \omega_2 + \omega_3)(\omega_{ad} + i\Gamma_{ad} + \omega_3)} \right. \\
 & + \frac{R_{ab}^{\alpha} R_{bc}^{\beta} R_{cd}^{\gamma} R_{da}^{\delta}}{(\omega_{ab} - i\Gamma_{ab} - \omega_1)(\omega_{ac} + i\Gamma_{ac} + \omega_2 + \omega_3)(\omega_{ad} + i\Gamma_{ad} + \omega_3)} \\
 & + \frac{R_{ab}^{\alpha} R_{bc}^{\beta} R_{cd}^{\gamma} R_{da}^{\delta}}{(\omega_{ab} - i\Gamma_{ab} - \omega_1)(\omega_{ac} - i\Gamma_{ac} - \omega_1 - \omega_2)(\omega_{ad} + i\Gamma_{ad} + \omega_3)} \\
 & \left. + \frac{R_{ab}^{\alpha} R_{bc}^{\beta} R_{cd}^{\gamma} R_{da}^{\delta}}{(\omega_{ab} - i\Gamma_{ab} - \omega_1)(\omega_{ac} - i\Gamma_{ac} - \omega_1 - \omega_2)(\omega_{ad} - i\Gamma_{ad} - \omega_1 - \omega_2 - \omega_3)} \right]. \quad (2.9-16)
 \end{aligned}$$

和讨论一阶电极化率张量 $\chi_{\alpha\beta}^{(1)}(\omega)$ 一样, 只有当频率 ω_1 、 ω_2 和 ω_3 以及它们的组合频率远离所有跃迁频率时, 线宽 Γ_{ac} 、 Γ_{ad} 和 Γ_{ab} 等才可忽略, 从而保持电极化率张量的完全对易对称的性质和时间反演对称的性质, 否则这两种对称性是不能成立的。

十、共振电极化率

在这一节里我们将介绍所谓共振增强的概念, 并给出在共振增强情况下共振电极化率的表示式。不过应该明确, 对于不同的过程来说, 共振电极化率的表示式是不同的。

例1 受激喇曼过程。

现在假定有两个频率为 ω_p 和 ω_s 的场, 而且满足 $(\omega_p - \omega_s) = \omega_{to}$, 这里的 ω_{to} 表示分子基态 O 和终态 t 之间的跃迁频率。在频率为 ω_p (泵浦频率)的场作用下, 频率为 ω_s 的信号被放大, 这个过程就是我们将在第六章中所要讨论的受激喇曼过程。控制这个过程的电极化率张量为 $\chi^{(3)}(-\omega_s, \omega_p, -\omega_p, \omega_s)$ 。下面我们求出元素 $\chi_{\mu\alpha}^{(3)}(-\omega_s, \omega_p, -\omega_p, \omega_s)$ 的表示式。

首先根据本章四中的费曼图给出电极化率张量元素 $\chi_{\mu\alpha}^{(3)}(-\omega_s, \omega_p, -\omega_p, \omega_s)$ 的表示式为

$$\begin{aligned}
 \chi_{\mu\alpha}^{(3)}(-\omega_s, \omega_p, -\omega_p, \omega_s) &= \hat{S} \frac{n}{3! \epsilon_0 \hbar^3} \sum_{abcd} \rho_{\alpha\alpha}^0 \\
 & \times \left[\begin{array}{cccc} \omega_{\sigma} = -\omega_s & \omega_p & -\omega_p & \omega_s \\ \swarrow & \swarrow & \swarrow & \swarrow \\ a & b & c & d & a \end{array} \right]
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
& + \left[\begin{array}{cccc} \omega_p & -\omega_s & -\omega_p & \omega_s \\ \swarrow & \nearrow & \swarrow & \searrow \\ a & b & c & d & a \end{array} \right. \\
& + \left[\begin{array}{cccc} \omega_p & -\omega_p & -\omega_s & \omega_s \\ \swarrow & \nearrow & \swarrow & \searrow \\ a & b & c & d & a \end{array} \right. \\
& + \left. \left[\begin{array}{cccc} \omega_p & -\omega_p & \omega_s & -\omega_s \\ \swarrow & \nearrow & \swarrow & \searrow \\ a & b & c & d & a \end{array} \right] \right] \\
= & \hat{S} \frac{n}{3! \epsilon_0 \hbar^3} \sum_{abcd} \rho_{aa}^0 \\
& \times \left[\frac{R_{ab}^\beta R_{bc}^\alpha R_{cd}^\beta R_{da}^\gamma}{(\omega_{ba} - i\Gamma_{ba} - \omega_s)(\omega_{ca} - i\Gamma_{ca} - \omega_s + \omega_p)(\omega_{da} - i\Gamma_{da} - \omega_s + \omega_p - \omega_p)} \right. \\
& + \frac{R_{ab}^\alpha R_{bc}^\alpha R_{cd}^\beta R_{da}^\gamma}{(\omega_{ba} + i\Gamma_{ba} + \omega_p)(\omega_{ca} - i\Gamma_{ca} - \omega_s + \omega_p)(\omega_{da} - i\Gamma_{da} + \omega_p - \omega_s - \omega_p)} \\
& + \frac{R_{ab}^\alpha R_{bc}^\beta R_{cd}^\alpha R_{da}^\gamma}{(\omega_{ba} + i\Gamma_{ba} + \omega_p)(\omega_{ca} + i\Gamma_{ca} + \omega_p - \omega_p)(\omega_{da} - i\Gamma_{da} + \omega_p - \omega_p - \omega_s)} \\
& \left. + \frac{R_{ab}^\alpha R_{bc}^\beta R_{cd}^\alpha R_{da}^\beta}{(\omega_{ba} + i\Gamma_{ba} + \omega_p)(\omega_{ca} + i\Gamma_{ca} + \omega_p - \omega_p)(\omega_{da} + i\Gamma_{da} + \omega_p - \omega_p + \omega_s)} \right]. \tag{2.10-1}
\end{aligned}$$

机
组

式中虚部正负号的选择规则是^[11]：在费曼图中，箭头 ω 右边的共振分母的因子中取 $-i\Gamma$ 的形式，在其左边的共振分母的因子中取 $+i\Gamma$ 的形式。

郑
导
线

我们需要检验以上各个因子，去寻找分母只有形式为 $(\omega_p - \omega_s + \omega_{at})$ 的项，因为这是一个共振因子，只有满足这种形式的项才比较大。现为简单起见，假定介质处于绝对零度(0K)，这样，当态 a 是基态 O 时， $\rho_{aa}^0 = 1$ ，而在其它态上 $\rho_{aa}^0 = 0$ 。当检验以上各项因子时，显然第一项和第二项不能满足 $\omega_{at} + \omega_p - \omega_s$ 的要求。可是第三项和第四项中的因子 $\omega_{ca} + i\Gamma_{ca} + \omega_p - \omega_p$ 在配对 (α, ω_p) ， $(\beta, -\omega_p)$ 和 (γ, ω_s) 所有可能的对易下能使之具有 $(\omega_{at} + \omega_p - \omega_s - i\Gamma_{at})$ 的形式。例如作由 $(\gamma\omega_s, \beta(-\omega_p), \alpha\omega_p) \rightarrow (\alpha\omega_p, \beta(-\omega_p), \gamma\omega_s)$ 的代换，并当 $c=t$ 和 $a=O$ 时，因子 $\omega_{ca} + i\Gamma_{ca} + \omega_p - \omega_p$ 便可变为 $(\omega_{at} - i\Gamma_{at} + \omega_p - \omega_s)$ 的形式。事实上，对(2.10-1)式中第三项按对称化算符 \hat{S} 展开时有

$$\begin{aligned}
= & \frac{n}{3! \epsilon_0 \hbar^3} \sum_{abcd} \left[\frac{R_{ab}^\alpha R_{bc}^\beta R_{cd}^\alpha R_{da}^\gamma}{(\omega_{ob} - i\Gamma_{ob} - \omega_p)(\omega_{ot} - i\Gamma_{ot} - \omega_p + \omega_p)(\omega_{od} + i\Gamma_{od} + \omega_s)} \right. \\
& + \frac{R_{ab}^\alpha R_{bc}^\gamma R_{cd}^\alpha R_{da}^\beta}{(\omega_{ob} - i\Gamma_{ob} - \omega_p)(\omega_{ot} - i\Gamma_{ot} - \omega_s - \omega_p)(\omega_{od} + i\Gamma_{od} - \omega_p)} \\
& + \frac{R_{ab}^\beta R_{bc}^\alpha R_{cd}^\alpha R_{da}^\gamma}{(\omega_{ob} - i\Gamma_{ob} + \omega_p)(\omega_{ot} - i\Gamma_{ot} + \omega_p - \omega_p)(\omega_{od} + i\Gamma_{od} + \omega_s)} \\
& \left. + \frac{R_{ab}^\beta R_{bc}^\gamma R_{cd}^\alpha R_{da}^\beta}{(\omega_{ob} - i\Gamma_{ob} + \omega_p)(\omega_{ot} - i\Gamma_{ot} + \omega_p - \omega_s)(\omega_{od} + i\Gamma_{od} + \omega_p)} \right]
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
& + \left. \begin{aligned} & \frac{R_{ob}^{\gamma} R_{bt}^{\alpha} R_{td}^{\mu} R_{do}^{\beta}}{(\omega_{ob} - i\Gamma_{ob} - \omega_s)(\omega_{ot} - i\Gamma_{ot} - \omega_p - \omega_s)(\omega_{od} + i\Gamma_{od} - \omega_p)} \\ & \frac{R_{ob}^{\gamma} R_{bt}^{\beta} R_{td}^{\mu} R_{do}^{\alpha}}{(\omega_{ob} - i\Gamma_{ob} - \omega_s)(\omega_{ot} - i\Gamma_{ot} + \omega_p - \omega_s)(\omega_{od} + i\Gamma_{od} + \omega_p)} \end{aligned} \right\}. \quad (2.10-2)
\end{aligned}$$

显然, 由(2.10-2)式可见, 第四项和第六项分母含有共振因子 $\omega_{ot} + \omega_p - \omega_s - i\Gamma_{ot}$, 而其它项与这两项相比分母较大, 故可忽略不计。这样, (2.10-2)式便变为

$$-\frac{n}{3! \epsilon_0 \hbar^3} \sum_{bd} \left[\frac{R_{ob}^{\alpha} R_{bt}^{\gamma} R_{td}^{\mu} R_{do}^{\beta}}{(\omega_{ob} + \omega_p)(\omega_{od} + \omega_p)} + \frac{R_{ob}^{\gamma} R_{bt}^{\beta} R_{td}^{\mu} R_{do}^{\alpha}}{(\omega_{od} + \omega_p)(\omega_{ob} - \omega_s)} \right] \frac{1}{(\omega_{ot} - i\Gamma_{ot} + \omega_p - \omega_s)}. \quad (2.10-3)$$

按同样的分析方法, 可得(2.10-1)式中第四项按对称化算符 \hat{S} 展开后有

$$-\frac{n}{3! \epsilon_0 \hbar^3} \sum_{bd} \left[\frac{R_{ob}^{\beta} R_{bt}^{\gamma} R_{td}^{\alpha} R_{do}^{\mu}}{(\omega_{ob} + \omega_p)(\omega_{od} - \omega_s)} + \frac{R_{ob}^{\gamma} R_{bt}^{\beta} R_{td}^{\alpha} R_{do}^{\mu}}{(\omega_{ob} - \omega_s)(\omega_{od} - \omega_s)} \right] \frac{1}{(\omega_{ot} - i\Gamma_{ot} + \omega_p - \omega_s)}. \quad (2.10-4)$$

将式(2.10-3)式和(2.10-4)式相加便给出

$$\begin{aligned}
\chi_{\mu\alpha\rho\gamma}^{(3)}(-\omega_s, \omega_p, -\omega_p, \omega_s) &= -\frac{n}{3! \epsilon_0 \hbar^3} \cdot \frac{1}{(\omega_{ot} - i\Gamma_{ot} + \omega_p - \omega_s)} \\
&\times \sum_{bd} \left[\frac{R_{ob}^{\alpha} R_{bt}^{\gamma} R_{td}^{\mu} R_{do}^{\beta}}{(\omega_{ob} + \omega_p)(\omega_{od} + \omega_p)} + \frac{R_{ob}^{\gamma} R_{bt}^{\beta} R_{td}^{\mu} R_{do}^{\alpha}}{(\omega_{ob} - \omega_s)(\omega_{od} + \omega_p)} \right. \\
&\left. + \frac{R_{ob}^{\beta} R_{bt}^{\gamma} R_{td}^{\alpha} R_{do}^{\mu}}{(\omega_{ob} + \omega_p)(\omega_{od} - \omega_s)} + \frac{R_{ob}^{\gamma} R_{bt}^{\beta} R_{td}^{\alpha} R_{do}^{\mu}}{(\omega_{ob} - \omega_s)(\omega_{od} - \omega_s)} \right]. \quad (2.10-5)
\end{aligned}$$

注意, 在写出(2.10-3)~(2.10-5)式时, 已假定频率 ω_p 和 ω_s 都不接近于分子跃迁频率所以在分母中除共振因子 $\omega_{ot} + i\Gamma_{ot} + \omega_p - \omega_s$ 中保留 Γ_{ot} 外, 其它因子中的线宽均已忽略。

现将(2.10-5)式改写为

$$\begin{aligned}
\chi_{\mu\alpha\rho\gamma}^{(3)}(-\omega_s, \omega_p, -\omega_p, \omega_s) &= -\frac{n}{3! \epsilon_0 \hbar^3} \cdot \frac{1}{(\omega_{ot} - i\Gamma_{ot} + \omega_p - \omega_s)} \\
&\times \sum_{bd} \left\{ \frac{R_{ob}^{\alpha} R_{bt}^{\gamma}}{(\omega_{ob} + \omega_p)} + \frac{R_{ob}^{\gamma} R_{bt}^{\alpha}}{(\omega_{ob} - \omega_s)} \right\} \left\{ \frac{R_{td}^{\mu} R_{do}^{\beta}}{(\omega_{od} + \omega_p)} + \frac{R_{td}^{\beta} R_{do}^{\mu}}{(\omega_{od} - \omega_s)} \right\}, \quad (2.10-6)
\end{aligned}$$

而其中

$$\begin{aligned}
& \sum_{bd} \left\{ \frac{R_{ob}^{\alpha} R_{bt}^{\gamma}}{(\omega_{ob} + \omega_p)} + \frac{R_{ob}^{\gamma} R_{bt}^{\alpha}}{(\omega_{ob} - \omega_s)} \right\} \left\{ \frac{R_{td}^{\mu} R_{do}^{\beta}}{(\omega_{od} + \omega_p)} + \frac{R_{td}^{\beta} R_{do}^{\mu}}{(\omega_{od} - \omega_s)} \right\} \\
&= \sum_b \left\{ \frac{R_{ob}^{\alpha} R_{bt}^{\gamma}}{(\omega_{ob} + \omega_p)} + \frac{R_{ob}^{\gamma} R_{bt}^{\alpha}}{(\omega_{ob} - \omega_s)} \right\} \sum_d \left\{ \frac{R_{td}^{\mu} R_{do}^{\beta}}{(\omega_{od} + \omega_p)} + \frac{R_{td}^{\beta} R_{do}^{\mu}}{(\omega_{od} - \omega_s)} \right\}. \quad (2.10-7)
\end{aligned}$$

若引入符号

$$f_{br}(\omega_p, -\omega_s) = \sum_b \left\{ \frac{R_{ob}^{\alpha} R_{bt}^{\gamma}}{\omega_{ob} - \omega_p} + \frac{R_{ob}^{\gamma} R_{bt}^{\alpha}}{\omega_{ob} + \omega_s} \right\}, \quad (2.10-8)$$

由于电偶极矩算符是厄米算符，则有

$$\begin{aligned}
 f_{\alpha\mu}^*(\omega_p, -\omega_s) &= \sum_b \left\{ \frac{R_{\alpha b}^x R_{b\mu}^x}{\omega_{b\alpha} - \omega_p} + \frac{R_{\alpha b}^y R_{b\mu}^y}{\omega_{b\alpha} + \omega_s} \right\}^* \\
 &= \sum_b \left\{ \frac{R_{b\alpha}^x R_{\mu b}^x}{\omega_{b\alpha} - \omega_p} + \frac{R_{b\alpha}^y R_{\mu b}^y}{\omega_{b\alpha} + \omega_s} \right\} \\
 &= \sum_b \left\{ \frac{R_{\mu b}^x R_{b\alpha}^x}{\omega_{b\alpha} - \omega_p} + \frac{R_{\mu b}^y R_{b\alpha}^y}{\omega_{b\alpha} + \omega_s} \right\}. \tag{2.10-9}
 \end{aligned}$$

现将(2.10-7)式代入(2.10-6)式并利用(2.10-8)式和(2.10-9)式，最后得

$$\begin{aligned}
 \chi_{\mu\alpha}^{(3)}{}_{\beta\gamma}(-\omega_s, \omega_p, -\omega_n, \omega_s) &= -\frac{n}{3! \epsilon_0 \hbar^3} \frac{1}{(\omega_{\alpha\mu} - i\Gamma_{\alpha\mu} + \omega_p - \omega_s)} \\
 &\times \sum_b \left\{ \frac{R_{\mu b}^x R_{b\alpha}^x}{\omega_{b\alpha} - \omega_p} + \frac{R_{\mu b}^y R_{b\alpha}^y}{\omega_{b\alpha} + \omega_s} \right\} \sum_b \left\{ \frac{R_{\alpha b}^x R_{b\mu}^x}{\omega_{b\alpha} - \omega_p} + \frac{R_{\alpha b}^y R_{b\mu}^y}{\omega_{b\alpha} + \omega_s} \right\} \\
 &= -\frac{n}{3! \epsilon_0 \hbar^3} \frac{1}{(\omega_{\alpha\mu} - i\Gamma_{\alpha\mu} + \omega_p - \omega_s)} f_{\mu\alpha}^*(\omega_p, -\omega_s) f_{\beta\gamma}(\omega_p, -\omega_s). \tag{2.10-10}
 \end{aligned}$$

由(2.10-10)式可以看到，当满足关系

$$\omega_p - \omega_s = \omega_{\alpha\mu}$$

时，(2.10-10)式中分母因子 $\omega_{\alpha\mu} + \omega_p - \omega_s - i\Gamma_{\alpha\mu}$ 很小，从而使三阶电极化率张量元素 $\chi_{\mu\alpha}^{(3)}{}_{\beta\gamma}(-\omega_s, \omega_p, -\omega_n, \omega_s)$ 增大，这就是所谓电极化率共振增强的概念。(2.10-10)式也就是受激喇曼过程的共振电极化率的表示式。

例 2 三次谐波产生的双光子共振增强的三阶电极化率 $\chi_{\mu\alpha}^{(3)}{}_{\beta\gamma}(-3\omega, \omega, \omega, \omega)$ 。

假设原子具有如图2-1所示的简化能级图。即：有四个电子能级，其中能级0和2的字称相同；能级1和3的字称相同，但与0和2的字称相反。这表明在电偶极跃迁的情况下能级间产生的电偶极跃迁应如图中的箭头所示。

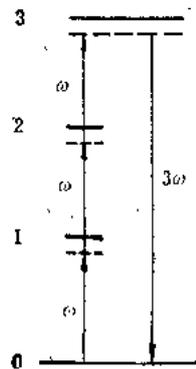


图 2-1 由简单四能级系统产生三次谐波

首先按费曼图写出三次谐波的三阶电极化率 $\chi_{\mu\alpha}^{(3)}{}_{\beta\gamma}(-3\omega, \omega, \omega, \omega)$ 的表示式为

$$\begin{aligned}
 \chi_{\mu\alpha}^{(3)}{}_{\beta\gamma}(-3\omega, \omega, \omega, \omega) &= -\hat{S} \frac{n}{3! \epsilon_0 \hbar^3} \sum_{a,b,c,d} \rho_{\alpha a}^0 \\
 &\times \left[\begin{array}{cccc} & & \omega & \omega \\ & & \swarrow & \swarrow \\ -3\omega & & & \\ \swarrow & & & \\ a & b & c & d \end{array} \right. \\
 &+ \begin{array}{cccc} & & \omega & \omega \\ & & \swarrow & \swarrow \\ \omega & & -3\omega & \\ \swarrow & & & \\ a & b & c & d \end{array} \\
 &+ \begin{array}{cccc} & & \omega & \omega \\ & & \swarrow & \swarrow \\ \omega & & \omega & -3\omega \\ \swarrow & & & \\ a & b & c & d \end{array} \\
 &\left. \begin{array}{cccc} & & \omega & \omega \\ & & \swarrow & \swarrow \\ \omega & & \omega & -3\omega \\ \swarrow & & & \\ a & b & c & d \end{array} \right]
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
& \left[\begin{array}{cccc} \omega & \omega & \omega & -3\omega \\ \swarrow & \swarrow & \swarrow & \swarrow \\ a & b & c & d \end{array} \right] \\
= & -\hat{S} \frac{n}{3! \epsilon_0 \hbar^3} \sum_{abcd} \rho_{abcd}^0 \\
& \times \left[\frac{R_{ab}^{\alpha} R_{bc}^{\alpha} R_{cd}^{\beta} R_{da}^{\gamma}}{(\omega_{ab} + i\Gamma_{ab} + 3\omega)(\omega_{ac} + i\Gamma_{ac} + 2\omega)(\omega_{ad} + i\Gamma_{ad} + \omega)} \right. \\
& + \frac{R_{ab}^{\alpha} R_{bc}^{\beta} R_{cd}^{\beta} R_{da}^{\gamma}}{(\omega_{ab} - i\Gamma_{ab} - \omega)(\omega_{ac} + i\Gamma_{ac} + 2\omega)(\omega_{ad} + i\Gamma_{ad} + \omega)} \\
& + \frac{R_{ab}^{\alpha} R_{bc}^{\beta} R_{cd}^{\alpha} R_{da}^{\gamma}}{(\omega_{ab} - i\Gamma_{ab} - \omega)(\omega_{ac} - i\Gamma_{ac} - 2\omega)(\omega_{ad} + i\Gamma_{ad} + \omega)} \\
& \left. + \frac{R_{ab}^{\alpha} R_{bc}^{\beta} R_{cd}^{\alpha} R_{da}^{\gamma}}{(\omega_{ab} - i\Gamma_{ab} - \omega)(\omega_{ac} - i\Gamma_{ac} - 2\omega)(\omega_{ad} - i\Gamma_{ad} - 3\omega)} \right]. \tag{2.10-11}
\end{aligned}$$

由(2.10-11)式可见,对双光子共振增强来说,第一项和第二项中的因子 $\omega_{ac} + i\Gamma_{ac} + 2\omega = 0$,第三项和第四项中的因子 $\omega_{ac} - i\Gamma_{ac} - 2\omega = 0$ 。对 $\omega_{ac} + i\Gamma_{ac} + 2\omega = 0$ 来说,要求 c 是终态, a 是基态;对 $\omega_{ac} - i\Gamma_{ac} - 2\omega = 0$ 来说,要求 a 是终态, c 是基态。这样,由(2.10-11)式中第一项和第三项得到

$$\begin{aligned}
& -\hat{S} \frac{n}{3! \epsilon_0 \hbar^3} \sum_{bd} \rho_{bd}^0 \frac{1}{(\omega_{bd} + i\Gamma_{bd} + 2\omega)} \left[\frac{R_{ab}^{\alpha} R_{bc}^{\alpha} R_{cd}^{\beta} R_{da}^{\gamma}}{(\omega_{ab} + i\Gamma_{ab} + 3\omega)(\omega_{ad} + i\Gamma_{ad} + \omega)} \right. \\
& \left. + \frac{R_{ab}^{\alpha} R_{bc}^{\beta} R_{cd}^{\beta} R_{da}^{\gamma}}{(\omega_{ab} - i\Gamma_{ab} - \omega)(\omega_{ad} + i\Gamma_{ad} + \omega)} \right]. \tag{2.10-12}
\end{aligned}$$

现将上式按本征对称化算符 \hat{S} 展开,并略去分母各个因子中的线宽(共振因子项除外)。则(2.10-12)式变为

$$\begin{aligned}
& \frac{n}{3! \epsilon_0 \hbar^3} \rho_{bd}^0 \frac{1}{(\omega_{bd} - i\Gamma_{bd} - 2\omega)} \sum_{bd} \left[\frac{R_{ab}^{\alpha} R_{bc}^{\alpha} R_{cd}^{\beta} R_{da}^{\gamma}}{(\omega_{ba} - 3\omega)(\omega_{da} - \omega)} \right. \\
& + \frac{R_{ab}^{\alpha} R_{bc}^{\alpha} R_{cd}^{\beta} R_{da}^{\gamma}}{(\omega_{ba} - 3\omega)(\omega_{da} - \omega)} + \frac{R_{ab}^{\alpha} R_{bc}^{\beta} R_{cd}^{\beta} R_{da}^{\gamma}}{(\omega_{ba} + \omega)(\omega_{da} - \omega)} + \frac{R_{ab}^{\alpha} R_{bc}^{\beta} R_{cd}^{\alpha} R_{da}^{\gamma}}{(\omega_{ba} + \omega)(\omega_{da} - \omega)} \\
& + \frac{R_{ab}^{\alpha} R_{bc}^{\beta} R_{cd}^{\alpha} R_{da}^{\gamma}}{(\omega_{ba} - 3\omega)(\omega_{da} - \omega)} + \frac{R_{ab}^{\alpha} R_{bc}^{\beta} R_{cd}^{\beta} R_{da}^{\gamma}}{(\omega_{ba} - 3\omega)(\omega_{da} - \omega)} + \frac{R_{ab}^{\alpha} R_{bc}^{\alpha} R_{cd}^{\beta} R_{da}^{\gamma}}{(\omega_{ba} + \omega)(\omega_{da} - \omega)} \\
& + \frac{R_{ab}^{\alpha} R_{bc}^{\beta} R_{cd}^{\alpha} R_{da}^{\gamma}}{(\omega_{ba} + \omega)(\omega_{da} - \omega)} + \frac{R_{ab}^{\alpha} R_{bc}^{\beta} R_{cd}^{\beta} R_{da}^{\gamma}}{(\omega_{ba} - 3\omega)(\omega_{da} - \omega)} + \frac{R_{ab}^{\alpha} R_{bc}^{\alpha} R_{cd}^{\beta} R_{da}^{\gamma}}{(\omega_{ba} - 3\omega)(\omega_{da} - \omega)} \\
& \left. + \frac{R_{ab}^{\alpha} R_{bc}^{\alpha} R_{cd}^{\beta} R_{da}^{\gamma}}{(\omega_{ba} + \omega)(\omega_{da} - \omega)} + \frac{R_{ab}^{\alpha} R_{bc}^{\beta} R_{cd}^{\beta} R_{da}^{\gamma}}{(\omega_{ba} + \omega)(\omega_{da} - \omega)} \right]. \tag{2.10-13}
\end{aligned}$$

(2.10-13)式中的第一项、第二项、第三项和第四项之和为

$$\sum_{bd} \left\{ \left[\frac{R_{ab}^{\alpha} R_{bc}^{\alpha}}{(\omega_{ba} - 3\omega)} + \frac{R_{ab}^{\alpha} R_{bc}^{\beta}}{(\omega_{ba} + \omega)} \right] \left[\frac{R_{cd}^{\beta} R_{da}^{\gamma}}{(\omega_{da} - \omega)} + \frac{R_{cd}^{\alpha} R_{da}^{\gamma}}{(\omega_{da} - \omega)} \right] \right\}$$

$$= \sum_b \left[\frac{R_{b_0}^{\alpha} R_{b_1}^{\alpha}}{(\omega_{b_0} - 3\omega)} + \frac{R_{b_0}^{\alpha} R_{b_1}^{\beta}}{(\omega_{b_0} + \omega)} \right] \sum_a \left[\frac{R_{a_1}^{\beta} R_{a_0}^{\beta}}{(\omega_{a_0} - \omega)} + \frac{R_{a_1}^{\gamma} R_{a_0}^{\gamma}}{(\omega_{a_0} + \omega)} \right]$$

$$= f_{\mu\alpha}(3\omega, -\omega) f_{\gamma\beta}^*(\omega, \omega). \quad (2.10-14)$$

同理(2.9-13)式中第五项到第八项这四项之和为

$$f_{\mu\beta}(3\omega, -\omega) f_{\alpha\gamma}^*(\omega, \omega); \quad (2.10-15)$$

第九项到第十二项这四项之和为

$$f_{\mu\gamma}(3\omega, -\omega) f_{\alpha\alpha}^*(\omega, \omega). \quad (2.10-16)$$

现将(2.10-14)~(2.10-16)式代入(2.10-13)式后便得到(2.10-11)式中第一、二两项的结果为

$$\frac{n}{3! \epsilon_0 \hbar^3} \cdot \frac{1}{(\omega_{i_0} - i\Gamma_{i_0} - 2\omega)} \rho_{o_0}^0 [f_{\mu\alpha}(3\omega, -\omega) f_{\gamma\beta}^*(\omega, \omega)$$

$$+ f_{\mu\beta}(3\omega, -\omega) f_{\alpha\gamma}^*(\omega, \omega) + f_{\mu\gamma}(3\omega, -\omega) f_{\alpha\alpha}^*(\omega, \omega)]. \quad (2.10-17)$$

如果基态 O 是简并的, 则上式变为

$$\frac{n}{3! \epsilon_0 \hbar^3} \cdot \frac{1}{(\omega_{i_0} - i\Gamma_{i_0} - 2\omega)} \sum_{o \text{ 的简并度}} \rho_{o_0}^0 [f_{\mu\alpha}(3\omega, -\omega) f_{\gamma\beta}^*(\omega, \omega)$$

$$+ f_{\mu\beta}(3\omega, -\omega) f_{\alpha\gamma}^*(\omega, \omega) + f_{\mu\gamma}(3\omega, -\omega) f_{\alpha\alpha}^*(\omega, \omega)]. \quad (2.10-18)$$

(2.10-11)式中第三和第四两项对共振增强电极化率的贡献为

$$-\hat{S} \frac{1}{3! \epsilon_0 \hbar^3} \sum_{i \text{ 的简并度}} \rho_{i_1}^0 \frac{1}{(\omega_{i_0} - i\Gamma_{i_0} - 2\omega)}$$

$$\times \sum_{b,d} \left[\frac{R_{i_b}^{\alpha} R_{b_0}^{\beta} R_{b_1}^{\beta} R_{d_1}^{\gamma}}{(\omega_{b_1} + \omega)(\omega_{d_1} - \omega)} + \frac{R_{i_b}^{\alpha} R_{b_1}^{\beta} R_{b_0}^{\gamma} R_{d_0}^{\alpha}}{(\omega_{b_1} + \omega)(\omega_{d_1} + 3\omega)} \right]. \quad (2.10-19)$$

上式已考虑到终态能级也是简并的情况, 并已将非共振项中的线宽忽略不计。

若将关系式

$$\omega_{b_1} = \omega_{b_0} + \omega_{b_1} = \omega_{b_0} - \omega_{i_0}$$

$$= \omega_{b_0} - 2\omega,$$

$$\omega_{d_1} = \omega_{d_0} - 2\omega$$

代入(2.10-19)式, 则得

$$-\hat{S} \frac{n}{3! \epsilon_0 \hbar^3} \sum_{i \text{ 的简并度}} \rho_{i_1}^0 \frac{1}{(\omega_{i_0} - i\Gamma_{i_0} - 2\omega)}$$

$$\times \sum_{b,d} \left[\frac{R_{i_b}^{\alpha} R_{b_0}^{\beta} R_{b_1}^{\beta} R_{d_1}^{\gamma}}{(\omega_{b_0} - \omega)(\omega_{d_0} - 3\omega)} + \frac{R_{i_b}^{\alpha} R_{b_1}^{\beta} R_{b_0}^{\gamma} R_{d_0}^{\alpha}}{(\omega_{b_0} - \omega)(\omega_{d_0} + \omega)} \right]. \quad (2.10-20)$$

将上式方括号中的因子按本征对称化算符 \hat{S} 展开, 可以得到(2.10-17)式方括号中一样的因子。这样, 最后求得三次谐波产生的双光子共振增强的电极化率张量元素为

$$\chi_{\mu\alpha\beta\gamma}^{(3)}(-3\omega, \omega, \omega, \omega) = \frac{n}{3! \epsilon_0 \hbar^3} \cdot \frac{1}{(\omega_{i_0} - i\Gamma_{i_0} - 2\omega)}$$

$$\times \sum_{o, i \text{ 简并度}} (\rho_{o_0}^0 - \rho_{i_1}^0) [f_{\mu\alpha}(3\omega, -\omega) f_{\gamma\beta}^*(\omega, \omega)$$

$$+ f_{\mu\beta}(3\omega, -\omega) f_{\alpha\gamma}^*(\omega, \omega) + f_{\mu\gamma}(3\omega, -\omega) f_{\beta\alpha}^*(\omega, \omega)] \quad (2.10-21)$$

如果非线性介质是各向同性的碱金属蒸汽，并且假定入射的频率为 ω 的激光场的场振动方向在 z 方向，则电偶极矩矩阵元只有 z 分量，即 $R_{ij} = -e\langle i|z|j\rangle$ ，而且三阶电极化率张量元素只有 $\chi_{zzz}^{(3)}(-3\omega, \omega, \omega, \omega)$ 分量。这时(2.10-11)式和(2.10-21)式便分别变为

$$\begin{aligned} \chi^{(3)}(3\omega) &= \chi^{(3)}(-3\omega, \omega, \omega, \omega) \\ &= -\frac{ne^4}{3! \epsilon_0 \hbar^3} \sum_{a,b,c,d} \rho_{aa}^0 \langle a|z|b\rangle \langle b|z|c\rangle \langle c|z|d\rangle \langle d|z|a\rangle \\ &\quad \times \left[\frac{1}{(\omega_{ab} + i\Gamma_{ab} + 3\omega)(\omega_{ac} + i\Gamma_{ac} + 2\omega)(\omega_{ad} + i\Gamma_{ad} + \omega)} \right. \\ &\quad + \frac{1}{(\omega_{ab} - i\Gamma_{ab} - \omega)(\omega_{ac} + i\Gamma_{ac} + 2\omega)(\omega_{ad} + i\Gamma_{ad} + \omega)} \\ &\quad + \frac{1}{(\omega_{ab} - i\Gamma_{ab} - \omega)(\omega_{ac} - i\Gamma_{ac} - 2\omega)(\omega_{ad} + i\Gamma_{ad} + \omega)} \\ &\quad \left. + \frac{1}{(\omega_{ab} - i\Gamma_{ab} - \omega)(\omega_{ac} - i\Gamma_{ac} - 2\omega)(\omega_{ad} - i\Gamma_{ad} - \omega)} \right] \end{aligned} \quad (2.10-22)$$

和

$$\chi^{(3)}(3\omega) = \frac{n}{2\epsilon_0 \hbar^3} \frac{1}{(\omega_{to} - i\Gamma_{to} - 2\omega)} \sum_{o,t \text{ 的简并度}} (\rho_{oo}^0 - \rho_{tt}^0) f(3\omega, -\omega) f^*(\omega, \omega) \quad (2.10-23)$$

式中

$$f(3\omega, -\omega) = \sum_b \left\{ \frac{R_{ob}R_{bt}}{(\omega_{bo} - 3\omega)} + \frac{R_{ob}R_{bt}}{(\omega_{bo} + \omega)} \right\} \quad (2.10-24)$$

$$f^*(\omega, \omega) = \sum_a \left\{ \frac{R_{ta}R_{ao}}{(\omega_{ao} - \omega)} + \frac{R_{ta}R_{ao}}{(\omega_{ao} + \omega)} \right\} \quad (2.10-25)$$

由图2-2所示的钠的能级图可以清楚地看到，对红宝石激光波长而言， $3s$ 和 $3d$ 的两能级之间的能量差近似等于 $2\hbar\omega$ ，所以具有双光子共振增强的 $\chi^{(3)}(3\omega)$ 。

对碱金属来说，轨道量子数 $l \neq 0$ 的能级要考虑 L - S 耦合，能级要分裂，如果激励频率与共振频率之差远大于能级分裂的量，那么可以将 L - S 耦合忽略不计，用一个平均的共振频率代替分裂的共振线。碱金属原子的角动量与自旋的本征态和氢原子的相同，但径向量子数 n 必须根据特殊的碱金属的径向波函数求得。假定原子系统的本征态用 $|nlm_l m_s\rangle$

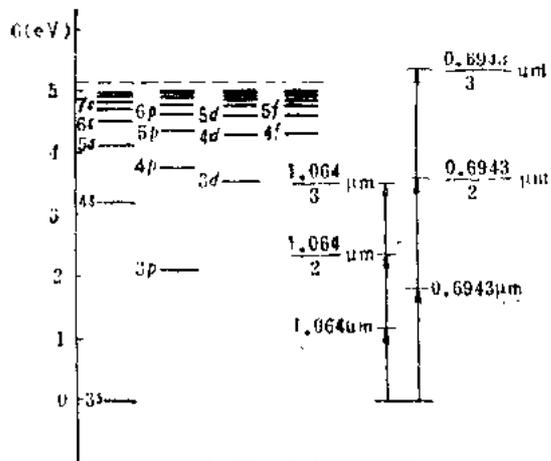


图 2-2 钠的能级图

表示, 其中 $m_l = l, l-1, \dots, -l$, $m_s = \pm 1/2$ 。电偶极矩阵元 $\langle i | z | j \rangle$ 的选择定则 $\Delta l = \pm 1$, $\Delta m_l = 0$ 和 $\Delta m_s = 0$ 。碱金属原子的基态可用 $n=s, l=s$ 表示。如果原子处于基态上, 则 $\chi^{(3)}(3\omega)$ 中的电偶极矩阵元 R_{ab} 中的 a 即基态 (g, s) , 可能的跃迁表示在图2-3中。

假定碱金属原子都处于基态, 根据图2-3碱金属原子可能的跃迁, 则(2.10-22)式便可写成

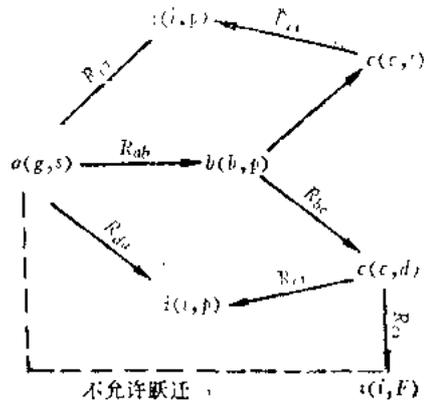


图2-3 碱金属原子可能跃迁的示意图

$$\begin{aligned} \chi^{(3)}(3\omega) = & -\frac{ne^3}{3! \epsilon_0 \hbar^3} \sum_{a b c d} \left\{ \langle g s 0 \frac{1}{2} | z | b p 0 \frac{1}{2} \rangle \right. \\ & \times \langle b p 0 \frac{1}{2} | z | c s 0 \frac{1}{2} \rangle \langle c s 0 \frac{1}{2} | z | i p 0 \frac{1}{2} \rangle \\ & \times \langle i p 0 \frac{1}{2} | z | g s 0 \frac{1}{2} \rangle A_{b p, c s, i p} \\ & + \langle g s 0 \frac{1}{2} | z | b p 0 \frac{1}{2} \rangle \langle b p 0 \frac{1}{2} | z | c d 0 \frac{1}{2} \rangle \\ & \times \langle c d 0 \frac{1}{2} | z | i p 0 \frac{1}{2} \rangle \langle i p 0 \frac{1}{2} | z | g s 0 \frac{1}{2} \rangle \\ & \left. \times A_{b p, c d, i p} \right\} \end{aligned} \quad (2.10-26)$$

(注意在(2.10-22)式求和号 $\sum_{a b c d}$ 中的 d 在这里已用符号 i 代替, 以免与 $l=2$ 的态符号 d 相混)。式中因子 $A_{b p, c s, i p}$ 和 $A_{b p, c d, i p}$ 对应于(2.10-22)式中的频率因子。

(2.10-26)式中的电偶极矩阵元的 z 分量可用轨道量子数 l 和磁量子数 m_l 以及径向因子 $\mathcal{R}_{n, l; n', l+1}$ 来表示^[12], 有

$$\langle n l m_l | z | n' l+1 m_l \rangle = [(l+1)^2 - m_l^2]^{1/2} \mathcal{R}_{n, l; n', l+1} \quad (2.10-27)$$

$$\text{和} \quad \mathcal{R}_{n, l; n', l+1} = [(2l+1)(2l+3)]^{-1/2} \int_0^\infty r^3 R_{n, l} R_{n', l+1} dr \quad (2.10-28)$$

式中 $R_{n, l}$ 是径向波函数。

因为(2.10-26)式中电偶极矩阵元素中只包含 $m_l = 0$ 的态, 因此在计算三次谐波的非线性电极化率时, 只要计算

$$\langle n l 0 | z | n' l+1 0 \rangle = (l+1) \mathcal{R}_{n, l; n', l+1} \quad (2.10-29)$$

即可。亦即: 如果知道径向波函数 $R_{n, l}$, 根据(2.10-28)式便可求得径向因子 $\mathcal{R}_{n, l; n', l+1}$, 从而由(2.10-29)式给出矩阵元 $\langle n l 0 | z | n' l+1 0 \rangle$ 。

计算电偶极矩阵元素的另一种方法是由贝茨(Bates)和达姆加特(Damgaard)给出

的，他们用振子强度来表示矩阵元素 $\langle n l 0 | z | n' l+1 0 \rangle$ ，具体的表示式^[11]为

$$|\langle n l 0 | z | n' l+1 0 \rangle|^2 = f_{n', l+1; n, l} \frac{\hbar}{2m_e \omega_{n', l+1; n, l}} \frac{3(l+1)}{2l+3} \quad (2.10-30)$$

式中 $f_{n', l+1; n, l}$ 是振子强度， $\hbar \omega_{n', l+1; n, l}$ 是态 $|n l 0\rangle$ 和态 $|n' l+1 0\rangle$ 之间的能量差， m_e 是电子的质量。如果将共振频率 ω 写成能量差，单位为里德伯(Rydberg) (里德伯恒量 $R = 109677.6 \text{ cm}^{-1}$)，矩阵元单位为玻尔(Bohr)半径，那么

$$|\langle n l 0 | z | n' l+1 0 \rangle| = \left(\frac{f_{n', l+1; n, l} \cdot 3(l+1)}{E_{n', l+1} - E_{n, l}} (2l+3) \right)^{1/2} \quad (2.10-31)$$

关于各种碱金属的各种跃迁的振子强度，各种跃迁的能量差(单位为里德伯)以及电偶极矩矩阵元素的数值可参考文献[11]。

图2-4到图2-8^[11]是用静电单位(esu)表示的每个原子的三次谐波电极化率的计算值，在转换到国际单位时，只要乘上一个 $(4\pi \times 10^{-13})/9$ 的值即可，单位为 $\text{cm}^5 \text{ V}^{-2}$ 。在图2-2中，可以看出红宝石波长接近 $3s-3d$ 跃迁，具有双光子共振的特点，这表现在图2-5中靠近 $0.7 \mu\text{m}$ 处具有共振增强的电极化率(在图的顶部用 $3d$ 表出)。此外，在图中还可看到其它的共振结构，如对 p 能级的单光子共振结构(基频或三次谐波的)以及对 s 能级或 d 能级的双光子共振结构。

迈尔斯(Miles)和哈里斯(Harris)在计算电极化率时，对每一种碱金属只是利用最低的四个 s 、 p 、 d 能级。而由这12个能级在(2.10-26)式求和时，含有128项，它给出三阶电极化率的近似值。当激励频率的基波、二次谐波或三次谐波在这些能级以上并在电离电位以下时，上述近似不很好。近似不好的频率范围用“近似无效”来表示，即图2-4到图2-8中的阴影区域。

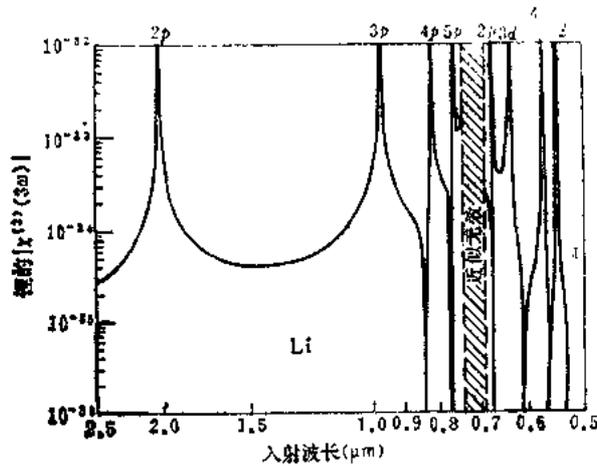


图 2-4 锂的非线性电极化率与波长的关系

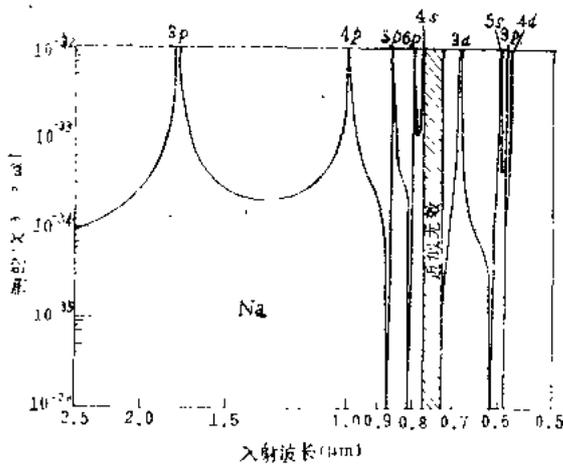


图 2-5 钠的非线性电极化率与波长的关系

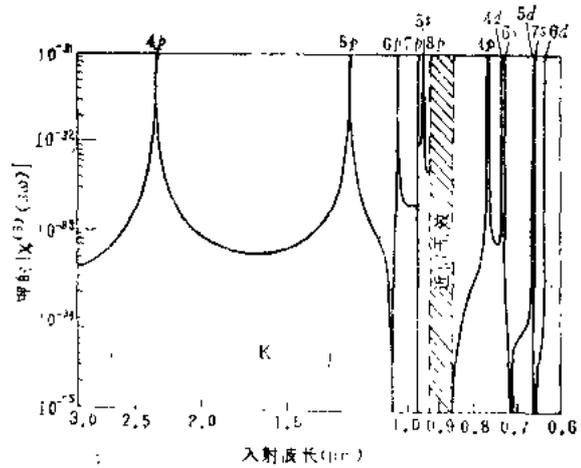


图 2-6 钾的非线性电极化率与波长的关系

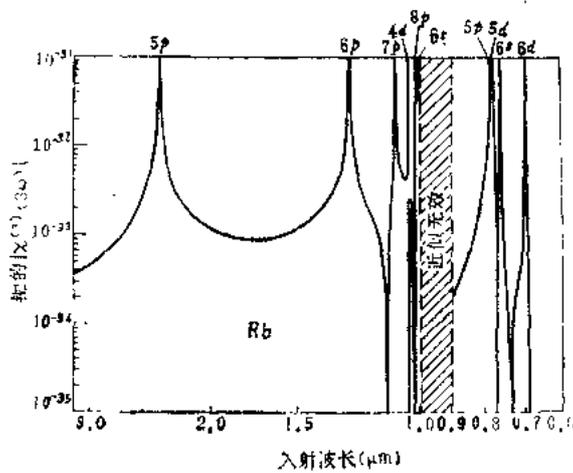


图 2-7 铷的非线性电极化率与波长的关系

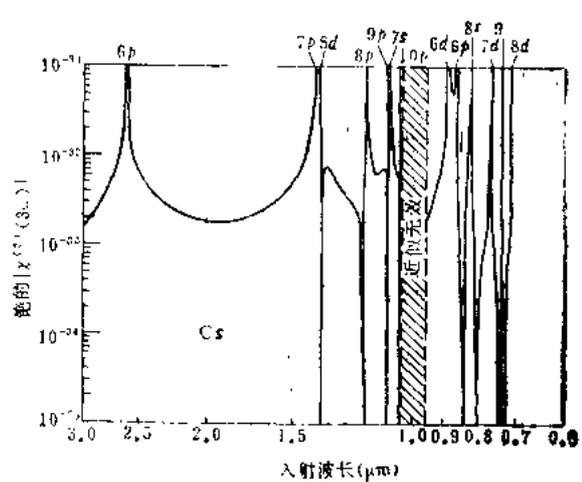


图 2-8 铯的非线性电极化率与波长的关系

十一、准单色辐射的非线性电极化

在这一节里我们将给出脉冲场所感应的线性极化的规律，然后推广到脉冲场所引起的非线性极化的情况。通过这一节内容的讨论，可使我们清楚地看到在什么样的条件下场的瞬时响应性质才显得重要。

现在假定电场是一个准单色波场，即

$$E(t) = E_{\omega_0}(t) \exp(-i\omega_0 t) + C.C. \quad (2.11-1)$$

式中 $E_{\omega_0}(t)$ 是一个慢变化的包络函数。对线性电极化强度来说，也有类似的展开式，包络函数为 $P_{\omega_0}^{(1)}(t)$ 。(2.11-1)式表示包络函数 $E_{\omega_0}(t)$ 对频率为 ω_0 的载波进行调制。将(2.11-1)式两边作傅里叶展开：

$$E(t) = \int_{-\infty}^{\infty} E(\omega) \exp(-i\omega t) d\omega$$

$$= \int_{-\infty}^{\infty} E_{\omega_0}(\omega) \exp(-i\omega t) \exp(-i\omega_0 t) d\omega \\ + \int_{-\infty}^{\infty} E_{\omega_0}^*(\omega) \exp(-i\omega t) \exp(i\omega_0 t) d\omega,$$

式中 $E_{\omega_0}(\omega)$ 是包络函数 $E_{\omega_0}(t)$ 的傅里叶分量。现在, 在上式右边第一项中令 $\omega \rightarrow (\omega - \omega_0)$, 在第二项中令 $\omega \rightarrow (\omega + \omega_0)$, 则有

$$\int_{-\infty}^{\infty} E(\omega) \exp(-i\omega t) d\omega \\ = \int_{-\infty}^{\infty} E_{\omega_0}(\omega - \omega_0) \exp(-i\omega t) d\omega \\ + \int_{-\infty}^{\infty} E_{\omega_0}^*(\omega + \omega_0) \exp(-i\omega t) d\omega,$$

所以
$$E(\omega) = E_{\omega_0}(\omega - \omega_0) + E_{\omega_0}^*(\omega + \omega_0). \quad (2.11-2)$$

利用一维情况下的线性电极化强度的表示式

$$P^{(1)}(t) = \epsilon_0 \int_{-\infty}^{\infty} \chi^{(1)}(-\omega, \omega) E(\omega) \exp(-i\omega t) d\omega,$$

并将(2.11-2)式代入后得

$$P^{(1)}(t) = \epsilon_0 \int_{-\infty}^{\infty} \chi^{(1)}(-\omega, \omega) \exp(-i\omega t) [E_{\omega_0}(\omega - \omega_0) + E_{\omega_0}^*(\omega + \omega_0)] d\omega. \quad (2.11-3)$$

又

$$P^{(1)}(t) = P_{\omega_0}^{(1)}(t) \exp(-i\omega_0 t) + P_{\omega_0}^{* (1)}(t) \exp(i\omega_0 t), \quad (2.11-4)$$

比较(2.11-3)、(2.11-4)式, 可以得到线性电极化强度的包络函数 $P_{\omega_0}^{(1)}(t)$ 为

$$P_{\omega_0}^{(1)}(t) = \epsilon_0 \int_{-\infty}^{\infty} \chi^{(1)}(-\omega, \omega) E_{\omega_0}(\omega - \omega_0) \exp[-i(\omega - \omega_0)t] d\omega. \quad (2.11-5)$$

关于线性电极化率 $\chi^{(1)}(-\omega, \omega)$, 我们在本章前几节中已作了详细的讨论并给出了具体的表示式, 因此, 可以认为原则上电极化率是已知的。下面我们将讨论两种极限的情况, 对每一种情况来说, 脉冲场的形式是任意的。

1. 绝热极限

假定脉冲场的载频 ω_0 是在介质的透明区域, 所以在频率 ω 接近 ω_0 处, $\chi^{(1)}(-\omega, \omega)$ 只是频率 ω 的慢变化函数, 于是可将电极化率 $\chi^{(1)}(-\omega, \omega)$ 围绕 ω_0 展开为台劳(Taylor)级数, 这样, (2.11-5)式变为

$$P_{\omega_0}^{(1)}(t) = \epsilon_0 \chi^{(1)}(-\omega_0, \omega_0) \int_{-\infty}^{\infty} E_{\omega_0}(\omega - \omega_0) \exp[-i(\omega - \omega_0)t] d\omega$$

$$\begin{aligned}
 & + \epsilon_0 \left. \frac{\partial \chi^{(1)}(-\omega, \omega)}{\partial \omega} \right|_{\omega_0} \int_{-\infty}^t (\omega - \omega_0) E_{\omega_0}(\omega - \omega_0) \\
 & \times \exp[-i(\omega - \omega_0)t] d\omega + \dots \quad (2.11-6)
 \end{aligned}$$

上式中的第一个积分简单地就是 $E_{\omega_0}(t)$ ，第二个积分是 $i dE_{\omega_0}(t)/dt$ 。所以

$$P_{\omega_0}^{(1)}(t) = \epsilon_0 \chi^{(1)}(-\omega_0, \omega_0) E_{\omega_0}(t) + i \epsilon_0 \left. \frac{\partial \chi^{(1)}(-\omega, \omega)}{\partial \omega} \right|_{\omega_0} \frac{dE_{\omega_0}(t)}{dt} + \dots \quad (2.11-7)$$

在这里， $\chi^{(1)}(-\omega, \omega)$ 和 $E_{\omega_0}(t)$ 有连续的更高阶导数。根据(2.11-7)式，我们可以按如下关系：

$$\chi^{(1)}(\omega_0) = \chi^{(1)}(-\omega_0, \omega_0) + i \left. \frac{\partial \chi^{(1)}}{\partial \omega} \right|_{\omega_0} \frac{1}{E_{\omega_0}(t)} \frac{dE_{\omega_0}(t)}{dt} + \dots, \quad (2.11-8)$$

定义一个量 $\bar{\chi}^{(1)}(\omega_0)$ ，使得线性电极化强度的包络函数 $P_{\omega_0}^{(1)}(t)$ 具有

$$P_{\omega_0}^{(1)}(t) = \epsilon_0 \bar{\chi}^{(1)}(\omega_0) E_{\omega_0}(t) \quad (2.11-9)$$

的形式。不过要强调指出的是， $\bar{\chi}^{(1)}(\omega_0)$ 不是电极化率，而且(2.11-9)式很容易使人误解在时刻 t 时的电极化强度由瞬时场 $E_{\omega_0}(t)$ 所确定。事实上并不是这样，在时刻 t 的电极化强度并不是简单地由该时刻的瞬时场 $E_{\omega_0}(t)$ 所确定，而与场的历史有关。然而在一个足够的非色散的介质中，或场的包络函数变化足够慢，使得(2.11-7)式中的导数项可以忽略不计的情况下有

$$\bar{\chi}^{(1)}(\omega_0) = \chi^{(1)}(-\omega_0, \omega_0). \quad (2.11-10)$$

由此可见，只有在上述条件下，在时刻 t ，介质中所感应的电极化强度才只与瞬时场有关。这种情况叫做绝热极限。在绝热极限下有

$$P_{\omega_0}^{(1)} = \epsilon_0 \chi^{(1)}(-\omega, \omega) E_{\omega_0}. \quad (2.11-11)$$

以上只是我们根据(2.11-7)式定性地说线性电极化强度与场之间瞬时响应的要求。下面我们进一步分析(2.11-7)式中第二项可以被忽略的具体条件。由(2.11-7)式可见，如果满足条件

$$\left| \left(\chi^{(1)}(-\omega_0, \omega_0) \frac{\partial \chi^{(1)}}{\partial \omega} \right) \left(E_{\omega_0}(t) \frac{dE_{\omega_0}(t)}{dt} \right) \right| \ll 1, \quad (2.11-12)$$

则(2.11-7)式中的第二项可略。

另外，由(2.9-5)式

$$\chi_{aa}^{(1)}(-\omega, \omega) = - \frac{n}{\epsilon_0 \hbar} \sum_{ab} \rho_{aa}^0 \left[\frac{R_{ab}^* R_{ba}^*}{\omega_{ab} + \omega + i\Gamma_{ab}} + \frac{R_{ba}^* R_{ab}^*}{\omega_{ab} - \omega - i\Gamma_{ab}} \right], \quad (2.11-13)$$

这里已加进了阻尼系数 Γ_{ab} ，这样

$$\left. \frac{\partial \chi_{aa}^{(1)}(-\omega, \omega)}{\partial \omega} \right|_{\omega_0} = - \frac{n}{\epsilon_0 \hbar} \sum_{ab} \rho_{aa}^0 \left[- \frac{R_{ab}^* R_{ba}^*}{(\omega_{ab} + \omega_0 + i\Gamma_{ab})^2} + \frac{R_{ba}^* R_{ab}^*}{(\omega_{ab} - \omega_0 - i\Gamma_{ab})^2} \right]. \quad (2.11-14)$$

如果 ω_0 接近某一个跃迁频率 Ω_{n_0} 时,则由(2.11-13)式和(2.11-14)式给出

$$\chi_{n_0}^{(1)}(-\omega_0, \omega_0) \frac{\partial \chi_{n_0}^{(1)}(-\omega, \omega)}{\partial \omega} \Big|_{\omega_0} = \left| \frac{1}{\Delta - i\Gamma} \right| \quad (2.11-15)$$

式中 Δ 是频率失调并等于 $\Omega_{n_0} - \omega_0$ 。将关系(2.11-15)式代入(2.11-12)式后便给出

$$\left| \frac{1}{\Delta - i\Gamma} \frac{1}{E_{\omega_0}} \frac{dE_{\omega_0}}{dt} \right| \ll 1 \quad (2.11-16)$$

因为式中 dE_{ω_0}/dt 表示脉冲场包络函数的变化速率,所以 $[(1/E_{\omega_0})(dE_{\omega_0}/dt)]^{-1}$ 可以被理解为脉冲长度或脉冲的上升时间,并用 τ_c 表示。如果脉冲激光的线宽用 $\Delta\omega$ 表示,那么 $\tau_c = 1/\Delta\omega$ 。这样,(2.11-16)式又可改写为

$$\left| \frac{1}{\Delta - i\Gamma\tau_c} \right| \ll 1 \quad (2.11-17)$$

或

$$\left| \frac{\Delta - i\Gamma}{\Delta\omega} \right| \gg 1. \quad (2.11-18)$$

式中 $|\Delta - i\Gamma|^{-1}$ 是时间的量纲,叫做介质对频率为 ω_0 的辐射的响应时间。(2.11-17)式或(2.11-18)式就是我们所要求的绝热极限的表示式。由这两式可见,如果脉冲愈短,或 $\Delta\omega$ 愈大,则绝热条件愈不容易满足,这样,由脉冲场所引起的响应便与场的历史有关。

又如对三阶电极化来说,按(1.3-12)式,有

$$P^{(3)}(t) = \epsilon_0 \int_{-\infty}^{\infty} d\omega_1 \int_{-\infty}^{\infty} d\omega_2 \int_{-\infty}^{\infty} \chi^{(3)}(\omega_1, \omega_2, \omega_3) \\ \times E(\omega_1)E(\omega_2)E(\omega_3) \exp[-i(\omega_1 + \omega_2 + \omega_3)t] d\omega_3.$$

如将(2.11-2)式形式的 $E(\omega_i)$,即

$$E(\omega_i) = E_{\omega_{i0}}(\omega_i - \omega_{i0}) + E_{\omega_{i0}}^*(\omega_i + \omega_{i0})$$

代入上式,便给出

$$P^{(3)}(t) = \epsilon_0 \int_{-\infty}^{\infty} d\omega_1 \int_{-\infty}^{\infty} d\omega_2 \int_{-\infty}^{\infty} \chi^{(3)}(\omega_1, \omega_2, \omega_3) \\ \times [E_{\omega_{10}}(\omega_1 - \omega_{10}) + E_{\omega_{10}}^*(\omega_1 + \omega_{10})] [E_{\omega_{20}}(\omega_2 - \omega_{20}) + E_{\omega_{20}}^*(\omega_2 + \omega_{20})] \\ \times [E_{\omega_{30}}(\omega_3 - \omega_{30}) + E_{\omega_{30}}^*(\omega_3 + \omega_{30})] \exp[-i(\omega_1 + \omega_2 + \omega_3)t] d\omega_3. \quad (2.11-19)$$

当研究三次谐波产生的情况时,(2.11-19)式中的 $\omega_{10} = \omega_{20} = \omega_{30} = \omega_0$, $\omega_1 = \omega_2 = \omega_3 = \omega$ 。并考虑到载频为 ω_0 的辐射是脉冲的形式,包络函数 $E_{\omega_0}(t)$ 的傅里叶分量 $E_{\omega_0}(\Omega)$ 在 $\Omega = 0$ 附近有尖锐的峰值。这样,由(2.11-19)式可给出

$$P^{(3)}_{3\omega_0}(t) \exp(-i3\omega_0 t) \\ = \epsilon_0 \int_{-\infty}^{\infty} d\omega \int_{-\infty}^{\infty} d\omega \int_{-\infty}^{\infty} \chi^{(3)}(-3\omega, \omega, \omega, \omega) \\ \times E_{\omega_0}(\omega - \omega_0)E_{\omega_0}(\omega - \omega_0)E_{\omega_0}(\omega - \omega_0) \exp(-i3\omega t) d\omega. \quad (2.11-20)$$

当 $\chi^{(3)}(-3\omega, \omega, \omega, \omega)$ 在 ω_0 处只是 ω 的慢变化函数时,我们便可以按讨论线性电极化相

同的方法和步骤，将 $\chi^{(3)}(-3\omega, \omega, \omega, \omega)$ 在 ω_0 处按台劳展开：

$$\chi^{(3)}(-3\omega, \omega, \omega, \omega) = \chi^{(3)}(-3\omega_0, \omega_0, \omega_0, \omega_0) + 3 \frac{\partial}{\partial \omega} \chi^{(3)}(-2\omega_0 + \omega, \omega_0, \omega_0, \omega) \Big|_{\omega_0} (\omega - \omega_0) + \dots \quad (2.11-21)$$

并代入(2.11-20)式得

$$P_{3\omega_0}^{(3)}(t) \exp(-i3\omega_0 t) = \chi^{(3)}(-3\omega_0, \omega_0, \omega_0, \omega_0) \left[\int_{-\infty}^{\infty} d\omega E_{\omega_0}(\omega - \omega_0) \exp(-i\omega t) \right]^3 + 3 \frac{\partial \chi^{(3)}}{\partial \omega} \Big|_{\omega_0} \left\{ \int_{-\infty}^{\infty} d\omega \int_{-\infty}^{\infty} d\omega' \int_{-\infty}^{\infty} d\omega'' (\omega - \omega_0) E_{\omega_0}(\omega - \omega_0) \times E_{\omega_0}(\omega' - \omega_0) E_{\omega_0}(\omega'' - \omega_0) \exp(-i3\omega t) \right\} + \dots \quad (2.11-22)$$

式中

$$\int_{-\infty}^{\infty} d\omega E_{\omega_0}(\omega - \omega_0) \exp(-i\omega t) \exp(i\omega_0 t) = E_{\omega_0}(t) \quad (2.11-23)$$

$$\int_{-\infty}^{\infty} d\omega \int_{-\infty}^{\infty} d\omega' \int_{-\infty}^{\infty} d\omega'' (\omega - \omega_0) E_{\omega_0}(\omega - \omega_0) E_{\omega_0}(\omega' - \omega_0) E_{\omega_0}(\omega'' - \omega_0) \times E_{\omega_0}(\omega - \omega_0) \exp[-i(3\omega - 3\omega_0)t] d\omega = \frac{i}{3} \frac{dE_{\omega_0}^3(t)}{dt} = i E_{\omega_0}(t) \frac{dE_{\omega_0}}{dt} \quad (2.11-24)$$

将(2.11-23)式和(2.11-24)式代入(2.11-22)式后，便给出

$$P_{3\omega_0}^{(3)}(t) = \varepsilon_0 \left\{ \chi^{(3)}(-3\omega_0, \omega_0, \omega_0, \omega_0) + 3i \frac{\partial \chi^{(3)}}{\partial \omega} \Big|_{\omega_0} \frac{1}{E_{\omega_0}(t)} \frac{dE_{\omega_0}(t)}{dt} \right\} E_{\omega_0}^3(t) \quad (2.11-25)$$

当给出三阶电极化率的表示式 $\chi^{(3)}$ ，并计算导数 $\frac{\partial \chi^{(3)}}{\partial \omega} \Big|_{\omega_0}$ 后，可以发现，我们仍能得到条件(2.11-17)式，不过这里的 $\Delta - i\Gamma$ 与三次谐波电极化率表示式分母中的数值为最小的一个因子相对应。例如对于双光子共振电极化率来说，为 $\omega_{10} - 2\omega - i\Gamma_{10}$ 。按(2.11-17)式就有 $|\omega_{10} - 2\omega - i\Gamma| \tau_c \gg 1$ 。显然，对于其它过程也都有与此相类似的条件。

实际上，在远离和接近共振过程的一个很宽的范围，特别是在讨论毫微秒脉冲的情况下，绝热条件(2.11-17)式总是能被满足的。

最后要强调指出的是，因子 $|\Delta - i\Gamma|^{-1}$ 具有时间的量纲，用它来表征介质对频率为 ω_0 的辐射的响应时间。

2、 ω_0 接近共振频率的情况

到此，我们应该十分明确，当辐射场与原子系统相互作用的时间 $\tau_c \gg (1/|\Delta - i\Gamma|)$ 时，原子系统对场的响应可以用我们以上所讨论的电极化理论去描述。但在比较短的脉冲或

超短脉冲与共振吸收介质相互作用时, 这时 $\Delta = 0$, 脉冲持续时间 $\tau_c \ll (1/F)$ (F 是共振线宽, 在自然加宽和均匀加宽的情况下, $1/F$ 与所谓工作粒子的纵向弛豫时间 T_1 和 横向弛豫时间 T_2 相对应。 T_1 主要决定于粒子通过自发辐射跃迁到低能级上的速率, 即跃迁的自发辐射寿命。 T_2 主要决定于由各种均匀加宽机理如粒子间或粒子与声子之间的相互碰撞作用等对跃迁速率所产生的影响, 一般认为 $T_2 \approx (1/\Delta f_{\text{均}})$, 式中 $\Delta f_{\text{均}}$ 是均匀加宽。此外, 与跃迁谱线的非均匀加宽 $(\Delta f)_{\text{非均}}$ 的倒数相对应的量, 也用一 个时间 T_2^* 表示。即 $T_2^* \approx (1/(\Delta f)_{\text{非均}})$ 。对一般处于低温条件下的非均匀固体共振介质有 $T_2^* \ll T_2 \ll T_1$, 对常温下的气体共振介质有 $T_2^* \ll T_2 \ll T_1$)。由于场与物质的相互作用时间 $\tau_c \ll T_2, T_1$, 因而在 $\tau_c \ll T_2, T_1$ 的时间范围内, 工作粒子由自发辐射以及其它各种均匀加宽机制所决定的随机性的弛豫过程均可忽略。因此, 这时可以认为所有工作粒子与入射光场发生相互作用是同步的, 同时, 由于 τ_c 很短, 入射光脉冲的光谱宽度由脉冲持续时间的倒数所确定, 满足测不准关系, 这就意味着整个光脉冲的持续时间是光场的相干时间。这样, 在超短脉冲作用下的过程被叫做瞬态相干作用过程。在下面我们详细分析说明这种过程的最主要的特点是, 共振介质某一时刻对入射光场的响应特性, 不但与该时刻的入射光的场强有关, 而且与这时刻前所有时刻光的场强有关。

现在我们在时间域内来讨论当 ω_0 接近于介质的一个共振跃迁的极限情况^[11]。由 (2.11-8) 式即

$$P^{(1)}(t) = \int_{-\infty}^t \epsilon_0 R(t-\tau) E(\tau) d\tau,$$

我们知道式中响应函数 $R(t-\tau)$ 在 $\tau > t$ 时为零, 所以上式又可改写为

$$P^{(1)}(t) = \int_{-\infty}^{\infty} \epsilon_0 R(t-\tau) E(\tau) d\tau. \quad (2.11-26)$$

另外, 在一维情况下的电极化率表示式可以从 (2.11-13) 式简化为

$$\chi^{(1)}(-\omega, \omega) = \frac{n}{\epsilon_0 \hbar} \sum_b |R_{b0}|^2 \left\{ \frac{1}{\omega_{b0} - \omega - i\Gamma_{b0}} + \frac{1}{\omega_{b0} + \omega + i\Gamma_{b0}} \right\}, \quad (2.11-27)$$

在此式中已假定在热平衡状态下原子处于基态 0 , 即有 $\rho_{00}^0 = 1$, 而在其它态上, $\rho_{nn}^0 = 0$ 。

再由 (2.11-23) 式并将 (2.11-27) 式代入, 有

$$\begin{aligned} P^{(1)}(t) &= \epsilon_0 \int_{-\infty}^{\infty} \chi^{(1)}(-\omega, \omega) E(\omega) \exp(-i\omega t) d\omega \\ &= \epsilon_0 \int_{-\infty}^{\infty} \frac{n}{\epsilon_0 \hbar} \sum_b |R_{b0}|^2 \left\{ \frac{1}{\omega_{b0} - \omega - i\Gamma_{b0}} + \frac{1}{\omega_{b0} + \omega + i\Gamma_{b0}} \right\} \\ &\quad \times E(\omega) \exp(-i\omega t) d\omega. \end{aligned} \quad (2.11-28)$$

如果考虑到频率 ω 接近某一共振频率 ω_{b0} 的情况, 则 (2.11-28) 式中的第二项可略, 并且求和号 \sum 可略, 这样, (2.11-28) 式变为

$$P^{(1)}(t) = \frac{n}{\hbar} |R_{b0}|^2 \int_{-\infty}^{\infty} E(\omega) \exp(-i\omega t) \frac{1}{\omega_{b0} - \omega - i\Gamma_{b0}} d\omega$$

$$\begin{aligned}
&= \frac{n}{\hbar} |R_{b_0}|^2 \int_{-\infty}^t E(\omega) \exp(-i\omega_{b_0}t) \exp(-\Gamma_{b_0}t) \\
&\quad \times \frac{\exp(i(\omega_{b_0} - \omega - i\Gamma_{b_0})t)}{\omega_{b_0} - \omega - i\Gamma_{b_0}} d\omega \\
&= i \frac{n}{\hbar} |R_{b_0}|^2 \int_{-\infty}^{\infty} E(\omega) d\omega \int_{-\infty}^t \exp(-t\omega_{b_0} - \Gamma_{b_0}t) \\
&\quad \times \exp(i(\omega_{b_0} - \omega - i\Gamma_{b_0})\tau) d\tau \\
&= \int_{-\infty}^t i \frac{n}{\hbar} |R_{b_0}|^2 \int_{-\infty}^{\infty} E(\omega) \exp(-i\omega\tau) d\omega \\
&\quad \times \exp(-i\omega_{b_0}(t-\tau)) \exp(-\Gamma_{b_0}(t-\tau)) d\tau, \tag{2.11-29}
\end{aligned}$$

如将(1.1-8)式的 $P^{(1)}(t)$ 写为

$$\begin{aligned}
P^{(1)}(t) &= \int_{-\infty}^t \varepsilon_0 R(t-\tau) E(\tau) d\tau \\
&= \int_{-\infty}^t \varepsilon_0 R(t-\tau) \int_{-\infty}^{\infty} E(\omega) \exp(-i\omega\tau) d\omega d\tau, \tag{2.11-30}
\end{aligned}$$

那么比较(2.11-29)式和(2.11-30)式可得

$$R(t-\tau) = i \frac{n}{\varepsilon_0 \hbar} |R_{b_0}|^2 \exp(-\Gamma_{b_0}(t-\tau)) \exp(-i\omega_{b_0}(t-\tau)). \tag{2.11-31}$$

再将(2.11-31)式代入(1.1-8)式并利用(2.11-1)式后便给出

$$P_{\omega_0}^{(1)}(t) = i \frac{n}{\hbar} |R_{b_0}|^2 \int_{-\infty}^t E_{\omega_0}(\tau) \exp(-(i\Delta + \Gamma_{b_0})(t-\tau)) d\tau. \tag{2.11-32}$$

式中

$$\Delta = \omega_{b_0} - \omega_0. \tag{2.11-33}$$

(2.11-32)式可利用分部积分求得:

$$\begin{aligned}
P_{\omega_0}^{(1)}(t) &= i \frac{n}{\hbar} |R_{b_0}|^2 \left\{ \int_{-\infty}^t E_{\omega_0}(\tau) d\tau + (i\Delta + \Gamma_{b_0}) \int_{-\infty}^t \int_{-\infty}^{\tau} E_{\omega_0}(\tau') d\tau' \right. \\
&\quad \left. \times \exp(-(i\Delta + \Gamma_{b_0})(t-\tau)) d\tau \right\}. \tag{2.11-34}
\end{aligned}$$

由(2.11-34)式清楚地看到, $P_{\omega_0}^{(1)}(t)$ 与场的历史有关, 这相当于介质对某一考查时刻前入射场有记忆的能力。从数学上来表达共振介质与超短脉冲的瞬态相干作用时, 就是由(2.11-34)式中第一个积分即入射光场强对时间的积分 $\int_{-\infty}^t E_{\omega_0}(\tau) d\tau$ 所决定。属于瞬态相干作用下的现象有光子回波(这将在第八章中介绍)、自感应透明、光学章动等效应(可参阅文献(14))。

最后要指出的是, (2.11-7)式和(2.11-34)式都是一阶电极化强度的展开式,

它们是互补的。(2.11-34)式第一项只有在 $|\Delta - i\Gamma_{00}| \tau_c \ll 1$ 的情况下才是一个很好的近似。而 $|\Delta - i\Gamma_{00}| \tau_c \ll 1$ 这个条件正好与绝热极限 $\tau_c |\Delta - i\Gamma_{00}| \gg 1$ 相反。一个极端的例子是,如果没有阻尼项,并且在确切的共振条件下,永不能满足绝热条件,因而这时(2.11-34)式中只有第一项。一般讲,(2.11-34)式适用于超短脉冲辐射,并且在研究相干脉冲的传播时很重要。

十二、带电粒子能在介质中自由移动情

况下的电极化率张量的表示式

在本章三中,我们给出了在光频条件下任何介质中电极化率张量的一般表示式即(2.3-34)式为

$$\begin{aligned} \chi_{\mu\alpha_1 \dots \alpha_r}^{(\tau)}(\omega_1, \omega_2, \dots, \omega_r) &= \frac{1}{\epsilon_0 V r!} \hat{S}(-i\hbar)^{-r} \int_{-\infty}^0 dt \int_{-\infty}^{t_1} dt_2 \dots \\ &\times \left[\tau^{-1} \text{tr} \left\{ \hat{\rho}_0 \left[\dots \left[(\hat{R}_\mu, \hat{R}_{\alpha_1}(t_1)), \hat{R}_{\alpha_2}(t_2) \right], \dots, \hat{R}_{\alpha_r}(t_r) \right] \right\} \right] \\ &\times \exp \left[-i \sum_{n=1}^r \omega_n t_n \right] dt_n. \end{aligned} \quad (2.12-1)$$

在特殊的情况下,如介质可被看作由不可区分的、独立的和取向相似的分子组成的集合,那么正如本章四和五中所讨论的那样,电极化率张量元素由(2.5-8)式给出。现在我们回到一般情况下的(2.11-1)式。如果在体积为 V 的介质中,荷电粒子可以自由地在其中运动,而不是被束缚于单个分子中,那么电偶极矩矩阵元便与体积 V 的大小和形状有关了。这就给计算电偶极矩矩阵元带来了困难。但若将(2.11-1)式变为另一种形式,这种困难便可得到克服。

和本章三一样,我们假定介质的体积 V 足够小,以致可以认为在这范围内电场的空间变化可以忽略不计,并假定 V 内含有 N 个荷电的粒子。令 m_j 、 q_j 和 p_j 分别表示第 j 个带电粒子的质量、电荷和动量。另外,如将作用在荷电粒子上的电场 $\mathbf{E}(t)$ 用磁矢位 \mathbf{A} 表示时,那么根据电磁场理论有

$$\mathbf{E}(t) = -\frac{\partial \mathbf{A}}{\partial t}. \quad (2.12-2)$$

又根据以上假定,在体积 V 内的电场不随位置而变,那么荷电粒子系统由于外加场 $\mathbf{E}(t)$ 所产生的微扰能量为

$$H_1(t) = -\sum_j q_j \mathbf{E}(t) \cdot \mathbf{r}_j = \sum_j q_j \Phi(\mathbf{r}_j, t). \quad (2.12-3)$$

式中 \mathbf{r}_j 是第 j 个荷电粒子的位置矢量; $\Phi(\mathbf{r}_j, t)$ 是时刻 t 电场中位置 \mathbf{r}_j 处的电势。

根据量子力学,在上述体积 V 中的一个荷电粒子的薛定谔方程为

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \psi(\mathbf{r}, t) = \left\{ \frac{1}{2m} (\hat{\mathbf{p}} - q\hat{\mathbf{A}}(t))^2 + \hat{V}(\mathbf{r}) \right\} \psi(\mathbf{r}, t) \quad (2.12-4)$$

如果令 [15] ,

$$\psi(\mathbf{r}, t) = \exp\left[-\frac{iq}{\hbar} \hat{\mathbf{A}}(t) \cdot \mathbf{r}\right] \varphi(\mathbf{r}, t) \quad (2.12-5)$$

且将其代入 (2.12-4) 式, 并注意到

$$(\hat{\mathbf{p}} - q\hat{\mathbf{A}}(t))\psi(\mathbf{r}, t) = \exp\left[\frac{iq}{\hbar} \hat{\mathbf{A}} \cdot \mathbf{r}\right] \hat{\mathbf{p}}\varphi(\mathbf{r}, t),$$

可以得到

$$\begin{aligned} i\hbar \left[\frac{iq}{\hbar} \hat{\mathbf{A}} \cdot \mathbf{r} \varphi(\mathbf{r}, t) + \dot{\varphi}(\mathbf{r}, t) \right] \exp\left(\frac{iq}{\hbar} \hat{\mathbf{A}} \cdot \mathbf{r}\right) \\ = \exp\left(\frac{iq}{\hbar} \hat{\mathbf{A}} \cdot \mathbf{r}\right) \left[\frac{\hat{\mathbf{p}}^2}{2m} + \hat{V}(\mathbf{r}) \right] \varphi(\mathbf{r}, t). \end{aligned} \quad (2.12-6)$$

利用(2.12-2)式后, 就有关系

$$i\hbar \dot{\varphi}(\mathbf{r}, t) = (\hat{H}_0 - q\hat{\mathbf{E}} \cdot \mathbf{r})\varphi(\mathbf{r}, t), \quad (2.12-7)$$

这表示这里所定义的新的波函数 $\varphi(\mathbf{r}, t)$ 可以代替 $\psi(\mathbf{r}, t)$ 去计算任何算符的期望值。因为这里我们假定电场 $\mathbf{E}(t)$ 在小体积 V 内的空间变化是可以被忽略的, 因而 $\mathbf{A}(t)$ 与坐标 \mathbf{r} 无关, 众所周知, 当电场用一个空间不变的矢量 $\mathbf{A}(t)$ 描述时, 场与具有电荷 q_j 、质量 m_j 和动量 \mathbf{p}_j 的粒子的相互作用能的形式为 $-q_j \mathbf{A}(t) \cdot \mathbf{p}_j / m_j$ 。至于哈密顿中的 $A^2(t)$ 项是可以被忽略的, 因为它只是一个随时间变化的被测能量的起始值, 因而它对所述问题的讨论没有任何物理意义。由此可得, 与微扰能量(2.12-3)式相等价的有

$$\hat{H}_1 = - \sum \frac{q_j}{m_j} \hat{\mathbf{p}}_j \cdot \hat{\mathbf{A}}. \quad (2.12-8)$$

因为(2.12-3)式和(2.12-8)式等价, 因此它们应该导致相同的物理结果。它们不同之处只是我们在描述电磁场时利用了两种不同的规范, 即在(2.12-3)式中我们使矢位等于零, 而在(2.12-8)式中, 我们使标位等于零, 但是系统的物理行为应与规范的选择无关。

我们知道带电粒子系统的动力学行为可以利用在电场作用下的密度算符 $\hat{\rho}(t)$ 的运动方程来描述, 其边界条件也就是整个系统在热平衡情况下的密度算符 $\hat{\rho}_0$, 它由(2.1-44)式确定。密度算符 $\hat{\rho}$ 的运动方程为

$$\frac{d\hat{\rho}}{dt} = \frac{1}{i\hbar} (\hat{H}, \hat{\rho}(t)). \quad (2.12-9)$$

式中 \hat{H} 是运动的荷电粒子系统在外场 $\mathbf{E}(t)$ 中的哈密顿算符, 有

$$H = \sum \frac{\hat{\mathbf{p}}_j^2}{2m_j} - \sum \frac{q_j}{m_j} \hat{\mathbf{p}}_j \cdot \hat{\mathbf{A}}. \quad (2.12-10)$$

令

$$\hat{H} = \sum \frac{q_j}{m_j} \hat{p}_j \quad (2.12-11)$$

它被定义为体积 V 中粒子的无场电流算符。因此荷电粒子系统在外场中的微扰能量 \hat{H}_1 为

$$\begin{aligned} \hat{H}_1 &= - \sum \frac{q_j}{m_j} \hat{p}_j \cdot \hat{A} \\ &= - \hat{H} \cdot \hat{A} \end{aligned} \quad (2.12-12)$$

当求解密度算符 $\hat{\rho}$ 的运动方程(2.12-9)式^[16]时,和求解(2.2-4)式一样,利用微扰级数解(2.2-5)式,并利用相互作用表象。在相互作用表象中,无场电流算符为

$$\hat{H}(t) = \hat{U}_0(-t) \hat{H} \hat{U}_0(t), \quad (2.12-13)$$

式中 $\hat{U}_0(t) = \exp(-H_0 t/\hbar)$ 。求解(2.12-9)式的过程与本二章中求解(2.2-4)式的过程相类似,只是在这里 $\hat{H}'_1(t)$ 的形式为

$$\begin{aligned} \hat{H}'_1(t) &= \hat{U}_0(-t) \hat{H}_1(t) \hat{U}_0(t) \\ &= \hat{U}_0(-t) \left[- \sum \frac{q_j}{m_j} \hat{p}_j \cdot \hat{A} \right] \hat{U}_0(t) \\ &= - \hat{U}_0(-t) \hat{H} \cdot \hat{A} \hat{U}_0(t). \end{aligned}$$

因为矢势 \mathbf{A} 是一个经典量,所以上式可以改写为

$$\begin{aligned} \hat{H}'_1(t) &= - \hat{U}_0(-t) \hat{H} \hat{U}_0(t) \cdot \mathbf{A} \\ &= - \hat{H}(t) \cdot \hat{A} \\ &= - \hat{H}_*(t) \hat{A}_*. \end{aligned} \quad (2.12-14)$$

电极化强度矢量与电流密度矢量有如下的关系:

$$\mathbf{p}(t) = \int_{-\infty}^t \mathbf{J}(\tau) d\tau, \quad (2.12-15)$$

即电极化强度是电流密度的时间积分。而宏观电流密度 $\mathbf{J}(t)$ 为

$$\mathbf{J}(t) = \text{tr}\{\hat{\rho}(t)\hat{\mathbf{J}}\}. \quad (2.12-16)$$

式中 $\hat{\rho}(t)$ 就是我们所要求的方程(2.12-9)式的级数解,即

$$\hat{\rho}(t) = \hat{\rho}_0 + \hat{\rho}_1(t) + \hat{\rho}_2(t) + \dots + \hat{\rho}_r(t) + \dots. \quad (2.12-17)$$

根据(2.2-27)式、(2.3-20)式和(2.12-14)式,有

$$\begin{aligned} \hat{\rho}_1(t) &= (i\hbar)^{-1} \hat{U}_0(t) \int_{-\infty}^t [\hat{H}'_1(t_1), \hat{\rho}_0] \hat{U}_0(-t) dt_1 \\ &= -(i\hbar)^{-1} \hat{U}_0(t) \int_{-\infty}^t \hat{A}_*(t_1) (\hat{H}_*(t_1), \hat{\rho}_0) \hat{U}_0(-t) dt_1 \\ &= -(i\hbar)^{-1} \int_{-\infty}^t \hat{A}_*(t_1) \hat{U}_0(t) (\hat{H}_*(t_1), \hat{\rho}_0) \hat{U}_0(-t) dt_1 \end{aligned}$$

$$= -(i\hbar)^{-1} \int_{-\infty}^t \hat{A}_a(t_1) (\hat{H}_a(t_1-t) \hat{\rho}_0) dt_1 \quad (2.12-18)$$

如果在上述积分中作如下的变换, 即利用 t_1+t 代替 t_1 , 那么

$$\hat{\rho}_1(t) = -(i\hbar)^{-1} \int_{-\infty}^0 \hat{A}_a(t_1+t) (\hat{H}_a(t_1), \hat{\rho}_0) dt. \quad (2.12-19)$$

同理, 由(2.2-28)式和(2.12-14)式可得

$$\begin{aligned} \hat{\rho}_2(t) &= (i\hbar)^{-2} \hat{U}_0(t) \int_{-\infty}^t dt_1 \int_{-\infty}^{t_1} (\hat{H}'_1(t_1), (\hat{H}'_2(t_2), \hat{\rho}_0)) \hat{U}_0(-t) dt_2 \\ &= (-i\hbar)^{-2} \hat{U}_0(t) \int_{-\infty}^t dt_1 \int_{-\infty}^{t_1} A_{a_1}(t_1) A_{a_2}(t_2) \\ &\quad \times (\hat{H}_{a_1}(t_1), (\hat{H}_{a_2}(t_2), \hat{\rho}_0)) \hat{U}_0(-t) dt_2. \end{aligned} \quad (2.12-20)$$

如将上式中的泊松括号展开, 并在 $\hat{H}_{a_1}(t_1)$, $\hat{H}_{a_2}(t_2)$ 和 $\hat{\rho}_0$ 之间插入因子 $\hat{U}_0(-t) \hat{U}_0(t)$

(其值为1), 再利用关系(2.3-20)式, 则(2.12-20)式变为

$$\begin{aligned} \hat{\rho}_2(t) &= (-i\hbar)^{-2} \int_{-\infty}^t dt_1 \int_{-\infty}^{t_1} (\hat{H}_{a_1}(t_1-t), ((\hat{H}_{a_2}(t_2-t), \hat{\rho}_0))) \\ &\quad \times A_{a_1}(t_1) A_{a_2}(t_2) dt_2. \end{aligned} \quad (2.12-21)$$

如作变量代换 $t_1 \rightarrow t_1+t$, $t_2 \rightarrow t_2+t$, 则(2.12-21)式又变为

$$\begin{aligned} \hat{\rho}_2(t) &= (-i\hbar)^{-2} \int_{-\infty}^0 dt_1 \int_{-\infty}^{t_1} A_{a_1}(t_1+t) \\ &\quad \times A_{a_2}(t_2+t) [\hat{H}_{a_1}(t_1), (\hat{H}_{a_2}(t_2), \hat{\rho}_0)] dt_2. \end{aligned} \quad (2.12-22)$$

依次对各阶密度算符 $\hat{\rho}_r(t)$ 作出与上述相类似的运算, 最后求得

$$\begin{aligned} \hat{\rho}(t) &= \hat{\rho}_0 + \hat{\rho}_1(t) + \hat{\rho}_2(t) + \dots + \hat{\rho}_r(t) + \dots \\ &= \hat{\rho}_0 + \sum_{r=1}^{\infty} (-i\hbar)^{-r} \int_{-\infty}^0 dt_1 \int_{-\infty}^{t_1} dt_2 \dots \\ &\quad \times \int_{-\infty}^{t_{r-1}} (\hat{H}_{a_1}(t_1), (\hat{H}_{a_2}(t_2), \dots (\hat{H}_{a_r}(t_r), \hat{\rho}_0) \dots)) \\ &\quad \times A_{a_1}(t_1+t) A_{a_2}(t_2+t) \dots A_{a_r}(t_r+t) dt_r. \end{aligned} \quad (2.12-23)$$

根据电磁场理论, (2.12-16)式中电流密度 \mathbf{J} 为^[17]

$$\mathbf{J} = \frac{1}{V} \sum_j \frac{q_j}{m_j} \{p_j - q_j \mathbf{A}(t)\}. \quad (2.12-24)$$

将(2.12-11)式所定义的 $\hat{\mathbf{D}}$ 代入, 并定义

$$\hat{\epsilon} = \sum_{j=1}^N \frac{q_j^2}{m_j} \quad (2.12-25)$$

且代入(2.12-24)式, 便给出

$$\mathbf{J} = \frac{1}{V} \{ \hat{\mathbf{H}} - \lambda \mathbf{A}(t) \} \quad (2.12-26)$$

当电场比较强时, 电流密度与电场之间的关系不仅是线性的关系, 还含有非线性项, 即电流密度中含有与电场的高次幂成正比的项, 因而我们可以将 $\mathbf{J}(t)$ 写成

$$\mathbf{J}(t) = \sum_{r=1}^{\infty} \mathbf{J}^{(r)}(t), \quad (2.12-27)$$

这里的第 r 阶电流密度 $\mathbf{J}^{(r)}(t)$ 与电场强度的 r 次幂成正比。和(2.3-18)式、(2.3-6)式相类似, 可以立即写出各阶电流密度与电场强度的关系如下:

对于一阶电流密度有

$$\mathbf{J}^{(1)}(t) = \int_{-\infty}^{\infty} \sigma_{\mu\alpha}^{(1)}(\omega) E_{\alpha}(\omega) \exp(-i\omega t) d\omega. \quad (2.12-28)$$

式中 $\sigma_{\mu\alpha}^{(1)}(\omega)$ 是一阶电导率张量元素。

对于第 r 阶电流密度有

$$\begin{aligned} \mathbf{J}^{(r)}(t) = & \int_{-\infty}^{\infty} d\omega_1 \int_{-\infty}^{\infty} d\omega_2 \cdots \int_{-\infty}^{\infty} \sigma_{\mu\alpha_1 \cdots \alpha_r}^{(r)}(\omega_1, \omega_2, \cdots, \omega_r) \\ & \times E_{\alpha_1}(\omega_1) E_{\alpha_2} \cdots E_{\alpha_r}(\omega_r) \exp\left[-it \sum_{n=1}^r \omega_n\right] d\omega_r. \end{aligned} \quad (2.12-29)$$

式中 $\sigma_{\mu\alpha_1 \cdots \alpha_r}^{(r)}(\omega_1, \cdots, \omega_2, \omega_r)$ 是第 r 阶电导率张量元素。

将(2.12-23)式和(2.12-26)式代入(2.12-16)式后, 便得到电流密度的期望值

$$\begin{aligned} \mathbf{J}(t) = & \text{tr} \left\{ \hat{\rho}(t) \frac{1}{V} (\hat{\mathbf{H}} - \lambda \hat{\mathbf{A}}(t)) \right\} \\ = & \frac{1}{V} \text{tr} \{ \hat{\rho}(t) \hat{\mathbf{H}} \} - \frac{\lambda \mathbf{A}(t)}{V} \cdot \text{tr} \{ \hat{\rho}(t) \}. \end{aligned}$$

因为

$$\text{tr} \{ \hat{\rho}(t) \} = 1,$$

所以

$$\mathbf{J}(t) = \frac{1}{V} \text{tr} \{ \hat{\rho}(t) \hat{\mathbf{H}} \} - \frac{\lambda}{V} \mathbf{A}(t). \quad (2.12-30)$$

现在我们将矢位 $\mathbf{A}(t)$ 用电场的傅里叶分量来表示, 因为

$$\int_{-\infty}^{\infty} E(\omega) \exp(-i\omega t) d\omega = -\frac{d}{dt} \int_{-\infty}^{\infty} E(\omega) \exp(-i\omega t) \frac{d\omega}{i\omega},$$

所以按(2.12-2)式有

$$\mathbf{A}(t) = \int_{-\infty}^{\infty} \mathbf{E}(\omega) \exp(-i\omega t) \frac{d\omega}{i\omega}. \quad (2.12-31)$$

又按(2.12-30)式可知一阶电流密度为

$$\begin{aligned} \mathbf{J}^{(1)}(t) &= \frac{1}{V} \text{tr}\{\hat{\rho}_1(t) \hat{\mathbf{H}}\} - \frac{\lambda}{V} \mathbf{A}(t), \\ J_{\mu}^{(1)}(t) &= \frac{1}{V} \text{tr}\{\hat{\rho}_1(t) \hat{H}_{\mu}\} - \frac{\lambda}{V} A_{\mu}(t). \end{aligned} \quad (2.12-32)$$

当将(2.12-19)式的 $\hat{\rho}_1(t)$ 代入后便得

$$\begin{aligned} J_{\mu}^{(1)}(t) &= (-i\hbar)^{-1} \frac{1}{V} \int_{-\infty}^0 \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\mathbf{E}_r(\omega) \exp(-i\omega(t+t_1))}{i\omega} \\ &\quad \times \text{tr}\{[\hat{H}_0(t_1), \hat{\rho}_0] \Pi_{\mu}\} d\omega dt_1 \\ &\quad - \frac{\lambda}{V} \int_{-\infty}^{\infty} E_{\mu}(\omega) \exp(-i\omega t) \frac{d\omega}{i\omega}. \end{aligned} \quad (2.12-33)$$

与(2.12-28)式相比较, 则可得一阶电导率张量元素 $\sigma_{\mu\alpha}^{(1)}(\omega)$ 为

$$\begin{aligned} \sigma_{\mu\alpha}^{(1)}(\omega) &= \frac{1}{V\hbar\omega} \int_{-\infty}^0 \text{tr}\{\hat{\rho}_0[\hat{H}_{\mu}, \hat{H}_0(t_1)]\} \exp(-i\omega t_1) dt_1 \\ &\quad - \delta_{r,1} \frac{\lambda}{iV\omega} \delta_{\mu\alpha}. \end{aligned} \quad (2.12-34)$$

上式已利用了迹的循环对易规则(2.1-14)式, 并将(2.12-33)式右边第二项写成 $\delta_{r,1}\lambda\delta_{\mu\alpha}/iV\omega$ 的形式, 其中

$$\delta_{r,1} = \begin{cases} 1 & r=1, \\ 0 & r \neq 1. \end{cases} \quad (2.12-35)$$

$\delta_{\mu\alpha}$ 表示单位张量元素, $\delta_{r,1}\lambda\delta_{\mu\alpha}/iV\omega$ 这一项只对一阶电导率张量有贡献, 称为对一阶电导率张量的各向同性贡献。

利用与上述相同的步骤, 即由(2.12-30)式给出第 r 阶电流密度的分量 $J_{\mu}^{(r)}(t)$ 为

$$\begin{aligned} J_{\mu}^{(r)}(t) &= \frac{1}{V} \text{tr}\{\hat{\rho}_r(t) \hat{H}_{\mu}\} \\ &= (-i\hbar)^{-r} \frac{1}{V} \text{tr}\left\{\int_{-\infty}^0 dt_1 \int_{-\infty}^{t_1} dt_2 \cdots \right. \\ &\quad \times \left. \int_{-\infty}^{t_{r-1}} [\hat{H}_{\alpha_1}(t_1), [\hat{H}_{\alpha_2}(t_2), \cdots [\hat{H}_{\alpha_r}(t_r), \hat{\rho}_0] \cdots]] \hat{H}_{\mu}\right\} \\ &\quad \times A_{\alpha_1}(t_1+t) A_{\alpha_2}(t_2+t) \cdots A_{\alpha_r}(t_r+t) dt_r. \end{aligned} \quad (2.12-36)$$

利用(2.12-31)关系式, 有

$$A_{\alpha_r}(t_r+t) = \int_{-\infty}^{\infty} E_{\alpha_r}(\omega_r) \exp(-i\omega_r(t_r+t)) \frac{d\omega_r}{i\omega_r}.$$

代入(2.12-36)式便得

$$J_{\mu}^{(r)}(t) = (-i\hbar)^{-r} \frac{1}{V} \int_{-\infty}^0 dt_1 \int_{-\infty}^{t_1} dt_2 \cdots \int_{-\infty}^{t_{r-1}} dt_r$$

$$\begin{aligned}
& \times \int_{-\infty}^{\infty} \frac{E_{\alpha_1}(\omega_1) \exp(-i\omega_1(t_1+t))}{i\omega_1} d\omega_1 \cdots \\
& \times \int_{-\infty}^{\infty} \frac{E_{\alpha_r}(\omega_r) \exp(-i\omega_r(t_r+t))}{i\omega_r} \\
& \times \text{tr}\{(\hat{H}_{\alpha_1}(t_1), (\hat{H}_{\alpha_2}(t_2), \cdots (\hat{H}_{\alpha_r}(t_r), \rho_0) \cdots) \hat{H}_{\mu})\} d\omega_r. \quad (2.12-37)
\end{aligned}$$

将(2.12-37)式与(2.12-29)式相比较, 可以立即给出第 r 阶电导率张量元素为

$$\begin{aligned}
& \sigma_{\mu\alpha_1 \cdots \alpha_r}^{(1)}(\omega_1, \omega_2, \cdots, \omega_r) \\
& = V \hbar^r \omega_1 \omega_2 \cdots \omega_r \int_{-\infty}^0 dt_1 \int_{-\infty}^{t_1} dt_2 \cdots \int_{-\infty}^{t_{r-1}} dt_r \exp\left[-i \sum_{m=1}^r \omega_m t_m\right] \\
& \quad \times \text{tr}\{\hat{\rho}_0(\cdots(\hat{H}_{\mu}, \hat{H}_{\alpha_1}(t_1)), \cdots) \hat{H}_{\alpha_r}(t_r)\} dt_r. \quad (2.12-38)
\end{aligned}$$

在得到上式时也已利用了迹的循环对易规则(2.1-14)式。

考虑到对一阶电导率张量的各向同性贡献, 各阶电导率张量的表示式可以统一写为如下的形式, 即

$$\begin{aligned}
& \sigma_{\mu\alpha_1 \cdots \alpha_r}^{(r)}(\omega_1, \omega_2, \cdots, \omega_r) \\
& = V \hbar^r \omega_1 \omega_2 \cdots \omega_r \int_{-\infty}^0 dt_1 \int_{-\infty}^{t_1} dt_2 \cdots \int_{-\infty}^{t_{r-1}} dt_r \exp\left[-i \sum_{m=1}^r \omega_m t_m\right] \\
& \quad \times \text{tr}\{\hat{\rho}_0(\cdots(\hat{H}_{\mu}, \hat{H}_{\alpha_1}(t_1)), \hat{H}_{\alpha_2}(t_2)), \cdots, \hat{H}_{\alpha_r}(t_r)\} dt_r \\
& \quad - \delta_{i1} \frac{\lambda}{i\omega V} \delta_{\mu\alpha_1}. \quad (2.12-39)
\end{aligned}$$

因为电极化强度与电流密度有(2.12-15)式所表示的关系, 故有

$$P_{\mu}^{(r)}(t) = \int_{-\infty}^t J_{\mu}^{(r)}(\tau) d\tau.$$

将(2.12-37)式的 $J_{\mu}^{(r)}(\tau)$ 代入后可以得到

$$\begin{aligned}
P_{\mu}^{(r)}(t) & = \int_{-\infty}^t d\tau \frac{(-i\hbar)^{-r}}{V} \int_{-\infty}^0 dt_1 \int_{-\infty}^{t_1} dt_2 \cdots \int_{-\infty}^{t_{r-1}} dt_r \\
& \quad \times \int_{-\infty}^{\infty} d\omega_1 \int_{-\infty}^{\infty} d\omega_2 \cdots \int_{-\infty}^{\infty} \frac{E_{\alpha_1}(\omega_1) E_{\alpha_2}(\omega_2) \cdots E_{\alpha_r}(\omega_r)}{(i)^r \omega_1 \omega_2 \cdots \omega_r} \\
& \quad \times \exp\left[-i\tau \sum_{n=1}^r (\omega_n)\right] \exp\left[-i \sum_{m=1}^r \omega_m t_m\right] \\
& \quad \times \text{tr}\{\hat{\rho}_0(\cdots(\hat{H}_{\mu}, \hat{H}_{\alpha_1}(t_1)), \cdots, \hat{H}_{\alpha_r}(t_r))\} d\omega_r. \quad (2.12-40)
\end{aligned}$$

在这里, 和讨论本章四的方法一样, 当频率 $\omega_1, \omega_2, \dots, \omega_r$ 取在上半个复数频率平面内时, 上式中对时间的积分是收敛的。这样, 在 (2.12-40) 式作出对 τ 的积分后, 有

$$\begin{aligned}
 P_{\mu}^{(\tau)}(t) &= \frac{(-i\hbar)^{-\tau}}{V^{\tau}} \int_{-\infty}^0 dt_1 \int_{-\infty}^{t_1} dt_2 \cdots \int_{-\infty}^{t_{r-1}} dt_r \int_{-\infty}^{\infty} d\omega_1 \int_{-\infty}^{\infty} d\omega_2 \cdots \\
 &\quad \times \int_{-\infty}^{\infty} E_{\sigma_1}(\omega_1) E_{\sigma_2}(\omega_2) \cdots E_{\sigma_r}(\omega_r) \frac{1}{(i)^{\tau} \omega_1 \omega_2 \cdots \omega_r} \\
 &\quad \times \frac{1}{-i(\omega_1 + \omega_2 + \cdots + \omega_r)} \exp \left[-it \sum_{m=1}^r \omega_m \right] \\
 &\quad \times \text{tr} \{ \hat{\rho}_0 [\cdots (\hat{H}_{\mu}, \hat{H}_{\sigma_1}(t_1)), \hat{H}_{\sigma_2}(t_2), \cdots], \hat{H}_{\sigma_r}(t_r) \} \\
 &\quad \times \exp \left[-i \sum_{m=1}^r \omega_m t_m \right] d\omega_m. \quad (2.12-41)
 \end{aligned}$$

将上式与

$$\begin{aligned}
 P_{\mu}^{(\tau)}(t) &= \epsilon_0 \int_{-\infty}^{\infty} d\omega_1 \int_{-\infty}^{\infty} d\omega_2 \cdots \int_{-\infty}^{\infty} \chi_{\mu\sigma_1}^{(\tau)} \cdots \sigma_r(\omega_1, \omega_2, \cdots, \omega_r) \\
 &\quad \times H_{\sigma_1}(\omega_1) \cdots E_{\sigma_r}(\omega_r) \\
 &\quad \times \exp \left[-it \sum_{m=1}^r \omega_m \right] d\omega_m. \quad (2.12-42)
 \end{aligned}$$

相比较, 便得到第 r 阶电极化率张量元素为

$$\begin{aligned}
 &\chi_{\mu\sigma_1}^{(\tau)} \cdots \sigma_r(\omega_1, \omega_2, \cdots, \omega_r) \\
 &= \frac{1}{\epsilon_0 V \hbar^{\tau}} \cdot \frac{1}{i \omega_0 \omega_1 \omega_2 \cdots \omega_r} \int_{-\infty}^0 dt_1 \int_{-\infty}^{t_1} dt_2 \cdots \int_{-\infty}^{t_{r-1}} dt_r \exp \left[-i \sum_{m=1}^r \omega_m t_m \right] \\
 &\quad \times \text{tr} \{ \rho_0 [\cdots (\hat{H}_{\mu}, \hat{H}_{\sigma_1}(t_1)), \hat{H}_{\sigma_2}(t_2), \cdots], \hat{H}_{\sigma_r}(t_r) \} dt_r. \quad (2.12-43)
 \end{aligned}$$

式中

$$\omega_0 = -(\omega_1 + \omega_2 + \cdots + \omega_r).$$

和本章三一样, 考虑到电极化率张量的本征对易对称的性质和各向同性项的贡献后, 第 r 阶电极化率张量的形式便变为

$$\begin{aligned}
 &x_{\mu\sigma_1}^{(\tau)} \cdots \sigma_r(\omega_1, \cdots, \omega_r) \\
 &= -\delta_{r1} \frac{\lambda}{\epsilon_0 V \omega_1^2} \delta_{\mu\sigma_1} + \frac{1}{\epsilon_0 r!} S \frac{1}{i \omega_0 \omega_1 \cdots \omega_r V \hbar^r} \\
 &\quad \times \int_{-\infty}^0 dt_1 \int_{-\infty}^{t_1} dt_2 \cdots \int_{-\infty}^{t_{r-1}} dt_r \exp \left[-i \sum_{m=1}^r \omega_m t_m \right] \\
 &\quad \times \text{tr} \{ \hat{\rho}_0 [\cdots (\hat{H}_{\mu}, \hat{H}_{\sigma_1}(t_1), \hat{H}_{\sigma_2}(t_2), \cdots), \hat{H}_{\sigma_r}(t_r) \} dt_r. \quad (2.12-44)
 \end{aligned}$$

式中 \hat{S}_T 表示对配对 $(a_1, \omega_1), (a_2, \omega_2), \dots, (a_r, \omega_r)$ 所有可能的 $r!$ 个对易求和的本征对称化算符。

(2.12-44) 式就是我们所要求的带电粒子能在介质中自由移动情况下的电极化率张量的表示式。

如进一步按本章四和五的步骤具体作出 (2.12-44) 式中对时间的积分和考虑电极化率张量的完全对易对称性, 则最后所得结果为^[18]

$$\begin{aligned} \chi_{\mu\alpha_1 \dots \alpha_r}^{(r)}(\omega_1, \omega_2, \dots, \omega_r) \\ = -\delta_{r1} \frac{\hbar}{\epsilon_0 V \omega_1^2} \delta_{\mu\alpha_1} + \frac{\delta_{r1}}{r!} \{ i(-i\hbar)^r (\omega_0 \omega_1 \omega_2 \dots \omega_r V)^{-1} \\ \times \sum_{a, b_1, \dots, b_r} \rho_{aa}^n \frac{H_{ab_1}^a H_{b_1 b_2}^{a_1} \dots H_{b_{r-1} b_r}^{a_{r-1}} H_{b_r a}^{a_r}}{D(a, b_1, \dots, b_r; \omega_1, \omega_2, \dots, \omega_r)} \}. \end{aligned} \quad (2.12-45)$$

式中 \hat{S}_T 是完全对易对称化算符, $D(a, b_1, \dots, b_r; \omega_1, \omega_2, \dots, \omega_r)$ 和 (2.5-8) 式一样, 有

$$\begin{aligned} D(a, b_1, \dots, b_r; \omega_1, \omega_2, \dots, \omega_r) \\ = (\omega_{b_1 a} - \omega_1 - \omega_2 \dots \omega_r)(\omega_{b_2 a} - \omega_2 \dots - \omega_r) \dots (\omega_{b_r a} - \omega_r); \end{aligned}$$

在态符号 a, b_1, \dots, b_r 等是指多粒子能量本征态; ρ_{aa}^n 是 \hat{H}_0 的第 aa 个矩阵元素。

将 (2.12-45) 式与 (2.5-7) 式相比较, 除 (2.12-45) 式中的第一项即各向同性项外, 另一项可直接由 (2.5-7) 式求得, 只要将 (2.5-7) 式中的 $R_{\mu}, R_{\alpha_1}(t_1), \dots$ 等分别用 $H_{\mu}/i\omega_0, H_{\alpha_1}(t_1)/i\omega_1, \dots, H_{\alpha_r}(t_1)/i\omega_r$ 代替即可。此外, 因为这里态 a, b_1, \dots, b_r 等是指多粒子能量的本征态, 故式中没有分子密度 n 。

文献[19]指出, 当荷电粒子系统的未微扰哈密顿 \hat{H}_0 在时间反演下不变时, 即在 \hat{H}_0 与时间反演算符是对易的情况下, 对任何粒子系统(不管有无自旋)来说, \hat{H} 与时间反演算符是反对易的, 则 $\chi^{(r)}$ 具有时间反演对称性, 即有

$$\begin{aligned} \chi_{\mu\alpha_1 \dots \alpha_r}^{(r)}(\omega_1, \omega_2, \dots, \omega_r) \\ = \chi_{\mu\alpha_1 \dots \alpha_r}^{(r)}(-\omega_1, -\omega_2, \dots, -\omega_r). \end{aligned} \quad (2.12-46)$$

参 考 文 献

- [1] Murrug Sargent III, Marian O. Scully, Willis E. Lamb, Jr., Laser Physics, p.75.
- [2] Д.В. 布洛欣采夫: 《量子力学原理》(上册)(叶蕴理、金星南译), 高等教育出版社, 1956年, 第163页。
- [3] Paul N. Butcher, Nonlinear Optical Phenomena, Copyright Ohio State University, 1965, p.53.
- [4] 周世勋: 《量子力学》, 上海科学技术出版社, 1963年6月, 第168页。

- [5] 同 [3], p.65.
- [6] D.C.Hanna, M.A.Yuratich, D.Cotter, *Nonlinear Optics of Free Atoms and Molecules*, Springer-Verlag Berlin Heidelberg New York, 1979, p.23.
- [7] D.A.Kleiman, *Phys.Rev* 126, (1962) 1977.
- [8] 同 [3], p.88.
- [9] H.E.塔姆: 《电学原理》(上册)(钱尚武、赵祖森译),商务印书馆,1955年,第114页。
- [10] J.A.Armstrong, N.Bloembergen, J.Ducuing and P.S.Pershen, *Interactions between Light Waves in a Nonlinear Dielectric*, *Phys.Rev.* 127, 1918(1962).
- [11] 同 [6], p.35.
- [12] Richard,B.Miles and Stephen,E.Harris, (*IEEE, J.QE*, Vol QE-9 No.4,p.472.
- [13] 同 [6], p.40.
- [14] Amnon Yariv, John Wiley & Sons, *Quantum Electronics*, Inc, New York,London,Sydney,Toronto, ch.15.
- [15] 同 [1], p.15.
- [16] P.N.Butcher and T.P.Mclean, *The Nonlinear Constitutive Relation in Solids at Optical Frequencies*, *Proc.Phys.Soc*, 1963, Vol 81, p.223.
- [17] 亚·索·康帕涅茨: 《理论物理学》(戈革译),人民教育出版社,1979年,第15页。
- [18] 同 [3], p.139.
- [19] P.N.Butcher, T.P.Mclean, *Proc.Phys.Soc*, Vol 83, 1964, p.579.

第三章 晶体的对称类型和电极化率张量的形式

从外形上看，晶体具有规则的几何形状，这种外形上的规则性，实质上是晶体内部规则性的反映。例如晶体之所以具有各向异性的物理性质，是与晶体外形上的对称性密切相关的。本章所要讨论的主要内容，就是从晶体的对称性出发给出各阶电极化率张量的具体形式，也就是具体分析电极化率张量中哪些元素存在，哪些元素不存在。不同类型的晶体，电极化率张量的具体形式是不相同的。

晶体的类型为数不多，只有32种典型的宏观对称类型，对于各类晶体的一阶、二阶和三阶电极化率张量都已求出，见本章末表3-3、表3-4和表3-5。下面我们将详细地讨论这些表中电极化率张量具体形式是如何求得的。

一、对称变换

1. 基本操作

上面提到晶体总共有32种典型的宏观对称类型，它们可以通过少数几个基本操作组合求得，由固体物理得知这些基本的操作是：

(1) n 度旋转对称轴

这表示晶体在绕某一固定轴 u 旋转角度 $\theta = 2\pi/n$ 以后能自身重合的一种操作，这 u 轴便称为 n 度(或 n 次)旋转对称轴。 n 可以等于1、2、3、4和6。

(2) n 度象转轴

这表示晶体在绕某一固定轴 u 旋转 $\theta = 2\pi/n$ 以后，再经中心反演，即 $x \rightarrow -x$ 、 $y \rightarrow -y$ 、 $z \rightarrow -z$ ，晶体能自身重合的一种操作，这时 u 轴被称为 n 度象转轴。与(1)一样， n 可以等于1、2、3、4和6。

2. 对称变换和对称变换矩阵

在进行上述基本操作时，要遇到转动、中心反演和镜象三种基本的对称变换。下面我们求出这些对称变换相应的变换矩阵 T 。

设晶体中任意一点在某一坐标系中的坐标为 x_a ($a = 1, 2, 3$ 表示坐标轴)，该点在另一坐标系中的坐标设为 x'_a ，众所周知，该点在两个坐标系中的坐标之间有如下的线性变换：

$$\left. \begin{aligned} x'_1 &= T_{11}x_1 + T_{12}x_2 + T_{13}x_3, \\ x'_2 &= T_{21}x_1 + T_{22}x_2 + T_{23}x_3, \\ x'_3 &= T_{31}x_1 + T_{32}x_2 + T_{33}x_3. \end{aligned} \right\} \quad (3.1-1)$$

用矩阵的形式表示(3.1-1)式时，有

$$X' = TX \quad (3.1-2)$$

式中的 T 是一个 3×3 的矩阵， X' 和 X 都是行矩阵。

由(3.1-1)式所表示的坐标变换，代表晶体的一般对称操作的对称变换。对称变换矩

阵 T 具有如下的基本性质, 即对称变换矩阵 T 是一个正交矩阵, 并且 T 的行列式 $|T| = \pm 1$, 证明如下:

因为晶体中任意两点 A, B 之间的距离在不同的坐标系内应保持不变, 故根据(3.1-2)式有

$$\begin{aligned} X'_A - X'_B &= TX_A - TX_B \\ &= T(X_A - X_B). \end{aligned}$$

按要求有

$$\begin{aligned} (X'_A - X'_B)'(X'_A - X'_B) &= (X_A - X_B)'T'T(X_A - X_B) \\ &= (X_A - X_B)'(X_A - X_B), \end{aligned} \quad (3.1-3)$$

所以要求

$$T'T = I. \quad (3.1-4)$$

式中 $(X'_A - X'_B)'$ 和 T' 分别是矩阵 $(X'_A - X'_B)$ 和 T 的转置矩阵, I 是单位矩阵, 即

$$I = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix}.$$

由(3.1-4)式可知

$$T^{-1} = T' \quad (3.1-5)$$

所以 T 是一个正交矩阵, T^{-1} 是矩阵 T 的逆矩阵。

按矩阵的乘法规则

$$(T'T)_{\alpha\gamma} = \sum_{\beta} T'_{\alpha\beta} T_{\beta\gamma} \delta_{\alpha\gamma} = \begin{cases} 1 & \alpha = \gamma, \\ 0 & \alpha \neq \gamma. \end{cases} \quad (3.1-6)$$

如将矩阵 T' 左乘 $X' = TX$, 即

$$T'X' = T'TX = X = T^{-1}X'. \quad (3.1-7)$$

写成分量的形式有

$$x'_\alpha = T_{\alpha\beta} x_\beta \quad (3.1-8)$$

或

$$x_\beta = (T^{-1})_{\beta\alpha} x'_\alpha.$$

如果用 $|T|$ 表示矩阵 T 的行列式, 则由 $T'T = I$, 可得

$$|T'| |T| = 1;$$

但是矩阵 T 的行列式 $|T|$ 与其转置矩阵 T' 的行列式 $|T'|$ 是相等的, 即

$$|T'| = |T|; \quad (3.1-9)$$

所以

$$|T|^2 = 1$$

或

$$|T| = \pm 1. \quad (3.1-10)$$

证明结束。

上面我们所讨论的对称变换矩阵 T 是在一般的坐标变换下(即在一般的对称操作下)引

出的，具体的变换可以是转动、中心反演和镜象变换。对不同的对称操作相应有不同的对称变换矩阵，现分别给出如下：

(1) 转动

设想有某刚体绕 x_1 轴旋转 θ 角，该刚体中任何一点 (x_1, x_2, x_3) 变到另一点 (x'_1, x'_2, x'_3) ，如图 3-1 所示，这两点坐标之间有如下的变换关系：

$$\begin{aligned} x'_1 &= x_1; \\ x'_2 &= x_2 \cos \theta - x_3 \sin \theta; \\ x'_3 &= x_2 \sin \theta + x_3 \cos \theta. \end{aligned} \quad (3.1-11)$$

所以按 (3.1-1) 式有变换矩阵

$$T = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & \cos \theta & -\sin \theta \\ 0 & \sin \theta & \cos \theta \end{pmatrix} \quad (3.1-12)$$

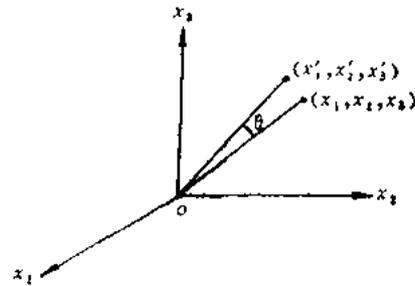


图 3-1 刚体的转动

显然矩阵的行列式

$$|T| = 1.$$

如果 $n = 2\pi/\theta = 1, 2, 3, 4$ 和 6 ，则相应的 $\theta = 2\pi, \pi, 2\pi/3, \pi/2$ 和 $\pi/3$ ，由此便得到相应的对称变换矩阵为

$$\begin{aligned} T &= \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} & n=1, \theta=2\pi \\ &= \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & -1 & 0 \\ 0 & 0 & -1 \end{pmatrix} & n=2, \theta=\pi \\ &= \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & -1/2 & -\sqrt{3}/2 \\ 0 & \sqrt{3}/2 & -1/2 \end{pmatrix} & n=3, \theta=2\pi/3 \\ &= \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -1 \\ 0 & 1 & 0 \end{pmatrix} & n=4, \theta=\pi/2 \\ &= \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & 1/2 & -\sqrt{3}/2 \\ 0 & \sqrt{3}/2 & 1/2 \end{pmatrix} & n=6, \theta=\pi/3. \end{aligned} \quad (3.1-13)$$

(2) 中心反演

取坐标系原点为中心，经过中心反演后，刚体中任一点 (x_1, x_2, x_3) 变为 $(-x_1, -x_2, -x_3)$ ，

则

$$x'_1 \rightarrow -x_1,$$

所以

$$\begin{aligned}
 x'_1 &\rightarrow -x_2, \\
 x'_2 &\rightarrow -x_1, \\
 x'_3 &\rightarrow -x_3.
 \end{aligned}$$

$$T = \begin{pmatrix} -1 & 0 & 0 \\ 0 & -1 & 0 \\ 0 & 0 & -1 \end{pmatrix} \quad (3.1-14)$$

显然矩阵 T 的行列式

$$|T| = -1$$

满足一般要求(3.1-10)式。

(3) 镜象

如以 $x_3 = 0$ 的平面作为镜面, 则镜象对称操作就是将刚体中任何一点 (x_1, x_2, x_3) 变成 $(x'_1, x'_2, -x'_3)$, 即

$$\begin{aligned}
 x'_1 &\rightarrow x_1, \\
 x'_2 &\rightarrow x_2, \\
 x'_3 &\rightarrow -x_3,
 \end{aligned}$$

所以

$$T = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & -1 \end{pmatrix} \quad (3.1-15)$$

显然 $|T| = -1$ 满足一般关系(3.1-10)式。

二、晶体的分类

在上一节中已经指出晶体在宏观上的对称类型可以通过 n 度旋转对称轴和 n 度象转轴的对称操作求得。根据晶体晶格周期性的限制, 旋转角只能是 30° 和 45° 的整数倍, 即 n 只能取1、2、3、4和6的值, n 不能取5或大于6的值, 所以没有5度和6度以上的转轴。同样, 晶体也只有1、2、3、4和6度象转轴, 而不能有5度或6度以上的象转轴。为区分 n 度旋转轴和 n 度象转轴, 在轴的度数上加一横就表示象转轴, 如 $\bar{1}$ 、 $\bar{2}$ 、 $\bar{3}$ 、 $\bar{4}$ 和 $\bar{6}$ 。对称轴度数的符号如表3-1所示。

表 3-1 对称轴度数的符号表

对称轴的度数 n	2	3	4	6
符 号				

我们很容易根据对称操作的规律得到如下的结论^[1], 即:

一度象转轴就是中心反演，用 i 表示，即 $\bar{1} = i$ ；

二度象转轴就是垂直于该轴的对称面(镜象)的变换，用 m 表示，即 $2 = m$ ；

三度象转轴的效果和三度转轴加上中心反演 i 的总效果一样；

六度象转轴的效果和三度转轴加上垂直于该轴的对称面变换总效果一样；

四度象转轴包含一个和它重合的二度转轴，只有四度象转轴而没有四度旋转对称轴的晶体不具有对称中心 i ，如金刚石。

综上所述，晶体的宏观对称性有以下八种基本的对称操作元素，它们是 1、2、3、4、6、 i 、 m 和 $\bar{4}$ 。将这些对称操作元素组合起来，就能得到 32 种宏观对称类型。

32 种宏观的对称类型不包括平移，对于晶体的微观对称性，对称操作还必须包括平移。在包括平移后，又要考虑所谓 n 度螺旋轴和滑移反映面这两类操作^[1]。

如基本操作中不包括平移，则组成 32 种宏观的对称类型称为点群。包括平移，就够成 230 种微观对称性，称为空间点群。

32 种点群按熊夫利(Schoenflies)符号进行分类时，它们分属如下九个群，在相应的图中，也同时给出它们的国际符号^[1]。

1. C_n 群

属于这个点群的有一个 n 度旋转轴 C_n ，共有 C_1 、 C_2 、 C_3 、 C_4 和 C_6 五种。图 3-2 表示这五种点群，相应的国际符号分别表示为 1、2、3、4 和 6。

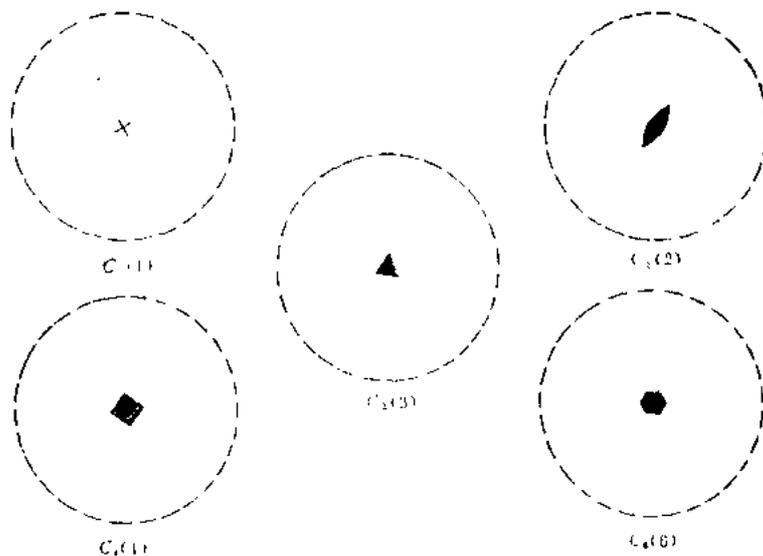


图 3-2 C_n 群的赤道面投影图

2. D_n 群

属于这个点群的有一个 n 度旋转轴 C_n 和 n 个与 C_n 轴相垂直而且彼此夹角为 π/n 的二度旋转轴，共有 D_2 、 D_3 、 D_4 和 D_6 四种。例如 D_3 表示有一个 C_3 轴，并且有三个垂直于 C_3 轴而彼此夹角为 $\pi/3$ 的二度旋转轴 C_2 ，如图 3-3 所示。该类点群的赤道面投影图如图 3-4 所示。

与熊夫利符号 D_2 、 D_3 、 D_4 和 D_6 相对应的国际符号为 222、32、422 和 622。 D_3 的国际符号写成 32，而不是 322 的理由是：两个二度旋转轴之间的夹角为 60° ，当一个二度旋转轴绕

三度旋转轴每旋转 120° ，便得到另一个二度旋转轴。这种情况与 D_4 点群不同，四个 C_2 轴可分成两组，每一组中的 C_2 可通过 C_4 的对称操作彼此重合，是一组对称等价的二度旋转轴。但两组之间不能通过 C_4 的对称操作使它们重合，所以两组 C_2 旋转轴之间彼此不是对称等价的。

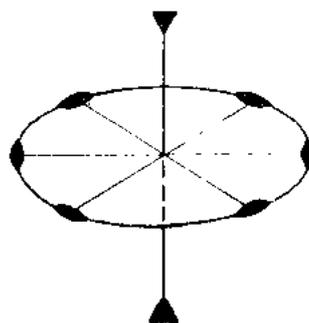


图 3-3 D_3 点群的对称操作元素的相对取向

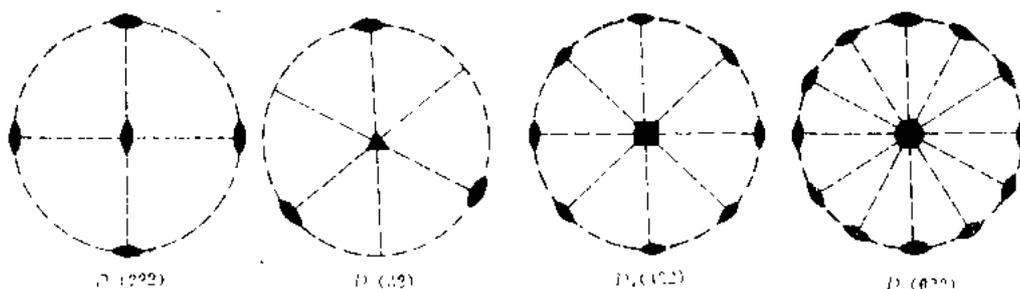


图 3-4 D_n 点群的赤道面投影图

3. C_{nh} 群

属于这个点群的，除有一个 n 度旋转轴 C_n 之外，还有一个和 C_n 轴相垂直的对称面 σ_h ，共有 C_{1h} 、 C_{2h} 、 C_{3h} 、 C_{4h} 和 C_{6h} 五种。该类点群在赤道面上的投影图如图 3-5 所示。其中 C_{1h} 实际上只有一个对称面 σ_h 的操作，并用符号 C_s 表示； C_{2h} 、 C_{4h} 和 C_{6h} 都存在一个反演中心（图 3-5 中的小白点表示具有中心反演对称）； C_{3h} 相当于六度象转轴的操作。

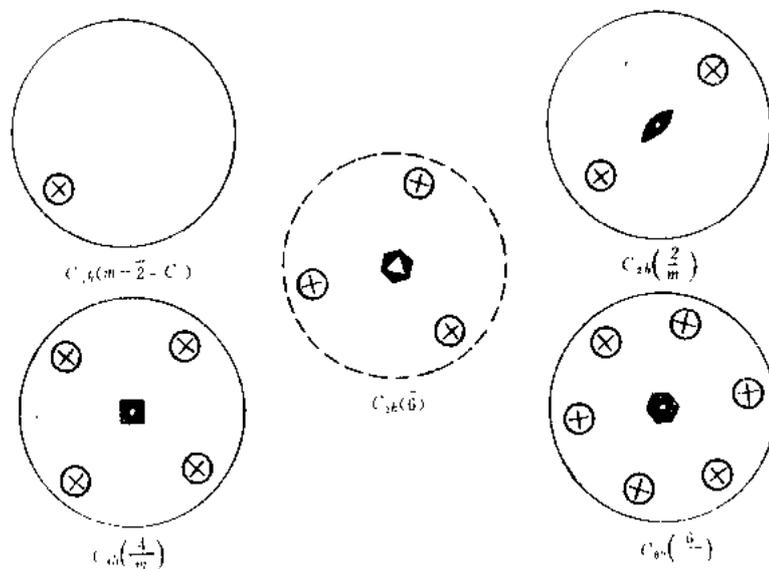


图 3-5 C_{nh} 群的赤道面投影图

C_{nh} 群的国际符号分别为 $m(C_{1h} = \bar{2} = C_s)$ 、 $2/m(C_{2h})$ 、 $6(C_{3h})$ 、 $4/m(C_{4h})$ 、 $6/m(C_{6h})$ 。

4. C_{nv} 群

属于这种点群的是，除有 C_n 度旋转轴外，还有 n 个通过 C_n 轴而且彼此夹角为 π/n 的对称

面 σ_v 。因为 C_{1v} 相当于只有一个对称面 σ_v ，即 C_s ，所以只有 C_{2v} 、 C_{3v} 、 C_{4v} 和 C_{nv} 四种宏观对称类型。图3-6表示 C_{4v} 点群的对称操作元素的相对取向。

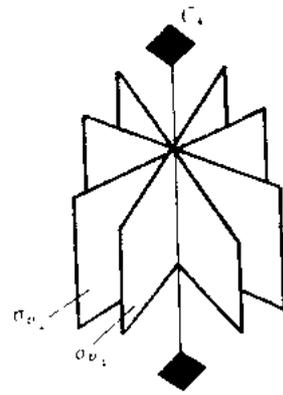


图3-6 C_{4v} 点群的对称操作元素的相对取向

当 n 为偶数时， n 个 σ_v 对称面分为两组 σ_{v1} 和 σ_{v2} ，每一组都可以通过 C_n 对称操作使之重合，是对称等价的。但两组之间不能通过 C_n 对称操作使之重合。

图3-7是 C_{nv} 点群的赤道面投影图，图中同时标出该类点群的国际符号 $2mm(C_{2v})$ 、 $3m(C_{3v})$ 、 $4mm(C_{4v})$ 和 $6mm(C_{6v})$ 。

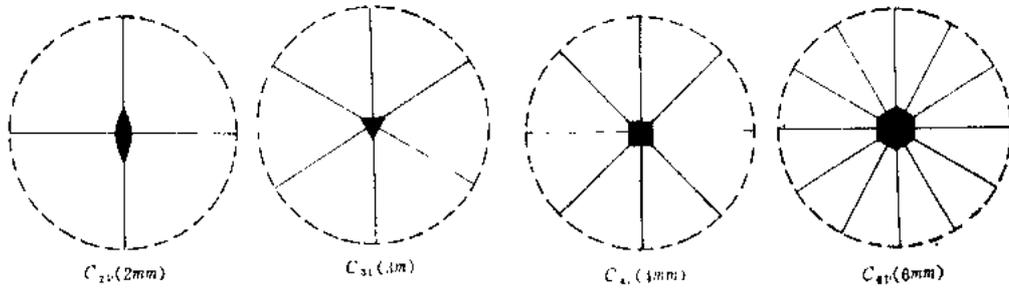


图3-7 C_{nv} 群的赤道面投影图

5. D_{nh} 群

属于这个点群的是在 D_n 的基础上还有一个垂直于 C_n 转轴的对称面 σ_h 。这点群存在着通过 C_n 转轴和 C_2 轴的对称面 σ_v ，这种对称面一共有 n 个。图3-8表示 D_{3h} 点群的对称操作元素的相对取向。 D_{nh} 点群共有 D_{2h} 、 D_{3h} 、 D_{4h} 和 D_{6h} 四种。

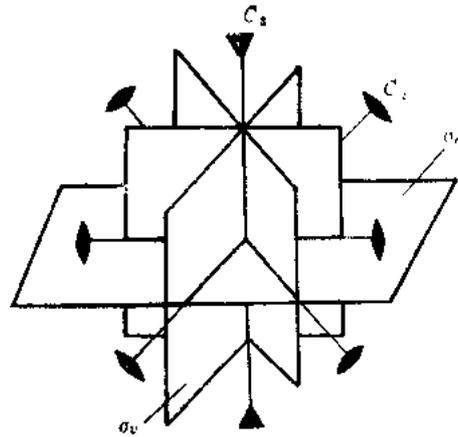


图3-8 D_{nh} 点群的对称操作元素的相对取向

同时在图中标出该点群的国际符号 $2 \frac{2}{m} \frac{2}{m} = mmm(D_{2h})$ 、 $3 \frac{2}{m} = \bar{6} m2(D_{3h})$ 、 $4 \frac{2}{m} \frac{2}{m} =$

$4 \frac{2}{m} mm(D_{4h})$ 和 $6 \frac{2}{m} \frac{2}{m} = \frac{6}{m} mmm(D_{6h})$ 。

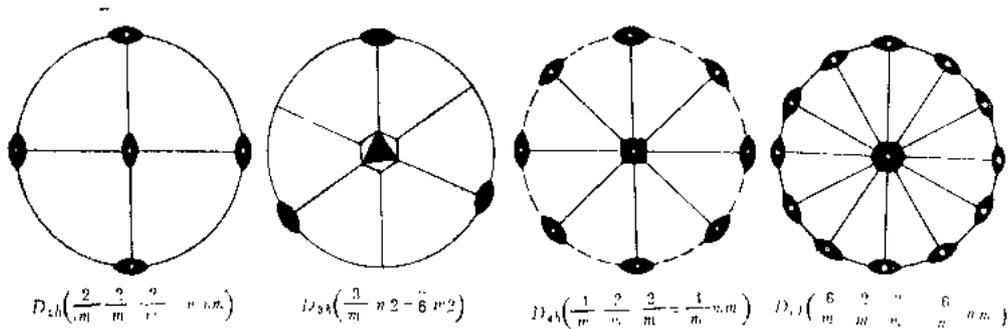


图 3-9 D_{nh} 点群的赤道面投影图

6. D_{nd} 群

属于这点群的是：在 D_n 的基础上还有通过 C_n 旋转轴并平分二度旋转轴之间的夹角的对称面，这种对称面共有 n 个，它们彼此之间的夹角为 π/n 。该点群共有 D_{2d} 和 D_{3d} 两种。图 3-10 表示 D_{3d} 对称类型的对称操作元素的相对取向。图 3-11 表示该类点群在赤道面上的投影图。图中也表示出它们相应的国际符号，即 $\bar{4}2/m(D_{2d})$ 和 $3\bar{2}(D_{3d})$ 。（ D_{2d} 中的 C_2 轴同时又是 S_4 轴， D_{3d} 中的 C_3 轴同时也是 S_6 轴）。

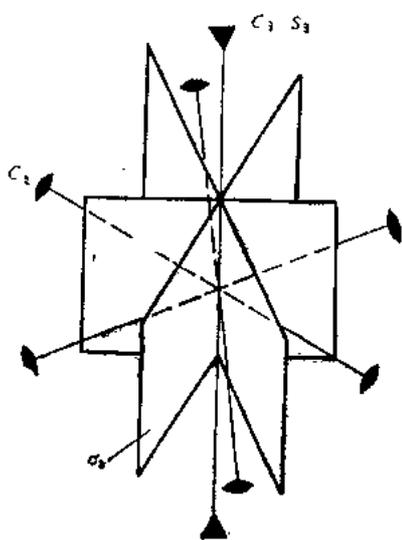


图 3-10 D_{3d} 点群的对称操作元素的相对取向

图 3-11 表示该类点群在赤道面上的投影图。图中也表示出它们相应的国际符号，即 $\bar{4}2/m(D_{2d})$ 和 $3\bar{2}(D_{3d})$ 。（ D_{2d} 中的 C_2 轴同时又是 S_4 轴， D_{3d} 中的 C_3 轴同时也是 S_6 轴）。

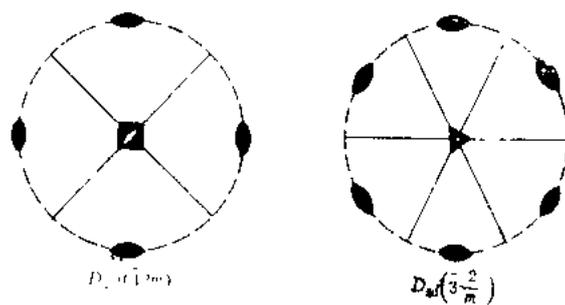


图 3-11 D_{nd} 点群的赤道面投影图

7. S_n 群

属于该群的是一个 n 度象转轴。但是 S_2 与 C_2 相当， S_6 与 C_{3h} 相当，故新的对称类型只有 S_1 、 S_6 和 S_4 三种。它们在赤道面的投影图如图 3-12 所示。图中也同时给出相应的国际符号，即 $\bar{1}(S_1)$ 、 $\bar{3}(S_6)$ 和 $\bar{4}(S_4)$ 。

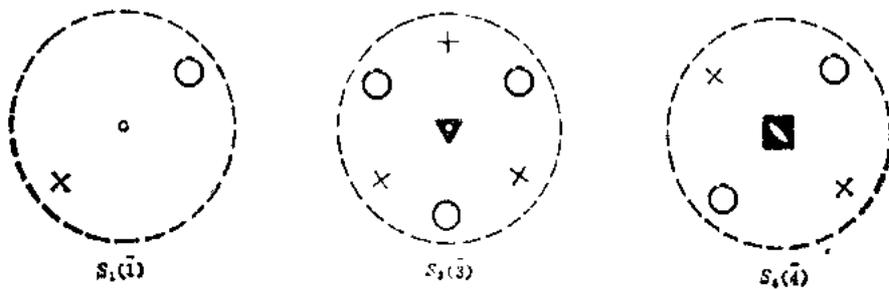


图 3-12 S_n 群的赤道面投影图

8. T 群、 T_d 群和 T_h 群

T 群：又称正四面体群，它有四个3度旋转轴和三个2度旋转轴。如图3-13， $ABCD$ 是一个正四面体，其中每一个顶点与对底中心的轴是一个3度旋转轴，共有四个。由正四面体的对边，例如 AD 与 BC 、 AC 与 BD 和 CD 与 AB ，它们中点的连线是一个2度旋转对称轴。该点群的赤道面投影图表示在图3-15(a)中。

T_d 群：除具有 T 群的对称操作外，还有通过正四面体一边和对边中心的对称面，这种对称面一共有六个。图3-14表示通过 AC 边和 BD 边中心的对称面。在每个对称面中，含有两个 C_3 轴和一个 C_2 轴。此外正四面体还具有四度象转轴 S_6 ，且 S_6 轴与 C_2 轴相重合。该点群的赤道面投影图以及国际符号都表示在图3-15(b)中。

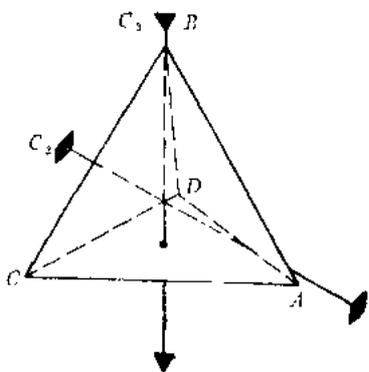


图3-13 T 群的对称操作元素的相对取向(图中只画出每一种对称操作元素中的一个)

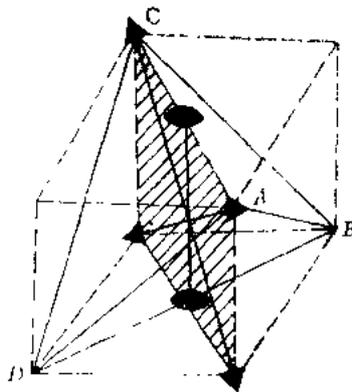


图3-14 T_d 群的对称操作元素的相对取向(图中只画出一个对称面)

T_h 群：该点群除具有 T 群的对称操作外，还存在一个对称中心，这样， C_3 轴又是 S_6 轴。此外还有垂直于 C_2 轴的对称面。因而在 T_h 点群中，有四个 C_3 轴、四个 S_6 轴、三个 C_2 轴和三个分别与三个 C_2 轴相垂直的对称面。它的赤道面投影图和相应的国际符号也表示在图3-15(c)中。

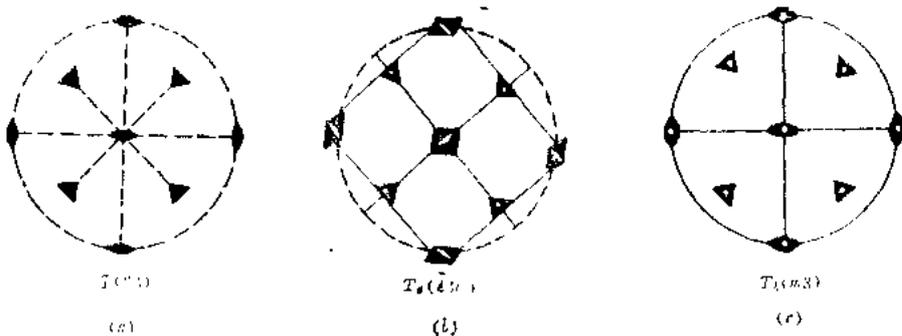


图3-15 T 群、 T_d 和 T_h 群的赤道面投影图

9. O 群和 O_h 群

O 群：是反映立方体旋转对称性的一种宏观对称类型，又称为八面体群。它有三个通过立方体相对面中心的 C_4 轴、四个通过对角的顶点的 C_3 轴、六个通过对棱边中心的 C_2 轴，图

3-16画出了每一种对称操作中一个的相对取向。该群的赤道面投影图和相应的国际符号表示在图3-18(a)中。

O_h 群：该点群除 O 群的所有对称操作外，还有三个和4度轴垂直的对称面，六个和2度轴垂直的对称面(见图3-17)以及一个对称中心。图3-17中也只画出每一种对称操作中的一个。该点群在赤道面的投影图以及相应的国际符号表示在图3-18(b)中。

以上所给出的32种晶体宏观对称类型分属于七大晶系，见表3-2。

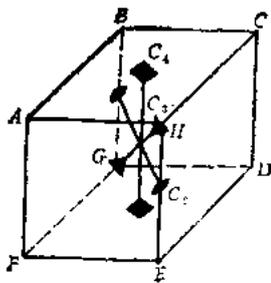


图3-16 O 群的对称操作元素的相对取向(图中只画出每种对称操作中的一个对称操作元素)

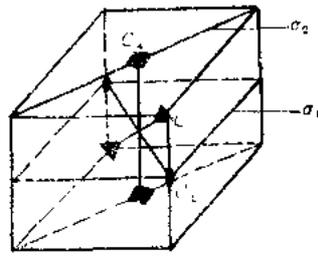


图3-17 O_h 群的对称操作元素的相对取向(图中只画出每一种对称操作中的一个)

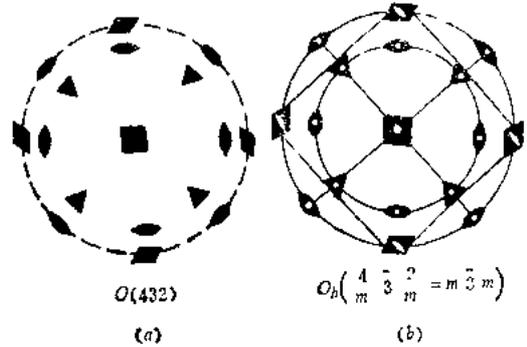


图3-18 O 群和 O_h 群的赤道面投影图

表3-2 七大晶系的对称类型

晶系	对称类型	
	熊夫利符号	国际符号
三斜	C_1	1
	$C_1(S_1)$	1
单斜	C_2	2
	$C_2(C_2h)$	m
	C_2h	$2/m$
正交(斜方)	D_2	222
	C_2v	$mm2$
	D_2h	mmm
三角	C_3	3
	$S_6(C_3i)$	$\bar{3}$
	D_3	32(石英)
	D_3d	$3m$ (LiNbO ₃) (LiTaO ₃)
	D_3d	$\bar{3} \frac{2}{m}$

接下页

续表

晶系	对称类型	
	熊夫利符号	国际符号
正方(四角)	C_4	4
	S_4	4
	C_{4h}	4/m
	D_4	422
	C_{4v}	4mm
	D_{2d}	42m (KDP)
	D_{4h}	$\frac{4}{m}mm$
六角	C_6	6
	$C_{3h}(S_6)$	6
	C_{6h}	6/m
	D_6	622
	C_{6v}	6mm (CdS)
	D_{3h}	6m2
	D_{6h}	$\frac{6}{m}mm$
立方	T	23
	T_h	m3
	O	432
	T_d	43m CaTe CdTe CdTe
	O_h	m3m

三、电极化率张量的空间对称性

1. 电极化率张量元素的变换规律

电极化率张量在不同坐标系之间的变换,可按通常的极矢量的变换规律进行。

设 x_α 和 x'_α ($\alpha = 1, 2, 3$) 是晶体作对称操作前后的两个坐标系中的坐标,根据晶体的空间对称性,电极化率张量 $\chi^{(r)}$ 的元素相对于这两个坐标系来说必须相等,即

$$\chi_{\beta\alpha_1 \dots \alpha_r}^{(r)}(\omega_1, \dots, \omega_r) = \chi'_{\beta\alpha'_1 \dots \alpha'_r}(\omega_1, \dots, \omega_r). \quad (3.3-1)$$

现在我们来求它们之间的变换规律。

因为电场强度 $\mathbf{E}(t)$ 和电极化强度 $\mathbf{P}(t)$ 都是极矢量,它们的变换规律与坐标的变换规律相同,即有

$$P'_\beta(t) = T_{\beta m} P_m(t). \quad (3.3-2)$$

对于电场的傅里叶分量 $\mathbf{E}(\omega)$ 的变换规律也服从相同的规律,即

$$E'_\beta(\omega) = (T^{-1})_{\beta\alpha} E'_\alpha(\omega) = T_{\alpha\beta} E'_\alpha(\omega), \quad (3.3-3)$$

现在我们写出在带撇的坐标系中线性电极化强度与电场强度的傅里叶分量之间的关系, 有

$$P_m^{(1)}(t) = \epsilon_0 \int_{-\infty}^{\infty} \chi_{m\beta}^{(1)}(\omega) E_\beta(\omega) \exp(-i\omega t) d\omega, \quad (3.3-4)$$

$$P'_\mu{}^{(1)}(t) = \epsilon_0 \int_{-\infty}^{\infty} \chi'_{\mu\alpha}{}^{(1)}(\omega) E'_\alpha(\omega) \exp(-i\omega t) d\omega. \quad (3.3-5)$$

将(3.3-4)式和(3.3-5)式代入(3.3-2)式后, 有

$$\begin{aligned} & \epsilon_0 \int_{-\infty}^{\infty} \chi'_{\mu\alpha}{}^{(1)}(\omega) E'_\alpha(\omega) \exp(-i\omega t) d\omega \\ &= T'_{\mu\nu} \epsilon_0 \int_{-\infty}^{\infty} \chi_{m\beta}^{(1)}(\omega) E_\beta(\omega) \exp(-i\omega t) d\omega \\ &= T'_{\mu\nu} T_{\sigma\beta} \epsilon_0 \int_{-\infty}^{\infty} \chi_{m\beta}^{(1)}(\omega) E'_\sigma(\omega) \exp(-i\omega t) d\omega. \end{aligned} \quad (3.3-6)$$

上式已利用了(3.3-3)式。由此可得

$$\chi'_{\mu\alpha}{}^{(1)}(\omega) = T'_{\mu\nu} T_{\sigma\beta} \chi_{m\beta}^{(1)}(\omega), \quad (3.3-7)$$

此式就是我们所需要的一阶电极化率张量元素的变换规律。因为在这里的变换是对称变换, 按(3.1-5)式有 $T_{\alpha\beta} = (T^{-1})_{\beta\alpha}$ 。这样, (3.3-7)式可以写成

$$\chi'_{\mu\alpha}{}^{(1)}(\omega) = T'_{\mu\nu} \chi_{m\beta}^{(1)}(\omega) (T^{-1})_{\beta\alpha}. \quad (3.3-8)$$

因此在将(3.3-8)式写成矩阵的形式时, 并考虑到 $\chi^{(1)}(\omega)$ 在对称变换后是不变的这个事实, 应有

$$\chi'^{(1)}(\omega) = T \chi^{(1)}(\omega) T^{-1} = \chi^{(1)}(\omega). \quad (3.3-9)$$

应明确, 在写出最后一个等号时, 实际上已表示对称变换的情况。

对于二阶电极化率张量来说, 利用(1.3-18)式和上面相类似的方法, 可以求得二阶电极化率张量元素 $\chi_{m\alpha_1\alpha_2}^{(2)}(\omega_1, \omega_2)$ 的变换规律为

$$\chi'_{m\alpha_1\alpha_2}{}^{(2)}(\omega_1, \omega_2) = T'_{\mu\nu} T_{n\sigma} T_{1\beta} \chi_{m\alpha_1\alpha_2}^{(2)}(\omega_1, \omega_2). \quad (3.3-10)$$

同理, 利用(2.3-6)式和上述相类似的方法, 可求得 r 阶电极化率张量元素的变换规律为

$$\begin{aligned} & \chi'_{m\alpha_1\alpha_2\dots\alpha_r}{}^{(r)}(\omega_1, \omega_2, \dots, \omega_r) \\ &= T'_{\mu\nu} T_{\sigma_1 n_1} T_{\sigma_2 n_2} \dots T_{\sigma_r n_r} \chi_{m\alpha_1\alpha_2\dots\alpha_r}{}^{(r)}(\omega_1, \omega_2, \dots, \omega_r). \end{aligned} \quad (3.3-11)$$

2. 晶体的空间对称性对电极化率张量元素的限制

由于晶体的空间对称性, 电极化率张量元素之间存在着一定的联系, 其中有些元素为零, 而且非零元素也不一定都是独立的。

例如, 如果晶体受到属于点群的对称变换矩阵 T 所确定的转动, 那么在两个坐标系中的电极化率张量必须相同, 因而(3.3-8)~(3.3-11)式中的撇可以去掉。这样, 这些方程便对电极化率张量元素附加了限制。又如, 如果晶体具有反演对称性, 则由(3.1-14)式可知, $T_{\sigma\beta} = -\delta_{\sigma\beta}$, 这里的 $\delta_{\sigma\beta}$ 是克朗尼克 δ 符号, 因而根据(3.3-11)式有

$$\begin{aligned} & \chi_{m\alpha_1\alpha_2\dots\alpha_r}{}^{(r)}(\omega_1, \omega_2, \dots, \omega_r) \\ &= (-1)^{r+1} \chi_{m\alpha_1\alpha_2\dots\alpha_r}{}^{(r)}(\omega_1, \omega_2, \dots, \omega_r). \end{aligned} \quad (3.3-12)$$

由此可见，当 r 为偶数时，电极化率张量元素都等于零。

总之，由于晶体的空间对称性，对电极化率张量元素要给予附加的限制。下面以 $\bar{4}2m$ 类晶体为例，说明如何求出各类晶体的各阶电极化率张量的具体形式。

3. 各晶体类型的电极化率张量的具体形式

属于 $\bar{4}2m$ 类晶体的有 KDP 和 ADP，它们都是广泛地应用于非线性光学现象实验研究的材料。在二中我们已经知道符号 $\bar{4}2m$ 中的 $\bar{4}$ 、 2 和 m 分别表示该类晶体有四度象转轴、二度旋转轴和镜面反射。

关于 $\bar{4}2m$ 类晶体的结构如图 3-19 所示。

(1) $\bar{4}2m$ 类晶体的对称变换矩阵

由图 3-19 可知， z 轴是一个四度象转轴，其变换矩阵记为 $(\bar{4})_z$ ； x 、 y 、 z 轴都是二度旋转轴，变换矩阵分别记为 $(2)_x$ 、 $(2)_y$ 和 $(2)_z$ ；另外 $\bar{4}2m$ 类晶体的两个对称面 σ_1 和 σ_2 如图 3-20 所示（对称面垂直纸面并通过 x 轴和 y 轴夹角的角平分线），相应的变换矩阵分别用 (m_1) 和 (m_2) 表示。

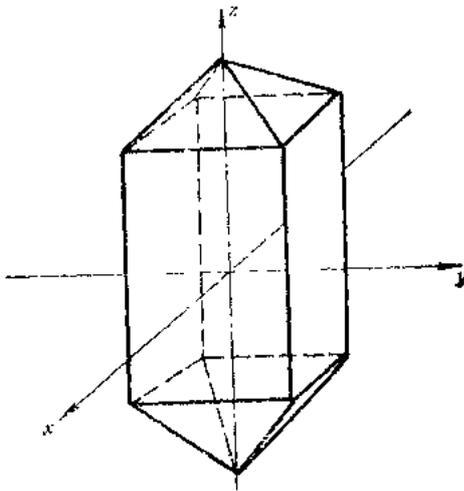


图 3-19 $\bar{4}2m$ 类晶体的晶格结构

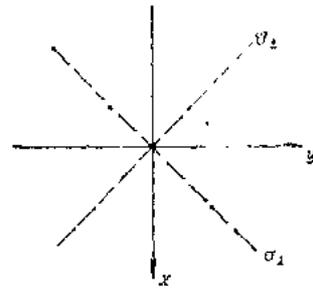


图 3-20 $\bar{4}2m$ 类晶体的镜反射

对称变换 $(\bar{4})_z$ ：设图 3-21(a) 所示的老坐标系 xyz 在绕 z 轴旋转 $\pi/2$ 后，变为如图 (b) 所示的坐标，再经坐标的反演便变为图 (c)。所以经对称变换 $(\bar{4})_z$ 以后，新老坐标之间的关系为

$$\begin{aligned} x' &= -y, \\ y' &= x, \\ z' &= -z, \end{aligned}$$

绕 z 轴的四度象转轴的对称变换矩阵 $(\bar{4})_z$ 为

$$(\bar{4})_z = \begin{pmatrix} 0 & -1 & 0 \\ 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -1 \end{pmatrix} \quad (3.8-13)$$

(2)_x：当晶体绕二度旋转轴旋转 180° 后，有

$$\begin{aligned} x' &= x, \\ y' &= -y, \\ z' &= -z, \end{aligned}$$

所以

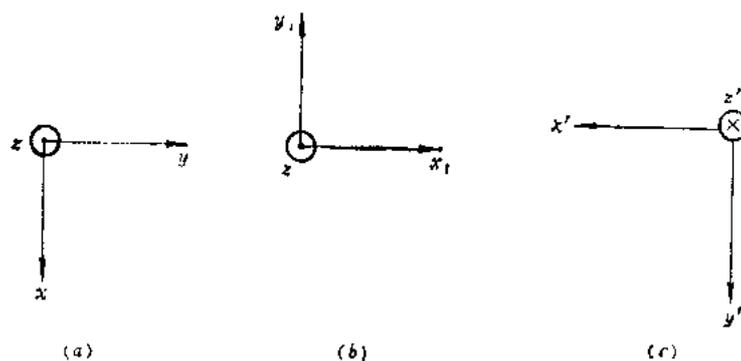


图 3-21 $[4]_z$ 对称变换

$$(2)_x = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & -1 & 0 \\ 0 & 0 & -1 \end{pmatrix} \quad (3.3-14)$$

同理可得

$$(2)_y = \begin{pmatrix} 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & -1 \\ -1 & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (3.3-15)$$

$$(2)_z = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 1 \\ 0 & 0 & 1 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \quad (3.3-16)$$

(m_1) : 当晶体经对称变换 σ_1 后, 由图3-22(a)和(b)可知新老坐标之间的关系有

$$\begin{aligned} x' &= y, \\ y' &= x, \\ z &= z', \end{aligned}$$

所以

$$(m_1) = \begin{pmatrix} 0 & 1 & 0 \\ 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \quad (3.3-17)$$

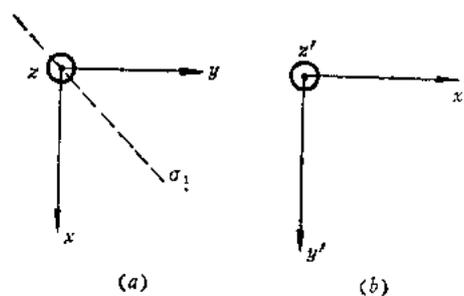


图 3-22 σ_1 的对称变换

同理可得

$$(m_2) = \begin{pmatrix} 0 & -1 & 0 \\ -1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \quad (3.3-18)$$

以上我们得到了描述 $\bar{4}2m$ 类晶体的六种对称操作所对应的六种空间对称变换矩阵 $(4)_x$, $(2)_x$, $(2)_y$, $(2)_z$, (m_1) 和 (m_2) 。下面便可利用这些变换矩阵来求得各阶电极化率张量的具体形式。

(2) $\bar{4}2m$ 类晶体的一阶电极化率张量 $\chi^{(1)}(\omega)$ 形式的求法。

由(3.3-9)式,已知一阶电极化率张量的一般对称变换为

$$\chi'^{(1)}(\omega) = T\chi^{(1)}(\omega)T^{-1} = \chi^{(1)}(\omega).$$

对 $42m$ 类晶体来说,上式中的 T 可以是上述六种对称变换矩阵中的任何一个,譬如 $(\bar{4})_z$,则有

$$\chi'^{(1)}(\omega) = (\bar{4})_z \chi^{(1)}(\omega) (\bar{4})_z^{-1} = \chi^{(1)}(\omega).$$

写成分量的形式时有

$$\begin{aligned} & \begin{pmatrix} \chi_{xx}^{(1)} & \chi_{xy}^{(1)} & \chi_{xz}^{(1)} & XX & XY & XZ \\ \chi_{yx}^{(1)} & \chi_{yy}^{(1)} & \chi_{yz}^{(1)} & YX & YY & YZ \\ \chi_{zx}^{(1)} & \chi_{zy}^{(1)} & \chi_{zz}^{(1)} & ZX & ZY & ZZ \end{pmatrix} \\ & = \begin{pmatrix} 0 & -1 & 0 & -XX & XY & XZ & 0 & 1 & 0 \\ 1 & 0 & 0 & YX & YY & YZ & -1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -1 & ZX & ZY & ZZ & 0 & 0 & -1 \end{pmatrix} \\ & \quad \begin{pmatrix} YY & -YX & YZ \\ -XY & XX & -XZ \\ ZY & -ZX & ZZ \end{pmatrix}. \end{aligned} \quad (3.3-19)$$

式中已将一阶电极化率张量元素 $\chi_{xx}^{(1)}$ 等简写为 XX 等。由(3.3-19)式可得

$$XX = YY, \quad XY = -YX,$$

$$XZ = YZ = -ZX = 0,$$

$$ZY = ZX = -ZY = 0,$$

所以电极化率张量 $\chi^{(1)}(\omega)$ 在通过四度象转轴对称变换后应具有形式

$$\chi^{(1)}(\omega) = \begin{pmatrix} XX & XY & 0 \\ YX & XX & 0 \\ 0 & 0 & ZZ \end{pmatrix}. \quad (3.3-20)$$

现再对(3.3-20)式所表示的矩阵作(2)_z对称变换,则按(3.3-9)式的对称变换规律,有

$$\begin{aligned} & \begin{pmatrix} XX & XY & 0 \\ YX & XX & 0 \\ 0 & 0 & ZZ \end{pmatrix} \\ & = (2)_z \begin{pmatrix} XX & XY & 0 \\ YX & XX & 0 \\ 0 & 0 & ZZ \end{pmatrix} (2)_z^{-1} \\ & = \begin{pmatrix} XX & -XY & 0 \\ -YX & XX & 0 \\ 0 & 0 & ZZ \end{pmatrix}. \end{aligned} \quad (3.3-21)$$

由此可得

$$XY = -XY = 0,$$

$$YX = -YX = 0.$$

这样, $\bar{4}2m$ 类晶体的一阶电极化率张量经 $(\bar{4})_z$ 和 $(2)_z$ 的对称变换后为

$$\chi^{(1)}(\omega) = \begin{pmatrix} XX & 0 & 0 \\ 0 & XX & 0 \\ 0 & 0 & ZZ \end{pmatrix} \quad (3.3-22)$$

我们可以验证上式, 如果再对此式作其它对称变换, 其结果仍为此式自身。由此可得, (3.3-22) 式便是我们所要求的 $\bar{4}2m$ 类晶体的一阶电极化率张量的最后形式。

除用上述方法即用对称变换矩阵求得 $\chi^{(1)}(\omega)$ 中的非零元素之外, 我们还可以利用下面的数学运算对 $\chi^{(1)}(\omega)$ 中的元素一个一个地确定其是否为零。这种逐个确定的方法也可用于确定 $\chi^{(2)}(\omega_1, \omega_2)$ 和 $\chi^{(3)}(\omega_1, \omega_2, \omega_3)$ 的各个元素。具体的方法是利用张量元素间的对称变换关系(3.3-7)、(3.3-10)和(3.3-11)式($r=3$)。

由(3.3-7)式, 对应于对称操作的变换有

$$\chi_{\mu\alpha}^{(1)}(\omega) = T_{\mu m} T_{\alpha\beta} \chi_{m\beta}^{(1)}(\omega) \quad (3.3-23)$$

现在逐个确定 $\chi^{(1)}(\omega)$ 中的各个元素。例如, 先确定 $\chi_{xx}^{(1)}(\omega)$, 即确定元素 XX , 按(3.3-23)式, 这时 $\mu=x, \alpha=x$, 则有

$$\chi_{xx}^{(1)}(\omega) = T_{xm} T_{x\beta} \chi_{m\beta}^{(1)}(\omega)$$

如果用 $(\bar{4})_z$ 作变换, 由 $(\bar{4})_z$ 的(3.3-13)式可见, 只有 $m=y, \beta=y$ 时, T_{xm} 和 $T_{x\beta}$ 才不为零, 即有 $T_{xy} = -1$ 。这样

$$\chi_{xx}^{(1)}(\omega) = (-1)(-1)\chi_{yy}^{(1)}(\omega),$$

即

$$XX = YY.$$

如果用 $(2)_x$ 作变换, 由(3.3-14)式可知, 只有 $m=x, \beta=x$ 时, T_{xm} 和 $T_{x\beta}$ 才不为零, 即有

$$\chi_{xx}^{(1)}(\omega) = 1 \times 1 \times \chi_{xx}^{(1)}(\omega)$$

或

$$XX = XX.$$

这结果并没有给我们任何有用的关系。

再如确定 $\chi_{xy}^{(1)}(\omega)$ 或 XY 。按(3.3-23)式有

$$\chi_{xy}^{(1)}(\omega) = T_{xm} T_{y\beta} \chi_{m\beta}^{(1)}(\omega).$$

如用 $(\bar{4})_z$ 作变换, 则由 $(\bar{4})_z$ 的(3.3-13)式可见, 只有 $m=y, \beta=x$ 时, $T_{xm} = T_{xy} = -1$ 和 $T_{y\beta} = T_{yx} = 1$ 才不为零, 所以有

$$XY = -YX;$$

如果用 σ_x 作变换, 则由 (m_1) 可知, 只有 $m=y$ 和 $\beta=x$ 时, $T_{xm} = T_{xy} = 1$ 和 $T_{y\beta} = T_{yx} = 1$ 才不为零, 所以又得

$$XY = YX.$$

由此可见, 必须

$$XY - YX = 0.$$

按照这样的方法, 可以逐个确定 $\chi^{(1)}(\omega)$ 的所有其它元素是否存在。这种逐个确定的方法其好处是较方便地确定 $\chi^{(2)}(\omega_1, \omega_2)$ 和 $\chi^{(3)}(\omega_1, \omega_2, \omega_3)$ 中各个元素。

(3) $\bar{4}2m$ 类晶体的 $\chi^{(2)}$ (ω_1, ω_2)的具体形式

二阶电极化率张量的一般形式含有27个张量元素, 具体的形式为

$$\begin{pmatrix} XXX & XYY & XZZ & XYZ & XZY & XZX & XXZ & XXY & XYX \\ YXX & YYY & YZZ & YYZ & YZY & YZX & YXZ & YXY & YYX \\ ZXX & ZYY & ZZZ & ZYZ & ZZY & ZZX & ZXZ & ZXY & ZYX \end{pmatrix} \quad (3.3-24)$$

现利用(3.3-10)式并考虑到对称变换, 有

$$\chi_{\beta\alpha l}^{(2)}(\omega_1, \omega_2) = T_{\mu\alpha} T_{n\beta} T_{l\gamma} \chi_{\mu\alpha\gamma}^{(2)}(\omega_1, \omega_2). \quad (3.3-25)$$

对 $\bar{4}2m$ 类晶体来说, 元素 XXX 在作 $[\bar{4}]_z$ 变换时可得

$$\chi_{xxx}^{(2)} = (-1)(-1)(-1)\chi_{yyy}^{(2)},$$

所以有

$$XXX = -YYY.$$

如果元素 XXX 作 $(2)_y$ 变换, 又可得

$$\chi_{xxx}^{(2)} = (-1)(-1)(-1)\chi_{xxx}^{(2)} = -\chi_{xxx}^{(2)},$$

所以可得

$$XXX = YYY = 0.$$

又如元素 $\chi_{zzz}^{(2)}$ 作 $[\bar{4}]_z$ 变换, 那么由 $[\bar{4}]_z$ 可知, 只有在 $m=z, \alpha=z, \beta=z$ 时, $T_{zz} = -1$ 才不为零, 所以有

$$\chi_{zzz}^{(2)}(\omega_1, \omega_2) = T_{z\alpha} T_{z\beta} T_{z\gamma} \chi_{\alpha\beta\gamma}^{(2)}(\omega_1, \omega_2) = (-1)(-1)(-1)\chi_{zzz}^{(2)}(\omega_1, \omega_2),$$

即

$$ZZZ = -ZZZ = 0.$$

由此可见, 对 $\bar{4}2m$ 类晶体来说, 凡三个指标都相同的元素都等于零。

又如求 $\chi_{xxz}^{(2)}$, 这时 $\mu=x, n=x, l=z$, 用 $[\bar{4}]_z$ 作对称变换时, 有

$$\chi_{xxz}^{(2)} = (-1)(-1)(-1)\chi_{yyz}^{(2)} = -\chi_{yyz}^{(2)}.$$

如用 $(2)_x$ 作对称变换, 又得

$$\chi_{xxz}^{(2)} = 1 \times 1 \times (-1)\chi_{xxz}^{(2)} = -\chi_{xxz}^{(2)},$$

由此可得

$$XXZ = YYZ = 0.$$

同理可以求得凡二个指标相同的元素都为零(对 $\bar{4}2m$ 类晶体)。

再如求 $\chi_{xyx}^{(2)}$, 这时 $\mu=x, n=y, l=z$, 用 $[\bar{4}]_z$ 作对称变换时, 有

$$\chi_{xyx}^{(2)} = (-1) \times 1 \times (-1)\chi_{yxz}^{(2)} = \chi_{yxz}^{(2)},$$

用 $(2)_x$ 作对称变换时, 得

$$\chi_{xyx}^{(2)} = 1 \times (-1)(-1)\chi_{yxz}^{(2)} = \chi_{yxz}^{(2)},$$

用 $(2)_y$ 作对称变换时, 得

$$\chi_{xyx}^{(2)} = (-1) \times 1 \times (-1)\chi_{yxz}^{(2)} = \chi_{yxz}^{(2)},$$

用 $(2)_z$ 作对称变换时, 得

$$\chi_{xyx}^{(2)} = (-1)(-1) \times 1 \times \chi_{yxz}^{(2)} = \chi_{yxz}^{(2)},$$

用 σ_1 作对称变换时, 有

$$\chi_{xyx}^{(2)} = 1 \times 1 \times 1 \times \chi_{yzz}^{(2)}.$$

由此可见

$$XYZ = YXZ \neq 0.$$

同样可以验证

$$ZYX = ZXY \neq 0$$

和

$$XZY = YZX \neq 0.$$

这样,对 $\bar{4}2m$ 类晶体来说,凡 $\chi^{(2)}(\omega_1, \omega_2)$ 中三个指标都不相同的元素均不为零。最后求得 $\bar{4}2m$ 类晶体的二阶电极化率张量的具体形式为

$$\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & XYZ & XZY & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & XZY & XYZ & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & ZXY & ZXY \end{pmatrix}.$$

(4) $\bar{4}2m$ 类晶体的 $\chi^{(3)}$ 的具体形式

要确定 $\bar{4}2m$ 类晶体的三阶非线性电极化率张量元素 $\chi_{\mu\alpha\beta\gamma}^{(3)}(\omega_1, \omega_2, \omega_3)$ 的具体形式,可根据(3.3-11)式并令 $r=3$,有

$$\chi_{\mu\alpha\beta\gamma}^{(3)}(\omega_1, \omega_2, \omega_3) = T_{\mu m} T_{\alpha n_1} T_{\beta n_2} T_{\gamma n_3} \chi_{m n_1 n_2 n_3}^{(3)}(\omega_1, \omega_2, \omega_3).$$

例如利用 $[4]_z$ 作对称变换,可得

$$XXXX = (-1)(-1)(-1)(-1)YYYY,$$

也就是

$$XXXX = YYYY,$$

$$YYZZ = 1 \times 1 \times (-1)(-1)XXZZ,$$

即

$$YYZZ = XXZZ.$$

又如利用 $[2]_x$ 作对称变换,可得

$$XYZZ = 1 \times (-1)(-1)(-1)XYZZ = 0.$$

总之,利用以上的方法可以逐个确定张量元素是否为零,在这里不再继续逐个确定了。关于各晶类的一阶、二阶和三阶电极化率张量的具体形式已列成表^[4],见表3-3、表3-4和表3-5。

表 3-3 七类晶系和各向同性介质的一阶电极化率张量 $\chi^{(1)}(\omega)$ 的具体形式(每一个元素只用其指标表示,而括号内的数字表示非零的独立元素的数目)

(一) 三斜晶系

$$\begin{pmatrix} XX & XY & ZX \\ XY & YY & YZ \\ ZX & YZ & ZZ \end{pmatrix} \quad (6)$$

(二) 单斜晶系

$$\begin{pmatrix} XX & 0 & ZX \\ 0 & YY & 0 \\ ZX & 0 & ZZ \end{pmatrix} \quad (4)$$

(三) 正交晶系

$$\begin{pmatrix} XX & 0 & 0 \\ 0 & YY & 0 \\ 0 & 0 & ZZ \end{pmatrix} \quad (3)$$

(四) 正方晶系

(五) 三角晶系

(六) 六角晶系

$$\begin{pmatrix} XX & 0 & 0 \\ 0 & XX & 0 \\ 0 & 0 & ZZ \end{pmatrix} \quad (2)$$

(七) 立方晶系各向同性介质

$$\begin{pmatrix} XX & 0 & 0 \\ 0 & XX & 0 \\ 0 & 0 & XX \end{pmatrix} \quad (1)$$

表 3-4 七类晶系和各向同性介质的二阶电极化率张量 $\chi^{(2)}(\omega_1, \omega_2)$ 的具体形式 (表中没有列出具有中心对称的那些晶类, 因为具有中心对称的二阶电极化率张量恒等于零。同样, 每一元素只用它们的指标表示, 并且用顶上一横表示负值。括号内的数字也表示独立非零元素的数目)

(一) 三斜晶系

晶类1(C_1)

$$\begin{pmatrix} XXX & XYY & XZZ & XYZ & XZY & XZX & XXZ & XXY & XYX \\ YXX & YYY & YZZ & YYZ & YZY & YZX & YXZ & YXY & YYX \\ ZXX & ZYY & ZZZ & ZYZ & ZZY & ZZX & ZXZ & ZXY & ZYX \end{pmatrix} \quad (27)$$

(二) 单斜晶系

晶类2(C_2)

$$\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & XYZ & XZY & 0 & 0 & XXY & XYX \\ YXX & YYY & YZZ & 0 & 0 & YZX & YXZ & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & ZYZ & ZZY & 0 & 0 & ZXY & ZYX \end{pmatrix} \quad (13)$$

晶类 m (C_s)

$$\begin{pmatrix} XXX & XYY & XZZ & 0 & 0 & XZX & XXZ & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & YYZ & YZY & 0 & 0 & YXY & YYX \\ ZXX & ZYY & ZZZ & 0 & 0 & ZZX & ZXZ & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (14)$$

(三) 正交晶系

晶类222 (D_2)

$$\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & XYZ & XZY & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & YZX & YXZ & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & ZXY & ZYX \end{pmatrix} \quad (6)$$

晶类 $mm2(C_{2v})$

$$\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & XZX & XXZ & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & YYZ & YZY & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ ZXZ & ZYX & ZZZ & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (7)$$

(四) 正方晶系

晶类4 (C_4)

$$\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & XYZ & XZY & XZX & XXZ & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & XXZ & XZX & \overline{XZY} & XYZ & 0 & 0 \\ ZXZ & ZXZ & ZZZ & 0 & 0 & 0 & 0 & ZXY & ZXY \end{pmatrix} \quad (7)$$

晶类 $\overline{4}(S_4)$

$$\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & XYZ & XZY & XZX & XXZ & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \overline{XXZ} & \overline{XZX} & XZY & XYZ & 0 & 0 \\ ZXZ & \overline{ZXZ} & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & ZXY & ZXY \end{pmatrix} \quad (6)$$

晶类422 (D_4)

$$\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & XYZ & XZY & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & \overline{XZY} & \overline{XYZ} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & ZXY & \overline{ZXY} \end{pmatrix} \quad (8)$$

晶类 $4mm(C_{4v})$

$$\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & XZX & XXZ & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & XXZ & XZX & 0 & 0 & 0 & 0 \\ ZXZ & ZXZ & ZZZ & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (4)$$

晶类 $\overline{4}2m(D_{2d})$

$$\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & XYZ & XZY & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & XZY & XYZ & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & ZXY & ZXY \end{pmatrix} \quad (8)$$

(五) 三角晶系

晶类8 (C_3)

$$\begin{pmatrix} XXX & \overline{XX\overline{X}} & 0 & XYZ & XZY & XZX & XXZ & \overline{YY\overline{Y}} & \overline{YY\overline{Y}} \\ \overline{YY\overline{Y}} & YYY & 0 & XXZ & XZX & \overline{XZY} & \overline{XYZ} & \overline{XX\overline{X}} & \overline{XX\overline{X}} \\ ZXZ & ZXZ & ZZZ & 0 & 0 & 0 & 0 & ZXY & \overline{ZXY} \end{pmatrix} \quad (9)$$

晶类32 (D_3)

$$\begin{pmatrix} XXX & \overline{XX\overline{X}} & 0 & XYZ & XZY & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & \overline{XZY} & \overline{XYZ} & XXX & \overline{XX\overline{X}} \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & ZXY & \overline{ZXY} \end{pmatrix} \quad (4)$$

晶类 $3m(C_{3v})$

$$\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & XZX & XXZ & Y\bar{Y}\bar{Y} & Y\bar{Y}\bar{Y} \\ Y\bar{Y}\bar{Y} & Y\bar{Y}\bar{Y} & 0 & XXZ & XZX & 0 & 0 & 0 & 0 \\ ZXX & ZXX & ZZZ & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (5)$$

(六) 六角晶系

晶类 $6(C_6)$

$$\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & XYZ & XZY & XZX & XXZ & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & XXZ & XZX & XZY & XYZ & 0 & 0 \\ ZXX & ZXX & ZZZ & 0 & 0 & 0 & 0 & ZXY & Z\bar{X}\bar{Y} \end{pmatrix} \quad (7)$$

晶类 $\bar{6}(C_{3h})$

$$\begin{pmatrix} XXX & XXX & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & YYY & YYY \\ Y\bar{Y}\bar{Y} & Y\bar{Y}\bar{Y} & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & XXX & XXX \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (2)$$

晶类 $622(D_6)$

$$\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & XYZ & XZY & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & XZY & X\bar{Y}Z & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & ZXY & ZXY \end{pmatrix} \quad (8)$$

晶类 $6mm(C_{6v})$

$$\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & XZX & XXZ & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & XXZ & XZX & 0 & 0 & 0 & 0 \\ ZXX & ZXX & ZZZ & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (4)$$

晶类 $\bar{6}m2(D_{3h})$

$$\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & Y\bar{Y}\bar{Y} & YYY \\ Y\bar{Y}\bar{Y} & YYY & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (1)$$

(七) 立方晶系

晶类 $432(O)$

$$\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & XYZ & \bar{X}\bar{Y}Z & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & XYZ & XYZ & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & XYZ & \bar{X}\bar{Y}Z \end{pmatrix} \quad (1)$$

晶类 $\bar{4}3m(T_d)$

$$\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & XYZ & XYZ & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & XYZ & XYZ & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & XYZ & XYZ \end{pmatrix} \quad (1)$$

晶类 $23(T)$

$$\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & XYZ & XZY & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & XYZ & XZY & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & XYZ & XZY \end{pmatrix} \quad (2)$$

一五五五五五

从表3-4可知, 在32种宏观对称类型中, 只有21种晶体对称类型没有反演对称性。

表 3-5 32种晶类和各向同性介质的三阶电极化率张量 $\chi^{(3)}$ ($\omega_1, \omega_2, \omega_3$)的形式(每一个元素只用它们的指标表示, 用一横线表示负值)

(一) 三斜晶系

对于晶类1和1, 都有81个独立的非零元素。

(二) 单斜晶系

对于晶类2、 m 和 $2/m$, 有41个独立的非零元素。其中指标相同的有三个; 指标成对相同的有18个; 有两个Y指标、一个X指标和一个Z指标的元素有12个; 有三个X指标和一个Z指标的元素有4个; 有三个Z指标和一个X指标的元素有4个。

(三) 正交晶系

对晶类222、 $mm2$ 和 mmm 有21个独立的非零元素, 指标都相同的元素有3个, 指标成对相同的元素有18个。

(四) 正方晶系

对晶类4、 $\bar{4}$ 和 $4/m$, 有41个非零元素, 其中有21个是独立的, 这些元素是

$$\begin{aligned} XXXX &= YYY Y = ZZZZ \\ ZZXX &= ZZYY & XYZZ &= \bar{Y}XZZ \\ XXYY &= YYXX & XXXY &= \bar{Y}YYX \\ XXZZ &= YYZZ & ZZXY &= ZZYX \\ XYXY &= YXYX & XXYX &= \bar{Y}\bar{Y}\bar{X}\bar{Y} \\ ZXZX &= ZYZY & XZYZ &= \bar{Y}\bar{Z}\bar{X}\bar{Z} \\ XYYX &= YXXY & XYXX &= \bar{Y}X\bar{Y}\bar{Y} \\ XZXZ &= YZYZ & ZXZY &= ZYZX \\ ZX XZ &= ZYYZ & ZXYZ &= \bar{Z}YX\bar{Z} \\ XZZX &= YZZY & XZZY &= YZZX \\ YXXX &= XYYY \end{aligned}$$

对422、 $4mm$ 、 $\frac{4}{m}mm$ 和 $42m$ 类晶体, 有21个非零元素, 其中仅有11个是独立的, 这些元素是

$$\begin{aligned} XXXX &= YYY Y & ZZZZ \\ YYZZ &= ZZYY & ZZXX = XXZZ \\ XXYY &= YYXX & YZYZ = ZYZY \\ ZXZX &= XZXZ & XYXY = YXYX \\ YZZY &= ZYYZ & ZX XZ = XZZX \\ XYYX &= YXXY \end{aligned}$$

(五) 三角晶系

对于3和 $\bar{3}$ 两类晶体, 有73个非零元素, 其中只有27个是独立的, 这些元素是

$$\begin{aligned} ZZZZ & & (XXYY = YYXX) \\ XXXX &= YYY Y = XXY Y + XY Y X + XY XY & (XY Y X = YXXY) \\ & & (XY XY = YXYX) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
YYZZ &= XXZZ & XYZZ &= YX\bar{Z}Z \\
ZZYY &= ZZXX & ZZXY &= ZZYX \\
ZYYZ &= ZXXZ & ZXYZ &= ZYXZ \\
YZZY &= XZZX & XZZY &= YZ\bar{Z}X \\
YZYZ &= XZXZ & XZYZ &= YZXZ \\
ZYZY &= ZXZX & ZXYZ &= ZYZX
\end{aligned}$$

$$(YYXY = X\bar{X}YX)$$

$$XXXX = Y\bar{Y}YX = YXYX + YXYY + XYYY \quad (YXYX = XYXX)$$

$$(XYYY = YXXX)$$

$$YYYZ = YXXZ = XYXZ = XXYZ$$

$$YYZY = YXZX = XYZX = XXZY$$

$$YZYY = YZXX = XZYX = XZXY$$

$$ZYYY = ZYXX = Z\bar{X}\bar{Y}\bar{X} = ZXXY$$

$$XXXZ = XYYZ = YXYZ = YYXZ$$

$$XXZX = X\bar{Y}\bar{Z}\bar{Y} = YXZY = YYZX$$

$$XZXX = XZYX = YZXY = YZYX$$

$$ZXXX = Z\bar{X}\bar{Y}\bar{Y} = ZYXY = ZYXX$$

对于 $3m$ 、 $32/m$ 和 32 三类晶类，有37个非零元素，其中只有14个是独立的，这些元素是

$$ZZZZ$$

$$(XXYY = Y\bar{Y}XX)$$

$$XXXX = Y\bar{Y}YY = XXYX + XYXY + XYXX \quad (XYXX = Y\bar{X}XY)$$

$$(XYXY = YXYX)$$

$$YYZZ = XXZZ \quad ZZYY = ZZXX$$

$$ZYYZ = ZXXZ \quad YZZY = XZZX$$

$$YZYZ = XZXZ \quad ZYZY = ZXZX$$

$$YYYZ = Y\bar{X}\bar{X}\bar{Z} = XYXZ = XXYZ$$

$$YYZY = YXZX = XYZ\bar{X} = X\bar{X}\bar{Z}\bar{Y}$$

$$YZYY = YZXX = XZYX = X\bar{Z}\bar{X}\bar{Y}$$

$$ZYYY = Z\bar{Y}\bar{X}\bar{X} = ZXYX = ZXXY$$

(六) 六角晶系

对于 6 、 $\bar{6}$ 和 $6/m$ 三类晶类，有41个非零元素，其中仅有19个是独立的，这些元素是

$$ZZZZ$$

$$(XXYY = Y\bar{Y}XX)$$

$$XXXX = YYY Y = XXYY + XY YX + XYXY \quad (XY YX = YXXY) \\ (XYXY = YXYX)$$

$$YYZZ = XXZZ \quad XYZZ = Y\bar{X}\bar{Z}\bar{Z}$$

$$ZZYY = ZZXX \quad ZZXY = \bar{Z}\bar{Z}\bar{Y}X$$

$$ZY YZ = ZX XZ \quad ZX YZ = ZY XZ$$

$$YZZY = XZZX \quad XZZY = YZZX$$

$$YZYZ = XZXZ \quad XZY Z = YZXZ$$

$$ZYZY = ZXZX \quad ZXZY = ZY\bar{Z}\bar{X}$$

$$(YYXY = XXYX)$$

$$XXXY = YYYX = YYXY + YXYX + XYYY \quad (YXYX = X\bar{Y}\bar{X}\bar{X})$$

$$(XYYY = YXXX)$$

对于 622 、 $6mm$ 、 $\frac{6}{m}mm$ 和 $6m2$ 四类晶体，有 21 个非零元素，其中仅有 10 个是独立的，这些元素是

$$ZZZZ$$

$$(XXYY = YYXX)$$

$$XXXX = YYY Y = XXYY + XY YX + XYXY \quad (XY YX = YXXY)$$

$$(XYXY = YXYX)$$

$$YYZZ = XXZZ$$

$$ZZYY = ZZXX$$

$$ZY YZ = ZX XZ$$

$$YZZY = XZZX$$

$$YZYZ = XZXZ$$

$$ZYZY = ZXZX$$

(七) 立方晶系

对于 23 和 $m\bar{3}$ 两类晶类有 21 个非零元素，其中只有 7 个是独立的，这些元素是

$$XXXX = YYY Y = ZZZZ$$

$$YYZZ = ZZXX = XXYY$$

$$ZZYY = XXZZ = YYXX$$

$$YZYZ = ZX XZ = XYXY$$

$$ZYZY = XZXZ = YXYX$$

$$YZZY = ZX XZ = XY YX$$

$$ZY YZ = XZZX = YXXY$$

对于 432 、 $43m$ 和 $m\bar{3}m$ 三类晶类，有 21 个非零元素，其中只有 4 个是独立的，这些元素是

$$XXXX = YYY Y = ZZZZ$$

$$YYZZ = ZZYY = ZZXX = XXZZ = XXYY = YYXX$$

$$YZYZ = ZY ZY = ZX XZ = XZXZ = XYXY = YXYX$$

$$YZZY = ZY YZ = ZX XZ = XZZX = XY YX = YXXY$$

(八) 各向同性介质

有 21 个非零元素，其中只有 3 个是独立的，这些元素是

$$XXXX = YYY Y = ZZZZ$$

$$YYZZ = ZZYY = ZZXX = XXZZ = XXYY = YYXX$$

$$YZYZ = ZY ZY = ZX XZ = XZXZ = XYXY = YXYX$$

$$YZZY = ZY YZ = ZX XZ = XZZX = XY YX = YXXY$$

$$XXXX = XXYY + XYXY + XYYX$$

由表3-5可以看到, 在32类晶体类型中, 按三阶电极化率张量的形式分为11个不同的群, 每一群的三阶电极化率张量的形式是相同的。这11个不同的群是:

- ① 晶类1和 $\bar{1}$;
- ② 晶类2、 m 和 $2/m$;
- ③ 晶类222、 $mm2$ 和 mmm ;
- ④ 晶类4、 $\bar{4}$ 和 $4/m$;
- ⑤ 晶类422、 $4mm$ 、 $(4/m)mm$ 和 $\bar{4}2m$;
- ⑥ 晶类3和 $\bar{3}$;
- ⑦ 晶类3 m 、 $\bar{3}2/m$ 和 32 ;
- ⑧ 晶类6、 $\bar{6}$ 和 $6/m$;
- ⑨ 晶类622、 $6mm$ 、 $(6/m)mm$ 和 $\bar{6}m2$;
- ⑩ 晶类23和 $m\bar{3}$;
- ⑪ 晶类432、 $\bar{4}3m$ 和 $m\bar{3}m$ 。

此外, 对辐射的线性响应来说, 属于立方晶系的物质和各向同性的介质是不可区分的, 它们的一阶电极化率张量 $\chi^{(1)}$ 都是

$$\begin{pmatrix} \chi & 0 & 0 \\ 0 & \chi & 0 \\ 0 & 0 & \chi \end{pmatrix}$$

但考虑了非线性响应后, 它们就可区分了。对立方晶系的432、 $\bar{4}3m$ 和 $m\bar{3}$ 类晶体类型, 有非零的二阶电极化率张量元素。但对各向同性的介质来说, 二阶电极化率张量等于零。并且, 立方晶系晶类中的 $\chi^{(3)}$ 比各向同性介质所受的限制少, 例如各向同性介质的 $\chi^{(3)}$ 中只有三个是独立的非零元素, 而立方晶系中有4个独立的非零元素。

参 考 文 献

- [1] 谢希德、方俊鑫: 《固体物理学》(上册), 上海科学技术出版社, 1962年6月, 第35页。
- [2] 同[1], 第37页。
- [3] Leonid V. Azaroff, Introduction to Solids, McGraw-Hill Book Company, Inc, New York Toronto London, 1960, pp.24~29.
- [4] Paul N. Butcher, Nonlinear Optical Phenomena, Ohio State University Engineering Publications, 1965, pp.43~49.

第四章 电磁波在介质内的传播

到现在为止,我们主要给出了非线性介质的各阶非线性电极化率张量的表示式,并详细地讨论了它们的各种性质,如本征对易对称性,空间对称性,完全对易对称性以及时间反演对称性等,还没有涉及具体的非线性光学现象。非线性光学现象的实质是辐射场与物质的非线性相互作用,不同的非线性光学现象的产生由所用非线性介质的性质(譬如属哪种类别)和所产生现象的物理条件所决定(是三波相互作用还是四波相互作用;是参量过程还是非参量过程等)。而各种非线性光学现象的具体规律都与单色平面波在非线性介质内的一般传播规律密切相关。为此,本章主要内容是从电磁场的基本方程——麦克斯韦方程出发,给出平面波在介质内的传播规律;并导出确定波的混合规律的基本方程,为五、六章讨论各种非线性光学现象和第八章讨论光学相位共轭技术作准备。

一、电磁波在向异性晶体内的传播

1. 在D空间内的等电能密度面公式

我们知道,电磁波在各向异性介质内的传播规律,是讨论许多重要课题(包括非线性光学的若干课题)的基础。在非各向同性的晶体中,由电场所感应的电极化与电场方向是不相同的,电位移矢量 \mathbf{D} 和电场强度矢量 \mathbf{E} 之间的关系为

$$\mathbf{D} = \boldsymbol{\epsilon} \cdot \mathbf{E}.$$

写成分量的形式有

$$D_{\alpha} = \epsilon_{\alpha\beta} E_{\beta}. \quad (4.1-1)$$

式中 $\epsilon_{\alpha\beta}$ 是介电张量元素; α, β 是笛卡尔坐标($\alpha, \beta = x, y, z$)。坐标 x, y 和 z 相对晶轴来说是固定的。

根据电磁场理论,电能密度 w_e 为

$$w_e = \frac{1}{2} \mathbf{E} \cdot \mathbf{D} = \frac{1}{2} E_{\alpha} \epsilon_{\alpha\beta} E_{\beta}. \quad (4.1-2)$$

又根据电磁场理论中的坡印亭定理,流入单位体积内的净功率为

$$-\nabla \cdot (\mathbf{E} \times \mathbf{H}) = \mathbf{H} \cdot \frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} + E_{\alpha} \epsilon_{\alpha\beta} \frac{\partial E_{\beta}}{\partial t}. \quad (4.1-3)$$

上式已利用物质是电介质的假定,所以传导电流密度 $\mathbf{J} = 0$, $\nabla \times \mathbf{H} = \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t}$ 。(4.1-3)式表明流入单位体积内的净功率导致单位体积内电磁场能量的变化。式中右边第一项表示单位时间单位体积内磁能的变化;第二项表示电能的变化,用 \dot{w}_e 来表示,这一项也是我们在这里特别感兴趣的一项,有关系

$$\dot{w}_e = E_{\alpha} \epsilon_{\alpha\beta} \dot{E}_{\beta} = \frac{1}{2} (E_{\alpha} \dot{E}_{\beta} + E_{\beta} \dot{E}_{\alpha}) \epsilon_{\alpha\beta}. \quad (4.1-4)$$

另外,按(4.1-2)式,电能密度的变化率为

$$\dot{w}_e = \frac{1}{2} E_\alpha \dot{E}_\beta \epsilon_{\alpha\beta} + \frac{1}{2} \dot{E}_\alpha E_\beta \epsilon_{\alpha\beta} . \quad (4.1-5)$$

比较(4.1-4)式和(4.1-5)式时,可以看到应有

$$\epsilon_{\alpha\beta} = \epsilon_{\beta\alpha} . \quad (4.1-6)$$

这与第二章我们所给出的一阶电极化率张量是对称张量的结论是一致的。这样,介电张量 ϵ 一般只有六个独立分量。因此,电场能量密度 w_e 可以写为

$$\begin{aligned} 2w_e &= E_\alpha \epsilon_{\alpha\beta} E_\beta \\ &= \epsilon_{xx} E_x^2 + \epsilon_{yy} E_y^2 + \epsilon_{zz} E_z^2 \\ &\quad + 2\epsilon_{yz} E_y E_z + 2\epsilon_{zx} E_x E_z + 2\epsilon_{xy} E_x E_y . \end{aligned} \quad (4.1-7)$$

如果现在取一个新的坐标系 (x', y', z') , 经坐标轴 x, y, z 到 x', y', z' 的变换后,使得(4.1-7)式对角化,那么这个新的坐标轴叫做介电主轴。如果我们仍用 x, y, z 表示新的轴(主轴),则在主介电坐标系中的电能密度表示式变为

$$2w_e = \epsilon_{xx} E_x^2 + \epsilon_{yy} E_y^2 + \epsilon_{zz} E_z^2 . \quad (4.1-8)$$

这表示在主介电坐标系中的介电张量 ϵ 是对角化的。这时(4.1-1)式有

$$\begin{pmatrix} D_x & & & \\ & D_y & & \\ & & D_z & \\ & & & \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \epsilon_{xx} & & & \\ & \epsilon_{yy} & & \\ & & \epsilon_{zz} & \\ & & & \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_x \\ E_y \\ E_z \\ \end{pmatrix} .$$

所以(4.1-8)式可写为

$$\frac{D_x^2}{2w_e \epsilon_{xx}} + \frac{D_y^2}{2w_e \epsilon_{yy}} + \frac{D_z^2}{2w_e \epsilon_{zz}} = 1 . \quad (4.1-9)$$

这是一个椭球方程。由此可见,在 D_x, D_y, D_z 的空间内,电场能量密度一定的面即等电能密度面是一个椭球面,与等电能密度面族对应的是椭球面族。

2. 菲涅耳方程

在本章二中,我们将要从(4.1-9)式的等电能密度面方程出发,引出折射率椭球的概念,并由折射率椭球的方法去求解电磁场在各向异性晶体中的传播规律。

在这里,我们先根据麦克斯韦方程组去求解电磁场在各向异性介质中的传播规律。现假定一束频率为 ω 的单色平面波在晶体内传播,其相位因子为

$$\exp \left\{ -i\omega \left[t - \frac{\eta}{c} (\mathbf{r} \cdot \mathbf{s}) \right] \right\} = \exp \{ -i[\omega t - \mathbf{k} \cdot \mathbf{r}] \} . \quad (4.1-10)$$

式中 \mathbf{s} 表示垂直于波前的单位矢量,因而波的相速可表示为

$$\mathbf{v}_p = \frac{c}{\eta} \mathbf{s} ; \quad (4.1-11)$$

波矢可表示为

$$\mathbf{k} = \frac{\omega \eta}{c} \mathbf{s} . \quad (4.1-12)$$

其中 η 是折射率, c 是真空中光速。

如将单色平面波(4.1-10)式代入麦克斯韦方程组

$$\nabla \times \mathbf{H} = \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t}$$

和

$$\nabla \times \mathbf{E} = - \frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t}$$

中, 则可得

$$\nabla \times \mathbf{H} = i\omega \frac{\eta}{c} [\mathbf{s} \times \mathbf{H}] = -i\omega \mathbf{D} \quad (4.1-13)$$

和

$$\nabla \times \mathbf{E} = i\omega \frac{\eta}{c} [\mathbf{s} \times \mathbf{E}] = i\omega \mathbf{B} = i\omega \mu \mathbf{H}, \quad (4.1-14)$$

或

$$\mathbf{D} = - \frac{\eta}{c} (\mathbf{s} \times \mathbf{H}), \quad (4.1-15)$$

$$\mathbf{H} = \frac{\eta}{\mu c} (\mathbf{s} \times \mathbf{E}). \quad (4.1-16)$$

由此可见, $\mathbf{D} \perp \mathbf{s}$, $\mathbf{D} \perp \mathbf{H}$ 以及 $\mathbf{H} \perp \mathbf{E}$, $\mathbf{H} \perp \mathbf{s}$ 。但是在各向异性晶体的情况下, 按(4.1-1)式, 电位移矢量 \mathbf{D} 一般不与电场强度 \mathbf{E} 平行, 所以 \mathbf{E} 、 \mathbf{D} 、 \mathbf{H} 和 \mathbf{s} 之间的几何关系是 \mathbf{E} 、 \mathbf{D} 、 \mathbf{s} 在同一平面内, 且都与磁场强度 \mathbf{H} 相垂直, 见图4-1所示。这时坡印亭矢量 $\mathbf{E} \times \mathbf{H}$ 的方向, 即能流的方向与波的相位传播的方向 \mathbf{s} 不是共线的。 $\mathbf{E} \times \mathbf{H}$ 的方向也示于图4-1中。

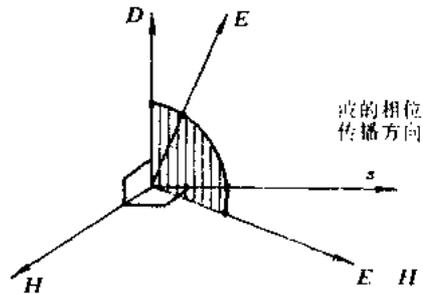


图4-1 \mathbf{E} 、 \mathbf{D} 、 \mathbf{H} 、 \mathbf{s} 和坡印亭矢量 $\mathbf{E} \times \mathbf{H}$ 在各向异性晶体内的相对方向, 其中矢量 \mathbf{D} 、 \mathbf{E} 、 \mathbf{s} 和 $\mathbf{E} \times \mathbf{D}$ 位于同一平面内

将(4.1-16)式代入(4.1-15)式后, 并利用矢量恒等式 $\mathbf{A} \times (\mathbf{B} \times \mathbf{C}) = \mathbf{B}(\mathbf{A} \cdot \mathbf{C}) - \mathbf{C}(\mathbf{A} \cdot \mathbf{B})$ 可以求得

$$\begin{aligned} \mathbf{D} &= - \frac{\eta^2}{\mu c^2} \mathbf{s} \times (\mathbf{s} \times \mathbf{E}) \\ &= \frac{\eta^2}{\mu c^2} [\mathbf{E} - \mathbf{s}(\mathbf{s} \cdot \mathbf{E})]. \end{aligned} \quad (4.1-17)$$

因为 $\mathbf{s} \cdot \mathbf{E}$ 表示矢量 \mathbf{E} 在波的传播方向 \mathbf{s} 上的投影, 所以 $\mathbf{s}(\mathbf{s} \cdot \mathbf{E})$ 表示在 \mathbf{s} 方向上电场 \mathbf{E} 的分量。这样, $\mathbf{E} - \mathbf{s}(\mathbf{s} \cdot \mathbf{E})$ 就是 \mathbf{E} 垂直于 \mathbf{s} 的分量, 我们用符号 $\mathbf{E}_{\text{横}}$ 表示, 所以(4.1-17)式可以写为

$$\mathbf{D} = \frac{\eta^2}{\mu c^2} \mathbf{E}_{\text{横}}. \quad (4.1-18)$$

又因为电位移矢量 \mathbf{D} 与波的传播方向 \mathbf{s} 相垂直, 即有 $\mathbf{s} \cdot \mathbf{D} = 0$, 所以

$$\mathbf{D}^2 = \mathbf{D} \cdot \mathbf{D} = \frac{\eta^2}{\mu c^2} \mathbf{E}_{\text{横}} \cdot \mathbf{D} = - \frac{\eta^2}{\mu c^2} \mathbf{E} \cdot \mathbf{D} = \eta^2 \epsilon_0 \mathbf{E} \cdot \mathbf{D}. \quad (4.1-19)$$

在主介电坐标系中, $D_\alpha = \epsilon_{\alpha\alpha} E'_\alpha$, 如用 $\epsilon'_{\alpha\alpha} = \epsilon_{\alpha\alpha}/\epsilon_0$ 表示相对介电常量元素, 则由(4.1-17)式, 有

$$D_x = \frac{\eta^2}{\mu_0 c^2} [E_x - s_x(\mathbf{s} \cdot \mathbf{E})] = \epsilon_{xx} E'_x \quad (4.1-20)$$

或

$$E'_x = \frac{\eta^2 s_x(\mathbf{s} \cdot \mathbf{E})}{\eta^2 - \epsilon'_{xx}} \quad (4.1-21)$$

同样, 对 y 和 z 分量 E'_y 和 E'_z 也有相类似的关系, 所以有

$$E'_\alpha = \frac{\eta^2 s_\alpha(\mathbf{s} \cdot \mathbf{E})}{\eta^2 - \epsilon'_{\alpha\alpha}} \quad \alpha = x, y, z. \quad (4.1-22)$$

将上式乘 s_α , 则有

$$\sum_{\alpha=x,y,z} s_\alpha E'_\alpha = \mathbf{s} \cdot \mathbf{E} = \mathbf{s} \cdot \mathbf{E} \sum_{\alpha=x,y,z} \frac{\eta^2 s_\alpha^2}{\eta^2 - \epsilon'_{\alpha\alpha}} \quad (4.1-23)$$

或

$$\frac{s_x^2}{\eta^2 - \epsilon'_{xx}} + \frac{s_y^2}{\eta^2 - \epsilon'_{yy}} + \frac{s_z^2}{\eta^2 - \epsilon'_{zz}} = \frac{1}{\eta^2}. \quad (4.1-24)$$

这就是晶体光学中最重要的方程之一, 叫做菲涅耳方程, 它是用来描述光在各向异性介质中的传播规律的。

下面, 我们还可以得到菲涅耳方程的另一种形式。现由(4.1-24)式减去

$$\frac{1}{\eta^2} \sum_{\alpha} s_\alpha^2 = \frac{1}{\eta^2},$$

这样便得到

$$\sum_{\alpha} s_\alpha^2 \left(\frac{1}{\eta^2 - \epsilon'_{\alpha\alpha}} - \frac{1}{\eta^2} \right) = 0 \quad (4.1-25)$$

或

$$\sum_{\alpha} \frac{s_\alpha^2 \epsilon'_{\alpha\alpha}}{\eta^2 - \epsilon'_{\alpha\alpha}} = 0. \quad (4.1-26)$$

注意, (4.1-24)式和(4.1-26)式都包括纵向本征模 $\eta = \infty$ 的解。

下面可以给出仅应用于自由波的一个有用的形式。我们用 $-\eta^2/c^2$ 乘(4.1-26)式, 并同时用 $\eta^2 \epsilon'_{\alpha\alpha}$ 除分子和分母, 可得

$$\sum_{\alpha} \frac{s_\alpha^2}{v^2 - v_{\alpha}^2} = 0. \quad (4.1-27)$$

式中

$$v_\alpha = \frac{c}{(\epsilon'_{\alpha\alpha})^{1/2}} \quad \alpha = x, y, z \quad (4.1-28)$$

叫做主速。 v 是相速。将(4.1-27)式展开后有

$$s_x^2 (v^2 - v_x^2)(v^2 - v_y^2) + s_y^2 (v^2 - v_x^2)(v^2 - v_z^2) + s_z^2 (v^2 - v_y^2)(v^2 - v_z^2) = 0 \quad (4.1-29)$$

或

$$v^4 - c_1 v^2 + c_2 = 0. \quad (4.1-30)$$

式中

$$c_1 = s_x^2(v_y^2 + v_z^2) + s_y^2(v_x^2 + v_z^2) + s_z^2(v_x^2 + v_y^2) \quad (4.1-31)$$

$$c_2 = s_x^2 v_y^2 v_z^2 + s_y^2 v_x^2 v_z^2 + s_z^2 v_x^2 v_y^2. \quad (4.1-32)$$

由此可得两个自由地传播的模的相速为

$$v = \left\{ \frac{1}{2} [c_1 \pm (c_1^2 - 4c_2)^{1/2}] \right\}^{1/2}. \quad (4.1-33)$$

3. 传播模的本征值和本征矢

现在回到方程(4.1-17)式, 实际上这是一个处理本征值问题的本征方程

$$\boldsymbol{\varepsilon} \cdot \mathbf{E}^{(m)} = \frac{\eta_m^2}{\mu c^2} [\mathbf{E}^{(m)} - \mathbf{s}(\mathbf{s} \cdot \mathbf{E}^{(m)})]. \quad (4.1-34)$$

本征值为 $\frac{1}{\eta_m^2}$, 所对应的电场本征矢为 $\mathbf{E}^{(m)}$, 并且 m 有三个可能值, 一个对应于上述的纵向模(纵向波不能作为自由波传播), 另外两个是传播的本征模, 是横向的。

(1) 横向传播模

为说明问题简单起见, 以立方晶体的情况为例, 并利用由经典的一维振子模型所导出的关系

$$\eta^2 = \left(\frac{kc}{\omega} \right)^2 = 1 + \frac{ne^2}{\varepsilon_0 m} \frac{\omega_0^2 - \omega^2}{(\omega_0^2 - \omega^2)^2 + 4h^2 \omega^2} \quad (4.1-35)$$

来分析, 式中 η 是折射率。如在零频下的相对介电系数用 $\varepsilon(0)$ 表示, 且

$$\varepsilon(0) = 1 + \frac{ne^2}{\varepsilon_0 m} \frac{1}{\omega_0^2}, \quad (4.1-36)$$

则在不考虑阻尼的情况下, (4.1-35)式变为

$$\eta^2 = 1 + \frac{(\varepsilon(0) - 1)\omega_0^2}{\omega_0^2 - \omega^2} = \left(\frac{kc}{\omega} \right)^2. \quad (4.1-37)$$

即

$$\omega^4 - [k^2 c^2 + \varepsilon(0)\omega_0^2]\omega^2 + k^2 c^2 \omega_0^2 = 0. \quad (4.1-38)$$

由上式可给出

$$k^2 c^2 = \frac{(\varepsilon(0)\omega_0^2 - \omega^2)\omega^2}{\omega_0^2 - \omega^2}. \quad (4.1-39)$$

可见, 当

$$\omega_0 < \omega < \varepsilon^{1/2}(0)\omega_0 \quad (4.1-40)$$

时, (4.1-39)式右边是负值, k 没有实数解, 因而不存在波的传播, 这表示凡频率在(4.1-40)式所确定的范围内的波, 入射到晶体时, 从晶体表面处完全被反射, 而不能进入介质内部。

上述频率范围叫做阻带。

另外, 我们从图4-2的 $1 + \chi'(\omega)$ 的曲线可见, h 增大时阻带减小, 可以证明, 当

$$h \geq \frac{\left\{ \left[\omega_0^2 + \left(\frac{ne^2}{\epsilon_0 m} \right)^2 \right]^{1/2} - \omega_0 \right\}}{2}$$

时, 阻带消失, 这时介质可以传播任何频率的波。

可求得(4.1-38)式的两个解为

$$\omega = \left[\frac{1}{2} \left\{ k^2 c^2 + \epsilon(0) \omega_0^2 \pm \left[(k^2 c^2 + \epsilon(0) \omega_0^2)^2 - 4k^2 c^2 \omega_0^2 \right]^{1/2} \right\} \right]^{1/2} \quad (4.1-41)$$

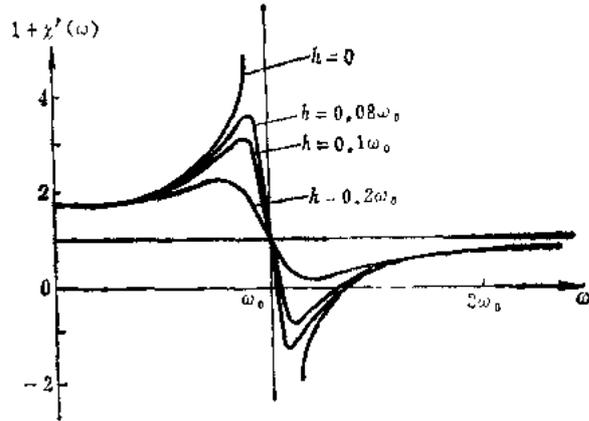


图 4-2 经典振子模型的 $1 + \chi'(\omega)$ 的频率关系曲线

在 k 比较小的情况下, 有

$$\omega_+ = \epsilon^{1/2}(0) \omega_0 \left[1 + \frac{k^2 c^2 (\epsilon(0) - 1)}{2(\epsilon(0) \omega_0)^2} \right], \quad (4.1-42)$$

$$\omega_- = kc / \epsilon^{1/2}(0). \quad (4.1-43)$$

在 $k=0$ 处, (4.1-42) 式有恒定的频率 $\epsilon^{1/2}(0) \omega_0$, 而 (4.1-43) 式在 $k=0$ 附近有恒定的斜率。

在 k 比较大的情况下, 有

$$\omega_+ = kc, \quad (4.1-44)$$

$$\omega_- = \omega_0. \quad (4.1-45)$$

(4.1-41) 式所给出的两个解其频率与波矢之间的关系曲线如图 4-3 所示。图中表明在频率 ω_0 以下和在 $\omega_L = \epsilon^{1/2}(0) \omega_0$ 以上存在传播的横向光学波, 用图中实线 TO 表示。在频率 ω_0 和 ω_L 之间的频率范围, 就是阻带。

在图 4-3 的两支 TO 中, 在每一支的上述两个极端情况之间, $\omega(k)$ 曲线有最弯曲的部分, 这个最弯曲的区域被称作为极化 (电磁) 声子 (Polariton) 区域。对于这种区域来说, 机械振动所含有的能量与电磁振荡的能量有相同的数量级 (当电磁波的频率接近介质的一个固有振动的共振频率时, 振动被强烈地激发, 相当大的一部分电磁能量被转换为机械振动的能量, 从而使电磁能的传播减慢下来。事实上, 由于波的一部分是机械振动的, 另一部分是电磁振动的, 所以通常不称为电磁波, 而称为极化 (电磁) 声子波^[11]。

(2) 纵向非传播模

现将 (4.1-17) 式改写为

$$\mathbf{E} - \mathbf{s}(\mathbf{s} \cdot \mathbf{E}) = -\frac{1}{\epsilon_0 \eta^2} \mathbf{D} = \frac{1}{\eta^2} (\mathbf{E} + \mathbf{P} / \epsilon_0). \quad (4.1-46)$$

上式两边点乘 \mathbf{s} , 可得

$$\mathbf{s} \cdot \mathbf{E} = -\frac{1}{\epsilon_0} \mathbf{s} \cdot \mathbf{P}. \quad (4.1-47)$$

将上式代入 (4.1-46) 式给出

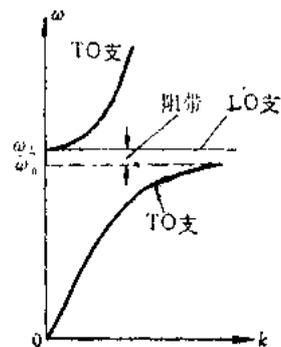


图 4-3 忽略阻尼情况下, 传播的横向光学波 (TO) 的频率与波矢的关系曲线

$$\mathbf{E} = \frac{1}{\epsilon_0(\eta^2 - 1)} [\mathbf{P} - \eta^2 \mathbf{s}(\mathbf{s} \cdot \mathbf{P})], \quad (4.1-48)$$

(4.1-48)式对纵向模和横向模都成立。当 $\eta = \infty$ 时，即对纵向模来说，上式变为

$$\mathbf{E} = -\frac{1}{\epsilon_0} \mathbf{s}(\mathbf{s} \cdot \mathbf{P}). \quad (4.1-49)$$

又对立方晶体而言，

$$\mathbf{P} = \epsilon_0 \chi(\omega) \mathbf{E} = -\chi(\omega) \mathbf{s}(\mathbf{s} \cdot \mathbf{P}). \quad (4.1-50)$$

注意，(4.1-52)式只适用于 $\eta^2 = \infty$ （即纵向模）的情况，如将上式两边点乘 \mathbf{s} ，则有

$$1 + \chi(\omega) = 0 = 1 + \frac{(\epsilon(0) - 1)\omega_0^2}{\omega_0^2 - \omega^2}. \quad (4.1-51)$$

在写出第二个等号时，已考虑了无阻尼的情况。另外，在(4.1-17)式等式两边点乘 \mathbf{s} 后，对立方晶体可得

$$(\mathbf{s} \cdot \mathbf{E})(1 + \chi(\omega)) = 0. \quad (4.1-52)$$

联系(4.1-52)式和(4.1-51)式，可知这时 $\mathbf{s} \cdot \mathbf{E} \neq 0$ ，这表明在传播方向有一个电场分量 $\mathbf{s} \cdot \mathbf{E}$ ，所以这对应于纵向模，但其折射率 $\eta^2 = \infty$ ，故此纵向模是非传播的。并由(4.1-51)式可得其频率 ω_L 为

$$\omega_L = \epsilon^{1/2}(0)\omega_0. \quad (4.1-53)$$

可见非传播的纵向模是无色散的，如图4-3中的LO支所示。

注意，因为 $\epsilon(\infty) = 1$ ，所以(4.1-53)式可以写为

$$\left(\frac{\omega_L}{\omega_0}\right)^2 = \frac{\epsilon(0)}{\epsilon(\infty)}. \quad (4.1-54)$$

这个关系叫做莱戴恩-萨克斯-特勒(Lyddane-Sachs-Teller)关系。这是对立方晶体所得的关系。对于多共振和各向异性的介质，有一般的莱戴恩-萨克斯-特勒关系^[2]。

(3) 双正交性条件

如果用 $\mathbf{E}^{(n)}$ 点乘(4.1-34)式，则得

$$\mathbf{E}^{(n)} \cdot [\mathbf{E}^{(m)} - \mathbf{s}(\mathbf{s} \cdot \mathbf{E}^{(m)})] = \frac{1}{\epsilon_0 \eta_m^2} \mathbf{E}^{(n)} \cdot \mathbf{e} \cdot \mathbf{E}^{(m)}. \quad (4.1-55)$$

在交换指标 m 和 n 后，又有

$$\mathbf{E}^{(m)} \cdot [\mathbf{E}^{(n)} - \mathbf{s}(\mathbf{s} \cdot \mathbf{E}^{(n)})] = \frac{1}{\epsilon_0 \eta_n^2} \mathbf{E}^{(m)} \cdot \mathbf{e} \cdot \mathbf{E}^{(n)}. \quad (4.1-56)$$

将上边两式相减，并考虑到介电张量 \mathbf{e} 是对称张量，我们便得到

$$\frac{1}{\epsilon_0} \left[\frac{1}{\eta_m^2} - \frac{1}{\eta_n^2} \right] \mathbf{E}^{(m)} \cdot \mathbf{e} \cdot \mathbf{E}^{(n)} = 0. \quad (4.1-57)$$

如果 $\eta_m \neq \eta_n$ ，则有

$$\mathbf{E}^{(m)} \cdot \mathbf{e} \cdot \mathbf{E}^{(n)} = 0 \quad m \neq n. \quad (4.1-58)$$

如果 $\eta_m = \eta_n$ ，仍可以选择本征矢使之满足该方程，我们可以选择本征矢使之归一化为^[2]

$$\mathbf{E}^{(m)} \cdot \mathbf{e} \cdot \mathbf{E}^{(m)} = 1. \quad (4.1-59)$$

组合最后两个方程便给出权重正交性条件

$$\mathbf{E}^{(m)} \cdot \mathbf{e} \cdot \mathbf{E}^{(n)} = \delta_{mn}. \quad (4.1-60)$$

因为电位移矢量

$$\mathbf{D}^{(m)} = \boldsymbol{\epsilon} \cdot \mathbf{E}^{(m)}, \quad (4.1-61)$$

则(4.1-60)式变为

$$\mathbf{E}^{(m)} \cdot \mathbf{D}^{(n)} = 0_{mn}. \quad (4.1-62)$$

这个关系叫做双正交性条件。因而我们有六个矢量 $\mathbf{E}^{(m)}$ ($m=1,2,3$) 和 $\mathbf{D}^{(m)}$ ($m=1,2,3$) 的双正交组，其中每一个矢量和指标不同的另一类型的矢量是正交的。

因为纵向非传播模 $\mathbf{E}^{(3)}$ 与波的传播方向 \mathbf{s} 一致，由(4.1-62)式可得两个传播模的电位移矢量是横向的，即

$$\mathbf{D}^{(1)} \perp \mathbf{s}, \quad \mathbf{D}^{(2)} \perp \mathbf{s}. \quad (4.1-63)$$

如果将 $\mathbf{D}^{(m)}$ 与 $\mathbf{D}^{(n)} = \epsilon_0 \eta_n^2 [\mathbf{E}^{(n)} - \mathbf{s}(\mathbf{s} \cdot \mathbf{E}^{(n)})]$ 标乘，则有

$$\mathbf{D}^{(m)} \cdot (\mathbf{E}^{(n)} - \mathbf{s}(\mathbf{s} \cdot \mathbf{E}^{(n)})) = \frac{1}{\epsilon_0 \eta_n^2} \mathbf{D}^{(m)} \cdot \mathbf{D}^{(n)}. \quad (4.1-64)$$

当式中 $3 \neq n \neq m \neq 3$ 时，有

$$\mathbf{D}^{(m)} \cdot \mathbf{D}^{(n)} = 0, \quad (4.1-65)$$

因而

$$\mathbf{D}^{(1)} \perp \mathbf{D}^{(2)}. \quad (4.1-66)$$

这样我们得到两个自由传播的模的电位移矢量是正交的。结合(4.1-63)式，可知 $\mathbf{D}^{(1)}$ 、 $\mathbf{D}^{(2)}$ 和 \mathbf{s} 三者形成一正交组。各个矢量之间相对取向的关系如图4-4所示。图中表明 $\mathbf{E}^{(1)}$ 、 $\mathbf{E}^{(2)}$ 和 $\mathbf{D}^{(1)}$ 是共面的， $\mathbf{E}^{(1)}$ 、 $\mathbf{E}^{(2)}$ 和 $\mathbf{D}^{(2)}$ 是共面的，并且这两个面是相互垂直的。图中用弧线将共面矢联系起来。 \mathbf{s} 是单位传播矢量， l 表示纵向非传播本征模。

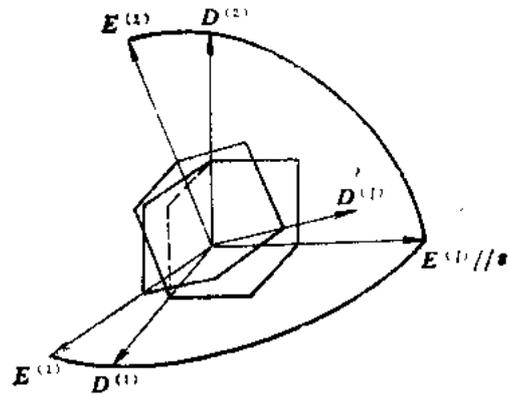


图4-4 电场和电位移本征矢的相对取向

(4) 本征值与本征矢

现将(4.1-24)式展开，我们可以得到一个关于 η^2 的二次方程，即

$$\begin{aligned} \eta^4 (s_x^2 \epsilon'_{xx} + s_y^2 \epsilon'_{yy} + s_z^2 \epsilon'_{zz}) - \eta^2 [s_x^2 \epsilon'_{xx} (\epsilon'_{yy} + \epsilon'_{zz}) \\ + s_y^2 \epsilon'_{yy} (\epsilon'_{xx} + \epsilon'_{zz}) + s_z^2 \epsilon'_{zz} (\epsilon'_{xx} + \epsilon'_{yy})] + \epsilon'_{xx} \epsilon'_{yy} \epsilon'_{zz} = 0. \end{aligned} \quad (4.1-67)$$

这样，我们可以利用(4.1-33)、(4.1-62)式以及(4.1-67)式来分析在各向同性介质(包括属于立方晶系的晶体)、单轴晶体以及双轴晶体内电磁场传播模的本征值和本征矢。

①各向同性介质 这是最简单的情况，这时有

$$\epsilon'_{xx} = \epsilon'_{yy} = \epsilon'_{zz} = \epsilon'.$$

代入(4.1-67)式后，得

$$\eta^4 \epsilon' - 2\eta^2 \epsilon'^2 + \epsilon'^3 = 0,$$

即

$$(\eta^2 - \epsilon')^2 = 0. \quad (4.1-68)$$

或根据(4.1-32)式, 这时 $c_1^2 - 4c_2 = 0$, 因而在所有方向上两个传播本征模的相速是相同的, 其值为

$$v = \left(\frac{c_1}{2} \right)^{1/2} = c/(\epsilon')^{1/2}. \quad (4.1-69)$$

按(4.1-68)式, 其折射率为

$$\eta = (\epsilon')^{1/2}. \quad (4.1-70)$$

而非传播的纵向模相速等于零, 因为它的折射率是无穷大。关于上述三个本征模(两个传播的横向模和一个非传播的纵向模)的本征矢可求得如下:

和以前一样, 设 \mathbf{s} 是传播方向的单位矢量, 则纵向模的本征矢有如下的形式, 即

$$\mathbf{E}^{(3)} = \mathbf{s}/N_3. \quad (4.1-71)$$

式中 N_3 是归一化常数。对各向同性介质来说,

$$\mathbf{D}^{(3)} = \epsilon_0 \epsilon' (\mathbf{s}/N_3). \quad (4.1-72)$$

利用(4.1-60)式求得

$$N_3 = (\epsilon)^{1/2}. \quad (4.1-73)$$

现令 \mathbf{e} 是一个传播横向模的电场方向的单位矢量, 假定

$$\mathbf{E}^{(1)} = \frac{\mathbf{e}}{N_1}. \quad (4.1-74)$$

式中 N_1 也是一个归一化常数, 并有

$$\mathbf{D}^{(1)} = \epsilon \mathbf{E}^{(1)} = \epsilon (\mathbf{e}/N_1). \quad (4.1-75)$$

因为 $\mathbf{D}^{(1)}$ 与 $\mathbf{E}^{(3)}$ 是正交的, 所以必定有

$$\mathbf{e} \cdot \mathbf{s} = 0. \quad (4.1-76)$$

同样由归一化条件(4.1-60)式可得 $N_1 = (\epsilon)^{1/2}$.

对另一个传播的横向模来说, 按(4.1-62)式, 应有 $\mathbf{D}^{(2)} \perp \mathbf{E}^{(1)}$ 和 $\mathbf{D}^{(2)} \perp \mathbf{E}^{(3)}$, 所以利

$$\mathbf{D}^{(2)} = \frac{\mathbf{s} \times \mathbf{e}}{N_2}, \quad (4.1-77)$$

$$\mathbf{E}^{(2)} = \frac{\mathbf{s} \times \mathbf{e}}{\epsilon N_2}. \quad (4.1-78)$$

用归一化条件(4.1-60)式, 可给出 $N_2 = (\epsilon)^{-1/2}$.

综合以上结果, 便可得出以下结论: 在各向同性介质内的两个传播的横向模的电场 \mathbf{E} 和电位移矢量 \mathbf{D} 都垂直于 \mathbf{s} 。如图4-5所示。

②单轴晶体 我们由第三章表3-3可知, 属于正方(如KDP)、三角(如石英)和六角晶系的晶体是单轴晶体, 具有 $\epsilon'_{xx} = \epsilon'_{yy} = \epsilon'_1$, $\epsilon'_{zz} = \epsilon'_2 \neq \epsilon'_1$ 。对于这种晶体, 主轴 x, y 是任意的, 如果选择的主轴使得波的传播方向 \mathbf{s} 在 yz 的平面内, 这样就有关系

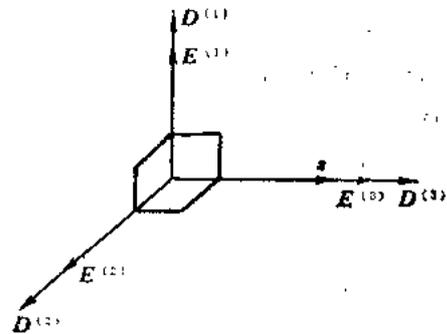


图4-5 在各向同性介质和立方晶体内电场矢量的本征矢(图中也画出单位传播矢量 \mathbf{s} , \mathbf{l} 表示纵向的非传播本征模)

$$\left. \begin{aligned} s_x &= 0, \\ s_y &= \sin\theta, \\ s_z &= \cos\theta. \end{aligned} \right\} \quad (4.1-79)$$

式中 θ 是 z 轴和 s 方向之间的夹角。将(4.1-79)式的关系和 $\epsilon'_{xx} = \epsilon'_{yy} = \epsilon'_\perp$ 及 $\epsilon'_{zz} = \epsilon'_\parallel$ 代入菲涅耳方程(4.1-67)式中,得

$$(\eta^2 - \epsilon'_\parallel) \{ \eta^2 (\epsilon'_\parallel s_z^2 + \epsilon'_\perp (s_x^2 + s_y^2)) - \epsilon'_\parallel \epsilon'_\perp \} = 0 \quad (4.1-80)$$

由此可得:对于 $\eta^2 = \epsilon'_\parallel$ 的波来说,其折射率与波的传播方向无关;对于式中第二个因子为零时所确定的折射率为

$$\frac{1}{\eta^2} = \frac{\epsilon'_\parallel s_z^2 + \epsilon'_\perp (s_x^2 + s_y^2)}{\epsilon'_\parallel \epsilon'_\perp} = \frac{\cos^2\theta}{\epsilon'_\perp} + \frac{\sin^2\theta}{\epsilon'_\parallel}, \quad (4.1-81)$$

表明这个波的折射率与波的传播方向有关。

现在我们求解本征模方程(4.1-17)式的本征矢。如将(4.1-17)式写成三个标量方程,即

$$\begin{pmatrix} \epsilon_\perp E_x \\ \epsilon_\perp E_y \\ \epsilon_\parallel E_z \end{pmatrix} = \frac{\eta^2}{\mu c^2} \begin{pmatrix} E_x - s_x(s_x E_x + s_y E_y + s_z E_z) \\ E_y - s_y(s_x E_x + s_y E_y + s_z E_z) \\ E_z - s_z(s_x E_x + s_y E_y + s_z E_z) \end{pmatrix}.$$

将假定(4.1-79)式代入后得

$$\left. \begin{aligned} E_x \left(1 - \frac{\mu c^2}{\eta^2} \epsilon_\perp \right) &= 0, \\ \left(1 - \sin^2\theta - \frac{\mu c^2 \epsilon_\perp}{\eta^2} \right) E_y - \sin\theta \cos\theta E_z &= 0, \\ -\sin\theta \cos\theta E_y + \left(1 - \cos^2\theta - \frac{\mu c^2 \epsilon_\parallel}{\eta^2} \right) E_z &= 0. \end{aligned} \right\} \quad (4.1-82)$$

当 $\eta^2 = \epsilon'_\perp$ 时,则由上式第一式可得 $E_x \neq 0$;第二、三式变为

$$\begin{aligned} -\sin\theta E_y - \cos\theta E_z &= 0, \\ -\sin\theta \cos\theta E_y + \left(1 - \cos^2\theta - \frac{\mu c^2 \epsilon'_\parallel}{\eta^2} \right) E_z &= 0. \end{aligned}$$

可以证明除非 $\theta = 0$,上式的系数行列式不为零,故 E_y 和 E_z 分量必为零。由此可得,与 $\eta^2 = \epsilon'_\perp$ 相对应的横向传播模,其偏振方向与波的传播方向 s 和光轴所组成的平面相垂直,这个波就是平常波。

如将由(4.1-81)式所决定的 η^2 代入(4.1-82)式,很容易看出这时 $E_x = 0$,而且得到第二、三式的系数行列式等于零,故场分量 E_y 和 E_z 有解,都不为零。由此可见,对于折射率由(4.1-81)式所确定的横向传播模来说,其偏振方向在波的传播方向与光轴所组成的平面内,这个波就是非常波。

由(4.1-82)式解得场分量 E_y 和 E_z 后给出它们之比为

$$\frac{E_z}{E_y} = -\frac{\epsilon'_\parallel - \eta^2 \cos\theta}{\eta^2 \sin\theta \cos\theta}. \quad (4.1-83)$$

现设电场强度矢量 E 与波的传播方向 s 的夹角为 $\frac{\pi}{2} - \alpha$, 可以证明

$$\operatorname{tg} \alpha = \frac{E_z \cos \theta + E_y \sin \theta}{E_x \sin \theta - E_y \cos \theta} = \frac{1}{2} \eta^2 \sin 2\theta \left(\frac{1}{\epsilon'_{\parallel}} - \frac{1}{\epsilon'_{\perp}} \right). \quad (4.1-84)$$

因为对我们感兴趣的大多数情况是 ϵ'_{\parallel} 和 ϵ'_{\perp} 只相差百分之几, 因而 $\operatorname{tg} \alpha$ 的值很小, 可以用 α 代替。当 $\theta = 0^\circ$ 或 90° 时, 即波沿着 z 轴或与 z 轴相垂直的方向传播时, $\alpha = 0^\circ$, 这时电场矢量 E 与波的传播方向 s 相垂直。对于 $\theta \neq 90^\circ$ 或 0° 的其它方向, E 和 s 并不垂直。另外, 由 (4.1-81) 式可见, 当 $\theta = 0^\circ$ 时, 非常波的折射率也有 $n^2 = \epsilon'_{\perp}$ 。这表明沿光轴 (z 轴) 传播的平常波和非常波具有相同的折射率。对于其它方向传播的波来说, 平常波和非常波的折射率是不相同的。

此外, 根据 (4.1-79) 式、(4.1-31)~(4.1-33) 式有

$$v = \left\{ \frac{1}{2} [2v_0^2 - (v_0^2 - v_c^2) \sin^2 \theta + (v_0^2 - v_c^2) \sin^2 \theta] \right\}^{1/2}. \quad (4.1-85)$$

式中符号 v_0 和 v_c 按 (4.1-28) 式有

$$v_0 = v_x = v_y = \frac{c}{(\epsilon'_{\perp})^{1/2}}, \quad (4.1-86)$$

$$v_c = \frac{c}{(\epsilon'_{\parallel})^{1/2}}.$$

当 (4.1-85) 式中取正号时有

$$v = v_0; \quad (4.1-87)$$

取负号时有

$$v = \{v_0^2 \cos^2 \theta + v_c^2 \sin^2 \theta\}^{1/2}. \quad (4.1-88)$$

这分别对应于平常波和非常波的相速。可见平常波的相速与波传播方向无关, 而非常波的相速却与波的传播方向和光轴之间的夹角 θ 有关。并当 $\theta = 0^\circ$ 时, 沿光轴 z 传播的平常波的相速与非常波的相速相同。

下面我们分析非传播模和传播模的本征矢。

对非传播的纵向模的本征矢, 和本节 (I) 中一样, 令

$$E^{(3)} = \frac{s}{N_3}.$$

利用归一化条件 (4.1-60) 式, 有

$$E^{(3)} = \frac{s}{(s \cdot \epsilon \cdot s)^{1/2}}, \quad (4.1-89)$$

$$D^{(3)} = \frac{\epsilon \cdot s}{(s \cdot \epsilon \cdot s)^{1/2}}. \quad (4.1-90)$$

注意这时 $E^{(3)}$ 和 $D^{(3)}$ 的方向是不一致的。

关于平常波的本征矢有

$$\mathbf{D}^{(0)} = \epsilon_0 \epsilon' \cdot \mathbf{E}^{(0)} = \epsilon_0 \epsilon'_\perp \mathbf{E}^{(0)}. \quad (4.1-91)$$

平常波的 $E_z^{(0)} = 0$ 。如果用 \mathbf{z}_0 表示 z 方向的单位矢量, $\mathbf{E}^{(0)}$ 垂直于 $\mathbf{s} \times \mathbf{z}_0$, 所以可令

$$\mathbf{E}^{(0)} = \frac{\mathbf{s} \times \mathbf{z}_0}{N_0}. \quad (4.1-92)$$

利用(4.1-60)式和矢量代数 $\mathbf{a} \cdot (\mathbf{b} \times \mathbf{c}) = \mathbf{b} \cdot (\mathbf{c} \times \mathbf{a})$ 以及 $\mathbf{c} \times (\mathbf{a} \times \mathbf{b}) = (\mathbf{c} \cdot \mathbf{b})\mathbf{a} - (\mathbf{c} \cdot \mathbf{a})\mathbf{b}$ 可得

$$N_0 = (\epsilon'_\perp)^{1/2} (1 - (\mathbf{s} \cdot \mathbf{z}_0)^2)^{1/2}. \quad (4.1-93)$$

对于非常波的本征矢, 按(4.1-62)式, 应有

$$\mathbf{D}^{(1)} \perp \mathbf{E}^{(1)}$$

和

$$\mathbf{D}^{(2)} \perp \mathbf{E}^{(2)}.$$

根据(4.1-89)式和(4.1-92)式, 可见 $\mathbf{D}^{(1)}$ 的形式为

$$\mathbf{D}^{(1)} = \frac{\mathbf{s} \times (\mathbf{s} \times \mathbf{z}_0)}{N_1}. \quad (4.1-94)$$

以及

$$\mathbf{E}^{(1)} = \frac{\epsilon^{-1} \cdot [\mathbf{s} \times (\mathbf{s} \times \mathbf{z}_0)]}{N_1}. \quad (4.1-95)$$

利用归一化条件(4.1-60)式给出

$$\begin{aligned} N_1^2 &= [\mathbf{s} \times (\mathbf{s} \times \mathbf{z}_0)] \cdot \epsilon^{-1} \cdot [\mathbf{s} \times (\mathbf{s} \times \mathbf{z}_0)] \\ &\quad - [\mathbf{s}(\mathbf{s} \cdot \mathbf{z}_0) - \mathbf{z}_0] \cdot \epsilon^{-1} \cdot [\mathbf{s}(\mathbf{s} \cdot \mathbf{z}_0) - \mathbf{z}_0] \\ &= \begin{pmatrix} \epsilon_\perp^{-1} & 0 & 0 \\ 0 & \epsilon_\perp^{-1} & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon_\parallel^{-1} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} i s_x s_z \\ j s_y s_z \\ k(s_z^2 - 1) \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} i s_x s_z \\ j s_y s_z \\ k(s_z^2 - 1) \end{pmatrix} \\ &= [(\epsilon_\perp^{-1} + s_z^2) \epsilon_\perp^{-1} + s_z^2 \epsilon_\parallel^{-1}] s_z^2 - 2 s_z^2 \epsilon_\parallel^{-1} + \epsilon_\parallel^{-1} \\ &= (1 - s_z^2) (\epsilon_\perp^{-1} s_z^2 + \epsilon_\parallel^{-1} (1 - s_z^2)). \end{aligned} \quad (4.1-96)$$

因为式中第二个因子为

$$\frac{s_z^2}{\epsilon_\perp} + \frac{1 - s_z^2}{\epsilon_\parallel} = \epsilon_\parallel \frac{s_z^2}{\epsilon_\parallel \epsilon_\perp} + \frac{\epsilon_\perp (1 - s_z^2)}{\epsilon_\parallel \epsilon_\perp},$$

实际上这就是(4.1-81)式并乘因子 $1/\epsilon_0$, 所以(4.1-96)式可改写为

$$N_1^2 = \frac{1}{\epsilon_0} \frac{1}{\eta_\perp^2(\theta)} [1 - (\mathbf{s} \cdot \mathbf{z}_0)^2].$$

由此最后求得非常波的归一化常数为

$$N_1 = \frac{1}{\epsilon_0^{1/2} \eta_\perp(\theta)} [1 - (\mathbf{s} \cdot \mathbf{z}_0)^2]^{1/2}. \quad (4.1-97)$$

注意, 在单轴晶体情况下, 平常波的 $\mathbf{E}^{(0)}$ 与 $\mathbf{D}^{(0)}$ 是相平行的, 但非常波的 $\mathbf{E}^{(1)}$ 和 $\mathbf{D}^{(1)}$ 是不平行的。在单轴晶体中二个传播的横向模和一个非传播的纵向模的电场 \mathbf{E} 和电位移 \mathbf{D} 的

矢量图如图4-6所示。

③双轴晶体 介电张量三个主值都不相同的晶体具有两个光轴，这种晶体叫做双轴晶体。属于正交、单斜和三斜晶系的晶体都是双轴晶体。因为正交晶体的对称性是足够高的，三个介电主轴都沿晶轴，而单斜晶体只有一个轴沿晶轴，三斜晶体没有一个轴沿晶轴。而且主轴相对晶轴的方向随频率而变。按习惯，主值是按

$$\epsilon_{xx} < \epsilon_{yy} < \epsilon_{zz} \quad (4.1-98)$$

选取的。所谓光轴就是两个传播模有相同相速的方向，因此根据(4.1-33)式，沿光轴方向 $(c_1^2 - 4c_2)$ 必须等于零，这个量可以表示为

$$\begin{aligned} c_1^2 - 4c_2 &= \{s_x^2(v_y^2 + v_z^2) + s_y^2(v_x^2 + v_z^2) + s_z^2(v_x^2 + v_y^2)\}^2 \\ &\quad - 4s_x^2v_y^2v_z^2 - 4s_y^2v_x^2v_z^2 - 4s_z^2v_x^2v_y^2 \\ &= \{s_x^2(v_y^2 - v_z^2) + s_y^2(v_x^2 - v_z^2) + s_z^2(v_x^2 - v_y^2)\}^2 \\ &\quad - 4s_x^2s_y^2(v_y^2 - v_z^2)(v_x^2 - v_z^2) \\ &= \{s_x^2(v_x^2 - v_z^2) + (s_y(v_x^2 - v_z^2))^{1/2} + s_z(v_y^2 - v_z^2)^{1/2}\}^2 \\ &\quad \times \{s_y^2(v_x^2 - v_z^2) + (s_x(v_x^2 - v_y^2))^{1/2} - s_z(v_y^2 - v_z^2)^{1/2}\}^2. \end{aligned} \quad (4.1-99)$$

可见式中的因子一般是正的并且是有限的。但对两个特殊的传播方向，(4.1-99)式为零，这两个方向就是光轴的方向，其由

$$s_y = 0, \quad \frac{s_x}{s_z} = \pm \left(\frac{v_x^2 - v_y^2}{v_y^2 - v_z^2} \right)^{1/2} \quad (4.1-100)$$

确定。这表明两个光轴都在 $s_y = 0$ 的平面内，并与 z 轴的夹角为 β 和 $-\beta$ ，如图4-7所示。 β 的值由

$$\operatorname{tg} \beta = \left(\frac{v_x^2 - v_y^2}{v_y^2 - v_z^2} \right)^{1/2} \quad (4.1-101)$$

给出。当 β 小于 45° 时，晶体称为正双轴晶体，当 β 大于 45° 时称为负双轴晶体。由两个光轴所构成的平面叫做光轴面。

用 β 表示时，(4.1-99)式可改写为

$$\begin{aligned} c_1^2 - 4c_2 &= (v_x^2 - v_z^2)^2 (s_y^2 + (s_x \sin \beta \\ &\quad + s_z \cos \beta)^2) (s_y^2 + (s_x \sin \beta - s_z \cos \beta)^2). \end{aligned} \quad (4.1-102)$$

我们知道波沿任一波法线方向 \mathbf{s} 传播时的两个传播模的相速由(4.1-33)式所确定。现在我们将给出两个传播模的相速的另一形式。令两个光轴方向的单位矢量为 \mathbf{a}_1 和 \mathbf{a}_2 ，则有

$$\left. \begin{aligned} \mathbf{a}_1 &= \{\sin \beta, 0, \cos \beta\}, \\ \mathbf{a}_2 &= \{-\sin \beta, 0, \cos \beta\}. \end{aligned} \right\} \quad (4.1-103)$$

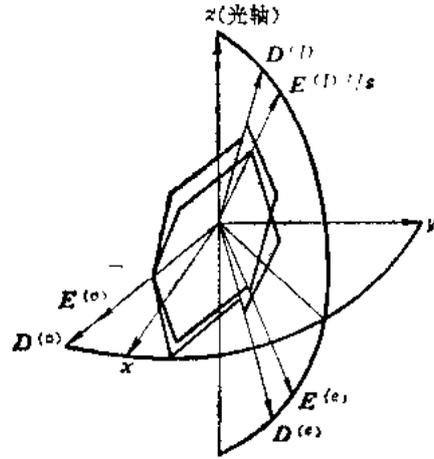


图4-6 单轴晶体的电场和电位移本征矢(图中指标 o 、 e 、 l 分别表示平常、非常和纵向波；本征矢之间的正交性由直角连线表示，共面矢量的端点用弧线相连)

它们与单位矢量 s 的矢乘积为

$$\left. \begin{aligned} |\mathbf{s} \times \mathbf{a}_1| &= [s_y^2 + (s_z \sin \beta - s_x \cos \beta)^2]^{1/2} = \sin \theta_1, \\ |\mathbf{s} \times \mathbf{a}_2| &= [s_y^2 + (s_x \sin \beta + s_z \cos \beta)^2]^{1/2} = \sin \theta_2. \end{aligned} \right\} \quad (4.1-104)$$

式中 θ_1 和 θ_2 分别是单位传播矢量 s 与 \mathbf{a}_1 和 \mathbf{a}_2 之间的夹角, 见图4-8所示(图中 x, y, z 坐标系是介电张量的主坐标系)。利用(4.1-104)式, (4.1-102)式可以表示为

$$c_1^2 - 4c_2 = (v_x^2 - v_z^2)^2 \sin^2 \theta_1 \sin^2 \theta_2. \quad (4.1-105)$$

\mathbf{a}_1 和 \mathbf{a}_2 与 s 的标乘积为

$$\left. \begin{aligned} \mathbf{s} \cdot \mathbf{a}_1 &= s_x \sin \beta + s_z \cos \beta = \cos \theta_1, \\ \mathbf{s} \cdot \mathbf{a}_2 &= -s_x \sin \beta + s_z \cos \beta = \cos \theta_2. \end{aligned} \right\} \quad (4.1-106)$$

上式给出

$$\cos \theta_1 \cos \theta_2 = s_z^2 \cos^2 \beta - s_x^2 \sin^2 \beta. \quad (4.1-107)$$

现在相速方程(4.1-33)式中的 c_1 由(4.1-31)式得

$$\begin{aligned} c_1 &= v_x^2(1 - s_x^2) + v_y^2(s_x^2 + s_z^2) + v_z^2(1 - s_z^2) \\ &= v_x^2 + v_z^2 + (v_x^2 - v_z^2)(s_x^2 \cos^2 \beta - s_z^2 \sin^2 \beta) \\ &= v_x^2 + v_z^2 + (v_x^2 - v_z^2) \cos \theta_1 \cos \theta_2. \end{aligned} \quad (4.1-108)$$

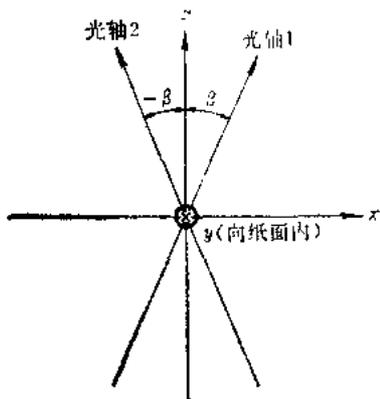


图4-7 双轴晶体中光轴的取向(x, y, z 轴是介电张量的主轴。按习惯, 介电张量主值服从规律 $\epsilon_{xx} < \epsilon_{yy} < \epsilon_{zz}$)

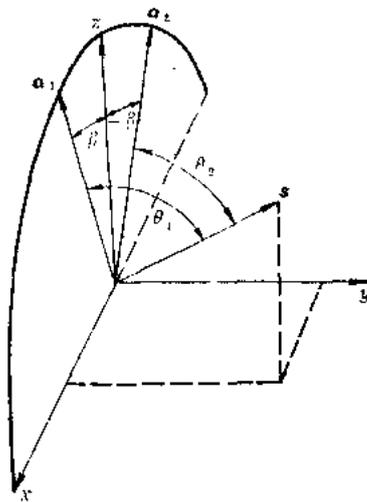


图4-8 在双轴晶体中, 由单位矢量 \mathbf{a}_1 和 \mathbf{a}_2 所表示的两个光轴与单位传播矢量 s 之间的夹角(用 θ_1 和 θ_2 表示)

在求得上式时, 已利用了(4.1-100)式和(4.1-101)式。这样, 两个传播模的最后形式可以被写为

$$v' = \left\{ \frac{1}{2} [v_x^2 + v_z^2 + (v_x^2 - v_z^2) \cos(\theta_1 + \theta_2)] \right\}^{1/2}. \quad (4.1-109)$$

因为 $v = c/\eta^+$, 由上式经过简单的运算, 可以求得两个传播模的折射率为

$$\eta^+ = \left\{ \epsilon_{xx} \sin^2((\theta_1 + \theta_2)/2) + \epsilon_{zz} \cos^2((\theta_1 + \theta_2)/2) \right\}^{1/2} \quad (4.1-110)$$

当 $\theta_1 = \theta_2 = \theta$ 时, 这对应于两个光轴相重合, 即由双轴晶体变为单轴晶体的情况。这时就有

$$\eta^+ = \left(\frac{\sin^2 \theta}{\epsilon'_{xx}} + \frac{\cos^2 \theta}{\epsilon'_{yy}} \right)^{1/2} = \eta_c(\theta),$$

$$\eta^- = (\epsilon'_{xx})^{1/2} = \eta_o.$$

在双轴晶体情况下，三个电场的本征矢可以由(4.1-34)式和(4.1-62)式求得。相对主坐标系来说，(4.1-34)式的分量形式有

$$[\eta_m^2(1-s_x^2) - \epsilon'_{xx}]E_x^{(m)} + [-\eta_m^2 s_x s_y]E_y^{(m)} + [-\eta_m^2 s_x s_z]E_z^{(m)} = 0; \quad (4.1-111a)$$

$$[-\eta_m^2 s_x s_z]E_x^{(m)} + [\eta_m^2(1-s_y^2) - \epsilon'_{yy}]E_y^{(m)} + [-\eta_m^2 s_y s_z]E_z^{(m)} = 0; \quad (4.1-111b)$$

$$[-\eta_m^2 s_x s_z]E_x^{(m)} + [-\eta_m^2 s_y s_z]E_y^{(m)} + [\eta_m^2(1-s_z^2) - \epsilon'_{zz}]E_z^{(m)} = 0. \quad (4.1-111c)$$

由(4.1-111a)和(4.1-111b)消去 $E_z^{(m)}$ 可得

$$E_y^{(m)} = \frac{\eta_m^2 - \epsilon'_{xx}}{\eta_m^2 - \epsilon'_{yy}} \frac{s_y}{s_x} E_x^{(m)}; \quad (4.1-112)$$

由(4.1-111a)式和(4.1-111c)式消去 $E_y^{(m)}$ 可得

$$E_z^{(m)} = \frac{\eta_m^2 - \epsilon'_{xx}}{\eta_m^2 - \epsilon'_{zz}} \frac{s_z}{s_x} E_x^{(m)}; \quad (4.1-113)$$

组合(4.1-112)式、(4.1-113)式和归一化条件

$$\epsilon_0 \epsilon'_{xx} (E_x^{(m)})^2 + \epsilon_0 \epsilon'_{yy} (E_y^{(m)})^2 + \epsilon_0 \epsilon'_{zz} (E_z^{(m)})^2 = 1,$$

可以求得

$$\epsilon_0 (E_x^{(m)})^2 \left[\frac{\epsilon'_{xx}(\eta_m^2 - \epsilon'_{xx})^2 s_x^2}{(\eta_m^2 - \epsilon'_{xx})^2 s_x^2} + \frac{\epsilon'_{yy}(\eta_m^2 - \epsilon'_{xx})^2 s_y^2}{(\eta_m^2 - \epsilon'_{yy})^2 s_x^2} + \frac{\epsilon'_{zz}(\eta_m^2 - \epsilon'_{xx})^2 s_z^2}{(\eta_m^2 - \epsilon'_{zz})^2 s_x^2} \right] = 1,$$

进而有

$$E_x^{(m)} = \frac{s_x}{(\eta_m^2 - \epsilon'_{xx})} / \left[\epsilon_0 \sum_{i=x,y,z} \frac{\epsilon'_{ii} s_i^2}{(\eta_m^2 - \epsilon'_{ii})^2} \right]^{1/2}. \quad (4.1-114)$$

若令

$$N^{(m)} = \left[\epsilon_0 \sum_{i=x,y,z} \frac{\epsilon'_{ii} s_i^2}{(\eta_m^2 - \epsilon'_{ii})^2} \right]^{1/2}, \quad (4.1-115)$$

则有

$$E_x^{(m)} = \frac{s_x}{(\eta_m^2 - \epsilon'_{xx})} N^{(m)}. \quad (4.1-116)$$

同样，对 y 和 z 方向的场分量也有与(4.1-116)式相类似的结果，故有

$$E_i^{(m)} = \frac{s_i}{(\eta_m^2 - \epsilon'_{ii})} N^{(m)}. \quad (4.1-117)$$

对非传播的纵向模来说，场 $E^{(l)}$ 的方向与传播方向 \mathbf{s} 一致(l 代表纵向的意思)， $\eta_l = \infty$ ，这时(4.1-117)式中的分母 $(\eta_l^2 - \epsilon'_{ii})N^{(l)}$ 按归一化条件

$$\mathbf{E}^{(l)} \cdot \mathbf{e} \cdot \mathbf{E}^{(l)} = \frac{\mathbf{s} \cdot \mathbf{e} \cdot \mathbf{s}}{(\eta_l^2 - \epsilon'_{ii})^2 (N^{(l)})^2} = 1,$$

求得为

$$(\eta_l^2 - \epsilon'_{ii})N^{(l)} = (\mathbf{s} \cdot \mathbf{e} \cdot \mathbf{s})^{1/2}. \quad (4.1-118)$$

按(4.1-117)式，电位移本征矢量的分量为

$$\mathbf{D} \cdot \mathbf{D} = \frac{\epsilon_{ij} s_i s_j}{(n_i^2 - \epsilon'_{ij}) N^2} \quad (4.1-119)$$

到此, 我们已经完全地给出了三类晶体——各向同性的(包括立方晶系的晶体)、单轴的和双轴的晶体的本征值和本征矢的计算。

二、折射率椭球

由(4.1-9)式所给出的等电能密度面可以改写为

$$\frac{D_x^2}{2\omega_c \epsilon_c \epsilon'_{xx}} + \frac{D_y^2}{2\omega_c \epsilon_c \epsilon'_{yy}} + \frac{D_z^2}{2\omega_c \epsilon_c \epsilon'_{zz}} = 1 \quad (4.2-1)$$

如果我们用 r^2 代替 $\mathbf{D}^2/2\omega_c \epsilon_c$, 并用主折射率 n_x 、 n_y 、 n_z 代替相对主介电系数 $(\epsilon'_{xx})^{1/2}$ 、 $(\epsilon'_{yy})^{1/2}$ 、 $(\epsilon'_{zz})^{1/2}$, 则(4.2-1)式又可以写为

$$\frac{x^2}{n_x^2} + \frac{y^2}{n_y^2} + \frac{z^2}{n_z^2} = 1 \quad (4.2-2)$$

这也是一个椭球方程, 叫做折射率椭球, 有时叫做光率体。在 x 、 y 、 z 方向的长度分别为 $2n_x$ 、 $2n_y$ 和 $2n_z$ 。下面我们将要证明, 在晶体内沿任意方向 \mathbf{s} 传播的两个独立的传播模的折射率和相应的电位移矢量 \mathbf{D} 的方向, 可以利用上面引入的折射率椭球来寻求。具体的方法和步骤如下:

作垂直于传播方向 \mathbf{s} 并通过折射率椭球球心的一个平面, 该平面与椭球相交得到一个椭圆的截面, 该截面的两个轴的长度分别为 $2n_1$ 和 $2n_2$ 。可以证明 n_1 和 n_2 就是菲涅耳方程的两个解, 即两个传播模的折射率。并且该椭圆的两个轴分别平行于两个传播模的电位移矢量 \mathbf{D}_1 和 \mathbf{D}_2 的方向。现证明如下。

我们上面所引入的椭圆由如下两个面, 即折射率椭球

$$\frac{x^2}{\epsilon'_{xx}} + \frac{y^2}{\epsilon'_{yy}} + \frac{z^2}{\epsilon'_{zz}} = 1 \quad (4.2-3)$$

和垂直于传播方向 \mathbf{s} 的平面

$$\mathbf{r} \cdot \mathbf{s} = xs_x + ys_y + zs_z = 0 \quad (4.2-4)$$

所确定。式中 \mathbf{r} 是椭圆中心到椭圆上任意一点的矢径, 有

$$r^2 = x^2 + y^2 + z^2 \quad (4.2-5)$$

因此对于椭圆的主半轴来说, 可由(4.2-5)式 r^2 求极值给出。因为受到条件(4.2-3)式和(4.2-4)式的约束, 所以这里的极值问题是一个寻求相对极大值和极小值的问题(设函数所依赖的变量都是自变量, 这种情况下的极大值和极小值, 叫做绝对的, 如果函数所依赖的变量由某些关系相联系, 那么这种情况下的极大值与极小值, 叫做相对的)。求相对极大值和极小值的问题的方法有拉格朗日不定乘子法^[4]。该方法是: 设要求函数 $f(x_1, \dots, x_n, x_{n+1}, \dots, x_{n+n})$ 的极大值和极小值, 但变量 x_i 之间有 n 个关系

$$\varphi_i(x_1, x_2, \dots, x_n, x_{n+1}, \dots, x_{n+n}) = 0$$

相联系, $i = 1, 2, \dots, n$ 。可以证明为求得函数 f 的相对极大值或极小值, 变量 x_i 应取的值必须使下式所确定的函数

$$\Phi = f + \lambda_1 \varphi_1 + \lambda_2 \varphi_2 + \dots + \lambda_n \varphi_n$$

对所有 x_i 的偏导数皆为零, 式中 $\lambda_1, \lambda_2, \dots, \lambda_n$ 等是不定乘数。

按上述方法, 在这里我们可以引入一个函数 $F(x, y, z, \lambda_1, \lambda_2)$ 为

$$F = (x^2 + y^2 + z^2) + \lambda_1(xs_x + ys_y + zs_z) + \lambda_2 \left(\frac{x^2}{\epsilon'_{xx}} + \frac{y^2}{\epsilon'_{yy}} + \frac{z^2}{\epsilon'_{zz}} - 1 \right), \quad (4.2-6)$$

式中 λ_1 和 λ_2 是不定乘数。因此我们可以从如下一些方程:

$$\frac{\partial F}{\partial x} = \frac{\partial F}{\partial y} = \frac{\partial F}{\partial z} = 0, \quad (4.2-7)$$

求出 r^2 为极值时的 x, y, z 和不定乘数 λ_1, λ_2 。由

$$\frac{\partial F}{\partial x} = 2x + \lambda_1 s_x + 2\lambda_2 \frac{x}{\epsilon'_{xx}} = 0$$

得

$$x + \frac{\lambda_1}{2} s_x + \frac{\lambda_2 x}{\epsilon'_{xx}} = 0; \quad (4.2-8a)$$

同理可得

$$y + \frac{\lambda_1}{2} s_y + \frac{\lambda_2 y}{\epsilon'_{yy}} = 0 \quad (4.2-8b)$$

和

$$z + \frac{\lambda_1}{2} s_z + \frac{\lambda_2 z}{\epsilon'_{zz}} = 0. \quad (4.2-8c)$$

现用 x, y, z 分别乘(4.2-8a)式、(4.2-8b)式和(4.2-8c)式, 并相加, 得

$$r^2 + \frac{\lambda_1}{2}(xs_x + ys_y + zs_z) + \lambda_2 \left(\frac{x^2}{\epsilon'_{xx}} + \frac{y^2}{\epsilon'_{yy}} + \frac{z^2}{\epsilon'_{zz}} \right) = 0.$$

利用条件(4.2-3)式和(4.2-4)式, 上式便变为

$$r^2 + \lambda_2 = 0. \quad (4.2-9)$$

注意(4.2-9)式中的 r^2 已表示我们所要求的极值, (4.2-8)式中的 x, y, z 是 r^2 为极值时的坐标。另外, 如用 s_x, s_y 和 s_z 分别乘(4.2-8a)式、(4.2-8b)式和(4.2-8c)式, 并相加, 则得

$$\frac{\lambda_1}{2} + \lambda_2 \left(\frac{xs_x}{\epsilon'_{xx}} + \frac{ys_y}{\epsilon'_{yy}} + \frac{zs_z}{\epsilon'_{zz}} \right) = 0. \quad (4.2-10)$$

组合(4.2-8)~(4.2-10)式可得

$$\left. \begin{aligned} x \left(1 + \frac{r^2}{\epsilon'_{xx}} \right) + r^2 s_x \left(\frac{xs_x}{\epsilon'_{xx}} + \frac{ys_y}{\epsilon'_{yy}} + \frac{zs_z}{\epsilon'_{zz}} \right) &= 0, \\ y \left(1 + \frac{r^2}{\epsilon'_{yy}} \right) + r^2 s_y \left(\frac{xs_x}{\epsilon'_{xx}} + \frac{ys_y}{\epsilon'_{yy}} + \frac{zs_z}{\epsilon'_{zz}} \right) &= 0, \\ z \left(1 + \frac{r^2}{\epsilon'_{zz}} \right) + r^2 s_z \left(\frac{xs_x}{\epsilon'_{xx}} + \frac{ys_y}{\epsilon'_{yy}} + \frac{zs_z}{\epsilon'_{zz}} \right) &= 0. \end{aligned} \right\} \quad (4.2-11)$$

因为按以上假定 r 与电位移矢量 \mathbf{D} 之间的关系为

$$r = \frac{D}{(2\epsilon_0 \epsilon_r)^{1/2}}, \quad (4.2-12)$$

所以

$$E_x = \frac{D_x}{\epsilon_{rx}} = \frac{x(2\epsilon_0\omega_c)^{1/2}}{\epsilon_{xx}}$$

或

$$x = \frac{\epsilon_{xx}E_x}{(2\epsilon_0\omega_c)^{1/2}}, \quad (4.2-13a)$$

同理, y 和 z 分别为

$$y = \frac{\epsilon_{yy}E_y}{(2\epsilon_0\omega_c)^{1/2}}, \quad (4.2-13b)$$

$$z = \frac{\epsilon_{zz}E_z}{(2\epsilon_0\omega_c)^{1/2}}. \quad (4.2-13c)$$

将(4.2-13)式代入(4.2-11)式后, 可得

$$E_x\epsilon_{xx} = \epsilon_0 r^2 [E_x - s_x(s \cdot E)] \quad (4.2-14)$$

或

$$D = \frac{r^2}{\mu c^2} [E - s(s \cdot E)]. \quad (4.2-15)$$

如果令(4.2-15)式中的 $r^2 = \eta^2$, 则所得结果与直接由麦克斯韦方程组求得的(4.1-17)式完全一致。由此可见, 由(4.2-9)式所确定的极值 r 用来求得对应于相截椭圆的长轴和短轴之值, 并从而求得两个传播模的折射率 η_1 和 η_2 的值。同时由(4.2-12)式表明, 矢量 r 与 D 的方向一致, 所以相截椭圆长、短轴的方向也就是相应传播模的电位移矢量 D_1 和 D_2 的方向, 如图4-9所示。

综上所述可见, 我们在其中直接利用麦克斯韦方程组所得的电磁场在各向异性晶体内的传播规律, 与本节利用折射率椭球的方法所得到的规律完全一致。

例1 在单轴晶体中波的传播。

对单轴晶体来说, 折射率椭球(4.2-2)式可简化为

$$\frac{x^2}{\eta_o^2} + \frac{y^2}{\eta_o^2} + \frac{z^2}{\eta_e^2} = 1. \quad (4.2-16)$$

在这里按习惯取 z 轴为对称轴, 也叫光轴, η_o 是平常光的主折射率, η_e 是非常光的主折射率。如果 $\eta_e > \eta_o$, 则晶体叫做正单轴晶体, $\eta_e < \eta_o$ 的晶体叫做负单轴晶体。现假定波的传播方向的单位矢量为 s , 由于单轴晶体的折射率椭球是绕 z 轴的一个旋转椭球, 所以不失普遍性可以选择坐标轴使得矢量 s 在 xy 平面上的投影与 y 轴相重合。这样, 垂直于 s 并与折射率椭球相截的椭圆, 不管 s 方向如何, 对正单轴晶体而言, 椭圆的半短轴是不变的, 相应的折射率都是 η_o , 而椭圆的半长轴随 s 的方向不同而变, 如图4-10所示。图中相截椭圆的半长轴 OA 在 s 和 z 轴所组成的平面之内, 而半短轴 OB 与上述平面相垂直。由此可得折射率等于半长轴 OA (再次强调对正单轴晶体而言)的光是非常光, 其电位移矢量 $D_e(\theta)$ 与 OA 相平行, 平常光的电位移矢量 D_o 与 OB 相平行, 其折射率为 η_o 。

由图4-10可见, 当光轴和传播方向 s 之间的夹角 θ 改变时, 平常光的偏振方向保持不变, 即沿图中 x 轴的方向, 而且折射率总等于 η_o 。而 $D_e(\theta)$ 的方向随 θ 而变, 且 $\eta_e(\theta)$ 的值由

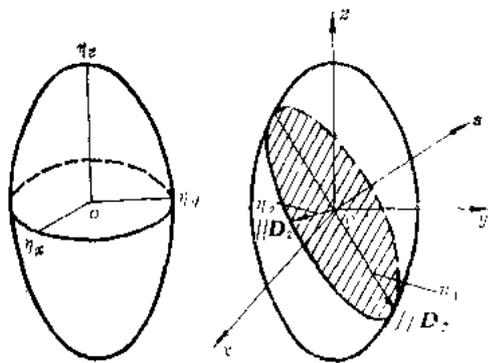


图 4-9 寻求在给定传播方向 s 时的两个传播模的折射率以及相应的电位移矢量方向的图示法

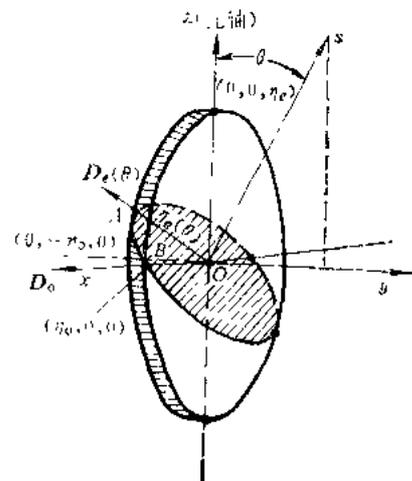


图 4-10 正单轴晶体情况下,寻求给定传播方向 s 时的两个传播模的折射率及相应的电位移矢量方向的图示法

$\theta = 0$ 时的 $n_e(\theta) = n_e(0) = n_o$ 变化到 $\theta = \pi/2$ 时的 $n_e(\theta) = n_e(\pi/2) = n_e$ 。根据图 4-10 也可以立即给出 $n_e(\theta)$ 具有 (4.1-81) 式的关系

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

下面我们根据以上所得到的平常光和非常光的折射率 n_o 和 $n_e(\theta)$ 随波法线方向 s 的规律,可以一般地将 n_o 和 n_e 表示为决定传播方向的 θ 和方位角 φ 的函数,即表示为 $n_o(\theta, \varphi)$ 和 $n_e(\theta, \varphi)$ 。我们定义由 $n_e(\theta, \varphi)$ 和 $n_o(\theta, \varphi)$ 所确定的三维曲面叫做法面。当然,对单轴晶体来说,因为平常光和非常光的折射率与 φ 是无关的,所以方位角 φ 是多余的。显然,由 $n_e(\theta, \varphi)$ 所确定的法面也是绕光轴 z 的一个旋转椭球面,而 $n_o(\theta, \varphi)$ 所确定的法面是一个球面。这两个曲面与光轴和传播方向所组成的平面的交线,如图 4-11 所示。注意该图是对于正单轴晶体的情况而言的。

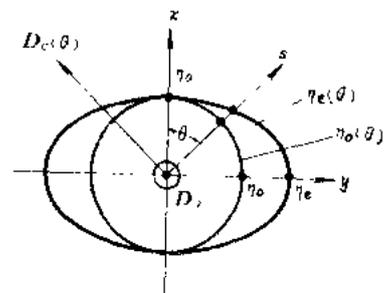


图 4-11 正单轴晶体 ($n_e > n_o$) 的法面与 $s-z$ 平面的交线

我们在这里所引入的法面图是十分有用的,因为从这种图中可以一目了然地得到两个传播模的折射率的大小,并立即表示出相应的电位移矢量的方向, $D_e(\theta)$ 在 $s-z$ 平面内,而平常光的电位移矢量 D_o 与该平面垂直。

例2 在双轴晶体中波的传播。

将 (4.1-26) 式展开后有

$$\begin{aligned} \eta^4(\epsilon'_{xx}s_x^2 + \epsilon'_{yy}s_y^2 + \epsilon'_{zz}s_z^2) - \eta^2[\epsilon'_{xx}\epsilon'_{yy}(s_x^2 + s_y^2) \\ + \epsilon'_{yy}\epsilon'_{zz}(s_y^2 + s_z^2) + \epsilon'_{zz}\epsilon'_{xx}(s_x^2 + s_z^2)] + \epsilon'_{xx}\epsilon'_{yy}\epsilon'_{zz} = 0 \end{aligned} \quad (4.2-17)$$

这是折射率曲面在主轴坐标系中的方程。如果用 $\eta^2 = x^2 + y^2 + z^2 = \eta^2(s_x^2 + s_y^2 + s_z^2)$ 代入上式,则 (4.2-17) 式变为

$$(\epsilon'_{xx}x^2 + \epsilon'_{yy}y^2 + \epsilon'_{zz}z^2)(x^2 + y^2 + z^2) - [\epsilon'_{xx}(\epsilon'_{yy} + \epsilon'_{zz})x^2 + \epsilon'_{yy}(\epsilon'_{zz} + \epsilon'_{xx})y^2 + \epsilon'_{zz}(\epsilon'_{xx} + \epsilon'_{yy})z^2] + \epsilon'_{xx}\epsilon'_{yy}\epsilon'_{zz} = 0 \quad (4.2-18)$$

这是一个四次曲面的方程，这个四次曲面在三个主轴截面上的截线分别是：

在 xy 面上($z=0$)有

$$(\epsilon'_{xx}x^2 + \epsilon'_{yy}y^2)(x^2 + y^2) - [\epsilon'_{xx}(\epsilon'_{yy} + \epsilon'_{zz})x^2 + \epsilon'_{yy}(\epsilon'_{zz} + \epsilon'_{xx})y^2] + \epsilon'_{xx}\epsilon'_{yy}\epsilon'_{zz} = 0 \quad (4.2-19)$$

经过简单的运算，上式可变为

$$(x^2 + y^2 - \epsilon'_{zz})\left(\frac{x^2}{\epsilon'_{yy}} + \frac{y^2}{\epsilon'_{xx}} - 1\right) = 0, \quad (4.2-20a)$$

同理，在 yz 平面上($x=0$)有

$$(y^2 + z^2 - \epsilon'_{xx})\left(\frac{y^2}{\epsilon'_{zz}} + \frac{z^2}{\epsilon'_{yy}} - 1\right) = 0, \quad (4.2-20b)$$

在 xz 平面上($y=0$)有

$$(x^2 + z^2 - \epsilon'_{yy})\left(\frac{x^2}{\epsilon'_{zz}} + \frac{z^2}{\epsilon'_{xx}} - 1\right) = 0. \quad (4.2-20c)$$

由此可见，四次曲面在三个主轴截面上的截线都是一个圆和一个同心的椭圆，如图4-12所示。折射率曲面在第一象限中的示意图如图4-13所示。

当给定波的法线方向，并已知两个光轴的方向，便可用作图的办法很方便地给出两个传播模的本征矢 \mathbf{D} 矢量的振动面^[5]。

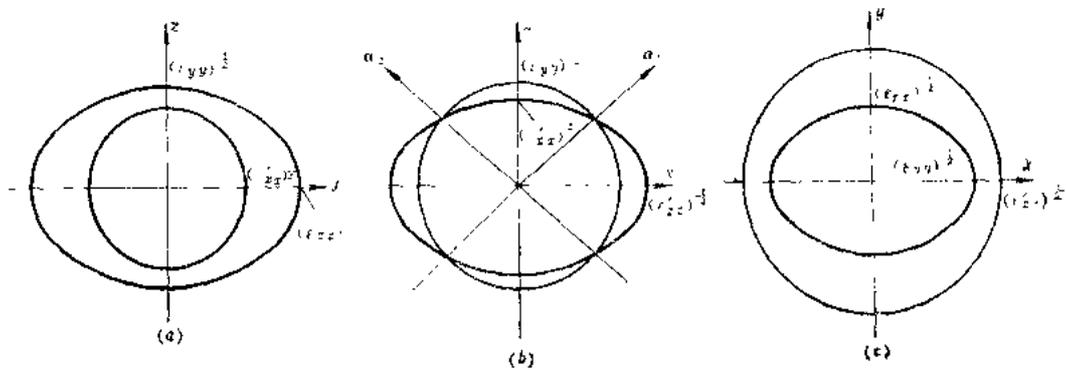


图4-12 双轴晶体的折射率曲面在三个主轴截面上的截线

(a) $x=0$; (b) $y=0$; (c) $z=0$

如图4-14所示，通过双轴晶体折射率椭球中心作垂直于波法线 \mathbf{s} 的截面，该截面与椭球相截的截线是一个椭圆。椭圆长轴和短轴的方向与该传播方向的两个传播模的电位移矢量的方向相一致。半轴长就是相应的折射率。现已知光轴的方向为 \mathbf{a}_1 和 \mathbf{a}_2 ，并垂直于光轴和通过椭球中心的平面与椭球相截的截线是一个圆。这两个圆截面与上述椭圆截面分别在矢径 r_1 和 r_2 处相交，当然 r_1 和 r_2 有相同的长度，因而由图4-15可知 r_1 和 r_2 与椭圆的一个主轴的夹角相等。所以两个传播模的电位移矢量必定在 r_1 和 r_2 两个方向的等分角线的方向上。

因为 r_1 垂直于 \mathbf{a}_1 和 \mathbf{s} ，因而垂直于 \mathbf{a}_1 和 \mathbf{s} 构成的平面；同样 r_2 垂直于 \mathbf{a}_2 和 \mathbf{s} 构成的平面。

假定 (α_1, \mathbf{s}) 平面和 (α_2, \mathbf{s}) 平面与上述椭圆分别相交于矢径 r_1' 和 r_2' 处, 因为 r_1' 和 r_2' 分别在 (α_1, \mathbf{s}) 面内和 (α_2, \mathbf{s}) 面内, 所以 $r_1' \perp r_2'$ 。由图4-15可见, 椭圆的另一主轴也等分 r_1' 和 r_2' 的夹角。由此我们可以得到如下的结论: 只要作出 (α_1, \mathbf{s}) 面和 (α_2, \mathbf{s}) 面, 然后作出这两个面的内平分面和外平分面, 那么这两个内平分面和外平分面就是我们所要求的两个传播模的 \mathbf{D} 矢量的振动面。

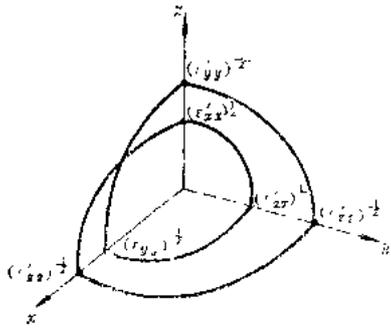


图 4-13 双轴晶体的折射率曲面在第一象限中的示意图

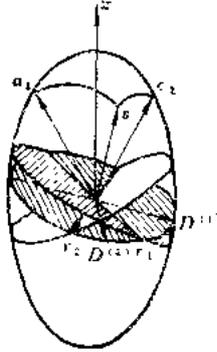


图 4-14 双轴晶体两个传播模的本征矢 $\mathbf{D}^{(1)}$ 和 $\mathbf{D}^{(2)}$ 的振动面 $(\mathbf{D}^{(1)}, \mathbf{s})$ 和 $(\mathbf{D}^{(2)}, \mathbf{s})$ 的确定

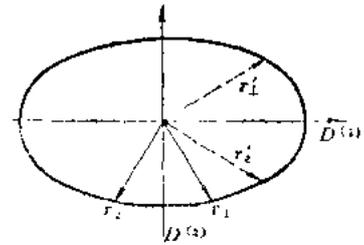


图 4-15 图(4-14)中的椭圆截面与垂直光轴的两个圆截面以及 (α_1, \mathbf{s}) 面和 (α_2, \mathbf{s}) 面交线的示意图

三、介质有耗对波的传播的影响

迄今为止, 我们所讨论的情况是以基本关系 $D_\alpha = \epsilon_{\alpha\beta} E_\beta$ 为基础的, 这关系表示介质被认为是无耗的。实际上介质总是有耗的, 在这种情况下, 介电张量应表示为

$$\epsilon(\omega) = \epsilon'(\omega) + i\epsilon''(\omega). \quad (4.3-1)$$

因为我们通常所讨论的电介质的损耗是很小的, 因而可以将 $\epsilon''(\omega)$ 对折射率的影响当作一个小的微扰去处理。令 η 和 \mathbf{E} 分别表示在忽略介质损耗情况下所得到的折射率和电场矢量, 则按(4.1-17)式有

$$\mathbf{D} = \epsilon' \cdot \mathbf{E} = -\frac{\eta^2}{\mu c^2} \mathbf{s} \times (\mathbf{s} \times \mathbf{E}). \quad (4.3-2)$$

注意, 本节各式中的 ϵ' 都不是相对介电张量。如果考虑到损耗 ϵ'' 的影响, 并令考虑微扰后的折射率和电场矢量分别为 η' 和 \mathbf{E}' , 则按(4.1-17)式应有

$$\epsilon \cdot \mathbf{E}' = -\frac{(\eta')^2}{\mu c^2} \mathbf{s} \times (\mathbf{s} \times \mathbf{E}') \quad (4.3-3)$$

或

$$\frac{(\eta')^2}{\mu c^2} \mathbf{s} \times (\mathbf{s} \times \mathbf{E}') + \epsilon'(\omega) \cdot \mathbf{E}' + i\epsilon''(\omega) \cdot \mathbf{E}' = 0. \quad (4.3-4)$$

现将 \mathbf{E}' 标乘(4.3-2)式, \mathbf{E} 标乘(4.3-4)式, 并相减得

$$\mathbf{E}' \cdot \epsilon' \cdot \mathbf{E} - \frac{\eta^2}{\mu c^2} \mathbf{E}' \cdot (\mathbf{s} \cdot (\mathbf{s} \times \mathbf{E}))$$

$$-\frac{(\eta')^2}{\mu c^2} \mathbf{E} \cdot \mathbf{s} \times (\mathbf{s} \times \mathbf{E}') - \mathbf{E} \cdot \boldsymbol{\epsilon}' \cdot \mathbf{E}' - i \mathbf{E} \cdot \boldsymbol{\epsilon}'' \cdot \mathbf{E}' = 0$$

或

$$\frac{(\eta')^2}{\mu c^2} \mathbf{E} \cdot [\mathbf{s} \times (\mathbf{s} \times \mathbf{E}')] - \frac{\eta^2}{\mu c^2} \mathbf{E}' \cdot [\mathbf{s} \times (\mathbf{s} \times \mathbf{E})] - i \mathbf{E} \cdot \boldsymbol{\epsilon}'' \cdot \mathbf{E}' = 0, \quad (4.3-5)$$

这里已利用了恒等式

$$\mathbf{E} \cdot \boldsymbol{\epsilon}' \cdot \mathbf{E}' = \mathbf{E}' \cdot \boldsymbol{\epsilon}' \cdot \mathbf{E}, \quad (4.3-6)$$

另外, 利用矢量恒等式 $(\mathbf{a} \times \mathbf{b}) \cdot \mathbf{c} = \mathbf{a} \cdot (\mathbf{b} \times \mathbf{c})$ 有

$$\mathbf{E} \cdot [\mathbf{s} \times (\mathbf{s} \times \mathbf{E}')] = -(\mathbf{s} \times \mathbf{E}') \cdot (\mathbf{s} \times \mathbf{E}) = \mathbf{E}' \cdot [\mathbf{s} \times (\mathbf{s} \times \mathbf{E})], \quad (4.3-7)$$

将(4.3-7)式代入(4.3-5)式后使得

$$\frac{(\eta')^2}{\mu c^2} = \frac{\eta^2}{\mu c^2} + \frac{i \mathbf{E} \cdot \boldsymbol{\epsilon}'' \cdot \mathbf{E}'}{(\mathbf{s} \times \mathbf{E}) \cdot (\mathbf{s} \times \mathbf{E}')} \quad (4.3-8)$$

或

$$(\eta')^2 = \eta^2 + \frac{1}{\epsilon_0} \frac{i \mathbf{E} \cdot \boldsymbol{\epsilon}'' \cdot \mathbf{E}'}{(\mathbf{s} \times \mathbf{E}) \cdot (\mathbf{s} \times \mathbf{E}')}. \quad (4.3-9)$$

如果我们忽略上式右边 \mathbf{E} 和 \mathbf{E}' 之间的微小差别, 并将平方根展开, 得

$$\eta' = \eta + \frac{i}{2\epsilon_0 \eta} \frac{\mathbf{E} \cdot \boldsymbol{\epsilon}'' \cdot \mathbf{E}}{(\mathbf{s} \times \mathbf{E})^2} = \eta + iK. \quad (4.3-10)$$

式中

$$K = \frac{1}{2\epsilon_0 \eta} \frac{\mathbf{E} \cdot \boldsymbol{\epsilon}'' \cdot \mathbf{E}}{(\mathbf{s} \times \mathbf{E})^2}. \quad (4.3-11)$$

这里所定义的 K 叫做在 \mathbf{s} 方向传播的行波的消光系数。由以上分析可见, 由于介质有耗, 折射率是复数, 虚部 K 的存在表示着波在介质内传播时将受到衰减。

四、非线性相互作用的电磁公式

以上各节我们讨论了在各类晶体中传播模的规律, 没有涉及电磁波之间的耦合问题。但在许多非线性光学现象中, 要涉及若干波场之间的耦合。本节的中心内容就是由麦克斯韦方程出发, 导出一个能确定波的混合规律的基本方程。

我们在第一章中已导出一个非磁的均匀电介质中的波动方程为

$$\nabla^2 \mathbf{E} = \mu_0 \sigma \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} + \mu_0 \epsilon_0 \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} + \mu_0 \frac{\partial^2 \mathbf{P}}{\partial t^2}. \quad (4.4-1)$$

式中 σ 是电导率, \mathbf{P} 是电极化强度, 它包括线性电极化强度 \mathbf{P}_L , 又包括非线性电极化强度 \mathbf{P}_{NL} 。如果将电场强度 \mathbf{E} 和电极化强度 \mathbf{P} 用它们的傅里叶分量表示时, 则有

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \sum_{\omega} \mathbf{E}(\omega, \mathbf{r}) \exp(-i\omega t), \quad (4.4-2)$$

$$\mathbf{P}(\mathbf{r}, t) = \sum_{\omega} \mathbf{P}(\omega, \mathbf{r}) \exp(-i\omega t). \quad (4.4-3)$$

那么对应每一个频率分量来说, 相应的波动方程为

$$\nabla^2 \mathbf{E}(\omega_n, \mathbf{r}) = -i\sigma\mu_0\omega_n \mathbf{E}(\omega_n, \mathbf{r}) - \mu_0\epsilon_0\omega_n^2 \mathbf{E}(\omega_n, \mathbf{r}) - \mu_0\omega_n^2 \mathbf{P}(\omega_n, \mathbf{r}). \quad (4.4-4)$$

如果只考虑介质的响应是线性的, 则电极化强度 $\mathbf{P}(\omega, \mathbf{r})$ 只包含线性电极化强度 $\mathbf{P}_L(\omega_n, \mathbf{r})$, 即

$$\mathbf{P}(\omega_n, \mathbf{r}) = \mathbf{P}_L(\omega_n, \mathbf{r}) = \epsilon_0 \chi^{(1)}(\omega_n) \cdot \mathbf{E}(\omega_n, \mathbf{r}). \quad (4.4-5)$$

将 (4.4-5) 式代入 (4.4-4) 式后, 就得到熟知的波动方程

$$\begin{aligned} \nabla^2 \mathbf{E}(\omega_n, \mathbf{r}) &= -i\mu_0\sigma\omega_n \mathbf{E}(\omega_n, \mathbf{r}) - \mu_0\epsilon_0\omega_n^2 \mathbf{E}(\omega_n, \mathbf{r}) \\ &\quad - \epsilon_0\mu_0\omega_n^2 \chi^{(1)}(\omega_n) \cdot \mathbf{E}(\omega_n, \mathbf{r}) \\ &= -i\mu_0\sigma\omega_n \mathbf{E}(\omega_n, \mathbf{r}) - \mu_0\omega_n^2 \boldsymbol{\epsilon}(\omega_n) \cdot \mathbf{E}(\omega_n, \mathbf{r}). \end{aligned} \quad (4.4-6)$$

式中

$$\boldsymbol{\epsilon}(\omega_n) = \epsilon_0(1 + \chi^{(1)}(\omega_n)) \quad (4.4-7)$$

是介电张量。(4.4-6) 式的解 $\mathbf{E}(\omega_n, \mathbf{r})$ 是一平面波, 具体形式可写为

$$\mathbf{E}(\omega_n, \mathbf{r}) = E(\omega_n) \mathbf{a}(\omega_n) \exp(i\mathbf{k}_n \cdot \mathbf{r}) \quad (4.4-8)$$

式中 $E(\omega_n)$ 表示场强复振幅; $\mathbf{a}(\omega_n)$ 表示波的偏振方向的单位矢量。在介质有耗的情况下, $\sigma \neq 0$, k_n 是复数; 在介质是无耗的情况下, k_n 是实数。如果我们现在规定波的传播方向为 z 方向, 并考虑到波的复振幅是随 z 变化的, 则 (4.4-8) 式可改写为

$$\mathbf{E}(\omega_n, z) = E(\omega_n, z) \mathbf{a}(\omega_n) \exp(ik_n z) \quad (4.4-9)$$

这时指数因子中的波矢量 k_n 是实数, 但复振幅 $E(\omega_n, z)$ 已是 z 的函数。将 (4.4-9) 式代入 (4.4-6) 式后, 有

$$\begin{aligned} &\frac{d^2 E(\omega_n, z)}{dz^2} \mathbf{a}(\omega_n) \exp(ik_n z) + 2ik_n \mathbf{a}(\omega_n) \\ &\times \frac{dE(\omega_n, z)}{dz} \exp(ik_n z) k_n^2 - E(\omega_n, z) \mathbf{a}(\omega_n) \exp(ik_n z) \\ &= -i\mu_0\sigma\omega_n E(\omega_n, z) \mathbf{a}(\omega_n) \exp(ik_n z) \\ &\quad - \mu_0\omega_n^2 \boldsymbol{\epsilon}(\omega_n) \cdot \mathbf{a}(\omega_n) E(\omega_n, z) \exp(ik_n z). \end{aligned} \quad (4.4-10)$$

假定电场复振幅 $E(\omega_n, z)$ 的变化足够慢, 即所谓慢变化近似, 以致有

$$\left| \frac{dE(\omega_n, z)}{dz} k_n \right| \gg \left| \frac{d^2 E(\omega_n, z)}{dz^2} \right|, \quad (4.4-11)$$

那么就有

$$\begin{aligned} &2ik_n \mathbf{a}(\omega_n) \frac{dE(\omega_n, z)}{dz} - \mathbf{a}(\omega_n) E(\omega_n, z) k_n^2 \\ &\quad + i\mu_0\sigma\omega_n E(\omega_n, z) \mathbf{a}(\omega_n) + \mu_0\omega_n^2 E(\omega_n, z) \boldsymbol{\epsilon}(\omega_n) \cdot \mathbf{a}(\omega_n) = 0. \end{aligned} \quad (4.4-12)$$

如果介质是无耗的, $\sigma = 0$, 这时场复振幅 $E(\omega_n)$ 不随 z 变化, 有 $dE(\omega_n, z)/dz = 0$, 则 (4.4-12) 式变为

$$-k_n^2 \mathbf{a}(\omega_n) + \mu_0\omega_n^2 \boldsymbol{\epsilon}(\omega_n) \cdot \mathbf{a}(\omega_n) = 0. \quad (4.4-13)$$

现利用矢量恒等式 $\mathbf{a} \times (\mathbf{b} \times \mathbf{c}) = (\mathbf{a} \cdot \mathbf{c})\mathbf{b} - (\mathbf{a} \cdot \mathbf{b})\mathbf{c}$, 上式可改写为

$$k_n^2 \mathbf{z}_0 \times (\mathbf{z}_0 \times \mathbf{a}(\omega_n)) + \mu_0\omega_n^2 \boldsymbol{\epsilon}(\omega_n) \cdot \mathbf{a}(\omega_n) = 0. \quad (4.4-14)$$

式中 \mathbf{z}_0 是波的传播方向 (z 方向) 的单位矢量。

如果进一步考虑到介质对场的响应还包含非线性效应, 则电极化强度 $\mathbf{P}(\omega_n, \mathbf{r})$ 为

$$\mathbf{P}(\omega_n, \mathbf{r}) = \mathbf{P}_L(\omega_n, \mathbf{r}) + \mathbf{P}_{NL}(\omega_n, \mathbf{r}). \quad (4.4-15)$$

式中 $\mathbf{P}_{NL}(\omega_n, \mathbf{r})$ 是非线性电极化强度的频率为 ω_n 的傅里叶分量, 这时, 在介质为无耗的情况下, (4.4-6) 式变为

$$\nabla^2 \mathbf{E}(\omega_n, z) - \mu_0 \omega_n^2 \boldsymbol{\varepsilon}(\omega_n) \cdot \mathbf{E}(\omega_n, z) = -\mu_0 \omega_n^2 \mathbf{P}_{NL}(\omega_n, z). \quad (4.4-16)$$

式中

$$\mathbf{P}_{NL}(\omega_n, z) = \mathbf{P}^{(2)}(\omega_n, z) + \mathbf{P}^{(3)}(\omega_n, z) + \dots \quad (4.4-17)$$

与媒质是线性响应的情况相比, (4.4-16) 式多了一项非线性激励项。由于这一激励项对线性效应的影响是很小的, 因而在求解 (4.4-16) 式时, 常把非线性激励项作为一种微扰来处理。如果现在仍假定波沿着 z 方向传播, 则 (4.4-16) 式的解的形式可表示为

$$\mathbf{E}(\omega_n, z) = E(\omega_n, z) [\mathbf{a}(\omega_n) + \mathbf{b}(\omega_n, z)] \exp(ik_n z). \quad (4.4-18)$$

这个解的形式与解 (4.4-9) 式不同, 在线性响应和介质无耗的情况下, 偏振矢量 $\mathbf{a}(\omega_n)$ 和场复振幅 $E(\omega_n)$ 都是恒定的, 与波通过介质时所运行的距离 z 无关。而在非线性响应的情况下, 即使介质是无耗的, 偏振矢量和场复振幅也都是 z 的函数。然而, 因为非线性激励项是作为对线性效应的一种微扰来处理的, 因此我们可以认为场复振幅因子 $E(\omega_n, z)$ 是 z 的慢变化函数。而且同时认为偏振矢量的改变量 $\mathbf{b}(\omega_n, z)$ 既小, 变化又慢 (所谓慢变化, 意思是指在距离 $\Delta z = 2\pi/k_n$ ——辐射波长的范围内, 它的改变很小)。现在将 (4.4-18) 式代入 (4.4-16) 式, 并在等式左边略去所有 $d^2 E(\omega_n, z)/dz^2$, $d\mathbf{b}(\omega_n, z)/dz$, $d^2 \mathbf{b}(\omega_n, z)/dz^2$ 的项, 在等式右边的非线性电极化强度 $\mathbf{P}_{NL}(\omega_n, z)$ 中略去 $\mathbf{b}(\omega_n, z)$, 并用 $\mathbf{P}'_{NL}(\omega_n, z)$ 表示。这样, 我们得到关系

$$\begin{aligned} & - \left(2ik_n \frac{dE(\omega_n, z)}{dz} - k_n^2 E(\omega_n, z) \right) \mathbf{z}_0 \times [\mathbf{z}_0 \times (\mathbf{a}(\omega_n) \\ & + \mathbf{b}(\omega_n, z))] + \mu_0 \omega_n^2 \boldsymbol{\varepsilon}(\omega_n) \cdot (\mathbf{a}(\omega_n) + \mathbf{b}(\omega_n, z)) E(\omega_n, z) \\ & = -\mu_0 \omega_n^2 \mathbf{P}'_{NL}(\omega_n, z) \exp(-ik_n z). \end{aligned} \quad (4.4-19)$$

现在用 $\mathbf{a}(\omega_n)$ 点乘 (4.4-19) 式, 用 $(\mathbf{a}(\omega_n) + \mathbf{b}(\omega_n, z)) E(\omega_n, z)$ 点乘 (4.4-14) 式, 并相减, 得

$$\begin{aligned} & - \left[2ik_n \frac{dE(\omega_n, z)}{dz} - k_n^2 E(\omega_n, z) \right] \mathbf{a}(\omega_n) \cdot \mathbf{z}_0 (\mathbf{z}_0 \times (\mathbf{a}(\omega_n) + \mathbf{b}(\omega_n, z))) \\ & + \mu_0 \omega_n^2 \mathbf{a}(\omega_n) \cdot \boldsymbol{\varepsilon}(\omega_n) \cdot (\mathbf{a}(\omega_n) + \mathbf{b}(\omega_n, z)) E(\omega_n, z) \\ & - (\mathbf{a}(\omega_n) + \mathbf{b}(\omega_n, z)) \cdot \mathbf{z}_0 \times (\mathbf{z}_0 \times \mathbf{a}(\omega_n)) k_n^2 E(\omega_n, z) \\ & - \mu_0 \omega_n^2 (\mathbf{a}(\omega_n) + \mathbf{b}(\omega_n, z)) \cdot \boldsymbol{\varepsilon}(\omega_n) \cdot \mathbf{a}(\omega_n) E(\omega_n, z) \\ & = -\mu_0 \omega_n^2 \mathbf{a}(\omega_n) \cdot \mathbf{P}'_{NL}(\omega_n, z) \exp(-ik_n z). \end{aligned} \quad (4.4-20)$$

利用矢量恒等式 $\mathbf{a} \cdot (\mathbf{b} \times \mathbf{c}) = (\mathbf{a} \times \mathbf{b}) \cdot \mathbf{c}$ 和 $(\mathbf{a} \times \mathbf{b}) \times \mathbf{c} = \mathbf{c} \times (\mathbf{b} \times \mathbf{a})$, 可以证明

$$\begin{aligned} & k_n^2 E(\omega_n, z) \mathbf{a}(\omega_n) \cdot \{ \mathbf{z}_0 \times (\mathbf{z}_0 \times (\mathbf{a}(\omega_n) + \mathbf{b}(\omega_n, z))) \} \\ & = k_n^2 E(\omega_n, z) (\mathbf{a}(\omega_n) + \mathbf{b}(\omega_n, z)) \cdot \mathbf{z}_0 \times (\mathbf{z}_0 \times \mathbf{a}(\omega_n)). \end{aligned} \quad (4.4-21)$$

另外, 由于介电张量 $\boldsymbol{\varepsilon}(\omega_n)$ 是对称张量, 有

$$(\mathbf{a}(\omega_n) + \mathbf{b}(\omega_n, z)) \cdot \boldsymbol{\varepsilon}(\omega_n) \cdot \mathbf{a}(\omega_n) = \mathbf{a}(\omega_n) \cdot \boldsymbol{\varepsilon}(\omega_n) \cdot (\mathbf{a}(\omega_n) + \mathbf{b}(\omega_n, z)). \quad (4.4-22)$$

这样, 在 (4.4-21) 式和 (4.4-22) 式代入 (4.4-20) 式后, 可以看到 (4.4-20) 式中左边第二项和第四项相消, 第三项和第五项相消。由此可得

$$2ik_n \frac{dE(\omega_n, z)}{dz} (\mathbf{a}(\omega_n) \times \mathbf{z}_0) \cdot \{ \mathbf{z}_0 : (\mathbf{a}(\omega_n) + \mathbf{b}(\omega_n, z)) \} \\ = \mu_0 \omega_n^2 \mathbf{a}(\omega_n) \cdot \mathbf{P}'_{NL}(\omega_n, z) \exp(-ik_n z). \quad (4.4-23)$$

因为 $dE(\omega_n, z)/dz$ 和 $\mathbf{b}(\omega_n, z)$ 是作为一个小量来处理的, 所以在方程 (4.4-23) 式中含有它们乘积的项可以略去, 由此求得标量复振幅 $E(\omega_n, z)$ 的微分方程为

$$\frac{dE(\omega_n, z)}{dz} = \frac{i\mu_0 \omega_n^2}{2(\mathbf{z}_0 \times \mathbf{a}(\omega_n))^2 k_n} \mathbf{a}(\omega_n) \cdot \mathbf{P}'_{NL}(\omega_n, z) \exp(-ik_n z). \quad (4.4-24)$$

这个方程显著地比 (4.4-16) 式简单得多, 它是我们以后讨论波的混合过程的基础。事实上这个方程还可以简化, 只要考虑到对大多数介质来说 $|\mathbf{z}_0 \times \mathbf{a}(\omega)|$ 的值接近于 1, 即平面电磁波的电矢量基本上垂直于波的传播方向。利用这种简化, (4.4-24) 式最后变为

$$\frac{dE(\omega_n, z)}{dz} = \frac{i\mu_0 \omega_n^2}{2k_n} \mathbf{a}(\omega_n) \cdot \mathbf{P}'_{NL}(\omega_n, z) \exp(-ik_n z). \quad (4.4-25)$$

此式就是我们所要求的用来讨论波的混合过程的基本方程。

这里应该强调指出, (4.4-25) 式是对于单色平面波在稳态条件下的耦合方程。如果相互作用的波的振幅不仅是坐标的函数, 而且还是时间的函数, 即如果场 $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$ 的形式为

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{E}_\omega(z, t) \exp[i(kz - \omega t)] + C.C., \quad (4.4-26)$$

式中 $\mathbf{E}_\omega(z, t)$ 是随空间和时间慢变化的场的包络函数。在这种情况下, 可以得到与稳态下的耦合方程 (4.4-24) 相类似的方程, 即 $\mathbf{E}_\omega(z, t)$ 的耦合方程^[1] 有

$$\frac{\partial E_\omega(z, t)}{\partial z} + \frac{1}{v} \frac{\partial E_\omega(z, t)}{\partial t} = \frac{i\mu_0 \omega^2}{2k_n} \mathbf{a}(\omega) \cdot \mathbf{P}'_{NL}(z, t) \exp(-ik_n z). \quad (4.4-27)$$

以上给出了由 (4.4-25) 式和 (4.4-27) 式所表示的描述波的耦合规律的两种方法。对 (4.4-25) 式来说, 时间的变量已通过傅里叶变换变换到频率域, 但场的空间部分 $E(\omega, z)$ 却利用慢变化包络近似进行处理 (慢变化条件即满足 $|\partial E(\omega, z)/E(\omega, z)\partial z| \ll k_n$)。这样所得到的耦合方程 (4.4-25) 式可以用来研究在定态条件下的波的耦合规律。对 (4.4-27) 式来说, 场的时间和空间变量都利用慢变化包络近似进行处理, 它用来描述含时的波的耦合规律。除以上两种情况外, 还有第三种情况, 那就是将场的时间和空间两部分都进行傅里叶变换, 即

$$\mathbf{E}(z, t) = \int \mathbf{E}(\mathbf{k}, \omega) \exp(i(\mathbf{k} \cdot \mathbf{z} - \omega t)) d\omega d\mathbf{k} \quad (4.4-28)$$

这时将 $\mathbf{E}(z, t)$ 代入波方程 (4.4-1) 式后 (假定 $\sigma = 0$), 便可得到

$$(k^2 - k_0^2) \mathbf{E}(\mathbf{k}, \omega) = \frac{\omega^2}{\epsilon_0 c^2} \mathbf{P}_{NL}(\mathbf{k}, \omega). \quad (4.4-29)$$

上式对 ω 和 \mathbf{k} 积分后便直接给出场 $\mathbf{E}(z, t)$ 。这第三种方法可推广应用到光束横向部分是变化的情况。比较这三种方法, (4.4-27) 式在处理复杂的非线性电极化问题时最为容易。

五、相位匹配

在第五、六、八章中, 我们将利用上节所得到的基本方程 (4.4-25) 式去讨论若干个波场在非线性介质中的混合规律。在具体讨论各种波的混合现象之前, 需要说明一个十分

重要的，决定着波的混合过程效率的条件，即所谓相位匹配条件。为了解这个条件的意义，我们可以以产生二次谐波的过程为例来说明。

首先我们从辐射的波动观点引入相位匹配的概念。假定频率为 ω 的辐射从一块厚度为 l 的非线性电介质的一边进入，从另一边射出频率为 2ω 的辐射；又设介质对两种频率的辐射的折射率分别为 n_1 和 n_2 ，再令频率为 ω 的场方程为

$$E = E_1 \cos(k_1 z - \omega t) = E(\omega) \exp(-i\omega t) + E^*(\omega) \exp(i\omega t) \quad (4.5-1)$$

式中， $E(\omega) = (1/2)E_1 \exp(ik_1 z)$ ，传播常数 $k_1 = 2\pi/\lambda_1 = n_1\omega/c$ 。

由二阶非线性效应所产生的频率为 2ω 的二阶非线性电极化强度 $\mathbf{P}^{(2)}(2\omega)$ ，可以从二阶非线性电极化强度 $\mathbf{P}^{(2)}(t) = \epsilon_0 \sum_{m, n} \chi^{(2)}(\omega_m, \omega_n) : \mathbf{E}(\omega_m) \mathbf{E}(\omega_n) \exp(-i(\omega_m + \omega_n)t)$ 的一般表示式求得为

$$\begin{aligned} \mathbf{P}^{(2)}(2\omega) &= \frac{1}{4} \epsilon_0 \chi^{(2)}(\omega, \omega) : \mathbf{E}_1 \mathbf{E}_1 \exp[i(2k_1 z - 2\omega t)] \\ &+ \frac{1}{4} \epsilon_0 \chi^{(2)}(-\omega, -\omega) : \mathbf{E}_1 \mathbf{E}_1 \exp[-i(2k_1 z - 2\omega t)] \\ &= \frac{1}{2} \chi^{(2)}(\omega, \omega) : \mathbf{E}_1 \mathbf{E}_1 \cos(2k_1 z - 2\omega t) \end{aligned} \quad (4.5-2)$$

在上面写出第二个等号时，已利用了介质无耗区域内电极化率张量的时间反演对称性

$$\chi^{(2)}(\omega, \omega) = \chi^{(2)}(-\omega, -\omega)$$

由(4.5-2)式可以看到，由于二阶非线性效应，在介质内所感应的二阶非线性电极化强度的空间变化是由二倍于基波的传播常数即 $2k_1$ 来决定的，而不是由二次谐波的传播常数 $k_2 = 2n_2\omega/c$ 来决定的。这个在介质中所感生的频率为 2ω 的电极化强度能发射频率为 2ω 的辐射。显然，离输入端距离为 z 处的一薄层厚度为 dz 的介质，在介质输出端所产生的电场强度与 $\cos(2k_1 z - 2\omega(t-t')) dz$ 成正比。式中 t' 是频率为 2ω 的辐射传播一段距离 $(l-z)$ 所需的时间，即 $t' = (l-z)/v_2 = (l-z)k_2/2\omega$ 。所以在介质输出端总的二次谐波场强正比于

$$\begin{aligned} \int_0^l \cos(2k_1 z - 2\omega(t-t')) dz &= \int_0^l \cos((2k_1 - k_2)z + k_2 l - 2\omega t) dz \\ &= 2 \cos\left[\frac{1}{2}(2k_1 + k_2)l - 2\omega t\right] \frac{\sin\left[\frac{1}{2}(2k_1 - k_2)l\right]}{2k_1 - k_2} \end{aligned}$$

由此可得在介质输出端二次谐波的辐射强度为

$$\begin{aligned} I \propto \frac{\sin^2\left[\frac{1}{2}(2k_1 - k_2)l\right]}{(2k_1 - k_2)^2} \\ \propto \frac{\sin^2\left[\frac{\omega}{c}(n_1 - n_2)l\right]}{(n_1 - n_2)^2} \end{aligned} \quad (4.5-3)$$

一般讲， $n_1 \neq n_2$ ，因而由上式可以清楚地看出，当介质厚度 l 满足

$$\frac{\omega}{c} l(\eta_1 - \eta_2) = (2m + 1) \frac{\pi}{2}$$

即

$$l = \frac{\lambda_0}{4(\eta_1 - \eta_2)} (2m + 1) = l_c (2m + 1) \quad (4.5-4)$$

时, 强度 I 最大。式中 λ_0 是频率为 ω 的辐射在自由空间的波长, l_c 为

$$l_c = \frac{\lambda_0}{4(\eta_1 - \eta_2)} \cdot \quad (4.5-5)$$

(4.5-4) 式和 (4.5-5) 式表明, 只有当介质厚度 l 等于 l_c 或 l_c 的奇数倍时, 才能在介质输出端产生的二次谐波辐射强度最大; 如果 l 是 l_c 的偶数倍, 则在介质输出端没有谐波输出。但是, 在 $\eta_1 = \eta_2$ 的特殊情况下, 即当满足 $2k_1 = k_2$ 时, 在介质输出端谐波强度便随着介质厚度 l 的增加而增大。

上述结论我们还可以从如下的分析得到。由于非线性效应所产生的二阶电极化强度以 2ω 的频率振荡着, 它作为一个激励源产生频率为 2ω 的辐射。设与二阶电极化强度周期性的空间变化所对应的波长为 λ_p , 按 (4.5-2) 式有 $\lambda_p = 2\pi/2k_1$, 而由它所产生的频率为 2ω 的辐射的传播常数为 k_2 。显然, 在电极化场中相距为 d 的一对小区域的相位变化为 $2k_1d$, 而对于这一对小区域所发射的频率为 2ω 的辐射来说, 只有当一个小区域发射的辐射传到另一个小区域时的相位变化 k_2d , 恰好等于 $2k_1d$ 时, 即只有当 $2k_1 = k_2$ 时, 从这两个小区域所发射的辐射才相加加强。一般讲, $(2k_1 - k_2) \neq 0$ 。如果满足 $|2k_1 - k_2|d \ll \pi$, 那么我们就说这两个小区域所发射的辐射是相加加强的。但是, 当 $(2k_1 - k_2)d = \pi$ 时, 它们恰好反相, 因而相抵消。因此, 对于给定厚度为 l 的介质来说, 我们可以想象将介质在垂直于波的传播方向分成许多等厚度的小片, 每一小片的厚度为 $l_c = \pi/|2k_1 - k_2|$, 则从同一小片中各点所发射的二次谐波多少有点相加加强, 而从相邻两片中对应点所发出的辐射, 由于它们的相位关系满足 $(2k_1 - k_2) \cdot \Delta d = \pi$, 因而来自两小片介质的总的辐射恰为零。由此可见, 只有当非线性介质的厚度恰好等于厚度为 l_c 的小片的奇数倍时, 才能得到最大的辐射强度。所以我们把上面引入的 l_c 叫做二次谐波产生过程的相干长度, 将条件

$$2k_1 = k_2 \quad (4.5-6)$$

叫做相位匹配条件。

现在我们还可以从辐射的量子观点, 很容易地引入相位匹配条件。如果我们认为基波和谐波波束都是由光子组成的, 沿传播方向光子的动量分别为 $\hbar k_1$ 和 $\hbar k_2$ 。根据这种观点, 产生二次谐波的过程就是由于介质的非线性效应, 从基波光束中取两个光子组合一起而形成光子的过程。这种过程必须同时遵守能量守恒条件

$$\hbar\omega + \hbar\omega = \hbar 2\omega$$

和动量守恒条件

$$\hbar k_1 + \hbar k_1 = \hbar k_2.$$

显然, 只有满足相位匹配条件 $2k_1 = k_2$ 时, 二次谐波过程才能发生。

根据以上对相位匹配概念的讨论, 我们可以立即将相位匹配条件推广到含有若干个频率的场的混合过程中去。例如, 三个频率 ω_1, ω_2 和 $\omega_3 (= \omega_1 + \omega_2)$ 中任何一对频率的场产生混合时, 便产生第三个频率的场, 在混合过程中应满足如下一般的相位匹配条件:

$$\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 = \mathbf{k}_3 \quad (4.5-7)$$

式中 \mathbf{k}_1 、 \mathbf{k}_2 和 \mathbf{k}_3 是频率为 ω_1 、 ω_2 和 ω_3 的三束波在非线性质质中的传播矢量。该式已考虑了所有三束波不一定在同一直线上，所以它是适合一般三波混合过程的相位匹配条件的表示式。与这个过程相联系的相干长度为

$$l_c = \frac{\pi}{|\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_3|} \quad (4.5-8)$$

如果波的传播矢量都在同一直线上，则相应的相位匹配叫做共线相位匹配；波的传播矢量不在同一直线上的相位匹配叫做非共线相位匹配。

应该知道，只有在某些特殊情况下，才能完全满足相位匹配条件。例如，对于含有两个频率的波的混合过程来说，如果介质在光学上是各向同性的，那么在正常色散条件下是不可能满足相位匹配条件的。因为在正常色散情况下，折射率 n 随频率的增加而增加，但对产生二次谐波来说，相位匹配条件要求 $n_1 = n_2$ ，显然是不可能满足的。又如对含有三个频率的过程来说，当三束波相平行时，也不可能满足 $\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 = \mathbf{k}_3$ 这个相位匹配条件。因为这个表示式左边的最大值为 $(n_1\omega_1 + n_2\omega_2)/c$ ，它总是小于右边的值 $n_3(\omega_1 + \omega_2)/c$ 。由此可见，各向同性介质是不能用来达到相位匹配的目的的。为达到相位匹配的目的，要采用各向异性晶体，即利用单轴或双轴晶体，实际上这是利用它们的双折射特性去补偿正常的色散效应。

下面我们给出几个例子来说明如何实现双折射相位匹配。

例3 红宝石激光通过KDP晶体产生二次谐波 临界相位匹配。

我们知道，KDP晶体是负单轴晶体，该晶体对红宝石激光波长(6943 Å)及其二次谐波波长的折射率面(法面)通过光轴的“截面”，如图4-16所示。对应每一个频率有两个“截面”，一个是对应于平常光的，另一个是对应于非常光的。由图可见，当波在图中所示的波的传播方向上通过晶体时，在这方向上($\theta_m = 50.4^\circ$)，基波平常光束的“截面”与二次谐波的非常光束的“截面”有一个交点，在这一点上有 $n_{1o} = n_{2e}$ ，因而满足相位匹配条件。

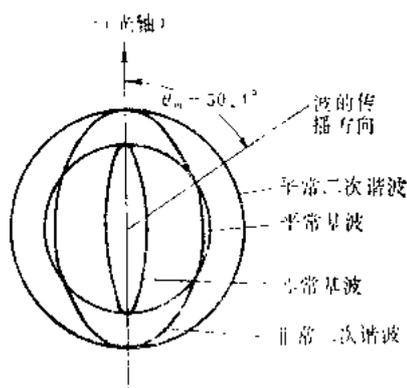


图4-16 在KDP晶体中，红宝石激光频率及其二次谐波的折射率面通过光轴的“截面”

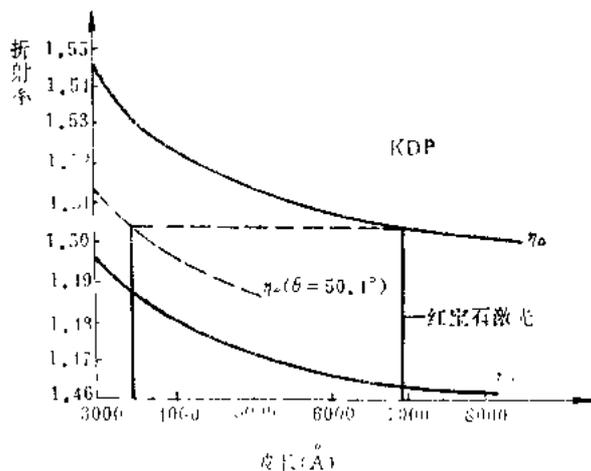


图4-17 KDP晶体的平常光折射率 n_o 和非常光折射率 n_e 与波长的关系(从图中可说明沿着与光轴成 50.4° 的方向上传播的非常光二次谐波的折射率与基波平常光的折射率相等，在该方向上满足相位匹配条件)

为理解如何满足相位匹配条件，我们还可以从另外一种方法来说明，如图4-17所示。

图中标出KDP晶体的平常光折射率 n_o 和非常光折射率 n_e 随波长的变化曲线。给定波长的非常光折射率的值，可以是图中所给定波长处平常光主折射率 n_o 和非常光主折射率 n_e 之间的任意值，取什么值与波的传播方向有关。由图中的两条曲线可以看到，由于红宝石激光频率处的平常光折射率在二次谐波频率处的主折射率 n_o 和 n_e 之间，因此可以达到相位匹配的要求。这种利用两个折射率面相交的相位匹配叫做临界相位匹配。

应该指出，上述相位匹配技术不是对所有材料和任意波长都能被应用的，例如对石英晶体来说，红宝石激光频率处的两个折射率面完全位于二次谐波的两个折射率面之内，如图4-18所示。这表明石英晶体缺乏足够的双折射效应去补偿频率色散效应。显然石英不可能满足产生红宝石激光波长的二次谐波所必须的相位匹配条件。图4-19表示石英的平常光主折射率 n_o 和非常光的主折射率 n_e 与波长的关系。由图可见，在石英中没有任何频率能满足产生二次谐波的相位匹配条件。

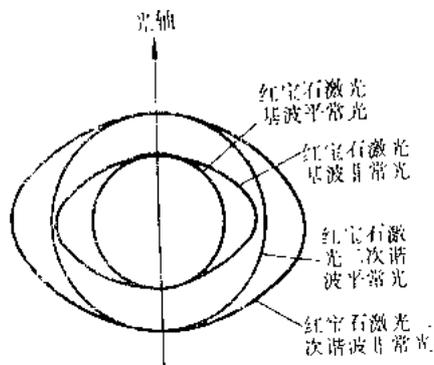


图4-18 在石英晶体中，红宝石激光频率和其二次谐波频率的折射率面通过光轴的截面

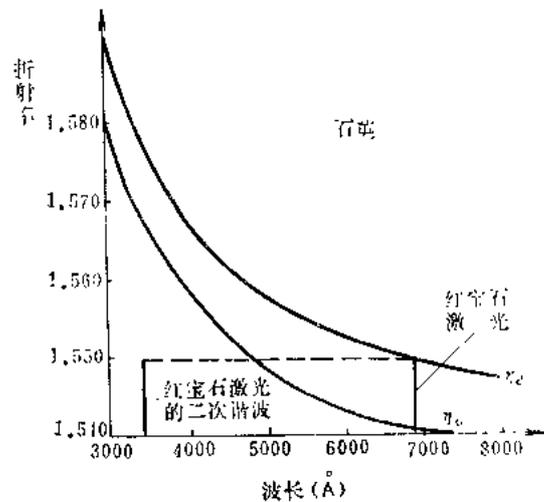


图4-19 石英的平常光折射率 n_o 和非常光折射率 n_e 与波长的关系(由于缺乏足够的双折射效应，不可能满足产生红宝石激光的二次谐波所必须的相位匹配条件)

例4 非临界相位匹配。

除例3中所介绍的临界相位匹配技术之外，还有所谓非临界相位匹配技术以达到相位匹配的目的，这可以以 LiNbO_3 晶体为例来说明。这种相位匹配是利用折射率与温度有一定的关系来完成的。当改变 LiNbO_3 晶体的温度使之达到某个值，可使其折射率与波长的关系正好如图4-20所示，这时恰好能满足铍激光($1.06\mu\text{m}$)产生二次谐波所必须的相位匹配条件，即基波($1.06\mu\text{m}$)的平常光折射率面恰好与二次谐波($0.53\mu\text{m}$)的非常光折射率面相切，如图4-21所示。这种利用两个折射面相切(而不是相交)所进行的相位匹配叫做非临界相位匹配。

注意，在非临界相位匹配的情况下，要求波在垂直于光轴的平面内传播，故也称 90° 相位匹配(又称温度相位匹配)，这也在图4-21中示出。这种匹配方式对晶体角度调整的精度要求降低，而且对基波光束的发射角的要求也降低，这对实际工作大为有利。不过应该知道，并不是所有晶体都可以达到非临界相位匹配的。

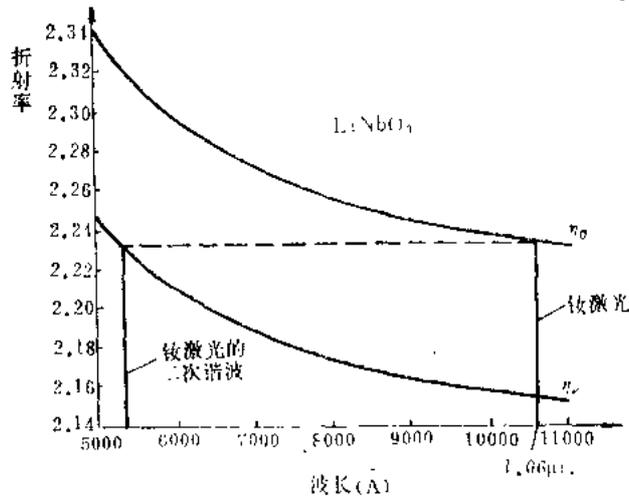


图 4-20 LiNbO_3 晶体的平常光折射率 n_o 和非常光折射率 n_e 与波长的关系(在此温度下, LiNbO_3 晶体的双折射效应恰好能提供产生钽激光二次谐波的相位匹配)

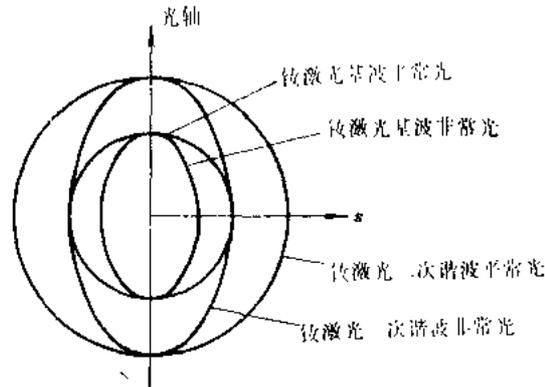


图 4-21 LiNbO_3 晶体非临界相位匹配时, 钽激光及其二次谐波的折射率面通过光轴的截面

由例3和例4, 我们清楚地看到它们都是利用双折射效应来补偿正常色散以达到相位匹配的目的。利用双折射效应的相位匹配也叫做折射率匹配。

在双折射晶体中进行相位匹配时, 有所谓第一类相位匹配和第二类相位匹配。例如若产生二次谐波的两束基波有相同偏振方向时, 则叫做第一类相位匹配; 若两束基波的偏振方向是相互正交的, 则是第二类相位匹配。一般的情况是, 如果在波的混合中含有三束波, 如产生差频 $\omega_2 = \omega_3 - \omega_1$, 和产生二次谐波一样 ($\omega_1 + \omega_1 = \omega_2$), 也有第一类和第二类相位匹配。第一类相位匹配是 ω_1 和 ω_3 的两束波具有相同的偏振方向, 即两者都是平常波或两者都是非常波。第二类相位匹配是 ω_1 和 ω_3 的两束波有正交的偏振方向, 即一束是平常波, 另一束是非常波。在每一种情况下, 相位匹配条件都是

$$\eta_2 \omega_2 = \eta_3 \omega_3 - \eta_1 \omega_1 \quad (4.5-9)$$

或

$$\eta_2 = \frac{\omega_3}{\omega_2} \eta_3 - \frac{\omega_1}{\omega_2} \eta_1 = \eta_3 + \frac{\omega_1}{\omega_2} (\eta_3 - \eta_1), \quad (4.5-10a)$$

$$\eta_2 = \eta_1 + \frac{\omega_2}{\omega_1} (\eta_3 - \eta_1) \quad (4.5-10b)$$

由此可见，如果非线性介质是负单轴晶体，并且 ω_1 和 ω_3 的波都是平常波（o波），则在正常色散的情况下，有

$$\eta_2 = \eta_{3o} + \frac{\omega_1}{\omega_2} (\eta_{3o} - \eta_{1o}) > \eta_{3o}.$$



显然这不可能成立。如果 ω_1 和 ω_3 的波都是非常波（e波），则有

$$\eta_2 = \eta_{1e} + \frac{\omega_1}{\omega_2} (\eta_{2e} - \eta_{1e}) > \eta_{1e}.$$

显然，只有 ω_2 的波是o波时，有可能 $\eta_{2o} > \eta_{1e}$ 。故对用负单轴晶体产生差频来说，如果 ω_1 和 ω_3 的波是e波，那么可能的匹配方式只能是 ω_2 的波为o波。通常用于产生远红外波的晶体具有反常色散，即 $d\eta/d\omega < 0$ 。因为对产生远红外波来说， $\omega_2 \ll \omega_3 \approx \omega_1$ ，所以有 $\eta_1 \approx \eta_3 = \eta_{1o}$ ，那么按（4.5-9）式的相位匹配条件，有

$$\eta_2 = \eta_{1o} \quad (4.5-11)$$

如果晶体仍为负单轴晶体，则同样可以根据（4.5-10）式去确定可能的匹配方式。例如 ω_1 和 ω_3 的波是o波，则由（4.5-10）式可得

$$\eta_2 \approx \eta_{3o} = \eta_{1o} \quad (4.5-12)$$

因为假定是负单轴晶体并具有反常色散，所以应有关系

$$\eta_{2e} < \eta_{2o}, \quad \eta_{2e} > \eta_{3o} \quad (4.5-13)$$

比较（4.5-12）和（4.5-13）两式，可见（4.5-12）式中的 η_2 只能是e波的折射率 η_{2e} 时，才有可能成立，即 ω_2 的波是e波时，才有可能满足相位匹配。这时就有 ω_1 和 ω_3 的波是o波， ω_2 的波是e波的第一类相位匹配。

如果利用CO₂激光在一个正单轴晶体ZnGeP₂（是一种半导体）中混合产生远红外波时，可以利用第二类相位匹配^[7]。这时 ω_2 和 ω_1 的波是o波， ω_3 的波是e波，产生的 ω_2 的频率范围在70cm⁻¹到110cm⁻¹之内，相位匹配角 θ 的范围从40°到55°。

双折射相位匹配最普遍地应用于可见光和近红外区域的二次谐波与和频、差频的产生。只有比较少数的双折射晶体适合于远红外差频的产生。然而有一些立方系非线性半导体，如InSb、GaAs、CdTe等，可以利用CO₂激光产生远红外差频。不过这些晶体是立方晶体，缺乏双折射。因此对各向同性晶体来说，必须寻找其它相位匹配方式。下面所要介绍的非共线相位匹配即是一种（我们上面所讨论的情况是 ω_1 、 ω_2 和 ω_3 三束波都在一条直线上的共线相位匹配）。

对非共线相位匹配来说，就是入射在介质上的两束波的传播方向有一夹角，如图4-22所示。设两束波的频率分别为 ω_3 和 ω_1 ，相应的波矢为 k_3 和 k_1 ，远红外差频 ω_2 的辐射的波矢为 k_2 ，根据相位匹配条件或动量守恒要求

$$\Delta k = k_2 - k_3 + k_1 = 0 \quad (4.5-14)$$

可以证明，如果非线性晶体具有反常色散，即远红外差频为 ω_2 的辐射的折射率大于两束输入激光束的折射率，那么两激光束的非线性混合可以获得相位匹配的远红外差频的产生。

根据图4-22所示，有

$$\sin \frac{1}{2} \theta = \left[\frac{(\eta_2 \omega_2)^2 - (\eta_3 \omega_3 - \eta_1 \omega_1)^2}{4\eta_3 \eta_1 \omega_3 \omega_1} \right]^{1/2} \quad (4.5-15)$$

和

$$\cos \varphi = \left[1 + 2 \left(\frac{\omega_1}{\omega_3} \right) \sin^2 \frac{1}{2} \theta \right] \left[1 + 4 \frac{\omega_3 \omega_1}{\omega_2^2} \sin^2 \frac{1}{2} \theta \right]^{-1/2} \quad (4.5-16)$$

式中 η_1 、 η_2 和 η_3 分别是频率为 ω_1 、 ω_2 和 ω_3 的辐射的折射率。为简单起见，我们假定 $\eta_3 = \eta_1 = \eta_{13}$ ， $\eta_2 = \eta_{13} + \Delta\eta$ ，于是 (4.5-15) 式和 (4.5-16) 式可以写为

$$\sin \theta \approx \theta = \frac{\omega_2}{\sqrt{\omega_3 \omega_1}} \left(\frac{2\Delta\eta}{\eta_{13}} \right)^{1/2} \quad (4.5-17)$$

和

$$\varphi = \left(\frac{2\Delta\eta}{\eta} \right)^{1/2} \quad (4.5-18)$$

可见，只有当 $\Delta\eta \geq 0$ 时， $\sin\theta$ （因而 θ ）才是实数，即有解。由此可知，只有晶体在具有反常色散的情况下，才能通过两激光束的非线性混合获得非共线相位匹配的远红外差频的产生。

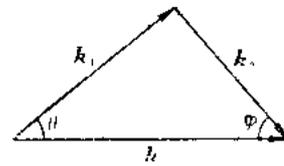


图 4-22 表示频率为 ω_3 和 ω_1 的入射激光束与差频 ω_2 的辐射在非线性晶体内传播方向的波矢三角形

又如对产生倍频的情况来说，在非共线相位匹配时，相位匹配条件的一般表示式为

$$\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}'_1 = \mathbf{k}_2. \quad (4.5-19)$$

在具体分析时必须首先明确利用的是什么晶体，即：是正单轴晶体还是负单轴晶体；利用第一类相位匹配还是第二类相位匹配。如果波矢 \mathbf{k}_1 、 \mathbf{k}'_1 和 \mathbf{k}_2 与光轴之间的夹角分别为 θ_1 、 θ'_1 和 θ_2 ，则有

$$\left. \begin{aligned} |\mathbf{k}_1| \cos\theta_1 + |\mathbf{k}'_1| \cos\theta'_1 &= |\mathbf{k}_2| \cos\theta_2, \\ |\mathbf{k}_1| \sin\theta_1 + |\mathbf{k}'_1| \sin\theta'_1 &= |\mathbf{k}_2| \sin\theta_2. \end{aligned} \right\} \quad (4.5-20)$$

现假定所使用的是负单轴晶体，并利用第一类相位匹配方式，这时波矢 \mathbf{k}_1 和 \mathbf{k}_2 都是 o 光的，因而 $|\mathbf{k}_1| = |\mathbf{k}'_1| = \eta_1 \omega_1 / c = \eta'_1 \omega_1 / c$ 。由简单的几何关系可得

$$\theta_2 = \frac{1}{2} (\theta'_1 + \theta_1), \quad (4.5-21)$$

并由 (4.5-20) 式给出

$$\frac{\eta_1 \omega_1}{c} (\cos\theta_1 + \cos\theta'_1) = \frac{\eta_2(\theta_2) 2\omega_1}{c} \cos\theta_2$$

或

$$\eta_2(\theta_2) = \eta_1 \cos \frac{1}{2} (\theta_1 - \theta'_1). \quad (4.5-22)$$

再利用 (4.5-17) 式，有

$$\eta_2(\theta_2) = \left(\frac{\cos^2 \theta_2}{\eta_1^2} + \frac{\sin^2 \theta_2}{\eta_3^2} \right)^{-1/2}.$$

代入(4.5-22)式,得

$$\left(\frac{\cos^2 \theta_2}{\eta_{2z}^2} + \frac{\sin^2 \theta_2}{\eta_{2r}^2} \right)^{-1/2} = \eta_{1z} \cos \frac{1}{2} (\theta_1 - \theta'_1). \quad (4.5-23)$$

当给定 θ_1 、 θ'_1 和 θ_2 中任何一个值,我们便可从(4.5-21)式和(4.5-23)式求解另外两个 θ 值。对于负单轴晶体的第二类相位匹配,以及正单轴晶体的第一类和第二类相位匹配,都可以作相类似的分析。

图4-23给出了在正单轴晶体($n_o > n_e$)内产生二次谐波时,第一类和第二类相位匹配方向的轨迹。它表明匹配方向的轨迹都是在绕光轴的锥面内。对负单轴晶体也具有类似的情况。图中 $\theta_m(I)$ 和 $\theta_m(II)$ 分别是第一类和第二类相位匹配角。

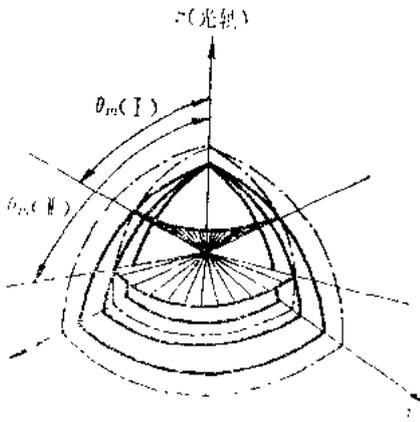


图4-23 在一个正单轴晶体内产生二次谐波的相位匹配方向的示意图

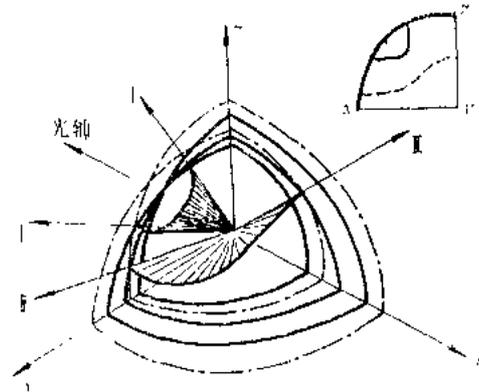


图4-24 双轴晶体相位匹配方向示意图(晶体的 $n_{xz} > n_{1z} > n_{2y} > n_{1y} > n_{2x} > n_{1x}$ 以及 $n_{2z} > \frac{1}{2}(n_{1x} + n_{1y})$, $n_{2y} < \frac{1}{2}(n_{1x} + n_{1y})$)

对双轴晶体产生二次谐波的相位匹配来说,寻找匹配方向的方法和单轴晶体的一样,也是根据基波和谐波的折射率面的交点来确定的。文献(8)中讨论了在光学上性能很好的双轴晶体的相位匹配的情况,这里所说的光学上性能很好的意思是指晶体光率体主轴的方向不随频率而变,有小的正常色散,并且在基频和谐波频率之间的色散近似相等。对给定相位匹配类型的相位匹配方向的轨迹以及相位失配 $\Delta k(\theta, \varphi)$,并没有简单的形式,而需用方程^[1]

$$\frac{\sin^2 \theta \cos^2 \theta}{\left[\frac{1}{\eta_x^2} - \frac{1}{\eta_y^2} \right]} + \frac{\sin^2 \theta \sin^2 \varphi}{\left[\frac{1}{\eta_x^2} - \frac{1}{\eta_z^2} \right]} + \frac{\cos^2 \theta}{\left[\frac{1}{\eta_y^2} - \frac{1}{\eta_z^2} \right]} = 0, \quad (4.5-24)$$

并借助计算机进行计算。在文献(8)中给出了对具有 $n_z > n_{1z} > n_{2y} > n_{1y} > n_{2x} > n_{1x}$ 以及 $n_{2z} > \frac{1}{2}(n_{1x} + n_{1y})$ 、 $n_{2y} < \frac{1}{2}(n_{1x} + n_{1y})$ 的双轴晶体的第一类和第二类相位匹配方向的轨迹,如图4-24所示。第一类相位匹配方向是在围绕光轴的锥面内,第二类相位匹配的方向是在围绕光轴和z轴的锥面内。图中右上角也画出了相位匹配方向在xz平面内的轨迹。

参 考 文 献

- [1] Donald F. Nelson, Electric, Optic, and Acoustic Interactions in Dielectrics, Published by John Wiley & Sons, Inc. Copyright 1979

- by Bell Laboratories, Inc., p.184.
- [2] 同 [1], p.192.
- [3] 同 [1], p.168.
- [4] B. H. 斯米尔诺夫: 《高等数学教程》(孙念增译), 人民教育出版社, 一卷第五章, 第393页, 1979年4月。
- [5] M. Born and E. Wolf, Principles of Optics, Pergamon Press, 1959, p. 672.
- [6] D.C.Hanna, M.A.Yuratic, D.Cotter, Nonlinear Optics of Free Atoms and Molecules, Heidelberg New York, 1979, p.87.
- [7] Y-R. Shen, Nonlinear Infrared Generation Springer, Verlag Berlin Heidelberg New York, 1977, pp.33~34.
- [8] M.V. Hobden, Phase-Matched Second Harmonic Generation in Biaxial Crystals, J. Appl. phys., Vol. 38, No.11, 1967., P.4365.
- [9] 同 [5], p.678.

第五章 二阶电极化所引起的非线性现象

到现在为止, 我们还未涉及具体的非线性光学现象。因为在实际中比较重要的是二阶电极化和三阶电极化所引起的非线性光学现象, 所以本章和下章将分别讨论这两方面的问题。本章讨论由二阶电极化所引起的非线性光学现象, 如旋光性理论、法拉第效应、线性电光效应、光整流效应、和频与差频的产生、参量变换、参量放大与振荡等。讨论中我们会发现, 上述过程的 χ_{ijk} 的物理意义和量纲是不相同的。尽管如此, 我们仍将由 χ_{ijk} 所描述的过程统一说成是由二阶电极化所引起的非线性光学过程。

在第三章中我们已经看到, 对于具有反演对称性的介质来说, 二阶极化率张量为零, 因而在本章中所讨论的介质都是没有反演对称的介质。而且为简单起见, 我们还假定在所讨论的问题中, 所涉及的频率没有一个接近于一阶和二阶极化率张量的任何奇点, 即所讨论的情况是远离共振区的, 因而 $\chi^{(1)}$ 和 $\chi^{(2)}$ 两者都是实数, 具有完全对易对称性和时间反演对称性。

一、旋光性理论

当一束平面偏振光通过某些介质时, 其偏振面逐渐转动, 旋转的角度与材料的厚度成正比, 这种效应叫做旋光性。必须把这种现象与双折射现象区别开来, 后者是将平面偏振波变为椭圆偏振波。

有许多物质显示旋光性, 如糖溶液、松节油、氯酸钠(立方系)、石英(单轴晶体)以及硝酸钠(双轴晶体)。对单轴和双轴晶体来说, 沿着光轴方向最容易观察到旋光效应。

旋光性现象是阿拉哥(Arago)首先在1811年发现的。菲涅耳解释这种现象时, 假定圆偏振光通过上述那些介质时是不变的, 但右旋圆偏振光与左旋圆偏振光在介质中传播速度稍稍不同。并认为入射的平面偏振光是旋转方向相反的两个圆偏振光之和, 这两个旋转方向相反的圆偏振光在通过介质后, 一个光波的相位相对于另一个便有了相移。因此, 当两个圆偏振光在介质的出射面处重新组合时, 偏振面便产生了旋转。具体分析如下:

首先可以利用琼斯(Jones)矩阵方法来解释。入射平面偏振光用两个圆偏振光表示为

$$\mathbf{E}_\lambda \begin{bmatrix} 1 \\ 0 \end{bmatrix} = \frac{\mathbf{E}_0}{2} \begin{bmatrix} 1 \\ i \end{bmatrix} + \frac{\mathbf{E}_0}{2} \begin{bmatrix} 1 \\ -i \end{bmatrix}. \quad (5.1-1)$$

式中 \mathbf{E}_0 是平面偏振光的振幅。在这里我们规定顺着光的传播方向观察时, 电场矢量顺时针方向旋转的光为右旋圆偏振光, 逆时针方向旋转的光为左旋圆偏振光。这样, (5.1-1)式中右边的第一部分对应的是右旋圆偏振光, 第二部分对应的是左旋圆偏振光。

现设 η_l 和 η_r 分别为左旋和右旋圆偏振光的折射率, 则在介质中传播了距离 L 后, 左、右圆偏振光的相移分别为

$$\delta_l = \frac{2\pi\eta_l L}{\lambda}. \quad (5.1-2a)$$

$$\delta_r = \frac{2\pi\eta_r L_r}{\lambda} \quad (5.1-2b)$$

因而出射波变为

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_{\text{出}} &= \frac{\mathbf{E}_0}{2} \begin{bmatrix} 1 \\ i \end{bmatrix} \exp\left(i \frac{2\pi\eta_r L_r}{\lambda}\right) + \frac{\mathbf{E}_0}{2} \begin{bmatrix} 1 \\ -i \end{bmatrix} \exp\left(i \frac{2\pi\eta_l L_l}{\lambda}\right) \\ &= \frac{\mathbf{E}_0}{2} \exp\left[i 2\pi(\eta_r + \eta_l) \frac{L}{2\lambda}\right] \left\{ \begin{bmatrix} 1 \\ i \end{bmatrix} \exp\left[i 2\pi(\eta_r - \eta_l) \frac{L}{2\lambda}\right] \right. \\ &\quad \left. + \begin{bmatrix} 1 \\ -i \end{bmatrix} \exp\left[-i 2\pi(\eta_r - \eta_l) \frac{L}{2\lambda}\right] \right\} \end{aligned} \quad (5.1-3)$$

$$\text{令} \quad \frac{2\pi(\eta_r + \eta_l)L}{2\lambda} = \psi, \quad (5.1-4)$$

$$\frac{2\pi(\eta_r - \eta_l)L}{2\lambda} = \delta. \quad (5.1-5)$$

代入(5.1-3)式后, 有

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_{\text{出}} &= \mathbf{E}_0 \exp(i\psi) \left\{ \begin{bmatrix} 1 \\ 0 \end{bmatrix} \frac{\exp(i\delta) + \exp(-i\delta)}{2} - \begin{bmatrix} 0 \\ 1 \end{bmatrix} \frac{\exp(i\delta) - \exp(-i\delta)}{2i} \right\} \\ &= \mathbf{E}_0 \exp(i\psi) \left\{ \begin{bmatrix} 1 \\ 0 \end{bmatrix} \cos\delta - \begin{bmatrix} 0 \\ 1 \end{bmatrix} \sin\delta \right\} \end{aligned} \quad (5.1-6)$$

这个结果表示出射平面波的偏振面相对于入射波的偏振面旋转了一个角度 δ 。

根据上面的分析可以看到, 旋光性和一般的双折射概念相类似, 故旋光性也称为圆双折射。产生这种现象的机理与物质的螺旋结构有关。

下面我们将从非线性电极化的理论来分析旋光现象。

在第一章里我们已经给出电极化强度的一般表示式(1.2-5), 并指出旋光现象与电极化率的空间色散有关。一般表示式中含有场强梯度的项, 即

$$P_\mu^\alpha = \epsilon_0 \chi_{\mu\alpha\beta} \nabla_\beta E_\alpha^\omega \quad (5.1-7)$$

是用来描述旋光现象的。该式表明我们必须考虑在一个分子或一个晶胞范围内电场的变化, 而不能认为既然分子或晶胞很小, 就把在它们范围内的电场 \mathbf{E} 看作常数。为处理这一类问题, 需将电场展开为分子坐标 $\boldsymbol{\rho}$ 的幂级数, 即

$$\mathbf{E}(\boldsymbol{\rho}) = \mathbf{E} \Big|_{\boldsymbol{\rho}=0} + (\boldsymbol{\rho} \cdot \nabla) \mathbf{E} \Big|_{\boldsymbol{\rho}=0} + \frac{1}{2} (\boldsymbol{\rho} \cdot \nabla)^2 \mathbf{E} \Big|_{\boldsymbol{\rho}=0} + \dots \quad (5.1-8)$$

比较(5.1-7)式和(5.1-8)式, 可以看到(5.1-8)式右边第二项是与旋光现象有关的项, 并且该项中的分子坐标 $\boldsymbol{\rho}$ 已被包含在(5.1-7)式中的 $\chi_{\mu\alpha\beta}$ 之中了。

现将(5.1-7)式展开并对电场 \mathbf{E} 作出梯度的运算, 则有

$$\begin{aligned} P_\mu^\alpha &= \epsilon_0 \chi_{\mu\alpha\beta} \nabla_\beta E_\alpha^\omega \\ &= \epsilon_0 \chi_{\mu\alpha xx} \nabla_x E_x^\omega + \epsilon_0 \chi_{\mu\alpha yy} \nabla_y E_y^\omega + \epsilon_0 \chi_{\mu\alpha zz} \nabla_z E_z^\omega + \epsilon_0 \chi_{\mu\alpha xy} \nabla_x E_y^\omega \\ &\quad + \epsilon_0 \chi_{\mu\alpha yx} \nabla_y E_x^\omega + \epsilon_0 \chi_{\mu\alpha xz} \nabla_x E_z^\omega + \epsilon_0 \chi_{\mu\alpha zx} \nabla_z E_x^\omega + \epsilon_0 \chi_{\mu\alpha zy} \nabla_y E_z^\omega + \epsilon_0 \chi_{\mu\alpha yz} \nabla_z E_y^\omega \end{aligned} \quad (5.1-9)$$

因为电场的空间变化部分可以写为

$$\mathbf{E} = \mathbf{E}_0 \exp[i(\mathbf{k} \cdot \mathbf{r})],$$

所以在作出梯度运算 $\frac{\partial}{\partial r} E_a^0$ 等后, 有

$$P_{\mu}^0 = \epsilon_0 \chi_{\mu\nu\alpha} (ik_{\nu} E_{\alpha}^0) + \epsilon_0 \chi_{\mu\nu\beta} (ik_{\nu} E_{\beta}^0) + \epsilon_0 \chi_{\mu\nu\gamma} (ik_{\nu} E_{\gamma}^0) \\ + \epsilon_0 \chi_{\mu\nu\delta} (ik_{\nu} E_{\delta}^0) + \epsilon_0 \chi_{\mu\nu\epsilon} (ik_{\nu} E_{\epsilon}^0) + \epsilon_0 \chi_{\mu\nu\zeta} (ik_{\nu} E_{\zeta}^0) \\ + \epsilon_0 \chi_{\mu\nu\eta} (ik_{\nu} E_{\eta}^0) + \epsilon_0 \chi_{\mu\nu\theta} (ik_{\nu} E_{\theta}^0) + \epsilon_0 \chi_{\mu\nu\iota} (ik_{\nu} E_{\iota}^0), \quad (5.1-11)$$

比较(5.1-9)式和(5.1-11)式可见, 场强梯度的运算 $\nabla_{\beta} E_a^0$ 可用 $ik_{\beta} E_a^0$ 代替, 所以(5.1-7)式可改写为

$$P_{\mu}^0 = \epsilon_0 \chi_{\mu\alpha\beta} E_{\alpha}^0 ik_{\beta}. \quad (5.1-12)$$

现在再来分析一下(5.1-8)式中前后两项的数量级。根据上面场强梯度的运算等于用 ik 乘原来的场强 E , 这样(5.1-8)式中后一项与前一项之比为

$$\left| \frac{\text{后项}}{\text{前项}} \right| \approx |k\rho|. \quad (5.1-13)$$

如果 ρ 用介质的特征长度如分子的直径或晶格常数 a 表示, 则

$$|k\rho| = \frac{2\pi na}{\lambda}. \quad (5.1-14)$$

因为分子直径 a 的数量级为几个埃(\AA), 可见光的波长 λ 为几千个埃, 所以在光频区域内, $|k\rho|$ 的数量级大约为 10^{-3} 。因此可认为旋光性或圆双折射大约比线性双折射小三个数量级。例如, 石英的线性双折射约为 0.009 (指 n_e 和 n_o 之差) 而石英的圆双折射为 0.00007 (在可见光区域)。

由此可见, 如果我们只考虑线性电极化, 有

$$D = \epsilon \cdot E$$

或

$$D_{\mu} = \epsilon_{\mu\alpha} E_{\alpha}.$$

但如果考虑了旋光效应, 即考虑了(5.1-7)式的非线性电极化 P_{μ}^0 , 并由于圆双折射比线性双折射小得多, 则 P_{μ}^0 的作用可以当作对介电张量 ϵ 的微扰来处理(在研究电光效应、磁光效应以及折射率随场强变化这样一些问题时, 也都是这样处理的)。这时

$$D = \epsilon_0 E + P_L + P_{NL} \\ = \epsilon \cdot E + P_{NL}$$

或

$$D_{\mu} = \epsilon_{\mu\alpha} E_{\alpha} + P_{\mu}^0 \\ = (\epsilon_{\mu\alpha} + i\epsilon_0 \chi_{\mu\alpha\beta} k_{\beta}) E_{\alpha} \\ = (\epsilon_{\mu\alpha})_{eff} E_{\alpha}. \quad (5.1-15)$$

(5.1-15)式表明, P_{μ}^0 的作用可以当作对介电张量元素 $\epsilon_{\mu\alpha}$ 的一种微扰来处理, 即用有效值 $(\epsilon_{\mu\alpha})_{eff}$ 代替 $\epsilon_{\mu\alpha}$ 。

现以石英为例分析其旋光现象。石英属于 32 类晶体, 其二阶极化率张量的形式为

$$\begin{pmatrix} XXX & \dot{X}XX & 0 & XYZ & XZY & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & \bar{X}Z\dot{Y} & XYZ & \dot{X}XX & XXX \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & Z\dot{X}\dot{Y} & Z\dot{X}\dot{Y} \end{pmatrix}$$

如果激光沿光轴 z 传播, 则 $k_z \neq 0$, $k_x = k_y = 0$, 那么在主坐标系中石英的有效介电张量为

$$\epsilon_{eff} = \begin{pmatrix} \epsilon_{xx} & i\chi_{xy}k_z & 0 \\ -i\chi_{xy}k_z & \epsilon_{xx} & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon_{zz} \end{pmatrix}$$

将(5.1-16)式代入菲涅耳方程

$$\mathbf{D} = \frac{\eta^2}{\mu c^2} [\mathbf{E} - \mathbf{s}(\mathbf{s} \cdot \mathbf{E})] = \epsilon_{eff} \cdot \mathbf{E}$$

中时, 有

$$= \epsilon_0 \begin{pmatrix} \epsilon_{xx} & i\epsilon_0 \chi_{xy} k_z & 0 \\ -i\epsilon_0 \chi_{xy} k_z & \epsilon_{xx} & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon_{zz} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_x \\ E_y \\ E_z \end{pmatrix} - \epsilon_0 \begin{pmatrix} \eta^2 & 0 & 0 \\ 0 & \eta^2 & 0 \\ 0 & 0 & \eta^2 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_x \\ E_y \\ E_z \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \eta^2 & 0 & 0 \\ 0 & \eta^2 & 0 \\ 0 & 0 & \eta^2 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_x \\ E_y \\ E_z \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ s_z s_z L \end{pmatrix}$$

或

$$\begin{pmatrix} \epsilon'_{xx} & i\chi_{xy}k_z & 0 \\ -i\chi_{xy}k_z & \epsilon'_{xx} & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon'_{zz} + s_z s_z \eta^2 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_x \\ E_y \\ E_z \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \eta^2 & 0 & 0 \\ 0 & \eta^2 & 0 \\ 0 & 0 & \eta^2 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_x \\ E_y \\ E_z \end{pmatrix} \quad (5.1-17)$$

由此, 电场 z 分量的解可以由方程

$$(\epsilon'_{zz} + s_z s_z \eta^2) E_z - \eta^2 E_z = 0 \quad (5.1-18)$$

求得。因为 $s_z s_z = 1$, 所以 $\epsilon'_{zz} E_z = 0$, 但 $\epsilon'_{zz} \neq 0$, 必有

$$E_z = 0 \quad (5.1-19)$$

对于场分量 E_x 和 E_y , 可由

$$\begin{pmatrix} \epsilon'_{xx} - \eta^2 & i\chi_{xy}k_z \\ -i\chi_{xy}k_z & \epsilon'_{xx} - \eta^2 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_x \\ E_y \end{pmatrix} = 0 \quad (5.1-20)$$

求得。上式有解的条件是系数行列式为零, 即要求

$$\begin{vmatrix} \epsilon'_{xx} - \eta^2 & i\chi_{xy}k_z \\ -i\chi_{xy}k_z & \epsilon'_{xx} - \eta^2 \end{vmatrix} = 0 \quad (5.1-21)$$

由此求得本征值

$$\eta_1^2 = \epsilon'_{xx} + \chi_{xy}k_z \quad (5.1-22)$$

$$\eta_2^2 = \epsilon'_{xx} - \chi_{xy}k_z \quad (5.1-23)$$

将本征值 η_1^2 和 η_2^2 分别代入(5.1-20)式, 可求得相应的本征矢量为

$$\mathbf{E}_1 = \begin{bmatrix} 1 \\ i \\ 0 \end{bmatrix}, \quad \mathbf{E}_2 = \begin{bmatrix} 1 \\ -i \\ 0 \end{bmatrix} \quad (5.1-24)$$

显然这两个本征矢所表示的是圆偏振光。因为石英对于这两个圆偏振光的折射率是不相同的, 所以当一平面偏振光沿光轴 z 通过石英晶体时, 偏振面发生了旋转。按规定, 这里的

E_1 对应于右旋圆偏振光, E_2 对应于左旋圆偏振光。将 $(\eta_r - \eta_l)$ 的近似表示式代入 (5.1-5) 式, 便给出偏振面旋转的角度 δ 为

$$\delta = \frac{2\pi(\eta_r - \eta_l)L}{2\lambda} = \frac{2\pi^2 L \chi_{xy}}{\lambda^2} \quad (5.1-25)$$

式中 λ 是真空中波长。最后要指出, 石英有两种, 即所谓右旋石英和左旋石英, 对两者来说 χ_{xy} 的符号是不相同的。

二、法拉第效应

法拉第在1845年发现, 当一束光沿着磁场方向通过受磁场作用的玻璃时, 该光波的偏振面发生了旋转。这种现象叫做法拉第效应, 如图5-1所示。偏振面转过的角度 θ 与所加磁场的磁感应强度 B 、介质长度 L 成正比, 即

$$\theta = VBL \quad (5.2-1)$$

式中比例常数 V 叫做范德特 (Verdet) 常数。

法拉第效应可由 (1.2-5) 式右边第六项

$$P_{\mu}^{\alpha} = \epsilon_0 \chi_{\mu\alpha\beta} E_{\alpha}^{\omega} B_{\beta}^{\omega} \quad (5.2-2)$$

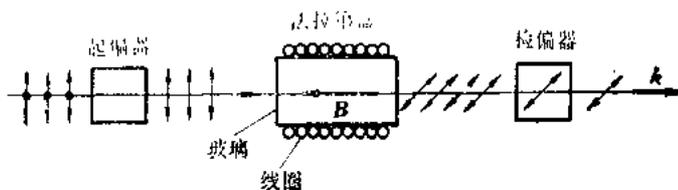


图 5-1 法拉第效应示意图

来描述。因为这里所加的是不随时间变化的恒定磁场, 因而 (5.2-2) 式变为

$$P_{\mu}^{\alpha} = \epsilon_0 \chi_{\mu\alpha\beta} E_{\alpha}^{\omega} B_{\beta}^{\omega} \quad (5.2-3)$$

在电动力学中已经证明^[11], 如果各向异性介质内不存在外磁场, 则电能的损失为

$$\frac{i\omega}{2} (\epsilon_{ik}^* - \epsilon_{ki}) E_i E_k^* \quad (5.2-4)$$

因为张量 ϵ 是对称的, 即 $\epsilon_{ik} = \epsilon_{ki}$, 所以在没有外磁场 H 并且介质是无耗的情况下, 要求张量元素 $\epsilon_{ik}^* = \epsilon_{ki} = \epsilon_{ik}$ 。具有 $\epsilon_{ik} = \epsilon_{ki}^*$ 这种形式的介电张量叫做厄米型的, 所以在介电张量 ϵ 是厄米型的条件下, δ_{ik} 必须是实数。

另外在量子力学中也已证明^[12], 如果系统在恒定的外磁场 H 的作用下, 则系统的波函数 ψ 已不再是实数, 而有

$$\psi^*(H) = \psi(-H), \quad (5.2-5)$$

介电张量 ϵ 也不再是对称的, 而有

$$\epsilon_{ik}(H) = \epsilon_{ki}(-H) \quad (5.2-6)$$

不存在吸收的条件只要求这张量是厄米型的, 即

$$\epsilon_{ik} = \epsilon_{ki}^* \quad (5.2-7)$$

因此, 从 (5.2-7) 式可得出 ϵ_{ik} 的实数部分和虚数部分必须分别是对称的和反对称的, 即

$$\epsilon'_{ik} = \epsilon'_{ki}, \quad \epsilon''_{ik} = -\epsilon''_{ki} \quad (5.2-8)$$

考虑到(5.2-6)式, 则有

$$\epsilon'_{ik}(\mathbf{H}) = \epsilon'_{ki}(\mathbf{H}) - \epsilon'_{ki}(-\mathbf{H}), \quad (5.2-9a)$$

$$\epsilon''_{ik}(\mathbf{H}) = -\epsilon''_{ki}(\mathbf{H}) = -\epsilon''_{ki}(-\mathbf{H}). \quad (5.2-9b)$$

也就是说, 在非吸收介质内, ϵ'_{ik} 是 \mathbf{H} 的偶函数, 而 ϵ''_{ik} 为 \mathbf{H} 的奇函数。在这里, 对法拉第效应来说, 它是由 $\chi_{\mu\alpha\beta}$ 的反对称部分来描述的, 即交换下标 i 和 j 时, $\chi_{\mu\alpha\beta}$ 是反对称的。实际上 $\chi_{\mu\alpha\beta}$ 是一个三阶张量^[1]。如果令 \mathbf{B} 和光束传播的方向为 z 方向, 则(5.2-3)式存在的两个分量为

$$P_x'' = i\epsilon_0\chi_{xy}B_z'' B_y'' \quad (5.2-10a)$$

$$P_y'' = i\epsilon_0\chi_{yx}B_z'' B_x'' \quad (5.2-10b)$$

且

$$\chi_{xyx} = -\chi_{yxz} \quad (5.2-11)$$

由此可得各向同性玻璃的有效介电常数为

$$\epsilon_{eff} = \begin{pmatrix} \epsilon & i\epsilon_0\chi_{xy}B_z'' & 0 \\ -i\epsilon_0\chi_{yx}B_z'' & \epsilon & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon \end{pmatrix} \quad (5.2-12)$$

将(5.2-12)式代入菲涅耳方程

$$\begin{aligned} \mathbf{D} &= \frac{\eta^2}{\mu c^2} [\mathbf{E} - \mathbf{s}(\mathbf{s} \cdot \mathbf{E})] \\ &= \epsilon_{eff} \cdot \mathbf{E} \end{aligned}$$

求解可得本征值

$$\eta_1^2 = \epsilon_r + \chi_{xy}B_z'' \quad (5.2-13a)$$

$$\eta_2^2 = \epsilon_r - \chi_{xy}B_z'' \quad (5.2-13b)$$

以及相应的本征矢

$$\mathbf{E}_1 = \frac{\mathbf{E}_0}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1 \\ i \\ 0 \end{pmatrix}, \quad \mathbf{E}_2 = \frac{\mathbf{E}_0}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1 \\ -i \\ 0 \end{pmatrix} \quad (5.2-14)$$

由(5.2-13)式求得折射率之差 ($\eta_1 - \eta_2$) 并代入(5.1-5)式, 便给出偏振面转过的角度 θ 为

$$\theta = \frac{\pi L \chi_{xy} B_z''}{\lambda} \quad (5.2-15)$$

最后我们简单地指出, 上述法拉第效应是由电极化率张量的虚部来描述的, 而它的实部产生所谓圆的二色性, 就是右旋圆偏振光和左旋圆偏振光吸收峰值处的频率不同。此外还有所谓科顿-蒙顿 (Cotton-Mouton) 效应, 即在液体中, 磁场使具有磁矩的各向异性分子排列起来, 从而引起双折射现象。这种效应类似于液体中的克尔 (Kerr) 效应, 这是一种二次的磁光效应。

三、线性电光效应

线性电光效应也叫做普克尔(Pockles)效应。这个效应是：当没有反演中心的晶体受到直流电场或低频电场(这里所讲的低频包括微波的频率，因为相对光频来说，微波频率还是很低的)作用时，其折射率发生与外加电场成线性关系的变化。

为什么线性电光效应只发生于没有反演中心的晶体?其原因是：若晶体具有反演对称性，并设沿某一方向的电场引起折射率的改变 $\Delta n_1 = ZE$ ，这里的 Z 是表征线性电光效应的一个常数。假定电场方向相反，则折射率改变 $\Delta n_2 = Z(-E)$ 。但按假定晶体具有反演对称性，在物理上，两个相反方向的电场应该是等价的，所以 $\Delta n_1 = \Delta n_2$ ，这就要求 $Z = -Z$ 。显然这只有 $Z = 0$ 才可能，因之所有具有反演中心的晶体是没有线性电光效应的。

线性电光效应有所谓纵向运用和横向运用之分。当外加直流电场平行于光波的传播方向时为纵向运用；当外加直流电场与光波的传播方向相互垂直时为横向运用。如图5-2所示。

线性电光效应可以与二阶电极化率张量 $\chi^{(2)}$ 联系起来，当直流电场 E_0 作用于无中心反演物质的同时，还受到一光波电场

$$E \exp(-i\omega t) + C.C.$$

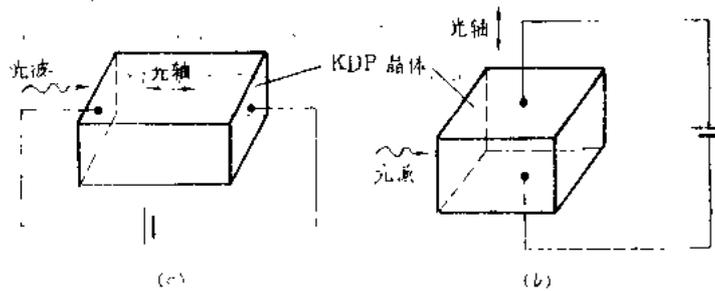


图5-2 线性电光效应纵向和横向运用示意图
(a)纵向运用; (b)横向运用

的作用，那么根据电极化强度的一般表示式(1.3-14)式和(1.3-15)式，有

$$P^{(1)}(t) = \epsilon_0 \chi^{(1)}(0) \cdot E_0 + \epsilon_0 [\chi^{(1)}(\omega) \cdot E \exp(-i\omega t) + \chi^{(1)}(-\omega) \cdot E \exp(i\omega t)], \quad (5.3-1)$$

$$P^{(2)}(t) = \epsilon_0 \chi^{(2)}(0,0) : E_0 E_0 + 2\epsilon_0 \chi^{(2)}(\omega, -\omega) : E E^* + 2\epsilon_0 [\chi^{(2)}(\omega, 0) : E E_0 \exp(-i\omega t) + \chi^{(2)}(-\omega, 0) : E^* E_0 \exp(i\omega t)] + \epsilon_0 [\chi^{(2)}(\omega, \omega) : E E \exp(-2i\omega t) + \chi^{(2)}(-\omega, -\omega) : E^* E^* \exp(2i\omega t)], \quad (5.3-2)$$

$$P_{\mu}(\omega, t) = \epsilon_0 [\chi_{\mu\alpha}^{(1)}(\omega) E_{\alpha} \exp(-i\omega t) + C.C.] + 2\epsilon_0 [\chi_{\mu\alpha\beta}^{(2)}(\omega, 0) E_{\alpha} E_{0\beta} \exp(-i\omega t) + C.C.] = \epsilon_0 \{ [\chi_{\mu\alpha}^{(1)}(\omega) + 2\chi_{\mu\alpha\beta}^{(2)}(\omega, 0) E_{0\beta}] E_{\alpha} \exp(-i\omega t) + C.C. \}. \quad (5.3-3)$$

由此可见，直流电场的作用使频率为 ω 的电极化率张量改变了 $2\chi_{\mu\alpha\beta}^{(2)}(\omega, 0) E_{0\beta}$ ，因此介电张量有效值的改变为

$$\delta\epsilon_{\mu\alpha}(\omega) = 2\epsilon_0 \chi_{\mu\alpha\beta}^{(2)}(\omega, 0) E_{0\beta}. \quad (5.3-4)$$

在第四章二中我们已详细地讨论了波在介质内的传播特性可以利用在主坐标系中的折射率椭球

$$\frac{x^2}{\eta_x^2} + \frac{y^2}{\eta_y^2} + \frac{z^2}{\eta_z^2} = 1$$

来描述。从上面又可知，由于直流电场 E_0 的存在引起介电张量的变化，也就是引起折射率椭球的常数 $1/\eta_x^2$ 、 $1/\eta_y^2$ 、 $1/\eta_z^2$ 等发生变化。因此在有电场存在时，我们可以将折射率椭球方程写成如下一般的形式

$$\left(\frac{1}{\eta^2}\right)_1 x^2 + \left(\frac{1}{\eta^2}\right)_2 y^2 + \left(\frac{1}{\eta^2}\right)_3 z^2 + 2\left(\frac{1}{\eta^2}\right)_4 yz + 2\left(\frac{1}{\eta^2}\right)_5 xz + 2\left(\frac{1}{\eta^2}\right)_6 xy = 1. \quad (5.3-5)$$

当电场为零，而且使 x 、 y 、 z 轴分别平行于晶体的三个介电主轴时，有

$$\left. \begin{aligned} \left(\frac{1}{\eta^2}\right)_1 \Big|_{E=0} &= \frac{1}{\eta_x^2}, & \left(\frac{1}{\eta^2}\right)_4 \Big|_{E=0} &= 0, \\ \left(\frac{1}{\eta^2}\right)_2 \Big|_{E=0} &= \frac{1}{\eta_y^2}, & \left(\frac{1}{\eta^2}\right)_5 \Big|_{E=0} &= 0, \\ \left(\frac{1}{\eta^2}\right)_3 \Big|_{E=0} &= \frac{1}{\eta_z^2}, & \left(\frac{1}{\eta^2}\right)_6 \Big|_{E=0} &= 0. \end{aligned} \right\} \quad (5.3-6)$$

因为折射率椭球的常数 $(1/\eta^2)_i$ 的改变与介电张量元素倒数的改变 $\delta(1/\epsilon_{\mu\nu})$ 相对应，我们可以导出 $\delta(1/\epsilon_{\mu\nu})$ 的表示式。现令 ϵ 和 ϵ^{-1} 分别表示没有恒定电场时的介电张量及其倒数，又令 $\delta\epsilon$ 和 $\delta\epsilon^{-1}$ 分别表示由恒定电场所引起介电张量 ϵ 和其倒数 ϵ^{-1} 的改变，因而当恒定电场存在时，总的介电张量的倒数为

$$\epsilon^{-1} + \delta\epsilon^{-1}.$$

而 $\epsilon^{-1} + \delta\epsilon^{-1}$ 的倒数正好就是 $\epsilon + \delta\epsilon$ ，即

$$\frac{1}{\epsilon^{-1} + \delta\epsilon^{-1}} = \epsilon + \delta\epsilon. \quad (5.3-7)$$

由于

$$\begin{aligned} \frac{1}{\epsilon^{-1} + \delta\epsilon^{-1}} &= (\epsilon^{-1} + \delta\epsilon^{-1})\epsilon \\ &= \frac{\epsilon}{1 + \delta\epsilon^{-1}\epsilon} \\ &= \epsilon - \epsilon\delta\epsilon^{-1}\epsilon. \end{aligned} \quad (5.3-8)$$

因而比较 (5.3-7) 式和 (5.3-8) 式，可给出

$$\delta\epsilon = -\epsilon\delta\epsilon^{-1}\epsilon, \quad (5.3-9)$$

如果将上式按相对于 ϵ 的主轴展开，则有

$$\delta\epsilon_{\mu\nu} = -\epsilon_{\mu\mu}\epsilon_{\nu\nu}\delta\epsilon_{\mu\nu}^{-1} \quad (5.3-10)$$

或

$$\delta\epsilon_{\mu\nu}^{-1} = -\frac{\delta\epsilon_{\mu\nu}}{\epsilon_{\mu\mu}\epsilon_{\nu\nu}}. \quad (5.3-11)$$

注意，如果 ϵ' 表示相对介电张量，那么 $\delta\epsilon'_{\mu\alpha}$ 、 $\epsilon'_{\mu\alpha}$ 、 $\epsilon'_{\alpha\mu}$ 以及 $\delta(\epsilon'_{\mu\alpha})^{-1}$ 等都是相对的。现将(5.3-4)式代入(5.3-11)式，则有

$$\begin{aligned} \delta(\epsilon'_{\mu\alpha})^{-1} &= -\frac{\delta\epsilon'_{\mu\alpha}}{\epsilon'_{\mu\mu}\epsilon'_{\alpha\alpha}} \\ &= -\frac{2\chi_{\mu\beta\alpha}^{(2)}(\omega, 0)E_{0\beta}}{\epsilon'_{\mu\mu}\epsilon'_{\alpha\alpha}}. \end{aligned} \quad (5.3-12)$$

现令

$$-\frac{2\chi_{\mu\beta\alpha}^{(2)}(\omega, 0)}{\epsilon'_{\mu\mu}\epsilon'_{\alpha\alpha}} \equiv \gamma_{\mu\alpha\beta}, \quad (5.3-13)$$

则(5.3-12)式变为

$$\delta(\epsilon'_{\mu\alpha})^{-1} = \gamma_{\mu\alpha\beta}E_{0\beta}. \quad (5.3-14)$$

式中 $\gamma_{\mu\alpha\beta}$ 叫做电光张量元素。考虑到电极化率张量的完全对易对称性和时间反演对称性，由(5.3-13)式可知，电光张量元素 $\gamma_{\mu\alpha\beta}(\omega, 0)$ 相对指标 μ, α 是对称的，即有

$$\gamma_{\mu\alpha\beta} = \gamma_{\alpha\mu\beta}. \quad (5.3-15)$$

例如对 $\bar{3}2m$ 类晶体的二阶极化率张量有

$$\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & XYZ & XZY & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & XZY & XYZ & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & ZXY & ZYX \end{pmatrix},$$

因而有 $\gamma_{xyz} = \gamma_{zxy} = \gamma_{yxz} = \gamma_{zyx}$ 。另外，满足克兰曼对称性时，张量元素 $\chi_{\mu\alpha\beta}$ 在后面两个指标交换下是不变的，所以非线性光学系数一般可表示为

$$\begin{pmatrix} d_{11} & d_{12} & d_{13} & d_{14} & d_{15} & d_{16} \\ d_{21} & d_{22} & d_{23} & d_{24} & d_{25} & d_{26} \\ d_{31} & d_{32} & d_{33} & d_{34} & d_{35} & d_{36} \end{pmatrix}.$$

这里已利用了下列代换规则：

$xx \rightarrow 1, yy \rightarrow 2, zz \rightarrow 3, yz \rightarrow 4, xz \rightarrow 5, xy \rightarrow 6$ ，对 $42m$ 类晶体则有

$$\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & d_{14} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & d_{25} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & d_{36} \end{pmatrix}.$$

又因为电光张量元素 $\gamma_{\mu\alpha\beta}$ 对指标 μ, α 是对称的，因而电光张量元素有

$$\begin{pmatrix} \gamma_{11} & \gamma_{12} & \gamma_{13} \\ \gamma_{21} & \gamma_{22} & \gamma_{23} \\ \gamma_{31} & \gamma_{32} & \gamma_{33} \\ \gamma_{41} & \gamma_{42} & \gamma_{43} \\ \gamma_{51} & \gamma_{52} & \gamma_{53} \\ \gamma_{61} & \gamma_{62} & \gamma_{63} \end{pmatrix}.$$

的一般形式。对 $42m$ 类晶体, 有

$$\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ \gamma_{41} & 0 & 0 \\ 0 & \gamma_{52} & 0 \\ 0 & 0 & \gamma_{63} \end{pmatrix}$$

由 (5.3-13) 式明显可见 γ_{41} 来自 d_{23} 和 d_{36} , γ_{52} 来自 d_{35} 和 d_{14} , γ_{63} 来自 d_{14} 和 d_{25} 。

在利用代换规则 $x \rightarrow 1, yy \rightarrow 2, zz \rightarrow 3, yz \rightarrow 4, xz \rightarrow 5, xy \rightarrow 6$ 之后, 可将 (5.3-14) 式写成

$$\delta \begin{pmatrix} 1 \\ \eta^2 \end{pmatrix}_{\mu} = \gamma_{\mu\alpha} F_{\alpha} \quad (5.3-16)$$

的形式。再写成矩阵形式时, 有

$$\begin{pmatrix} \delta \begin{pmatrix} 1 \\ \eta^2 \end{pmatrix}_1 \\ \delta \begin{pmatrix} 1 \\ \eta^2 \end{pmatrix}_2 \\ \delta \begin{pmatrix} 1 \\ \eta^2 \end{pmatrix}_3 \\ \delta \begin{pmatrix} 1 \\ \eta^2 \end{pmatrix}_4 \\ \delta \begin{pmatrix} 1 \\ \eta^2 \end{pmatrix}_5 \\ \delta \begin{pmatrix} 1 \\ \eta^2 \end{pmatrix}_6 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \gamma_{11} & \gamma_{12} & \gamma_{13} \\ \gamma_{21} & \gamma_{22} & \gamma_{23} \\ \gamma_{31} & \gamma_{32} & \gamma_{33} \\ \gamma_{41} & \gamma_{42} & \gamma_{43} \\ \gamma_{51} & \gamma_{52} & \gamma_{53} \\ \gamma_{61} & \gamma_{62} & \gamma_{63} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_1 \\ E_2 \\ E_3 \end{pmatrix} \quad (5.3-17)$$

对 $42m$ 类晶体, 有

$$\begin{pmatrix} \delta \begin{pmatrix} 1 \\ \eta^2 \end{pmatrix}_1 \\ \delta \begin{pmatrix} 1 \\ \eta^2 \end{pmatrix}_2 \\ \delta \begin{pmatrix} 1 \\ \eta^2 \end{pmatrix}_3 \\ \delta \begin{pmatrix} 1 \\ \eta^2 \end{pmatrix}_4 \\ \delta \begin{pmatrix} 1 \\ \eta^2 \end{pmatrix}_5 \\ \delta \begin{pmatrix} 1 \\ \eta^2 \end{pmatrix}_6 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ \gamma_{41} & 0 & 0 \\ 0 & \gamma_{52} & 0 \\ 0 & 0 & \gamma_{63} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_1 \\ E_2 \\ E_3 \end{pmatrix} \quad (5.3-18)$$

表5-1给出了所有晶体对称类型的电光张量的形式。表5-2则给出了若干电光材料及其

性质。

符号说明：

表 5-1 所有晶体对称类型的电光张量形式

- 表示零元素
- 表示非零元素
- 表示相等的非零元素
- 表示相等的非零元素，但符号相反

每一个张量左上角的符号是对称类型的国际符号

(1) 中心对称晶体

所有电光张量元素都等于零

(2) 三斜晶系



(3) 单斜晶系

2(平行于 x_3)



(平行于 x_3)



m (垂直于 x_2)



(垂直于 x_3)



(4) 正交晶系

222



$mm2$



(5) 三角晶系

3



32



例：(Te, 石英)

$3m$ (m 垂直于 x_3)



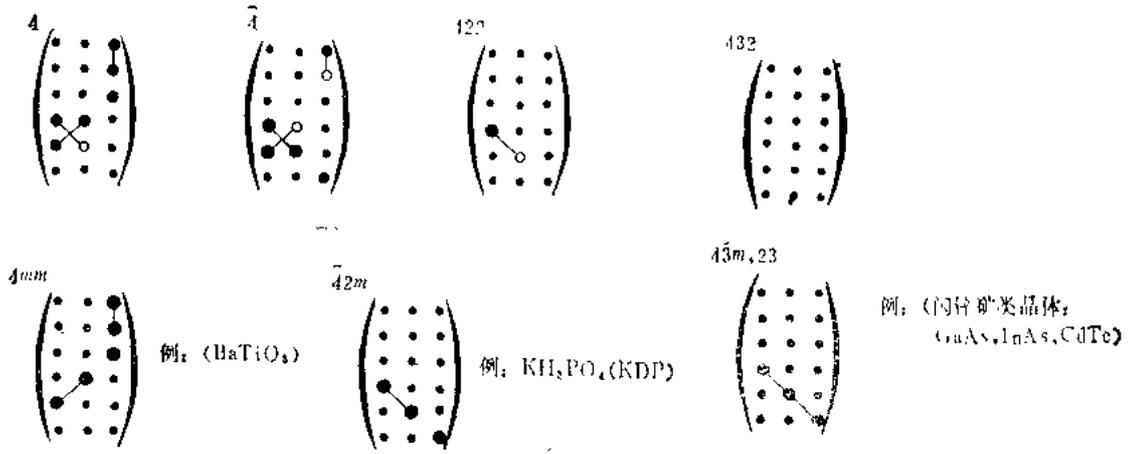
$3m$ (m 垂直于 x_2)



例：(LiNbO₃,
LiTaO₃)

(6) 正方晶系

(7) 立方晶系



(8) 六角晶系

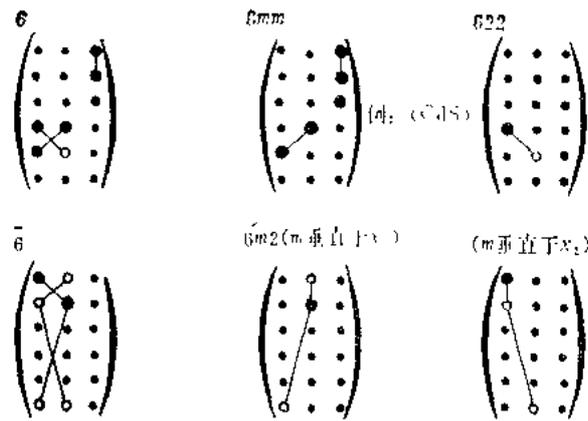


表 5-2 若干电光材料及其性质

材料	室温电光系数 (10^{-12} m/V)	折射率 (典型值)	$\eta_{ij}^3 \gamma$ (10^{-12} m/V)	ϵ/ϵ_0 (室温)	点群对称性 (国际符号)
KDP (KH_2PO_4)	$\gamma_{41} = 8.6$	$n_o = 1.51$	29	$\epsilon_{\parallel c} = 20$	$\bar{4}2m$
	$\gamma_{63} = 10.6$	$n_e = 1.47$	34	$\epsilon_{\perp c} = 45$	
KD*P (KD_2PO_4)	$\gamma_{63} = 23.6$	~ 1.50	80	$\epsilon_{\parallel c} = 50$ (24°C)	$\bar{4}2m$
ADP ($\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$)	$\gamma_{41} = 28$	$n_o = 1.52$	95	$\epsilon_{\parallel c} = 12$	$\bar{4}2m$
	$\gamma_{63} = 8.5$	$n_e = 1.48$	27		
石英	$\gamma_{41} = 0.2$	$n_o = 1.54$	0.7	$\epsilon_{\parallel c} \sim 4.3$	32
	$\gamma_{63} = 0.93$	$n_e = 1.55$	3.4	$\epsilon_{\perp c} \sim 4.3$	

接下页

续表

材料	室温电光系数 (10^{-12} m/V)	折射率 (典型值)	η_{ij}^2 (10^{-12} m/V)	ϵ/ϵ_0 (室温)	点群对称性 (国际符号)
CuCl	$\gamma_{41} = 6.1$	$\eta_o = 1.97$	47	7.5	43m
ZnS	$\gamma_{41} = 2.0$	$\eta_o = 2.37$	27	~10	43m
GaAs (10.6 μ m)	$\gamma_{41} = 1.6$	$\eta_o = 3.34$	59	11.5	43m
ZnTe (10.6 μ m)	$\gamma_{41} = 3.9$	$\eta_o = 2.79$	77	7.8	43m
CdTe (10.6 μ m)	$\gamma_{41} = 6.8$	$\eta_o = 2.6$	120	7.3	43m
ZnSe	$\gamma_{33} = 30.8$	$\eta_o = 2.29$	$\eta_o^2 \gamma_{33} = 328$	$\epsilon \parallel c = 98$	43m
	$\gamma_{13} = 8.6$				
LiNbO ₃	$\gamma_{41} = 1.8$	$\eta_o = 2.3$	26	$\epsilon \parallel c = 50$	3m
	$\gamma_{22} = 3.4$	$\eta_e = 2.20$	$\eta_o^2 \gamma_{22} = 37$		
GaP	$\gamma_{42} = 28$		$\frac{1}{2}(\eta_o^2 \gamma_{33} - \eta_o^2 \gamma_{13}) = 112$	$\epsilon \parallel c = 43$	43m
	$\gamma_{41} = 0.97$	$\eta_o = 3.31$	$\eta_o^2 \gamma_{41} = 29$		
LiTaO ₃ (30°C)	$\gamma_{33} = 30.3$	$\eta_o = 2.175$	$\eta_o^2 \gamma_{33} = 311$	$\epsilon \parallel c = 43$	3m
	$\gamma_{13} = 5.7$	$\eta_e = 2.180$			
BaTiO ₃ (30°C)	$\gamma_{33} = 23$			$\epsilon \parallel c = 4300$	4mm
	$\gamma_{13} = 8.0$	$\eta_o = 2.437$	$\eta_o^2 \gamma_{33} = 334$		
	$\gamma_{42} = 820$	$\eta_e = 2.365$		$\epsilon \parallel c = 106$	

下面我们以42m类晶体和43m类晶体为例具体分析它们的电光效应。

例1 KDP(KH₂PO₄)中的线性电光效应(纵向运用)。

方法——用折射率椭球。

KDP晶体属42m对称群, 根据表5-1, 电光张量的非零元素只有 $\gamma_{41} = \gamma_{52}$ 和 γ_{63} 。

现取z轴为光轴, 则存在直流电场 E_o (E_{ox}, E_{oy}, E_{oz})或低频电场时, 折射率椭球方程由 $E_o = 0$ 时的

$$\frac{x^2}{\eta_o^2} + \frac{y^2}{\eta_o^2} + \frac{z^2}{\eta_o^2} = 1$$

变为 $E_o \neq 0$ 时的

$$\frac{x^2}{\eta_x^2} + \frac{y^2}{\eta_y^2} + \frac{z^2}{\eta_z^2} + \frac{2yz}{\eta_1^2} + \frac{2xz}{\eta_2^2} + \frac{2xy}{\eta_3^2} = 1$$

由(5.3-18)式, 有

$$\delta\left(\frac{1}{\eta_1^2}\right) = 0, \quad \delta\left(\frac{1}{\eta_2^2}\right) = \gamma_{41} E_z,$$

$$\delta\left(\frac{1}{\eta_3^2}\right) = 0, \quad \delta\left(\frac{1}{\eta_3^2}\right) = \gamma_{41} E_z,$$

$$\delta\left(\frac{1}{\eta_o^2}\right) = 0, \delta\left(\frac{1}{\eta_e^2}\right) = \gamma_{03} E_z.$$

这样, 对KDP晶体来说, $E_0 \neq 0$ 时的折射率椭球方程变为

$$\frac{x^2}{\eta_o^2} + \frac{y^2}{\eta_o^2} + \frac{z^2}{\eta_e^2} + 2\gamma_{41} E_{0z} yz + 2\gamma_{41} E_{0z} xz + 2\gamma_{63} E_{0z} xy = 1. \quad (5.3-19)$$

可见, 电场 E_0 的作用使得在折射率椭球方程中产生混合项, 这表示椭球的主轴由于外电场的作用已发生了改变, 需要寻求新的主轴方向以及电场 E_0 存在时折射率的大小, 从而确定电场 E_0 对光波的传播的影响。

现在我们考虑一种特殊情况, 即假定所加的直流电场 E_0 平行于光轴 (z 轴), 这时

$$\mathbf{E}_0 = k E_{0z}, \quad E_{0x} = E_{0y} = 0.$$

于是椭球方程 (5.3-19) 式变为

$$\frac{x^2}{\eta_o^2} + \frac{y^2}{\eta_o^2} + \frac{z^2}{\eta_e^2} + 2\gamma_{63} E_{0z} xy = 1. \quad (5.3-20)$$

现假定新坐标系为 (x', y', z') , 在这新坐标系中, 椭球方程中不包含混合项, 即

$$\frac{(x')^2}{\eta_{x'}^2} + \frac{(y')^2}{\eta_{y'}^2} + \frac{(z')^2}{\eta_{z'}^2} = 1. \quad (5.3-21)$$

这时椭球的主轴方向为 x', y', z' , 椭球主轴的长度为 $2\eta_{x'}$ 、 $2\eta_{y'}$ 和 $2\eta_{z'}$, 一般讲, 它们与外加电场是有关的。

由 (5.3-20) 式可以看到, 这方程对 xy 是对称的, 而且混合项中没有 z 坐标。所以 x 、 y 、 z 和 x' 、 y' 、 z' 之间有如下的变换关系 (参看图5-3):

$$\left. \begin{aligned} x &= x' \cos 45^\circ + y' \sin 45^\circ, \\ y &= -x' \sin 45^\circ + y' \cos 45^\circ, \\ z &= z'. \end{aligned} \right\} \quad (5.3-22)$$

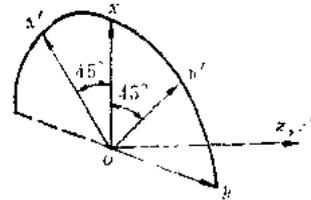


图 5-3 $\bar{4}2m$ 晶体(如KDP)的 x 、 y 、 z 轴和 x' 、 y' 、 z' 轴

将 (5.3-22) 式代入 (5.3-20) 式, 有

$$\left(\frac{1}{\eta_o^2} - \gamma_{63} E_{0z}\right)(x')^2 + \left(\frac{1}{\eta_o^2} + \gamma_{63} E_{0z}\right)(y')^2 + \frac{(z')^2}{\eta_e^2} = 1. \quad (5.3-23)$$

比较 (5.3-21) 式和 (5.3-23) 式, 可得椭球的 x' 轴的长度 $2\eta_{x'}$ 。即由

$$\frac{1}{\eta_{x'}^2} = \frac{1}{\eta_o^2} - \gamma_{63} E_{0z}$$

出发, 假定 $\gamma_{63} E_{0z} \ll \frac{1}{\eta_o^2}$, 并利用微分关系

$$d\eta = \frac{\eta^3}{2} d\left(\frac{1}{\eta^2}\right),$$

便有

$$\eta_{x'} - \eta_o = d\eta_{x'} = -\frac{\eta_o^3}{2} \gamma_{63} E_{0z}$$

或

$$\eta_{y'} = \eta_o + \frac{\eta_o^2}{2} \gamma_{63} E_{oz} \quad (5.3-24a)$$

同样可得

$$\eta_{z'} = \eta_o - \frac{\eta_o^2}{2} \gamma_{63} E_{oz} \quad (5.3-24b)$$

$$\eta_{x'} = \eta_x = \eta_e \quad (5.3-24c)$$

由以上的讨论可知,由于外加直流电场 E_{oz} 的作用,使介电张量发生了改变,如 $\delta\epsilon_{\mu\alpha}(\omega) = 2\epsilon_o \chi_{\mu\alpha\beta}(\omega, 0) E_{oz}$,或折射率发生了变化,例如(5.3-24)式。不过这种变化一般讲是很小的,但是由于光波的波长很短,因而当光波通过晶体几个厘米的长度时,便产生了明显的相位改变。例如,如果KDP晶体上所加的电场为 10^6 V/m,由表5-2查得 $\gamma_{63} = 10.6 \times 10^{-12}$ m/V, (5.3-24a)式给出 $|\delta\eta_{y'}| = \frac{\eta_o^2}{2} \gamma_{63} E_{oz} \approx 1.8 \times 10^{-5}$, 因而当波长为 $1 \mu\text{m}$ 的光波通过5cm长的KDP晶体后,便有

$$\varphi = 2\pi \frac{\delta\eta L}{\lambda} = 2\pi \frac{1.8 \times 10^{-5} \times 5}{1 \times 10^{-4}} \approx 2\pi$$

的相位改变。

方法二——利用麦克斯韦方程求解。

和讨论旋光效应一样,将二阶非线性电极化强度

$$P_{\mu}^{\omega} = 2\epsilon_o \chi_{\mu\alpha\beta}^{(2)}(\omega, 0) E_{\alpha}(\omega) E_{\beta}(0)$$

当作对介电张量元素 $\epsilon_{\mu\alpha}$ 的微扰来处理。根据 $42m$ 类晶体的二阶电极化率张量的形式

$$\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & XYZ & XZY & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & XZY & XYZ & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & ZXY & ZXY \end{pmatrix}$$

则有效相对介电张量元素为

$$\begin{aligned} (\epsilon'_{\mu\alpha})_{eff} &= \epsilon'_{\mu\alpha} + 2\chi_{\mu\alpha\beta}^{(2)} E_{\beta}(0) \\ &= \epsilon'_{\mu\alpha} + 2\chi_{\mu\alpha z}^{(2)} E_z(0) \end{aligned}$$

写成矩阵的形式为

$$\epsilon'_{eff} = \begin{pmatrix} \epsilon'_{xx} & 2\chi_{xyx}^{(2)} E_z(0) & 0 \\ 2\chi_{xyx}^{(2)} E_z(0) & \epsilon'_{yy} & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon'_{zz} \end{pmatrix}$$

再将上式代入菲涅耳方程

$$\begin{aligned} D &= \frac{\eta^2}{\mu_o c^2} (\mathbf{E} - s(s \cdot \mathbf{E})) \\ &= \epsilon_{eff} \cdot \mathbf{E} \end{aligned}$$

得

$$\begin{pmatrix} \epsilon'_{xx} & 2\chi_{xyx}^{(2)} E_z(0) & 0 \\ 2\chi_{xyx}^{(2)} E_z(0) & \epsilon'_{yy} & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon'_{zz} + s s \eta^2 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_x(\omega) \\ E_y(\omega) \\ E_z(\omega) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \eta^2 & 0 & 0 \\ 0 & \eta^2 & 0 \\ 0 & 0 & \eta^2 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_x(\omega) \\ E_y(\omega) \\ E_z(\omega) \end{pmatrix} \quad (5.3-25)$$

对于 $E_x(\omega)$ 分量的方程为

$$(\epsilon'_{zz} + s.s.\eta^2)E_z(\omega) = \eta^2 E_z(\omega).$$

这要求 $E_z(\omega) = 0$, 即说明沿 z 方向传播的波是横波。(5.3-25)式有解的条件是 \mathbf{E} 的系数行列式等于零, 即

$$\begin{vmatrix} \epsilon'_{xx} - \eta^2 & 2\chi_{xy}^{(2)} E_z(0) \\ 2\gamma_{yz}^{(2)} E_z(0) & \epsilon'_{xx} - \eta^2 \end{vmatrix} = 0.$$

由此可得

$$\left. \begin{aligned} \eta_1^2 &= \epsilon'_{xx} - 2\chi_{xy}^{(2)} E_z(0), \\ \eta_2^2 &= \epsilon'_{xx} + 2\gamma_{yz}^{(2)} E_z(0), \end{aligned} \right\} \quad (5.3-26)$$

或

$$\left. \begin{aligned} \eta_1 &= \eta_0 \left(1 - \frac{\chi_{xy}^{(2)} E_z(0)}{\eta_0^2} \right), \\ \eta_2 &= \eta_0 \left(1 + \frac{\gamma_{yz}^{(2)} E_z(0)}{\eta_0^2} \right). \end{aligned} \right\} \quad (5.3-27)$$

这里所求得的折射率 η_1 和 η_2 对应于方法(·)中的 η_{1e} 和 η_{1o} , 即

$$\eta_1 = \eta_0 - \frac{\chi_{xy}^{(2)} E_z(0)}{\eta_0} = \eta_0 + \frac{\eta_0^3}{2} \gamma_{yz} E_z(0) = \eta_{1e},$$

$$\eta_2 = \eta_0 + \frac{\gamma_{yz}^{(2)} E_z(0)}{\eta_0} = \eta_0 - \frac{\eta_0^3}{2} \chi_{xy} E_z(0) = \eta_{1o}.$$

这里利用了(5.3-13)式

$$\gamma_{xyz} = -\frac{2\chi_{xy}^{(2)}}{\epsilon_{xx}\epsilon_{yy}} \implies \gamma_{yz} = -\frac{2\chi_{xy}^{(2)}}{\eta_0^4}.$$

现将本征值 η_1 和 η_2 分别代入本征值方程 (5.3-25) 式, 便可求得相应的本征矢为

$$\mathbf{E}_1 = E_0 \begin{bmatrix} 1 \\ -1 \end{bmatrix}, \quad (5.3-28a)$$

$$\mathbf{E}_2 = E_0 \begin{bmatrix} 1 \\ 1 \end{bmatrix}. \quad (5.3-28b)$$

这表示沿 z 轴 (光轴) 方向传播的两个偏振方向不同的波有不同的折射率 ($E_z(0) = 0$ 时, 在光轴方向传播的两个偏振方向不同的光波的折射率应相等, 都为 η_0)。由此可得, 沿 $\sqrt{2}m$ 晶体的 z 轴方向加上外电场 $E_z(0)$ 后, 使得沿 z 轴方向传播的波在经过距离 L 后产生相对相移

$$\varphi = \frac{2\pi L \delta\eta}{\lambda} = \frac{4\pi L \chi_{xy}^{(2)} E_z(0)}{\lambda \eta_0}. \quad (5.3-29)$$

例2 $\sqrt{3}m$ 类晶体的电光效应 (横向运用)。

$\sqrt{3}m$ 类晶体属于立方晶体系。假定恒定电场的方向在 z 方向, 而传播的波在 xy 平面内沿若 x 、 y 轴的对角方向传播。属于该类晶体的有 CuCl , ZnS , GaAs , ZnTe 等, 它们的二阶非线性电极化率张量的形式为

$$\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & XYZ & XYZ & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & XYZ & XYZ & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & XYZ & XYZ \end{pmatrix}. \quad (5.3-30)$$

这里的二阶非线性电极化率张量元素有如下的对称性:

$$\chi_{xyz}^{(2)} = \chi_{zyx}^{(2)} = \chi_{xzy}^{(2)} = \chi_{zxy}^{(2)} = \chi_{yzz}^{(2)} = \chi_{yyz}^{(2)}.$$

因为按假定

$$s_x = |s| \cos 45^\circ = \frac{\sqrt{2}}{2},$$

$$s_y = |s| \sin 45^\circ = \frac{\sqrt{2}}{2}.$$

这里 s 表示沿波传播方向的单位矢量。又按假定 $E_x(0) = E_y(0) = 0$, $E_z(0) \neq 0$, 所以有效介电张量为

$$\epsilon'_{eff} = \begin{pmatrix} \epsilon' & 2\chi_{xyz}^{(2)}E_z(0) & 0 \\ 2\chi_{xyz}^{(2)}E_z(0) & \epsilon' & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon' \end{pmatrix}.$$

注意式中各量都是相对的。这样由菲涅耳方程可得

$$\begin{pmatrix} \epsilon' & 2\chi_{xyz}^{(2)}E_z(0) & 0 \\ 2\chi_{xyz}^{(2)}E_z(0) & \epsilon' & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon' \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_x(\omega) \\ E_y(\omega) \\ E_z(\omega) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \eta^2 & 0 & 0 \\ 0 & \eta^2 & 0 \\ 0 & 0 & \eta^2 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_x(\omega) \\ E_y(\omega) \\ E_z(\omega) \end{pmatrix} - \begin{pmatrix} s_x^2\eta^2 & s_x s_y \eta^2 & 0 \\ s_y s_x \eta^2 & s_y^2 \eta^2 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_x(\omega) \\ E_y(\omega) \\ E_z(\omega) \end{pmatrix}. \quad (5.3-31)$$

利用求解本征方程的标准方法, 由(5.3-31)式可得光波传播模的本征值分别为

$$\eta_1^2 = \epsilon', \quad (5.3-32a)$$

$$\eta_2^2 = \epsilon' - 2\chi_{xyz}E_z(0). \quad (5.3-32b)$$

相应的本征矢为

$$\mathbf{E}_1 = \mathbf{E}_0 \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ 1 \end{pmatrix}, \quad (5.3-33a)$$

$$\mathbf{E}_2 = \mathbf{E}_0 \begin{pmatrix} -1 \\ -1 \\ 0 \end{pmatrix} \quad \text{或 } E_x = E_y. \quad (5.3-33b)$$

这表示 \mathbf{E}_1 沿着外加恒定电场的方向, 而且不受外场的影响; \mathbf{E}_2 在 xy 平面内, 并且与波的传播方向 s 和外加恒定电场的方向相垂直, 它受到外加电场的影响。 \mathbf{E}_1 和 \mathbf{E}_2 与光波的传播方向和外加电场方向之间的相对几何关系如图5-4所示。

如果外加电场在 $\langle 111 \rangle$ 方向, 其大小为

$$E = \frac{E_0}{\sqrt{3}}(\mathbf{e}_1 + \mathbf{e}_2 + \mathbf{e}_3). \quad (5.3-34)$$

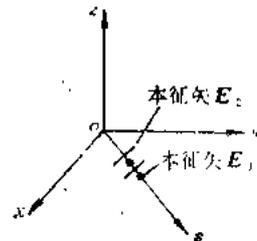


图5-4 43m类晶体横向运用时的传播模示意图

式中 e_1 、 e_2 、 e_3 是沿立方体边缘的单位矢量。利用折射率椭球的方法,可求得新的主轴折射率分别为

$$\eta_{x'} = \eta_{y'} = \eta_o + \frac{\eta_o^3 \gamma_{41} E}{2\sqrt{3}}, \quad (5.3-35a)$$

$$\eta_{z'} = \eta_o - \frac{\eta_o^3 \gamma_{41} E}{\sqrt{3}}. \quad (5.3-35b)$$

这表示 $\bar{4}3m$ 类晶体在上述方向即 $\langle 111 \rangle$ 方向加一恒定电场后,其性质变成具有单轴晶体的性质,其折射率椭球是绕 z' 轴(即 $\langle 111 \rangle$ 方向)的一个旋转椭球。

四、光整流效应

所谓光整流效应,就是一个光波电场由于二次非线性电极化的非线性作用而产生的一个直流分量 P_o 的现象。对照我们已讨论过的线性电光效应,就不难发现光整流效应实际上是一种反电光效应。1962年阿姆斯特朗(Armstrong)等人在理论上预见到这一效应,同年巴斯(Bass)等人首先在实验上观察到这一现象。它们使用KDP和KD*P晶体,在垂直晶体光轴的晶体表面上安装电极,用Q开关红宝石激光束照射,结果在电极两端测量出大约几百微伏的直流电压。

现考虑用一个高度理想的特殊情况来说明这个现象。取一个平行板电容器,其中充满KDP晶体,并令 z 轴(光轴)垂直于电容器板,又假定频率为 ω 的光波在 xy 平面内传播。为使问题简化起见,不考虑衍射效应,又认为光波完全充满这一块与电容器板不接触的非线性介质内,同时还忽略非线性效应对光波传播的影响。

现今光波电场的空间变化部分为

$$E = E_o \alpha \exp\left(i \frac{\omega}{c} \eta s \cdot r\right), \quad (5.4-1)$$

式中, E_o 为波的振幅; α 为波的偏振方向的单位矢量; η 为折射率; s 为波的传播方向的单位矢量。二次非线性效应产生的直流分量为

$$\begin{aligned} P_o &= 2\epsilon_o \chi^{(2)}(\omega, -\omega) : EE^* \\ &= 2\epsilon_o |E_o|^2 \chi^{(2)}(\omega, -\omega) : \alpha\alpha. \end{aligned} \quad (5.4-2)$$

因为按假定 s 在 xy 平面内,因而当 α 垂直于 s 和光轴 z 所组成的平面时, α 在 xy 平面内,是平常光,有 $a_x \neq 0$, $a_y \neq 0$, $a_z = 0$ 。对非常光来说, $a_x = a_y = 0$, $a_z \neq 0$ 。按表3-2可知KDP晶体的 $\chi^{(2)}$ 只有 $\chi_{zyz}^{(2)}$ ($\omega, -\omega$)中三个指标都不相同的元素才不为零。如对平常光和非常光分别按(5.4-2)式展开,不难得到不论是平常光还是非常光 P_{ox} 和 P_{oy} 皆为零,但对 P_{oz} 两者不相同,对非常光 P_{oz} 也为零,而对平常光来说,

$$\begin{aligned} P_{oz} &= 2\epsilon_o |E_o|^2 [\chi_{zyz}^{(2)}(\omega, -\omega) a_x a_y + \chi_{zyz}^{(2)}(\omega, -\omega) a_y a_x] \\ &= 4\epsilon_o |E_o|^2 \chi_{zyz}^{(2)}(\omega, -\omega) a_x a_y. \end{aligned} \quad (5.4-3)$$

这表示在 z 方向有一个恒定的极化强度分量 P_{oz} 。假定波的传播方向 s 与晶轴 x 之间的夹角为 θ ,则有

$$a_x = -\sin\theta, \quad a_y = \cos\theta.$$

代入(5.4-3)式便得

$$P_{0z} = -2\epsilon_0 |E_0|^2 \chi_{\alpha\beta}^{(2)}(\omega, -\omega) \sin 2\theta. \quad (5.4-4)$$

由此可见,对平常光而言,在被光波所占有的区域内,有一个恒定的极化强度 P_{0z} ,其方向与平常光的偏振方向相垂直,而在该区域的外部,不存在恒定的极化强度。

需要指出的是,由于电极化率张量具有完全对易对称性和时间反演对称性,即有

$$\chi_{\mu\alpha}^{(2)}(\omega, -\omega) = \chi_{\beta\alpha}^{(2)}(\omega, 0) = \chi_{\alpha\beta}^{(2)}(-\omega, 0) = \chi_{\beta\alpha}^{(2)}(-\omega, 0).$$

且由本章三知道,电极化率张量 $\chi^{(2)}(\omega, 0)$ 是描述电光效应的,它的元素可与电光张量元素相联系,所以在本节所出现的电极化率张量 $\chi^{(2)}(\omega, -\omega)$ 的元素也可以用电光张量元素来表示。

人们已经注意到^[4],光整流效应以它固有的高速响应($\sim 10^{-13}$ s)特性,可望在高速光探测和短电脉冲产生方面获得某些应用。

1968年,布里恩札(Brienza)等人用重复频率为275MHz的钽玻璃锁模激光脉冲和LiNbO₃、KDP晶体进行了微微秒(10^{-12} s)脉冲的光整流实验,他们用光谱分析仪在275MHz的许多高次谐波(直到大约9GHz)频率上都观测到了整流信号。

1971年,莫利斯(Morris)和沈(Shen)建议用微微秒脉冲光整流来产生毫米波和远红外波,并指出了为增强某一频率分量而应当采用的相位匹配方法。同年,杨格(Yang)等人用这个方法获得了频率直到400GHz的相位匹配辐射。

需要指出的是,光整流效应的物理机制并不只是反电光效应。1972年,奥斯頓(Auston)等人证实:在热释电晶体中,能产生整流电极化强度的物理机制,除了反电光效应之外,还有热释电效应和激发态偶极子效应。这两个效应所产生的整流电极化强度 P 可以用下面的方程式描述,即

$$\frac{\partial P}{\partial t} + \frac{1}{\tau} P = \frac{2\Delta\mu}{\hbar\omega} I(t) + \frac{\alpha}{C_v} \left(\frac{\partial P_s}{\partial T} \right) (1-\eta) \int_{-\infty}^t I(t') dt'.$$

式中, τ 是上能级弛豫时间; α 是线性吸收常数; C_v 是比热; $\left(\frac{\partial P_s}{\partial T}\right)$ 是热电系数; $I(t)$ 是光强; $\Delta\mu$ 是激发态和基态的偶极矩差; η 是辐射量子效率。方程式右边第一项代表激发态偶极子效应,第二项代表热释电效应。在掺铜LiTaO₃晶体中,通过这两个效应来测量微微秒脉冲的光整流信号,发现这两个效应比同一材料中的反电光效应要强的多。直接测量整流电压,得到脉冲宽度大约8ps(由光脉冲宽度决定)、幅度大约300V的输出。后来有人利用这种热释电效应制成了响应速度大约500ps的快速光探测器。

五、三波耦合,和频与差频的产生

如果频率为 ω_1 和 ω_2 的辐射通过非线性介质,那么在一般情况下介质中产生的电极化具有所有谐波频率 $2\omega_1, 3\omega_1, \dots, 2\omega_2, 3\omega_2, \dots$ 以及和频($\omega_1 + \omega_2$),差频($\omega_1 - \omega_2$)等等分量。因而由电极化所产生的辐射中便有上述各种频率的分量。但是,如果我们想使其中某一频率分量的辐射特别强,而不发射其它频率分量的辐射,正实验上,只要尽可能满足相应分量的相位匹配条件,便能达到目的。例如,为使和频的辐射特别强,则要求满足相

位匹配条件 $k_1 + k_2 - k_3 = 0$ 。如果要使 ω_1 的二次谐波的产生特别强, 则要求满足 相位匹配条件 $2k_1 - k_2 = 0$ 。

相位匹配条件可以十分普遍地用来把我们所需要的过程从所有可能产生的过程中分离出来。如果满足条件 $k_1 + k_2 - k_3 = 0$, 那么我们只要考虑 ω_1 、 ω_2 和 ω_3 这三个频率的波的耦合即可, 而完全可以不考虑这三个频率的波与所有其它频率的波的任何耦合。这三个频率的波在非线性介质中的耦合, 使得其中任何一对波一起感应一个极化, 这个极化的振荡频率就是第三束波的频率。

1. 三波耦合的耦合方程组

由二阶非线性电极化强度的一般表示式 (1.3-15) 可得

$$\mathbf{P}^{(2)}(\omega_1) = 2\varepsilon_0 \chi^{(2)}(\omega_3, -\omega_2) : \mathbf{E}(\omega_3, z) \mathbf{E}^*(\omega_2, z), \quad (5.5-1)$$

$$\mathbf{P}^{(2)}(\omega_2) = 2\varepsilon_0 \chi^{(2)}(\omega_3, -\omega_1) : \mathbf{E}(\omega_3, z) \mathbf{E}^*(\omega_1, z), \quad (5.5-2)$$

$$\mathbf{P}^{(2)}(\omega_3) = 2\varepsilon_0 \chi^{(2)}(\omega_1, \omega_2) : \mathbf{E}(\omega_1, z) \mathbf{E}(\omega_2, z). \quad (5.5-3)$$

根据(4.4-25), 式三个频率 ω_1 、 ω_2 、 ω_3 的场的标量复振幅 $E(\omega_1, z)$ 、 $E(\omega_2, z)$ 和 $E(\omega_3, z)$ 的微分方程分别为

$$\frac{dE(\omega_1, z)}{dz} = \frac{i\omega_1^2 \mu_0}{2k_1} \boldsymbol{\alpha}(\omega_1) \cdot \mathbf{P}'_{NL}(\omega_1, z) \exp(-ik_1 z), \quad (5.5-4)$$

$$\frac{dE(\omega_2, z)}{dz} = \frac{i\omega_2^2 \mu_0}{2k_2} \boldsymbol{\alpha}(\omega_2) \cdot \mathbf{P}'_{NL}(\omega_2, z) \exp(-ik_2 z), \quad (5.5-5)$$

$$\frac{dE(\omega_3, z)}{dz} = \frac{i\omega_3^2 \mu_0}{2k_3} \boldsymbol{\alpha}(\omega_3) \cdot \mathbf{P}'_{NL}(\omega_3, z) \exp(-ik_3 z). \quad (5.5-6)$$

而式中的 $\mathbf{P}'_{NL}(\omega, z)$ 为

$$\begin{aligned} \mathbf{P}'_{NL}(\omega_1, z) &= 2\varepsilon_0 \chi^{(2)}(\omega_3, -\omega_2) : \boldsymbol{\alpha}(\omega_3) \boldsymbol{\alpha}(\omega_2) \\ &\quad \times E(\omega_3, z) E^*(\omega_2, z) \exp(i(k_3 - k_2)z), \end{aligned} \quad (5.5-7)$$

$$\begin{aligned} \mathbf{P}'_{NL}(\omega_2, z) &= 2\varepsilon_0 \chi^{(2)}(\omega_3, -\omega_1) : \boldsymbol{\alpha}(\omega_3) \boldsymbol{\alpha}(\omega_1) \\ &\quad \times E(\omega_3, z) E^*(\omega_1, z) \exp(i(k_3 - k_1)z), \end{aligned} \quad (5.5-8)$$

$$\begin{aligned} \mathbf{P}'_{NL}(\omega_3, z) &= 2\varepsilon_0 \chi^{(2)}(\omega_1, \omega_2) : \boldsymbol{\alpha}(\omega_1) \boldsymbol{\alpha}(\omega_2) \\ &\quad \times E(\omega_1, z) E(\omega_2, z) \exp(i(k_1 + k_2)z). \end{aligned} \quad (5.5-9)$$

将(5.5-7)~(5.5-9)式分别代入(5.5-4)~(5.5-6)式并令

$$\Delta k = k_1 + k_2 - k_3, \quad (5.5-10)$$

则有

$$\begin{aligned} \frac{dE(\omega_1, z)}{dz} &= \frac{i\omega_1^2}{k_1 c^2} [\chi^{(2)}(\omega_3, -\omega_2) : \boldsymbol{\alpha}(\omega_1) \boldsymbol{\alpha}(\omega_2) \boldsymbol{\alpha}(\omega_3)] \\ &\quad \times E(\omega_3, z) E^*(\omega_2, z) \exp(-i\Delta k z), \end{aligned} \quad (5.5-11)$$

$$\begin{aligned} \frac{dE(\omega_2, z)}{dz} &= \frac{i\omega_2^2}{k_2 c^2} [\chi^{(2)}(\omega_3, -\omega_1) : \boldsymbol{\alpha}(\omega_2) \boldsymbol{\alpha}(\omega_3) \boldsymbol{\alpha}(\omega_1)] \\ &\quad \times E(\omega_3, z) E^*(\omega_1, z) \exp(-ik\Delta z), \end{aligned} \quad (5.5-12)$$

$$\frac{dE(\omega_3, z)}{dz} = \frac{i\omega_3}{k_3 c^2} [\chi^{(2)}(\omega_1, \omega_2) : \mathbf{a}(\omega_3) \mathbf{a}(\omega_1) \mathbf{a}(\omega_2)] \times E(\omega_1, z) E(\omega_2, z) \exp(i\Delta kz) \quad (5.5-13)$$

以上三式方括号中点乘的定义为

$$\chi^{(2)} : abc = \sum_{\substack{\alpha, \beta, \gamma \\ \alpha, \beta, \gamma, z}} \chi_{\alpha\beta\gamma}^{(2)} a_\alpha b_\beta c_\gamma \quad (5.5-14)$$

我们知道，当介质与频率为 ω 的辐射之间没有能量交换时，即在介质是无耗的情况下，电极化率张量具有完全对易对称性。因此，如果介质对上述频率 ω_1 、 ω_2 和 ω_3 的辐射都是无耗的，即 ω_1 、 ω_2 和 ω_3 远离共振区，那么(5.5-11)~(5.5-13)式中的电极化率张量 $\chi^{(2)}(\omega_3, -\omega_2)$ 、 $\chi^{(2)}(\omega_3, -\omega_1)$ 和 $\chi^{(2)}(\omega_1, \omega_2)$ 都是实数，并考虑到它们的完全对易对称性，不难证明(5.5-11)~(5.5-13)式中的方括号都相等，这样，我们就可以引入一个实数 $\chi_c^{(2)}$ 来表示它们，即

$$\begin{aligned} \chi_c^{(2)} &= \chi^{(2)}(\omega_1, \omega_2) : \mathbf{a}(\omega_3) \mathbf{a}(\omega_1) \mathbf{a}(\omega_2) \\ &= \chi^{(2)}(\omega_3, -\omega_2) : \mathbf{a}(\omega_1) \mathbf{a}(\omega_3) \mathbf{a}(\omega_2) \\ &= \chi^{(2)}(\omega_3, -\omega_1) : \mathbf{a}(\omega_2) \mathbf{a}(\omega_3) \mathbf{a}(\omega_1) \end{aligned} \quad (5.5-15)$$

它给出了三束波之间耦合强度的一个量度。这样方程(5.5-11)~(5.5-13)式可以更进一步简化为

$$\frac{dE(\omega_1, z)}{dz} = \frac{i\omega_1^2}{k_1 c^2} \chi_c^{(2)} E(\omega_3, z) E^*(\omega_2, z) \exp(-i\Delta kz) \quad (5.5-16)$$

$$\frac{dE(\omega_2, z)}{dz} = \frac{i\omega_2^2}{k_2 c^2} \chi_c^{(2)} E(\omega_3, z) E^*(\omega_1, z) \exp(-i\Delta kz) \quad (5.5-17)$$

$$\frac{dE(\omega_3, z)}{dz} = \frac{i\omega_3^2}{k_3 c^2} \chi_c^{(2)} E(\omega_1, z) E(\omega_2, z) \exp(i\Delta kz) \quad (5.5-18)$$

(5.5-16)~(5.5-18)式就是我们所要求的三波耦合方程组。

2. 曼利-罗夫系

现将(5.5-16)式乘 $\frac{k_1}{\omega_1} E^*(\omega_1, z)$ ，(5.5-17)式乘 $\frac{k_2}{\omega_2} E^*(\omega_2, z)$ ，(5.5-18)式的共轭乘

$\frac{k_3}{\omega_3} E(\omega_3, z)$ ，再将三式相加，有

$$\begin{aligned} & \frac{k_1}{\omega_1} E^*(\omega_1, z) \frac{dE(\omega_1, z)}{dz} + \frac{k_2}{\omega_2} E^*(\omega_2, z) \frac{dE(\omega_2, z)}{dz} \\ & + \frac{k_3}{\omega_3} E(\omega_3, z) \frac{dE^*(\omega_3, z)}{dz} = 0 \end{aligned} \quad (5.5-19)$$

得到上式时已利用了关系 $\omega_1 + \omega_2 = \omega_3$ 。现再取(5.5-19)式的复数共轭并与(5.5-19)式相加，有

$$\frac{k_1}{\omega_1} \frac{d}{dz} |E(\omega_1, z)|^2 + \frac{k_2}{\omega_2} \frac{d}{dz} |E(\omega_2, z)|^2 + \frac{k_3}{\omega_3} \frac{d}{dz} |E(\omega_3, z)|^2 = 0$$

积分上式, 得

$$\frac{k_1}{\omega_1} |E(\omega_1, z)|^2 + \frac{k_2}{\omega_2} |E(\omega_2, z)|^2 + \frac{k_3}{\omega_3} |E(\omega_3, z)|^2 = \text{常数}, \quad (5.5-20)$$

因为式中 $\frac{k}{\omega} |E(\omega, z)|^2$ 与辐射场单位时间通过垂直于波的传播方向单位面积的能量即能流密度 S_0 有如下关系:

$$S_0 = \frac{1}{2} \epsilon |2E(\omega)|^2 v = \frac{2}{\mu_0} \frac{k}{\omega} |E(\omega)|^2, \quad (5.5-21)$$

因而将 (5.5-21) 式和 (5.5-20) 结合起来可得

$$S_{\omega_1} + S_{\omega_2} + S_{\omega_3} = \text{常数}. \quad (5.5-22)$$

这表示由三束耦合的波所携带的总的能量通量在介质内处处相同, 说明在辐射场与介质之间没有能量交换, 也是我们上面所假定的这三束耦合的波的频率远离共振区, 电极化率张量具有完全对易对称性的必然结果。因此, 我们在这里再次看到电极化率张量为实数是与介质被认为是无耗相联系的。

现在, 我们还可以由 (5.5-16)~(5.5-18) 式得到表示波的能量其它关系。例如, 从 (5.5-16) 式和 (5.5-17) 式消去 $\chi^{(2)}$ 后, 可给出

$$\frac{k_1}{\omega_1^2} E^*(\omega_1, z) \frac{dE(\omega_1, z)}{dz} - \frac{k_2}{\omega_2^2} E^*(\omega_2, z) \frac{dE(\omega_2, z)}{dz} = 0, \quad (5.5-23)$$

取上式的复数共轭并与之相加, 积分后得到

$$\frac{1}{\omega_1^2} k_1 |E(\omega_1, z)|^2 - \frac{1}{\omega_2^2} k_2 |E(\omega_2, z)|^2 = \text{常数}. \quad (5.5-24)$$

利用 (5.5-21) 式, 上式变为

$$\frac{1}{\omega_1} S_{\omega_1} - \frac{1}{\omega_2} S_{\omega_2} = \text{常数}. \quad (5.5-25)$$

同样可以得到另外两个方程为

$$\frac{1}{\omega_1} S_{\omega_1} + \frac{1}{\omega_3} S_{\omega_3} = \text{常数}, \quad (5.5-26)$$

$$\frac{1}{\omega_2} S_{\omega_2} + \frac{1}{\omega_3} S_{\omega_3} = \text{常数}. \quad (5.5-27)$$

(5.5-25)~(5.5-27) 三式中任何一对方程就确定了第三个方程。同时, 所有三个方程一起便可得到能量守恒条件的 (5.5-22) 式。

由 (5.5-25)~(5.5-27) 式所组成的关系式称为曼利-罗关系。这一关系还可以利用光子通量表示出来, 因为 $S_0/\hbar\omega$ 表示场中频率为 ω 的光子平均通量 N_0 , 所以 (5.5-25)~(5.5-27) 式又可表示为

$$N_{\omega_1} - N_{\omega_2} = \text{常数}, \quad (5.5-28)$$

$$N_{\omega_1} + N_{\omega_3} = \text{常数}, \quad (5.5-29)$$

$$N_{\omega_2} + N_{\omega_3} = \text{常数}. \quad (5.5-30)$$

同样, 能量守恒条件 (5.5-22) 式变为

$$\omega_1 N_{\omega_1} + \omega_2 N_{\omega_2} + \omega_3 N_{\omega_3} = \text{常数}. \quad (5.5-31)$$

现在, 上面这些关系的物理解释异常简单, 在概念上十分明确。因为辐射场与介质之间没有任何能量交换, 频率为 ω_1 和 ω_2 的光子只能一起产生或一起消失, 与此同时, 就有一个频率为 ω_3 的光子消失或产生。

3. 和频产生

上面给出的方程组(5.5-16)~(5.5-18)式是讨论三束波($\omega_1, \omega_2, \omega_3 = \omega_1 + \omega_2$)在非线形介质中相互耦合的基本方程, 介质在这些频率上是无耗的。一般求解这些方程时, 要用到任意初始位相和振幅的雅可比椭圆函数, 计算过程比较复杂。故在这里我们不去讨论求解这些方程一般解的详细过程, 而是针对诸如和频、差频以及二次谐波产生这样一些物理意义十分明确的物理过程, 对方程组(5.5-16)~(5.5-18)式进行近似求解。然后, 再结合方程组的一般解的结果进行详细讨论。现在我们首先讨论和频产生的情况。

假定在辐射场中开始没有频率为 ω_3 的辐射波, 现在讨论由分量 ω_1 和 ω_2 的混合而产生和频 $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ 的情况。又假定我们所讨论的条件是“小信号近似”, 即认为在波的混合过程中, 频率为 ω_1 和 ω_2 的辐射场强度的改变是足够小的, 以致可以认为它们的强度在波的耦合过程中是不变化的, 也就是把(5.5-16)~(5.5-18)式中的 $E(\omega_1, z)$ 和 $E(\omega_2, z)$ 看作常数。所以在满足相位匹配条件下, 即 $\Delta k \approx 0$ 时, 方程(5.5-18)式的解为

$$E(\omega_3, z) = \frac{i\omega_2^2}{k_3 c^3} \chi_c^{(3)} E(\omega_1) E(\omega_2) z, \quad (5.5-32)$$

这是在“小信号近似”下和相位匹配这种特殊条件下所得到的和频场 $E(\omega_3, z)$ 的变化规律。

现设频率为 ω_1 的场的表示式为

$$\begin{aligned} \mathbf{E} &= \mathbf{a}(\omega_1) \mathcal{E}(\omega_1, z) \cos(\omega_1 t - k_1 z + \varphi_{\omega_1}) \\ &= \mathbf{a}(\omega_1) \left\{ \left[\frac{1}{2} \mathcal{E}(\omega_1, z) \exp(ik_1 z) \exp(-i\varphi_{\omega_1}) \right] \exp(-i\omega_1 t) \right. \\ &\quad \left. + \left[\frac{1}{2} \mathcal{E}(\omega_1, z) \exp(-ik_1 z) \exp(i\varphi_{\omega_1}) \right] \exp(i\omega_1 t) \right\}. \end{aligned}$$

与以前常用的表示式

$$\mathbf{E} = \mathbf{E}(\omega_1, z) \exp(-i\omega_1 t) + \mathbf{E}^*(\omega_1, z) \exp(i\omega_1 t)$$

相比较, 有

$$\mathbf{E}(\omega_1, z) = \frac{1}{2} \mathcal{E}(\omega_1, z) \exp(ik_1 z) \exp(-i\varphi_{\omega_1}) \mathbf{a}(\omega_1).$$

再与(4.4-9)式相比较, 则有

$$E(\omega_1, z) = \frac{1}{2} \mathcal{E}(\omega_1, z) \exp(-i\varphi_{\omega_1}). \quad (5.5-33)$$

式中 $\mathcal{E}(\omega_1, z)$ 和 φ_{ω_1} 分别是频率为 ω_1 的场分量的实数振幅和相位常数。这样, 对 ω_1, ω_2 和 ω_3 的场分量分别有

$$\begin{aligned}
 E(\omega_1, z) &= \frac{1}{2} \mathcal{E}(\omega_1, z) \exp(-i\varphi_{\omega_1}), \\
 E(\omega_2, z) &= \frac{1}{2} \mathcal{E}(\omega_2, z) \exp(-i\varphi_{\omega_2}), \\
 E(\omega_3, z) &= \frac{1}{2} \mathcal{E}(\omega_3, z) \exp(-i\varphi_{\omega_3}).
 \end{aligned}
 \tag{5.5-34}$$

将(5.5-34)式代入(5.5-32)式, 给出

$$\mathcal{E}(\omega_3, z) = \frac{\omega_3^2}{2k_3 c^2} |\chi_c^{(2)}| \mathcal{E}(\omega_1) \mathcal{E}(\omega_2) \left\{ \exp \left[i(\varphi_{\omega_3} - \varphi_{\omega_1} - \varphi_{\omega_2} \pm \frac{\pi}{2}) \right] \right\} z.
 \tag{5.5-35}$$

式中 $\frac{\pi}{2}$ 的“±”号与 $\chi_c^{(2)}$ 的相同。因为(5.5-35)式中除指数项外, 其它各参量都是实数, 因而要求指数项的虚部必须为零, 即要求

$$\varphi_{\omega_3} - \varphi_{\omega_1} - \varphi_{\omega_2} \pm \frac{\pi}{2} = 0.
 \tag{5.5-36}$$

(5.5-35)式和(5.5-36)式表明, 频率为 ω_3 的和频辐射场开始随 z 线性增加, 并且具有相位 φ_{ω_3} , 而且 φ_{ω_3} 和 φ_{ω_1} , φ_{ω_2} 之间的关系由(5.5-36)式确定。当然, 和频 ω_3 的场强并不能随 z 的增大而无限制地增加, 因为当频率为 ω_1 和 ω_2 的两束辐射中的较弱一束光所携带的功率完全被抽空而转变为 ω_3 的功率时, 便达到饱和。

现在我们对(5.5-16)~(5.5-18)式的一般解作简要的讨论。一般解为^[5]

$$\mathcal{E}(\omega_3, z) = \left(\frac{k_2 \omega_3^2}{k_3 \omega_2^2} \right)^{1/2} \mathcal{E}(\omega_2, 0) \operatorname{sn}(u, k).
 \tag{5.5-37}$$

式中

$$u = \frac{1}{2c^2} \left(\frac{\omega_2^2 \omega_3^2}{k_2 k_3} \right)^{1/2} |\chi_c^{(2)}| \mathcal{E}(\omega_1, 0) z,
 \tag{5.5-38}$$

$$k = \left(\frac{\omega_1^2 k_2}{\omega_2^2 k_1} \right)^{1/2} \frac{\mathcal{E}(\omega_2, 0)}{\mathcal{E}(\omega_1, 0)}.
 \tag{5.5-39}$$

在这里, 频率为 ω_2 的分量已表示原来存在的两个分量 ω_1 和 ω_2 中强度较弱的。 $\operatorname{sn}(u, k)$ 是以 u 和 k 为参变量的雅可比椭圆函数, 这个函数是由第一类椭圆积分的逆变换得来的。已知第一类椭圆积分为

$$F(k, \varphi) = \int_0^\varphi \frac{d\varphi'}{\sqrt{1 - k^2 \sin^2 \varphi'}} = u.$$

该椭圆积分的逆变换 $\sin \varphi$ 是 u 和 k 的函数, 用 $\operatorname{sn}(u, k)$ 表示, 这就是雅可比椭圆函数。所以, 椭圆函数 $\operatorname{sn}(u, k)$ 实际上就是第一类椭圆积分的逆变换, 即有

$$\operatorname{sn}(u, k) = \sin \varphi.
 \tag{5.5-40}$$

因为 $\sin \varphi$ 是周期函数, 所以 $\operatorname{sn}(u, k)$ 也是周期函数, 而且最大值等于1。

由(5.5-37)式可以看到, $\mathcal{E}(\omega_3, z)$ 的最大值是由强度较弱的分量 ω_2 的强度(见图

于 $\mathcal{E}(\omega_2, 0)$ 所确定。此外,由于当 u 很小时, $\text{sn}[u, k] \approx u$,所以当 z 很小时,(5.5-37)式便变为

$$\begin{aligned} \mathcal{E}(\omega_3, z) &= \left(\frac{\omega_1^2 k_2}{\omega_2^2 k_3} \right)^{1/2} \mathcal{E}(\omega_1, 0) \frac{1}{2c^2} \left(\frac{\omega_2^2 \omega_3^2}{k_2 k_3} \right)^{1/2} |\chi_c^{(2)}| \mathcal{E}(\omega_1, 0) z \\ &= \frac{\omega_3^2}{2c^2 k_3} |\chi_c^{(2)}| \mathcal{E}(\omega_1, 0) \mathcal{E}(\omega_2, 0) z. \end{aligned} \quad (5.5-41)$$

这表明在 z 很小的情况下,一般解(5.5-37)便变为上述“小信号近似”下的特殊情况所得到的结果(5.5-35)式和(5.5-36)式。

关于一般解(5.5-37)式还可以用光子通量来表示。因为频率为 ω 的光场的平均光子通量 N_ω 与 $\frac{k}{\omega} \mathcal{E}^2(\omega)$ 成正比,所以(5.5-37)式可以改写为

$$N_{\omega_3}(z) = N_{\omega_2}(0) \text{sn}^2 \left[\frac{z}{l_u}, \frac{N_{\omega_2}(0)}{N_{\omega_1}(0)} \right] \quad (5.5-42)$$

式中

$$l_u = \left[\frac{1}{2c^2} \left(\frac{\omega_2^2 \omega_3^2}{k_2 k_3} \right)^{1/2} |\chi_c^{(2)}| \mathcal{E}(\omega_1, 0) \right]^{-1}, \quad (5.5-43)$$

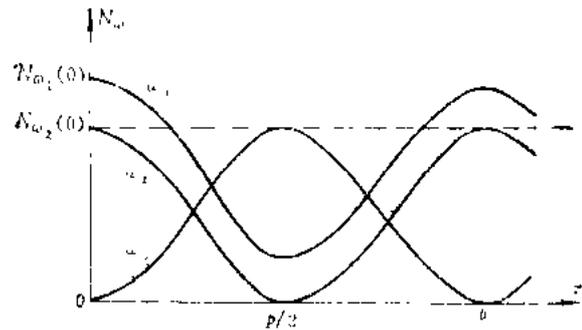


图 5-5 在相位匹配条件下,频率为 ω_1 及 ω_2 的波与和频 ω_3 的波的平均光子通量 N_ω 随距离 z 的变化规律

是表征产生混合过程速率的一个特征长度。

N_{ω_2} 、 N_{ω_1} 和 N_{ω_3} 随 z 的变化规律如图 5-5 所示,图中 p 表示光子通量 N_ω 随 z 的变化周期。可以证明,当 $[N_{\omega_2}(0)/N_{\omega_1}(0)] \ll 1$ 时,光子通量 N_ω 的振荡周期为 $p/2 = l_u \pi$,随着比值 $N_{\omega_2}(0)/N_{\omega_1}(0)$ 的增大,振荡周期 p 也随之增大;在 $N_{\omega_2}(0)/N_{\omega_1}(0) = 1$ 的极限情况下, p 变为无穷大。这时函数 $\text{sn}[u, k] = \text{th}(u)$,不再为周期函数,把它代入(5.5-37)式后,有

$$\mathcal{E}(\omega_3, z) = \left(\frac{k_2 \omega_3^2}{k_3 \omega_2^2} \right)^{1/2} \mathcal{E}(\omega_2, 0) \text{th} \left(\frac{z}{l_u} \right). \quad (5.5-44)$$

最后,由(5.5-44)式可见,在 z 很小的情况下,利用 $\text{sn}[u, k] = u$,我们有

$$N_{\omega_3} = N_{\omega_2}(0) \left(\frac{z}{l_u} \right)^2. \quad (5.5-45)$$

这就是我们前面所讨论的在“小信号近似”的特殊情况下所给出的解。同时由(5.5-42)式可以看出,所产生的和频 ω_3 的最大光子通量决定于原来存在的两个分量中较弱的一个光子通量 $N_{\omega_2}(0)$ 。

4. 差频产生

在“小信号近似”下,求解(5.5-16)~(5.5-18)式时,对差频的产生与和频的产生这两种情况,方法是相同的。这里的情况是研究由已知频率为 ω_2 和 ω_1 的辐射产生频率为 $\omega_3 = \omega_2 - \omega_1$ 的光波的规律。

在 z 值很小的情况下,可以将 $E(\omega_2, z)$ 和 $E(\omega_1, z)$ 看作常数,这时可直接积分(5.5-17)式,在完全相位匹配的条件下,可得

$$\mathcal{E}(\omega_2, z) = \frac{1}{2} \frac{\omega_2^2}{k_2 c^2} |\chi^{(2)}| \mathcal{E}(\omega_3) \mathcal{E}(\omega_1) z \quad (5.5-16)$$

以及

$$\varphi_{\omega_1} + \varphi_{\omega_2} - \varphi_{\omega_3} \pm \frac{\pi}{2} = 0 \quad (5.5-17)$$

式中 $\pi/2$ 前面的“ \pm ”号与 $\chi^{(2)}$ 的符号相同。(5.5-16)式与和频产生的(5.5-35)式相似,它表明差频波的振幅随 z 线性地增加。也可以象和频产生的情况那样得到曼利-罗关系的(5.5-25)~(5.5-27)式和(5.5-28)~(5.5-30)式。由这些关系式可以看到能够产生差频辐射的最大光子通量是开始时刻、频率为 ω_3 的光子通量 $N_{\omega_3}(0)$ 。也象讨论和频产生的情况那样有

$$N_{\omega_2}(z) = N_{\omega_3}(0) \left(\frac{z}{l_M} \right)^2 \quad (5.5-18)$$

式中 l_M 就是由(5.5-13)式所定义的用来表征混合过程速率的一个特征长度。

N_{ω_2} 的一般解的形式为

$$N_{\omega_2}(z) = \frac{N_{\omega_1}(0)N_{\omega_3}(0)}{N_{\omega_1}(0) + N_{\omega_3}(0)} \cdot f^2 \left[\left(\frac{N_{\omega_1}(0) + N_{\omega_3}(0)}{N_{\omega_1}(0)} \right)^{1/2} \frac{z}{l_M}, \left(\frac{N_{\omega_3}(0)}{N_{\omega_1}(0) + N_{\omega_3}(0)} \right)^{1/2} \right] \quad (5.5-19)$$

式中函数 $f(u, k)$ 是雅可比椭圆函数 $\text{sn}[u, k]$ 和 $\text{dn}[u, k]$ 之比, 即

$$f[u, k] = \frac{\text{sn}[u, k]}{\text{dn}[u, k]}, \quad (5.5-20)$$

而其中

$$\text{dn}[u, k] = \sqrt{1 - k^2 (\text{sn}[u, k])^2}$$

关于 N_{ω_1} 、 N_{ω_2} 和 N_{ω_3} 随 z 的变化规律如图5-6所示。由混合过程的特征长度 l_M 表示(5.5-16)式时, 有

$$\mathcal{E}(\omega_2, z) = \left(\frac{\omega_2^2}{\omega_3^2} \cdot \frac{k_3}{k_2} \right)^{1/2} \mathcal{E}(\omega_3, 0) \frac{z}{l_M} \quad (5.5-21)$$

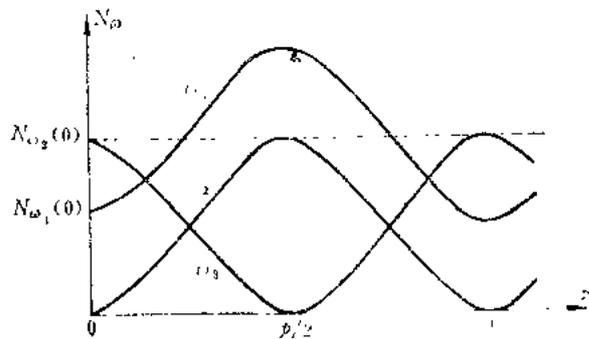


图5-6 在完全相位匹配条件下, 频率为 ω_1 和 ω_3 的波通过非线性介质产生差频为 ω_2 的波, 它们的平均光子通量与通过距离 z 之间的关系

产生差频的现象在产生长波长的红外辐射源方面是很重要的。例如, 用两个温度稍稍不同的红宝石激光器的输出, 在 LiNbO_3 晶体中混合时可以得到波数为 $1 \sim 8 \text{cm}^{-1}$ 的辐射。利用一台红宝石激光器的输出和一台可调谐染料激光器的输出, 在 Ag_2AsS_3 (硫砷银矿)中混合时, 在 $5\mu\text{m}$ 和 $10\mu\text{m}$ 附近可产生可调谐的输出。

六、二次谐波产生和二次谐波的有效非线性光学系数

1. 二次谐波产生

二次谐波的产生是和频产生的特殊情况, 但不能简单地将 $\omega_1 = \omega_2$ 代入上节对和频产生

所得的结果中便认为是本节所要求的结果。因为当 $\omega_1 = \omega_2$ 时, 除由 ω_1 和 ω_2 产生和频外, 还应该考虑 ω_1 和 ω_2 的二次谐波产生的过程。但上节在讨论和频产生的规律时, 并没有考虑 ω_1 和 ω_2 的二次谐波产生的过程。

设 $k_{2\omega}$ 和 k_ω 分别表示频率为 2ω 和 ω 的波的传播常数, 则按(4.4-25)式, 在二次谐波产生过程中的一对耦合方程为

$$\frac{dE(2\omega, z)}{dz} = \frac{2i\omega^3}{k_{2\omega}c^3} \left[\chi^{(2)}(\omega, \omega) : \mathbf{a}(2\omega) \mathbf{a}(\omega) \mathbf{a}(\omega) \right] \times E^2(\omega, z) \exp(i\Delta kz), \quad (5.6-1)$$

$$\frac{dE(\omega, z)}{dz} = \frac{i\omega^3}{k_\omega c^3} \left[\chi^{(2)}(2\omega, -\omega) : \mathbf{a}(\omega) \mathbf{a}(2\omega) \mathbf{a}(\omega) \right] \times E(2\omega, z) E^*(\omega, z) \exp(-i\Delta kz), \quad (5.6-2)$$

式中

$$\Delta k = 2k_\omega - k_{2\omega}, \quad (5.6-3)$$

方括号里点乘的定义见(5.5-14)式。和论证(5.5-15)式相类似, 如果介质在频率 ω 和 2ω 处是无耗的, 那么张量 $\chi^{(2)}(\omega, \omega)$ 是实数, 就有

$$\chi_{\alpha\beta\gamma}^{(2)}(\omega, \omega) = \chi_{\alpha\beta\gamma}^{(2)}(-2\omega, \omega) = \chi_{\alpha\beta\gamma}^{(2)}(2\omega, -\omega).$$

上式最后一个等式已利用了介质是无耗的条件下, 电极化率张量是实数的性质。因此, (5.6-1)式和(5.6-2)式中方括号相等, 并令其等于 $\chi_{2\omega}$, 即有

$$\begin{aligned} & [\chi^{(2)}(\omega, \omega) : \mathbf{a}(2\omega) \mathbf{a}(\omega) \mathbf{a}(\omega)] \\ &= [\chi^{(2)}(2\omega, -\omega) : \mathbf{a}(\omega) \mathbf{a}(2\omega) \mathbf{a}(\omega)] \\ &= \chi_{2\omega}. \end{aligned}$$

这样, 类似(5.5-16)~(5.5-18)式, 我们有

$$\frac{dE(2\omega, z)}{dz} = \frac{2i\omega^3}{k_{2\omega}c^3} \chi_{2\omega} E^2(\omega, z) \exp(i\Delta kz), \quad (5.6-4)$$

$$\frac{dE(\omega, z)}{dz} = \frac{i\omega^3}{k_\omega c^3} \chi_{2\omega} E(2\omega, z) E^*(\omega, z) \exp(-i\Delta kz), \quad (5.6-5)$$

从上述两式消去 $\chi_{2\omega}$, 可以得到类似于(5.5-20)式的关系式

$$\frac{1}{2} k_{2\omega} |E(2\omega, z)|^2 + k_\omega |E(\omega, z)|^2 = \text{常数}, \quad (5.6-6)$$

或用能量通量表示时的关系式

$$S_{2\omega} + S_\omega = \text{常数}. \quad (5.6-7)$$

现在我们来求解(5.6-4)式和(5.6-5)式。这里 $E(\omega, z)$ 已不能被认为是固定不变的, 但假定开始时只有基波, 不存在二次谐波, 即初始条件为

$$E(\omega, z) |_{z=0} \neq 0, \quad (5.6-8a)$$

$$E(2\omega, z) |_{z=0} = 0. \quad (5.6-8b)$$

则由(5.6-6)式有

$$\frac{1}{2} k_{2\omega} |E(2\omega, z)|^2 + k_\omega |E(\omega, z)|^2 = k_\omega |E(\omega, 0)|^2, \quad (5.6-9)$$

因而有

$$|E(\omega, z)|^2 = \frac{k_{2\omega}}{2k_\omega} \left(\frac{2k_\omega}{k_{2\omega}} |E(\omega, 0)|^2 - |E(2\omega, z)|^2 \right). \quad (5.6-10)$$

再利用(5.5-33)式的关系, 并代入(5.6-5)式, 我们给出

$$\begin{aligned} & \frac{1}{2} \frac{d\mathcal{E}^2(2\omega, z)}{dz} \exp(-i\varphi_{2\omega}) \\ &= \frac{2i\omega^3}{k_{2\omega}c^3} \chi_{2\omega} \times \frac{1}{4} \mathcal{E}^2(\omega, z) \exp(-i2\varphi_\omega) \exp(i\Delta k z), \end{aligned} \quad (5.6-11)$$

在相位匹配条件下, 即 $\Delta k = 2k_\omega - k_{2\omega} = 0$ 时, (5.6-10)式和(5.6-11)式变为

$$\mathcal{E}^2(\omega, z) = \mathcal{E}^2(\omega, 0) - \mathcal{E}^2(2\omega, z) \quad (5.6-12)$$

和

$$\begin{aligned} \frac{d\mathcal{E}^2(2\omega, z)}{dz} &= \frac{\omega^3}{k_{2\omega}c^3} |\chi_{2\omega}| [\mathcal{E}^2(\omega, 0) - \mathcal{E}^2(2\omega, z)] \\ &\quad \times \exp\left[i(\varphi_{2\omega} - 2\varphi_\omega \pm \frac{\pi}{2})\right]. \end{aligned} \quad (5.6-13)$$

因为上式除指数项外, 其它各量都是实数, 故必须要求

$$\varphi_{2\omega} - 2\varphi_\omega \pm \frac{\pi}{2} = 0. \quad (5.6-14)$$

这样, (5.6-13)式又变成

$$\frac{d\mathcal{E}^2(2\omega, z)}{dz} = \frac{\omega^3}{k_{2\omega}c^3} |\chi_{2\omega}| [\mathcal{E}^2(\omega, 0) - \mathcal{E}^2(2\omega, z)]. \quad (5.6-15)$$

求解(5.6-15)式时利用积分公式

$$\int \frac{dx}{a^2 - x^2} = \frac{1}{a} \operatorname{th}^{-1}\left(\frac{x}{a}\right),$$

则有

$$\mathcal{E}^2(2\omega, z) = \mathcal{E}^2(\omega, 0) \operatorname{th} \left[\frac{\omega^3}{k_{2\omega}c^3} |\chi_{2\omega}| \mathcal{E}^2(\omega, 0) z \right]. \quad (5.6-16)$$

同样, 我们把(5.6-16)式方括号中除 z 以外的所有项的倒数定义为表征二次谐波过程速率的特征长度 l_{SH} , 即令

$$l_{SH} = \left[\frac{\omega^3}{k_{2\omega}c^3} |\chi_{2\omega}| \mathcal{E}^2(\omega, 0) \right]^{-1}, \quad (5.6-17)$$

于是(5.6-16)式又简化为

$$\mathcal{E}^2(2\omega, z) = \mathcal{E}^2(\omega, 0) \operatorname{th} \left(\frac{z}{l_{SH}} \right). \quad (5.6-18)$$

再将(5.6-18)式代入(5.6-12)式后便得到

$$\mathcal{E}(\omega, z) = \mathcal{E}(\omega, 0) \operatorname{sech} \left(\frac{z}{l_{SH}} \right). \quad (5.6-19)$$

(5.6-18)式和(5.6-19)式的图解形式如图5-7所示。从图中可以看到在完全相位匹配条件下,二次谐波的振幅从零开始,最后基波的功率全部转变为二次谐波的功率。当 $z=l_{SH}$ 时,大约有一半的基波功率已转变为二次谐波的功率。

当 z 很小时,因为 $\text{th}\left(\frac{z}{l_{SH}}\right) \approx \frac{z}{l_{SH}}$,
所以由(5.6-18)式可得

$$\mathcal{E}(2\omega, z) = \mathcal{E}(\omega, 0) \frac{z}{l_{SH}} \quad (5.6-20)$$

这说明在 z 很小的情况下,所产生的二次谐波振幅 $\mathcal{E}(2\omega, z)$ 线性地随 z 的增加而增大,增大的速率由二次谐波产生过程的特征长度 l_{SH} 来表征;所产生的二次谐波的相位 $\varphi_{2\omega}$ 与基波相位 φ_{ω} 的关系由(5.6-14)式确定。

如果相位匹配条件没有完全达到,即 $\Delta k \neq 0$,并且又假定在“小信号近似”的条件下,这时(5.6-4)式仍能求解。由该式给出

$$\frac{dE(2\omega, z)}{dz} = \frac{2i\omega^2}{k_{2\omega}c^2} \chi_{2\omega} E^2(\omega, 0) \exp(i\Delta k z) \quad (5.6-21)$$

积分后得

$$E(2\omega, z) = \frac{4\omega^2}{k_{2\omega}c^2} \chi_{2\omega} E^2(\omega, 0) \exp\left(i\frac{\Delta k}{2}z\right) \frac{\sin\left(\frac{\Delta k}{2}z\right)}{\Delta k} \quad (5.6-22)$$

所以

$$\begin{aligned} |E(2\omega, z)|^2 &= \frac{1}{4} \mathcal{E}^2(2\omega, z) \\ &= \left(\frac{4\omega^2}{k_{2\omega}c^2}\right)^2 |\chi_{2\omega}| |E(\omega, 0)|^2 |E(\omega, 0)|^2 \frac{1}{4} \frac{\sin^2\left(\frac{\Delta k}{2}z\right)}{\left(\frac{\Delta k}{2}\right)^2} \end{aligned} \quad (5.6-23)$$

因为

$$|E(\omega, 0)|^2 = \frac{1}{4} \mathcal{E}^2(\omega, 0)$$

代入(5.6-23)式后便得

$$\begin{aligned} \mathcal{E}^2(2\omega, z) &= \frac{\omega^2}{k_{2\omega}c^2} |\chi_{2\omega}| \mathcal{E}^2(\omega, 0) \frac{\sin^2\left(\frac{\Delta k}{2}z\right)}{\left(\frac{\Delta k}{2}\right)^2} \\ &= \mathcal{E}^2(\omega, 0) \frac{\sin^2\left(\frac{\Delta k}{2}z\right)}{\left(\frac{\Delta k}{2}\right)^2} l_{SH}^2 \end{aligned} \quad (5.6-24)$$

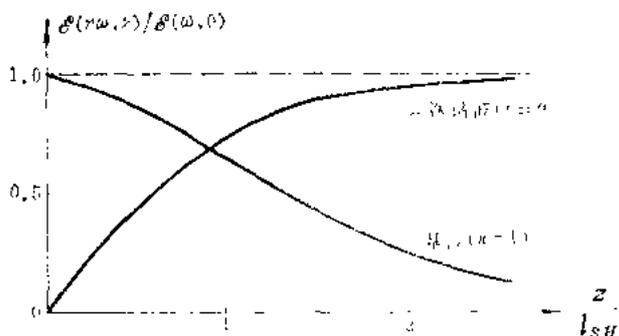


图5-7 在完全相位匹配条件下,在非线性质内,消耗基波的同时产生二次谐波

由此可见,在相位失配条件下,当基波和二次谐波通过非线性介质传播时,二次谐波的振幅在零与最大值 $[2\mathcal{E}(\omega,0)/\Delta k l_c]$ 之间振荡,振荡周期为 $(4\pi/\Delta k)$ 。根据二次谐波相干长度 l_c 的定义,即 $l_c = \pi/\Delta k$,可见二次谐波场振幅的振荡周期四倍于相干长度 l_c 。从功率来讲,二次谐波功率的振荡周期为相干长度 l_c 的两倍。当相位失配程度增大时,即当 Δk 增大时,二次谐波的最大振幅减少。这也可以说明为什么我们一开始在讨论二次谐波产生的耦合方程时,没有考虑更高次谐波的产生,这是因为在一般满足二次谐波产生的相位匹配条件下,更高次谐波与基波的失配程度更严重,因而它们的振幅比二次谐波的振幅小得多。

2. 二次谐波的有效非线性光学系数

从上面的讨论中,我们已清楚地看到为达到产生二次谐波的目的,要求波的耦合满足相位匹配条件。在下面的讨论中,我们将引入所谓有效非线性光学系数 d_{eff} 的概念,从而看到为了有效地产生二次谐波,希望 d_{eff} 愈大愈好。

现在我们推导关于 $42m$ 类单轴晶体在产生二次谐波时的有效非线性光学系数的公式。这个方法对其它对称类型的单轴晶体及其和频、差频运用方式也都是适用的。

首先写出 $42m$ 类晶体的二阶电极化强度和电场强度之间的一般关系式,即

$$\begin{array}{l}
 P_x(2\omega) \\
 P_y(2\omega) \\
 P_z(2\omega)
 \end{array}
 =
 \begin{array}{l}
 0 \ 0 \ 0 \ d_{14} \ 0 \ 0 \\
 0 \ 0 \ 0 \ 0 \ d_{14} \ 0 \\
 0 \ 0 \ 0 \ 0 \ 0 \ d_{36}
 \end{array}
 \begin{array}{l}
 E_x(\omega)E_x(\omega) \\
 E_x(\omega)E_y(\omega) \\
 E_x(\omega)E_z(\omega) \\
 E_y(\omega)E_z(\omega) + E_z(\omega)E_y(\omega) \\
 E_z(\omega)E_x(\omega) + E_x(\omega)E_z(\omega) \\
 E_y(\omega)E_y(\omega) + E_y(\omega)E_x(\omega)
 \end{array}
 \quad (5.6-25)$$

此式展开有

$$P_x(2\omega) = d_{14}[E_y(\omega)E_z(\omega) + E_z(\omega)E_y(\omega)], \quad (5.6-26a)$$

$$P_y(2\omega) = d_{14}[E_z(\omega)E_x(\omega) + E_x(\omega)E_z(\omega)], \quad (5.6-26b)$$

$$P_z(2\omega) = d_{36}[E_x(\omega)E_y(\omega) + E_y(\omega)E_x(\omega)]. \quad (5.6-26c)$$

由上式可知,电场的任何两个分量的乘积都对二阶电极化强度矢量的各个分量有贡献。必须强调指出,一般讲,我们不能把上式中的 $E_x(\omega)E_x(\omega)$, ..., 以及 $[E_y(\omega)E_z(\omega) + E_z(\omega)E_y(\omega)]$, ..., 写成 $E_x^2(\omega)$, ..., 以及 $2E_y(\omega)E_z(\omega)$, ...。我们知道,无论是基波光或倍频的偏振波在晶体中传播时都要分解为振动方向相互垂直的两个独立传播的波,在单轴晶体中就是分解成 o 光和 e 光。由相位匹配条件的概念可知,要满足相位匹配条件,晶体中的这些 o 光和 e 光只有四种可能的匹配组合方式,即

- ① $ee-o$ 匹配方式 它表示基波中两个 e 光电场分量的乘积产生倍频偏振 o 波;
- ② $oo-e$ 匹配方式 它表示基波中两个 o 光电场分量乘积产生倍频偏振 e 波;
- ③ $eo-e$ 匹配方式 它表示基波中的一个 e 光电场分量和一个 o 光电场分量的乘积产生倍频偏振 e 波;
- ④ $eo-o$ 匹配方式 它表示基波中的一个 e 光电场分量和一个 o 光电场分量的乘积产生倍频偏振 o 波。

显然，如果两个电场分量属于不同的偏振光，那么我们就不能随意地对它们进行同类项组合，例如 $E_o^x(\omega)E_e^y(\omega) \neq E_e^x(\omega)E_o^y(\omega)$ (上角标 o 、 e 表示 o 光和 e 光)。

(5.6-26) 式中的 E_x 、 E_y 、 E_z 是入射基波电场矢量的三个分量，它们的大小显然和入射基波的传播方向有关。现设基波的传播矢量为 \mathbf{k} ，如图 5-8 所示。根据图 5-8 的几何关系，基波 o 光矢量 \mathbf{E}^o 和 e 光矢量 \mathbf{E}^e 分别为

$$\mathbf{E}^o(\omega) = \begin{cases} E_o^x(\omega) & = E^o \sin \theta \\ E_o^y(\omega) & = -E^o \cos \theta \cos \varphi \\ E_o^z(\omega) & = 0 \end{cases} \quad (5.6-27a)$$

$$\mathbf{E}^e(\omega) = \begin{cases} E_e^x(\omega) & = -E^e \cos \theta \cos \varphi \\ E_e^y(\omega) & = -E^e \cos \theta \sin \varphi \\ E_e^z(\omega) & = E^e \sin \theta \end{cases} \quad (5.6-27b)$$

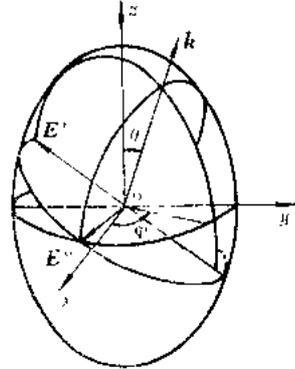


图 5-8 基波波矢 \mathbf{k} 及其相应的 \mathbf{E}^o 、 \mathbf{E}^e 与坐标轴 x 、 y 、 z 之间的相互方位关系 (z 为晶体光轴方向)

式中 E^o 和 E^e 分别为 o 光和 e 光的振幅。

下面分别讨论在不同的相位匹配方式下的有效非线性光学系数 d_{eff} 。

在 $oo-e$ 相位匹配方式下

将 (5.6-27) 式按匹配方式的要求代入 (5.6-26) 式，有

$$\begin{aligned} P_x^e(2\omega) &= 0, \\ P_y^e(2\omega) &= 0, \\ P_z^e(2\omega) &= d_{33}[E_x^o(\omega)E_y^o(\omega) + E_y^o(\omega)E_x^o(\omega)] \\ &\quad - 2d_{33}\sin\theta\cos\varphi E^o E^e. \end{aligned} \quad (5.6-28)$$

设二阶非线性电极化强度与二次谐波场 $\mathbf{E}(2\omega)$ 之间的相互作用能量为 H' ，则有

$$\begin{aligned} H' &= -\mathbf{P}^e(2\omega) \cdot \mathbf{E}^e(2\omega) \\ &= -[P_x^e(2\omega)E_x^e(2\omega) + P_y^e(2\omega)E_y^e(2\omega) + P_z^e(2\omega)E_z^e(2\omega)] \\ &= -d_{33}\sin 2\theta\cos\theta E^o E^e E^e(2\omega) \\ &= d_{eff} E^o E^e E^e(2\omega), \end{aligned} \quad (5.6-29)$$

式中

$$d_{eff} = -d_{33}\sin 2\theta\sin\theta \quad (5.6-30)$$

就是我们所要求的 $42m$ 类晶体在 $oo-e$ 相位匹配方式下的有效非线性光学系数。由 (5.6-30) 式可见，在相位匹配条件下 (产生二次谐波)，基波波矢 \mathbf{k} 和晶体光轴 z 之间的夹角应为 $\theta = \theta_m$ ，当 θ_m 确定之后， φ 的取值应使 H' 最大，在这里即要求 $\sin 2\varphi = 1$ ，或 $\varphi = 45^\circ$ 。

在 $oe-e$ 相位匹配方式下

同样，将 (5.6-27) 式按相位匹配方式的要求代入 (5.6-26) 式，有

$$\begin{aligned} P_x^e(2\omega) &= d_{14}[E_x^o(\omega)E_z^e(\omega) + E_z^o(\omega)E_x^e(\omega)] \\ &\quad - d_{14}\cos\theta\sin\theta E^o E^e, \end{aligned} \quad (5.6-31a)$$

$$P_y^e(2\omega) = d_{14}[E_x^e(\omega)E_z^e(\omega) + E_z^e(\omega)E_x^e(\omega)] \\ = d_{14}\sin\varphi\sin\theta E^e E^e, \quad (5.6-31b)$$

$$P_z^e(2\omega) = d_{36}[E_x^e(\omega)E_y^e(\omega) + E_y^e(\omega)E_x^e(\omega)] \\ = d_{36}\cos\theta\cos 2\varphi E^e E^e. \quad (5.6-31c)$$

这里

$$H' = -P^e(2\omega) \cdot E(2\omega) \\ = -(P_x^e(2\omega)E_x^e(2\omega) + P_y^e(2\omega)E_y^e(2\omega) + P_z^e(2\omega)E_z^e(2\omega)) \\ = -(d_{14} + d_{36})\sin\theta\cos\theta\cos 2\varphi E^e E^e(2\omega) \\ \equiv d_{eff} E^e E^e(2\omega),$$

式中

$$d_{eff} = -(d_{14} + d_{36})\sin\theta\cos\theta\cos 2\varphi. \quad (5.6-32)$$

由这个结果可见，相位匹配方式不同， d_{eff} 的形式不同。如果在适当的波段区，晶体对基波和二次谐波完全透明，色散消失，这时 $d_{14} = d_{36}$ 。利用我们前面用过的下角标代换规则，对 $42m$ 类晶体， $d_{14} = d_{25} = d_{36}$ 又可写成 $d_{132} = d_{231} = d_{312}$ ，说明三个下角标交换位置时 d 值不变。我们已经知道这种性质就是克兰曼完全对称性。当克兰曼完全对称性成立时，(5.6-32)式变为

$$d_{eff} = -d_{14}\sin 2\theta\cos 2\varphi. \quad (5.6-33)$$

按照上述方法，对另外两种相位匹配方式给出如下结果：

在 $ee-o$ 相位匹配方式下

$$d_{eff} = -d_{14}\sin 2\theta\cos 2\varphi. \quad (5.6-34)$$

在 $oe-o$ 相位匹配方式下

$$d_{eff} = -d_{14}\sin\theta\sin 2\varphi. \quad (5.6-35)$$

比较(5.6-30)~(5.6-35)式可见，当克兰曼完全对称性成立时， $oo-e$ 、 $oe-o$ 两种相位匹配方式的 d_{eff} 形式相同； $ee-o$ 、 $oe-e$ 两种匹配方式的 d_{eff} 形式相同。

通过以上对 d_{eff} 的讨论可以清楚地看到，为有效地产生二次谐波，首先应选择非线性光学系数 d_{ij} 大的材料，并且在进行实验时最重要的是必须满足相位匹配条件。为达到此目的，可以在实验上通过调整光的传播方向与晶体光轴之间的夹角 θ 来实现。与此同时，还应调整光在非线性介质中传播的方位角 φ ，以保证使有效非线性光学系数之绝对值 $|d_{eff}|$ 最大，或保证二阶非线性电极化强度与二次谐波场之间的相互作用能之绝对值 $|H'|$ 最大。

下面由表5-2给出在不同的相位匹配方式下不考虑克兰曼完全对称性影响的各种对称类型单轴晶体的有效非线性光学系数。表5-3则给出在不同的相位匹配方式下克兰曼完全对称性成立时的各种对称类型单轴晶体的有效非线性光学系数。

表 5-2 各类单轴晶体的有效非线性光学系数

晶体 对称类型	ee-e	oe-e	配	方	式
6 与 4	$-d_{14}\sin 2\theta$	$d_{14}\sin\theta\cos\theta$	$d_{31}\sin\theta$	$d_{13}\sin\theta$	oe-e
622 与 422	$-d_{14}\sin 2\theta$	$d_{14}\sin\theta\cos\theta$	0	0	0
6mm 与 4mm	0	0	$d_{31}\sin\theta$	$d_{13}\sin\theta$	$d_{13}\sin\theta$
$\bar{6}m2$	$-d_{22}\cos^2\theta\cos 3\varphi$	$-d_{22}\cos^2\theta\cos 3\varphi$	$-d_{22}\cos\varphi\sin 3\varphi$	$-d_{22}\cos\theta\sin 3\varphi$	$-d_{22}\cos\theta\sin 3\varphi$
3m	$-d_{22}\cos^2\theta\cos 3\varphi$	$-d_{22}\cos^2\theta\cos 3\varphi$	$-d_{22}\cos\theta\sin 3\varphi + d_{31}\sin\theta$	$-d_{22}\cos\theta\sin 3\varphi + d_{31}\sin\theta$	$-d_{22}\cos\theta\sin 3\varphi + d_{31}\sin\theta$
$\bar{6}$	$-(d_{11}\sin 3\varphi + d_{22}\cos 3\varphi)$ $\times \cos^2\theta$	$-(d_{11}\sin 3\varphi + d_{22}\cos 3\varphi)$ $\times \cos^2\theta$	$(d_{11}\cos 3\varphi - d_{22}\sin 3\varphi)$ $\times \cos\theta$	$(d_{11}\cos 3\varphi - d_{22}\sin 3\varphi)$ $\times \cos\theta$	$d_{11}(\cos 3\varphi - d_{22}\sin 3\varphi)$ $\times \cos\theta$
3	$(d_{11}\sin 3\varphi + d_{22}\cos 3\varphi)$ $\times \cos^2\theta - d_{14}\sin 2\theta$	$(d_{11}\sin 3\varphi + d_{22}\cos 3\varphi)$ $\times \cos^2\theta + d_{14}\sin\theta\cos\theta$	$(d_{11}\cos 3\varphi - d_{22}\sin 3\varphi)$ $\times \cos\theta + d_{31}\sin\theta$	$(d_{11}\cos 3\varphi - d_{22}\sin 3\varphi)$ $\times \cos\theta + d_{31}\sin\theta$	$(d_{11}\cos 3\varphi - d_{22}\sin 3\varphi)$ $\times \cos\theta + d_{31}\sin\theta$
32	$-d_{11}\cos^2\theta\sin 3\varphi$ $+ d_{14}\sin 2\theta$	$-d_{11}\cos^2\theta\sin 3\varphi$	$-d_{11}\cos\theta\cos 3\varphi$	$d_{11}\cos\theta\cos 3\varphi$	$d_{11}\cos\theta\cos 3\varphi$
$\bar{4}$	$(d_{13}\sin 2\varphi - d_{14}\cos 2\varphi)$ $\times \sin 2\theta$	$\frac{1}{2}[(d_{13} + d_{31})\sin 2\varphi$ $-(d_{14} + d_{30})\cos 2\varphi]\sin 2\theta$	$-(d_{30}\sin 2\varphi + d_{31}\cos 2\varphi)$ $\times \sin\theta$	$-(d_{30}\sin 2\varphi + d_{31}\cos 2\varphi)$ $\times \sin\theta$	$-(d_{30}\sin 2\varphi + d_{31}\cos 2\varphi)$ $\times \sin\theta$
$\bar{1}2m$	$-d_{14}\sin 2\theta\cos 2\varphi$	$-\frac{1}{2}(d_{14} + d_{30})\sin 2\theta\cos 2\theta$	$-d_{14}\sin\theta\sin 2\varphi$	$-d_{14}\sin\theta\sin 2\varphi$	$-d_{14}\sin\theta\sin 2\varphi$

表 5-3 各类单轴晶体的有效非线性光学系数

晶 体	相 位 匹 配 方 式			
	ce-o	oe-e	oo-e	oe-o
6与4	0		$d_{11} \sin\theta$	
622与422	0		0	
6mm与4mm	0		$d_{11} \sin\theta$	
$\overline{6}m2$	$-d_{11} \cos^2\theta \cos 3\varphi$		$-d_{12} \cos\theta \cos 3\varphi$	
3m	$d_{22} \cos^2\theta \cos 3\varphi$		$d_{13} \sin\theta - d_{23} \cos\theta \sin 3\varphi$	
$\overline{6}$	$-(d_{11} \sin 3\varphi + d_{22} \cos 3\varphi) \cos^2\theta$		$(d_{11} \cos 3\varphi - d_{22} \sin 3\varphi) \cos\theta$	
3	$(d_{11} \sin 3\varphi + d_{22} \cos 3\varphi) \cos^2\theta$		$(d_{11} \cos 3\varphi - d_{22} \sin 3\varphi) \cos\theta$ $+ d_{13} \sin\theta$	
32	$-d_{11} \cos^2\theta \sin 3\varphi$		$d_{11} \cos\theta \cos 3\varphi$	
$\overline{4}$	$(d_{11} \sin 2\varphi - d_{13} \cos 2\varphi) \sin 2\theta$		$-(d_{11} \sin 2\varphi + d_{13} \cos 2\varphi) \sin\theta$	
$\overline{4}2m$	$-d_{14} \sin 2\theta \cos 2\varphi$		$-d_{14} \sin\theta \cos 2\varphi$	

七、参量变换

在五中我们详细地讨论了和频($\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$)和差频($\omega_2 = \omega_3 - \omega_1$)产生的规律。在讨论中我们假定参与混频过程的两个光波中一个强一个弱,我们所得到的结果是,在混频过程中较弱的光波(对和频过程是 ω_2 ,对差频过程是 ω_3)减小的同时,和频 ω_3 或差频 ω_2 产生出来,而且所产生的和频或差频的最大功率受原来较弱的这束光波所具有的功率 $N_{\omega_2}(0)$ (对和频)或 $N_{\omega_3}(0)$ (对差频)的限制。上述结论都可以从曼利-罗关系求得。这就告诉我们,非线性介质在混频过程中并不参与能量的净交换。沿用电子学中同类问题的习惯名称,我们把非线性介质本身并不参与能量的净交换但却能使光波频率发生变化的作用称为参量变换作用。

参量变换有参量上变换和下变换之分,对应于产生和频的混合过程来说,其结果是出频率较低的 ω_2 的辐射变换为频率较高的 ω_3 的辐射,这叫做参量上变换。对应于产生差频的过程来说,其结果是频率较高的 ω_3 的辐射变换为频率较低的 ω_2 的辐射,这叫做参量下变换。

因为在实际情况下,起变换作用的强光波(有时称为泵浦辐射)采用激光辐射,它比被变换的弱光波(有时称为信号辐射)要强得多,因为在频率变换过程中,泵浦辐射所损失或得到的功率只是它总功率的一小部分。所以在变换过程中,可以认为泵浦辐射强度的变化很小而忽略不计,从而认为 $E(\omega_1)$ 为常数。这种近似不仅适用于小的 z 值,而且对所有的 z 值都适用。

根据上面所给出的近似,我们可以一般地求解(5.5-17)式和(5.5-18)式。将(5.5-17)式对 z 求导,有

$$\frac{d^2 E(\omega_2, z)}{dz^2} = i\omega_2^2 \chi^{(2)} \frac{dE(\omega_3, z)}{dz} E^*(\omega_1) \exp(-iNkz)$$

$$+ \frac{\omega_2^2}{k_2 c^2} \chi_r^{(2)} E(\omega_2, z) E^*(\omega_1) \Delta k \exp(-i \Delta k z). \quad (5.7-1)$$

由(5.5-17)式可以求得

$$E(\omega_2, z) = \frac{dE(\omega_2, z)}{dz} \frac{k_2 c^2}{i \omega_2^2 \chi_r^{(2)}} E^*(\omega_1) \exp(i \Delta k z).$$

把这个结果以及(5.5-18)式代入(5.7-1)式, 就可以求得 $E(\omega_2, z)$ 的微分方程为

$$\frac{d^2 E(\omega_2, z)}{dz^2} + i \Delta k \frac{dE(\omega_2, z)}{dz} + \frac{1}{I_M} E(\omega_2, z) = 0. \quad (5.7-2)$$

式中 I_M 就是由(5.5-43)式所定义的量。

假定起始条件为

$$E(\omega_2, z)|_{z=0} = E(\omega_2, 0) = 0, \quad (5.7-3)$$

按(5.5-17)式, 有

$$\left. \frac{dE(\omega_2, z)}{dz} \right|_{z=0} = \frac{i \omega_2^2}{k_2 c^2} \chi_r^{(2)} E(\omega_2, 0) E^*(\omega_1, 0), \quad (5.7-4)$$

求解微分方程(5.7-2)式, 最后结果为

$$E(\omega_2, z) = \frac{i \omega_2^2 \chi_r^{(2)}}{k_2 c^2} E(\omega_2, 0) E^*(\omega_1, 0) \frac{1}{\left[\frac{1}{I_M^2} + \left(\frac{\Delta k}{2} \right)^2 \right]^{1/2}} \times \exp\left(-i \frac{\Delta k z}{2}\right) \sin \left[\frac{1}{I_M^2} + \left(\frac{\Delta k}{2} \right)^2 \right]^{1/2} z. \quad (5.7-5)$$

和

$$N_{\omega_2}(z) = \frac{N_{\omega_2}(0)}{I_M^2} \frac{1}{\left[\frac{1}{I_M^2} + \left(\frac{\Delta k}{2} \right)^2 \right]^{1/2}} \sin^2 \left[\frac{1}{I_M^2} + \left(\frac{\Delta k}{2} \right)^2 \right]^{1/2} z. \quad (5.7-6)$$

再利用曼利-罗关系

$$N_{\omega_2} + N_{\omega_3} = \text{常数} = N_{\omega_3}(0),$$

则可得

$$N_{\omega_3}(z) = N_{\omega_3}(0) \frac{1 + \left(\frac{\Delta k}{2} I_M \right)^2}{1 + \left(\frac{\Delta k I_M}{2} \right)^2} \sin^2 \left[\frac{1}{I_M^2} + \left(\frac{\Delta k}{2} \right)^2 \right]^{1/2} z. \quad (5.7-7)$$

(5.7-6)式和(5.7-7)式是对于参量下变换过程所得到的光子通量随距离 z 变化的关系式。对于参量上变换过程来说, 相应的关系可以从(5.7-6)式和(5.7-7)式直接给出, 只要交换频率 ω_2 和 ω_3 即可。这时有

$$N_{\omega_1}(z) = \frac{N_{\omega_1}(0)}{I_M \left[\frac{1}{I_M^2} + \left(\frac{\Delta k}{2} \right)^2 \right]} \sin^2 \left[\frac{1}{I_M^2} + \left(\frac{\Delta k}{2} \right)^2 \right]^{1/2} z \quad (5.7-8)$$

和

$$N_{\omega_2}(z) = N_{\omega_2}(0) \frac{1 - \left(\frac{\Delta k}{2} I_M\right)^2 - \sin^2 \left[\frac{1}{2} \sqrt{\frac{\Delta k^2}{I_M^2} + \left(\frac{\Delta k}{2}\right)^2} z \right]}{1 + \left(\frac{\Delta k}{2} I_M\right)^2} \quad (5.7-9)$$

参量上变换实验装置的示意图如图5-9所示。第一个观察到参量上变换和参量下变换的实验是利用红宝石激光器发出的激光作为泵浦光，每个光脉冲的平均功率为1kW；非线性晶体是KDP；信号光是用水银灯发出的谱线，每条谱线的功率大约10mW量级，所以信号光的强度比泵浦光的强度小得多（相差约 10^5 倍）。在实验中尽可能使之达到相位匹配条件，实验结果大约得到 10^{-6} W的产生波功率。可见转换效率是很低的，在这样小的转换输出强度的情况下，转换输出强度与输入信号强度之间存在着线性关系，这种关系也正是(5.7-8)式理论上所预示的情况。

将红外波段很弱的信号或很弱的像上转换到可见光范围是非常重要的技术，有实际的使用价值。虽然上转换效率很低，但在可见光区域有比较灵敏的探测器和拾像器件，因此可以用提高可见光区域的探测能力来补偿上转换效率低的不足。很显然，这种技术在红外弱信号探测方面无疑是一个改进。

要明确指出的是，像的上转换之所以可能，那是相位匹配条件以及上转换强度与信号强度之间成线性关系这两者共同的结果。例如，由来自一个景物所形成的像，源点与像点之间保持着相对应的关系，那是由相位匹配条件来确定的。关于这一点，我们可以很容易地从图5-10得到理解。图中 k_{IR} 、 k_l 和 k_v 分别表示来自特殊方向的红外信号、泵浦激光以及上转换可见光辐射的波矢。相位匹配条件要求

$$k_{IR} + k_l = k_v \quad (5.7-10)$$

显然，由相位匹配条件确定了 θ_{IR} 和 θ_v 角之间唯一的关系。这里 θ_{IR} 是红外辐射的传播方向与固定的激光辐射的传播方向之间的夹角， θ_v 是可见光辐射的传播方向与固定的激光辐射的传播方向之间的夹角。因为 k_v 、 $k_l \gg k_{IR}$ ，所以 $\theta_v \approx \theta_{IR} \frac{k_{IR}}{k_l}$ 。这表明可见光上转换像相对原来的红外物缩小到 λ_v/λ_{IR} 。这里 λ_v 是可见光的波长， λ_{IR} 是红外辐射的波长。

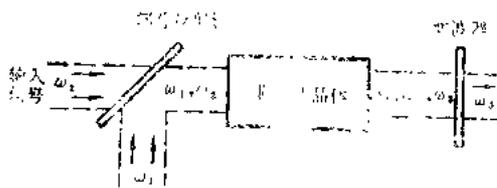


图 5-9 频率为 ω_1 的强激光与频率为 ω_2 的信号光充非线性晶体中产生频率为 $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ 的和频光——参量上变换实验装置示意图

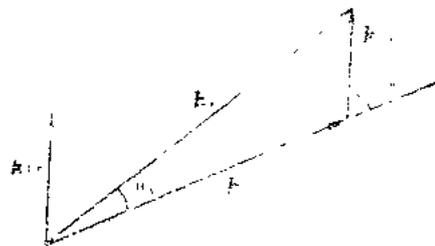


图 5-10 从红外到可见光的参量上转换过程中，三个波矢的相位匹配三角形

另外，在参量上转换过程中，由于上转换强度与信号强度之间存在着线性关系，因而红外物各点的相对强度在上转换过程中仍保持着上转换像各点的相对强度。以上两点结合起来，就说明了在参量上转换过程中像不失真。

八、参量放大与振荡

1. 参量放大

利用非线性介质的参量效应也可以放大弱的光信号, 这就是所谓光频参量放大, 但这时强的激光或泵浦光必须具有最高频率 $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ 。这里的 ω_1 、 ω_2 均可作为待放大的弱信号的频率。参量放大过程也是三波作用过程。假如用 ω_1 (或 ω_2) 作为待放大的弱信号波的频率, 直观的二波作用概念告诉我们: 频率为 ω_1 (或 ω_2) 的弱信号波被放大的同时, 一定会产生频率为 $\omega_2 = \omega_3 - \omega_1$ (或 $\omega_1 = \omega_3 - \omega_2$) 的第三个波。在参量放大器的理论中, 这个伴随产生的频率为 ω_2 (或 ω_1) 的第三个波叫做闲置波。在七里我们已经知道, 在参量上转换过程中, 原来信号 (ω_2) 的强度 $[N_{\omega_2}(0)]$ 限制了从泵浦波 (ω_1) 输送到转换波 (ω_3) 的功率 N_{ω_3} 。但在参量放大的情况下, 限制功率输送的是激光或泵浦光强度, 因而, 在参量放大的情况下, 有可能输送更大的功率。根据以上说明, 可以看到在耦合方程 (5.5-16) ~ (5.5-18) 式中的任何一个场振幅 $E(\omega_1, z)$ 、 $E(\omega_2, z)$ 和 $E(\omega_3, z)$ 都不能被认为是不变的, 因为在原则上泵浦场强 $E(\omega_3)$ 可以减小到零, 与此同时, 信号波场强 $E(\omega_1)$ 和闲置波场强 $E(\omega_2)$ 得到不断地增大。然而, 如果我们只限于讨论 z 值足够小的情况, 这时虽然信号波和闲置波可能已发生了显著的变化, 但泵浦场强度还未曾发生显著的减小, 那么, 对于这样小的 z 值来说, 我们仍可以把泵浦场强 $E(\omega_3)$ 看作常数。利用这种近似, 我们可以求解方程 (5.5-17) 式和 (5.5-16) 式。消去 $E(\omega_1, z)$ 后, 可以得到 $E(\omega_2, z)$ 的微分方程为

$$\frac{d^2 E(\omega_2, z)}{dz^2} + i \Delta k \frac{dE(\omega_2, z)}{dz} - \frac{1}{l_{PA}^2} E(\omega_2, z) = 0, \quad (5.8-1)$$

式中

$$l_{PA} = \left[\frac{1}{2c^2} \left(\frac{\omega_1 \omega_2}{k_1 k_2} \right)^2 |\chi_c^{(2)}|^2 \mathcal{E}(\omega_3) \right]^{-1/2}, \quad (5.8-2)$$

是参量放大过程的一个特征长度。(5.8-1) 式的解可立即从 (5.7-2) 式的解 (5.7-5) 式和 (5.7-6) 式得到, 只要用 $(-l_{PA}^2)$ 代替 l_M^2 或用 $i l_{PA}$ 代替 l_M 即可。这样 (5.8-1) 式的解为

$$E(\omega_2, z) = \frac{i \omega_2^2}{k_2 c^2} \chi_c^{(2)} E^*(\omega_1, 0) E(\omega_3, 0) \frac{1}{\left[-\frac{1}{l_{PA}^2} + \left(\frac{\Delta k}{2} \right)^2 \right]^{1/2}} \times \exp\left(-i \frac{\Delta k}{2} z\right) \sin\left[-\frac{1}{l_{PA}^2} + \left(\frac{\Delta k}{2} \right)^2\right]^{1/2} z \quad (5.8-3)$$

和

$$N_{\omega_2}(z) = \frac{N_{\omega_1}(0)}{1 - \left(\frac{\Delta k}{2} l_{PA} \right)^2} \operatorname{sh} \left[1 - \left(\frac{\Delta k}{2} l_{PA} \right)^2 \right]^{1/2} z \cdot \frac{z}{l_{PA}} \quad (5.8-4)$$

再由曼利-罗关系得到

$$\begin{aligned} N_{\omega_1} - N_{\omega_2} &= \text{常数} \\ &= N_{\omega_1}(0) - N_{\omega_2}(0), \end{aligned} \quad (5.8-5)$$

并假定开始时 $N_{\omega_2}(0) = 0$, 那么可得信号波的光子通量为

$$N_{\omega_1}(z) = N_{\omega_1}(0) - N_{\omega_2}(z)$$

$$= \frac{1 - \left(\frac{\Delta k}{2} l_{PA}\right)^2 + \operatorname{sh}^2 \left[1 - \left(\frac{\Delta k}{2} l_{PA}\right)^2 \right]^{1/2} z}{1 - \left(\frac{\Delta k}{2} l_{PA}\right)^2} l_{PA} N_{\omega_1}(0), \quad (5.8-6)$$

显然信号波被放大。

如果 z 足够大,但从泵浦功率来说,仍可以假定无显著的减小,那么利用关系 $\operatorname{sh}(\alpha z) \approx \frac{1}{2} \exp(\alpha z)$ (z 足够大时),可以得到 $N_{\omega_1}(z)$ 是按 $\exp(2\alpha z)$ 的指数规律增加。这里

$$2\alpha = \left[\frac{4}{l_{PA}^2} - (\Delta k)^2 \right]^{1/2} \quad (5.8-7)$$

是参量放大过程的放大常数。当满足相位匹配的条件时,放大常数达到最大值 $(2/l_{PA})$ 。在这里可明显地看到,只要 $\Delta k < (2/l_{PA})$,那么由方程(5.8-4)式和(5.8-6)式所预示的信号波和闲置波的光子通量或功率便会随 z 的增大而连续地增加。不过这个结论是在假定泵浦功率不发生任何变化的条件下得到的。如果考虑到参量过程中泵浦功率的减少,那么(5.5-16)式和(5.5-17)式的一般解会表现出信号波功率和闲置波功率在泵浦功率完全被抽空时达到饱和。事实上,在考虑泵浦功率减少的情况下,(5.5-16)~(5.5-18)式的一般解就是(5.5-49)式。当 $N_{\omega_3}(0)$ 趋于无穷大时,由该式立即可得近似解(5.8-4)式 $\Delta k = 0$ 时的结果。

根据(5.5-49)式,当 $N_{\omega_3}(0) \rightarrow \infty$ 时,有

$$\begin{aligned} N_{\omega_2}(z) &= N_{\omega_1}(0) f^2 \left[\left(\frac{N_{\omega_1}(0) + N_{\omega_3}(0)}{N_{\omega_1}(0)} \right)^{1/2} z, \left(\frac{N_{\omega_3}(0)}{N_{\omega_1}(0) + N_{\omega_3}(0)} \right)^{1/2} \right] \\ &= N_{\omega_1}(0) f^2 \left[\left(\frac{N_{\omega_3}(0)}{N_{\omega_1}(0)} \right)^{1/2} z, 1 \right] \\ &= \frac{N_{\omega_1}(0) \operatorname{sn}^2 \left[\left(\frac{N_{\omega_3}(0)}{N_{\omega_1}(0)} \right)^{1/2} z, 1 \right]}{\operatorname{dn}^2 \left[\left(\frac{N_{\omega_3}(0)}{N_{\omega_1}(0)} \right)^{1/2} z, 1 \right]} \end{aligned} \quad (5.8-8)$$

又因为

$$\left[\frac{N_{\omega_3}(0)}{N_{\omega_1}(0)} \right]^{1/2} z = \left(\frac{S_{\omega_3} \hbar \omega_1}{S_{\omega_1} \hbar \omega_3} \right)^{1/2} z$$

并利用 $S_{\omega} = \frac{1}{2} \varepsilon_0 \eta c |\mathcal{E}(\omega)|^2 = \frac{1}{2} \varepsilon_0 \eta^2 v |\mathcal{E}(\omega)|^2$ 以及(5.5-43)式的

$$l_M = \left[\frac{1}{2c^2} \left(\frac{\omega_2^2 \omega_3^2}{k_2 k_3} \right)^{1/2} |\chi_r^{(2)}| \mathcal{E}(\omega_1, 0) \right]^{-1},$$

则有

$$\left[\frac{N_{\omega_3}(0)}{N_{\omega_1}(0)} \right]^{1/2} z = \frac{1}{2c^2} |\chi_r^{(2)}| \left(\frac{\omega_1^2 \omega_3^2}{k_1 k_2} \right)^{1/2} \mathcal{E}(\omega_3, 0) z = \frac{z}{l_{PA}}.$$

又根据椭圆函数的定义(5.5-40)式, 有

$$\operatorname{sn}[u, 1] = \sin \varphi,$$

而这时($k=1$)

$$u = \int_0^\varphi \frac{d\varphi}{\sqrt{1 - \sin^2 \varphi}} = \frac{1}{2} \ln \frac{1 + \sin \varphi}{1 - \sin \varphi},$$

所以有

$$\operatorname{sn}[u, 1] = \sin \varphi = \frac{\exp(2u) - 1}{\exp(2u) + 1} = \operatorname{th}(u)$$

$$\operatorname{dn}[u, 1] = (1 - \operatorname{sn}^2[u, 1])^{1/2} = \frac{1}{\operatorname{ch}(u)}.$$

将这些结果代入(5.8-8)式后, 使得

$$N_{\omega_2}(z) = N_{\omega_1}(0) \operatorname{sh}^2 \left(\frac{z}{l_{\text{eff}}} \right). \quad (5.8-9)$$

这即是(5.8-4)式在 $\Delta k=0$ (相位匹配条件下)时的结果。

2. 参量振荡

上面我们分析讨论了一个频率为 ω_3 的泵浦波在非线性晶体内, 通过三波相互作用, 对频率为 ω_1 和 ω_2 的光波进行放大的问题。如果将非线性晶体放在一个光学共振腔内, 并且这个共振腔对信号波、闲置波之一或两者是共振的, 那么在泵浦光达到某个阈值泵浦强度时, 参量增益恰好与信号波和闲置波的损耗相平衡, 这时, 信号波和闲置波便同时引起振荡。这就是光参量振荡器的物理基础。参量振荡器的重要性在于它能将一个用作泵浦的激光器输出转换为信号和闲置频率的相干输出, 而且可以在一个很宽的频率范围内实现连续的调谐。

图5-11示意了一种既对信号波, 又对闲置波共振的双共振参量振荡器原理结构。图中频率为 ω_3 的激光输出作为泵浦, 总的增益将使 ω_1 和 ω_2 的波在含有非线性晶体的光学谐振腔内产生振荡。

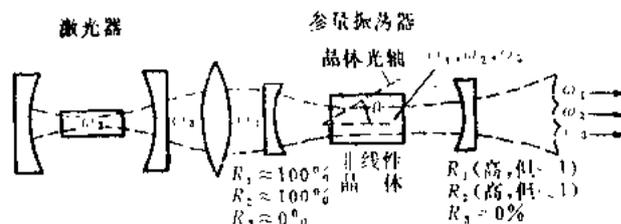


图 5-11 双共振光参量振荡器示意图

(1) 参量放大基本方程的另一表示形式

因为

$$S_{\omega_\alpha} = \frac{1}{2} \varepsilon_0 \eta_\alpha^2 |\mathcal{E}(\omega_\alpha)|^2 v_\alpha = \frac{1}{2} \sqrt{\frac{\varepsilon_0}{\mu_0}} \omega_\alpha \frac{\eta_\alpha |\mathcal{E}(\omega_\alpha)|^2}{\omega_\alpha},$$

以及

$$\begin{aligned} N_{\omega_\alpha} &= \frac{S_{\omega_\alpha}}{\hbar \omega_\alpha} \\ &= \frac{1}{2} \sqrt{\frac{\varepsilon_0}{\mu_0}} \frac{\eta_\alpha |\mathcal{E}(\omega_\alpha)|^2}{\hbar \omega_\alpha}, \end{aligned}$$

因而量 $(\eta_\alpha |\mathcal{E}(\omega_\alpha)|^2/\omega_\alpha)$ 与频率为 ω_α 的光子通量成正比。令

$$\frac{\eta_\alpha}{\omega_\alpha} |\mathcal{E}(\omega_\alpha)|^2 = |A_{\omega_\alpha}|^2 = 4 \frac{\eta_\alpha}{\omega_\alpha} |E(\omega_\alpha)|^2,$$

于是就有关系

$$E(\omega_\alpha) = \frac{1}{2} \sqrt{\frac{\omega_\alpha}{\eta_\alpha}} A_{\omega_\alpha}. \quad (5.8-10)$$

如果我们求得 A_{ω_α} 之后给出 $|A_{\omega_\alpha}|^2$, 那么 $|A_{\omega_\alpha}|^2$ 就代表所要求的光子通量 (只差一个常数)。在下面我们将 $E(\omega_\alpha)$ 和 A_{ω_α} 分别简写为 E_α 和 A_α 。

现在我们将(5.5-16)~(5.5-18)式中的场强按(5.8-10)式作变量代换, 则由(5.5-16)式有

$$\frac{dA_1}{dz} = i \sqrt{\frac{\omega_1 \omega_2}{\eta_1 \eta_2}} \sqrt{\mu_0 \epsilon_0} \chi_c^{(2)} E_3 A_2^* \exp(-i \Delta k z). \quad (5.8-11)$$

令

$$\sqrt{\frac{\omega_1 \omega_2}{\eta_1 \eta_2}} \sqrt{\mu_0 \epsilon_0} \chi_c^{(2)} E_3 = \frac{g}{2}, \quad (5.8-12)$$

则我们有

$$\frac{dA_1}{dz} = i \frac{g}{2} A_2^* \exp(-i \Delta k z). \quad (5.8-13)$$

同理, 由(5.5-17)式可得

$$\frac{dA_2}{dz} = i \frac{g}{2} A_1^* \exp(-i \Delta k z) \quad (5.8-14a)$$

及

$$\frac{dA_2^*}{dz} = -i \frac{g}{2} A_1 \exp(i \Delta k z). \quad (5.8-14b)$$

因此可得 A_2^* 和 A_1 的微分方程分别为

$$\frac{d^2 A_1}{dz^2} + i \Delta k \frac{dA_1}{dz} - \frac{g^2}{4} A_1 = 0, \quad (5.8-15a)$$

$$\frac{d^2 A_2^*}{dz^2} - i \Delta k \frac{dA_2^*}{dz} - \frac{g^2}{4} A_2^* = 0, \quad (5.8-15b)$$

边界条件为

$$\left. \begin{aligned} A_1(z)|_{z=0} &= A_1(0), \\ A_2^*(z)|_{z=0} &= A_2^*(0), \\ \frac{dA_1}{dz} \Big|_{z=0} &= i \frac{g}{2} A_2^*(0). \end{aligned} \right\} \quad (5.8-16)$$

求解(5.8-15a)式时, 可得

$$A_1 = \frac{i \Delta k A_1(0) + i \frac{g}{2} A_2(0)}{i b} \exp\left(i \frac{\Delta k z}{2}\right) \sin(i b z)$$

$$- \frac{i}{2} \frac{g}{ib} A_1(0) \exp\left(-i \frac{\Delta k z}{2}\right) \sin(ibz - \varphi). \quad (5.8-17)$$

式中

$$b = \frac{1}{2} \sqrt{g^2 - (\Delta k)^2}. \quad (5.8-18)$$

将 $z=0$ 代入(5.8-17)式, 立即可得

$$\sin \varphi = \frac{2b}{g} \quad (5.8-19)$$

和

$$\cos \varphi = \frac{\Delta k}{g}. \quad (5.8-20)$$

再将(5.8-19)式和(5.8-20)式代入解(5.8-17)式后, 有

$$A_1 \exp\left(i \frac{\Delta k z}{2}\right) = A_1(0) \left[\operatorname{ch}(bz) + \frac{i \Delta k}{2b} \operatorname{sh}(bz) \right] + \frac{ig}{2b} A_2(0) \operatorname{sh}(bz). \quad (5.8-21)$$

同理可得

$$A_2^* \exp\left(-i \frac{\Delta k z}{2}\right) = A_2^*(0) \left[\operatorname{ch}(bz) - \frac{i \Delta k}{2b} \operatorname{sh}(bz) \right] - \frac{ig}{2b} A_1(0) \operatorname{sh}(bz). \quad (5.8-22)$$

(5.8-21)式和(5.8-22)式表示在一般情况下信号波和闲置波随着其通过非线性晶体距离 z 而变化的规律, 也就是频率为 ω_s 的泵浦波同时放大频率为 ω_1 和 ω_2 的信号波和闲置波的一般规律。下面我们将从这两个方程出发求出参量振荡的条件。

(2) 参量振荡的自洽条件

分析参量振荡的基本模型如图5-12所示。为简单起见, 假定非线性晶体本身被作成—个光学谐振腔, 其两端对信号波和闲置波复数场的反射系数分别为 r_1 和 r_2 , 即镜子对信号波和闲置波的反射率为 $|r_i|^2 = R_i (i=1,2)$ 。腔镜对泵浦场则是透明的。

在腔中(非线性晶体内)任一平面 z 处的信号可以用一个行“矢量”

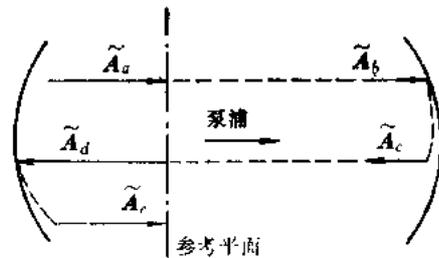


图 5-12 信号-闲置“矢量” \tilde{A} 的双程传播
(用来推导参量振荡条件)

$$\tilde{A}(z) = \begin{bmatrix} A_1(z) \exp(-ik_1 z) \\ A_2^*(z) \exp(ik_2 z) \end{bmatrix} \quad (5.8-23)$$

来描述, 式中 $k_i = \omega_i n_i / c$, A 的顶上加“ \sim ”表示此矢量是人为假定的。按(5.8-21)~(5.8-23)式, 在非线性晶体内通过长度为 l 时的 $\tilde{A}(l)$ 为

$$\tilde{A}(l) = \begin{bmatrix} A_1(l) \exp(-ik_1 l) \\ A_2^*(l) \exp(ik_2 l) \end{bmatrix}$$

$$\begin{aligned}
 & \left[\begin{array}{l} \exp\left[-i\left(k_1 + \frac{\Delta k}{2}\right)l\right] \\ \times \left[\operatorname{ch}(bl) - \frac{i\Delta k}{2b} \operatorname{sh}(bl) \right] \\ -i \exp\left[i\left(k_1 + \frac{\Delta k}{2}\right)l\right] \frac{g}{2b} \operatorname{sh}(bl) \end{array} \right] \\
 & \left[\begin{array}{l} i \exp\left[-i\left(k_1 + \frac{\Delta k}{2}\right)l\right] \cdot \frac{g}{2b} \operatorname{sh}(bl) \\ \exp\left[i\left(k_2 + \frac{\Delta k}{2}\right)l\right] \\ \times \left[\operatorname{ch}(bl) - \frac{i\Delta k}{2b} \operatorname{sh}(bl) \right] \end{array} \right] \begin{pmatrix} A_1(0) \\ A_2^*(0) \end{pmatrix} \\
 & \hspace{15em} (5.8-24)
 \end{aligned}$$

如果“矢量” $\tilde{A}(z)$ 在共振腔内往返一周后保持不变,则表示信号波和闲置波处于稳定的振荡状态。现在我们来求参量振荡器的振荡条件。

设在图5-12中腔镜左端处的场矢量为 \tilde{A}_n ,经过如下四个矩阵变换,即从左向右的传播;在右边镜子上的反射;从右向左的传播(在这个过程中没有参量增益);在左边镜子上的反射。结果由矢量 \tilde{A}_n 变换为 \tilde{A}_n 。如果再假定振荡器是在相位匹配条件($\Delta k=0$)下运用的,那么就有

$$\begin{aligned}
 \tilde{A}_n &= \begin{bmatrix} r_1 & 0 \\ 0 & r_2^* \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \exp(-ik_1 l) & 0 \\ 0 & \exp(ik_2 l) \end{bmatrix} \begin{bmatrix} r_1 & 0 \\ 0 & r_2^* \end{bmatrix} \\
 & \times \begin{bmatrix} \exp(-ik_1 l) \operatorname{ch}\left(\frac{g}{2}l\right) & i \exp(-ik_1 l) \operatorname{sh}\left(\frac{g}{2}l\right) \\ -i \operatorname{sh}\left(\frac{g}{2}l\right) \exp(ik_2 l) & \exp(ik_2 l) \operatorname{ch}\left(\frac{g}{2}l\right) \end{bmatrix} \tilde{A}_n, \quad (5.8-25)
 \end{aligned}$$

或者简写为

$$\tilde{A}_n = M \tilde{A}_n \quad (5.8-26)$$

这里

$$M = \begin{bmatrix} r_1^2 \operatorname{ch}\left(\frac{g}{2}l\right) \exp(-i2k_1 l) & i r_1^2 \operatorname{sh}\left(\frac{g}{2}l\right) \exp(-i2k_1 l) \\ -i (r_2^*)^2 \operatorname{sh}\left(\frac{g}{2}l\right) \exp(i2k_2 l) & (r_2^*)^2 \operatorname{ch}\left(\frac{g}{2}l\right) \exp(i2k_2 l) \end{bmatrix} \quad (5.8-27)$$

自洽条件要求

$$\tilde{A}_n = \tilde{A}_n \quad (5.8-28)$$

或

$$\tilde{A}_n = M \tilde{A}_n \quad (5.8-29)$$

即要求

$$(M - I) \tilde{A}_n = 0 \quad (5.8-30)$$

所以上式具有非零解的要求是

$$\det\{M - I\} = 0.$$

因而有

$$\begin{aligned}
 & \left[r_1^2 \operatorname{ch}\left(\frac{g}{2}l\right) \exp(-i2k_1 l) - 1 \right] \left[(r_2^*)^2 \operatorname{ch}\left(\frac{g}{2}l\right) \exp(i2k_2 l) - 1 \right] \\
 & = r_1^2 (r_2^*)^2 \operatorname{sh}^2\left(\frac{g}{2}l\right) \exp[i2(k_2 - k_1)l], \quad (5.8-31)
 \end{aligned}$$

(5.8-31)式就是我们所要求的参量振荡器的振荡条件。

考虑到波在镜面上反射时有相位变化，可令

$$\left. \begin{aligned} r_1^* &= R_1 \exp(i\varphi_1), \\ (r_2^*)^* &= R_2 \exp(-i\varphi_2). \end{aligned} \right\} \quad (5.8-32)$$

因为对振荡器来说，增益 g 不能为负值，因此如果 $R_1 = 1$ ， $R_2 = 1$ ，则最小增益阈值 $g_{th} = 0$ ，代入(5.8-31)式后有

$$[\exp(-i2k_1 l + i\varphi_1) - 1][\exp(i2k_2 l - i\varphi_2) - 1] = 0.$$

由此便得到如下的关系：

$$\left. \begin{aligned} -\varphi_1 + 2k_1 l &= 2m\pi, \\ -\varphi_2 + 2k_2 l &= 2n\pi. \end{aligned} \right\} \quad (5.8-33)$$

式中 m 和 n 是两个整数。由此可见，信号波和闲置波的振荡频率 ω_1 和 ω_2 必须与光学谐振腔的两个纵向模相对应。

下面我们可以利用参量振荡条件(5.8-31)式导出两类重要的参量振荡器的阈值条件。

(3) 双共振参量振荡器和单共振参量振荡器

①双共振参量振荡器 所谓双共振参量振荡器，就是对频率为 ω_1 的信号波和频率为 ω_2 的闲置波都有高的 Q 值的振荡器。将(5.8-33)式和(5.8-32)式代入(5.8-31)式后，便得到双共振条件下的参量振荡条件为

$$\left[R_1 \operatorname{ch}\left(\frac{gl}{2}\right) - 1 \right] \left[R_2 \operatorname{ch}\left(\frac{gl}{2}\right) - 1 \right] = R_1 R_2 \operatorname{sh}^2\left(\frac{gl}{2}\right).$$

即

$$(R_1 + R_2) \operatorname{ch}\left(\frac{gl}{2}\right) - R_1 R_2 = 1. \quad (5.8-34)$$

如果镜子的反射率 R_1 、 $R_2 \approx 1$ 以及 $\operatorname{ch}\left(\frac{gl}{2}\right) \approx 1 + \frac{g^2 l^2}{8}$ ，代入(5.8-34)式得

$$g_{th} l = 2\sqrt{(1-R_1)(1-R_2)}. \quad (5.8-35)$$

再利用泵浦强度的表示式

$$S_{\omega_3} = \frac{1}{2} \sqrt{\frac{\epsilon_0 \eta_3^2}{\mu_0}} |\mathcal{E}(\omega_3)|^2$$

以及关于 g 的定义(5.8-12)式，可得双共振参量振荡器的阈值泵浦强度为

$$(S_{\omega_3})_{th} = 2 \left(\frac{\epsilon_0}{\mu_0}\right)^{3/2} \frac{\eta_1 \eta_2 \eta_3}{\omega_1 \omega_2 l^2 (\epsilon_0 \chi_c^{(2)})^2} (1-R_1)(1-R_2). \quad (5.8-36)$$

第一个光学参量振荡器是由乔特梅因(Giordmaine)和米勒(Miller)在1965年完成的，其装置原理如图5-13所示。光腔中放置 LiNbO_3 晶体，用529nm的非常光束作为泵浦，并垂直于光轴传播。利用共线非临界相位匹配而产生的信号波和闲置波都是平常光。

光学参量振荡器的一个重要特性是它的频率可调性，改变相位匹配条件就可以调节它的输出频率。例如对 LiNbO_3 晶体来说，可以用改变其温度的办法来改变其相位匹配条件，因为 LiNbO_3 晶体的非常光折射率对温度非常灵敏，图5-14给出了图5-13所描述的光学参量振荡器的温度调谐曲线。

当改变 LiNbO_3 晶体的温度时, 泵浦光(为非常光)的折射率 n_o^e 发生了改变, 于是为

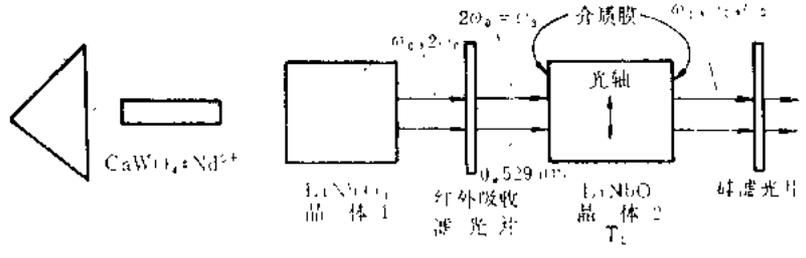


图 5-13 第一个光学参量振荡器示意图(其中 ω_1 、 ω_2 、 ω_3 分别为信号波、闲置波和泵浦波频率)

满足相位匹配条件 $n_o^e \omega_3 = n_o^e \omega_1 + n_o^e \omega_2$, 信号波和闲置波的频率 ω_1 和 ω_2 跟着发生改变。由此可见, 光参量振荡器可用来提供一个具有新的光学频率并且其频率可调的相干光辐射源。这是非常引人注意的。但对双共振参量振荡器来说, 为了同时满足条件

$$\omega_3 = \omega_1 + \omega_2 \quad (5.8-37)$$

和(5.8-33)式所要求的

$$1k_1 = \frac{\omega_1 n_1 l}{c} = m\pi + \frac{\varphi_1}{2}, \quad (5.8-38)$$

$$1k_2 = \frac{\omega_2 n_2 l}{c} = n\pi + \frac{\varphi_2}{2}$$

关系, 对光学谐振腔的稳定性提出了一个十分严格的要求。因为, 如果已满足了 $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ 的要求, 那么当存在某种原因, 如温度的漂移或外界的振动而引起腔长 l 的微小变化 dl , 为还能满足 (5.8-38) 式的要求, ω_1 和 ω_2 应按如下的规律

$$\frac{d\omega_1}{\omega_1} = \frac{d\omega_2}{\omega_2} = - \frac{dl}{l} \quad (5.8-39)$$

变化。可是这样以来条件 $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ 就不能再满足, 所以要同时满足 (5.8-37) 式和 (5.8-38) 式那是十分困难的事。

②单共振参量振荡器 所谓单共振参量振荡器, 即只有一个频率的波(如频率为 ω_1 的信号波)在腔镜处被反射返回形成振荡, 而闲置波 ω_2 只在一个方向上传播的振荡器。它的典型原理装置如图 5-15 所示。这是一种非共线相互作用的情况, 将信号波和闲置波分开来, 现在三个波的方向各不相同。这种非共线相互作用情况下的相位匹配条件要求

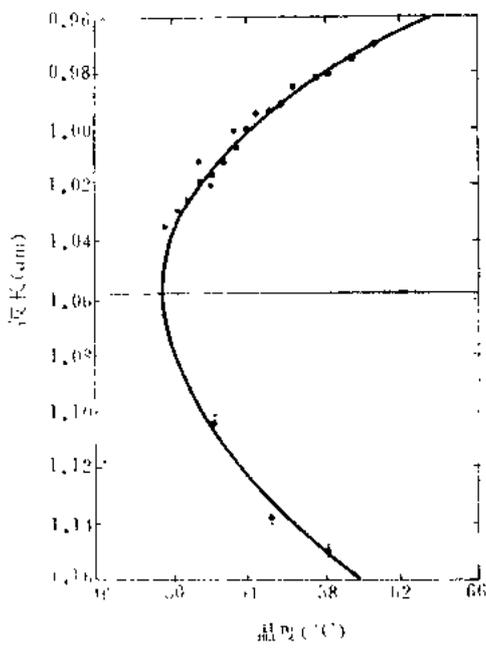


图 5-14 光学参量振荡器中信号波和闲置波的温度调谐曲线(泵浦波长为 $0.529\mu\text{m}$, 传播方向为 $\theta = 90^\circ$)

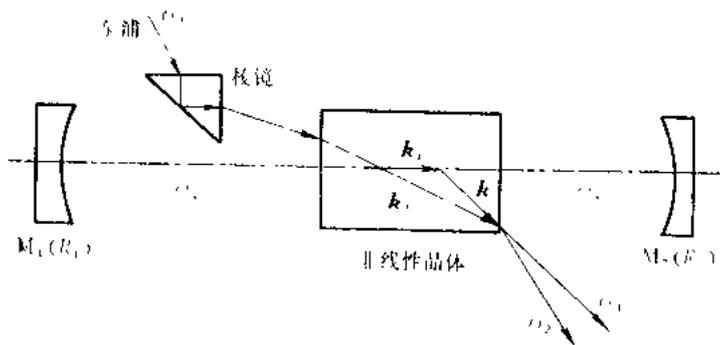


图 5-15 非共线相位匹配的单共振参量振荡器

$$k_3 = k_1 + k_2. \quad (5.8-40)$$

式中 k_3 是输入泵浦光波的波矢, k_1 是信号光波的波矢, k_2 是闲置光波的波矢。在图 5-15 中 k_1 的方向被固定在腔轴方向上。

根据参量振荡器的振荡条件(5.8-31)式, 令 $r_2 = 0$, 就有

$$r_1^2 \operatorname{ch}\left(\frac{g_1 l}{2}\right) \exp(-i2k_1 l) = 1. \quad (5.8-41)$$

这就是单共振参量振荡器的阈值条件。注意到(5.8-32)式, 我们又可以把(5.8-41)式分解为相位条件

$$\varphi_1 - 2k_1 l = 2m\pi \quad (5.8-42)$$

和振幅条件

$$R_1 \operatorname{ch}\left(\frac{g_1 l}{2}\right) = 1. \quad (5.8-43)$$

由上面的结果可以看到, 单共振参量振荡的相位条件(5.8-42)式与双共振参量振荡的相位条件(5.8-33)式是相同的, 只是对闲置波的相位 φ_2 没有限制。对于 $R_1 \approx 1$ 的情况, 阈值条件(5.8-43)式又可写成

$$g_{1th} l = \sqrt{8(1-R_1)}. \quad (5.8-44)$$

可见, 在单共振参量振荡的情况下, 阈值泵浦强度相对于双共振参量振荡器增大了, 这可由下式

$$\frac{(g_{1th} l)_{\text{单共振}}}{(g_{1th} l)_{\text{双共振}}} = \frac{2}{1-R_2} \quad (5.8-45)$$

清楚地看出。因为假定两种情况的 R_1 都相同, 当 $R_2 \approx 1$ 时, 这种增加是很大的。要指出的是, 如果有足够的泵浦功率可以被利用, 而且显著地超过阈值时, 这种增加是无害的, 它可以使 ω_2 和 ω_1 的相干输出增加。另外, 由于单共振参量振荡器只需闲置波或信号波满足(5.8-42)式的相位条件, 因而频率稳定性比双共振参量振荡器要好。

(4) 参量振荡器的频率调谐

到此, 我们应该十分清楚地地区分参量振荡器与激光振荡器在工作原理上的不同点。光参量振荡器不是利用原子共振跃迁的机理来进行工作的, 因而它可以在很宽的频率范围内进行调谐。下面我们详细分析一下在共线相位匹配条件下频率调谐的规律。

在共线相位匹配条件下有

$$\omega_3 n_3 = \omega_2 n_2 + \omega_1 n_1. \quad (5.8-46)$$

同时, 要满足能量守恒定律(5.8-37)式, 即

$$\omega_3 = \omega_1 + \omega_2.$$

一般讲, 晶体的折射率 η_1 、 η_2 、 η_3 与晶体的取向(对非常光)、温度、电场以及压力等因素都有关。由(5.8-37)式和(5.8-46)式可见, 我们可以控制 η_1 、 η_2 和 η_3 中的任何一个, 从而改变参量振荡器的输出频率 ω_1 和 ω_2 。

如果我们采用角度调谐, 并假定频率为 ω_3 的泵浦波是非常波, ω_1 和 ω_2 的波是平常波, 又假定当晶体光轴与共振腔轴之间的夹角为某一角度 θ_0 时, 在频率 ω_{1_0} 和 ω_{2_0} 处发生振荡, 这时折射率分别为 η_{1_0} 和 η_{2_0} , 按(5.8-46)式应有

$$\omega_3 \eta_{3e}(\theta_0) = \omega_{1_0} \eta_{1_0} + \omega_{2_0} \eta_{2_0}.$$

现转动晶体使晶轴相对原来方向转过 $\Delta\theta$ 角度, 这就引起折射率 η_{3e} 的改变, 为满足相位匹配条件(5.8-46)式, ω_1 和 ω_2 必须稍有改变, 这又导致折射率 η_{1_0} 和 η_{2_0} 的改变。这样, 相对于 θ_0 时的振荡来说, 新旧振荡之间有如下的改变:

$$\begin{aligned} \omega_3 &\rightarrow \omega_3 \text{ (即泵浦频率不变),} \\ \eta_{3e} &\rightarrow \eta_{3e} + \Delta\eta_3, \\ \eta_{1_0} &\rightarrow \eta_{1_0} + \Delta\eta_1, \\ \eta_{2_0} &\rightarrow \eta_{2_0} + \Delta\eta_2, \\ \omega_{1_0} &\rightarrow \omega_{1_0} + \Delta\omega_1, \\ \omega_{2_0} &\rightarrow \omega_{2_0} + \Delta\omega_2. \end{aligned}$$

而且根据能量守恒条件(5.8-37)式有

$$-\Delta\omega_2 = \Delta\omega_1.$$

因为现在要求新的一组频率满足(5.8-46)式, 故应有

$$\begin{aligned} \omega_3 (\eta_{3e} + \Delta\eta_3) &= (\omega_{2_0} + \Delta\omega_2) (\eta_{2_0} + \Delta\eta_2) \\ &\quad + (\omega_{1_0} + \Delta\omega_1) (\eta_{1_0} + \Delta\eta_1). \end{aligned}$$

略去 $\Delta\eta\Delta\omega$ 的二阶小项, 并利用(5.8-37)式, 可得

$$\Delta\omega_1 = \frac{\omega_3 \Delta\eta_3 - \omega_{1_0} \Delta\eta_1 - \omega_{2_0} \Delta\eta_2}{\eta_{1_0} - \eta_{2_0}} \quad (5.8-47)$$

因为按假定, 泵浦波 ω_3 是非常波且 ω_3 不变, 所以 η_{3e} 只是 θ 的函数, 即 $\eta_{3e} = \eta_{3e}(\theta)$, 而 η_1 和 η_2 是平常光波的折射率, 与 θ 无关, 只是频率的函数。因而有如下的关系:

$$\Delta\eta_1 = \left. \frac{\partial \eta_{1_0}}{\partial \omega} \right|_{\omega_{1_0}} \Delta\omega_1, \quad (5.8-48a)$$

$$\Delta\eta_2 = \left. \frac{\partial \eta_{2_0}}{\partial \omega} \right|_{\omega_{2_0}} \Delta\omega_2, \quad (5.8-48b)$$

$$\Delta\eta_3 = \left. \frac{\partial \eta_{3e}}{\partial \theta} \right|_{\theta=\theta_0} \Delta\theta. \quad (5.8-48c)$$

利用(5.8-48)式, 连同 $\Delta\omega_2 = -\Delta\omega_1$ 代入(5.8-47)式后, 可得到振荡频率相对于晶体取向的变化率为

$$\frac{\partial \omega_1}{\partial \theta} = \frac{\omega_3 \left(\frac{\partial \eta_{3e}}{\partial \theta} \right)}{(\eta_{1_0} - \eta_{2_0}) + \left[\omega_{1_0} \left(\frac{\partial \eta_{1_0}}{\partial \omega} \right) - \omega_{2_0} \left(\frac{\partial \eta_{2_0}}{\partial \omega} \right) \right]}. \quad (5.8-49)$$

再利用(4.1-81)式

$$\frac{1}{\eta_e^2(\theta)} = \frac{\cos^2\theta}{\eta_o^2} + \frac{\sin^2\theta}{\eta_e^2}$$

和微分关系 $d(1/x^2) = -2dx/x^3$, 可得

$$\frac{\partial \eta_{3e}}{\partial \theta} = -\frac{\eta_{3e}^2}{2} \sin 2\theta \cdot \left[\frac{1}{\eta_e^2(\omega_3)} - \frac{1}{\eta_o^2(\omega_3)} \right]. \quad (5.8-50)$$

式中 $\eta_e(\omega_3)$ 和 $\eta_o(\omega_3)$ 分别表示频率为 ω_3 的非常波和平常波的主折射率。现将(5.8-50)式代入(5.8-49)式后, 最后得到

$$\frac{\partial \omega_1}{\partial \theta} = -\frac{1}{2} \omega_3 \eta_{3e}^3(\theta_0) \left[\left(\frac{1}{\eta_e(\omega_3)} \right)^2 + \left(\frac{1}{\eta_o(\omega_3)} \right)^2 \right] \frac{\sin 2\theta}{(\eta_{1o} - \eta_{2o}) + \left[\omega_{1o} \left(\frac{\partial \eta_{1e}}{\partial \omega} \right) - \omega_{2o} \left(\frac{\partial \eta_{2o}}{\partial \omega} \right) \right]}. \quad (5.8-51)$$

图5-16给出非线性晶体为ADP时, 信号频率 ω_1 随 θ 的变化关系, θ 是ADP晶体光轴与泵浦光传播方向之间的夹角。图中的角度值是在 $\omega_1 = \omega_3/2$ 的情况下测得的, 图中同时也给出了理论曲线。

九、背向参量放大与振荡

我们在七、八中所讨论的都是前向散射参量放大与振荡, 通常的可调谐光参量振荡器都是采用前向散射的原理而工作的。现在我们将要讨论信号波与闲置波在相反方向运行时的参量相互作用。

现令信号波在负 z 方向上运行, 闲置波在正 z 方向上运行, 则有

$$\left. \begin{aligned} A_1(z, t) &= A_1(z) \exp[-i(\omega_1 t + k_1 z)], \\ A_2(z, t) &= A_2(z) \exp[-i(\omega_2 t - k_2 z)]. \end{aligned} \right\} \quad (5.9-1)$$

类似于(5.8-13)式和(5.8-14)式, 这里应有

$$\left. \begin{aligned} \frac{dA_1}{dz} &= -i \frac{g}{2} A_2^* \exp(i\Delta kz), \\ \frac{dA_2^*}{dz} &= -i \frac{g}{2} A_1 \exp(-i\Delta kz). \end{aligned} \right\} \quad (5.9-2)$$

式中

$$\begin{aligned} \omega_3 &= \omega_1 + \omega_2, \\ \Delta k &= k_3 - k_1 - k_2. \end{aligned} \quad (5.9-3)$$

注意(5.9-2)式与(5.8-13)式和(5.8-14)式的差别只是(5.9-2)式第一式的符号不同, 两者

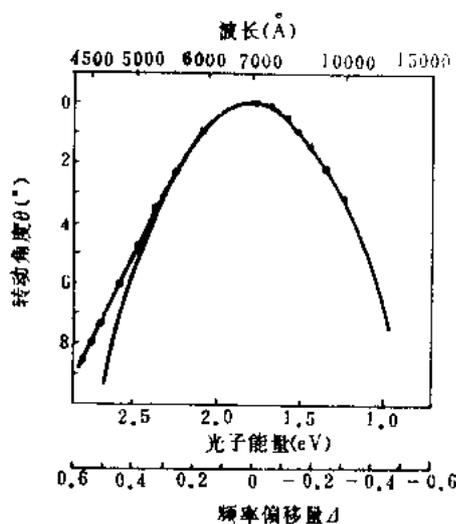


图5-16 信号频率 ω_1 随 θ 的变化曲线(θ 是以 $\omega_1 = \omega_3/2$ 时的角度为基准来量度的,

$$\Delta = \left(\frac{\omega_1 - \omega_3}{2} \right) / \left(\frac{\omega_3}{2} \right)$$

Δk 的关系不同。此外,有一个关键性的差别是,两者所应用的边界条件不同,如图5-17所示。

由(5.9-2)式很容易求得 A_1 的微分方程为

$$\frac{d^2 A_1}{dz^2} + i\Delta k \frac{dA_1}{dz} + \frac{g^2}{4} A_1 = 0. \quad (5.9-4)$$

在相位匹配条件下, $\Delta k = 0$, 可得(5.9-4)式的通解为

$$A_1(z) = c_1 \cos\left(\frac{g}{2} z\right) + c_2 \sin\left(\frac{g}{2} z\right). \quad (5.9-5)$$

根据边界条件, $z = 0$ 时, 有 $A_1(z) = A_1(0)$, 代入(5.9-5)式可得 $c_1 = A_1(0)$ 。因而

$$A_1(L) = A_1(0) \cos\left(\frac{g}{2} L\right) + c_2 \sin\left(\frac{g}{2} L\right). \quad (5.9-6)$$

又根据(5.9-2)式中第一式有

$$\left(\frac{dA_1}{dz}\right)_{z=0} = -i \frac{g}{2} A_2^*(0).$$

将(5.9-5)式代入便给出 $c_2 = -i A_2^*(0)$ 。由此可得

$$\begin{aligned} A_1(z) &= A_1(0) \cos\left(\frac{g}{2} z\right) - i A_2^*(0) \sin\left(\frac{g}{2} z\right) \\ &= \frac{1}{\cos\left(\frac{g}{2} L\right)} \left[A_1(L) + i A_2^*(0) \sin\left(\frac{g}{2} L\right) \right] \cos\left(\frac{g}{2} z\right) \\ &\quad - i A_2^*(0) \sin\left(\frac{g}{2} z\right) \\ &= \frac{A_1(L)}{\cos\left(\frac{g}{2} L\right)} \cos\left(\frac{g}{2} z\right) + \frac{i A_2^*(0)}{\cos\left(\frac{g}{2} L\right)} \sin\left[\frac{g}{2} (L-z)\right]. \end{aligned} \quad (5.9-7)$$

同理可得

$$\frac{d^2 A_2^*(z)}{dz^2} = -\frac{g^2}{4} A_2^*(z).$$

并利用边界条件

$$A_2^*(z)|_{z=0} = A_2^*(0),$$

$$\left(\frac{dA_2^*(z)}{dz}\right)_{z=0} = -i \frac{g}{2} A_1(0),$$

可解得

$$A_2^*(z) = -\frac{i A_1(L)}{\cos\left(\frac{g}{2} L\right)} \sin\left(\frac{g}{2} z\right) + \frac{A_2^*(0)}{\cos\left(\frac{g}{2} L\right)} \cos\left[\frac{g}{2} (L-z)\right]. \quad (5.9-8)$$

这样, 在信号波和闲置波反向运行时, 在 $z = 0$ 和 $z = L$ 处的输出场为

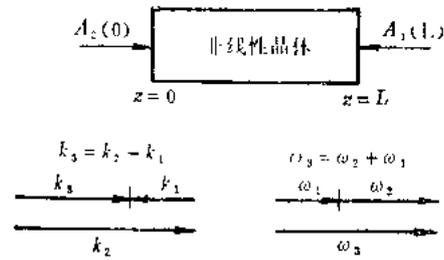


图 5-17 背向参量相互作用下的边界条件和相位匹配

$$A_1(0) = \frac{A_1(L)}{\cos\left(\frac{g}{2}L\right)} + iA_2^*(0) \operatorname{tg}\left(\frac{g}{2}L\right),$$

$$A_2^*(L) = -iA_1(L) \operatorname{tg}\left(\frac{g}{2}L\right) + \frac{A_2^*(0)}{\cos\left(\frac{g}{2}L\right)}. \quad (5.9-9)$$

在这里，特别有意义的情况是 $gL = \pi$ 时的情形，这时，在每一端为有限的输入时， $A_1(0)$ 和 $A_2^*(L)$ 都变成无穷大。换句话说，即使没有输入，即 $A_1(L) = 0$ ， $A_2^*(0) = 0$ ，我们仍可得到有限的输出。

在 $gL \rightarrow \pi$ 的极限情况下，(5.9-7) 式和 (5.9-8) 式可以写为

$$A_1(z) = \frac{A_1(L)}{\cos\left(\frac{g}{2}L\right)} \sin\left[\frac{g}{2}(L-z)\right] + \frac{iA_2^*(0) \sin\left[\frac{g}{2}(L-z)\right]}{\cos\left(\frac{g}{2}L\right)}$$

$$= \frac{A_1(L) + iA_2^*(0)}{\cos\left(\frac{g}{2}L\right)} \sin\left[\frac{g}{2}(L-z)\right]$$

$$= A \sin\left[\frac{g}{2}(L-z)\right] \quad (5.9-10)$$

$$A_2^*(z) = -\frac{iA_1(L)}{\cos\left(\frac{g}{2}L\right)} \cos\left[\frac{g}{2}(L-z)\right] + \frac{A_2^*(0)}{\cos\left(\frac{g}{2}L\right)} \cos\left[\frac{g}{2}(L-z)\right]$$

$$= \frac{-iA_1(L) + A_2^*(0)}{\cos\left(\frac{g}{2}L\right)} \cos\left[\frac{g}{2}(L-z)\right]$$

$$= -iA \cos\left[\frac{g}{2}(L-z)\right]. \quad (5.9-11)$$

式中

$$A = \frac{A_1(L) + iA_2^*(0)}{\cos\left(\frac{g}{2}L\right)}. \quad (5.9-12)$$

这时 $A_1(z)$ 和 $A_2^*(z)$ 在非线性质内的变化规律如图 5-18 所示。

如果 $A_2^*(0) = 0$ ， $A_1(L) \neq 0$ ，则由 (5.9-7) 式可得信号 A_1 经过非线性介质后的增益为

$$G = \frac{|A_1(0)|^2}{|A_1(L)|^2} = \frac{1}{\left|\cos\left(\frac{g}{2}L\right)\right|^2}. \quad (5.9-13)$$

当满足 $gL = \pi$ 时， $G \rightarrow \infty$ 。

如果 $A_1(L) = 0$ ， $A_2^*(0) \neq 0$ ，按 (5.9-8) 式又可得闲置波通过非线性介质后的增益为

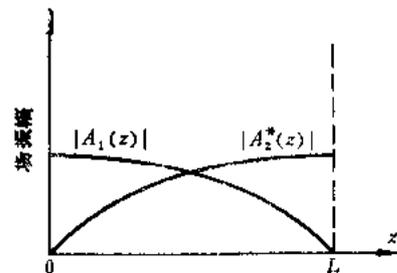


图 5-18 在背向参量振荡器中的信号场 $A_1(z)$ 和闲置场 $A_2^*(z)$

$$G = \frac{|A_z(L)|^2}{|A_z(0)|^2} = \frac{1}{\left| \cos\left(\frac{g}{2}L\right) \right|^2} \quad (5.9-11)$$

当 $gL = \pi$ 时, 增益 G 也趋于无穷大。

到此, 我们要指出的是, 增益趋于无穷大的物理意义在于: 即使没有信号输入, 信号波和闲置波仍可以产生振荡, $gL = \pi$ 就是振荡阈值。另外, 我们在八中分析前向参量振荡时曾指出, 为了产生振荡, 需要在非线性介质外面加谐振腔, 以提供反馈。而由这一节的分析可见, 背向散射除了能对 ω_1 或 ω_2 的入射信号进行放大外, 由于本身有反馈, 所以在一定的泵浦条件下, 并不需要外加谐振腔也可以产生振荡。这种背向行波振荡器的工作原理与分析反馈激光器的工作原理相类似。不过要作出本节所讨论的参量振荡器还是有困难的, 原因是缺乏具有足够双折射的非线性光学材料使之满足折射率匹配条件 $n_3\omega_3 + n_1\omega_1 = n_2\omega_2$ 。从图5-17可见, 要满足矢量图的关系, 就必须有 $\omega_3 n_3 < n_2\omega_2$, 然而 $\omega_3 > \omega_1$, 所以这种器件可能只限于 $\omega_1 \ll \omega_2$ 、 ω_3 的情况下运用。

参 考 文 献

- [1] JI. 瓦朗道, E.M. 栗弗席兹: 《连续媒质电动力学》(下册)(周奇译), 人民教育出版社, 1963年, 第431页。
- [2] 同上, 第433页, 第502页。
- [3] A. Nussbaum and R.A. Phillips, *Contemporary Optics for Scientists and Engineers*, Prentice-Hall, Inc. Englewood Cliffs, New Jersey, 403(1976).
- [4] S.L. Shapiro, *Ultrashort Light Pulses, Picosecond Techniques and Applications*, Springer-Verlag Berlin Heidelberg, New York, 184(1976).
- [5] T.P. McLean, *Linear and Non-linear Optics of Condensed Matter, Interaction of Radiation with Condensed Matter, Vol. 1*, International Atomic Energy Agency Vienna, 1977, p. 56.

第六章 三阶电极化引起的非线性现象

在第五章中，我们讨论了二阶非线性电极化所引起的一些非线性光学现象，在这些现象中，没有涉及介质与辐射场之间的能量交换。并且我们一再指出，只有缺乏中心对称的介质，才存在二阶电极化非线性效应，否则二阶电极化率张量 $\chi^{(2)}$ 等于零。

在这一章中，我们将要讨论由三阶非线性电极化所引起的一些现象。对三阶非线性电极化来说，不管介质有什么对称性，总有一些非零的三阶电极化率张量元素。与第五章中所讨论的三波耦合现象相类似，这里有四波耦合的有关现象。我们将讨论与辐射场和介质之间有能量交换有关的一些现象，例如，最简单的一种过程是辐射场的两个频率分量之和或之差接近于介质的某个跃迁频率。对于后者来说，如果不存在集居数反转的状态，那么介质从辐射场中吸收能量。不过介质从辐射场中吸收能量并不意味着参与过程的两个分量都一定要衰减，可能低频分量被放大，高频分量被衰减，这种情况就是受激喇曼效应。如果辐射场的两个频率分量之和接近于介质的某个跃迁频率，就产生所谓双光子吸收现象。此外，由三阶电极化所引起的现象中还有三次谐波产生和克尔效应等。

一、克尔效应

克尔在1875年发现如下的现象：当线偏振光通过加有电场作用的玻璃时，变为椭圆偏振光。如图6-1所示。当旋转检偏器时，光不消失，表明是椭圆偏振光。这现象表示玻璃在外加恒定场和光波场的作用下，由原来的各向同性的性质变成在光学上的各向异性，外加场感应线性双折射。折射率的变化与外加场强平方成正比。

现假定介质受到一个恒定电场 E_0 和一个光波场 $E \exp(-i\omega t) + C.C.$ 的作用，考虑到三阶非线性电极化效应，按(1.3-14)式和(1.3-16)式有

$$\begin{aligned}
 P_{\mu}(\omega, t) &= P_{\mu}^{(1)}(\omega, t) + P_{\mu}^{(3)}(\omega, t) \\
 &= [\epsilon_0 \chi_{\mu\alpha}^{(1)}(\omega) E_{\alpha} \exp(-i\omega t) + C.C.] \\
 &\quad + 3\epsilon_0 [\chi_{\mu\alpha}^{(3)}(\omega, 0, 0) E_{\alpha} E_{0\beta} E_{0\gamma} \exp(-i\omega t) + C.C.] \\
 &= \epsilon_0 [\chi_{\mu\alpha}^{(1)}(\omega) + 3\chi_{\mu\alpha}^{(3)}(\omega, 0, 0) E_{0\beta} E_{0\gamma}] E_{\alpha} \exp(-i\omega t) + C.C.
 \end{aligned}
 \tag{6.1-1}$$

这表示由于三阶非线性效应，恒定电场的作用使介质的介电张量元素 $\epsilon_{\mu\alpha}$ 的值改变了

$$\delta\epsilon_{\mu\alpha} = 3\epsilon_0 \chi_{\mu\alpha}^{(3)}(\omega, 0, 0) E_{0\beta} E_{0\gamma}
 \tag{6.1-2}$$

式中因子3是由于已考虑了三阶电极化率张量元素 $\chi_{\mu\alpha}^{(3)}(\omega, 0, 0)$ 的本征对易对称性。

现在进一步分析用另一光波场代替恒定电场 E_0 的情况。假定有一束频率为 ω 的光波场作用在介质上的同时，还有另一束任意频率 ω' 的光波场作用于该介质，那么由于后者的作

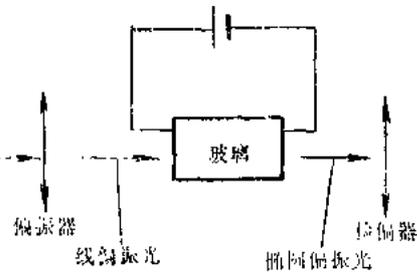


图6-1 克尔效应实验示意图

用, 会使介质对前者的影响有所改变。通过三阶非线性效应, 在频率 ω 上产生与频率为 ω' 的场强平方有关的三阶非线性电极化强度

$$\mathbf{P}^{(3)}(\omega) = 6\epsilon_0 \chi^{(3)}(\omega, \omega', -\omega') : \mathbf{E}(\omega) \mathbf{E}(\omega') \mathbf{E}(\omega'), \quad (6.1-3)$$

要指出的是, 不管频率 ω' 的值如何, 即对任意频率 ω' 来说, 总是精确地在频率 ω 上产生一个三阶非线性电极化强度 $\mathbf{P}^{(3)}(\omega)$ 。而且与线性电光效应不同, 这种效应在任何材料中都能产生, 因为没有 $\chi^{(3)}$ 等于零的材料。

之所以利用玻璃来观察克尔效应, 那是因为它各向同性介质, 原来没有双折射效应, 只有感应双折射, 因而比较容易观察克尔效应。

克尔效应的大小, 用所谓克尔常数来量度。对各向同性介质来说, 克尔常数被定义为

$$K_{\omega'}(\omega) = \frac{\Delta\eta_{\parallel}(\omega) - \Delta\eta_{\perp}(\omega)}{I_0 \epsilon^2(\omega)}, \quad (6.1-4)$$

式中 $\Delta\eta_{\parallel}(\omega)$ 和 $\Delta\eta_{\perp}$ 分别是偏振方向与外加场的偏振方向(频率为 ω' , 场强为 $\mathbf{E}(\omega')$)相平行和相垂直的辐射(频率为 ω)的折射率 $\eta(\omega)$ 的改变量。在这里所定义的克尔系数 $K_{\omega'}(\omega)$ 对各向同性介质来说, 与外加场的方向无关。但对各向异性介质来说, 则与外加场的方向就有关了。

现在我们讨论各向同性介质的克尔系数 $K_{\omega'}(\omega)$ 与三阶非线性电极化率 $\chi^{(3)}$ 之间的关系。假定频率为 ω 的光波沿 z 方向传播, 由(6.1-3)求得

$$\begin{aligned} \mathbf{P}^{(3)}(\omega) &= 6\epsilon_0 \chi^{(3)}(\omega, \omega', -\omega') : \mathbf{a}(\omega) \mathbf{a}(\omega') \mathbf{a}(\omega') \\ &\quad \times |E(\omega')|^2 E(\omega) \exp(ikz). \end{aligned} \quad (6.1-5)$$

又假定频率为 ω' 的场在 y 方向偏振, $\mathbf{a}(\omega') = (0, 1, 0)$, 并有 $|E(\omega')|^2 = \frac{1}{4} \epsilon^2(\omega')$, 那么

$$\begin{aligned} P_x^{(3)}(\omega) &= \frac{3\epsilon_0}{2} \epsilon^2(\omega') E(\omega) \exp(ikz) \\ &\quad \times \sum_{\alpha=x, y, z} \chi_{\alpha\alpha\alpha y}^{(3)}(\omega, \omega', -\omega') a_{\alpha}(\omega). \end{aligned} \quad (6.1-6)$$

由第三章的表3-5可查得各向同性介质的三阶电极化率张量的非零元素是

$$\begin{aligned} XXXX &= YYY Y = ZZZZ \\ YYZZ &= ZZYY = ZZXX = XXZZ = XXY Y = YYXX \\ YZYZ &= ZYZY = ZXZX = XZXX = XYXY = YXYX \\ YZZY &= ZYYZ = ZXYZ = XZZX = XYYX = YXXY, \end{aligned}$$

并有

$$XXXX - XXY Y + XYXY + XYYX.$$

则由(6.1-6)式得

$$P_x^{(3)}(\omega) = \frac{3}{2} \epsilon_0 \epsilon^2(\omega') \chi_{\alpha\alpha\alpha y}^{(3)}(\omega, \omega', -\omega') a_{\alpha}(\omega) E(\omega) \exp(ikz) \quad (6.1-7a)$$

$$P_y^{(3)}(\omega) = \frac{3}{2} \epsilon_0 \epsilon^2(\omega') \chi_{yy\alpha\alpha}^{(3)}(\omega, \omega', -\omega') a_{\alpha}(\omega) E(\omega) \exp(ikz). \quad (6.1-7b)$$

这里已利用频率为 ω 的光波沿 z 方向传播的假定即 $a_z(\omega) = 0$, $a_x(\omega) \neq 0$, $a_y(\omega) \neq 0$ 。现将(6.1-7)式代入基本方程(4.4-25)式中, 可以得到与频率为 ω' 的光波的偏振方向相同

的辐射有

$$\begin{aligned} \frac{dE(\omega, z)}{dz} &= \frac{i\omega^2\mu_0}{2k} \mathbf{a}(\omega) \cdot \mathbf{P}^{(3)}(\omega) \exp(-ikz) \\ &= \frac{i\omega^2\mu_0}{2k} P_y^{(3)}(\omega) \exp(-ikz) \\ &\quad - \frac{3}{4} i \frac{\epsilon_0\mu_0\omega^2}{k} \mathcal{E}^2(\omega') E(\omega) \chi_{yy}^{(3)}(\omega, \omega', -\omega'). \end{aligned} \quad (6.1-8)$$

所以在 $\mathcal{E}(\omega')$ 被认为不变的条件下有

$$E(\omega, z) \propto \exp \left\{ i \frac{\omega}{c} \left[\frac{3\omega}{4kc} \mathcal{E}^2(\omega') \chi_{yy}^{(3)}(\omega, \omega', -\omega') \right] z \right\}. \quad (6.1-9)$$

上式指数因子中的中括号内的量正是折射率的变化量, 记为 $\Delta n_{//}$, 即

$$\Delta n_{//}(\omega) = \frac{3\omega}{4kc} \mathcal{E}^2(\omega') \chi_{yy}^{(3)}(\omega, \omega', -\omega') \quad (6.1-10)$$

同理, 对与频率为 ω' 的光波的偏振方向相垂直的辐射来说, 有

$$\begin{aligned} \frac{dE(\omega, z)}{dz} &= \frac{i\omega^2\mu_0}{2k} \mathbf{a}(\omega) \cdot \mathbf{P}^{(3)}(\omega) \exp(-ikz) \\ &= \frac{i\omega^2\mu_0}{2k} P_x^{(3)}(\omega) \exp(-ikz) \\ &= \frac{3}{4} i \frac{\epsilon_0\mu_0\omega^2}{k} \mathcal{E}^2(\omega') E(\omega) \chi_{xx}^{(3)}(\omega, \omega', -\omega'). \end{aligned} \quad (6.1-11)$$

相应地给出

$$\Delta n_{\perp}(\omega) = \frac{3\omega}{4kc} \mathcal{E}^2(\omega') \chi_{xx}^{(3)}(\omega, \omega', -\omega'). \quad (6.1-12)$$

由(6.1-11)式和(6.1-12)式可见, 折射率的变化 $\Delta n_{//}$ 和 Δn_{\perp} 与场强平方 $\mathcal{E}^2(\omega')$ 成正比。将(6.1-11)式和(6.1-12)式代入(6.1-4)式便给出克尔系数 $K_{\omega'}(\omega)$ 与 $\chi^{(3)}$ 之间的关系为

$$K_{\omega'}(\omega) = \frac{3\omega}{8\pi c} [\chi_{yy}^{(3)}(\omega, \omega', -\omega') - \chi_{xx}^{(3)}(\omega, \omega', -\omega')]. \quad (6.1-13)$$

当 $\omega' = 0$ 时, 就得到通常的恒定场情况下的克尔常数 $K_0(\omega)$ 。

以上所讨论的克尔效应可提供一种能改变偏振状态的方法。通常使用的非线性介质是有机液体, 例如硝基(代)苯, 没有加恒定电场时, 这种液体在光学上是各向同性的, 当加上恒定电场 E_0 后, 则介质在光学上就有单轴晶体的性质。这时平常光和非常光通过时便产生相位差 $\delta = 2\pi l(\Delta n_{//} - \Delta n_{\perp})/\lambda$ 。因为 $\Delta n_{//}$ 与 $\mathcal{E}^2(\omega')$ 成正比, 所以相位差 δ 可以通过改变 E_0 而被调节。其结果可使入射光束的偏振面转过 90° , 或者将入射的平面偏振光变为椭圆(或圆)偏振光。

注意, 我们上面所讨论的光波电场的频率 ω 和产生效应的场的频率 ω' 是不相同的, 但是, 一束强的光场本身就能起到产生效应的场的作用。这时, 会发生一个很重要的现象,

即所谓光自聚焦效应和光模糊效应，这将在下节中详细讨论。

二、光束的自聚焦现象

由(6.1-8)式和(6.1-9)式可知，当 $\omega' = \omega$ 时，强光场传播时的折射率变为

$$n(\omega) + \Delta n_H(\omega) - l(\omega) = \frac{3}{4n(\omega)} \chi_{\nu\nu\nu\nu}^{(3)}(\omega, \omega, -\omega) \mathcal{E}^2(\omega), \quad (6.2-1)$$

式中已利用了关系 $\omega/kc = 1/n(\omega)$ 。由上式可见，如果光束波前上的强度分布是均匀的，则强光束通过介质时由于折射率的改变，相速发生了改变，而且相速的改变与场强有关。如果强光束波前上的强度分布是变化的，那就会使光束向折射率较高的区域弯曲，而离开折射率较低的区域。这样，对一束在中心具有最大强度的光束（例如高斯光束）来说，由于沿横截面折射率发生变化而引起一种所谓类透镜效应。在中心处的折射率为最大或最小，由三阶非线性极化率 $\chi_{\nu\nu\nu\nu}^{(3)}(\omega, \omega, -\omega)$ 是正或负所决定。当 $\chi_{\nu\nu\nu\nu}^{(3)}(\omega, \omega, -\omega)$ 为正时，有正透镜效应，从而使光束本身愈来愈向高强度区域聚集，这叫做自聚焦效应。当 $\chi_{\nu\nu\nu\nu}^{(3)}(\omega, \omega, -\omega)$ 为负值时，有负透镜效应，光束将散焦，并倾向产生一个强度更加均匀分布的光束，这种现象叫做光模糊效应。

通常远离吸收带处的 $\chi_{\nu\nu\nu\nu}^{(3)}(\omega, \omega, -\omega)$ 是正的，因而产生自聚焦。由于强光束通过介质时会产生自聚焦现象，这就限制了通过物质的光波的强度。因为我们很难产生一个强度均匀分布的波前，因而辐射愈强，稍稍偏离均匀分布，就会引起自聚焦。一旦开始发生自聚焦，接着就是一个崩裂效应，从而可导致固体材料的不可逆损伤。所以自聚焦效应是设计高功率固体激光器时需要考虑的最重要的因素之一。

光模糊效应通常发生在吸收带的两翼。因为对于足够强的辐射来说，即使吸收非常弱，也会引起明显的能量吸收，从而导致物质变热。特别是气体，变热会引起膨胀，使折射率减小，因而这等效于有一个负的 $\chi_{\nu\nu\nu\nu}^{(3)}(\omega, \omega, -\omega)$ ，在这种情况下，不可能使光束聚焦成更小的光斑（自感应降低折射率的效应和聚焦作用相竞争）。这种现象对大功率 CO_2 激光束通过大气的传播十分重要，因为在大气中存在 CO_2 ，在 $10.6\mu\text{m}$ 上存在着吸收，虽然吸收很弱，但必须考虑其影响。

上面我们从克尔效应的分析说明了折射率随光强变化的规律。对含有各向异性分子的液体来说，由于各向异性分子在不同方向有不同的分子极化率，这时与分子取向有关的高频克尔效应是引起折射率变化的主要原因。这种高频克尔效应的响应时间约为 $10^{-11} \sim 10^{-12}\text{s}$ 。除此以外，使折射率随光强发生变化的还有其它原因，如电致伸缩效应、电子轨道畸变和热效应等。在强光场作用下的电致伸缩效应使介质密度发生起伏，从而引起折射率发生相应的变化。这种由强光束电致伸缩效应导致介质折射率变化的响应时间约为 $10^{-8} \sim 10^{-9}\text{s}$ 。介质在强光场作用下，可使组成介质的分子或原子中的电子分布发生变化，这导致介质宏观电极化的变化，从而使折射率发生变化，这种由于电子分布变化而引起折射率变化的响应时间为 $10^{-14} \sim 10^{-15}\text{s}$ 。由于各种介质对入射光束均存在着不同程度的吸收而导致介质的温升，从而引起介质折射率的变化，这种由光吸收而导致折射率变化的响应时间约为 $10^{-3} \sim 1\text{s}$ 。由此可见，对于不同的介质和不同的输入激光脉冲，使得折射率发生变化

的主要起因是不相同的。例如对上面所讲的各向异性分子的液体(如硝基苯, CS_2 、苯等)并对持续时间大于 10^{-11}s 的激光脉冲来说,克尔效应所引起的非线性折射率变化是主要的。又如在固体中,对持续时间大于 10^{-8}s 的激光脉冲来说,电致伸缩效应则是引起折射率变化的主要原因。再如当激光脉冲的持续时间短于 10^{-12}s 时,电子轨道畸变则是引起折射率变化的主要原因。总之,当入射激光的持续时间远小于某一物理机制的响应时间,则这种物理机制对引起折射率变化的贡献就可以忽略不计。

1. 稳态自聚焦

现在我们讨论入射激光为连续的或为缓慢变化的长脉冲情况下的自聚焦现象,这时光束自聚焦后的光束截面尺寸、焦点位置以及焦斑大小等不随时间发生明显变化,故称为稳态自聚焦。下面我们讨论高斯光束的稳态自聚焦。

由(6.2-1)式,可以将折射率一般地改写为

$$n_{\text{总}} = \eta + \eta_2 \langle \mathbf{E} \cdot \mathbf{E} \rangle \quad (6.2-2)$$

的形式。式中 $\eta = \sqrt{\epsilon'}$, ϵ' 是相对介电系数; $\langle \mathbf{E} \cdot \mathbf{E} \rangle$ 表示光束场强平方的时间平均值。如果传播高斯光束的介质是均匀电介质,则由麦克斯韦方程

$$\nabla \times \mathbf{H} = \epsilon_0 \frac{\partial}{\partial t} [(\epsilon' + \epsilon_2 \langle \mathbf{E} \cdot \mathbf{E} \rangle) \mathbf{E}],$$

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\mu \frac{\partial \mathbf{H}}{\partial t}$$

以及

$$\nabla \cdot \mathbf{D} = 0,$$

可以得到波动方程

$$\nabla^2 \mathbf{E} - \frac{\eta^2}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} - \frac{2\eta\eta_2}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} (\langle \mathbf{E} \cdot \mathbf{E} \rangle \mathbf{E}) = 0. \quad (6.2-3)$$

式中, $\eta_2 = \frac{1}{2} \epsilon_2 / \eta$ 。

现假定光束传播的方向为 z 方向,偏振方向为 x 方向,电场强度 \mathbf{E} 的形式为

$$\mathbf{E} = \{E(\mathbf{r}) \exp[i(\omega t - kz)] + \text{C. C.}\} \mathbf{a}_x. \quad (6.2-4)$$

式中 $k = \eta\omega/c$ 。如果 $E(\mathbf{r})$ 随 z 的变化与 $\exp(ikz)$ 相比是缓慢的,使得

$$\frac{\partial^2}{\partial z^2} [E \exp(-ikz)] \approx \exp(-ikz) \left(-k^2 z - 2ik \frac{\partial E}{\partial z} \right),$$

将此式代入(6.2-3)式并考虑 $\langle \mathbf{E} \cdot \mathbf{E} \rangle = |E|^2/2$,则(6.2-3)式变为

$$\nabla_{\mathbf{r}}^2 E - 2ik \frac{\partial E}{\partial z} + \frac{\eta_2 k^2}{\eta} |E|^2 E = 0. \quad (6.2-5)$$

这里

$$\nabla_{\mathbf{r}}^2 = \frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2}$$

如果没有非线性,即 $\eta_2 = 0$,那么(6.2-5)式就是描述在透明介质内线性的光束传播规律的方程,它的解是一组完全的高斯模,其最低阶高斯光束的形式为^[1]

$$\begin{aligned}
 E(x, y, z) &= E_0 \frac{w_0}{w(z)} \exp \left\{ -i[kz - \varphi(z)] - i \frac{kr^2}{2Q(z)} \right\} \\
 &= E_0 \frac{w_0}{w(z)} \exp \left\{ -i[kz - \varphi(z)] - r^2 \left(\frac{1}{w^2(z)} + \frac{ik}{2R(z)} \right) \right\}. \quad (6.2-6)
 \end{aligned}$$

式中

$$\frac{1}{Q(z)} = \frac{1}{R(z)} - i \frac{\lambda}{\pi w^2(z)}. \quad (6.2-7)$$

$Q(z)$ 是高斯光束的 Q 参数; w_0 、 $w(z)$ 和 $R(z)$ 分别是高斯光束束腰处的光斑大小、离束腰 z 处的光斑大小和 z 处高斯光束等相位面的曲率半径。后三者存在以下关系:

$$w^2(z) = w_0^2 \left[1 + \left(\frac{\lambda z}{\pi w_0^2 \eta} \right)^2 \right] = w_0^2 \left(1 + \frac{z^2}{z_0^2} \right), \quad (6.2-8)$$

$$R(z) = z \left[1 + \left(\frac{\pi w_0^2 \eta}{\lambda z} \right)^2 \right] = z \left(1 + \frac{z_0^2}{z^2} \right), \quad (6.2-9)$$

$$\varphi(z) = \arctg \left(\frac{\lambda z}{\pi w_0^2 \eta} \right) = \arctg \left(\frac{z}{z_0} \right), \quad (6.2-10)$$

$$z_0 = \frac{\pi w_0^2 \eta}{\lambda}.$$

现在我们假定高斯光束进入介质处的坐标为 $z=0$, 如图6-2所示。这时在(6.2-6)式中的 z 用 $(z - z_{m10})$ 代替后, 该式可重新写出为

$$\begin{aligned}
 E(x, y, z) &= \frac{E_0}{\left[1 + \left(\frac{\lambda(z - z_{m10})}{\pi w_0^2} \right)^2 \right]^{1/2}} \exp \left\{ -i[k(z - z_{m10}) \right. \\
 &\quad \left. - \varphi(z - z_{m10})] - r^2 \left[\frac{1}{w_0^2 \left[1 + \left(\frac{\lambda(z - z_{m10})}{\pi w_0^2} \right)^2 \right]} \right. \right. \\
 &\quad \left. \left. + \frac{ik}{2 \left[1 + \left(\frac{\pi w_0^2}{\lambda(z - z_{m10})} \right)^2 \right]} (z - z_{m10}) \right] \right\}. \quad (6.2-11)
 \end{aligned}$$

这样, 在 $z=0$ 处输入光束的电场强度 $E(x, y, 0)$ 为

$$\begin{aligned}
 E(x, y, 0) &= \frac{E_0}{\left[1 + \left(\frac{\lambda z_{m10}}{\pi w_0^2} \right)^2 \right]^{1/2}} \exp \left\{ i[kz_{m10} + \varphi(-z_{m10})] \right. \\
 &\quad \left. - r^2 \left[\frac{1}{w_0^2 \left[1 + \left(\frac{\lambda z_{m10}}{\pi w_0^2} \right)^2 \right]} - \frac{ik}{2z_{m10} \left[1 + \left(\frac{\pi w_0^2}{\lambda z_{m10}} \right)^2 \right]} \right] \right\}. \quad (6.2-12)
 \end{aligned}$$

所以在 $z=0$ 处输入光束的场强可写成如下的形式:

$$E(x, y, 0) = E_0 \exp \left\{ - \frac{r^2}{w_0^2} \frac{1 - i \frac{2z_{m10}}{kw_0^2}}{1 + \left(\frac{2z_{m10}}{kw_0^2} \right)^2} \right\}. \quad (6.2-13)$$

令 $z=0$ 处输入光束的半径为 d , 则由 (6.2-8) 式

$$w^2(z) = w_0^2 \left\{ 1 + \left[\frac{2(z-z_{min})}{kw_0^2} \right]^2 \right\}$$

$$\text{有 } d^2 = w^2(0) = w_0^2 \left[1 + \left(\frac{2z_{min}}{kw_0^2} \right)^2 \right]. \quad (6.2-14)$$

于是 (6.2-13) 式可以写为

$$E(x, y, 0) = E_0 \exp \left[-\frac{r^2}{d^2} \left(1 - i \frac{2z_{min}}{kw_0^2} \right) \right], \quad (6.2-15)$$

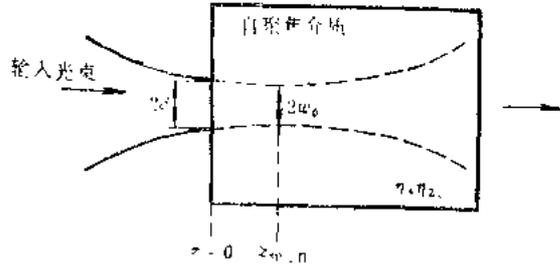


图 6-2 高斯光束进入具有介电常数为 $\epsilon' = \eta'^2 + \eta\eta_2 |E|^2$ 的介质 (虚线表示无自聚焦 ($\eta_2 = 0$) 时光束的半径)

这表示在 $z=0$ 处的输入光束可用其半径 d 和到束腰处的距离 z_{min} 来确定。如果引入聚焦参数

$$\theta = \frac{2z_{min}}{kw_0^2}, \quad (6.2-16)$$

则分析可以大大简化。利用 (6.2-16) 式, (6.2-15) 式和 (6.2-14) 式可改写为

$$E(x, y, 0) = E_0 \exp[-r^2(1-i\theta)/d^2], \quad (6.2-17)$$

$$z_{min} = \frac{kd^2}{2} \frac{\theta}{1+\theta^2}, \quad (6.2-18)$$

$$w_0 = \frac{d}{(1+\theta^2)^{1/2}}. \quad (6.2-19)$$

根据 θ 的定义 (6.2-16) 式, 对于 $\theta=0$ 的光束, 其束腰在 $z=0$ 处。如果 $\theta>0$, 即 $z_{min}>0$, 表明在 $z=0$ 处的输入光束是收敛的; 而对于 $\theta<0$ 的光束则是发散的。

当 (6.2-5) 式中的 $\eta_2 \neq 0$ 时, 方程 (6.2-5) 式的一般解必须用数值求解法求得。我们现在要分析的问题只是考虑一束圆对称的具有 (6.2-17) 式所给形式的输入光束起始聚焦的性质。

为获得光束的性质, 我们可以在 $z=0$ 附近将光束强度 $|E(0, 0, z)|^2$ 按台劳展开, 并保留最初三项, 即

$$|E(x=y=0)|^2 = |E(0, 0, 0)|^2 + \left(\frac{\partial |E|^2}{\partial z} \right)_{z=0} z + \left(\frac{\partial^2 |E|^2}{\partial z^2} \right)_{z=0} \frac{z^2}{2} + \dots \quad (6.2-20)$$

利用 (6.2-5) 式后, (6.2-20) 式中的一、二阶偏导数可表为

$$\begin{aligned} \frac{\partial |E|^2}{\partial z} &= E \frac{\partial E^*}{\partial z} + E^* \frac{\partial E}{\partial z} = \frac{i}{2k} (E \nabla_T^2 E^* - E^* \nabla_T^2 E), \\ \frac{\partial^2 |E|^2}{\partial z^2} &= \frac{1}{4k^2} \{ (\nabla_T^2 E)(\nabla_T^2 E^*) - E \nabla_T^2 (\nabla_T^2 E) \} \\ &\quad + \frac{\eta_2 k^2}{\eta} [E |E|^2 \nabla_T^2 E^* - \nabla_T^2 (|E|^2 E)] + C.C., \end{aligned} \quad (6.2-21)$$

又利用(6.2-17)式作出横向导数 $\nabla_T^2 E$ 和 $\nabla_T^2 E^*$ 有

$$\begin{aligned}\nabla_T^2 E &= -4E_0(1-i\theta)/d^2 \\ \nabla_T^2 E^* &= -4E_0(1+i\theta)/d^2\end{aligned}$$

组合以上两式和(6.2-21)式及(6.2-20)式,便给出

$$\begin{aligned}|E(x=y=0)|^2 & \\ & \approx E_0^2 \left[1 + 4\theta \frac{z}{kd^2} + \frac{z^2}{k^2 d^4} (-4 + 12\theta^2 + \frac{2\eta_2 k^2 d^2}{\eta} E_0^2) + \dots \right].\end{aligned}\quad (6.2-22)$$

这个函数的倒数近似于光束的面积。因此当在展开式 $(1+x)^{-1} \approx 1-x+x^2+\dots$ 中保留前三项时便给出

$$\begin{aligned}A(z) &\propto \frac{1}{|E(x=y=0)|^2} \\ &\approx A(0) \left[1 - 4\theta \frac{z}{kd^2} + \frac{z^2}{k^2 d^4} \left(4 + 4\theta^2 - \frac{2\eta_2 k^2 d^2}{\eta} E_0^2 \right) + \dots \right].\end{aligned}\quad (6.2-23)$$

式中 A 表示光束的截面积。

假定光束聚焦处的光束面积为零,则由(6.2-23)式可求得自聚焦焦点离输入平面的距离为

$$z_f = \frac{kd^2}{2} \left(\sqrt{\frac{P}{P_c} - 1 + \theta} \right).\quad (6.2-24)$$

式中 P 是输入光束的总功率,有

$$P = \frac{\pi \epsilon_0 c \eta d^2}{2} E_0^2,\quad (6.2-25)$$

P_c 是临界功率,有

$$P_c = \frac{\pi \epsilon_0 c^3}{\eta_2 \omega^2}.\quad (6.2-26)$$

按(6.2-24)式,如果输入光束原来是收敛的($\theta > 0$),那么当总功率超过 P_c 时,它将突然地在 z_f 处聚焦($A(z_f) \rightarrow 0$)。在这里,临界功率 P_c 与光束起始的收敛程度(即聚焦参数 θ)及起始光束直径 d 是无关系的。

如果光束起始是发散的($\theta < 0$),则自聚焦的临界功率为

$$P_{\text{临界}}(\theta < 0) = P_c(1 + \theta^2).\quad (6.2-27)$$

这时临界功率与自聚焦参数 θ 有关,光束起始发散愈厉害($|\theta|$ 愈大), $P_{\text{临界}}$ 愈大。

2. 动态自聚焦效应

1中所讨论的稳态自聚焦效应适用于连续激光或脉冲持续时间较长(远大于 $\frac{1}{\omega}$ 折射率感应变化的响应时间)的激光,场强的形式由(6.2-4)式所描述,场振幅与时间无关。如果入射激光脉冲比较短,这时场振幅的包络函数与时间有关,它对时间的一阶导数必须考虑,这样,描述自聚焦效应的波方程与时间有关,故称动态自聚焦效应。

现假定光场场强 E 的形式为

$$E = \{E(x, y, z, t) \exp[i(\omega t - kz)] + C.C.\} \mathbf{a}_e \quad (6.2-28)$$

将此式代入(6.2-3)式, 和讨论稳态时的情况一样, 略去场振幅函数 $E(x, y, z, t)$ 对 z 的二阶导数项 $\partial^2 E / \partial z^2$, 在这里, 又略去场振幅函数对时间 t 的二阶导数项 $\partial^2 E / \partial t^2$ 和 $\partial^2 |E|^2 E / \partial t^2$ 中含有场振幅函数对时间导数的项(包括对时间 t 的二阶导数项和两个对时间一阶导数的乘积项), 则给出与(6.2-5)式相类似的场方程为

$$\nabla_T^2 E - \left(2ik \frac{\partial E}{\partial z} + 2ik \frac{\eta}{c} \frac{\partial E}{\partial t} \right) + \frac{\eta_0 k^2}{\eta} |E|^2 E = 0. \quad (6.2-29)$$

与(6.2-5)式相比, (6.2-29)式只多了对时间的导数项 $-2ik \frac{\eta}{c} \frac{\partial E}{\partial t}$ 。现作变量变换, 令

$$t' = t - \frac{\eta z}{c}, \quad (6.2-30)$$

则有

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial z} E(x, y, z, t' + \frac{\eta z}{c}) &= \frac{\partial E(x, y, z, t)}{\partial z} + \frac{\partial E(x, y, z, t)}{\partial t} \frac{\partial t}{\partial z} \\ &= \frac{\partial E(x, y, z, t')}{\partial z} + \frac{\partial E(x, y, z, t')}{\partial t} \frac{\eta}{c}. \end{aligned} \quad (6.2-31)$$

将(6.2-31)式代入(6.2-29)式后给出

$$\begin{aligned} \nabla_T^2 E(x, y, z, t') - 2ik \frac{\partial}{\partial z} E(x, y, z, t') \\ + \frac{\eta_0 k^2}{\eta} |E(x, y, z, t')|^2 E(x, y, z, t') = 0. \end{aligned} \quad (6.2-32)$$

由上式可见, 它与(6.2-5)式在形式上完全相同, 只是现在在场振幅函数中含有时间参变量 t' 。因此, 由稳态下所求得的自聚焦的焦点位置公式也可直接应用于动态自聚焦的情况, 只是现在输入功率 P 是时间参变量 t' 的函数。按(6.2-24)式, 有

$$z_f(t) = \frac{kd^2}{2} \frac{1}{\left[\frac{P(t')}{P_c} - 1 \right]^{1/2} + \theta} = \frac{kd^2}{2} \frac{1}{\left[\frac{P(t - \frac{\eta}{c} z_f)}{P_c} - 1 \right]^{1/2} + \theta} \quad (6.2-33)$$

(6.2-33)式表明, 如果入射脉冲激光的功率 P 是时间的函数, 则自聚焦焦点的位置也是时间的函数, 也就是说, 在动态情况下自聚焦焦点是运动的。

设脉冲激光功率随时间变化的规律如图 6-3 (b) 所示。因为产生自聚焦要满足阈值条件, 所以对应图中 t_m 时刻进入介质 ($z=0$) 的光功率 P_D 所引起的自聚焦焦点 (焦距 z_{fD}) 出现最早, 如图 6-3 (a) 中的 D 点。然后自聚焦焦点沿着 U 形曲线的两支运动, 自聚焦焦点的运动速度由曲线的斜率确定。沿 DAE 一支表示自聚焦焦点向着光速前进的方向运动, 并且自聚焦焦点运动的速度可大于介质中的光速 c/η (因为它们的切线斜率可大于光线运动的斜率)。沿另一支 DBC 表示自聚焦焦点首先迎着光速向入射面方向运动, 在达到最短焦距 z_{fB} 后又返回, 向着光束出射的方向运动 (焦距 z_{fB} 与输入脉冲峰值功率相对应), 在自聚焦焦点来回

运动的整个过程中,其速度始终小于介质中的光速,特别是在 z_f 处的自聚焦焦点其运动速度为零。

激光自聚焦更精确的结果可利用电子计算机对场方程数值求解求得。对于准平行入射并且截面上光强为高斯分布的情况来说,求得稳态和动态条件下的自聚焦焦距的公式分别为

$$z_f = \frac{kd^2}{2} \left[\left(\frac{P}{P_c} \right)^{1/2} - 1 \right] \quad (6.2-34)$$

和

$$z_f(t) = \frac{kd^2}{2} \left[\left(\frac{P(t - \frac{\eta z_f}{c})}{P_c} \right)^{1/2} - 1 \right] \quad (6.2-35)$$

最后说明几点:

(a) 因为自聚焦焦点处的光场来自介质内各点发出的光束的叠加,它并不代表各点光束的传播,不携带任何实际信息,所以自聚焦焦点移动速度大于光速并不违背狭义相对论。

(b) 以上对于动态自聚焦的讨论是基于这样的假定,即物质对场的响应非常快,认为只要一有激光场作用,介质的折射率就立刻发生变化,当激光达到产生自聚焦的阈值时,自聚焦现象就随之立即发生。事实上,如果激光脉冲很短,例如几个微微秒,这时介质对场的响应时间比激光脉冲宽度还要长,这样,介质折射率的变化跟不上场的变化,所以必须考虑介质对场的响应时间,即必须考虑瞬态的自聚焦现象。下面我们可定性地图6-4来加以说明。

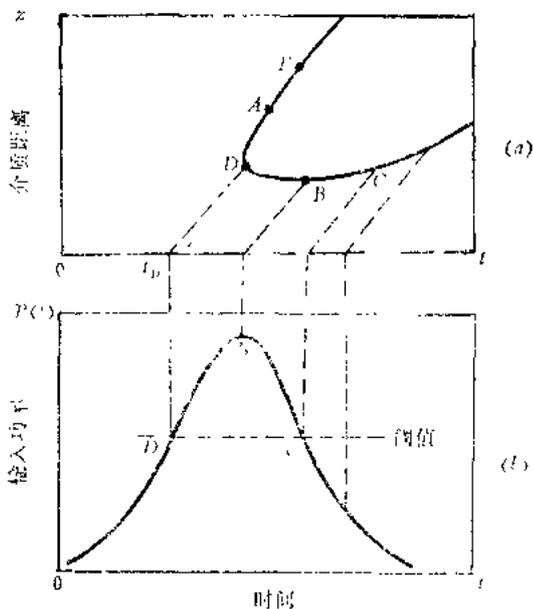


图6-3 (a)自聚焦焦点位置随时间变化曲线 (b)入射激光脉冲功率 $P(t)$ 的变化规律示意图

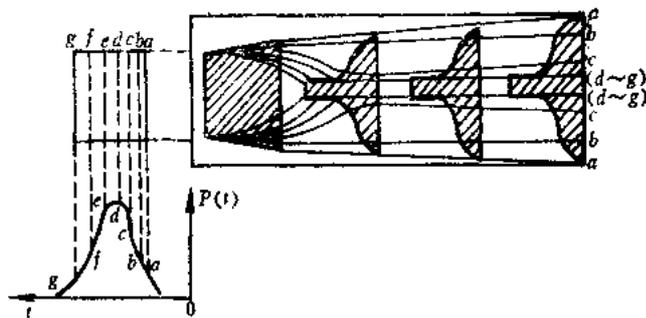


图6-4 超短脉冲自聚焦过程的光束轮廓的变化

图6-4的左下方表示激光功率随时间的变化曲线, $a \sim g$ 表示满足阈值条件的各个时刻的激光功率。当 a 时刻脉冲输入时,由于介质对场来不及响应,折射率变化很小,所以 a 时刻的脉冲因衍射作用其传播是发散的。当 b 时刻的脉冲输入时,因前一时刻 a 脉冲开始引起介质极化,但折射率变化还不太大,所以 b 脉冲虽有一点自聚焦效应,有收缩的趋势,但仍

不足以克服衍射发散效应,所以光线仍有发散作用,但较 a 脉冲的发散小。当 c 脉冲输入时,在它以前 a 、 b 时刻脉冲产生的介质极化已足够强,折射率变化较大,所以自聚焦作用是足以克服衍射效应使光线向中间会聚。同样可以分析 $d \sim g$ 时刻的脉冲,它们的聚焦点一个比一个前移,且聚焦后不分散。这是因为虽然 $e \sim g$ 的峰值功率较 c 小,但由于它们以前的脉冲对介质的作用所引起介质折射率变化的累积结果,使介质中心处折射率变化非常大,所以 $e \sim g$ 各时刻脉冲即使它们的功率较小,但仍可形成自聚焦焦点。如果我们在同一时刻把 $a \sim g$ 各时刻输入脉冲的各自波前连接起来,就得到输入脉冲激光在此时刻的形状。图6-4右边给出脉冲激光的横向轮廓,它们呈喇叭形。喇叭形的颈脖会在介质中造成直径约为几个微米的光丝。这现象已在实验中被观察到。

(c) 实验发现,线宽很窄的脉冲激光经介质自聚焦后,出射激光的线宽大大增加,对毫微秒级脉冲激光 $\Delta \tilde{\nu} = 100 \text{ cm}^{-1}$,对微微秒级脉冲激光 $\Delta \tilde{\nu} = \text{几千} \sim 1 \text{ 万 cm}^{-1}$,实际上激光本身 $\Delta \tilde{\nu} \approx 0.1 \sim 1 \text{ cm}^{-1}$ 。由此可见,经自聚焦后脉冲激光频率加宽了3~4个数量级。究其原因,那是由于自聚焦作用使介质折射率发生了变化之故。因此光线在此非线性极化的介质中传播时,相对均匀空间产生一个附加位相 $\Delta \varphi(t)$,由此引起一个频率移动 $\Delta \omega(t)$

$$= -\frac{\partial}{\partial t} \Delta \varphi(t), \text{ 而 } \Delta \varphi(t) = \int_0^L \left(\frac{\omega}{c} \right) \Delta n(t) dz, \text{ 式中 } L \text{ 是介质的长度, } \Delta n(t) \text{ 是折射率的变化,}$$

这就是所谓自相位调制。根据前面的讨论,由于同一脉冲不同时刻的光线经介质时相应各点上的 $\Delta n(t)$ 不同, $\Delta \varphi(t)$ 也将不同。又因为脉冲时间很短,所以不同时刻脉冲光线相应的位相变化 $\Delta(\Delta \varphi)$ 虽然很小,但彼此频率差别却可能很大,这就是造成频率加宽的很重要的原因。以上定性地解释了自聚焦引起的激光频率的加宽,它只适用于解释小范围的频率加宽,还不能解释微微秒激光频率加宽大到 10^4 cm^{-1} 的情况(从理论上,到目前(1983年11月)这一问题实际上还未解决)。

三、三次谐波产生

设有一束频率为 ω 的线偏振光作用于非线性介质,光波的电场为

$$E(z, t) = E(\omega) \exp(-i\omega t) + \text{C. C.} \quad (6.3-1)$$

式中复振幅 $E(\omega)$ 可写为

$$E(\omega) = E_0 \mathbf{a}(\omega) \exp\left(i \frac{\omega}{c} \eta z\right), \quad (6.3-2)$$

其中 E_0 、 $\mathbf{a}(\omega)$ 和 η 分别表示入射基波的振幅、偏振方向的单位矢量和折射率。

由于三阶非线性效应所产生的三阶非线性电极化强度为

$$\mathbf{P}^{(3)}(3\omega, z) = \epsilon_0 \chi^{(3)}(\omega, \omega, \omega) : E(\omega) E(\omega) E(\omega). \quad (6.3-3)$$

按(4.4-25)式给出基本的耦合方程为

$$\frac{dE(3\omega, z)}{dz} = i \frac{(3\omega)^2 \mu_0}{2k_3} \mathbf{a}(3\omega) \cdot \mathbf{P}^{(3)}(3\omega, z) \exp(-ik_3 z). \quad (6.3-4)$$

式中 $k_3 = 3\omega/v_3 = 3\omega\eta_3/c$, 组合(6.3-2)、(6.3-3)式和(6.3-4)式后, 给出

$$\frac{dE(3\omega, z)}{dz} = \frac{3}{2} \frac{\omega^2 \mu_0 \epsilon_0 c}{\eta_3} E_0^2 \mathbf{a}(3\omega) \cdot \chi^{(3)}(\omega, \omega, \omega) \mathbf{a}(\omega) \mathbf{a}(\omega) \mathbf{a}(\omega) \exp\left[i3\omega(\eta - \eta_3) \frac{z}{c}\right]. \quad (6.3-5)$$

令

$$\frac{3}{2} \frac{E_0^2 \omega^2 \mu_0 \epsilon_0 c}{\eta_3} \mathbf{a}(3\omega) \cdot \chi^{(3)}(\omega, \omega, \omega) \mathbf{a}(\omega) \mathbf{a}(\omega) \mathbf{a}(\omega) = \frac{1}{L_3}, \quad (6.3-6)$$

$$\Delta k = 3\omega(\eta - \eta_3)/c, \quad (6.3-7)$$

则有

$$\frac{dE(3\omega, z)}{dz} = \frac{iE_0}{L_3} \exp(i\Delta kz), \quad (6.3-8)$$

所以

$$\begin{aligned} E(3\omega, z) &= \frac{iE_0}{L_3} \int_0^z \exp(i\Delta kz) dz \\ &= \frac{iE_0}{L_3} \exp\left[\frac{i}{2} \Delta kz\right] \cdot \frac{\sin \frac{\Delta k}{2} z}{\frac{\Delta k}{2}}. \end{aligned} \quad (6.3-9)$$

$z=0$ 时, $E(3\omega, z)=0$ 。由(6.3-9)式可见, 如果 $\Delta k \neq 0$, 则 $E(3\omega, z)$ 以正弦形式振荡。相位失配 Δk 可用来量度感应电极化波的相速和被辐射的三次谐波的相速之间的差别。在距离 $\pi/|\Delta k|$ 之后, 电极化波的相位和辐射的三次谐波电场的相位将相差 180° 。类似于产生二次谐波那样, 用 L_c 表示 $\pi/|\Delta k|$, 即

$$L_c = \frac{\pi}{|\Delta k|}. \quad (6.3-10)$$

式中 L_c 叫做相干长度, 其物理意义是三次谐波强度第一次达到其最大值的路程长度, 典型值为 $1 \sim 100\text{mm}$ 。

1967年纽 (New) 和沃德 (Ward) 首先利用若干原子气体产生三次谐波辐射, 但转换效率很低, 原因是因为红宝石激光所提供的基波频率及其三次谐波都远离任何共振区, 并且过程也不满足相位匹配, 相干长度很短。1971年哈里斯 (Harris) 和迈尔斯 (Miles) 首先提出利用碱金属蒸汽作为产生三次谐波的介质, 因为碱金属蒸汽在可见光区域有共振跃迁。另外, 激光的基频在第一主线系 $s-p$ 的跃迁频率以下, 而三次谐波的频率在此频率以上, 如图2-2钠的能级图所示。这样的蒸汽是一种负色散的介质, 因而可以附加正色散的气体如惰性气体, 以达到相位匹配的目的。这就是说, 利用碱金属蒸汽作为非线性介质, 由它提供合适的能级使之能对所用激光频率满足三阶非线性电极化率共振增强的要求, 而附加缓冲气体的目的是为达到相位匹配提供所需要的色散。这样, 可使转换效率大大提高, 例如用铷蒸汽所得到的 $\chi^{(3)}$ 的值为用He所得到的 $\chi^{(3)}$ 值的 10^6 倍。利用上述方法已在铷蒸汽中产生了铷激光的三次谐波($1.064/3 (\mu\text{m})$); 利用Hg、Cd蒸汽已产生了波

长更短的三次谐波。

利用缓冲气体进行相位匹配的原理如图 6-5 所示。该图是对铷蒸汽中产生 $1.064\mu\text{m}$ 的三次谐波的特殊情况来说的, 在这里 Xe 作为缓冲气体。

因为基频($1.064\mu\text{m}$)比铷的 $5s-5p$ 的跃迁频率低, 而三次谐波 ($0.357\mu\text{m}$) 又比该跃迁频率高, 由图可知 $\Delta k = k_3 - 3k_1 < 0$, 是负色散。又气体 Xe 的折射率在此波长范围内是正常色散, 因为上述两个波长所对应的频率都在任何 Xe 的跃迁频率之下, 因此附加足够高的压力的 Xe, 可使混合气体在 $1.064\mu\text{m}$ 和 $0.357\mu\text{m}$ 处总的折射频率相等从而使

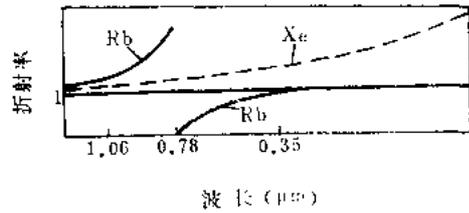


图 6-5 铷(Rb)和氙(Xe)的折射率随波长变化的关系

$$\Delta k = \frac{6\pi(\eta_3 - \eta_1)}{\lambda_{1.06}} = 0.$$

为计算所需要的缓冲气体与碱金属蒸汽的压力比, 需要知道两种组分的折射率-波长关系。碱金属蒸汽的折射率由塞尔梅尔 (Sellmaier) 方程给出为^[1]

$$\eta(\lambda) - 1 = \frac{Ne^2}{8\pi^2 mc^2 \epsilon_0} \sum_{i,j} \frac{\bar{\rho}(j) f_{ij}}{\left(\frac{1}{\lambda_{ij}^2} - \frac{1}{\lambda^2}\right)} = \frac{Nr_e}{2\pi} \sum_{i,j} \left(\frac{1}{\lambda_{ij}^2} - \frac{1}{\lambda^2}\right). \quad (6.3-11)$$

式中 N 是原子数密度, r_e 是经典电子半径 ($2.8 \times 10^{-15} \text{m}$), f_{ij} 是从能级 i 到能级 j 、波长为 λ_{ij} 的跃迁的振子强度, $\bar{\rho}(i)$ 是能级 i 的集居数百分数。

蒸汽的原子数密度 N 与蒸汽 $P(\text{Torr})$ 的关系为

$$N = 9.66084 \times 10^{24} \frac{P(\text{Torr})}{P} \quad \text{原子个数}/\text{m}^3.$$

对碱金属来说, 在压力大约为 $1 \text{ Torr} (= 133.322 \text{ Pa})$ 时, 蒸汽压 P 的近似表示为^[6]

$$P(\text{Torr}) = \exp\left(-\frac{a}{T} + d\right). \quad (6.3-12)$$

常数 a 和 d 由表 6-1 给出。这样, 蒸汽原子数密度

$$N = (9.66084 \times 10^{24}/a)(d - \ln P)P. \quad (6.3-13)$$

对缓冲气体 Xe 来说, 在标准的温度和气压 (STP) 下, Xe 的折射率公式为^[4]

$$\eta_{\text{Xe}} - 1 \approx \left\{ \frac{393235}{46.3012 - 10^{-8}/\lambda^2} + \frac{393235}{59.5779 - 10^{-8}/\lambda^2} + \frac{7366100}{139.8310 - 10^{-8}/\lambda^2} \right\} \times 10^{-8}. \quad (6.3-14)$$

式中波长的单位为 cm 。

表6-1 碱金属的蒸汽压常数

	Li	Na	K	Rb	Cs
a	19571.4	12423.3	10210.4	9140.07	8827.38
b	19.130	17.3914	16.539	16.0628	16.0007
饱和蒸汽压为 10 Torr 的温度(°C)	890	546	444	390	373
相应的原子数密度 $10^{23}/m^3$	0.83	1.17	1.35	1.45	1.50

图6-6表示为达到相位匹配产生三次谐波所计算的 N_{Xe}/N (Xe的原子数密度与其碱金属蒸汽原子数密度之比) 与入射波长的关系。

为了获得密度和温度都均匀的金属蒸汽柱, 并且不使在容器通光的窗口处凝结金属, 现在广泛地使用所谓热管炉, 如图6-7所示。热管炉的主体由不锈钢作成, 管内有一个芯子, 用儿圈不锈钢网作成。开始, 一定量的金属位于管子的中央部分; 并将缓冲气体引入管内, 使其压力等于工作时的压力 (即与工作时所要求的金属蒸汽压相对应的压力)。然后将管子的中央部分加热, 金属被熔化。当进一步加热时, 金属蒸汽柱便充满整个管子。冷却环放在加热器和窗口之间, 这样就保证了金属蒸汽在这里被冷却, 并依靠毛细作用通过管芯流向中央加热区, 从而窗口就能免受金属玷污。

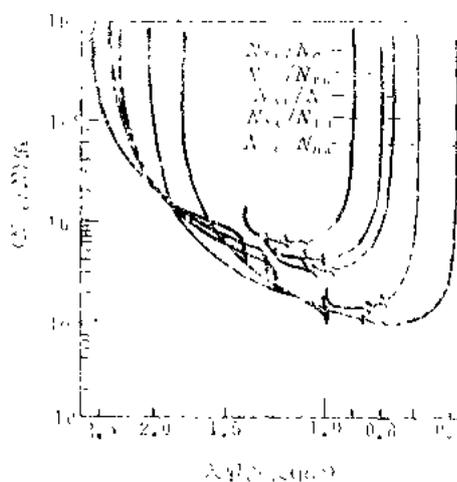


图6-6 为达到相位匹配产生三次谐波所需要的 N_{Xe}/N 与波长的关系

热管炉的最重要的特点之一是能在整个蒸汽柱范围内产生均匀的蒸汽密度。在实际中, 需要高度的均匀蒸汽柱, 并且要求温度的均匀性很好 (好于 $1^{\circ}C$)。为满足这样的要求, 可采用如图6-8所示的同心热管炉。这种管子可以用来产生均匀的Na : Xe和Rb : Xe的混合气体, 它有一个含有管芯的不锈钢内管, 管两端装有窗口, 内管外面有一个同心外管,

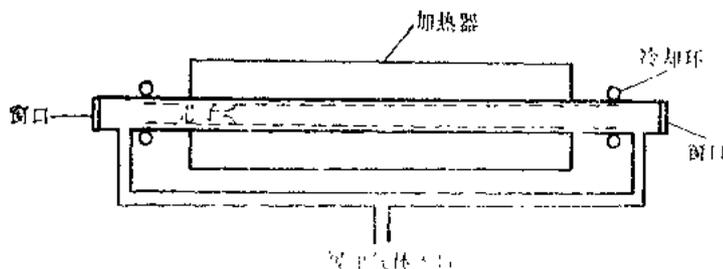


图6-7 热管炉示意图

外管内也有管芯。两管内都装有相同的碱金属，并且两管与不同的气体支管相连。调节热源使得在外管内产生一个长的金属蒸汽柱，从而能在内管产生一个等温区，也就是说，这时工作气体是通过外层的热管炉加热的，因此加热非常均匀。

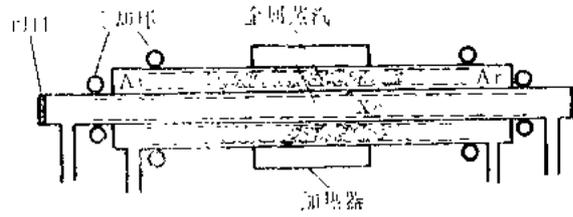


图6-8 产生均匀的碱金属混合气体的同心热管炉

表6-2列出1979年初以前关于产生三次谐波的有关实验结果^[51]。表中给出实验所用的非线性介质、所用激光器的类型和功率，同时还给出所产生的三次谐波的波长和功率（或效率）。

现在我们来说明一下关于各种非线性过程的分类。如果在过程前后，非线性介质的原子保持在它们的原始状态之中，那么这种过程叫做参量过程，如这里所讲的三次谐波产生以及第五章所讲的差频与和频的产生过程。对于这样的过程来说，这些过程只有在相位匹配的情况下才能有效地产生。

另一类重要的非线性过程叫做非参量过程。对这种过程来说，在过程后原子的末态与其始态不同，这种过程不要求相位匹配（事实上这种从相位匹配要求与否来区分参量和非参量过程的方法是不严密的^[6]，某些过程并不能如此明显地分类）。

关于参量过程的特点，我们可以用三次谐波产生的过程来说明。这里不存在任何共振，因而电极化率可以取实数。根据对电极化所消耗的功率关系式

$$W = -\langle \mathbf{E} \cdot \dot{\mathbf{P}} \rangle = -2\omega \text{Im}(\mathbf{E} \cdot \mathbf{P}^*),$$

可以得到由基波场和三次谐波场到介质的不可逆的能量流为

$$\begin{aligned} W &= -2\text{Im}[\omega \mathbf{E}(\omega) \cdot \mathbf{P}^*(\omega) + 3\omega \mathbf{E}(3\omega) \cdot \mathbf{P}^*(3\omega)] \\ &= -2\text{Im}[\omega \mathbf{E}(\omega) \cdot \{\epsilon_0 \chi^{(3)}(-\omega, 3\omega, -\omega, -\omega) : \mathbf{E}(3\omega) \mathbf{E}^*(\omega) \mathbf{E}^*(\omega)\}^* \\ &\quad + 3\omega \mathbf{E}(3\omega) \cdot \{\epsilon_0 \chi^{(3)}(-3\omega, \omega, \omega, \omega) : \mathbf{E}(\omega) \mathbf{E}(\omega) \mathbf{E}(\omega)\}^*]. \end{aligned} \quad (6.3-15)$$

利用电极化率张量的真实性条件、时间反演对称性和完全对易对称性，有

$$\begin{aligned} [\chi^{(3)}(-\omega, 3\omega, -\omega, -\omega)]^* &= \chi^{(3)}(\omega, -3\omega, \omega, \omega) \\ &= \chi^{(3)}(-\omega, 3\omega, -\omega, -\omega) = \chi^{(3)}(-3\omega, \omega, \omega, \omega). \end{aligned} \quad (6.3-16)$$

将(6.3-16)式的关系代入(6.3-15)式中便给出

$$\begin{aligned} W &= -2\text{Im} 3\epsilon_0 \omega [\mathbf{E}(\omega) \cdot \chi^{(3)}(-3\omega, \omega, \omega, \omega) : \mathbf{E}^*(3\omega) \mathbf{E}(\omega) \mathbf{E}(\omega) \\ &\quad + \mathbf{E}(3\omega) \cdot \chi^{(3)}(-3\omega, \omega, \omega, \omega) : \mathbf{E}^*(\omega) \mathbf{E}^*(\omega) \mathbf{E}^*(\omega)] = 0. \end{aligned} \quad (6.3-17)$$

这里已利用了上式括号中第一项是第二项复数共轭的关系。由此可见，对三次谐波产生过程来说，介质只起到一个媒介作用，在基波场和三次谐波场之间传递能流，这是参量过程的第一个特点。第二个特点是，所产生的辐射场与激励场是处于不同的辐射模（即不是受激发射的过程）。第三个特点是，根据(6.3-9)式所产生的三次谐波场的强度与 $|\chi^{(3)}(-3\omega, \omega, \omega, \omega)| = (\chi')^2 + (\chi'')^2$ 有关，可见电极化率张量实部 (χ') 和虚部 (χ'') 的贡

表6-2 产生三次谐波的结果 (1979年前)

非线性媒质	非线性过程	入射辐射	产生的辐射	附注
Rb	$\omega_1 + \omega_1 + \omega_1$	ω_1 : 1.06 μm , 100kW, Q开关 Nd:YAG	354.7nm; 0.1mW	缓冲气体Xe
Na } Rb }	$\omega_1 + \omega_1 + \omega_1$	ω_1 : 1.06 μm , 300MW, 30ps锁模Nd:YAG	354.7nm; 转换效率 Na: 0.027 Rb: 0.1	缓冲气体Xe, 同心热管炉
Na	$\omega_1 + \omega_1 + \omega_1$	ω_1 : 1.06 μm , 300MW 30ps锁模Nd:YAG	354.7nm; 效率0.037	缓冲气体Mg蒸汽, 同心热管炉
Rb	$\omega_1 + \omega_1 + \omega_1$	ω_1 : 1.06 μm , 高到200MW, 或7ps或300ps锁模Nd:YAG	354.7nm, 最好效率0.028	缓冲气体Xe
Rb } Na }	$\omega_1 + \omega_1 + \omega_1$	ω_1 : 1.06 μm , 6MW, Q开关 Nd:YAG	354.7nm; 100W(Rb), 230W(Na)	缓冲气体Xe
Cd	$\omega_1 + \omega_1 + \omega_1$	ω_1 : 530nm 50ps的锁模 Nd:YAG及 其二次和三次谐 波, 2~20MW	177.3nm; 7kW, 效率 10^{-4}	缓冲气体Ar
	$\omega_1 + \omega_1 + \omega$	ω_1 : 354.7nm	118.2nm; 效率 10^{-7}	
Cs	$\omega_1 + \omega_1 + \omega_1$	ω_1 : 694.3nm, 1MW, Q开关 红宝石激光器	231.4nm, 5 μW (对 ω_1 的辐射为100kW)	$\omega_1 + \omega_1$ 双光子共振
Na	$\omega_1 + \omega_1 + \omega_1$	ω_1 : 602nm, 50MW, 2ps, 锁模若丹明6G	约200nm, 50W	缓冲气体Xe $\omega_1 + \omega_1$ 双光子共振

接下页

续表

非线性过程	非线性过程	入射辐射	产生的辐射	附注
Na	$\omega_1 + \omega_1 - \omega_1$	ω_1 : 约600nm, 高到100MW, 12Ps, 锁模若丹明6G	约200nm, 最好效率0.08 (50kW的频率为 ω_1 的辐射)	缓冲气体Xe $\omega_1 + \omega_1$ 双光子共振
Tl	$\omega_1 + \omega_1 + \omega_1$	ω_1 : 585.32nm, 50kW(0.3 μ s), 染料激光器	195.1nm, 效率 10^{-10}	$\omega_1 + \omega_1$ 双光子共振
Ca	$\omega_1 + \omega_1 + \omega_1$	ω_1 : 约600nm, 250MW, 3ps, 锁模若丹明6G	约200nm, 10^5 W	缓冲气体Xe, 同心热管法 $\omega_1 + \omega_1$ 双光子共振
Hg	$\omega_1 + \omega_1 + \omega_1$	ω_1 : 268.8nm(较玻璃的4次谐波, 锁模)	89.6nm, 效率 $10^{-6} \sim 10^{-9}$	双光子共振 用可钢化玻璃激励
Yb	$\omega_1 + \omega_1 + \omega_1$	ω_1 : 582.07nm	194nm	$\omega_1 + \omega_1$ 双光子共振
Ce I	$\omega_1 + \omega_1 + \omega_1$	ω_1 : 383.25nm, N ₂ 激光泵浦染料激光器	127.8nm	$\omega_1 + \omega_1$ 双光子共振
Sr	$\omega_1 + \omega_1 + \omega_1$	ω_1 : 576nm, 40kW, 闪光灯泵浦若丹明6G	191.97nm, 效率 2×10^{-5}	
Ne	$\omega_1 + \omega_1 + \omega_1$	ω_1 : 354.7nm, 18MW, 25ps 锁模Nd:YAG的三次谐波	118.2nm, 效率 10^{-3}	缓冲气体Ar
Ar	$\omega_1 + \omega_1 + \omega_1$	ω_1 : 170.9nm, 1MW, 10ns Xe, 激光器	57.0nm	$\omega_1 + \omega_1$ 双光子共振
Kr	$\omega_1 + \omega_1 + \omega_1$	ω_1 : 337.1nm, 1MW, 3ns N ₂ 激光器	112.4nm, 效率高到 10^{-6}	4~5大气压, 最佳Kr压力
Kr	$\omega_1 + \omega_1 + \omega_1$	ω_1 : 364.8nm, 10MW, 15ns 染料激光器	约121.6nm, 约60W	Lyman-alpha辐射

献有相同的方式。根据 (6.3-15) 式和 (6.3-17) 式可知, 如果虚部 χ'' 不为零, 那么传递到介质的能流就不再为零。与此相反, 对非参量过程来说, 电极化率张量实部与虚部可给出不同的物理意义, 这可从下面所要讨论的例如双光子吸收和受激喇曼过程来说明。

四、双光子吸收

当用红宝石激光照射掺铈(Ce)的氟化钙晶体时, 在探测到的荧光中, 发现有两倍于红宝石激光频率的跃迁。因为该介质不存在与单个红宝石激光光子所对应的任何激发态, 所以不能用连续吸收两个红宝石激光光子来解释。又由于掺铈的氟化钙晶体属立方晶体, 具有反演对称性, 因而也不可能产生二次谐波的频率。所以上述现象唯一的解释是同时吸收两个光子。更一般的情况是, 当具有频率为 ω_1 和 ω_2 的两束波通过非线性介质时, 如果 $\omega_1 + \omega_2$ 接近介质的某个跃迁频率, 就会发现两束光都衰减, 这是因为介质同时吸收两个光子而引起两束波的衰减 (从每一束波中各吸收一个光子), 这就是双光子吸收名词的来源。

在分析双光子吸收的具体规律以前, 我们要强调指出的是, 我们感兴趣的情况是 $\omega_1 + \omega_2$ 接近介质的某个跃迁频率 ω_0 。因为现在所讨论的情况只有两个频率分量 ω_1 和 ω_2 , 而且又没有二阶非线性效应, 或者不满足产生和频、差频和二次谐波相对应的相位匹配条件, 又如果不满足产生三次谐波的相位匹配条件, 那么这时我们只要考虑频率 ω_1 和 ω_2 的辐射即可, 不需要考虑任何其它频率的辐射。但是应必须考虑辐射场之间的耦合作用所产生的结果, 所以必须考虑频率为 ω_1 和 ω_2 的三阶非线性电极化强度 $\mathbf{P}^{(3)}(\omega_1)$ 和 $\mathbf{P}^{(3)}(\omega_2)$ 。根据 (6.1-3) 式有

$$\mathbf{P}^{(3)}(\omega_1) = 6\epsilon_0\chi^{(3)}(\omega_2, -\omega_2, \omega_1) : \mathbf{E}(\omega_2)\mathbf{E}^*(\omega_2)\mathbf{E}(\omega_1), \quad (6.4-1)$$

$$\mathbf{P}^{(3)}(\omega_2) = 6\epsilon_0\chi^{(3)}(\omega_1, -\omega_1, \omega_2) : \mathbf{E}(\omega_1)\mathbf{E}^*(\omega_1)\mathbf{E}(\omega_2). \quad (6.4-2)$$

利用 (4.4-18) 式并略去小的修正项 $\mathbf{b}(\omega_1, z)$ 和 $\mathbf{b}(\omega_2, z)$ 后有

$$\mathbf{E}(\omega_1) = E(\omega_1, z)\mathbf{a}(\omega_1)\exp(ik_1z),$$

$$\mathbf{E}(\omega_2) = E(\omega_2, z)\mathbf{a}(\omega_2)\exp(ik_2z).$$

将 $\mathbf{E}(\omega_1)$ 和 $\mathbf{E}(\omega_2)$ 两式代入 (6.4-1) 式和 (6.4-2) 式后给出

$$\begin{aligned} \mathbf{P}^{(3)}(\omega_1) &= 6\epsilon_0\chi^{(3)}(\omega_2, -\omega_2, \omega_1) : \mathbf{a}(\omega_2)\mathbf{a}(\omega_2)\mathbf{a}(\omega_1) \\ &\quad \times |E(\omega_2, z)|^2 E(\omega_1, z)\exp(ik_1z), \end{aligned} \quad (6.4-3)$$

$$\begin{aligned} \mathbf{P}^{(3)}(\omega_2) &= 6\epsilon_0\chi^{(3)}(\omega_1, -\omega_1, \omega_2) : \mathbf{a}(\omega_1)\mathbf{a}(\omega_1)\mathbf{a}(\omega_2) \\ &\quad \times |E(\omega_1, z)|^2 E(\omega_2, z)\exp(ik_2z). \end{aligned} \quad (6.4-4)$$

再将 (6.4-3) 式和 (6.4-4) 式代入 (4.4-25) 式, 便得到 $E(\omega_1, z)$ 和 $E(\omega_2, z)$ 的两个耦合方程

$$\begin{aligned} \frac{dE(\omega_1, z)}{dz} &= \frac{3i\omega_1^2}{k_1c^2} \chi^{(3)}(\omega_2, -\omega_2, \omega_1) : \mathbf{a}(\omega_1)\mathbf{a}(\omega_2)\mathbf{a}(\omega_2)\mathbf{a}(\omega_1) \\ &\quad \times |E(\omega_2, z)|^2 E(\omega_1, z), \end{aligned} \quad (6.4-5)$$

$$\begin{aligned} \frac{dE(\omega_2, z)}{dz} &= \frac{3i\omega_2^2}{k_2c^2} \chi^{(3)}(\omega_1, -\omega_1, \omega_2) : \mathbf{a}(\omega_2)\mathbf{a}(\omega_1)\mathbf{a}(\omega_1)\mathbf{a}(\omega_2) \\ &\quad \times |E(\omega_1, z)|^2 E(\omega_2, z). \end{aligned} \quad (6.4-6)$$

式中点乘按 (5.5-11) 式的定义有

$$\chi^{(3)}:abcd = \sum_{\substack{\alpha, \beta, \gamma, \delta \\ \mu, \nu, \nu, \mu}} \chi_{\alpha\beta\gamma\delta}^{(3)} a_{\mu} b_{\nu} c_{\nu} d_{\mu} . \quad (6.4-7)$$

在这里我们得到的耦合方程 (6.4-6) 式和 (6.4-7) 式与在第五章中所得到的同类型的 (5.5-11) ~ (5.5-13) 式相比较时, 可以看到在 (6.4-6) 和 (6.4-7) 两式中不存在与两束波的波矢 k_1 和 k_2 有关的指数因子, 因此在这里就不存在需要考虑相位匹配的问题。这就是我们在上节末简单地提到的所谓非参量过程。

由 (6.4-3) 式和 (6.4-4) 式所给出的 $P^{(3)}(\omega_1)$ 和 $P^{(3)}(\omega_2)$ 分别与相同频率的场分量 $E(\omega_1)$ 和 $E(\omega_2)$ 对 kz 有相同的指数关系。因而 $P^{(3)}(\omega_1)$ 、 $P^{(3)}(\omega_2)$ 中与 $\chi^{(3)}$ 的实部和虚部有关的两部分总是分别地与相应的电场分量 $E(\omega_1)$ 、 $E(\omega_2)$ 同相和相位差 $\pi/2$ 。

因为现在我们感兴趣的是 $\omega_1 + \omega_2$ 接近于媒质共振频率的情况, 因此 $\chi^{(3)}(\omega_2, -\omega_2, \omega_1)$ 和 $\chi^{(3)}(\omega_1, -\omega_1, \omega_2)$ 中的实部和虚部都是有限的, 在方程中都必须予以考虑。

我们知道非线性电极化率张量的实部具有完全对易对称性, 因而有关系

$$\begin{aligned} \operatorname{Re}[\chi^{(3)}(\omega_2, -\omega_2, -\omega_1):\alpha(\omega_1)\alpha(\omega_2)\alpha(\omega_2)\alpha(\omega_1)] \\ = \operatorname{Re}[\chi^{(3)}(\omega_1, -\omega_1, \omega_2):\alpha(\omega_2)\alpha(\omega_1)\alpha(\omega_1)\alpha(\omega_2)] \end{aligned} \quad (6.4-8)$$

并令它等于 χ (这是假定的一个符号)。

关于虚部的情况, 我们可以从简单的经典模型所得到的 (1.2-42) 式出发去讨论^[7]。当 $\omega_1 + \omega_2 \approx \omega_0$, 即 $|\omega_1 + \omega_2 - \omega_0| \leq \hbar$ 时,

$$\begin{aligned} \operatorname{Im}\chi^{(3)}(\omega_2, -\omega_2, \omega_1) \\ = \operatorname{Im} \frac{ne^4}{\epsilon_0 m^3} \left[B + \frac{2}{3} A^2 \{ F(0) + F(\omega_1 - \omega_2) + F(\omega_1 + \omega_2) \} \right] \\ \times F(\omega_1) F(-\omega_2) F(\omega_2) F(\omega_2 - \omega_2 + \omega_1) . \end{aligned} \quad (6.4-9)$$

因为按 $F(\omega)$ 的定义 (1.2-11) 式有 $F(\omega) = 1/[\omega_0^2 - \omega^2 - 2i\hbar\omega]$, 所以 $F(0)$ 是实数; 又因 $(\omega_1 + \omega_2)$ 接近共振频率 ω_0 , 所 ω_1 、 ω_2 和 $\omega_1 - \omega_2$ 都远离共振频率 ω_0 , 这样 $F(\omega_1)$ 、 $F(\omega_2)$ 和 $F(\omega_1 - \omega_2)$ 等都是实数。从而 (6.4-9) 式变为

$$\begin{aligned} \operatorname{Im}\chi^{(3)}(\omega_2, -\omega_2, \omega_1) \\ = -\frac{2ne^4 A^2}{3\epsilon_0 m^3} F^2(\omega_1) F^2(\omega_2) \operatorname{Im} F(\omega_1 + \omega_2) \end{aligned} \quad (6.4-10)$$

$$= \operatorname{Im}\chi^{(3)}(\omega_1, -\omega_1, \omega_2) . \quad (6.4-11)$$

由此可见, 不仅电极化率张量 $\chi^{(3)}(\omega_2, -\omega_2, \omega_1)$ 和 $\chi^{(3)}(\omega_1, -\omega_1, \omega_2)$ 的虚部相同, 而且与 n 有相同的符号。 n 是跃迁频率接近 $\omega_1 + \omega_2$ 的上下两个能级之间的集居数密度差。又因为 $F(\omega_1)$ 和 $F(\omega_2)$ 两者都是实数, 而且 $\operatorname{Im} F(\omega_1 + \omega_2) > 0$, 所以 $\operatorname{Im}\chi^{(3)}(\omega_2, -\omega_2, \omega_1)$ 与集居数差的符号相同。在正常的热平衡条件下 n 是正的, 而在集居数反转的条件下, n 为负值。

如果我们引入符号 χ_{TA} , 使之表示为

$$\begin{aligned} \chi_{TA} = \operatorname{Im}[\chi^{(3)}(\omega_2, -\omega_2, \omega_1):\alpha(\omega_1)\alpha(\omega_2)\alpha(\omega_2)\alpha(\omega_1)] \\ = \operatorname{Im}[\chi^{(3)}(\omega_1, -\omega_1, \omega_2):\alpha(\omega_2)\alpha(\omega_1)\alpha(\omega_1)\alpha(\omega_2)] . \end{aligned} \quad (6.4-12)$$

我们可以利用推导 (2.10-10) 式类似的方法求得双光子吸收的 $\chi_{\mu\alpha\mu\nu}^{(3)}$ 的量子力学表示

式,并分析它的实部和虚部时也得到完全相同的结论。这样,(6.4-5)式和(6.4-6)式便变为

$$\begin{aligned} \frac{dE(\omega_1, z)}{dz} &= \frac{3i\omega_1^2}{k_1 c^2} (\chi + i\chi_{rA}) |E(\omega_2, z)|^2 E(\omega_1, z) \\ &= \frac{3\omega_1^2}{k_1 c^2} (i\chi - \chi_{rA}) |E(\omega_2, z)|^2 E(\omega_1, z), \end{aligned} \quad (6.4-13)$$

$$\frac{dE(\omega_2, z)}{dz} = \frac{3\omega_2^2}{k_2 c^2} (i\chi - \chi_{rA}) |E(\omega_1, z)|^2 E(\omega_2, z). \quad (6.4-14)$$

由(6.4-13)式和(6.4-14)式可以给出

$$\frac{k_1}{\omega_1^2} E^*(\omega_1, z) \frac{dE(\omega_1, z)}{dz} - \frac{k_2}{\omega_2^2} E^*(\omega_2, z) \frac{dE(\omega_2, z)}{dz} = 0. \quad (6.4-15)$$

当取(6.4-15)式的复数共轭,并与(6.4-15)式相加,再积分便得到

$$\frac{k_1}{\omega_1^2} |E(\omega_1, z)|^2 - \frac{k_2}{\omega_2^2} |E(\omega_2, z)|^2 = \text{常数}. \quad (6.4-16)$$

如果用平均光子通量 $N(\omega_1)$ 和 $N(\omega_2)$ 来表示,根据 $N(\omega) = \frac{2k}{\mu_0 \hbar \omega^2} |E(\omega)|^2$ 的关系,

(6.4-16)式可以写为

$$N(\omega_1, z) - N(\omega_2, z) = N(\omega_1, 0) - N(\omega_2, 0) = \text{常数}. \quad (6.4-17)$$

式中 $N(\omega_1, 0)$ 和 $N(\omega_2, 0)$ 是 $N(\omega_1, z)$ 和 $N(\omega_2, z)$ 在 $z=0$ 处的初始值。(6.4-17)式是一个曼利-罗型的关系式,它表明频率为 ω_1 和 ω_2 的辐射场必须同时被放大或衰减,这正是双光子吸收的规律性的反映。

关于(6.4-13)式和(6.4-14)式的一般解,可以用光子通量来表示。用 $E^*(\omega_1, z)$ 乘(6.4-13)式并与其复数共轭相加,有

$$\begin{aligned} E^*(\omega_1, z) \frac{dE(\omega_1, z)}{dz} + E(\omega_1, z) \frac{dE^*(\omega_1, z)}{dz} \\ = -\frac{6\omega_1^2}{k_1 c^2} \chi_{rA} |E(\omega_1, z)|^2 |E(\omega_2, z)|^2. \end{aligned}$$

即

$$\frac{d|E(\omega_1, z)|^2}{dz} = -\frac{6\omega_1^2}{k_1 c^2} \chi_{rA} |E(\omega_1, z)|^2 |E(\omega_2, z)|^2$$

或

$$\begin{aligned} \frac{dN(\omega_1, z)}{dz} &= -\frac{6\omega_1^2}{k_1 c^2} \chi_{rA} N(\omega_1, z) - \frac{\omega_2^2}{k_2} \frac{\mu_0 \hbar}{2} N(\omega_2, z) \\ &= -\frac{3\omega_1^2 \omega_2^2}{k_1 k_2 c^2} \mu_0 \hbar \chi_{rA} N(\omega_1, z) N(\omega_2, z). \end{aligned}$$

由此得到光子通量 $N(\omega_1, z)$ 和 $N(\omega_2, z)$ 的耦合方程为

$$\frac{dN(\omega_1, z)}{dz} = \frac{dN(\omega_2, z)}{dz} = -a_{r1} N(\omega_1, z) N(\omega_2, z). \quad (6.4-18)$$

式中

$$\alpha_{TA} = \frac{3\omega_1^2\omega_2^2}{k_1k_2c^2}\mu_0\hbar\chi_{TA} \quad (6.4-19)$$

将 (6.4-17) 式代入 (6.4-18) 式, 有:

$$\frac{dN(\omega_1, z)}{dz} = -\alpha_{TA}N^2(\omega_1, z) + \alpha_{TA}N(\omega_1, z)[N(\omega_1, 0) - N(\omega_2, 0)]$$

对上式积分时有

$$\frac{1}{\alpha_{TA}} \int [N(\omega_1, 0) - N(\omega_2, 0)] \frac{dN(\omega_1, z)}{N(\omega_1, z) - N^2(\omega_1, z)} = \int dz$$

利用积分公式

$$\int \frac{dx}{a+bx+cx^2} = \frac{1}{\sqrt{-q}} \ln \frac{2cx+b-\sqrt{-q}}{2cx+b+\sqrt{-q}},$$

式中 $q = 4ac - b^2$, 在经过简单的运算后, 可得光子通量 $N(\omega_1, z)$ 为

$$\begin{aligned} N(\omega_1, z) &= \frac{N(\omega_1, 0) - N(\omega_2, 0)}{1 - \frac{N(\omega_2, 0)}{N(\omega_1, 0)} \exp\left(-\frac{z}{l_{TA}}\right)} \\ &= N(\omega_1, 0) \frac{N(\omega_1, 0) - N(\omega_2, 0)}{N(\omega_1, 0) - N(\omega_2, 0) \exp\left(-\frac{z}{l_{TA}}\right)}, \end{aligned} \quad (6.4-20)$$

式中

$$l_{TA} = \frac{1}{\alpha_{TA}[N(\omega_1, 0) - N(\omega_2, 0)]}, \quad (6.4-21)$$

是表征双光子吸收过程的一个特征长度。

再由 (6.4-17) 式和 (6.4-20) 式可得

$$\begin{aligned} N(\omega_2, z) &= N(\omega_1, z) - [N(\omega_1, 0) - N(\omega_2, 0)] \\ &= N(\omega_2, 0) \frac{N(\omega_1, 0) - N(\omega_2, 0)}{N(\omega_1, 0) - N(\omega_2, 0) \exp\left(-\frac{z}{l_{TA}}\right)} \exp\left(-\frac{z}{l_{TA}}\right). \end{aligned} \quad (6.4-22)$$

如果我们按习惯把两束波中较弱一束的频率规定为 ω_2 , 那么由 (6.4-21) 式可见, l_{TA} 是正值。所以按 (6.4-20) 式, 对于大的 z 值, $N(\omega_1, z)$ 趋于 $N(\omega_1, 0) - N(\omega_2, 0)$, $N(\omega_2, z)$ 趋于零。由 (6.4-20) 式和 (6.4-22) 式所给出的 $N(\omega_1, z)$ 和 $N(\omega_2, z)$ 随 z 变化的关系曲线如图 6-9 所示。

最后我们要说明如下几点:

(a) 如果 $\omega_1 = \omega_2$, 那么这种情况可以作为我们上面所讨论的一般情况的特例, 这时, $N(\omega_1, 0) = N(\omega_2, 0)$ 。当将此关系代入 (6.4-20) 式和 (6.4-22) 式时, 便有 $N(\omega_1, z) = N(\omega_2, z) = 0$ 。因此我们必须求 $\omega_2 \rightarrow \omega_1$ 时方程的解。求解时, 可以认为在 $\omega_2 \rightarrow \omega_1$ 的情况下, $N(\omega_1, 0) \rightarrow N(\omega_2, 0)$, 即 $[N(\omega_1, 0) - N(\omega_2, 0)]$ 是一个小量。这样, (6.4-20) 式中的指数项可以展开为

$$\exp\left(-\frac{z}{l_{TA}}\right) = \exp\{-\alpha_{TA}[N(\omega_1, 0) - N(\omega_2, 0)]z\}$$

$$= 1 - \alpha_{TA} [N(\omega_1, 0) - N(\omega_2, 0)] z .$$

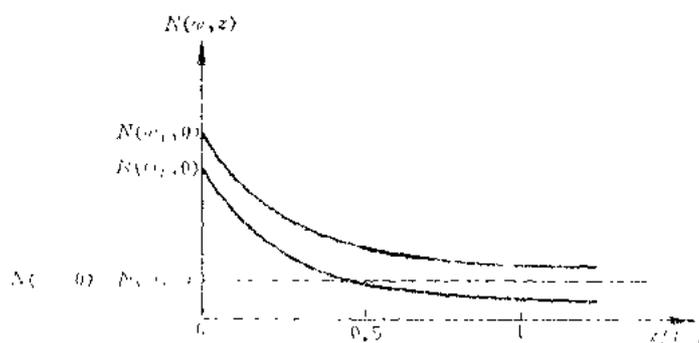


图6-9 频率为 ω_1 和 ω_2 的两束波通过具有跃迁频率为 $\omega_0 \approx \omega_1 + \omega_2$ 的介质时, 由于双光子吸收所引起的衰减

再代回(6.4-20)式后便得到

$$N(\omega_1, z) = \frac{N(\omega_1, 0)}{1 + \alpha_{TA} z N(\omega_1, 0)} = \frac{N(\omega_1, 0)}{1 + \alpha_{TA} z N(\omega_1, 0)} . \quad (6.4-23)$$

对于小的 z 来说, 上式又变为

$$N(\omega_1, z) = N(\omega_1, 0) [1 - N(\omega_1, 0) \alpha_{TA} z] , \quad (6.4-24)$$

这表示在介质深度 z 内被吸收的光子数与 $N^2(\omega_1, 0)$ 成正比, 即与入射光强度的平方成正比。

凯泽(Kaiser)和加勒特(Garrett)在他们的实验^[6]中观察到有 $1/10^7$ 数量级的光子数被吸收, 这是以说明 $\alpha_{TA} z$ 是一个小量。在上面的理论分析中, 我们已利用了这个条件, 从实验事实也证实了这个条件是被满足的。

(b) 如果我们不讨论方程(6.4-13)式和(6.4-14)式的一般解, 可定性地从这两个式子中看到 $E(\omega_1, z)$ 和 $E(\omega_2, z)$ 的变化率与它们各自的量成正比, 又如果暂时把式中的 $|E(\omega_1, z)|^2$ 和 $|E(\omega_2, z)|^2$ 当作常数去处理, 那么 $E(\omega_1, z)$ 和 $E(\omega_2, z)$ 就有如下的指数变化规律:

$$E(\omega_1, z) \propto \exp \left[\frac{3\omega_1^2}{k_1 c^3} |E(\omega_2, z)|^2 (i\chi - \chi_{TA}) z \right] \quad (6.4-25)$$

及

$$E(\omega_2, z) \propto \exp \left[\frac{3\omega_2^2}{k_2 c^3} |E(\omega_1, z)|^2 (i\chi - \chi_{TA}) z \right] . \quad (6.4-26)$$

这两个表示式表明在正常热平衡条件下 χ_{TA} 为正值时, $E(\omega_1, z)$ 和 $E(\omega_2, z)$ 随 z 的增加而减少, 减少的速度与另一束波的强度和 χ_{TA} 成正比。指数项中的虚部表示波之间的非线性耦合会导致每一束波的传播常数的改变, 这种改变正比于 χ , 即正比于 $\chi^{(3)}$ 的实部, 并正比于另一束波的强度。在远离共振区的条件下, 只有 χ 不等于零, 波才不再被衰减, 而只是稍稍改变波的传播常数。应明确, 每一束波的传播常数的改变是由于另一束波的存在引起的。而这种传播常数的改变对应于介质有效折射率的改变。且折射率的变化与引起这种改变的波的振幅平方成正比。实际上, 这就是我们在本章一中所讨论的二次电光效应或克尔效应。由

由此可见,这里所讨论的非参量过程与上节所讨论的三次谐波产生的参量过程不同,在这里,电极化率的实部与虚部可给出不同的物理含义,电极化率的虚部导致双光子吸收,而其实部导致光学克尔效应;同时在这里还表现出相位失配 Δk 自动地变为零。

(c) 从本章7-1中的克尔效应和本节所讨论的双光子吸收过程可知,在这两种过程中,参与耦合的波的频率都是两个,但对前者来说,频率 ω_1 和 ω_2 都远离介质的共振区,而后者满足 $\omega_1 + \omega_2$ 接近于介质的共振频率 $\omega_0 \approx \omega_1 + \omega_2$ 。如果两束波的频率 ω_1 和 ω_2 具有 $\omega_1 - \omega_2 \approx \omega_0$ 的关系,则过程就是我们下节所要讨论的受激喇曼散射过程。

(d) 利用双光子共振吸收可以产生差频 ω_4 或 ω_4 ,如图6-10所示。简并的情况是 $\omega_1 = \omega_4$, $\omega_2 = \omega_3$ 。利用双光子共振吸收产生差频 ω_4 的三阶非线性电极化率为 $\chi(-\omega_4, -\omega_3, \omega_2, \omega_1)$ 。

(e) 在一定条件下,在双光束双光子吸收的过程中,将会同时改变其中一束入射光的偏振状态。例如假定介质是Na原子气体;频率为 ω_2 的入射光束是圆偏振光,光束较强;另一束频率为 ω_1 的较弱的光束是线偏振光。

又假定与双光子吸收过程相对应的是Na原子的s-s跃迁,则按选择定则的要求,原子只能同时吸收两个反向旋转的圆偏振光子。因为 $\omega_1 \neq \omega_2$,并假定这两个频率之差大于多卜勒线宽,因而这时所发生的双光子吸收过程不可能吸收同一频率的两个光子,而只能吸收来自不同光束并且旋转方向相反的两个光子。如果较弱一束光束的线偏振光被看作由两个旋转方向相反的圆偏振光所组成,则由上述分析立即可以得到如下的结论:即该两个旋转方向相反的圆偏振光通过Na原子气体时的衰减是不相同的,这叫做二向色性效应。

(f) 利用双光子吸收过程可以消除多卜勒增宽的影响,以提高光谱分析的分辨率。如果用两束频率都是 ω 的反向传播的激光束入射到待分析的气体介质中,由于多卜勒效应,在光束轴线上具有速度分量为 v 的那些分子的表现双光子吸收的跃迁频率为 $2\omega(1 - v/c)$ (速度分量 v 的分子与同向传播的光束相作用)和 $2\omega(1 + v/c)$ (速度分量 v 的分子与反向传播的光束相作用)。但是当具有任意速度分量 v 的分子与反向传播的两束同频率的光相互作用时,有可能从两反向传播的光束中各吸收一个光子而产生双光子跃迁,这时双光子跃迁频率为

$$\omega\left(1 - \frac{v}{c}\right) + \omega\left(1 + \frac{v}{c}\right) = 2\omega。$$

这表明不管分子速度如何不同,双光子吸收的跃迁频率总是完全相同,并且只有当 $2\omega = \omega_0$ (双光子共振跃迁频率)时,才发生窄的双光子吸收共振增强。因为 ω_0 是不存在多卜勒效应时的粒子的共振跃迁频率,因而上述过程实现了消除多卜勒效应的影响。理论分析表明,反向双光子共振吸收曲线的峰值宽度可作到只决定于自然线宽的程度。当然,单向双光子吸收也会同时存在,它产生多卜勒增宽的双光子吸收,这是一种背景,需采取适当措施以消除这种背景的影响。

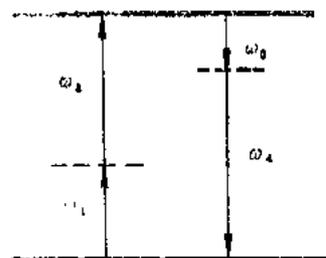
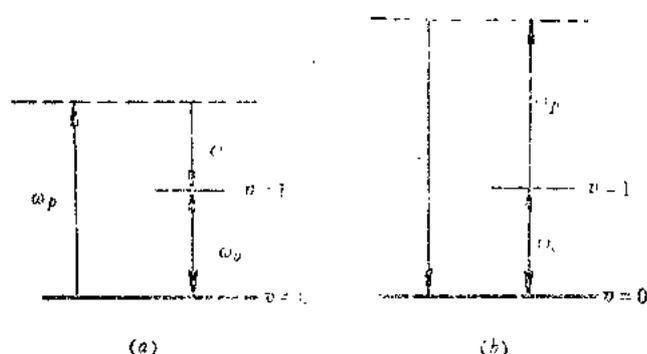


图 6-10 双光子共振吸收产生差频(ω_4 或 ω_4)的示意图

五、受激喇曼散射

1. 普通喇曼散射与受激喇曼散射

当用一束频率为 ω_p 的光波照射含有气体、液体或晶体的样品盒时，在散射的辐射中，存在着产生了频移的成分 ω_s ，被移动的量 $\omega_p - \omega_s = \omega_0$ 等于被照射物质分子的共振频率。当 $\omega_p > \omega_s$ 时，这种散射叫做斯托克斯散射；当 $\omega_s > \omega_p$ 时，叫做反斯托克斯散射，其强度通常比斯托克斯散射的强度小几个数量级。这两种类型散射的能级图如图6-11(a)、(b)所示。图(a)表示分子原来处在基态 $v=0$ 上，一个频率为 ω_p 的入射光子被分子吸收的同时发射一个频率为 ω_s ($=\omega_p - \omega_0$)的斯托克斯光子，然后分子被激发到 $v=1$ 的振动能级上。图(b)表示分子原来处在 $v=1$ 的激发态上，



分子原来处在 $v=1$ 的激发态上，散射的反斯托克斯光的频率为 $\omega_{as} = \omega_p + \omega_0$ 。

从经典的观点，喇曼散射是由于分子的振动引起线性电极化率的周期性变化而引起的。例如，如果用 q 表示分子振动的简正坐标， ω_0 是分子的振动频率，则线性电极化率 χ 为

图 6-11 (a) 斯托克斯散射；(b) 反斯托克斯散射

$$\chi = \chi_0 + \frac{\partial \chi}{\partial q} q_0 \sin \omega_0 t \quad (6.5-1)$$

因而分子系统在受到外加光场 $E_0 \sin \omega t$ 的作用后，产生的电极化强度为

$$P = \epsilon_0 \chi E = \epsilon_0 E_0 \left(\chi_0 + \frac{\partial \chi}{\partial q} q_0 \sin \omega_0 t \right) \sin \omega t \quad (6.5-2)$$

可见有频率为 $\omega \pm \omega_0$ 的成分出现，这相当于斯托克斯散射和反斯托克斯散射。

对于普通的喇曼散射来说，不论是斯托克斯散射还是反斯托克斯散射，都是不相干的辐射。可是用强激光照射某些介质时，在一定的条件下，散射光具有受激的性质，这就是所谓受激喇曼散射。

与普通喇曼散射相比较，受激喇曼散射具有如下一些特点：

(a) 明显的阈值性。即只有当入射激光束的光强或功率密度超过一定激励阈值后，才能产生受激喇曼散射效应。

(b) 受激散射光具有明显的定向性。即当入射激光超过一定的激励阈值后，散射光束的空间发散角明显变小，一般可达到与入射激光相近的发散角。

(c) 受激喇曼散射光谱的高单色性。当超过一定的激励阈值后，散射光谱的宽度明显变窄，可达到与入射激光单色性相当或更窄的程度。

(d) 受激喇曼散射光的高强度性。受激喇曼散射光强或功率可以达到与入射激光束光

强或功率相比拟的程度。在比较好的情况下，入射激光向受激散射光能量或功率的转换效率可达30%以上。

(e) 受激喇曼散射光随时间的变化特性，与入射激光随时间变化的特性相类似，但有时候受激散射光脉冲的持续时间可远短于入射激光脉冲的持续时间。

总之，普通喇曼散射过程属于一种自发散射过程，由这种过程所产生的散射光十分微弱，是不相干的。而受激喇曼散射是在激励场和斯托克斯场的同时作用下产生的受激过程，产生的辐射是相干的辐射。

关于受激喇曼散射的机理可简单地理解如下：在受激喇曼散射中，相干的入射光子主要不是被热振动声子所散射，而是被受激声子所散射。什么是受激声子？当最初一个入射光子与一个热振动声子相碰，结果产生一个斯托克斯光子，并增添一个声子，这个增添的声子，便称为受激声子。当入射光子再与这个增添的受激声子相碰时，在再产生一个斯托克斯光子的同时，又增添一个受激声子。如此继续下去，便形成一个产生受激声子的雪崩过程，如图6-12所示。产生受激声子过程的关键在于要有足够多的入射光子。由于受激声子所形成的声波是相干的，而且入射激光也是相干的，所以，由于受激散射所产生的斯托克斯光也是相干的。

现在我们将利用经典电磁场耦合的理论来分析受激喇曼散射效应。

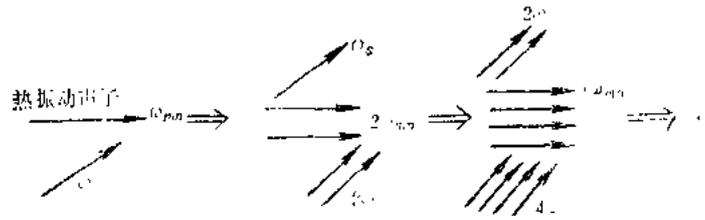


图 6-12 产生受激声子雪崩过程的示意图

2. 受激喇曼散射过程的电磁场处理

对受激喇曼散射过程来说，由于我们感兴趣的情况总是满足入射激光光子数 n_i 和受激喇曼散射光的光子数 n_s 远大于1，因而可以利用经典电磁场理论处理该过程。根据电磁场理论来分析受激喇曼散射效应时，分析的方法与讨论双光子吸收的方法相同，只是现在的情况是，辐射场的两个频率分量的差（而不是两个频率分量之和）靠近介质分子的一个跃迁频率。象讨论双光子吸收那样，假定所有产生和频、差频以及产生谐波的相位匹配条件都不能很好地满足，那么在本章四中所导出的方程(6.4-5)式和(6.4-6)式也可应用于这里，只是用散射光频率 ω_s 和激励光频率 ω_p ($\omega_p > \omega_s$) 分别代替 ω_2 和 ω_1 即可。这样该两方程变为

$$\frac{dE(\omega_s, z)}{dz} = \frac{3l\omega_s^2}{k_s c^2} \chi^{(3)}(\omega_p, -\omega_p, \omega_s) \frac{1}{2} \alpha(\omega_s) \alpha(\omega_p) \alpha(\omega_s) \alpha(\omega_p) \times |E(\omega_p, z)|^2 E(\omega_s, z) \quad (6.5-3)$$

和

$$\frac{dE(\omega_p, z)}{dz} = \frac{3l\omega_p^2}{k_p c^2} \chi^{(3)}(\omega_s, -\omega_s, \omega_p) \frac{1}{2} \alpha(\omega_p) \alpha(\omega_s) \alpha(\omega_s) \alpha(\omega_p) \times |E(\omega_s, z)|^2 E(\omega_p, z) \quad (6.5-4)$$

和双光子吸收过程的情况一样，在这里没有相位匹配条件的限制。

因为现在 $\omega_p - \omega_s$ 接近共振频率，因而电极化率 $\chi^{(3)}(\omega_p, -\omega_p, \omega_s)$ 和 $\chi^{(3)}(\omega_s, -\omega_s, \omega_p)$ 也是复数。其实部具有完全对易对称性。其虚部的性质也可以利用经典模型得到的(1.2-42)式在 $|\omega_p - \omega_s - \omega_0| \ll \hbar$ 时给出

$$\begin{aligned} \text{Im} \chi^{(3)}(\omega_s, -\omega_s, \omega_p) &= \frac{2ne^4}{3\epsilon_0 m^3} A^2 F^2(\omega_s) F^2(\omega_p) \text{Im} F(\omega_p - \omega_s) \\ &= -\frac{2ne^4}{3\epsilon_0 m^3} A^2 F^2(\omega_s) F^2(\omega_p) \text{Im} F(\omega_s - \omega_p) \\ &= -\text{Im} \chi^{(3)}(\omega_p, -\omega_p, \omega_s) . \end{aligned} \quad (6.5-5)$$

因为 $\omega_p - \omega_s > 0$ ，所以 $\text{Im} F(\omega_p - \omega_s) > 0$ ，这样，由(6.5-5)式可见 $\text{Im} \chi^{(3)}(\omega_s, -\omega_s, \omega_p)$ 和 n 有相同的符号， $\text{Im} \chi^{(3)}(\omega_p, -\omega_p, \omega_s)$ 和 n 有相反的符号。将此结果应用于耦合方程(6.5-3)式和(6.5-4)式时，保持 $\text{Im} \chi^{(3)}(\omega_s, -\omega_s, \omega_p)$ 与 $\text{Im} \chi^{(3)}(\omega_p, -\omega_p, \omega_s)$ 的符号相反，而且 $\text{Im} \chi^{(3)}(\omega_s, -\omega_s, \omega_p)$ 的符号由跃迁频率接近于 $\omega_0 = \omega_p - \omega_s$ 的较低和较高两个能级之间的集居数密度差 n 的符号所决定(分析(2.10-10)式可以得到完全相同的结论)。因此，我们定义

$$\begin{aligned} \chi_R &= \text{Im}[\chi^{(3)}(\omega_s, -\omega_s, \omega_p) : \mathbf{a}(\omega_p) \mathbf{a}(\omega_s) \mathbf{a}(\omega_s) \mathbf{a}(\omega_p)] \\ &= -\text{Im}[\chi^{(3)}(\omega_p, -\omega_p, \omega_s) : \mathbf{a}(\omega_s) \mathbf{a}(\omega_p) \mathbf{a}(\omega_p) \mathbf{a}(\omega_s)] . \end{aligned} \quad (6.5-6)$$

在下面我们将会看到控制受激喇曼效应的正是这一个量，它在正常的热平衡条件下是正值，在集居数反转的条件下变为负值。

现在，我们可以将(6.5-3)式和(6.5-4)式简化为如下的形式：

$$\frac{dE(\omega_s, z)}{dz} = \frac{3\omega_s^3}{k_s c^2} (i\chi + \chi_R) |E(\omega_p, z)|^2 E(\omega_s, z) , \quad (6.5-7)$$

$$\frac{dE(\omega_p, z)}{dz} = \frac{3\omega_p^3}{k_p c^2} (i\chi - \chi_R) |E(\omega_s, z)|^2 E(\omega_p, z) . \quad (6.5-8)$$

这两个式子与双光子吸收的(6.4-13)式和(6.4-14)式十分类似，只是第一式 χ_R 前面的符号与(6.4-13)式中的不同，这个不同十分重要，正是它才导出

$$\frac{k_s}{\omega_s^3} E^*(\omega_s, z) \frac{dE(\omega_s, z)}{dz} + \frac{k_p}{\omega_p^3} E(\omega_p, z) \frac{dE^*(\omega_p, z)}{dz} = 0 \quad (6.5-9)$$

的表示式。通过类似于求得(6.4-17)式的步骤和方法，可以求得

$$N(\omega_s, z) + N(\omega_p, z) = N(\omega_s, 0) + N(\omega_p, 0) = \text{常数} . \quad (6.5-10)$$

这又是一类曼利-罗型的关系。但这里所给出的结果表明，频率为 ω_s 的辐射场其光子数的任何增加或减少恰好与 ω_p 的光子数的损失或增加相等。由此可以立即看到，由于非线性耦合的结果，两个频率 ω_s 和 ω_p 中的一个被放大，另一个被衰减。而在双光子吸收的情况下，(6.4-17)式表明两个分量的辐射同时被衰减。

关于(6.5-7)式和(6.5-8)式的解的一般性质，可以由这两个方程看出。虚部 χ 的存在会引起每一束波的传播常数的改变，这种改变实质上是由于存在着另一束波的缘故。在正常热平衡条件下，实数 χ_R 为正值时，较低频率的 ω_s 分量指数增长，而较高频率 ω_p 的分量指数衰减。

类似于求解 (6.4-13) 式和 (6.4-14) 式, 用两束光的平均光子流表示时, 可求得

$$N(\omega_s, z) = N(\omega_s, 0) \frac{N(\omega_s, 0) + N(\omega_p, 0)}{N(\omega_s, 0) + N(\omega_p, 0) \exp\left(-\frac{z}{l_R}\right)}, \quad (6.5-11)$$

$$N(\omega_p, z) = [N(\omega_s, 0) + N(\omega_p, 0)] \frac{N(\omega_p, 0) \exp\left(\frac{-z}{l_R}\right)}{N(\omega_s, 0) + N(\omega_p, 0) \exp\left(\frac{-z}{l_R}\right)}. \quad (6.5-12)$$

式中 l_R 是表征喇曼过程的一个特征长度, 它定义为

$$l_R = \left\{ -\frac{3\omega_s^2 \omega_p^2 \mu_0 \hbar}{k_s k_p c^2} [N(\omega_s, 0) + N(\omega_p, 0)] \chi_R \right\}^{-1}. \quad (6.5-13)$$

一般解的图解示于图6-13中, 图中曲线表明了 $N(\omega_s, z)$ 和 $N(\omega_p, z)$ 与 z 呈指数关系。

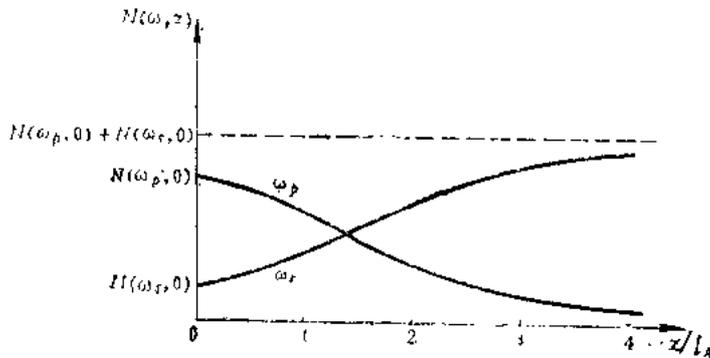


图 6-13 频率为 ω_s 和 ω_p 的两束波通过非线性介质时, 由于受激喇曼效应所引起的各自的放大和衰减曲线

对于小的 z 值, 指数项 $\exp(-z/l_R) = 1 - z/l_R$, 代入 (6.5-11) 式得到

$$N(\omega_s, z) = N(\omega_s, 0) \left[1 + \frac{N(\omega_p, 0)}{N(\omega_s, 0) + N(\omega_p, 0)} \frac{z}{l_R} \right], \quad (6.5-14)$$

$$N(\omega_p, z) = N(\omega_p, 0) \left[1 - \frac{N(\omega_s, 0)}{N(\omega_s, 0) + N(\omega_p, 0)} \frac{z}{l_R} \right], \quad (6.5-15)$$

这表示在小的 z 值和正常热平衡条件下 (χ_R 为正值) $N(\omega_s, z)$ 随 z 线性地增加, 而 $N(\omega_p, z)$ 随 z 线性地减少。

3. 受激喇曼散射的多重谱线特性

实验发现, 在受激喇曼散射光谱中, 在某些情况下除存在那些同普通喇曼散射光谱线相对应的谱线外, 还有一些新的等频率间隔的谱线, 这就是受激喇曼散射的多重谱线特性, 如图6-14(a)和(b)表示。图(a)表示普通喇曼散射产生的谱线, 其中 A_s 线和 A'_s 线对应同一对分子能级间的跃迁 (A_s 是斯托克斯线, A'_s 是反斯托克斯线), B_s 和 B'_s 线对应着分子在另一对能级间的跃迁。图(b)表示受激喇曼散射光谱, 其中除 A_s 线 (即图中的 A_{s1} 线)、 A'_s 线 (即图中的 A'_{s1} 线)、 B_s 线和 B'_s 线外, 还在 ν_0 的高频方向和低频方向出现一些等间隔的新谱线, 它们之间的频率间隔正好等于 A_s 线或 A'_s 线相对于 ν_0 线的频率差。而且这些新谱线所对应的受激

散射光只在一些特定的方向上产生。如果把与普通喇曼散射谱线相对应的受激散射谱线(如图(b)中的 A_{s_1} 和 A'_{s_1}) 称为一级谱线, 则其它谱线便依次称为二级、三级、……谱线。

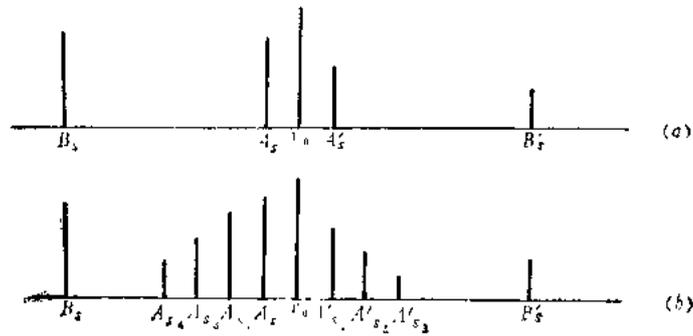


图 6-14 (a)普通喇曼散射频率谱图; (b)受激喇曼散射频率谱图

利用红宝石激光束在苯中产生斯托克斯和反斯托克斯环状有色图案的装置示意图如图6-15所示。环状有色图案如图6-16所示。

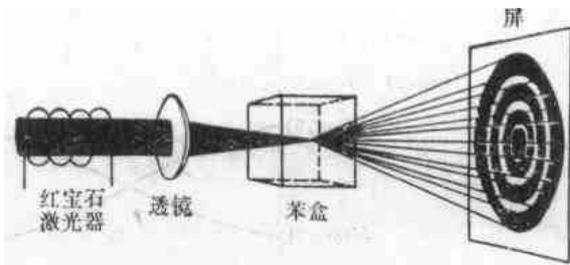


图 6-15 研究受激喇曼散射的实验装置的示意图

从图6-14和图6-15所示的受激喇曼散射实验结果表明, 虽然散射分子跃迁的高能级上的粒子数与低能级上的粒子数相比是可以忽略的, 但在受激喇曼散射过程中仍然能观察到很强

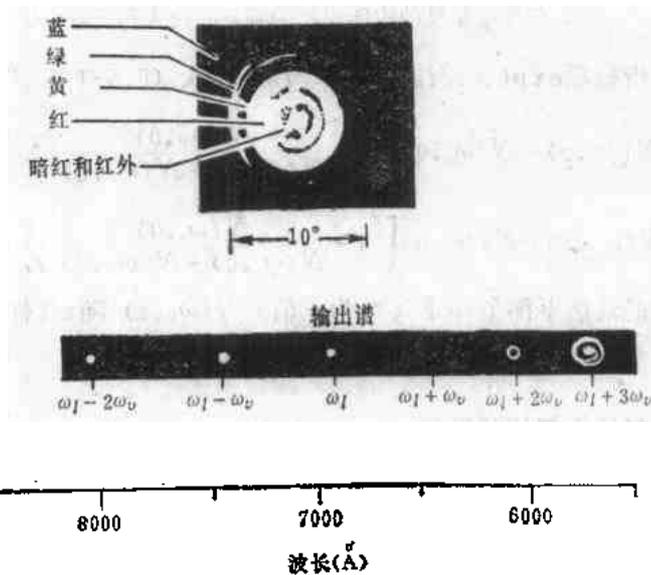


图 6-16 图6-15实验中产生的斯托克斯和反斯托克斯光的频率和方向分布

的一级反斯托克斯谱线以及高阶斯托克斯线和反斯托克斯线。为了解释这种很强的一级反斯托克斯谱线和多级谱线的产生, 以及它们对方向的明显依赖性, 我们可以用多束波在非

线性介质内的相互作用理论未说明。可以认为多级受激喇曼散射谱线的产生是由于入射激光、一级斯托克斯散射光和一级反斯托克斯等散射光之间的非线性耦合的结果。在这种耦合作用过程的始末，散射分子的本征态并不发生改变。例如一级反斯托克斯散射光可由一级斯托克斯散射光和入射激光通过三阶非线性电极化

$$P^{(3)}(\omega'_s, \mathbf{r}) = 3\epsilon_0 \chi^{(3)}(\omega_p, \omega_p, -\omega_s) : \mathbf{a}(\omega_p) \mathbf{a}(\omega_p) \mathbf{a}(\omega_s) \\ \times E(\omega_p, \mathbf{r}) E(\omega_p, \mathbf{r}) E^*(\omega_s, \mathbf{r}) \exp[i(2\mathbf{k}_p - \mathbf{k}_s) \cdot \mathbf{r}] \quad (6.5-16)$$

产生。但由上式可见，一级反斯托克斯散射光只有满足相位匹配条件

$$\Delta \mathbf{k} = 2\mathbf{k}_p - \mathbf{k}_{s_1} - \mathbf{k}'_{s_1} = 0 \quad (6.5-17)$$

时才能有效地产生。对于一般的液体和固体散射介质来说，由于折射率的色散效应，(6.5-17)式的相位匹配条件不可能在同一方向上实现。对于给定的入射光波矢 \mathbf{k}_p 来说，由于一级斯托克斯散射光可在较大的角度范围内产生，故可以在某一特定的 \mathbf{k}_s 和 \mathbf{k}'_s 方向上满足相位匹配条件，如图6-17所示。根据该矢量图有

$$k_{s_1} \cos \theta_{s_1} - k_p = k_p - k'_{s_1} \cos \theta'_{s_1} \quad (6.5-18)$$

又根据能量守恒有

$$\omega_{s_1} = 2\omega_p - \omega'_{s_1} \quad (6.5-19)$$

假定一级斯托克斯和一级反斯托克斯散射光的折射率分别为

$$\eta_{s_1} = \eta + \Delta\eta_{s_1}, \quad \eta'_{s_1} = \eta + \Delta\eta'_{s_1},$$

则由(6.5-18)式给出

$$\left(1 + \frac{\Delta\eta_{s_1}}{\eta}\right) \left[1 - \frac{(\theta_{s_1})^2}{2}\right] \omega_{s_1} + \left(1 + \frac{\Delta\eta'_{s_1}}{\eta}\right) \left[1 - \frac{(\theta'_{s_1})^2}{2}\right] \omega'_{s_1} = 2\omega_p \quad (6.5-20)$$

(6.5-20)式减去(6.5-19)式，有

$$\theta = (\theta_{s_1})^2 \approx (\theta'_{s_1})^2 \approx \frac{2(\Delta\eta_{s_1} \omega_{s_1} + \Delta\eta'_{s_1} \omega'_{s_1})}{\eta(\omega_{s_1} + \omega'_{s_1})} \quad (6.5-21)$$

式中已考虑到 $\theta_{s_1} \approx \theta'_{s_1}$ ，可见一级反斯托克斯散射光沿着与入射激光方向成 θ 角的圆锥角射出。由此便解释了在某些实验条件下在特定方向上可观察到的有很强的一级反斯托克斯散射光的产生。

同理也可以解释在特定方向上多级谱线的产生。例如二级斯托克斯光是由入射激光(\mathbf{k}_p)和一级斯托克斯光(\mathbf{k}_s)通过三阶非线性电极化

$$P^{(3)}(\omega_{s_2}, \mathbf{r}) = 3\epsilon_0 \chi^{(3)}(-\omega_p, \omega_{s_1}, \omega_{s_1}) : \mathbf{a}(\omega_p) \mathbf{a}(\omega_{s_1}) \mathbf{a}(\omega_{s_1}) \times E^*(\omega_p, \mathbf{r}) \\ \times E(\omega_{s_1}, \mathbf{r}) E(\omega_{s_1}, \mathbf{r}) \exp[i(-\mathbf{k}_p + \mathbf{k}_{s_1} + \mathbf{k}_{s_1}) \cdot \mathbf{r}] \quad (6.5-22)$$

产生。在相位匹配，即



图 6-17 产生一级反斯托克斯散射光的相位匹配

$$-k_p + k_{s_1} + k_{s_2} - k_{s_1} - k_{s_2} = 0$$

时，便能有效地产生二级斯托克斯散射光。

由此可见，受激喇曼散射的多重谱线特性都需要满足相位匹配条件，其波矢之间有一定的矢量关系，所以这些谱线都将相对于 k_p 以一定的角度发射。

以上我们所讨论的受激喇曼散射是由分子的振动、转动引起的，这种受激喇曼散射的频移量一般在 $10^2 \sim 10^3 \text{ cm}^{-1}$ 量级。产生这种效应的物质有：

(a) 液体：它主要是以硝基苯、苯、甲苯、 CS_2 为代表的几十种有机液体，它们具有较大的散射截面。

(b) 固体：它主要是以金刚石、方解石等为代表的晶体，此外尚有光学玻璃和纤维波导等介质。

(c) 气体：在气压为几十到几百个大气压下的 H_2 、 N_2 、 O_2 、 CH_4 等高压气体中可产生受激喇曼散射。采用较高的气压，是因为散射增益因子与分子密度成正比。

表6-3给出若干介质的受激喇曼散射的频移量。

表6-3 若干介质的受激喇曼频移量

物 质	频 移 cm^{-1}	物 质	频 移 cm^{-1}
苯	3064 ± 2	环己烷	2852 ± 1
	990 ± 2	金钢石	1325
	1980 ± 4		2661
硝基(代)苯	1344 ± 2	方解石	1075
	$2 \times (1346 \pm 2)$		2171
	$3 \times (1340 \pm 5)$	SiO_2	467
甲 苯	1004 ± 4	CS_2	655.6
1-溴(代)苯	1368	$\text{Ba}_2\text{NaNb}_3\text{O}_{15}$	650(655)
吡 啶	992 ± 2	液 氮	2326.5
$\text{C}_5\text{H}_7\text{N}$	$2 \times (992 \pm 5)$	H_2	4155
液 氧	1552		

4. 受激电子喇曼散射(SERS)^[9]

如果介质由原子系统所组成（如Cs、K、Ba等金属蒸汽），则散射过程前后原子所处的始末能级属于不同的电子能级，故称作受激电子喇曼散射。如果用一个Q开关红宝石激光器所发出的激光射入钾蒸汽中，钾的能级结构如图6-18所示，所观察到的喇曼跃迁是 $4p_{3/2} \rightarrow 5p_{3/2}$ （即原子原始处在 $4p_{3/2}$ 能级上，它们被激发到 $5p_{3/2}$ 能级），跃迁能量为 11677 cm^{-1} 。因为 $4p_{3/2}$ 能级是一个激发态能级，故在热平衡下其集居数分布可以忽略不计。为使 $4p_{3/2}$ 能级上有显著的集居数分布，可以采用光泵浦的方法产生 $4s \rightarrow 4p_{3/2}$ 的跃迁。在这里可使红宝石激光通过适当的液体盒使之产生受激（振动）喇曼散射，使得散射光的频率接近于 $4s \rightarrow 4p_{3/2}$ 的跃迁频率。例如选用硝基苯（喇曼频移 (1344 cm^{-1}) ）并将其液体盒放在红宝石激光器和钾蒸汽盒之间，硝基苯使红宝石激光有一频移并用于激发K原

子，使之从 $4s$ 跃迁到 $4p_{3/2}$ 能级；其它在液体盆内没有被频移的红宝石激光用于激发钾原子使之产生受激电子喇曼散射。

如果采用可调谐染料激光器的输出作为激励源，则可获得可调谐的受激电子喇曼散射光的输出。

另外由图6-18可见，红宝石激光频率接近钾原子的 $4p_{3/2} \rightarrow 6s$ 的跃迁频率，这样，散射光的强度显著增强。

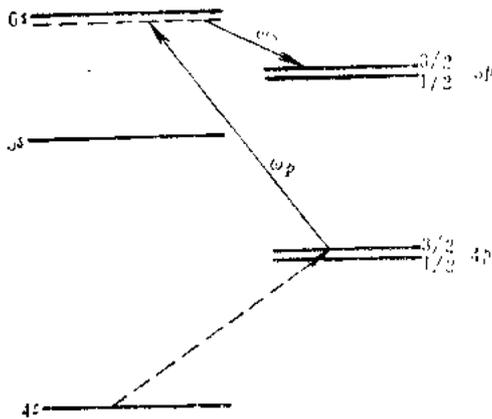


图6-18 钾的能级图及产生SERS的示意图(虚线表示光学泵浦到 $4p_{3/2}$ 能级)

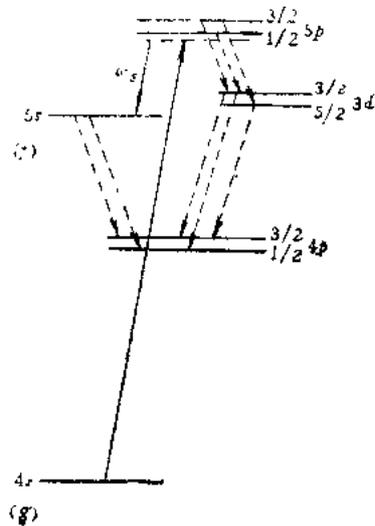


图6-19 表示 $4s-5s$ 受激电子喇曼散射跃迁的钾的能级图，产生可调谐斯托克斯输出 ω ，并伴随有各种放大的自发发射(虚线)

利用受激电子喇曼散射可以产生可调谐的红外辐射，以钾原子为例，如图6-19所示。用强的脉冲染料激光作为泵浦源使钾在原子基态 g 和激发态 f 之间产生电子喇曼跃迁，这里 g 态和 f 态都是非简并的 s 态。对碱金属来说，喇曼频移的典型值为 $20000 \sim 30000 \text{ cm}^{-1}$ ，因此工作在蓝光和近紫外区的染料激光可直接用来产生可调谐的红外辐射 ($1 \sim 20 \mu\text{m}$)。

用作散射介质的金属蒸汽由本章三中所讲的热管炉产生，因为它可以在大的长度范围内提供十分均匀的蒸汽密度，并且对SERS来说，没有相位匹配的问题，还可以在较高的蒸汽压下工作(典型值为10 Torr)很长时间(某些碱金属可以几个星期)，而不会在冷却窗口处存在由于蒸发物质淀积所引起的常见的各种问题。

5. 几点说明

(a) 关于我们在上面所分析的喇曼散射的规律，从量子力学观点，这个过程首先是介质分子吸收一个入射的光子后，产生一个假想的“跃迁”，接着介质分子作第二个跃迁，到达终态，并发射一个散射光子，即所谓斯托克斯光子。在整个过程中，场与物质的能量是守恒的。另外，也可以首先发射一个散射光子，接着吸收一个入射光子。这里所讲的发射过程，可以是自发地发生的，也可以是由于存在与发射的光子同类型的辐射而感应发生的。在通常所讲的喇曼散射效应中，自发过程是主要的，故可以叫做自发喇曼散射效应。而对于本节所讨论的情况来说，从方程(6.5-7)式可以看到，频率为 ω_s 的辐射建立起来的速

率 $dE(\omega, z)/dz$ 与存在的频率相同的辐射 $E(\omega, z)$ 成正比。因此，我们所讨论的过程是受激过程，故叫做受激喇曼散射。

(b) 从受激喇曼散射和参量放大的讨论中，可以看到它们存在着某些类似之处。即两者都是辐射场的低频分量被放大，同时又都是消耗辐射场的高频分量。而且两个分量之间的能量交换都是一个光子对一个光子进行的，即每有一对光子交换，就有一个总的能量损耗 $\hbar(\omega_3 - \omega_1)$ (对参量放大) 或 $\hbar(\omega_p - \omega_s)$ (对受激喇曼散射)。那么如何区分这两种情况呢？如果介质具有反演对称性，这表示在这种介质中不可能产生参量放大过程；或者即使介质没有反演对称性，但相位匹配条件不满足，那么就可以将参量放大过程排除掉。如果差频 ω_3 或闲置频率接近于非线性介质的共振频率，而又同时满足接近于参量放大过程所要求的相位匹配条件，那么信号波 ω_1 (或 ω_2) 的放大，不仅来自参量放大 (正比于 $\chi^{(2)}$) 也来自受激喇曼效应 (正比于 $\chi^{(3)}$)。

和频与双光子吸收现象也存在着类似的情况，如果两个频率之和接近于介质的一个共振频率，并且满足和频的相位匹配条件，那么本来有区别的和频产生与双光子吸收这两个过程就变得难以区分了。

(c) 虽然这里所讨论的受激喇曼散射过程和上节所讨论的双光子吸收过程没有象参量过程所要求的相位匹配条件，但是另一种型式的相位匹配条件也是重要的。通常所讲的相位匹配条件是指过程中要满足动量守恒。如果我们引入与介质的激发态相联系的波矢，那么动量守恒也可以应用于双光子吸收和受激喇曼散射过程。例如，根据能量守恒，这两个过程有

$$\begin{aligned} \hbar\omega_1 + \hbar\omega_2 &= \hbar\omega_3 && \text{双光子吸收;} \\ \hbar\omega_p - \hbar\omega_s &= \hbar\omega_0 && \text{受激喇曼散射.} \end{aligned}$$

如果引入 k_0 和 k_p 分别表示上述两种过程与激发介质相联系的一个波矢，则动量守恒条件要求

$$\begin{aligned} k_1 + k_2 &= k_0, \\ k_p - k_s &= k_p. \end{aligned}$$

所以在通常所讲的相位匹配条件中，只含有辐射场分量的波矢，而在这里所推广的动量守恒条件下，还包括着激发介质的波矢 k_0 和 k_p 。

(d) 其它受激喇曼散射过程。除以上所讨论的由散射介质分子内部的振动和转动能态改变，以及电子能态改变所决定的受激喇曼散射外，还有所谓受激自旋反转喇曼散射和决定于分子纯转动能态改变的受激喇曼散射。

自旋反转受激喇曼散射效应是基于半导体的非线性光学效应 (电介质的非线性光学效应是由于束缚电子产生的非线性光学效应引起的，而这里所讨论的受激自旋反转喇曼散射是基于半导体中迁移电子所产生的非线性光学效应)。如将半导体置于外磁场中，在外磁场作用下，半导体导带会分裂成一系列分立的能级，如图6-20(a)所示，这些能级之间的间隔相等，有 $\Delta E = \hbar\omega_c$ ，式中 ω_c 是导带中电子在磁场作用下的回旋共振频率，这些能级称为回旋共振能级 (或朗道能级) 并用量子数 n 表征。如果进一步考虑到电子自旋与磁场的作用，那么电子自旋有两种可能的取向，因而每一回旋共振能级又进一步分裂为两个子能级，较低的一个对应于电子自旋取向为 $m_s = 1/2$ ，如图6-20(b)所示。对半导体碲化铟 (InSb) 来说，

在通常情况下，导带中大部分电子处于 $n = 0$ 的能级中的自旋取向为 $m_s = 1/2$ 的子能级上，在频率为 ω_p 的泵浦光的作用下，可以跃迁到同一回旋共振能级中的自旋取向为 $m_s = -1/2$ 的子能级上，并同时散射一个频率为 ω_s 的光子，有

$$\hbar\omega_p = \hbar\omega_s + \hbar\omega_c$$

式中 $\hbar\omega_c = g\beta B$ 。 β 是玻尔磁子 ($\beta = e\hbar/2m_e c$)； B 是外加磁感应强度； g 是一个因子，叫做 g 因子，对镨化铟来说，在 10 Wb 的磁场中 $g = -50$ 。可见，改变磁感应强度 B 的大小就可以改变散射光频率 ω_s ，调谐范围可达 10^3 cm^{-1} 量级。

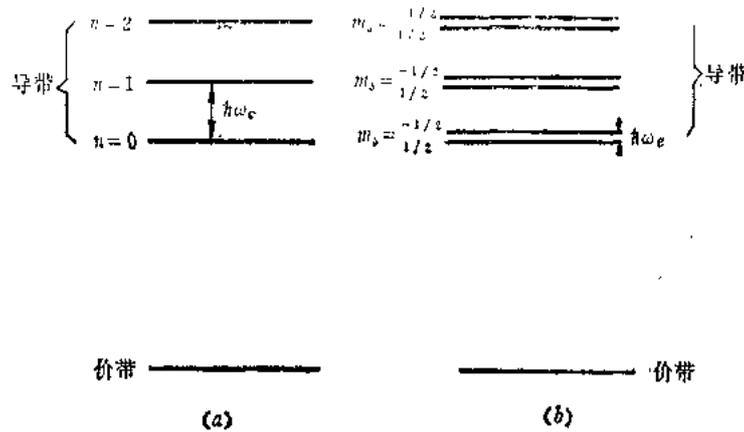


图 6-20 磁场中半导体导带分裂为一系列朗道能级的示意图

工作物质除 InSb 外(泵浦光可用 CO_2 激光或 CO 激光)，还有 CdS (氩离子激光泵浦)、 ZnTe (氦离子激光泵浦) 和 InAs (HF 激光泵浦) 等。

利用双原子分子的纯转动能级改变的受激喇曼散射可以得到较小的频移(一般为 $0 \sim 10^3 \text{ cm}^{-1}$ 量级)。被研究的典型介质为低温冷却的仲氢气体，气压为几百托至几个大气压 ($1 \text{ 托} = 133.322 \text{ 帕}$)，用脉冲高功率的 CO_2 激光泵浦，可得到 $16 \mu\text{m}$ 的受激散射输出。

六、双谱泵浦过程和相干反斯托克斯喇曼散射

到现在为止，我们已经分别地讨论了所谓参量过程(如三次谐波产生)和非参量过程(如受激喇曼散射)。对上述两个具体过程来说，如果不考虑入射泵浦光的衰减，则可以用单个方程去描述被产生辐射场的增长规律。然而象参量放大这样的具体过程就要复杂一些，因为在这类过程中除放大信号外，还同时产生闲置波，故需作耦合波分析。此外，还必须考虑不只是一个非线性过程，例如所谓双谱泵浦过程或相干喇曼混频过程。在这种过程中，受激喇曼散射的过程和四波混频过程同时存在，因此需要同时考虑参量和非参量两种过程。关于双谱泵浦过程的主要特点说明如下。在图 6-21 中，输入的泵浦光频率为 ω_1 和 ω_2 ，与此相应，可产生的斯托克斯光频率为 ω_s 和 ω_s' 。特别有意义的情况是，如果频率为 ω_1 的泵浦特别强，使之超过能产生 ω_s 的受激散射过程的阈值，而频率为 ω_2 的泵浦光不够强，它不

足以产生 ω_{2s} 的受激散射过程(没有 ω_1 的泵浦光输入时)。然而当 ω_1 和 ω_2 的泵浦光同时输入时, 频率为 ω_{2s} 的辐射也可由四波混频产生, 即 $\omega_{2s} = -\omega_1 + \omega_2 + \omega_{1s} = \omega_2 - \omega_{fs}$ 。这个过程可以理解如下, 由频率为 ω_1 的泵浦场所产生的SRS在介质中建立了一个极化, 该极化的振动频率为 ω_{fs} , 然后频率为 ω_2 的泵浦场与该极化的相互作用又产生差频 $\omega_2 - \omega_{fs}$ 的极化, 从而发射频率为 $\omega_2 - \omega_{fs}$ 的辐射。

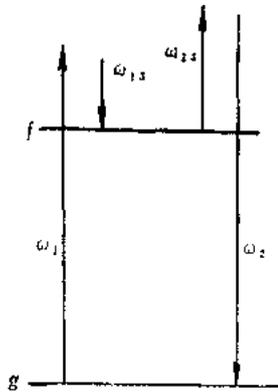


图 6-21 双谐泵浦过程(频率为 ω_1 和 ω_2 的泵浦光输入时, 分别通过SRS产生 ω_{1s} 和 ω_{2s} , 同时 ω_{1s} 和 ω_{2s} 也可通过参量过程产生, $\omega_{1s} = \omega_1 - (\omega_2 - \omega_{2s})$)

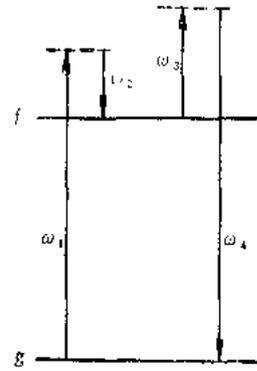


图 6-22 喇曼共振和参量产生 $\omega_4 = \omega_3 + \omega_{fv}$ ——CARS; 喇曼共振差频产生 $\omega_3 = \omega_4 - \omega_{fv}$

事实上由图6-21所表示的过程可以用图6-22的一般过程来说明, 并且还可以区分为相干反斯托克斯喇曼散射过程(CARS)和双谐泵浦过程或相干喇曼混频过程^[10]。如果输入频率为 ω_1, ω_2 和 ω_3 的波产生频率为 ω_4 的波, 则图6-22所示的过程称为CARS。通常 $\omega_3 = \omega_1$ (这时输入波的频率为 ω_1 和 ω_2), 这样, ω_4 就是反斯托克斯光的频率 $\omega_4 = \omega_3 + \omega_1 - \omega_2 = 2\omega_1 - \omega_2$ 。在CARS实验中, 不要使 ω_1 的光强强到能产生显著的受激喇曼散射, 否则CARS将被掩盖。如果产生的波的频率为 ω_3 , 则这过程称为双谐泵浦或相干喇曼混频过程。

从上面可以清楚地看到不管是双谐泵浦过程还是相干反斯托克斯喇曼散射过程, 都同时存在着非参量的受激喇曼过程和参量的四波混频过程。

近来对双谐泵浦过程和CARS感兴趣那是因为前者能在红外波段产生受激的斯托克斯辐射, 后者开拓了普通的喇曼光谱技术, 形成所谓相干反斯托克斯喇曼光谱学, 其主要特点是散射光的转换效率比普通喇曼光谱技术的高得多, 又因散射光具有定向性, 故对背景光和荧光背景光的抗干扰能力强得多。

下面我们根据(4.4-25)式的耦合波基本方程列出双谐泵浦过程的耦合波方程组。按图6-21可知, 频率为 ω_{1s} 的场由两种过程产生, 即由频率为 ω_1 的泵浦场产生的受激喇曼散射过程, 我们用SRS1表示; 以及由四波混频过程 $\omega_{1s} = \omega_1 - (\omega_2 - \omega_{2s})$ 产生, 用4WM表示。由SRS1过程所引起的场 E_{1s} 的变化规律按(6.5-3)式有

$$\frac{dE_{1s}}{dz} = \frac{3i\omega_{1s}}{c\eta_{1s}} \chi_{SRS}^{(3)}(-\omega_{1s}, \omega_1, -\omega_1, \omega_{1s}) |E_1|^2 E_{1s} \quad (6.6-1)$$

由四波混频过程引起 E_{1s} 的变化规律为

$$\frac{dE_{1z}}{dz} = \frac{3i\omega_{1z}}{c\eta_{1z}} \chi_{4WM}(-\omega_{1z}, \omega_1, \omega_{2z}, -\omega_2) \times E_1 E_{2z} E_2^* \exp(-i\Delta kz) \quad (6.6-2)$$

式中 $\Delta k = (k_2 - k_{2z}) - (k_1 - k_{1z}),$ (6.6-3)

$$\begin{aligned} & \chi_{SRS1}^{(3)}(-\omega_{1z}, \omega_1, -\omega_1, \omega_{1z}) \\ &= \alpha(\omega_{1z}) \cdot \chi^{(3)}(-\omega_{1z}, \omega_1, -\omega_1, \omega_{1z}); \alpha(\omega_1) \alpha(\omega_1) \alpha(\omega_{1z}), \end{aligned} \quad (6.6-4)$$

$$\begin{aligned} & \chi_{4WM}^{(3)}(-\omega_{1z}, \omega_1, \omega_{2z}, -\omega_2) \\ &= \alpha(\omega_{1z}) \cdot \chi^{(3)}(-\omega_{1z}, \omega_1, \omega_{2z}, -\omega_2); \alpha(\omega_1) \alpha(\omega_{2z}) \alpha(\omega_2). \end{aligned} \quad (6.6-5)$$

将(6.6-4)式分为实部和虚部, 即有

$$\begin{aligned} & \chi_{SRS1}^{(3)}(-\omega_{1z}, \omega_1, -\omega_1, \omega_{1z}) \\ &= \text{Re}[\chi_{SRS1}^{(3)}] + i \text{Im}[\chi_{SRS1}^{(3)}] \end{aligned}$$

根据电极化率张量实部的完全对易对称性有

$$\begin{aligned} & \text{Re}[\chi_{SRS1}^{(3)}(-\omega_{1z}, \omega_1, -\omega_1, \omega_{1z})] \\ &= \text{Re}[\chi_{SRS1}^{(3)}(-\omega_1, \omega_1, -\omega_{1z}, \omega_{1z})] \end{aligned}$$

利用本章四中的结果有

$$\begin{aligned} & \text{Im}[\chi_{SRS1}^{(3)}(-\omega_1, \omega_1, -\omega_{1z}, \omega_{1z})] \\ &= -\text{Im}[\chi_{SRS1}^{(3)}(-\omega_{1z}, \omega_1, -\omega_1, \omega_{1z})] \end{aligned}$$

所以有

$$\begin{aligned} & \chi_{SRS1}^{(3)}(-\omega_1, \omega_1, -\omega_{1z}, \omega_{1z}) \\ &= [\chi_{SRS1}^{(3)}(-\omega_{1z}, \omega_1, -\omega_1, \omega_{1z})]^* \end{aligned}$$

同理可以分析得出:

$$\begin{aligned} & \text{Re} \chi_{4WM}^{(3)}(-\omega_{1z}, \omega_1, \omega_{2z}, -\omega_2) \\ &= \text{Re} \chi_{4WM}^{(3)}(-\omega_1, \omega_{1z}, -\omega_{2z}, \omega_2), \\ & \text{Im} \chi_{4WM}^{(3)}(-\omega_{1z}, \omega_1, \omega_{2z}, -\omega_2) \\ &= -\text{Im} \chi_{4WM}^{(3)}(-\omega_1, \omega_{1z}, -\omega_{2z}, \omega_2) \end{aligned}$$

所以 $\chi_{4WM}^{(3)}(-\omega_{1z}, \omega_1, \omega_{2z}, -\omega_2)$ 是 $\chi_{4WM}^{(3)}(-\omega_1, \omega_{1z}, -\omega_{2z}, \omega_2)$ 的复数共轭。如果简单地用 χ_{4WM} 表示 $\chi_{4WM}^{(3)}(-\omega_1, \omega_{1z}, -\omega_{2z}, \omega_2)$, 则组合(6.6-1)式和(6.6-2)式后给出

$$\begin{aligned} \frac{dE_{1z}}{dz} &= \frac{3i\omega_{1z}}{c\eta_{1z}} [\chi_{4WM}^* E_1 E_{2z} E_2^* \exp(-i\Delta kz) \\ &+ \chi_{SRS1} |E_1|^2 E_{1z}], \end{aligned} \quad (6.6-6)$$

对其它几个场的耦合方程可给出为

$$\begin{aligned} \frac{dE_1}{dz} &= \frac{3i\omega_1}{c\eta_1} [\chi_{4WM} E_{1z} E_2^* E_2 \exp(i\Delta kz) \\ &+ \chi_{SRS1}^* |E_{1z}|^2 E_1], \end{aligned} \quad (6.6-7)$$

$$\frac{dE_{2s}}{dz} = \frac{3i\omega_{2s}}{c\eta_{2s}} [\chi_{4333} E_1^* E_{1s} E_2 \exp(i\Delta kz) + \chi_{3333} |E_2|^2 E_{2s}], \quad (6.6-8)$$

$$\frac{dE_2}{dz} = \frac{3i\omega_2}{c\eta_2} [\chi_{4333}^* E_1 E_{1s}^* E_{2s} \exp(-i\Delta kz) + \chi_{3333}^* |E_{2s}|^2 E_2]. \quad (6.6-9)$$

如果作变换

$$E_1 (\text{单位 } \text{V m}^{-1}) \longrightarrow \left(\frac{2}{\epsilon_0 c} \right)^{1/2} [E_1 (\text{单位 } (\text{W m}^{-2})^{1/2})],$$

并引入符号

$$\sigma_1 = \bar{\alpha}^* \beta / |\alpha|^2, \quad \sigma_2 = \bar{\alpha}^* \beta / |\beta|^2, \quad (6.6-10)$$

$$G_1 = g_1 I_{10}, \quad G_2 = g_2 I_{20}, \quad (6.6-11)$$

且令(6.6-6)~(6.6-9)式中的折射率都等于1(这假定并不影响说明问题的基本规律), 式中 G_1 和 G_2 分别为 ω_{2s} 和 ω_{1s} 的喇曼功率增益系数(m^{-1}), I_{10} 和 I_{20} 分别是频率为 ω_1 和 ω_2 的泵浦场的强度, $\alpha = \alpha_{fs}(-\omega_{1s}, \omega_1)$ 和 $\beta = \alpha_{fs}(-\omega_{2s}, \omega_2)$ 是喇曼极化率^[11]. 这样, (6.6-6)~(6.6-9)式变为

$$\frac{dE_1}{dz} = -\frac{g_1 \omega_1}{2 \omega_{1s}} (\sigma_1 E_1 E_{1s}^* E_{2s} \exp(i\Delta kz) + |E_{1s}|^2 E_1), \quad (6.6-12)$$

$$\frac{dE_{1s}}{dz} = \frac{g_1}{2} [\sigma_1^* E_1 E_{2s} E_{1s}^* \exp(-i\Delta kz) + |E_1|^2 E_{1s}], \quad (6.6-13)$$

$$\frac{dE_{2s}}{dz} = \frac{g_2}{2} [\sigma_2 E_1^* E_{1s} E_2 \exp(i\Delta kz) + |E_2|^2 E_{2s}], \quad (6.6-14)$$

$$\frac{dE_2}{dz} = -\frac{g_2 \omega_2}{2 \omega_{2s}} [\sigma_2^* E_1 E_{1s}^* E_{2s} \exp(-i\Delta kz) + |E_{2s}|^2 E_2]. \quad (6.6-15)$$

在小信号近似下, 泵浦场无抽空效应, 这样我们只要讨论(6.6-13)式和(6.6-14)式对 E_{1s} 和 E_{2s} 的一对耦合方程即可. 由这一对耦合方程可以导出 E_{1s} 和 E_{2s} 的二阶常微分方程, 它的解的形式为^[12]

$$E_{1s, 2s} = A_{1, 2} \exp(G_+ z/2) + B_{1, 2} \exp(G_- z/2). \quad (6.6-16)$$

式中

$$G_{\pm} = \frac{1}{2} (G_1 + G_2) - i\Delta k \pm \left\{ \left[\frac{1}{2} (G_1 - G_2) + i\Delta k \right]^2 + G_1 G_2 \right\}^{1/2}. \quad (6.6-17)$$

因为对我们最感兴趣的是参量过程满足相位匹配条件即 $\Delta k = 0$ 的情况. 于是有 $G_- = 0$, $G_+ = G_1 + G_2$, 所以

$$I_{1s, 2s} \propto \exp[(G_1 + G_2)L]. \quad (6.6-18)$$

这表明参量过程 $\omega_{1s} = \omega_1 + \omega_{2s} - \omega_2$ (或 $\omega_{2s} = \omega_2 + \omega_{1s} - \omega_1$)为喇曼型双光子共振所加强, 即 $\omega_2 - \omega_{2s}$ 等于介质的一个喇曼跃迁频率, 或 $\omega_1 - \omega_{1s}$ 等于介质的一个喇曼跃迁频率, 这也就是为什么对双谐波泵浦过程感兴趣的原因.

七、受激布里渊散射

早在1922年布里渊就已研究了光被热激发声波的散射现象。所谓布里渊散射，就是入射到介质的光波场与介质内的弹性声波发生相互作用而产生的一种光的散射现象。由于光学介质内大量质点的统计热运动会产生弹性声波，它会引起介质密度随时间和空间的周期性变化，从而使介质折射率也随时间和空间周期性地发生变化，因此，声振动介质可以被看作是一个运动着的光栅。这样，当一束频率为 ω 的光通过光学介质时，会受到光栅的“衍射”作用，产生频率为 $\omega - \omega_s$ 的散射光(这里 ω_s 是弹性声波的频率)。由此可见，布里渊散射中声波的作用类似于喇曼散射中分子振动的作用。

人们发现，当频率为 ω 的强激光束通过某种介质(气体、液体和固体)时，会在介质内产生频率为 ω_s 的相干声波，同时产生频率为 $\omega - \omega_s$ 的散射光波。声波和散射的光波沿着特定的方向，并且只有当入射激光束强度超过一定阈值时才能发生上述现象。这种具有受激发射特点的布里渊散射，就是受激布里渊散射(1964年才发现)。上述在介质内产生的相干声波乃是介质在强入射激光的作用下产生电致伸缩效应的结果。

第一个用来探测受激布里渊散射的实验装置示意图如图6-23所示。

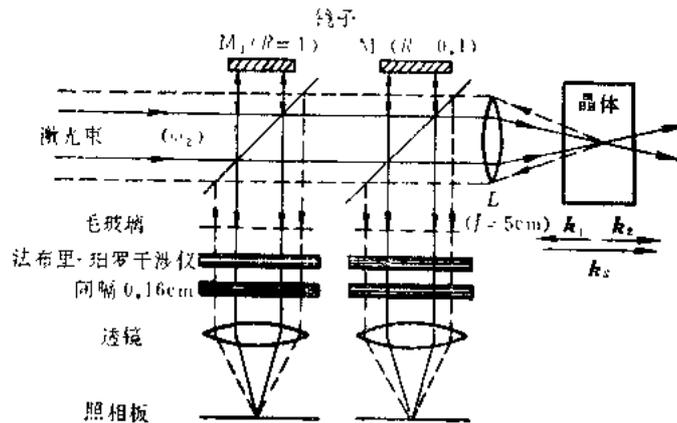


图6-23 用于探测受激布里渊散射的实验装置示意图

因为受激布里渊散射光相对于入射激光的频移值很小，一般小于 1cm^{-1} ，见表6-4^[19]，所以对散射光谱进行分析时，必须采用高分辨率的光谱分析仪器。一般情况下，测量大角度受激散射光的频移时，采用法布里-珀罗(Fabry-Perot)干涉仪进行光谱照相分析，如图6-23中所示的那样。当受激散射光的频移值更小或其具有更加精细的光谱结构时，则需采用光学外差或光电拍频的方法进行频谱分析。

产生受激布里渊散射和受激喇曼散射都有一定的阈值，因而这两种过程是互相竞争的。对于受激喇曼散射的阈值和受激布里渊散射的阈值可相比拟的介质来说，两种过程将可能同时出现。否则只可能出现一种过程，另一种过程被抑制。如 CS_2 、苯、硝基苯以及丙酮等物质属前者。象水、 CCl_4 、石英和青玉等物质属后者，它们的受激布里渊散射的阈值比受激喇曼散射阈值低，所以当受激布里渊散射出现时，受激喇曼散射效应并未出现。

表 6-4 受激布里渊散射实验数据选例

介质名称	入射激光 波长(\AA)	散射角 $\theta(^{\circ})$	散射光频移 (cm^{-1})	受激散射产生之特 超声频率(10^9Hz)	由散射光频移算出 的特超声速(m/s)	以前的超声速 数据(m/s)	备 注
晶体石英	6943	180	0.99	29.7			激光平行于c轴入射
碧玉晶体	6943	180	2.07	62.1			激光平行于c轴入射
晶体石英	6943	180		25.6 0.075	5750		激光平行于x轴入射
晶体石英	6943	180	0.83	25.3			激光平行于x轴入射
人造荧光 树脂	6943	180		11.9	2770		6条斯托克斯谱线
玻 璃	6943	180	0.89	27.7			5条斯托克斯谱线
CS_2	6943	180	0.192		1242 \pm 6	1265 \pm 22	
CCl_4	6943	180	0.141		1007 \pm 7	1040 \pm 27	
水	6943	180	0.188		1471 \pm 8	1509 \pm 25	热声子寿命为 4×10^{-11} s
CS_2	6943	2.48		0.123	1223 \pm 24	1223	
N_2	6943	180	0.0330 0.0384		337 385		密度为62.8 m^3/dm^3 密度为132.5 m^3/dm^3
CH_4 (甲烷)	6943	180	0.0393 0.0445		404 440		密度为24.9 m^3/dm^3 密度为101.7 m^3/dm^3
GO_2	6943	180	0.0392 0.0508		351 446		密度为351 m^3/dm^3 密度为401 m^3/dm^3

1. 声波的运动方程

为了详细地讨论受激布里渊散射现象, 我们首先导出介质内产生的声波的运动方程。设 $u(x, t)$ 是表示在介质内位置 x 处的一质点离开其平衡位置的偏离, 介质的质量密度设为 ρ_m , 则当只有弹性力存在的情况下, 在密度为 ρ_m 、弹性系数为 α 的介质中, 沿 x 方向传播的波动方程为

$$\frac{\partial^2 u}{\partial t^2} = \frac{1}{\alpha \rho_m} \frac{\partial^2 u}{\partial x^2}. \quad (6.7-1)$$

实际上, 当介质没有受到外电场的作用时, 作用在单位面积上的力除弹性力外, 还有阻尼所引起的阻尼力。如果介质还受到外加电场的作用, 那么电场的作用不仅可以使组成物质的离子本身发生极化现象, 并且可以使晶胞中离子发生位移, 由于这个位移, 使得在晶体内发生了应力, 介质产生形变。这种现象就是电致伸缩。外界电场作用所引起的应变会导致介电常数的改变, 从而使静电储能密度也发生相应的改变 δw , 即

$$\delta w = \delta \frac{1}{2} (\mathbf{E} \cdot \mathbf{D}). \quad (6.7-2)$$

则介质总的电能改变为

$$\begin{aligned} \delta W &= \delta \int \frac{1}{2} \mathbf{E} \cdot \mathbf{D} dV = \delta \frac{1}{2} \int \frac{1}{\epsilon} D^2 dV \\ &= -\frac{1}{2} \int E^2 \delta \epsilon dV + \int \mathbf{E} \cdot \delta \mathbf{D} dV. \end{aligned} \quad (6.7-3)$$

所以

$$\frac{\partial W}{\partial t} = -\frac{1}{2} \int E^2 \frac{\partial \epsilon}{\partial t} dV - \int (\nabla \varphi) \cdot \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t} dV. \quad (6.7-4)$$

式中 $\mathbf{E} = -\nabla \varphi$ 。因为

$$\begin{aligned} \int \nabla \cdot (\varphi \delta \mathbf{D}) dV &= \int (\nabla \varphi) \cdot \delta \mathbf{D} dV + \int \varphi \nabla \cdot \delta \mathbf{D} dV \\ &= \oint \varphi \delta \mathbf{D} \cdot \mathbf{n} ds \end{aligned}$$

且若上述面积分的积分限取得远离介质时, 即 $r \rightarrow \infty$ 时, 由于 $\varphi \delta \mathbf{D}$ 按 r^{-3} 变化, 所以面积分为零。又根据麦克斯韦方程组 $\nabla \cdot \mathbf{D} = \rho$, 则有

$$\delta(\nabla \cdot \mathbf{D}) = \nabla \cdot \delta \mathbf{D} = \delta \rho. \quad (6.7-5)$$

将(6.7-5)式代入(6.7-4)式后给出

$$\frac{\partial W}{\partial t} = -\frac{1}{2} \int E^2 \frac{\partial \epsilon}{\partial t} dV + \int \varphi \frac{\partial \rho}{\partial t} dV. \quad (6.7-6)$$

根据功能原理, 上述静电储能的变化意味着存在一个作用力 \mathbf{F} , 该作用力所作的功率的负值等于静电储能的变化率, 即有

$$\frac{\partial W}{\partial t} = -\int \mathbf{F} \cdot \mathbf{v} dV. \quad (6.7-7)$$

式中 \mathbf{v} 是介质内质点的速度。

现设介质的温度是恒定不变的, 介质的质量密度为 $\rho_m(x, y, z, t)$, 介电常数 $\varepsilon(x, y, z, t)$ 的时间变化率为

$$\begin{aligned} \frac{d\varepsilon}{dt} &= \frac{\partial\varepsilon}{\partial x} \frac{\partial x}{\partial t} + \frac{\partial\varepsilon}{\partial y} \frac{\partial y}{\partial t} + \frac{\partial\varepsilon}{\partial z} \frac{\partial z}{\partial t} + \frac{\partial\varepsilon}{\partial t} \\ &= (\nabla\varepsilon) \cdot \mathbf{v} + \frac{\partial\varepsilon}{\partial t} . \end{aligned} \quad (6.7-8)$$

同样对质量密度 ρ_m 有

$$\frac{d\rho_m}{dt} = (\nabla\rho_m) \cdot \mathbf{v} + \frac{\partial\rho_m}{\partial t} . \quad (6.7-9)$$

当介质内部有振动时, 质量密度 ρ_m 和电荷密度 ρ 均满足连续性方程, 即有

$$\frac{\partial\rho_m}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho_m \mathbf{v}) = 0 \quad (6.7-10)$$

和

$$\frac{\partial\rho}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho \mathbf{v}) = 0 . \quad (6.7-11)$$

由于

$$\begin{aligned} \frac{d\varepsilon}{dt} &= \frac{d\varepsilon}{d\rho_m} \frac{d\rho_m}{dt} = \frac{d\varepsilon}{d\rho_m} \left[(\nabla\rho_m) \cdot \mathbf{v} + \frac{\partial\rho_m}{\partial t} \right] \\ &= \frac{d\varepsilon}{d\rho_m} [(\nabla\rho_m) \cdot \mathbf{v} - \nabla \cdot (\rho_m \mathbf{v})] = - \frac{d\varepsilon}{d\rho_m} \rho_m \nabla \cdot \mathbf{v} \end{aligned} \quad (6.7-12)$$

(在得到此式时已利用了(6.7-9)式和(6.7-10)式), 因而将上式代入(6.7-8)式, 则有

$$\frac{\partial\varepsilon}{\partial t} = \frac{d\varepsilon}{dt} - \nabla\varepsilon \cdot \mathbf{v} = - \left(\frac{d\varepsilon}{d\rho_m} \right) \rho_m \nabla \cdot \mathbf{v} - \nabla\varepsilon \cdot \mathbf{v}, \quad (6.7-13)$$

现将(6.7-11)式和(6.7-13)式代入(6.7-6)式, 便得到

$$\begin{aligned} \frac{\partial W}{\partial t} &= \int \left\{ -\varphi \nabla \cdot (\rho \mathbf{v}) + \frac{d\varepsilon}{d\rho_m} \rho_m (\nabla \cdot \mathbf{v}) \frac{1}{2} E^2 \right. \\ &\quad \left. + \frac{1}{2} E^2 (\nabla\varepsilon) \cdot \mathbf{v} \right\} dV. \end{aligned} \quad (6.7-14)$$

利用关系

$$\begin{aligned} \nabla \cdot (\varphi \rho \mathbf{v}) &= \varphi \nabla \cdot (\rho \mathbf{v}) + (\nabla\varphi) \cdot \rho \mathbf{v} \\ &= \varphi \nabla \cdot (\rho \mathbf{v}) - \rho \mathbf{E} \cdot \mathbf{v}, \end{aligned}$$

所以有

$$\begin{aligned} \int \nabla \cdot (\varphi \rho \mathbf{v}) d\tilde{V} &= \oint \varphi \rho \mathbf{v} \cdot \mathbf{n} ds \\ &= \int \varphi \nabla \cdot (\rho \mathbf{v}) dV - \int \rho \mathbf{E} \cdot \mathbf{v} dV = 0 . \end{aligned} \quad (6.7-15)$$

因为积分限可以取在介质以外, 这样, 在积分面上的电荷密度 ρ 为零, 故面积分为零。同理有

$$\begin{aligned}
\int \nabla \cdot \left(\frac{E^2}{2} \frac{d\varepsilon}{d\rho_m} \rho_m \mathbf{v} \right) dV &= \int \frac{E^2}{2} \frac{d\varepsilon}{d\rho_m} \rho_m \mathbf{v} \cdot \mathbf{n} ds \\
&= \int \nabla \left(\frac{E^2}{2} \frac{d\varepsilon}{d\rho_m} \rho_m \right) \cdot \mathbf{v} dV + \int \frac{1}{2} E^2 \frac{d\varepsilon}{d\rho_m} \rho_m (\nabla \cdot \mathbf{v}) dV \\
&= 0.
\end{aligned} \tag{6.7-16}$$

将(6.7-15)式和(6.7-16)式代入(6.7-14)式, 并利用(6.7-7)式给出

$$\begin{aligned}
\frac{\partial W}{\partial t} &= - \int \rho \mathbf{E} \cdot \mathbf{v} dV - \int \nabla \left(\frac{E^2}{2} \frac{d\varepsilon}{d\rho_m} \rho_m \right) \cdot \mathbf{v} dV \\
&\quad + \int \frac{1}{2} E^2 (\nabla \varepsilon) \cdot \mathbf{v} dV \\
&= - \int \mathbf{F} \cdot \mathbf{v} dV,
\end{aligned}$$

所以有^[14]

$$\mathbf{F} = \rho \mathbf{E} - \frac{E^2}{2} \nabla \varepsilon + \nabla \left(\frac{E^2}{2} \frac{d\varepsilon}{d\rho_m} \rho_m \right). \tag{6.7-17}$$

上式中第一项是静电力, 第二项是由于介质不均匀产生的力, 第三项是由于电场不均匀而产生的力, 即电致伸缩力。对均匀介质, 介电常数 ε 只是 ρ_m 和温度 T 的函数, 故 $\nabla \varepsilon$ 可展开为

$$\nabla \varepsilon = \left(\frac{\partial \varepsilon}{\partial T} \right)_{\rho_m} \nabla T + \left(\frac{\partial \varepsilon}{\partial \rho_m} \right)_T \nabla \rho_m.$$

将上式代入(6.7-17)式并考虑到温度不变的条件, 给出

$$\mathbf{F} = \rho \mathbf{E} + \frac{1}{2} \left(\frac{d\varepsilon}{d\rho_m} \right)_T \rho_m \nabla E^2, \tag{6.7-18}$$

且令式中

$$\frac{1}{2} \left(\frac{d\varepsilon}{d\rho_m} \right)_T \rho_m \nabla E^2 = \frac{\gamma}{2} \nabla E^2. \tag{6.7-19}$$

其中 γ 称为介质的电致伸缩系数或弹性光学系数, 其为

$$\gamma = \left(\frac{d\varepsilon}{d\rho_m} \right)_T \rho_m. \tag{6.7-20}$$

它是唯象地引入的一个常数, 并被用来描述由应变所引起的光介电常数的改变。如果考虑一维的情况, 则(6.7-19)式的右边变为 $\frac{\gamma}{2} \frac{\partial}{\partial x} E^2$ 。这样, 包括弹性力、阻尼力和电致伸缩力在内的、在介质中产生的一维声波的波动方程为(式中 η 是对声波唯象地引入的一个耗散常数)

$$\frac{1}{\alpha} \frac{\partial^2 u}{\partial x^2} - \eta \frac{\partial u}{\partial t} + \frac{\gamma}{2} \frac{\partial}{\partial x} E^2 = \rho_m \frac{\partial^2 u}{\partial t^2}. \tag{6.7-21}$$

由此可见, 在介质中, 电磁场和弹性波通过电致伸缩力而产生耦合。

现在假定方程(6.7-21)式中的电场 E 是由两束平面波所组成, 它们相对声波的运动方向是任意的, 设三束波的形式分别为

$$\begin{aligned} E_1(\mathbf{r}, t) &= E_1(r_1) \exp[-i(\omega_1 t - \mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{r})] + C.C., \\ E_2(\mathbf{r}, t) &= E_2(r_2) \exp[-i(\omega_2 t - \mathbf{k}_2 \cdot \mathbf{r})] + C.C., \\ u(\mathbf{r}, t) &= u_s(r_s) \exp[-i(\omega_s t - \mathbf{k}_s \cdot \mathbf{r})] + C.C.. \end{aligned} \quad (6.7-22)$$

式中 r_1 , r_2 和 r_s 是三列波各自沿着自己的传播方向 \mathbf{k}_1 , \mathbf{k}_2 和 \mathbf{k}_s 所测量的距离, 即 $r_i = \mathbf{k}_i \cdot \mathbf{r} / k_i$ 。这样, 当(6.7-21)式中的 x 用 r_s 代替后, 变为

$$\begin{aligned} \frac{\partial^2 u}{\partial r_s^2} &= -\left(k_s^2 u_s - 2ik_s \frac{du_s}{dr_s}\right) \\ &\times \exp[-i(\omega_s t - \mathbf{k}_s \cdot \mathbf{r})] + C.C.. \end{aligned} \quad (6.7-23)$$

式中已利用慢变化近似

$$\begin{aligned} k_s^2 u_s &\gg \frac{d^2 u_s}{dr_s^2}, \\ k_s \frac{du_s}{dr_s} &\gg \frac{d^2 u_s}{dr_s^2}, \end{aligned}$$

并略去了 $d^2 u_s / dr_s^2$ 项。又

$$\begin{aligned} \frac{\partial u}{\partial t} &= -u_s(r_s) i \omega_s \exp[-i(\omega_s t - \mathbf{k}_s \cdot \mathbf{r})] + C.C., \\ &= -i \omega_s u, \end{aligned} \quad (6.7-24)$$

$$\frac{\partial^2 u}{\partial t^2} = -\omega_s^2 u, \quad (6.7-25)$$

$$\begin{aligned} \frac{\gamma}{2} \frac{\partial}{\partial r_s} E^2 &= \frac{\gamma}{2} \frac{\partial}{\partial r_s} [E_1(\mathbf{r}, t) + E_2(\mathbf{r}, t)] \\ &\times [E_1(\mathbf{r}, t) + E_2(\mathbf{r}, t)] \\ &= \frac{\gamma}{2} \frac{\partial}{\partial r_s} \{E_1(r_1) \exp[-i(\omega_1 t - \mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{r})] + C.C. \\ &+ E_2(r_2) \exp[-i(\omega_2 t - \mathbf{k}_2 \cdot \mathbf{r})] + C.C.\} \\ &\times \{E_1(r_1) \exp[-i(\omega_1 t - \mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{r})] + C.C. \\ &+ E_2(r_2) \exp[-i(\omega_2 t - \mathbf{k}_2 \cdot \mathbf{r})] + C.C.\}. \end{aligned} \quad (6.7-26)$$

当满足 $\omega_2 - \omega_1 = \omega_s$ (6.7-27)

并假定满足相位匹配条件

$$\mathbf{k}_s = \mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1 \quad (6.7-28)$$

时, (6.7-26)式中便只保留相应的项而被简化为

$$\frac{\gamma}{2} \frac{\partial}{\partial r_s} E^2 = \frac{\gamma}{2} \frac{\partial}{\partial r_s} \{E_2(r_2) E_1^*(r_1) \exp[-i(\omega_s t - \mathbf{k}_s \cdot \mathbf{r})] + C.C.\}, \quad (6.7-29)$$

将(6.7-23)~(6.7-25)式和(6.7-29)式代入(6.7-21)式,并考虑到

$$\frac{\partial}{\partial r_s} E_2(r_2)E_1^*(r_1) \ll k_s E_2(r_2)E_1^*(r_1),$$

又引入关系 $1/\alpha\rho_m = v_s^2$ (式中 v_s 是声波在介质中的自由传播速度),于是,(6.7-21)式变为

$$-2ik_s v_s^2 \frac{du_s(r_s)}{dr_s} + \left(k_s^2 v_s^2 - \omega_s^2 - \frac{i\eta\omega_s}{\rho_m} \right) u_s(r_s) = \frac{i\gamma k_s}{2\rho_m} E_2(r_2)E_1^*(r_1). \quad (6.7-30)$$

(6.7-30)式就是我们所要求的介质中声波的运动方程。

2. 电磁波方程

由于电磁场对介质的作用而激励声波,由声波所产生的介电常数的改变 $d\epsilon$ 引起附加的非线性电极化项为

$$P_{NL} = (d\epsilon)E. \quad (6.7-31)$$

根据(6.7-20)式有

$$d\epsilon = \gamma \frac{d\rho_m}{\rho_m} \longrightarrow -\gamma \frac{dV}{V}.$$

对于一维运动的情况,应变 $(-dV/V)$ 就是 $-\partial u/\partial r_s$ 。所以有

$$d\epsilon = -\gamma \frac{\partial u}{\partial r_s}. \quad (6.7-32)$$

这样,由声波所产生的附加非线性电极化项(6.7-31)式变为

$$P_{NL} = -\gamma E(r,t) \frac{\partial u(r,t)}{\partial r_s}. \quad (6.7-33)$$

将上式代入波方程

$$\nabla^2 E_i(r,t) = \mu\epsilon \frac{\partial^2}{\partial t^2} E_i(r,t) + \mu \frac{\partial^2}{\partial t^2} (P_{NL})_i \quad (6.7-34)$$

(注意,(6.7-34)式中的 $(P_{NL})_i$ 是指非线性电极化 P_{NL} 中频率为 ω_i 的一个分量,它是作为产生波场 $E_i(r,t)$ 的一个激励源)。由于(6.7-34)式左边

$$\begin{aligned} \nabla^2 E_i(r,t) = & -[k_i^2 E_i(r_i) - 2ik_i \cdot \nabla E_i(r_i) - \nabla^2 E_i(r_i)] \\ & \times \exp[-i(\omega_i t - \mathbf{k}_i \cdot \mathbf{r})] + C.C., \end{aligned} \quad (6.7-35)$$

若将上式代入(6.7-34)式,并令式中的分量指标 $i=1$,再略去 $\nabla^2 E_1(r_1)$ 的项,又考虑到

$$\mathbf{k}_1 \cdot \nabla E_1(r_1) = k_1 \frac{dE_1}{dr_1}, \quad (6.7-36)$$

则波方程(6.7-34)式变为

$$2\left(k_1 \frac{dE_1(r_1)}{dr_1}\right) \exp[-i(\omega_1 t - \mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{r})] + C.C. = -i\mu \frac{\partial^2}{\partial t^2} (P_{NL})_1 \quad (6.7-37)$$

利用(6.7-33)式有

$$-i\mu \frac{\partial^2}{\partial t^2} (P_{NL})_1 = -i\mu \frac{\partial^2}{\partial t^2} \left\{ -\gamma E_2(\mathbf{r}, t) \frac{\partial u^*(\mathbf{r}, t) \exp[i(\omega_1 t - \mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{r})]}{\partial r_1} + C.C. \right\}.$$

将上式代入(6.7-37)式, 并利用(6.7-27)式和(6.7-28)式, 便给出含有指数因子 $\exp[-i(\omega_1 t - \mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{r})]$ 的方程为

$$2k_1 \frac{dE_1(\mathbf{r}_1)}{dr_1} - i\omega_1^2 \gamma \mu E_2 \left(ik_1 u - \frac{du^*}{dr_1} \right). \quad (6.7-38)$$

如果 $\frac{du}{dr_1} \ll k_1 u$, 则(6.7-38)式变为

$$\frac{dE_1}{dr_1} = - \frac{\omega_1^2 \gamma \mu k_1}{2k_1} E_2 u^*. \quad (6.7-39)$$

又如果考虑到介质的损耗所引起的耗散项, 则在(6.7-39)式中需要附加上一耗散项 $(-\beta E_1 / z)$, 其中 β 是对光波唯象地引入的一个耗散系数。这样就有

$$\frac{dE_1}{dr_1} = - \frac{\omega_1^2 \gamma \mu k_1}{2k_1} E_2 u^* - \frac{\beta E_1}{2}. \quad (6.7-40)$$

完全类似地可以求得

$$\frac{dE_2}{dr_2} = - \frac{\omega_2^2 \gamma \mu k_2}{2k_2} E_1 u - \frac{\beta E_2}{2}. \quad (6.7-41)$$

方程(6.7-40)式、(6.7-41)式和(6.7-30)式就是我们所要求的包括声变量 $u_s(\mathbf{r}_s)$ 和电场振幅 $E_1(\mathbf{r}_1)$ 、 $E_2(\mathbf{r}_2)$ 的一组耦合方程。

3. 受激布里渊散射

当一束强激光作用在上述介质时, 设激光频率为 ω_2 , 则由以上分析表明会同时产生频率为 ω_1 的散射光和频率为 $\omega_3 = \omega_2 - \omega_1$ 的声波。假定频率为 ω_2 的泵浦场比 ω_1 的散射光场和 ω_3 的声波场强得多, 那么可以认为 $E_2(\mathbf{r}_2)$ 近似不变。这样, 我们只要求解(6.7-30)式和(6.7-40)式即可。

现在, 在(6.7-30)式中, 取 $\omega_s = k_s v_s$, 则由该式可得

$$\frac{du_s}{dr_s} = - \frac{\eta}{2\rho_m v_s} u_s - \frac{\gamma}{4\rho_m v_s^2} E_2 E_1^*. \quad (6.7-42)$$

频率为 ω_1 的散射光束的方程(6.7-40)式又可以改写为

$$\frac{dE_1^*}{dr_1} = - \frac{\beta E_1^*}{2} - \frac{\gamma k_1 k_2}{2\varepsilon_1} E_2^* u_s. \quad (6.7-43)$$

注意, 在前面我们已经明确地指出(6.7-42)式和(6.7-43)式中的变量 r_s 和 r_1 是分别沿着频率为 ω_3 的声波和频率为 ω_1 的散射光波的任意传播方向 k_s 和 k_1 所测量的距离。可见, 在上述耦合方程中, 有两个变量 r_1 和 r_s 。如果将坐标变换到沿 \mathbf{r}_1 和 \mathbf{r}_s 相交的角平分线的坐标上, 如图6-24所示, 那么在耦合方程中出现两个坐标变量的困难就可以消除。例如利用关系 $r_1 = r_s = \xi \cos\theta$, 我们就可以将(6.7-42)式和(6.7-43)式改写为

$$\frac{du_s}{dq} = -\frac{\eta}{2\rho_m v_s} u_s - \frac{\gamma}{4\rho_m v_s^2} E_2 E_1^* \quad (6.7-44)$$

$$\frac{dE_1^*}{dq} = -\frac{\beta E_1^*}{2} - \frac{\gamma k_1 k_s}{2\epsilon_1} E_2 u_s \quad (6.7-45)$$

(6.7-44)式和(6.7-45)式这两个方程是用来描述声振动位移 u_s 和电场 E_1 的增长或衰减随坐标 q 而变化的规律的。如果它们是指数增长的,则我们可取

$$\left. \begin{aligned} u_s(q) &= u_s(0) \exp(gq), \\ E_1^*(q) &= E_1^*(0) \exp(gq) \end{aligned} \right\} \quad (6.7-46)$$

的形式,式中 g 是增益常数。将(6.7-46)式代入(6.7-44)式和(6.7-45)式后,得

$$gu_s(0) + \frac{\eta}{2\rho_m v_s} u_s(0) + \frac{\gamma}{4\rho_m v_s^2} E_2 E_1^*(0) = 0,$$

$$gE_1^*(0) + \frac{\beta E_1^*(0)}{2} + \frac{\gamma k_1 k_s}{2\epsilon_1} E_2^* u_s(0) = 0.$$

由此可见,方程有解的条件是

$$\left(g + \frac{\eta}{2\rho_m v_s}\right) \left(g + \frac{\beta}{2}\right) - \left(\frac{\gamma}{4\rho_m v_s^2} E_2\right) \left(\frac{\gamma k_1 k_s}{2\epsilon_1} E_2^*\right) = 0. \quad (6.7-47)$$

另外,由(6.7-44)式可见,如果 $E_2 = 0$,则声波指数衰减,衰减常数为 $\beta_s = \eta/\rho_m v_s$,于是(6.7-47)式可写为

$$\left(g + \frac{1}{2}\beta_s\right) \left(g + \frac{1}{2}\beta\right) - \frac{\gamma^2 k_1 k_s}{8\rho_m v_s^2 \epsilon_1} |E_2|^2 = 0.$$

由此可得增益常数

$$g = -\frac{1}{4}(\beta_s + \beta) + \frac{1}{4} \left[(\beta_s + \beta)^2 - 4 \left(\beta\beta_s - \frac{\gamma^2 k_1 k_s |E_2|^2}{2\rho_m v_s^2 \epsilon_1} \right) \right]^{1/2}. \quad (6.7-48)$$

如果 $g \geq 0$,这表示沿 k_s 方向传播的声波和沿 k_1 方向运行的频率为 ω_1 的光波同时被放大,这时要求

$$|E_2|^2 \geq \frac{2\rho_m \beta\beta_s \epsilon_1 v_s^2}{\gamma^2 k_1 k_s} = \frac{2\beta\beta_s \epsilon_1}{\alpha\gamma^2 k_1 k_s}. \quad (6.7-49)$$

在(6.7-49)式的条件下,我们就说发生了受激布里渊散射。

如果用泵浦强度 I_2 表示时,因为 $I_2 = 2\epsilon_2 v_2 |E_2|^2$,所以有

$$I_2 > \frac{4\beta\beta_s \epsilon_1 \epsilon_2 v_2}{\alpha\gamma^2 k_1 k_s}. \quad (6.7-50)$$

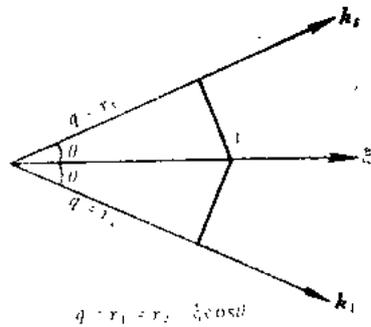


图 6-24 垂直于声波(ω_s)波前测量的距离 r_2 和垂直于光波(ω_1)波前测量的距离 r_1 之间的一一对应关系

由上式可见,对散射光波和声波衰减作用较小(即 β 和 β_s 较小)同时又具有较大的电致伸缩系数 γ 的介质来说,阈值泵浦强度 I_s 较小,也就比较容易产生受激布里渊散射效应。

下面以石英为例估计一下产生受激布里渊散射的阈值。固体 α 的典型值 $\alpha = 5 \times 10^{10}$ N/m²,电致伸缩系数的典型值为 $\gamma \approx \epsilon_0 \approx 10^{-11}$ (MKS),如果取 $\lambda_2 \approx \lambda_1 = 1 \mu\text{m}$,衰减系数 β 和 β_s 分别取 0.02cm^{-1} 和 20cm^{-1} (这是根据石英的典型数据估算得到的),根据声速 $v_s = 3 \times 10^3 \text{m/s}$ 和 $\lambda_2 \approx 1 \mu\text{m}$ 可给出 $\omega_s \approx 2\omega_2 v_s / \lambda_2 \approx 2\pi(6 \times 10^9)$ 。利用以上数据,根据(6.7-49)式给出^[15]

$$\left(\frac{\text{功率}}{\text{面积}}\right)_{\text{阈值}} \approx 10^7 \text{W}/(\text{cm})^2.$$

这样的功率电平可以从巨脉冲激光器得到。

最后要指出,因为 $\omega_1 \ll \omega_2$,所以 $\omega_2 \approx \omega_1$,这样,在各向同性介质内,就有 $k_2 \approx k_1$,由波矢之间的矢量关系(6.7-28)式可给出如图6-25所示的象布拉格衍射那样的关系,即有

$$k_s = 2k_1 \sin \theta. \quad (6.7-51)$$

当 $\theta = \frac{\pi}{2}$ 时,即对应于背向散射的情况(散射光的方向与入射泵浦光的方向相反),声波的波矢 $k_s = k_2 - k_1$ 最大。由(6.7-48)式可得增益最大,并得到前向声波的频率为

$$(\omega_s)_{\text{max}} = v_s k_s \approx 2v_s k_1 = 2v_s \frac{n_2 \omega_2}{c}. \quad (6.7-52)$$

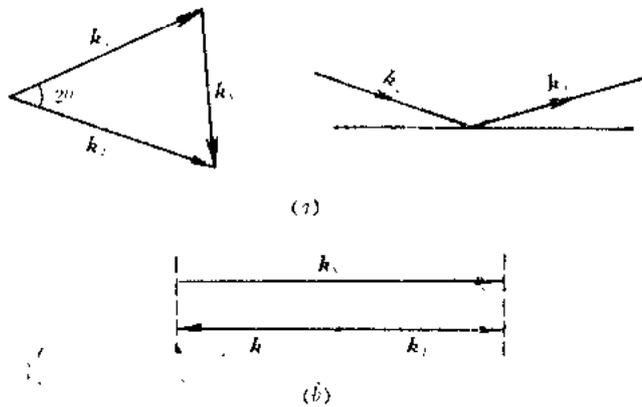


图6-25 在各向同性介质内($k_1 \approx k_2$)受激布里渊散射的矢量关系 $k_2 - k_1 \approx k_s$

(a)任意角; (b)背向散射

八、受激光散射现象的一般考虑

在六和七中,我们用耦合波理论讨论了受激喇曼散射和受激布里渊散射。在讨论受激布里渊散射现象时,我们是明确地用频率为 ω_1 和 ω_2 的光波与频率为 ω_s 的声波之间的耦合来分析的。但在讨论受激喇曼散射现象时,只分析了泵浦光和斯托克斯光的规律,并没有引入与物质激发相对应的振动波的概念。如果我们认为当激光场入射到介质时,在介质中激发起频率为 ω_s 的振动波 Q ,那么我们也可以把SRS看作是一个波的耦合问题,同时也可用来解释高阶SRS效应。例如斯托克斯线是由泵浦波(ω_p)与振动波 $Q(\omega_s)$ 耦合产生,如图6-26(a)所示;反斯托克斯线产生的过程可分为两步进行,如图6-26(b)所示,首先 ω_p 和 ω_s 相互作用,差频耦合而产生振动波 ω_{st} ,然后振动波 ω_{st} 再和 ω_p 作用,耦合产生频率为 $\omega_{ast} = \omega_p + \omega_s$ 的场;对于高阶SRS效应产生的场,只不过是 ω_s 、 ω_{ast} 、 ω_p 和 ω_s 相互多次耦合的

结果，如图6-26(c)所示。

如果现在我们把上面引入的Q不仅仅局限于对应分子喇曼散射效应的振动波，而且把它扩展到任意物质的激发波^[16]。例如

- (a) 分子振动加转动波；
- (b) 声子(即布里渊散射)；
- (c) 电子激发(如受激电子喇曼散射)；
- (d) 自旋反转喇曼散射；
- (e) 自旋波；
- (f) 嫡波；
- (g) 受激浓度散射；
- (h) 分子定向波；
- (i) 声波；
- (j) 等离子体波；
- (k) 电磁耦合场量子波。

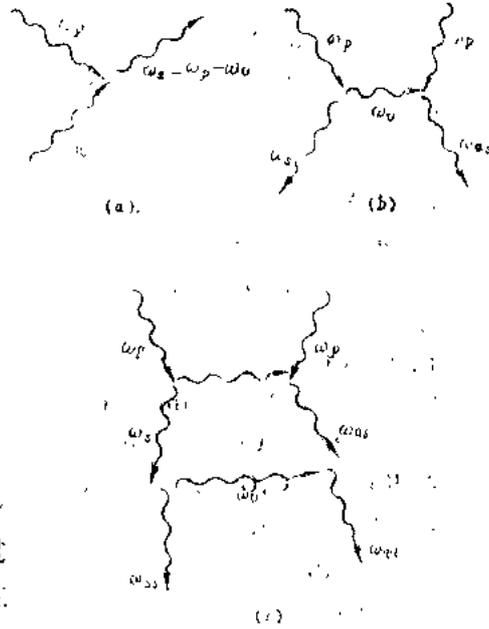


图 6-26 SRS过程中的波之间耦合示意图

在以上所列举的各种过程中，其中(a)~(d)我们在本章已不同程度地作了讨论。其它过程也都有相应的激发波，例如当两种物质混在一起时物质浓度就会变化，如果认为这种浓度变化是一种激发波，则浓度变化的过程相当于SRS过程。因此，可以用 E_p 、 E_s 场加以激励

来改变物质的浓度分布，事实上，在实验中加激光场时也确实观察到了SRS。由此可见，把浓度变化看作物质激发波是正确的。对于一般物质，浓度有变化，但当我们加激光场时却看不到SRS过程。这不是说明不能发生SRS，而是由于此类物质损伤阈值太低，即还未达到SRS阈值就损坏了(或者说SRS阈值太高因而不能看到)。

又如对受激电磁耦合量子波激发来说，我们知道固体在受到外界的激励以后，某些激发态在经过弛豫后，最终到达具有最低自由能状态，在这样的状态下，固体仍存在某些固有振动激发，对应这些状态，其能级寿命非常大，称之为物质的元激发。我们对此可用不同的能量载体把它量子化，这些能量载体可处于不同波段，波长处于红外波段的称为光学声子。当我们将光场入射到此类晶体时，将会使声子激发，产生声波(只能在晶格中运动)。显然当用红外波段强度足够大的激光入射晶体时，声子被激发的几率非常大，它们彼此间进行耦合的结果，将产生所谓电磁耦合量子波(Polariton)。可把电磁耦合量子波看作为激发波Q，当入射激光场足够强时，同样也能产生SRS。它们彼此间满足关系

$$\omega_p = \omega_s + \omega_{ex},$$

$$k_p = k_s + k_{ex}.$$

式中 ω_{ex} 和 k_{ex} 分别表示激发波的频率和波矢。

总之，当我们引入物质的激发波的概念以后，许多物质中的受激发射过程都可以用与受激喇曼散射过程相类似的机理加以解释。

参 考 文 献

- [1] Amnon Yariv, Quantum Electronics, John Wiley & Sons, Inc., New York, 1975, pp.110~112.
- [2] D.C.Hanna, M.A.Yuratich, D.Cotter, Nonlinear Optics of Free Atoms and Molecules, Springer-Verlag Berlin Heidelberg New York 1979, p.146.
- [3] 同 [2], p.147.
- [4] R.B. Miles and S.E.Harris, Optical Third-Harmonic Generation in Alkali Metal Vapors, IEEE J.QE Vol QE-9 No.4 1973, pp.470~484.
- [5] 同 [2], pp.160~163.
- [6] 同 [2], p.4.
- [7] T.P.McLean, Interaction of Radiation with Condensed Matter, Vol.1, Linear and Non-Linear Optics of Condensed Matter, International Atomic Energy Agency Vienna, 1977,p.72.
- [8] W.Kaiser, C.G.B.Garrett, Two-Photon Excitation in $\text{CaF}_2 \cdot \text{Eu}^{2+}$, Phys Rev Lett, Vol.7, No.6(1961), p.229.
- [9] 同 [2], p.187, p.195.
- [10] 同 [2] .p.28, p.97.
- [11] 同 [2], p.27, p.30.
- [12] 同 [2], p.101.
- [13] 激光物理编写组:《激光物理学》,上海人民出版社,1975年8月,第316页。
- [14] Л.Д.朗道, E.M.栗弗席兹:《连续媒质电动力学》(上册)(周奇译),人民教育出版社,1979年, §15.
- [15] 同 [1], p.497.
- [16] 沈元怀,非线性光学讲座(整理稿),复旦大学物理系激光物理教研组,1984年4月,第41页。

第七章 非线性光学现象的全量子理论

以上我们已经利用经典和半经典理论讨论了非线性光学的过程，并给出了相应的规律。在这一章中，我们将深入一步地把量子力学应用于电磁场，用所谓全量子理论去讨论非线性光学效应。

一、辐射场的量子化理论

1. 经典电磁场的简正模式展开

现在我们考虑在有限体积 V 内的任意电磁场 $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$ 和 $\mathbf{H}(\mathbf{r}, t)$ 。根据电磁场理论，电场矢量可以被分解为纵向部分 \mathbf{E}_\parallel 和横向部分 \mathbf{E}_\perp ，磁场分量只有横向部分 \mathbf{H}_\perp 。它们满足如下的方程^[1]，即

$$\begin{aligned} k_a \mathbf{E}_\perp &= \nabla \times \mathbf{H}_\perp, \\ k_a \mathbf{H}_\perp &= \nabla \times \mathbf{E}_\perp, \\ k_a \mathbf{F}_\parallel &= \nabla \psi_a. \end{aligned} \quad (7.1-1)$$

边界条件是

$$\left. \begin{aligned} \mathbf{n} \times \mathbf{E}_\perp &= 0, & \mathbf{n} \cdot \mathbf{H}_\perp &= 0 & \text{在 } S \text{ 上,} \\ \mathbf{n} \cdot \mathbf{E}_\perp &= 0, & \mathbf{n} \times \mathbf{H}_\perp &= 0 & \text{在 } S' \text{ 上.} \end{aligned} \right\} \quad (7.1-2)$$

以及

$$\left. \begin{aligned} \psi_a &= 0 & \text{在 } S \text{ 和 } S' \text{ 上,} \\ \mathbf{n} \times \mathbf{F}_\parallel &= 0 & \text{在 } S \text{ 和 } S' \text{ 上.} \end{aligned} \right\} \quad (7.1-3)$$

式中 S 表示完全导体的界面， S' 表示理想绝缘体的界面。场分量 \mathbf{E}_\perp 、 \mathbf{H}_\perp 和 ψ_a 满足的微分方程分别为

$$\begin{aligned} \nabla^2 \mathbf{E}_\perp + k_a^2 \mathbf{E}_\perp &= 0, \\ \nabla^2 \mathbf{H}_\perp + k_a^2 \mathbf{H}_\perp &= 0, \\ \nabla^2 \psi_a + k_a^2 \psi_a &= 0. \end{aligned} \quad (7.1-4)$$

在文献(1)中已经详细地证明了 \mathbf{E}_\perp 和 \mathbf{H}_\perp 具有

$$\left. \begin{aligned} \int_V \mathbf{E}_\perp \cdot \mathbf{E}_\perp dV &= \delta_{ab}, \\ \int_V \mathbf{H}_\perp \cdot \mathbf{H}_\perp dV &= \delta_{ab} \end{aligned} \right\} \quad (7.1-5)$$

和

$$\int_V \mathbf{F}_a \cdot \mathbf{F}_b dV = \delta_{ab},$$

$$\int_V \psi_a \psi_b dV = \delta_{ab},$$

$$\int_V \mathbf{F}_a \cdot \mathbf{E}_b dV = 0$$
(7.1-6)

的正交归一化条件。如假定 \mathbf{E}_a 和 \mathbf{F}_a 或 \mathbf{H}_a 和 \mathbf{F}_a 形成完全集合，那么任意场矢量 \mathbf{E} 可以按 \mathbf{E}_a 和 \mathbf{F}_a 展开为

$$\mathbf{E} = \sum_a \mathbf{E}_a + \sum_a f_a \mathbf{F}_a$$

$$= \sum_a \mathbf{E}_a \int_V \mathbf{E} \cdot \mathbf{E}_a dV + \sum_a \mathbf{F}_a \int_V \mathbf{E} \cdot \mathbf{F}_a dV.$$
(7.1-7)

如果体积 V 内没有自由电荷，则有 $\nabla \cdot \mathbf{D} = 0$ 。现利用关系

$$\nabla \cdot \psi_a \mathbf{D} = \psi_a \nabla \cdot \mathbf{D} + \mathbf{D} \cdot \nabla \psi_a = k_a \mathbf{D} \cdot \mathbf{F}_a$$

并在两边作体积分，有

$$\int_V \nabla \cdot \psi_a \mathbf{D} dV = k_a \int_V \mathbf{D} \cdot \mathbf{F}_a dV$$

$$= k_a \epsilon \int_V \mathbf{E} \cdot \mathbf{F}_a dV$$

$$= \int_{S'} \psi_a \mathbf{D} \cdot \mathbf{n} dS.$$

按边界条件(7.1-3)式， ψ_a 在边界 SS' 上皆为零，由此可得 $\int_V \mathbf{E} \cdot \mathbf{F}_a dV = 0$ 。这样，在体积 V 内任意电磁场 $\mathbf{E}(r, t)$ 和 $\mathbf{H}(r, t)$ 可以用简正模 \mathbf{E}_a 和 \mathbf{H}_a 展开，有

$$\left. \begin{aligned} \mathbf{E} &= \sum_a e_a \mathbf{E}_a, \\ \mathbf{H} &= \sum_a h_a \mathbf{H}_a. \end{aligned} \right\} \quad (7.1-8)$$

现在的问题是如何将经典的电磁理论方便地过渡到辐射的量子理论。在这种过渡中，电磁场的矢位起着十分重要的作用。根据经典的电磁理论，在库仑规范条件下，可以求得矢位 \mathbf{A} 所满足的方程为^[2]

$$-\nabla^2 \mathbf{A} + \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{A}}{\partial t^2} = \mu_0 \mathbf{J}_T. \quad (7.1-9)$$

式中 \mathbf{J}_T 是电流密度矢量的横向分量， c 是真空中光速。矢位 $\mathbf{A}(r, t)$ 与电场 $\mathbf{E}(r, t)$ 和磁场 $\mathbf{H}(r, t)$ 之间有关系

$$\mathbf{E} = -\frac{\partial \mathbf{A}}{\partial t} \quad (7.1-10)$$

$$\mu_0 \mathbf{H} = \nabla \times \mathbf{A}. \quad (7.1-11)$$

当被研究的体积 V 内的电流密度为零时，(7.1-9)式变为

$$-\nabla^2 \mathbf{A} + \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{A}}{\partial t^2} = 0. \quad (7.1-12)$$

这是一个描述自由场的波动方程，其通解是一系列单色平面波的线性组合。所以 V 中任意电磁场矢位 $A(\mathbf{r}, t)$ 可以按傅里叶展开，即

$$A(\mathbf{r}, t) = \sum_{\mathbf{k}} \{ A_{\mathbf{k}} \exp(-i\omega_{\mathbf{k}}t + i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}) + A_{\mathbf{k}}^* \exp(i\omega_{\mathbf{k}}t - i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}) \}. \quad (7.1-13)$$

这与电场矢量 $E(\mathbf{r}, t)$ 和磁场矢量 $H(\mathbf{r}, t)$ 按(7.1-8)式的简正模展开是一致的。(7.1-13)式中的 \mathbf{k} 是波矢，每一个 \mathbf{k} 与一个简正模相对应，并且对每一个 \mathbf{k} 来说， $A_{\mathbf{k}}$ 有两个独立的方向。因为矢位 A 的不同的傅里叶分量之间是相互独立的，因此每个分量都分别满足波动方程(7.1-12)式，即有

$$k^2 A_{\mathbf{k}}(t) + \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 A_{\mathbf{k}}(t)}{\partial t^2} = 0. \quad (7.1-14)$$

式中 $A_{\mathbf{k}}(t) = A_{\mathbf{k}} \exp(-i\omega_{\mathbf{k}}t)$ ， $A_{\mathbf{k}}^*(t)$ 满足相同的方程。改变一下(7.1-14)式的形式有

$$\frac{\partial^2 A_{\mathbf{k}}(t)}{\partial t^2} + \omega_{\mathbf{k}}^2 A_{\mathbf{k}}(t) = 0. \quad (7.1-15)$$

式中 $\omega_{\mathbf{k}} = ck$ 。由(7.1-15)式可见，这是一个简谐振动方程，它表明电磁场矢位 $A(\mathbf{r}, t)$ 的傅里叶展开系数 $A_{\mathbf{k}}(t)$ 满足简谐振动方程。另外，根据(7.1-10)式和(7.1-11)式，与场模 $A_{\mathbf{k}}$ 相联系的电磁场 $E_{\mathbf{k}}$ 和 $H_{\mathbf{k}}$ 为

$$E_{\mathbf{k}} = i\omega_{\mathbf{k}} \{ A_{\mathbf{k}} \exp(-i\omega_{\mathbf{k}}t + i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}) - A_{\mathbf{k}}^* \exp(i\omega_{\mathbf{k}}t - i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}) \}, \quad (7.1-16)$$

$$H_{\mathbf{k}} = \frac{i}{\mu_0} \mathbf{k} \times \{ A_{\mathbf{k}} \exp(-i\omega_{\mathbf{k}}t + i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}) - A_{\mathbf{k}}^* \exp(i\omega_{\mathbf{k}}t - i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}) \}. \quad (7.1-17)$$

如果我们作出 $E_{\mathbf{k}}$ 和 $H_{\mathbf{k}}$ 的时间平均值 $\bar{E}_{\mathbf{k}}$ 和 $\bar{H}_{\mathbf{k}}$ ，然后代入单个模 \mathbf{k} 的周平均能量的表示式

$$\bar{\mathcal{E}}_{\mathbf{k}} = \frac{1}{2} \int_V (c_0 \bar{E}_{\mathbf{k}}^2 + \mu_0 \bar{H}_{\mathbf{k}}^2) dv \quad (7.1-18)$$

中，则可求得

$$\bar{\mathcal{E}}_{\mathbf{k}} = 2\varepsilon_0 V \omega_{\mathbf{k}}^2 A_{\mathbf{k}} \cdot A_{\mathbf{k}}^*. \quad (7.1-19)$$

现在如将单个模的能量 $\bar{\mathcal{E}}_{\mathbf{k}}$ 从形式上写成一个经典谐振子的能量表示式的形式

$$\bar{\mathcal{E}}_{\mathbf{k}} = \frac{1}{2} (p^2 + \omega_{\mathbf{k}}^2 Q^2), \quad (7.1-20)$$

式中 $Q_{\mathbf{k}}$ 被看作是模的“位置坐标”， $p_{\mathbf{k}}$ 是模的“动量”，即

$$p_{\mathbf{k}} = \dot{Q}_{\mathbf{k}}. \quad (7.1-21)$$

它们与 $A_{\mathbf{k}}$ 和 $A_{\mathbf{k}}^*$ 之间的关系有

$$A_{\mathbf{k}} = (4\pi_0 V \omega_{\mathbf{k}}^2)^{-1/2} (\omega_{\mathbf{k}} Q_{\mathbf{k}} + i p_{\mathbf{k}}) \mathbf{u}_{\mathbf{k}}, \quad (7.1-22)$$

$$A_{\mathbf{k}}^* = (4\pi_0 V \omega_{\mathbf{k}}^2)^{-1/2} (\omega_{\mathbf{k}} Q_{\mathbf{k}} - i p_{\mathbf{k}}) \mathbf{u}_{\mathbf{k}}. \quad (7.1-23)$$

式中 $\mathbf{u}_{\mathbf{k}}$ 是模的偏振方向的单位矢量。

2. 辐射场的量子化

在1中, 我们从经典电磁理论导出了自由空间内任意电磁场可按简正模展开, 并给出每一个简正模与一个经典谐振子相当, 谐振子能量由(7.1-20)式给出。现在如将模的位置坐标 O_k 和模的动量 p_k 变换为量子力学的位置和动量算符 \hat{q}_k 和 \hat{p}_k , 那么电磁场便量子化。对于单位质量的一维量子力学谐振子来说, 它的量子力学哈密顿形式按(7.1-20)式有

$$\hat{H} = \frac{1}{2} (\hat{p}_x^2 + \omega^2 \hat{x}^2). \quad (7.1-24)$$

式中动量算符 \hat{p}_x 和坐标算符 \hat{x} 遵守通常的对易关系

$$[\hat{p}_x, \hat{x}] = i\hbar. \quad (7.1-25)$$

如果我们引入所谓谐振子的湮灭算符 \hat{a} 及其共轭转置算符即所谓谐振子的产生算符 \hat{a}^\dagger , 代替动量算符 \hat{p}_x 和坐标算符 \hat{x} , 则它们之间的关系是,

$$\hat{a} = (2\hbar\omega)^{-1/2} (\omega \hat{x} + i\hat{p}_x), \quad (7.1-26)$$

$$\hat{a}^\dagger = (2\hbar\omega)^{-1/2} (\omega \hat{x} - i\hat{p}_x) \quad (7.1-27)$$

或

$$\hat{x} = \left(\frac{\hbar}{2\omega} \right)^{1/2} (\hat{a}^\dagger + \hat{a}), \quad (7.1-28)$$

$$\hat{p}_x = i \left(\frac{\hbar\omega}{2} \right)^{1/2} (\hat{a}^\dagger - \hat{a}). \quad (7.1-29)$$

由(7.1-25)式可得 \hat{a} 和 \hat{a}^\dagger 的对易关系是

$$[\hat{a}, \hat{a}^\dagger] = \hat{a} \hat{a}^\dagger - \hat{a}^\dagger \hat{a} = 1. \quad (7.1-30)$$

又根据(7.1-26)式和(7.1-27)式得

$$\hat{a}^\dagger \hat{a} = (\hbar\omega)^{-1} (\hat{H} - \frac{1}{2} \hbar\omega). \quad (7.1-31)$$

类似地可得

$$\hat{a} \hat{a}^\dagger = (\hbar\omega)^{-1} (\hat{H} + \frac{1}{2} \hbar\omega). \quad (7.1-32)$$

现将(7.1-31)式和(7.1-32)式代入(7.1-30)式, 则一维量子力学谐振子的哈密顿算符 \hat{H} 可写为

$$\hat{H} = \hbar\omega \left(\hat{a}^\dagger \hat{a} + \frac{1}{2} \right). \quad (7.1-33)$$

狄拉克(Dirac)^[3]证明了算符 $\hat{a}^\dagger \hat{a}$ 的本征值只能取零以及正整数, 它被称为振子的数算符, 用 \hat{n} 表示, 即

$$\hat{n} = \hat{a}^\dagger \hat{a}. \quad (7.1-34)$$

具有本征值 $n(\geq 0)$ 的本征态用 $|n\rangle$ 表示, 有

$$\hat{a}^\dagger \hat{a} |n\rangle = n |n\rangle. \quad (7.1-35)$$

狄拉克还进一步证明了算符 \hat{a} 作用在态 $|n\rangle$ 上的结果是将其变为 $|n-1\rangle$, 即有

$$\hat{a} |n\rangle = n^{1/2} |n-1\rangle. \quad (7.1-36)$$

这种情况我们就说湮灭了一个光子, 这也就是为什么把 \hat{a} 叫做湮灭算符的理由. 对湮灭算符 \hat{a} 的共轭转置算符 \hat{a}^\dagger 来说, 因为

$$\hat{a}^\dagger |n\rangle = (n+1)^{1/2} |n+1\rangle, \quad (7.1-37)$$

即算符 \hat{a}^\dagger 作用在态 $|n\rangle$ 上后将其变为态 $|n+1\rangle$, 其结果是产生了一个光子, 产生算符的名词由此而得.

对 $n=0$ 的态来说, 通常称为振子的基态, 有

$$\hat{a} |0\rangle = 0. \quad (7.1-38)$$

根据以上由经典振子过渡到量子力学振子的讨论, 我们可以利用(7.1-22)、(7.1-23)、(7.1-26)式和(7.1-27)式将 A_k 和 A_k^* 写成算符的形式, 即

$$\begin{aligned} A_k &= (4\epsilon_0 V \omega_k^2)^{-1/2} (Q_k \omega_k + i P_k) \mathbf{u}_k, \\ &\Downarrow \\ \hat{A}_k &= (4\epsilon_0 V \omega_k^2)^{-1/2} (\omega_k \hat{Q}_k + i \hat{P}_k) \mathbf{u}_k = (\hbar/2\epsilon_0 V \omega_k)^{1/2} \hat{a}_k \mathbf{u}_k \end{aligned} \quad (7.1-39)$$

$$\begin{aligned} A_k^* &= (4\epsilon_0 V \omega_k^2)^{-1/2} (Q_k \omega_k - i P_k) \mathbf{u}_k, \\ &\Downarrow \\ \hat{A}_k^* &= (4\epsilon_0 V \omega_k^2)^{-1/2} (\omega_k \hat{Q}_k - i \hat{P}_k) \mathbf{u}_k = (\hbar/2\epsilon_0 V \omega_k)^{1/2} \hat{a}_k^\dagger \mathbf{u}_k. \end{aligned} \quad (7.1-40)$$

这表示电磁场从经典理论过渡到量子理论时, 矢量 A_k 和 A_k^* 分别由湮灭算符 \hat{a}_k 和产生算符 \hat{a}_k^\dagger 所代替, 只要乘上一个数值因子和一个单位矢量即可. 这样, (7.1-13)式的矢量 A 的量子力学表示式便变为

$$\begin{aligned} \hat{A} &= \sum_k \left(\frac{\hbar}{2\epsilon_0 V \omega_k} \right)^{1/2} \mathbf{u}_k \{ \hat{a}_k \exp(-i\omega_k t + i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}) \\ &\quad + \hat{a}_k^\dagger \exp(i\omega_k t - i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}) \}. \end{aligned} \quad (7.1-41)$$

注意, 现在矢量已是一个算符. 与第 k 个模相对应的电场和磁场算符 \hat{E}_k 和 \hat{H}_k 由(7.1-16)式和(7.1-17)式变为

$$\hat{E}_k = i \left(\frac{\hbar \omega_k}{2\epsilon_0 V} \right)^{1/2} \mathbf{u}_k \{ \hat{a}_k \exp(-i\omega_k t + i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}) - \hat{a}_k^\dagger \exp(i\omega_k t - i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}) \}, \quad (7.1-42)$$

$$\hat{H}_k = i \left(\frac{\hbar c^2}{2\mu_0 V \omega_k} \right)^{1/2} \mathbf{k} \times \mathbf{u}_k \{ \hat{a}_k \exp(-i\omega_k t + i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}) - \hat{a}_k^\dagger \exp(i\omega_k t - i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}) \}. \quad (7.1-43)$$

于是总的横向电场和磁场算符为

$$\hat{E}_T = \sum_k \hat{E}_k, \quad (7.1-44)$$

$$\hat{H} = \sum_{\mathbf{k}} \hat{H}_{\mathbf{k}}. \quad (7.1-45)$$

3. 相干态

有一种辐射场的态,在一定条件下,这种态与具有稳定振幅和固定位相的经典电磁波相类似,它被称为辐射场的相干态。格劳伯(Glauber)定义了一个由本征态 $|n\rangle$ 按如下线性组合所给出的态 $|\alpha\rangle$ ^[4],即

$$|\alpha\rangle = \exp\left(-\frac{1}{2}|\alpha|^2\right) \sum_{n=0}^{\infty} \frac{\alpha^n}{(n!)^{1/2}} |n\rangle. \quad (7.1-46)$$

式中 α 是一个任意的复数。根据本征态 $|n\rangle$ 的正交归一化

$$\langle n|m\rangle = \delta_{nm}, \quad (7.1-47)$$

可以求得

$$\langle \alpha|\alpha\rangle = \exp(-|\alpha|^2) \sum_{n=0}^{\infty} \frac{|\alpha|^{2n}}{n!} = 1. \quad (7.1-48)$$

即这个态矢量的长度为1。

如果我们计算在这个态中电场的期望值 $\langle \alpha|\hat{E}|\alpha\rangle$ 以及电场平方的期望值 $\langle \alpha|\hat{E}^2|\alpha\rangle$,并求出其均方根偏差 $\Delta E = (\langle \alpha|\hat{E}^2|\alpha\rangle - |\langle \alpha|\hat{E}|\alpha\rangle|^2)^{1/2}$,发现 $\Delta E = \text{常数}$ 。利用(7.1-42)式,则有

$$\begin{aligned} \langle \alpha|\hat{E}|\alpha\rangle &= \langle \alpha|i\left(\frac{\hbar\omega}{2\epsilon_0 V}\right)^{1/2} \{\hat{a} \exp(-i\omega t + i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}) \\ &\quad - \hat{a}^\dagger \exp(i\omega t - i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r})\}|\alpha\rangle. \end{aligned} \quad (7.1-49)$$

因为

$$\begin{aligned} \hat{a}|\alpha\rangle &= \exp\left(-\frac{1}{2}|\alpha|^2\right) \sum_n \frac{\alpha^n}{(n!)^{1/2}} n^{1/2} |n-1\rangle \\ &= \alpha|\alpha\rangle, \end{aligned} \quad (7.1-50)$$

$$\langle \alpha|\hat{a}|\alpha\rangle = \alpha, \quad (7.1-51)$$

$$\langle \alpha|\hat{a}^\dagger|\alpha\rangle = \alpha^*, \quad (7.1-52)$$

并假定

$$\alpha = |\alpha| \exp(i\theta), \quad (7.1-53)$$

当将(7.1-51)~(7.1-53)式代入(7.1-49)式后,便给出

$$\langle \alpha|\hat{E}|\alpha\rangle = -2\left(\frac{\hbar\omega}{2\epsilon_0 V}\right)^{1/2} |\alpha| \sin(\mathbf{k}\cdot\mathbf{r} - \omega t + \theta). \quad (7.1-54)$$

类似地可以求得

$$\langle \alpha|\hat{E}^2|\alpha\rangle = \left(\frac{\hbar\omega}{2\epsilon_0 V}\right) \{|\alpha|^2 \sin^2(\mathbf{k}\cdot\mathbf{r} - \omega t + \theta) + 1\}. \quad (7.1-55)$$

由此可得均方根偏差

$$\Delta E = \left(\frac{\hbar\omega}{2\epsilon_0 V} \right)^{1/2} \quad (7.1-56)$$

显然 ΔE 与波的振幅无关，也就是与相干态中平均光子数的多少无关。

如果我们将(7.1-54)式与一般的经典的电场波方程

$$E = -E_0 \sin(\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - \omega t + \varphi) \quad (7.1-57)$$

相比较可见，在经典极限下，相干态 $|\alpha\rangle$ 和一系列经典波相当，经典波的相角等于 α 的相角，并且电场振幅 E_0 与 $|\alpha|$ 的关系为

$$E_0 = 2 \left(\frac{\hbar\omega}{2\epsilon_0 V} \right)^{1/2} |\alpha|. \quad (7.1-58)$$

假定我们现在考虑一个被激发到态 $|\alpha\rangle$ 的腔模，并观察一给定点上电场随时间的变化规律，如图7-1所示^[6]。图中给出了三个不同的平均光子数 $|\alpha|^2$ 的情况，三个图中的垂直标度是不相同的，但电场的不确定量都相同，都是垂直宽度为 $2\Delta E$ 的正弦波。由图明显可见，相干态中的平均光子数愈大，相干态的电场就愈来愈接近经典的电磁稳定波，也就是说，这种态与大振幅极限下的经典电磁波具有类似的性质。

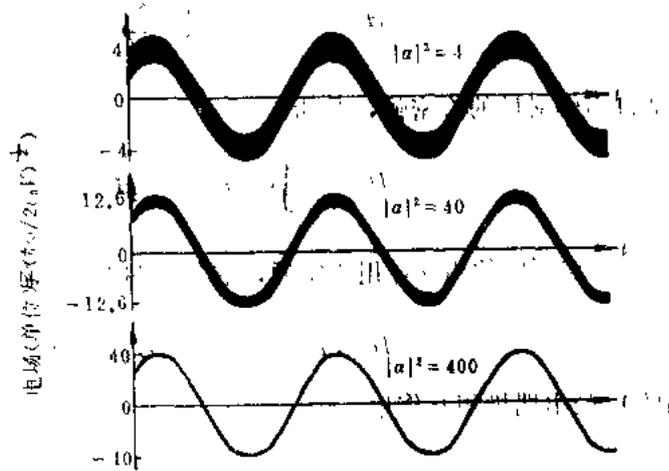


图7-1 在激发到相干态的腔模中，在给定点处电场随时间变化的规律

根据激光理论，在阈值以上激光器一个腔模中的光子数分布^[6]为

$$P_n = \frac{(\bar{n})^n \exp(-\bar{n})}{n!} \quad (\bar{n} \text{ 很大}) \quad (7.1-59)$$

现按相干态 $|\alpha\rangle$ 的定义(7.1-46)式，可求得在态 $|\alpha\rangle$ 中发现 n 个光子的几率为

$$\begin{aligned} P_n &= |\langle n | \alpha \rangle|^2 = \frac{|\alpha|^{2n} \exp(-|\alpha|^2)}{n!} \\ &= \frac{(\bar{n})^n \exp(-\bar{n})}{n!} \end{aligned} \quad (7.1-60)$$

这里已利用了平均光子数 $\bar{n} = \langle \hat{n} | \alpha \rangle = |\alpha|^2$ 的关系。由(7.1-59)式和(7.1-60)式可知，两者都是泊松分布，这表明当激光器工作在阈值以上时，能产生一个腔模的相干态激发。当 \bar{n} 很大时，激光器一个腔模中的光子数分布与相干光的光子数分布相同。

二、原子哈密顿的二次量子化

1. 原子和辐射场系统的哈密顿

·中我们讨论了自由辐射场的量子化,在这种场中没有任何粒子与辐射场发生相互作用。但是一切涉及到光束产生和探测的实验,都要涉及电磁波与原子之间的相互作用,本节就是从全量子的观点给出这种相互作用的基本理论。

因为原子的大小比辐射的波长小得多,可以认为在原子范围内的场的大小是不变的。在这种所谓的电偶极近似下,原子和辐射场整个系统的哈密顿可以写为

$$\hat{H} = \hat{H}_A + \hat{H}_R + \hat{H}_I \quad (7.2-1)$$

式中 \hat{H}_A 是孤立原子的哈密顿,有

$$\hat{H}_A = \sum_j \frac{p_j^2}{2m} - \frac{1}{2} e \sum \varphi(\mathbf{r}_j) + \frac{1}{2} Ze\varphi(0) \quad (7.2-2)$$

\hat{H}_R 是自由辐射场的哈密顿,其为

$$\hat{H}_R = \frac{1}{2} \int (\epsilon_0 \hat{E}_T^2 + \mu_0 \hat{H}^2) dV \quad (7.2-3)$$

\hat{H}_I 是原子与辐射的相互作用哈密顿,它包括四部分贡献,有

$$\hat{H}_I = \hat{H}_{ED} + \hat{H}_{EQ} + \hat{H}_{MD} + \hat{H}_{NL} \quad (7.2-4)$$

其中 \hat{H}_{ED} 是电偶极相互作用,为

$$\hat{H}_{ED} = e \sum \mathbf{r}_j \cdot \hat{E}_T(0) = e\mathbf{D} \cdot \hat{E}_T(0) \quad (7.2-5)$$

$$\mathbf{D} = e \sum \mathbf{r}_j \quad (7.2-6)$$

式中 $\hat{E}_T(0)$ 是表示在原子核处的电场, \mathbf{D} 是原子中所有电子的偶极矩的矢量和。(7.2-4)式中的 \hat{H}_{MD} 是磁偶极相互作用, \hat{H}_{EQ} 是电四极相互作用。 \hat{H}_{MD} 和 \hat{H}_{EQ} 大约是 \hat{H}_{ED} 的1/137,因而只有在电偶极跃迁是禁止的情况下,电四极和磁偶极相互作用才显得重要。 \hat{H}_{NL} 是非线性相互作用哈密顿,它与磁场矢量 $\hat{H}(0)$ 的平方成正比,有

$$\hat{H}_{NL} = \frac{e^2 \mu_0^2}{8m} \sum_j (\hat{H}(0) \times \mathbf{r}_j)^2 \quad (7.2-7)$$

2. 原子哈密顿的二次量子化

从一中讨论的结果我们知道辐射场的哈密顿可以用光子的产生算符 \hat{a}^\dagger 和湮灭算符 \hat{a} 表示。在这里,(7.2-1)式中的辐射场部分 \hat{H}_R 为

$$\hat{H}_R = \sum_k \hbar \omega_k (\hat{a}_k^\dagger \hat{a}_k + \frac{1}{2}) \quad (7.2-8)$$

关于哈密顿的原子部分 H_E ，我们也可以引入产生算符和湮灭算符来表示。设 $|i\rangle$ 是原子哈密顿的一个能量本征态，其本征值为 $\hbar\omega_i$ ，则有

$$\hat{H}_E|i\rangle = \hbar\omega_i|i\rangle, \quad (7.2-9)$$

利用量子力学中的封闭定理

$$\sum_i |i\rangle\langle i| = 1 \quad (7.2-10)$$

(式中 Σ 是对 \hat{H}_E 的所有本征态求和，即既包括束缚态，又包括自由态) 两次，即

$$\hat{H}_E = \sum_i |i\rangle\langle i| \hat{H}_E \sum_j |j\rangle\langle j|, \quad (7.2-11)$$

并利用 \hat{H}_E 的能量本征态的正交性和 (7.2-9) 式，便有

$$\langle i|\hat{H}_E|j\rangle = \hbar\omega_i\delta_{ij} \quad (7.2-12)$$

及

$$\hat{H}_E = \sum_i \hbar\omega_i |i\rangle\langle i| \quad (7.2-13)$$

如果我们考虑一个如同 $|i\rangle\langle j|$ 这样的组合作用于某个原子本征态 $|i\rangle$ 上的效应，利用原子本征态的正交性，则有

$$|i\rangle\langle j|i\rangle = |i\rangle\delta_{ji}. \quad (7.2-14)$$

可见， $|i\rangle\langle j|$ 对原子本征态 $|i\rangle$ 的作用是：如果原来的态是 $|i\rangle$ ，那么 $|i\rangle\langle j|$ 的作用使态 $|i\rangle$ 改变到态 $|j\rangle$ ，否则为零。换言之，我们可以把 $|i\rangle\langle j|$ 看作一个算符，当它作用在处于态 $|j\rangle$ 中的原子时，可以使原子从态 $|j\rangle$ 变到态 $|i\rangle$ 。因而我们可以说算符 $|i\rangle\langle j|$ 湮灭原子态 $|j\rangle$ 并产生原子态 $|i\rangle$ 。

现在我们引入两个类似于光子湮灭算符 a_i 和产生算符 b_i 的算符 \hat{b}_i 和 \hat{b}_i^\dagger ，它们分别是原子态 $|i\rangle$ 的湮灭算符和产生算符，并用符号 \hat{b}_i 、 \hat{b}_i^\dagger 表示 $|i\rangle\langle j|$ ，即

$$\hat{b}_i \hat{b}_i^\dagger = |i\rangle\langle i| \quad (7.2-15)$$

这样，(7.2-13) 式的原子哈密顿可以改写成

$$\hat{H}_E = \sum_i \hbar\omega_i \hat{b}_i^\dagger \hat{b}_i \quad (7.2-16)$$

将原子哈密顿变换到 (7.2-16) 式的形式就称为原子哈密顿的二次量子化 (通常确定能量本征态和本征值的量子力学方法，叫做原子中电子运动的一次量子化)。二次量子化的原子哈密顿对计算原子与辐射场相互作用的系统来说是一种非常有用的形式，它非常类似于 (7.2-8) 式的辐射场部分的哈密顿 H_H 。

3. 电偶极相互作用哈密顿 \hat{H}_{ED} 的二次量子化

类似于 (7.2-11) 式，我们也可以将封闭定理 $\sum_i |i\rangle\langle i| = 1$ 两次应用于原子中所有电子的偶极矩的矢量和 D ，即有

$$D = \sum_i |i\rangle\langle i| D \sum_j |j\rangle\langle j| = \sum_{ij} D_{ij} |i\rangle\langle j|, \quad (7.2-17)$$

式中

$$D_{ij} = \langle i|D|j\rangle, \quad (7.2-18)$$

当考虑到由 (7.2-15) 式所定义的 $\hat{b}_i^\dagger, \hat{b}_i$, 则 (7.2-17) 式可写为

$$D = \sum_{ij} D_{ij} \hat{b}_i^\dagger \hat{b}_j. \quad (7.2-19)$$

现将 (7.2-19) 式代入 \hat{H}_{ED} 的表示式 (7.2-5) 中, 并根据 (7.1-42) 式和 (7.1-44) 式, 以及考虑原子核处 ($r=0$) 的电场为 $E_T(0)$, 则 \hat{H}_{ED} 可表示为

$$\begin{aligned} \hat{H}_{ED} = ie \sum_k \sum_{ij} \left(\frac{\hbar\omega_k}{2\epsilon_0 V} \right)^{1/2} \mathbf{u}_k \cdot \mathbf{D}_{ij} (\hat{a}_k \exp(-i\omega_k t) \\ - \hat{a}_k^\dagger \exp(i\omega_k t)) \hat{b}_i^\dagger \hat{b}_j. \end{aligned} \quad (7.2-20)$$

二次量子化形式的一个好处是很容易图解地表示由电偶极相互作用所允许的各类过程。例如常常会碰到涉及一对原子态 $|1\rangle$ 和 $|2\rangle$ 之间的电偶极跃迁问题, 原子态 $|1\rangle$ 和 $|2\rangle$ 的能量分别为 $\hbar\omega_1$ 和 $\hbar\omega_2$, 因而 (7.2-20) 式中的 i 或 j 可以是 1 或 2, 即有

$$\hat{H}_{ED} = i \sum_k \hbar g_k (\hat{a}_k \exp(-i\omega_k t) - \hat{a}_k^\dagger \exp(i\omega_k t)) (\hat{b}_1^\dagger \hat{b}_2 + \hat{b}_2 \hat{b}_1). \quad (7.2-21)$$

式中

$$\hbar g_k = e \left(\frac{\hbar\omega_k}{2\epsilon_0 V} \right)^{1/2} \mathbf{u}_k \cdot \mathbf{D}_{12}. \quad (7.2-22)$$

这里已利用了 $D_{21} = D_{12}$ 的关系 (对波函数 ψ_1 和 ψ_2 是实数的情况是有效的) 以及考虑了所有 $i=j$ 的项都等于零。如果我们将 (7.2-21) 式展开, 则给出四项, 这四项可以用图 7-2 来表示, 每一个图中的右边表示原子原来的态, 由于电偶极相互作用使之变成的终态表示在左边。假定态 $|2\rangle$ 比态 $|1\rangle$ 有较高的能量, 即 $\hbar\omega_2 > \hbar\omega_1$, 因而当原子吸收一个波矢为 k 的光子时, 伴随着原子从态 $|1\rangle$ 激发到态 $|2\rangle$, 如图中 (b) 所示。相反的过程是, 发射一个光子的同时, 原子从态 $|2\rangle$ 跃迁到态 $|1\rangle$, 如图 (c) 所示。由图 (a) 和图 (d) 所表示的情况不与任何允许的吸收和发射过程相对应, 因为它并不遵守能量守恒原理。可是这种能量不守恒的项却存在于 \hat{H}_{ED} 之中。以后我们将会看到这两项对高阶辐射过程却是贡献的。

图 7-2 表示发生在电偶极相互作用下的四种类型的图解表示。图中波线表示光子; 直线表示原子态; 箭头指向作用点的线相对应于在相互作用中湮灭的一个光子或湮灭的原子态; 箭头离开作用点的线相对应于产生一个光子或产生的原子态。

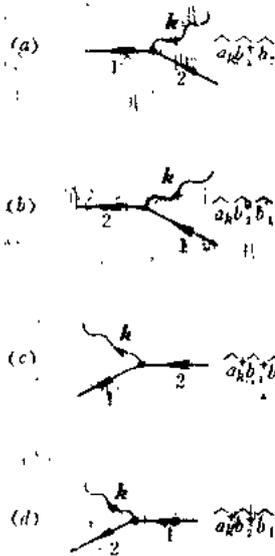


图 7-2 发生在电偶极相互作用下的四种类型的图解表示

三、参量相互作用的量子力学处理

对大多数实际情况来说,第五章中所讨论的参量相互作用用经典理论去处理是合适的。但如何说明即使只有泵浦光作用的情况下,信号波和闲置波仍有有限的输出,以及关于参量过程中的噪声起伏等问题,那就必须利用量子力学的方法进行讨论。

1. 非线性场的哈密顿

我们知道,当所研究的场的频率高于离子共振频率时,只有电子位移引起的电极化需要考虑,离子的贡献可以忽略不计。此处,如果混频场的各种频率都低于电子吸收区,即无耗的情况,那么电极化强度可以表示为电场的单值函数^[7]。这样就有

$$\oint_C d(\mathbf{P} \cdot \mathbf{E}) = 0. \quad (7.3-1)$$

式中 C 是 E_x 、 E_y 、 E_z 空间内的任意闭合路径。因为 $d(\mathbf{P} \cdot \mathbf{E}) = \mathbf{P} \cdot d\mathbf{E} + \mathbf{E} \cdot d\mathbf{P}$, 所以有

$$-\oint_C \mathbf{P} \cdot d\mathbf{E} = \oint_C \mathbf{E} \cdot d\mathbf{P}. \quad (7.3-2)$$

式中 $\oint_C \mathbf{E} \cdot d\mathbf{P}$ 表示电场对电极化所作的功。根据媒质是无耗的假定,要求

$$\oint_C \mathbf{E} \cdot d\mathbf{P} = \text{能量的改变} = 0.$$

从而有

$$\oint_C \mathbf{P} \cdot d\mathbf{E} = 0. \quad (7.3-3)$$

按斯托克斯定理

$$\oint_C \mathbf{P} \cdot d\mathbf{E} = \oint_S (\nabla_E \times \mathbf{P}) \cdot \mathbf{n} dS_E = 0. \quad (7.3-4)$$

式中 ∇_E 表示在电场空间的算子。因为积分路径 C 是任意的,所以

$$\nabla_E \times \mathbf{P} = 0. \quad (7.3-5)$$

由上式可见,一定存在着一个能量密度函数 $U(E)$, 使得

$$\mathbf{P} = -\nabla_E U(E). \quad (7.3-6)$$

式中 $U(E)$ 就是我们所要求的非线性场的哈密顿密度,其展开式应为

$$U(E) = -\frac{\epsilon_0}{2} \chi_{ij} E_i E_j - \frac{2d_{ijk}}{3} E_i E_j E_k + \dots \quad (7.3-7)$$

式中 d_{ijk} 是非线性系数。由(7.3-7)式可得

$$\mathbf{P}_i = -\frac{\partial U(E)}{\partial E_i} = \epsilon_0 \chi_{ij} E_j + 2d_{ijk} E_j E_k + \dots \quad (7.3-8)$$

2. 三波相互作用的哈密顿的量子力学表示

现在我们讨论三个单色场 $E_1(\mathbf{r}, t)$ 、 $E_2(\mathbf{r}, t)$ 和 $E_3(\mathbf{r}, t)$ 的相互作用,它们的频率

分别为 ω_1 、 ω_2 和 ω_3 ，并有 $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ 。按(7.3-7)式，三个场的相互作用哈密顿密度的形式为

$$U = -\frac{2}{3}dE_1E_2E_3. \quad (7.3-9)$$

式中 d 是有效非线性系数。

因为所有的参量放大和振荡的实验都是利用强的泵浦，因此在处理这类问题时，我们可以对泵浦场 E_3 经典地处理，但对信号场(ω_1)和闲置场(ω_2)进行量子化，即利用相应的量子力学算符代替场强 E_1 和 E_2 。

现在我们利用电磁场按简正模展开的(7.1-8)式，并将展开式中的 e_a 和 h_a 分别用 $-p_a(t)/\sqrt{\epsilon}$ 和 $\omega_a q_a(t)/\sqrt{\mu}$ 代替，即令

$$\begin{aligned} e_a(t) &= -\frac{1}{\sqrt{\epsilon}} p_a(t), \\ h_a(t) &= \frac{1}{\sqrt{\mu}} \omega_a q_a(t), \end{aligned} \quad (7.3-10)$$

则由麦克斯韦方程

$$\begin{aligned} \nabla \times \mathbf{E} &= -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t}, \\ \nabla \times \mathbf{H} &= \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t} \end{aligned}$$

以及(7.1-4)、(7.1-1)式，可以求得(7.3-10)式中所定义的 $p_a(t)$ 和 $q_a(t)$ 之间的谐振荡关系。因为

$$\begin{aligned} \nabla \times \nabla \times \mathbf{E} &= \nabla \times \nabla \times \sum e_a(t) \mathbf{E}_a = -\sum e_a(t) \nabla^2 \mathbf{E}_a \\ &= -\mu \frac{\partial}{\partial t} \nabla \times \mathbf{H} = -\mu \frac{\partial}{\partial t} \sum h_a(t) \nabla \times \mathbf{H}_a, \end{aligned}$$

所以有

$$-e_a(t) \nabla^2 \mathbf{E}_a = -\mu \dot{h}_a(t) \nabla \times \mathbf{H}_a.$$

现利用(7.1-1)式和(7.1-4)式后，上式变为

$$e_a(t) = -\frac{\mu}{k_a} \dot{h}_a(t). \quad (7.3-11)$$

当将(7.3-10)式的第一式代入上式后便给出

$$p_a = \dot{q}_a. \quad (7.3-12)$$

类似地可求得

$$\omega_a^2 q_a = -\dot{p}_a. \quad (7.3-13)$$

由(7.3-12)式和(7.3-13)式可见 p_a 和 q_a 之间的关系是描述一种谐振荡的关系。这样，在共振腔内的电磁场 $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$ 和 $\mathbf{H}(\mathbf{r}, t)$ 按简正模展开的(7.1-8)式可以改写为

$$\begin{aligned} \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) &= \sum_a e_a \mathbf{E}_a(\mathbf{r}) = -\sum_a \frac{1}{\sqrt{\epsilon}} p_a(t) \mathbf{E}_a(\mathbf{r}), \\ \mathbf{H}(\mathbf{r}, t) &= \sum_a h_a \mathbf{H}_a(\mathbf{r}) = \sum_a \frac{1}{\sqrt{\mu}} \omega_a q_a(t) \mathbf{H}_a(\mathbf{r}). \end{aligned} \quad (7.3-14)$$

这样，在这里频率为 ω_3 、 ω_1 和 ω_2 的三个场有

$$E_3(\mathbf{r}, t) = E_{30}E_3(\mathbf{r})\cos\omega_3 t \quad (7.3-15)$$

$$\begin{aligned} E_1(\mathbf{r}, t) &= E_1(\mathbf{r}) \frac{1}{\sqrt{\epsilon_1}} p_1(t), \\ &= \frac{1}{\sqrt{\epsilon_1}} i \left(\frac{\hbar\omega_1}{2} \right)^{1/2} [\hat{a}_1^\dagger(t) - \hat{a}_1(t)] E_1(\mathbf{r}), \end{aligned} \quad (7.3-16)$$

$$\begin{aligned} E_2(\mathbf{r}, t) &= E_2(\mathbf{r}) \frac{1}{\sqrt{\epsilon_2}} p_2(t) \\ &= \frac{1}{\sqrt{\epsilon_2}} i \left(\frac{\hbar\omega_2}{2} \right)^{1/2} [\hat{a}_2^\dagger(t) - \hat{a}_2(t)] E_2(\mathbf{r}). \end{aligned} \quad (7.3-17)$$

在以上三式中，泵浦场 E_3 被看作是经典的，而信号场和闲置场被看作是量子化的，并且(7.3-16)式和(7.3-17)式已利用了(7.1-29)式。现将(7.3-15)~(7.3-17)式代入(7.3-9)式并对体积积分，则给出三波相互作用哈密顿为

$$\begin{aligned} H' &= \int_V U d\mathbf{v} = - \int_V \frac{2}{3} dE_1 E_2 E_3 d\mathbf{v} \\ &= - \frac{2}{3} dE_{30} \int_V \frac{1}{\sqrt{\epsilon_1}} p_1(t) E_1(\mathbf{r}) \frac{1}{\sqrt{\epsilon_2}} p_2(t) E_2(\mathbf{r}) \\ &\quad \times E_3(\mathbf{r}) \cos\omega_3 t d\mathbf{v} \\ &= \frac{1}{3} \frac{dE_{30} \sqrt{\omega_1 \omega_2}}{\sqrt{\epsilon_1 \epsilon_2}} \hbar \int_V E_1(\mathbf{r}) E_2(\mathbf{r}) E_3(\mathbf{r}) \cos\omega_3 t \\ &\quad \times (\hat{a}_1^\dagger - \hat{a}_1)(\hat{a}_2^\dagger - \hat{a}_2) d\mathbf{v} \\ &= S \hbar \cos\omega_3 t (\hat{a}_1^\dagger - \hat{a}_1)(\hat{a}_2^\dagger - \hat{a}_2). \end{aligned} \quad (7.3-18)$$

式中 S 是定义的一个参数，它与泵浦场的场振幅 E_{30} 成正比，有

$$S = \frac{dE_{30} \sqrt{\omega_1 \omega_2}}{3\sqrt{\epsilon_1 \epsilon_2}} \int_V E_1(\mathbf{r}) E_2(\mathbf{r}) E_3(\mathbf{r}) d\mathbf{v}. \quad (7.3-19)$$

当再考虑到辐射场的未微扰哈密顿(7.2-8)式，则给出由三个波场所组成的体系的总哈密顿为

$$\begin{aligned} H &= \sum \hbar\omega_i (\hat{a}_i^\dagger \hat{a}_i + \frac{1}{2}) \\ &\quad + S \hbar \cos\omega_3 t (\hat{a}_1^\dagger - \hat{a}_1)(\hat{a}_2^\dagger - \hat{a}_2). \end{aligned} \quad (7.3-20)$$

等式右边第一项是未微扰($d=0$)哈密顿，第二项是相互作用哈密顿。

3. 产生算符和湮灭算符的运动方程

根据量子力学，在海森堡表象中任意算符 \hat{A} 的运动方程为

$$\frac{d\hat{A}}{dt} = - \frac{i}{\hbar} [\hat{A}, \hat{H}]. \quad (7.3-21)$$

现在将上式应用于产生算符 \hat{a}^\dagger 和湮灭算符 \hat{a} ，并利用产生算符和湮灭算符之间的对易关系

$$\left. \begin{aligned} [\hat{a}_1, \hat{a}_m] = [\hat{a}_1^\dagger, \hat{a}_m^\dagger] = 0, \\ [\hat{a}_1, \hat{a}_m^\dagger] = \delta_{1m}, \end{aligned} \right\} \quad (7.3-22)$$

则有

$$\begin{aligned} \frac{d\hat{a}_1^\dagger}{dt} &= -\frac{i}{\hbar} \left[\hat{a}_1^\dagger, \sum_i \hbar \omega_i \left(\hat{a}_i^\dagger \hat{a}_i + \frac{1}{2} \right) \right] - \frac{i}{\hbar} [\hat{a}_1^\dagger, \hat{H}'] \\ &= -\frac{i}{\hbar} [\hat{a}_1^\dagger, \hbar \omega_1 \hat{a}_1^\dagger \hat{a}_1] - \frac{i}{\hbar} [\hat{a}_1^\dagger, S \hbar \cos \omega_3 t (\hat{a}_1^\dagger - \hat{a}_1) (\hat{a}_2^\dagger - \hat{a}_2)] \\ &= i\omega_1 \hat{a}_1^\dagger - \frac{iS}{2} [\exp(i\omega_3 t) + \exp(-i\omega_3 t)] (\hat{a}_2^\dagger - \hat{a}_2). \end{aligned} \quad (7.3-23)$$

同理可得

$$\frac{d\hat{a}_2}{dt} = -i\omega_2 \hat{a}_2 + \frac{iS}{2} [\exp(i\omega_3 t) + \exp(-i\omega_3 t)] (\hat{a}_1^\dagger - \hat{a}_1). \quad (7.3-24)$$

如果 $S=0$ ，则由以上两式给出

$$\left. \begin{aligned} \hat{a}_1^\dagger(t) &= \hat{a}_1^\dagger(0) \exp(i\omega_1 t), \\ \hat{a}_2(t) &= \hat{a}_2(0) \exp(-i\omega_2 t). \end{aligned} \right\} \quad (7.3-25)$$

由此可见，只要 $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ ，(7.3-24) 式右边的 $\exp(i\omega_3 t) \hat{a}_2$ 项就成为可以产生频率为 ω_1 的激励项。如果我们略去式中不满足 $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ 的那些激励项（也称为非同步的那些激励项），则有

$$\frac{d\hat{a}_1^\dagger}{dt} = i\omega_1 \hat{a}_1^\dagger + i \frac{S}{2} \hat{a}_2 \exp(i\omega_3 t), \quad (7.3-26)$$

$$\frac{d\hat{a}_2}{dt} = -i\omega_2 \hat{a}_2 - i \frac{S}{2} \hat{a}_1^\dagger \exp(-i\omega_3 t). \quad (7.3-27)$$

现将 (7.3-26) 式对 t 微分并经过简单的运算可得 \hat{a}_1^\dagger 的微分方程为

$$\frac{d^2 \hat{a}_1^\dagger}{dt^2} - 2i\omega_1 \frac{d\hat{a}_1^\dagger}{dt} - \left(\frac{S^2}{4} + \omega_1^2 \right) \hat{a}_1^\dagger = 0. \quad (7.3-28)$$

同理可得 \hat{a}_2 的微分方程为

$$\frac{d^2 \hat{a}_2}{dt^2} + 2i\omega_2 \frac{d\hat{a}_2}{dt} - \left(\frac{S^2}{4} + \omega_2^2 \right) \hat{a}_2 = 0. \quad (7.3-29)$$

很容易求得 (7.3-28) 式的解为

$$\hat{a}_1^\dagger(t) = \frac{i \left(\frac{S^2}{4} + \omega_1^2 \right)^{1/2}}{\frac{S}{2} i} \exp(i\omega_1 t) \hat{a}_1^\dagger(0) \sin \left(t \frac{S}{2} t - \varphi \right)$$

$$\begin{aligned}
 & -i\omega_1 \hat{a}_1^\dagger(0) \frac{\exp(i\omega_1 t)}{S} \frac{1}{i} \sin\left(i \frac{S}{2} t\right) \\
 & + i \frac{S}{2} \hat{a}_2(0) \frac{\exp(i\omega_1 t)}{S} \frac{1}{i} \sin\left(i \frac{S}{2} t\right). \quad (7.3-30)
 \end{aligned}$$

在初始条件 $t=0$ 时 $\hat{a}_1^\dagger(t) = \hat{a}_1^\dagger(0)$, 代入上式后给出

$$\sin \varphi = -\frac{\frac{S}{2}}{\left(\frac{S^2}{4} + \omega_1^2\right)^{1/2}}, \quad (7.3-31)$$

$$\cos \varphi = \left(\frac{\omega_1}{\frac{S^2}{4} + \omega_1^2}\right)^{1/2}. \quad (7.3-32)$$

现将 (7.3-30) 式中的 $\sin\left(i \frac{S}{2} t - \varphi\right)$ 展开为 $\sin i \frac{S}{2} t \cos \varphi - \cos i \frac{S}{2} t \sin \varphi$, 并将 (7.3-31) 式和 (7.3-32) 式代入, 整理后便得到

$$\hat{a}_1^\dagger(t) = \left[\hat{a}_1^\dagger(0) \operatorname{ch} \frac{St}{2} + i \hat{a}_2(0) \operatorname{sh} \frac{St}{2} \right] \exp(i\omega_1 t), \quad (7.3-33)$$

利用相同的步骤和方法可以求得

$$\hat{a}_2(t) = \left[\hat{a}_2(0) \operatorname{ch} \frac{St}{2} - i \hat{a}_1^\dagger(0) \operatorname{sh} \frac{St}{2} \right] \exp(-i\omega_2 t), \quad (7.3-34)$$

根据 (7.1-34) 式, 算符 $\hat{a}_1^\dagger(t) \hat{a}_1(t)$ 的期望值 $\langle \psi | \hat{a}_1^\dagger(t) \hat{a}_1(t) | \psi \rangle$ 等于第 1 个模中的量子数 n_1 。在这里, 我们感兴趣的是频率为 ω_1 和 ω_2 的量子数。因此, 我们需要得到算符 $\hat{a}_1^\dagger(t)$, $\hat{a}_1(t)$ 和 $\hat{a}_2^\dagger(t)$, $\hat{a}_2(t)$ 。这可以直接从 (7.3-33) 式和 (7.3-34) 式相乘求得, 即

$$\begin{aligned}
 \hat{a}_1^\dagger(t) \hat{a}_1(t) &= \left[\hat{a}_1^\dagger(0) \operatorname{ch} \frac{St}{2} + i \hat{a}_2(0) \operatorname{sh} \frac{St}{2} \right] \\
 &\quad \times \left[\hat{a}_1(0) \operatorname{ch} \frac{St}{2} - i \hat{a}_1^\dagger(0) \operatorname{sh} \frac{St}{2} \right].
 \end{aligned}$$

再利用对易关系 (7.3-22) 式, 则上式可变为

$$\begin{aligned}
 \hat{a}_1^\dagger(t) \hat{a}_1(t) &= \hat{a}_1^\dagger(0) \hat{a}_1(0) \operatorname{ch}^2 \frac{St}{2} \\
 &\quad + [1 + \hat{a}_1^\dagger(0) \hat{a}_2(0)] \operatorname{sh}^2 \frac{St}{2} \\
 &\quad - \frac{i}{2} \operatorname{sh} St [\hat{a}_1^\dagger(0) \hat{a}_2^\dagger(0) - \hat{a}_1(0) \hat{a}_2(0)]. \quad (7.3-35)
 \end{aligned}$$

同理可得

$$\hat{a}_2^\dagger(t) \hat{a}_2(t) = \hat{a}_2^\dagger(0) \hat{a}_2(0) \operatorname{ch}^2 \frac{St}{2} + [1 + \hat{a}_1^\dagger(0) \hat{a}_1(0)] \operatorname{sh}^2 \frac{St}{2}$$

$$+ \frac{t}{2} \text{sh} St [\hat{a}_1^\dagger(0) \hat{a}_1^\dagger(0) - \hat{a}_1(0) \hat{a}_2(0)], \quad (7.3-36)$$

假定 $t=0$ 时波场 E_1 和 E_2 所组成的系统的状态波函数为 $\psi(0)$, 频率为 ω_1 和 ω_2 的场的量子数为 n_{10} 和 n_{20} , 相应的状态波函数为 $|n_{10}\rangle$ 和 $|n_{20}\rangle$, 因而有

$$\psi(0) = |n_{10}, n_{20}\rangle = |n_{10}\rangle |n_{20}\rangle. \quad (7.3-37)$$

式中 $|n_{10}\rangle$ 也就是相应于能量为 $\hbar\omega_1(n_{10} + \frac{1}{2})$ 的谐振子的波函数。因为在海森堡表象中, 任意时刻的波函数 $\psi(t)$ 等于初始时刻的波函数 $\psi(0)$, 所以任何时刻频率为 ω_1 和 ω_2 的光子数为

$$\begin{aligned} \langle n_1(t) \rangle &= \langle \psi(t) | \hat{a}_1^\dagger(t) \hat{a}_1(t) | \psi(t) \rangle \\ &= \langle \psi(0) | \hat{a}_1^\dagger(t) \hat{a}_1(t) | \psi(0) \rangle, \\ \langle n_2(t) \rangle &= \langle \psi(t) | \hat{a}_2^\dagger(t) \hat{a}_2(t) | \psi(t) \rangle \\ &= \langle \psi(0) | \hat{a}_2^\dagger(t) \hat{a}_2(t) | \psi(0) \rangle. \end{aligned} \quad (7.3-38)$$

现利用(7.1-35)~(7.1-37)式, 在这里有

$$\begin{aligned} \hat{a}_1^\dagger |n_{10}\rangle &= (n_{10} + 1)^{1/2} |n_{10} + 1\rangle, \\ \hat{a}_1 |n_{10}\rangle &= (n_{10})^{1/2} |n_{10} - 1\rangle, \\ \hat{a}_1^\dagger \hat{a}_1 |n_{10}\rangle &= n_{10} |n_{10}\rangle, \end{aligned}$$

并利用正交性条件

$$\langle n_1 + l | n_1 + k \rangle = \delta_{lk},$$

可以得到

$$\langle n_1(t) \rangle = n_{10} \text{ch}^2 \frac{St}{2} + (1 + n_{20}) \text{sh}^2 \frac{St}{2} \quad (7.3-39)$$

和

$$n_2(t) = n_{20} \text{ch}^2 \frac{St}{2} + (1 + n_{10}) \text{sh}^2 \frac{St}{2}. \quad (7.3-40)$$

从推导(7.3-39)式和(7.3-40)式的过程中, 我们清楚地看到在等式右边因子 $(1 + n_{20})$ 和 $(1 + n_{10})$ 中的 1 是由于产生算符 \hat{a}_1^\dagger 和湮灭算符 \hat{a}_1 之间的非对易性引起的, 因而“1”这一项的起因只有量子力学才能解释。这时, 即使没有输入, 即 $n_{10} = 0$ 和 $n_{20} = 0$, 但由(7.3-39)式和(7.3-40)式可见, 仍有一有限的功率输出。这表明在没有任何输入的情况下非线性光学晶体在泵浦波 (ω_3) 的照射下仍能自发地辐射频率为 ω_1 和 ω_2 的波, 这时有

$$\begin{aligned} \omega_1 + \omega_2 &= \omega_3, \\ \mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 &= \mathbf{k}_3. \end{aligned}$$

这种现象称为自发参量荧光。并且这是一种噪声项。

如果我们要求一个参量放大器的噪声输出功率的表示式, 我们可以只考虑仅有一个频率为 ω_1 的输入, 即 $n_{20} = 0$, 并对于 $St \gg 1$ 的情况来说有

$$\text{sh}^2 \frac{St}{2} = \frac{1}{4} \exp(St) .$$

当令

$$\frac{1}{4} \exp(St) = \kappa ,$$

则按 (7.3-38) 式有

$$\langle n_1(t) \rangle = n_{10} \frac{1}{4} \exp(St) + \frac{1}{4} \exp(St) = (n_{10} + 1) \kappa . \quad (7.3-41)$$

这关系表明信号增益为 κ , 同时输出端的噪声光子数也为 κ 。如再假定积分时间为 $T \approx 1/df$, 那么输出的噪声功率为 $\kappa h f df$, 由此可得有效输入噪声为

$$N_{\text{输入}} = \frac{\kappa h f df}{\kappa} = h f df .$$

这结果说明参量放大器的输入噪声与理想的激光放大器的输入噪声^[8]是一样的。

四、一阶电极化率的全量子理论

1. 薛定谔表象下的波方程

当研究原子系统与辐射场的相互作用时, 描述原子状态的基本方程是与时间有关的波方程

$$\hat{H} \psi(t) = i \hbar \frac{\partial \psi(t)}{\partial t} . \quad (7.4-1)$$

在电偶极近似下, 有

$$(\hat{H}_L + \hat{H}_{LD}(t)) \psi(t) = i \hbar \frac{\partial \psi(t)}{\partial t} . \quad (7.4-2)$$

此式已利用了关系 $\hat{H} = \hat{H}_E + \hat{H}_{ED}(t)$ 。因考虑到由于辐射场的电场 \hat{E}_r 是时间的函数, 故电偶极相互作用 $\hat{H}_{ED}(t)$ 也是时间的函数, 而上式中的哈密顿的最后一项属原子的部分, 与时间是无关的。由量子力学可知, 这种情况既不属于薛定谔表象, 也不属于海森堡表象, 而是一种混合表象。下面我们将通过一些运算使 (7.4-2) 式变到薛定谔表象。

假定有一个新的波函数 $\phi(t)$, 使得它与波函数 $\psi(t)$ 有如下的关系:

$$\phi(t) = \exp(-i \hat{H}_R t / \hbar) \psi(t) . \quad (7.4-3)$$

式中 \hat{H}_R 就是 (7.2-8) 式所给的辐射场的哈密顿。将上式代入 (7.4-2) 式后有

$$\begin{aligned} & (\hat{H}_E + \hat{H}_{ED}) \exp(i \hat{H}_R t / \hbar) \phi(t) \\ & = i \hbar \exp(i \hat{H}_R t / \hbar) \left\{ (i \hat{H}_R / \hbar) \phi(t) + \frac{\partial \phi(t)}{\partial t} \right\} . \end{aligned} \quad (7.4-4)$$

将两边用 $\exp(-i\hat{H}_R t/\hbar)$ 相乘, 并考虑到 \hat{H}_L 和 \hat{H}_R 是可对易的, 则得到

$$\begin{aligned} & \{\hat{H}_E + \hat{H}_R + \exp(-i\hat{H}_R t/\hbar)\hat{H}_{ED}\exp(i\hat{H}_R t/\hbar)\}\phi(t) \\ & = i\hbar \frac{\partial\phi(t)}{\partial t}. \end{aligned} \quad (7.4-5)$$

现利用对易关系

$$[\hat{n}, \hat{a}] = -\hat{a} \quad (7.4-6)$$

和

$$[\hat{n}, \hat{a}^\dagger] = \hat{a}^\dagger \quad (7.4-7)$$

(式中 \hat{n} 是数算符, \hat{a} 和 \hat{a}^\dagger 分别是任何谐振子的湮灭算符和产生算符), 可以证明

$$\hat{a}\exp(i\omega\hat{a}^\dagger\hat{a}t) = \exp\{i\omega(\hat{a}^\dagger\hat{a}+1)t\}\hat{a} \quad (7.4-8)$$

和

$$\hat{a}^\dagger\exp(i\omega\hat{a}^\dagger\hat{a}t) = \exp\{i\omega(\hat{a}^\dagger\hat{a}-1)t\}\hat{a}^\dagger. \quad (7.4-9)$$

如将辐射场的哈密顿(7.2-8)式和(7.2-20)式的 \hat{H}_{ED} 代入(7.4-5)式左边大括号中的第三项, 则有

$$\begin{aligned} & \exp(-i\hat{H}_R t/\hbar)\hat{H}_{ED}(t)\exp(i\hat{H}_R t/\hbar) \\ & = \exp\left[-i\sum_{\mathbf{k}'}\hbar\omega_{\mathbf{k}'}\left(\hat{a}_{\mathbf{k}'}^\dagger\hat{a}_{\mathbf{k}'} + \frac{1}{2}\right)t/\hbar\right]\hat{H}_{ED}(t)\exp\left[i\sum_{\mathbf{k}'}\hbar\omega_{\mathbf{k}'}\left(\hat{a}_{\mathbf{k}'}^\dagger\hat{a}_{\mathbf{k}'} + \frac{1}{2}\right)t/\hbar\right] \\ & = \exp(-i\sum_{\mathbf{k}'}\omega_{\mathbf{k}'}(\hat{a}_{\mathbf{k}'}^\dagger\hat{a}_{\mathbf{k}'}t))\hat{H}_{ED}(t)\exp\left[i\sum_{\mathbf{k}'}\omega_{\mathbf{k}'}(\hat{a}_{\mathbf{k}'}^\dagger\hat{a}_{\mathbf{k}'}t)\right] \\ & = \exp\left[-i\sum_{\mathbf{k}'}\omega_{\mathbf{k}'}(\hat{a}_{\mathbf{k}'}^\dagger\hat{a}_{\mathbf{k}'}t)\right]\left\{ie\sum_{\mathbf{k}}\sum_{ij}\left(\frac{\hbar\omega_{\mathbf{k}}}{2\varepsilon_0V}\right)^{1/2}\mathbf{u}_{\mathbf{k}}\cdot\mathbf{D}_{ij}\mathbf{u}_{\mathbf{k}}\exp(-i\omega_{\mathbf{k}}t)\right. \\ & \quad \left.-\hat{a}_{\mathbf{k}}\exp(i\omega_{\mathbf{k}}t)\right\}\hat{b}_i^\dagger\hat{b}_j\exp\left[i\sum_{\mathbf{k}'}\omega_{\mathbf{k}'}(\hat{a}_{\mathbf{k}'}^\dagger\hat{a}_{\mathbf{k}'}t)\right] \\ & = \exp\left[-i\sum_{\mathbf{k}'}\omega_{\mathbf{k}'}(\hat{a}_{\mathbf{k}'}^\dagger\hat{a}_{\mathbf{k}'}t)\right]\left[ie\sum_{\mathbf{k}}\sum_{ij}\left(\frac{\hbar\omega_{\mathbf{k}}}{2\varepsilon_0V}\right)^{1/2}\mathbf{u}_{\mathbf{k}}\cdot\mathbf{D}_{ij}\right. \\ & \quad \times\left\{\exp(-i\omega_{\mathbf{k}}t)\exp\left(i\sum_{\mathbf{k}'}\omega_{\mathbf{k}'}(\hat{a}_{\mathbf{k}'}^\dagger\hat{a}_{\mathbf{k}'}t)\right)\exp(i\omega_{\mathbf{k}}t)\hat{a}_{\mathbf{k}}\right. \\ & \quad \left.-\exp(i\omega_{\mathbf{k}}t)\exp\left(i\sum_{\mathbf{k}'}\omega_{\mathbf{k}'}(\hat{a}_{\mathbf{k}'}^\dagger\hat{a}_{\mathbf{k}'}t)\right)\exp(-i\omega_{\mathbf{k}}t)\hat{a}_{\mathbf{k}}^\dagger\right\}\hat{b}_i^\dagger\hat{b}_j\left. \right] \\ & = ie\sum_{\mathbf{k}ij}\left(\frac{\hbar\omega_{\mathbf{k}}}{2\varepsilon_0V}\right)^{1/2}\mathbf{u}_{\mathbf{k}}\cdot\mathbf{D}_{ij}(\hat{a}_{\mathbf{k}}-\hat{a}_{\mathbf{k}}^\dagger)\hat{b}_i^\dagger\hat{b}_j. \end{aligned} \quad (7.4-10)$$

在得到上式时, 已利用了(7.4-8)式和(7.4-9)式。现比较(7.4-10)式和(7.2-21)式可见, (7.4-10)式就是(7.2-20)式在 $t=0$ 时的 $\hat{H}_{ED}(0)$ 。将(7.4-10)式代入(7.4-5)式后, 便给出波方程为

$$(\hat{H}_K + \hat{H}_R + \hat{H}_{ED})\phi(t) = i\hbar \frac{\partial \phi(t)}{\partial t} \quad (7.4-11)$$

注意，(7.4-11)式中的 \hat{H}_{ED} 已与时间无关。这样式中的各项哈密顿都与时间无关，因此现在已完全变成在薛定谔表象中的问题。

对总的相互作用哈密顿 \hat{H}_I 来说，也可以作类似的变换，所得波方程与(7.4-11)式相似，只是用 $t=0$ 时的 \hat{H}_I 代替 \hat{H}_{ED} 即可^[10]。但这里只讨论电偶极相互作用的情况。

假定我们现在讨论的是一个二能级系统，相应的原子态为 $|1\rangle$ 和 $|2\rangle$ ，它们之间的能量差为 $\hbar\omega_0$ ，并假定较低态的能量为零，那么原子哈密顿 \hat{H}_E 按(7.2-16)式有

$$\hat{H}_E = \hbar\omega_0 \hat{b}_2^\dagger \hat{b}_2 \quad (7.4-12)$$

如果定义两个跃迁算符 $\hat{\pi}^\dagger$ 和 $\hat{\pi}$ 为

$$\hat{\pi}^\dagger = \hat{b}_2^\dagger \hat{b}_1 = |2\rangle\langle 1|, \quad (7.4-13)$$

$$\hat{\pi} = \hat{b}_1^\dagger \hat{b}_2 = |1\rangle\langle 2|, \quad (7.4-14)$$

这表示算符 $\hat{\pi}^\dagger$ 使原子从基态跃迁到激发态，而算符 $\hat{\pi}$ 使原子作相反的跃迁，则根据 $\hat{\pi}^\dagger$ 和 $\hat{\pi}$ 的定义，很容易得到如下的关系，即

$$\hat{\pi}^\dagger \hat{\pi} = |2\rangle\langle 1|1\rangle\langle 2| = \hat{b}_2^\dagger \hat{b}_2, \quad (7.4-15)$$

$$\hat{\pi} \hat{\pi}^\dagger = \hat{b}_1 \hat{b}_1, \quad (7.4-16)$$

由此(7.4-12)式可改写为

$$\hat{H}_E = \hbar\omega_0 \hat{\pi}^\dagger \hat{\pi} \quad (7.4-17)$$

同样，电偶极矩的二次量子化形式也可由(7.2-19)式的

$$\mathbf{D} = \mathbf{D}_{12} (\hat{b}_1^\dagger \hat{b}_2 + \hat{b}_2^\dagger \hat{b}_1)$$

变为

$$\mathbf{D} = \mathbf{D}_{12} (\hat{\pi} + \hat{\pi}^\dagger) \quad (7.4-18)$$

这样，按(7.4-10)式，电偶极相互作用哈密顿变为

$$\hat{H}_{ED} = i \sum_{\mathbf{k}} \hbar g_{\mathbf{k}} (\hat{a}_{\mathbf{k}} - \hat{a}_{\mathbf{k}}^\dagger) (\hat{\pi}^\dagger + \hat{\pi}) \quad (7.4-19)$$

式中 $g_{\mathbf{k}}$ 的表示式见(7.2-22)式。将上式两个小括号的乘积展开所得四项的物理过程就是由图7-2给出的四个图所示的过程。

组合(7.4-17)~(7.4-19)式，我们得到二能级原子与辐射场相互作用的总的哈密顿为

$$\begin{aligned} \hat{H} &= \hat{H}_E + \hat{H}_K + \hat{H}_{ED} \\ &= \hbar\omega_0 \hat{\pi}^\dagger \hat{\pi} + \sum_{\mathbf{k}} \hbar\omega_{\mathbf{k}} \hat{a}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{a}_{\mathbf{k}} + i \sum_{\mathbf{k}} \hbar g_{\mathbf{k}} (\hat{a}_{\mathbf{k}} - \hat{a}_{\mathbf{k}}^\dagger) (\hat{\pi}^\dagger + \hat{\pi}) \end{aligned} \quad (7.4-20)$$

注意，这里已将 \hat{H}_R 中的零点能略去(因为在任何实验中进行实际测量时，只能测量到电磁场总能量的改变)。要指出的是，(7.4-20)式这种形式对计算辐射场与二能级原子相互作用以至了解其更复杂的性质是特别方便的。

2. 二能级原子的一阶电极化率表示式

辐射与二能级原子相互作用的结果，使得原子在两个原子态之间发生跃迁，这对原子系统的电极化率是有贡献的。下面我们将利用(7.4-20)式更严格地去计算理想原子气体的电极化率。在这里不象在经典和半经典理论中那样需要唯象地引入自发发射阻尼的效应。

现在先考虑放在腔内的一个原子的系统，其哈密顿就是由(7.4-20)式所给出的。如果在哈密顿中不存在 \hat{H}_{ED} ，那么腔的系统的能级图如图7-3所示，图中表示出外界入射光束与放在腔内的原子相互作用中的三个基本频率分量，即腔模频率 ω_k 、原子激发频率 ω_0 和入射光束频率 ω 。由于辐射场与原子系统实际上存在着电偶极相互作用，在图中我们用虚线连接原子激发态与辐射态以表示它们之间的耦合。

由图7-3可见，如果不考虑电偶极相互作用，以及入射光不发生散射，则入射光束将无衰减地通过腔。

如果考虑电偶极相互作用 \hat{H}_{ED} ，并只考虑相互作用项中的能量守恒项，即对应于图7-2中的图(b)和图(c)的过程，那么哈密顿变为

$$\begin{aligned} \hat{H} = & \hbar\omega_0 \hat{\pi}^\dagger \hat{\pi} + \sum_k \hbar\omega_k \hat{a}_k^\dagger \hat{a}_k \\ & + i \sum_k \hbar g_k (\hat{\pi}^\dagger \hat{a}_k - \hat{a}_k^\dagger \hat{\pi}) . \end{aligned} \quad (7.4-21)$$

应该明确，我们考虑电偶极相互作用 \hat{H}_{ED} ，也就是要考虑原子与入射光束的耦合以及原子与所有腔模之间的耦合。显然如果只考虑前一种耦合，那么当入射光束的频率 ω 恰好等于原子激发频率 ω_0 时，便会导致入射光束的衰减。而 \hat{H}_{ED} 的后一耦合作用就是要考虑自发发射阻尼。如果我们先不考虑入射光的存在，这时，耦合的原子-辐射系统的本征态就是原子激发和腔模的混合态。原则上讲，每一个腔模与原子激发都有耦合，但事实上只有腔模频率 ω_k 接近原子激发频率 ω_0 的那些腔模，才与原子激发耦合较强。原子激发和腔模的混合态 $|i\rangle$ 使(7.4-21)式的哈密顿对角化，并可写为

$$\hat{H}|i\rangle = \hbar\lambda_i |i\rangle, \quad (7.4-22)$$

式中 $\hbar\lambda_i$ 是相应于混合态 $|i\rangle$ 的能量本征值。

在引入混合态的概念以后，如果有一束外来的光束入射到腔系统中，则我们可以认为这束外来光束并不与频率 ω_0 处的单个窄的原子跃迁相作用，而是与覆盖一个频率范围的一组混合激发态 $|i\rangle$ 相作用。因而每一个激发态 $|i\rangle$ 对入射光束的衰减都有贡献，而且衰减随频率的变化关系，就是由被讨论的原子跃迁的自然吸收线型所确定。入射光和对角化后的腔系统之间的相互作用如图7-4所示。从图中显然可见，只有能量 $\hbar\lambda_i$ 接近 $\hbar\omega$ 的那些混合态才与光束有显著的相互作用。

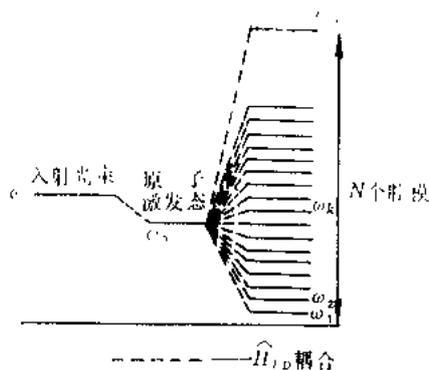


图 7-3 外界入射光束与放在腔内原子相互作用的三个基本频率分量

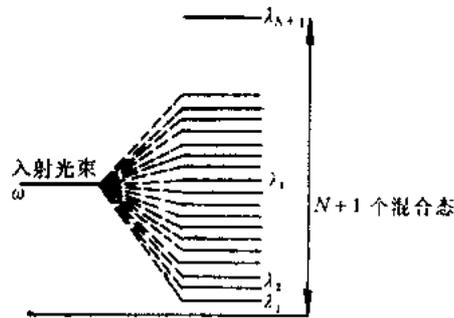


图 7-4 原子激发态与腔模被对角化到原子-辐射混合态 \$|i\rangle\$ 的情况

在引入原子-辐射混合态的概念以后，在腔中原子的电极化率便可以采用将系统基态（这是原子在态 1、而辐射场没有光子被激发的一种混合态）与所有混合激发态 \$|i\rangle\$ 之间的跃迁所引起的贡献加起来的方法来求得。按定义，混合态是 (7.4-21) 式哈密顿的本征态，这些态除与入射光耦合外，不再需要考虑辐射阻尼的影响，因而这样一组混合态的正确的电极化率表示式为

$$\chi^{(1)}(\omega) = \frac{ne^2}{3\epsilon_0\hbar} \sum_i |D_{1i}|^2 \left\{ \frac{1}{\lambda_i - \omega} + \frac{1}{\lambda_i + \omega} \right\}. \quad (7.4-23)$$

这个表示式由 (2.5-1) 引来，并考虑到所讨论的是各向同性的气体，在热平衡条件下原子都处于基态，以及气体分子的无规则运动的角平均效应（表现在因子中出现的 \$1/3\$ 上）。

假定腔模数很大但是为有限的，设为 \$N\$。当然，实际上 \$N\$ 是无限的，因而必须使 \$N\$ 在最后的计算中趋于无穷。现在我们可以将 (7.4-21) 式的哈密顿用如下的有限维矩阵的乘积

$$\begin{aligned} \hat{H} = & \begin{pmatrix} \omega_0 & ig_1 & ig_2 & \cdots & ig_N & \vdots \\ -ig_1 & \omega_1 & & & 0 & \vdots \\ -ig_2 & & \omega_2 & & & \vdots \\ \vdots & & & \ddots & & \vdots \\ -ig_N & & 0 & & \omega_N & \vdots \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \hat{\pi} \\ \hat{a}_1 \\ \hat{a}_2 \\ \vdots \\ \hat{a}_N \end{pmatrix} \\ = & \hat{\mathbf{a}}^\dagger (\boldsymbol{\omega} + \mathbf{g}) \hat{\mathbf{a}} \end{aligned} \quad (7.4-24)$$

表示。式中 \$\hat{\mathbf{a}}^\dagger\$ 是产生算符的列矩阵，\$\hat{\mathbf{a}}\$ 是湮灭算符的行矩阵，\$\boldsymbol{\omega}\$ 是一个方阵的对角部分，而 \$\mathbf{g}\$ 是该方阵的非对角部分。

很容易看出方阵 \$\boldsymbol{\omega} + \mathbf{g}\$ 是厄米的，我们可以利用一个么正变换使之对角化，即有

$$\mathbf{U}(\boldsymbol{\omega} + \mathbf{g})\mathbf{U}^{-1} = \boldsymbol{\lambda}. \quad (7.4-25)$$

式中 \$\mathbf{U}\$ 是待定的么正矩阵，\$\boldsymbol{\lambda}\$ 是一个对角矩阵，其元素是 (7.4-22) 式所定义的 \$N+1\$ 个混合

激发态的本征值。现用 U^{-1} 和 U 分别左乘和右乘(7.4-25)式并代入(7.4-24)式,则有

$$\hat{H} = \hat{h}\hat{a}^\dagger U^{-1} \lambda U \hat{a} \quad (7.4-26)$$

令

$$\hat{a}^\dagger U^{-1} = \hat{\mu}^\dagger \quad (7.4-27)$$

(式中 $\hat{\mu}^\dagger$ 是一个列矩阵, $\hat{\mu}^\dagger$ 对应于混合态的产生算符), 相应地有

$$U \hat{a} = \hat{\mu}, \quad (7.4-28)$$

式中 $\hat{\mu}$ 是一个行矩阵形式的算符, 它对应于混合态的湮灭算符。由(7.4-27)式有

$$\hat{a}^\dagger = \hat{\mu}^\dagger U, \quad (7.4-29)$$

并由(7.4-24)式可知 \hat{a}^\dagger 中第一个元素是 $\hat{\pi}^\dagger$, 所以有

$$\hat{\pi}^\dagger = \sum_j \hat{\mu}_j^\dagger U_{j1}. \quad (7.4-30)$$

另外, 按(7.4-18)式我们计算矩阵元 D_{i1} 有

$$\begin{aligned} D_{i1} &= \langle i | \mathbf{D} | 1 \rangle \\ &= \langle i | \mathbf{D}_{12} (\hat{\pi}^\dagger + \hat{\pi}) | 1 \rangle \\ &= \mathbf{D}_{12} \langle i | \hat{\pi}^\dagger | 1 \rangle. \end{aligned} \quad (7.4-31)$$

因为 $\hat{\pi} | 1 \rangle = 0$ 。现将(7.4-30)式的 $\hat{\pi}^\dagger$ 代入上式, 并利用混合态 $|i\rangle$ 的正交性, 则可得

$$\begin{aligned} D_{i1} &= \mathbf{D}_{12} \langle i | \sum_j \hat{\mu}_j^\dagger U_{j1} | 1 \rangle \\ &= \mathbf{D}_{12} U_{i1}. \end{aligned} \quad (7.4-32)$$

在求得上式时已利用了混合态的产生算符 $\hat{\mu}_i^\dagger$ 的作用关系

$$|i\rangle = \hat{\mu}_i^\dagger | 1 \rangle. \quad (7.4-33)$$

现将(7.4-32)式代入(7.4-23)式, 则一阶电极化率 $\chi^{(1)}(\omega)$ 可以写为

$$\chi^{(1)}(\omega) = \frac{ne^2}{3\epsilon_0\hbar} |\mathbf{D}_{12}|^2 \sum_i |U_{i1}|^2 \left\{ \frac{1}{\lambda_i - \omega} + \frac{1}{\lambda_i + \omega} \right\}. \quad (7.4-34)$$

式中 U_{i1} 和 λ_i 都是未知量, 我们可通过下面的运算将未知量用已知量 ω 和 g 代替。现用么正矩阵 U 右乘(7.4-25)式给出

$$U(\omega + g) = \lambda U. \quad (7.4-35)$$

写成明显的矩阵形式时, 有

$$\begin{aligned}
& \begin{pmatrix} U_{11} & U_{12} & U_{13} & \cdots & U_{1, N+1} \\ U_{21} & U_{22} & U_{23} & \cdots & U_{2, N+1} \\ U_{31} & U_{32} & U_{33} & \cdots & U_{3, N+1} \\ \dots & \dots & \dots & \dots & \dots \\ U_{N+1,1} & U_{N+1,2} & U_{N+1,3} & \cdots & U_{N+1, N+1} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \omega_0 & ig_1 & ig_2 & \cdots & ig_N \\ -ig_1 & \omega_1 & & & 0 \\ -ig_2 & & \omega_2 & & \\ \vdots & & & \ddots & \\ -ig_N & & & & \omega_N \end{pmatrix} \\
& = \begin{pmatrix} \lambda_1 U_{11} & \lambda_1 U_{12} & \lambda_1 U_{13} & \cdots & \lambda_1 U_{1, N+1} \\ \lambda_2 U_{21} & \lambda_2 U_{22} & \lambda_2 U_{23} & \cdots & \lambda_2 U_{2, N+1} \\ \lambda_3 U_{31} & \lambda_3 U_{32} & \lambda_3 U_{33} & \cdots & \lambda_3 U_{3, N+1} \\ \dots & \dots & \dots & \dots & \dots \\ \lambda_{N+1} U_{N+1,1} & \lambda_{N+1} U_{N+1,2} & \lambda_{N+1} U_{N+1,3} & \cdots & \lambda_{N+1} U_{N+1, N+1} \end{pmatrix} \quad (7.4-36)
\end{aligned}$$

如果将上式左边的矩阵乘积乘出来，并比较等式两边相应的矩阵元素，则给出第一行的元素有

$$U_{i1}\omega_0 - i \sum_{k=1}^N U_{i, k+1}g_k = \lambda_i U_{i1} \quad (7.4-37)$$

除第一行元素外，其它行元素有

$$iU_{i1}g_{j-1} + U_{ij}\omega_{j-1} = \lambda_i U_{ij} \quad j \neq 1 \quad (7.4-38)$$

由(7.4-38)式给出

$$U_{ij} = \frac{iU_{i1}g_{j-1}}{\lambda_i - \omega_{j-1}} \quad j \neq 1 \quad (7.4-39)$$

可见，么正矩阵的所有元素都可以用第一行的元素表示。这样，么正矩阵为

$$\mathbf{U} = \begin{pmatrix} U_{11} & \frac{iU_{11}g_1}{\lambda_1 - \omega_1} & \frac{iU_{11}g_2}{\lambda_1 - \omega_2} & \cdots & \frac{iU_{11}g_N}{\lambda_1 - \omega_N} \\ U_{21} & \frac{iU_{21}g_1}{\lambda_2 - \omega_1} & \frac{iU_{21}g_2}{\lambda_2 - \omega_2} & \cdots & \frac{iU_{21}g_N}{\lambda_2 - \omega_N} \\ U_{31} & \frac{iU_{31}g_1}{\lambda_3 - \omega_1} & \frac{iU_{31}g_2}{\lambda_3 - \omega_2} & \cdots & \frac{iU_{31}g_N}{\lambda_3 - \omega_N} \\ \dots & \dots & \dots & \dots & \dots \\ U_{N+1,1} & \frac{iU_{N+1,1}g_1}{\lambda_{N+1} - \omega_1} & \frac{iU_{N+1,1}g_2}{\lambda_{N+1} - \omega_2} & \cdots & \frac{iU_{N+1,1}g_N}{\lambda_{N+1} - \omega_N} \end{pmatrix} \quad (7.4-40)$$

因为任何么正矩阵的行满足正交归一的条件，故有

$$\sum_j U_{ij}^* U_{jk} = \delta_{jk} \quad (7.4-41)$$

第一行归一化为

$$\sum_j |U_{1j}|^2 = 1 \quad (7.4-42)$$

第一行和其它行的正交性是

$$\sum_i \frac{|U_{i1}|^2}{\lambda_i - \omega_k} = 0. \quad (7.4-43)$$

式中 ω_k 是 N 个腔模中的任何一个腔模的频率。

现在用因子 $(\omega_k - \lambda_j)$ 的连乘积 $\prod_j (\omega_k - \lambda_j)$ 乘(7.4-43)式,并改变一下(7.4-43)式分母的符号,则有

$$\sum_i \frac{|U_{i1}|^2}{\omega_k - \lambda_i} \prod_j (\omega_k - \lambda_j) = 0. \quad (7.4-44)$$

显然,上式是一个腔模频率 ω_k 的 N 次多项式,对每一个腔模频率 ω_k 来说,它都应满足。因此, ω_k 应该是(7.4-44)式的根,而且 ω^N 的系数等于1。这样,(7.4-44)式可以被写为因子 $\omega - \omega_k$ 的连乘积,即有

$$\sum_i \frac{|U_{i1}|^2}{\omega - \lambda_i} \prod_j (\omega - \lambda_j) = \prod_k (\omega - \omega_k). \quad (7.4-45)$$

由上式求得

$$\sum_i \frac{|U_{i1}|^2}{\lambda_i - \omega} = \frac{\prod_k (\omega_k - \omega)}{\prod_j (\lambda_j - \omega)} \quad (7.4-46)$$

将(7.4-46)式代入(7.4-34)式后,电极化率 $\chi^{(1)}(\omega)$ 可以写为

$$\chi^{(1)}(\omega) = \frac{ne^2}{3\epsilon_0\hbar} |D_{12}|^2 \left\{ \frac{\prod_k (\omega_k - \omega)}{\prod_j (\lambda_j - \omega)} + \frac{\prod_k (\omega_k + \omega)}{\prod_j (\lambda_j + \omega)} \right\}. \quad (7.4-47)$$

可见,未知的么正矩阵元素已从电极化率的表示式中去掉,但未知量本征值 λ_i 仍保留在式中。下面我们可进一步设法去掉式中的未知量 λ_i 。由(7.4-37)式和(7.4-39)式给出

$$\omega_0 - U_{i1} \sum_{k=1}^N U_{i, k+1} g_k = \lambda_i$$

和

$$U_{i, k+1} = \frac{iU_{i1}g_k}{\lambda_i - \omega_k},$$

可得

$$\omega_0 + \sum_k \frac{g_k^2}{\lambda_i - \omega_k} = \lambda_i. \quad (7.4-48)$$

如果上式两边同乘因子 $\prod_k (\lambda_i - \omega_k)$,经整理后则有

$$\left[\lambda_i - \omega_0 - \sum_k \frac{g_k^2}{\lambda_i - \omega_k} \right] \prod_k (\lambda_i - \omega_k) = 0. \quad (7.4-49)$$

显然,这是一个 λ_i 的 $N+1$ 次多项式。类似于由(7.4-44)式得到(7.4-45)式的论证,我们可以将(7.4-49)式写为

$$\left[\omega - \omega_0 - \sum_k \frac{g_k^2}{\omega - \omega_k} \right] \prod_k (\omega - \omega_k) = \prod_k (\omega - \lambda_i). \quad (7.4-50)$$

这样可得

$$\frac{\prod_k (\omega_k - \omega)}{\prod_i (\lambda_i - \omega)} = - \frac{\prod_k (\omega - \omega_k)}{\prod_i (\omega - \lambda_i)} = \frac{1}{\omega_0 - \omega} \prod_k \frac{g_k^2}{(\omega_k - \omega)} \quad (7.4-51)$$

同理可得

$$\frac{\prod_k (\omega_k + \omega)}{\prod_i (\lambda_i + \omega)} = \frac{1}{\omega_0 + \omega} \prod_k \frac{g_k^2}{(\omega_k + \omega)} \quad (7.4-52)$$

将(7.4-51)式和(7.4-52)式代入(7.4-47)式后, 最后给出

$$\chi^{(1)}(\omega) = \frac{ne^2 |D_{12}|^2}{3\epsilon_0 \hbar} \left\{ \frac{1}{\omega_0 - \omega} \prod_k \frac{g_k^2}{(\omega_k - \omega)} + \frac{1}{\omega_0 + \omega} \prod_k \frac{g_k^2}{(\omega_k + \omega)} \right\} \quad (7.4-53)$$

这就是我们最后所要求的一个二能级气体原子系统的一阶电极化率的表示式。应该明确在推导这个关系式时, 只用了(7.4-20)式的近似式(7.4-21)式, 但在以后将会看到(7.4-21)式中被忽略的项对光的散射起着很重要的作用。

3. 频移和辐射线宽

以上我们已从全量子观点导出了一阶电极化率 $\chi^{(1)}(\omega)$ 的表示式(7.4-53)式, 它与半经典理论唯象地引入阻尼参数 Γ 后的

$$\chi^{(1)}(\omega) = \frac{ne^2 |D_{12}|^2}{3\epsilon_0 \hbar} \left(\frac{1}{\omega_0 - \omega - i\Gamma} + \frac{1}{\omega_0 + \omega + i\Gamma} \right) \quad (7.4-54)$$

相比较, 只是唯象参数 Γ 用两个不同的 Σ_k 的表示式代替。由(7.4-53)式可知, 这两个不同的 Σ_k 的表示式本身与频率 ω 有关。为计算这两个 Σ_k 的表示式, 我们首先对 k 求和时去掉腔模 N 有限的限制, 以及用积分代替对 k 的求和, 其次考虑到因果律要求 $\chi^{(1)}(\omega)$ 的两个极点必须在 ω 平面的下半平面, 这只要在 ω 上加上一个无限小的虚部 $i\epsilon$ 即可; 然后令这个无限小的虚部的值等于零。

根据上述要求, (7.4-53)式中第一个分母中的求和可以写为

$$\lim_{\epsilon \rightarrow 0} \sum_k \frac{g_k^2}{\omega_k - \omega - i\epsilon} = \lim_{\epsilon \rightarrow 0} \int \frac{e^2 \omega_k^3 |D_{12}|^2}{6\pi^2 \epsilon_0 \hbar c^3} \frac{1}{\omega_k - \omega - i\epsilon} d\omega_k \quad (7.4-55)$$

式中积分沿正 ω_k 轴, 被积函数是 ω_k 的函数, 其在上半个频率平面内有一个极点, 恰当的分积分路径如图7-5所示。(7.4-55)式已利用了(7.2-22)式与对频率的求和变为对频率积分的转换关系^[10]

$$\sum_k \rightarrow \int \frac{V k^2}{\pi^2} dk \rightarrow \int \frac{V \omega^2}{\pi^2 c^3} d\omega$$

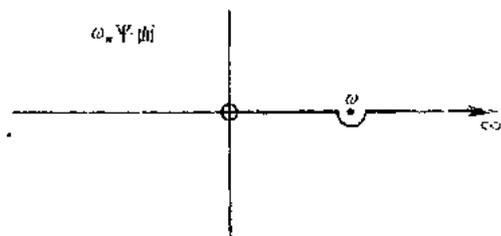


图7-5 (7.4-55)式积分的路径

(7.4-55)式的积分可以写成沿直线的主值积分和绕极点来自半圆贡献的 δ 函数这两部分之和, 即

$$\lim_{\epsilon \rightarrow 0} \sum_k \frac{g_k^2}{\omega_k - \omega - i\epsilon} = \text{P.V.} \int_0^\infty \frac{e^2 \omega_k^3 |D_{12}|^2}{6\pi^2 \epsilon_0 \hbar c^3} \frac{1}{\omega_k - \omega} d\omega_k + i\pi \int_0^\infty \frac{e^2 \omega_k^3 |D_{12}|^2}{6\pi^2 \epsilon_0 \hbar c^3} \delta(\omega_k - \omega) d\omega_k \quad (7.4-56)$$

组合(7.4-55)式和(7.4-56)式, 有

$$\lim_{\epsilon \rightarrow 0} \sum_k \frac{g_k^2}{\omega_k - \omega - i\epsilon} = \Delta(\omega) + i\Gamma(\omega) \quad (7.4-57)$$

式中

$$\Delta(\omega) = \text{P.V.} \int_0^\infty \frac{e^2 \omega_k^3 |D_{12}|^2}{6\pi^2 \epsilon_0 \hbar c^3} \frac{1}{\omega_k - \omega} d\omega_k, \quad (7.4-58)$$

$$\Gamma(\omega) = \frac{e^2 \omega^3 |D_{12}|^2}{6\pi \epsilon_0 \hbar c^3} \quad (7.4-59)$$

同理, (7.4-53)式中第二个分母的求和为

$$\lim_{\epsilon \rightarrow 0} \sum_k \frac{g_k^2}{\omega_k + \omega + i\epsilon} = \Delta(-\omega) - i\Gamma(-\omega) \quad (7.4-60)$$

这样一阶电极化率的表示式(7.4-53)式便变为

$$\chi^{(1)}(\omega) = \frac{ne^2 |D_{12}|^2}{3\epsilon_0 \hbar} \left\{ \frac{1}{\omega_0 - \omega - \Delta(\omega) - i\Gamma(\omega)} + \frac{1}{\omega_0 + \omega - \Delta(-\omega) + i\Gamma(-\omega)} \right\} \quad (7.4-61)$$

由上式很容易看出该式满足真实性条件 $[\chi^{(1)}(\omega)]^* = \chi^{(1)}(-\omega)$ 。对正频 ω 来说, 仅上式括号中第一项有一虚部

$$\text{Im} \chi^{(1)}(\omega) = \frac{ne^2 |D_{12}|^2}{3\epsilon_0 \hbar} \frac{\Gamma(\omega)}{(\omega_0 - \omega - \Delta(\omega))^2 + (\Gamma(\omega))^2} \quad (7.4-62)$$

这个 $\text{Im} \chi^{(1)}(\omega)$ 的函数形式类似于(1.2-13)式的洛仑兹线型函数, 但更为复杂一些。在这里有一个频移 Δ 和一个为 ω 的函数的线宽参数 Γ 。

五、辐射跃迁速率的一般表示式

以上我们在电偶极相互作用近似下讨论了辐射与原子系统的相互作用, 并由此导出了一阶电极化率的全量子理论的表示式(7.4-53)式或(7.4-61)式, 它可被用来讨论线性光学现象。但是各种非线性光学过程的产生, 如多光子吸收; 二次谐波、差频与和频的产生; 强光束通过介质时使介质折射率发生改变, 而且改变量与光束强度有关; 以及光的受激喇曼散射等等, 都必须考虑辐射与原子相互作用的非线性项。在这一节中, 我们将详细地导出辐射跃迁速率的一般表示式, 为以下讨论有关非线性光学现象作好理论上的准备。

在上一节中, 我们已经给出在薛定谔表象中的辐射与原子的耦合系统由波函数 $\phi(t)$ 来描述, 它满足(7.4-11)式

$$\hat{H}\phi(t) = i\hbar \frac{\partial \phi(t)}{\partial t} \quad (7.5-1)$$

一般讲, 式中 \hat{H} 是所给耦合系统的与时间无关的总的哈密顿, 它由

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{H}_I \quad (7.5-2)$$

给出。这里,

$$\hat{H}_0 = \hat{H}_R + \hat{H}_I \quad (7.5-3)$$

是非耦合的辐射与电子的哈密顿; \hat{H}_I 是相互作用哈密顿。在电偶极近似下, \hat{H}_I 便变为 \hat{H}_{ID} 。因此应该明确, 这里我们所利用的是更一般的相互作用哈密顿。

方程(7.5-1)式描述的是耦合系统状态的波函数 ϕ 随时间变化的规律。如果知道在 t_0 时刻的波函数 $\phi(t_0)$, 则由量子力学可知, 可以由(7.5-1)式确定以后时刻 t 的波函数 $\phi(t)$ 。 $\phi(t)$ 与 $\phi(t_0)$ 之间可以用一个所谓么正算符

$$\hat{U}(t) = \exp\{-i\hat{H}(t-t_0)/\hbar\} \quad (7.5-4)$$

相联系, 即有

$$\phi(t) = \exp\{-i\hat{H}(t-t_0)/\hbar\}\phi(t_0). \quad (7.5-5)$$

现今 ψ_f 是 \hat{H}_0 的一个本征态, 其能量本征值为 $\hbar\omega_f$, 则

$$\hat{H}_0\psi_f = \hbar\omega_f\psi_f \quad (7.5-6)$$

于是在时刻 t , 系统处在态 ψ_f 的几率为

$$|\langle\psi_f|\phi(t)\rangle|^2 = |\langle\psi_f|\exp\{-i\hat{H}(t-t_0)/\hbar\}|\phi(t_0)\rangle|^2 \quad (7.5-7)$$

由于在指数项中存在 \hat{H}_I 项, 有可能使得系统在 $t_0 \sim t$ 的时间内发生辐射跃迁, 因而一般讲, $|\langle\psi_f|\phi(t)\rangle|^2$ 与 $|\langle\psi_f|\phi(t_0)\rangle|^2$ 是不相同的。

如果我们将 t_0 时刻的耦合系统的态用 \hat{H}_0 的本征态展开, 并假定 ψ_u 是这些本征态中的一个, 即

$$\hat{H}_0\psi_u = \hbar\omega_u\psi_u \quad (7.5-8)$$

那么在时刻 t 系统处在态 ψ_f 中的几率(7.5-7)式可以用时刻 t_0 系统在各个本征态 ψ_u 中的几率 $|\langle\psi_u|\phi(t_0)\rangle|^2$ 来表示, 但应在相应的几率 $|\langle\psi_u|\phi(t_0)\rangle|^2$ 之前乘上一个因子

$$|\langle\psi_f|\exp\{-i\hat{H}(t-t_0)/\hbar\}|\psi_u\rangle|^2. \quad (7.5-9)$$

从态 ψ_u 跃迁到态 ψ_f 的跃迁速率等于这个比例因子的时间导数。在一般的实验情况下, 观察到的终态有一定的范围, 因而相应的跃迁速率为

$$\frac{1}{\tau} = \frac{d}{dt} \sum_f |\langle f | \exp\{-i\hat{H}(t-t_0)/\hbar\} | u \rangle|^2. \quad (7.5-10)$$

式中已利用刀矢 $\langle f |$ 和刃矢 $| u \rangle$ 的符号并对(7.5-9)式作了简化。自然, 在定态条件下, 跃迁速率应与 t 和 t_0 都无关。

应该指出, (7.5-10)式的跃迁速率的表示式对今后计算来说, 不是一个十分有用的形式。下面我们将设法改变一下 $1/\tau$ 的具体表示式, 以适合于以后更方便地讨论有关非线性光学现象的需要。

如果原子-辐射相互作用的矩阵元与可见光谱区内的光子能量和原子跃迁能量相比很小(例如可以证明氢原子的 ψ_{210} 态和 ψ_{100} 态之间的跃迁频率 $\omega_0 = 3me^4/2^7\pi^2\epsilon_0^3\hbar^2$, 在这两个态之间偶极相互作用的跃迁矩阵元为 $H'_{12} = 2^{1/2} eE_0 a_0/3^5\hbar$, 式中 a_0 是玻尔(Bohr)半径,

$a_0 = 4\pi\epsilon_0\hbar^2/me^2$ 。为使 $\omega_c = H'_{12}$ ，要求场强 E_0 的数量级为 $3 \times 10^{11} \text{V m}^{-1}$ ，而对于功率密度达到 10^{17}W m^{-2} 的脉冲激光来说，场强也只有 10^7V m^{-1} 的量级，那么可以将 $\exp(-i\hat{H}(t-t_0)/\hbar)$ 展开为相互作用哈密顿 \hat{H}_I 的幂级数，不过因为 \hat{H}_0 和 \hat{H}_I 是不可对易的，因而

$$\exp(-i\hat{H}t/\hbar) \neq \exp(-i\hat{H}_0t/\hbar)\exp(-i\hat{H}_I t/\hbar). \quad (7.5-11)$$

所以我们不可能利用通常的方法去展开指数。然而考虑到有恒等式

$$\begin{aligned} & \exp(i\hat{H}_0t/\hbar)\hat{H}_I\exp(-i\hat{H}t/\hbar) \\ &= i\hbar \frac{d}{dt} \{ \exp(i\hat{H}_0t/\hbar)\exp(-i\hat{H}t/\hbar) \} \end{aligned} \quad (7.5-12)$$

后，困难便得到解决。当直接作出(7.5-12)式右边的微分，并利用(7.5-2)式和哈密顿 \hat{H}_0 与 $\exp(i\hat{H}_0t/\hbar)$ 是可对易的，便可证明(7.5-12)式成立。

现在在(7.5-12)式两边对 t 积分，给出

$$\begin{aligned} & \int_{t_0}^t \exp(i\hat{H}_0t_1/\hbar)\hat{H}_I\exp(-i\hat{H}t_1/\hbar)dt_1 \\ &= i\hbar \{ \exp(i\hat{H}_0t/\hbar)\exp(-i\hat{H}t/\hbar) \\ & \quad - \exp(i\hat{H}_0t_0/\hbar)\exp(-i\hat{H}t_0/\hbar) \} \end{aligned} \quad (7.5-13)$$

或

$$\begin{aligned} \exp(-i\hat{H}t/\hbar) &= \exp(-i\hat{H}_0t/\hbar) \{ \exp(i\hat{H}_0t_0/\hbar) \\ & \quad \times \exp(-i\hat{H}t_0/\hbar) - \frac{i}{\hbar} \int_{t_0}^t \exp(i\hat{H}_0t_1/\hbar)\hat{H}_I\exp(-i\hat{H}t_1/\hbar)dt_1 \} \end{aligned} \quad (7.5-14)$$

我们要计算已达到定态 t 时刻的跃迁速率，为保证这一条件，我们可以假定 t_0 是一个过去无限远的时刻，而且认为相互作用是从时刻为 $-\infty$ 开始逐渐达到其极值的，也就是 \hat{H}_I 是无限制地逐渐变大的。此外，我们可以插入一个因子 $\exp(\epsilon t)$ ，式中 ϵ 是一个很小的量，并在跃迁速率的最后的表示式中，使这个小量趋于零。

利用上面的一些考虑之后，就可以认为在 t_0 时刻的 \hat{H}_I 为零，这样，(7.5-14)式变为

$$\begin{aligned} & \exp(-i\hat{H}t/\hbar) = \exp(-i\hat{H}_0t/\hbar) \\ & \quad \times \left\{ 1 - \frac{i}{\hbar} \int_{-\infty}^t \exp(i\hat{H}_0t_1/\hbar)\hat{H}_I\exp(\epsilon t_1)\exp(-i\hat{H}t_1/\hbar)dt_1 \right\}. \end{aligned} \quad (7.5-15)$$

现在我们可以利用迭代法使得上式右边展开为 \hat{H}_I 的一个幂级数，并利用与时间有关的微扰理论讨论 \hat{H}_I 各次幂的项对跃迁速率的贡献。

(a) 零阶：在 \hat{H}_I 为零阶即 \hat{H}_I 零次幂的情况下，由(7.5-15)式给出 $\exp(-i\hat{H}t/\hbar) = \exp(-i\hat{H}_0t/\hbar)$ ，这时有矩阵元素

$$\langle f | \exp(-i\hat{H}_0t/\hbar) | u \rangle = \exp(-i\omega_u t) \langle f | u \rangle. \quad (7.5-16)$$

因为跃迁意味着 ψ_f 和 ψ_u 属于不同的本征态，因而 $\langle f | u \rangle = 0$ ，所以零阶相互作用哈密顿

\hat{H}_I 对跃迁速率的贡献为零。

(b) 一阶: 当将(7.5-15)式大括号中第二项的 \hat{H} 用 \hat{H}_0 代替时, 便得到 \hat{H}_I 一次幂的项, 这一项对(7.5-10)式矩阵元的贡献是

$$-\langle f | \left(\frac{i}{\hbar} \right) \exp(-i\hat{H}_0 t/\hbar) \int_{-\infty}^t \exp(i\hat{H}_0 t_1/\hbar) \hat{H}_I \\ \times \exp(\epsilon t_1) \exp(-i\hat{H}_0 t_1/\hbar) dt_1 | u \rangle. \quad (7.5-17)$$

根据量子力学理论, 当算符 \hat{F} 作用在刃 $|A\rangle$ 上得到刃 $|B\rangle$ 时, 有

$$|B\rangle = \hat{F} |A\rangle. \quad (7.5-18)$$

则可以证明刃 $|B\rangle$ 的共轭复数 $\langle B|$ 为^[1]

$$\langle B| = \langle A| \hat{F}^\dagger \quad (7.5-19)$$

式中算符 \hat{F}^\dagger 是算符 \hat{F} 的共轭算符。(7.5-19)式是(7.5-18)式的共轭式。这样, (7.5-17)式中的 $\langle f | \exp(-i\hat{H}_0 t/\hbar)$ 就是 $\exp(i\hat{H}_0 t/\hbar) | f \rangle$ 的共轭式, 而

$$\exp(i\hat{H}_0 t/\hbar) | f \rangle = \exp(i\omega_f t/\hbar) | f \rangle$$

所以

$$\langle f | \exp(-i\hat{H}_0 t/\hbar) = \exp(-i\omega_f t) \langle f |. \quad (7.5-20)$$

现将(7.5-20)式代入(7.5-17)式, 便得

$$-\langle f | \left(\frac{i}{\hbar} \right) \exp(-i\hat{H}_0 t/\hbar) \int_{-\infty}^t \exp(i\hat{H}_0 t_1/\hbar) \hat{H}_I \\ \times \exp(\epsilon t_1) \exp(-i\hat{H}_0 t_1/\hbar) dt_1 | u \rangle \\ = -\left(\frac{i}{\hbar} \right) \exp(-i\omega_f t) \langle f | \hat{H}_I | u \rangle \\ \times \int_{-\infty}^t \exp(i\omega_f t_1 - \epsilon t_1 - i\omega_u t_1) dt_1 \\ = \frac{\langle f | \hat{H}_I | u \rangle}{\hbar} \frac{\exp(\epsilon t - i\omega_u t)}{\omega_u - \omega_f + i\epsilon}. \quad (7.5-21)$$

这样, 根据(7.5-10)式, 跃迁速率为

$$\frac{1}{\tau} = \frac{d}{dt} \sum_f |\langle f | \hat{H}_I | u \rangle|^2 \frac{\exp(2\epsilon t)}{(\omega_u - \omega_f)^2 + \epsilon^2} \\ = \frac{2}{\hbar^2} \sum_f |\langle f | \hat{H}_I | u \rangle|^2 \frac{\epsilon \exp(2\epsilon t)}{(\omega_u - \omega_f)^2 + \epsilon^2}. \quad (7.5-22)$$

这时令 $\epsilon \rightarrow 0$, 式中指数项为1, 而 $\epsilon/[(\omega_u - \omega_f)^2 + \epsilon^2]$ 实际上就是一个 δ 函数, 有

$$\lim_{\epsilon \rightarrow 0} \frac{\epsilon}{(\omega_u - \omega_f)^2 + \epsilon^2} = \pi \delta(\omega_u - \omega_f). \quad (7.5-23)$$

于是, (7.5-22)式便变为

$$\frac{1}{\tau} = \frac{2\pi}{\hbar^2} \sum_f |\langle f | \hat{H}_I | u \rangle|^2 \delta(\omega_u - \omega_f). \quad (7.5-24)$$

这个式子就是熟知的所谓费米 (Fermi) 黄金规则。它给出了由于相互作用哈密顿 \hat{H}_I 所引起的系统从始态 $|u\rangle$ 跃迁到一组终态 $|f\rangle$ 的跃迁速率 $1/\tau$ 。

(c) 二阶: 当将(7.5-15)式右边大括号第二项中的指数项 $\exp(-i\hat{H}t_1/\hbar)$ 用(7.5-15)式代入, 便得到

$$\begin{aligned} \exp(-i\hat{H}t/\hbar) &= \exp(-i\hat{H}_0t/\hbar) \\ &\times \left\{ 1 - \frac{i}{\hbar} \int_{-\infty}^t \exp(i\hat{H}_0t_1/\hbar) \hat{H}_I \exp(\epsilon t_1) \right. \\ &\times \exp(-i\hat{H}_0t_1/\hbar) \left[1 - \frac{i}{\hbar} \int_{-\infty}^{t_1} \exp(i\hat{H}_0t_2/\hbar) \right. \\ &\times \hat{H}_I \exp(\epsilon t_2) \exp(-i\hat{H}_0t_2/\hbar) dt_2 \left. \right] dt_1 \left. \right\} . \end{aligned} \quad (7.5-25)$$

这样就能得到 \hat{H}_I 的二阶项, 这一项对(7.5-10)式中矩阵元的贡献为

$$\begin{aligned} &-\langle f | \hbar^{-2} \exp(-i\hat{H}_0t/\hbar) \int_{-\infty}^t dt_1 \int_{-\infty}^{t_1} dt_2 \exp(i\hat{H}_0t_1/\hbar) \hat{H}_I \\ &\times \exp(\epsilon t_1) \exp(-i\hat{H}_0(t_1-t_2)/\hbar) \hat{H}_I \exp(\epsilon t_2) \\ &\times \exp(-i\hat{H}_0t_2/\hbar) |u\rangle . \end{aligned} \quad (7.5-26)$$

利用量子力学中的封闭定理

$$\sum_l |l\rangle\langle l| = 1, \quad (7.5-27)$$

式中 $|l\rangle$ 是 \hat{H}_0 的本征态, \sum_l 是对 \hat{H}_0 的本征态的完全组求和, 在将(7.5-27)式插入(7.5-26)

式中两个 \hat{H}_I 算符之间之后, (7.5-26)式变为

$$\begin{aligned} &-\sum_l \langle f | \hbar^{-2} \exp(-i\hat{H}_0t/\hbar) \int_{-\infty}^t dt_1 \int_{-\infty}^{t_1} dt_2 \exp(i\hat{H}_0t_1/\hbar) \hat{H}_I \\ &\times \exp(\epsilon t_1) \exp(-i\hat{H}_0t_1/\hbar) |l\rangle\langle l| \exp(i\hat{H}_0t_2/\hbar) \hat{H}_I \\ &\times \exp(\epsilon t_2) \exp(-i\hat{H}_0t_2/\hbar) |u\rangle \\ &= -\hbar^{-2} \sum_l \exp(-i\omega_l t) \cdot \langle f | \hat{H}_I |l\rangle\langle l| \hat{H}_I |u\rangle \int_{-\infty}^t dt_1 \int_{-\infty}^{t_1} dt_2 \\ &\times \exp(i\omega_l t_1 + \epsilon t_1 - i\omega_l t_1 + i\omega_l t_2 + \epsilon t_2 - i\omega_l t_2) \\ &= -\hbar^{-2} \sum_l \exp(-i\omega_l t) \langle f | \hat{H}_I |l\rangle\langle l| \hat{H}_I |u\rangle \\ &\times \frac{\exp(i\omega_l t - i\omega_u t + 2\epsilon t)}{(i\omega_l - i\omega_u + 2\epsilon)(-i\omega_u + i\omega_l + \epsilon)} \\ &= \sum_l \frac{\langle f | \hat{H}_I |l\rangle\langle l| \hat{H}_I |u\rangle}{\hbar^2} \frac{\exp(2\epsilon t - i\omega_u t)}{(\omega_u - \omega_l + i\epsilon)(\omega_u - \omega_l + 2i\epsilon)}. \end{aligned} \quad (7.5-28)$$

因为 ϵ 是一个任意小量, 可令其趋于零, 并在(7.5-28)式中用 ϵ 代替 2ϵ 。于是在将(7.5-28)式的二阶贡献与(7.5-21)式的一阶贡献结合起来之后, 便给出

$$\frac{1}{\hbar} \frac{\exp(\epsilon t - i\omega_u t)}{\omega_u - \omega_f + i\epsilon} \left(\langle f | \hat{H}_I |u\rangle + \frac{1}{\hbar} \sum_l \frac{\langle f | \hat{H}_I |l\rangle\langle l| \hat{H}_I |u\rangle}{\omega_u - \omega_l + \frac{1}{2}i\epsilon} \right). \quad (7.5-29)$$

现将(7.5-29)式代入跃迁速率的(7.5-10)式，并利用象求得一阶情况下的 $1/\tau$ 相同的步骤，可得

$$\begin{aligned} \frac{1}{h} &= \frac{d}{dt} \sum_f \left| \frac{1}{h} \frac{\exp(\epsilon t - i\omega_u t)}{\omega_u - \omega_f + i\epsilon} \left(\langle f | \hat{H}_I | u \rangle + \frac{1}{h} \sum_l \frac{\langle f | \hat{H}_I | l \rangle \langle l | \hat{H}_I | u \rangle}{\omega_u - \omega_l + \frac{1}{2} i\epsilon} \right) \right|^2 \\ &= \frac{2\pi}{h^2} \sum_f \left| \langle f | \hat{H}_I | u \rangle + \frac{1}{h} \sum_l \frac{\langle f | \hat{H}_I | l \rangle \langle l | \hat{H}_I | u \rangle}{\omega_u - \omega_l} \right|^2 \delta(\omega_u - \omega_f). \end{aligned} \quad (7.5-30)$$

注意，在得到(7.5-30)式时，我们去掉了其中的二阶矩阵元分母中的 ϵ 的因子。可是在以后我们将会遇到 ω_u 等于 ω_l 的情况，这时就应保留 ϵ 的因子而不能略去它。

(d) n 阶：为了得到 \hat{H}_I 的 n 阶项，就需要对(7.5-15)式右边的因子 $\exp(-i\hat{H}t/h)$ 迭代 $(n-1)$ 次。计算 \hat{H}_I 的 n 次幂对跃迁速率贡献的方法和步骤与二阶的一样，只是现在要求 n 次积分，并利用 $n-1$ 次封闭定理，其最后的结果为

$$\begin{aligned} \frac{1}{\tau} &= \frac{2\pi}{h^2} \sum_f \left| \langle f | \hat{H}_I | u \rangle + \frac{1}{h} \sum_l \frac{\langle f | \hat{H}_I | l \rangle \langle l | \hat{H}_I | u \rangle}{\omega_u - \omega_l} + \dots \right. \\ &\quad \left. + \frac{1}{h^{n-1}} \sum_{l_1} \sum_{l_2} \dots \sum_{l_{n-1}} \frac{\langle f | \hat{H}_I | l_1 \rangle \langle l_1 | \hat{H}_I | l_2 \rangle \dots \langle l_{n-1} | \hat{H}_I | u \rangle}{(\omega_u - \omega_{l_1})(\omega_u - \omega_{l_2}) \dots (\omega_u - \omega_{l_{n-1}})} \right|^2 \\ &\quad \times \delta(\omega_u - \omega_f) \end{aligned} \quad (7.5-31)$$

应该指出，出现在上式高阶项中的态 $|l_1\rangle, |l_2\rangle, \dots$ 等叫做跃迁的假想中间态。一阶项表示系统从始态 $|u\rangle$ 到终态 $|f\rangle$ 的直接跃迁。高阶项表示系统间接地通过一个或若干个中间态，从始态 $|u\rangle$ 跃迁到终态 $|f\rangle$ 。始态能量 $h\omega_u$ 必须等于终态的能量，这是能量守恒的要求；但对中间态 $|l\rangle$ 来说，其能量 $h\omega_l$ 并不要求与始态能量相等，即不需要能量守恒，因为中间态是一种假想的态，并没有实际的跃迁进入这些态。对一个给定的辐射过程来说，通常只要保留(7.5-31)式级数项中最低次项即可，因为高次项减小得很快。至于我们需要哪一阶项，则是由系统在从始态 $|u\rangle$ 跃迁到终态 $|f\rangle$ 的过程中被改变的光子态数目来确定的。例如：对简单的一个光子的发射和吸收过程来说，它只改变一个光子态，那么一阶项已足够。对于光的散射来说，在这个过程中有一个光子被吸收和一个光子被产生，因而需要二阶项。在下面讨论非线性光学现象时，所提到的双光子吸收过程就需要二阶项；而对于三次谐波的产生来说，因为有三个光子被湮灭和一个光子被产生，所以就需四阶项。(7.5-31)式就是用来讨论非线性光学过程的一个基本关系式。

最后要指出的是，从第五、六章所讨论的内容，我们已很清楚地看到非线性光学现象是很多的，是一个十分广泛的研究领域。例如，当光与具有各向异性的分子或与没有反演对称的晶体中晶格处的原子相互作用时，所发生的非线性光学过程就是多种多样的。如果我们再在原子-辐射的相互作用中考虑更高阶项，那么又会导致更多的非线性光学过程需要考虑。再如入射光束是多模辐射激发的，那么又需要对上面所给出的理论加以发展。但在下面的讨论中，我们只是利用以上所得到的理论去讨论某些较为简单的过程，而且讨论只限于发生在各向同性介质内的非线性过程。另外，在原子-辐射相互作用哈密顿中只考虑电偶极相互作用项，而且入射光束都是单模激发的辐射场。

六、克雷默斯-海森堡公式

所谓克雷默斯(Kramers)-海森堡公式就是利用量子力学的理论导出的一个光被原子散射的微分截面的表示式,这是一个讨论量子力学散射理论的基本表示式。

我们知道光被原子的散射是一个二阶过程,因为在这种过程中,辐射场与原子中电子同时发生两种相互作用,即入射光束中一个量子 $\hbar\omega$ 被湮灭,同时产生一个散射的量子 $\hbar\omega_s$ 。用量子力学去处理这类问题时,需要一阶以上与时间有关的微扰理论。

光的散射有弹性散射和非弹性散射之分。如果散射光频率 ω_s 与入射光频率 ω 相同,则叫弹性散射(有时叫瑞利散射);反之,则叫非弹性散射,如第六章所讨论的喇曼散射。

光被散射的强弱可以用散射截面 σ 或微分散射截面 $d\sigma/d\Omega$ 来描述。前者的定义为:由于散射引起的从入射光束中取走能量的速率与入射光束的能量密度之比;后者是对于在某立体角 $d\Omega$ 内的那一部分散射光而言的。

光的散射过程的几何关系如图7-6所示。散射前,辐射场与原子系统的量子力学状态是:假定原子处在基态 $|1\rangle$,辐射场是由波矢为 k 、频率为 ω 的光子所组成。光子入射在原子上受到原子的散射,散射的结果使系统原来的状态变到一系列可能的终态。对每一个可能的终态来说,一个频率为 ω_s 、波矢为 k_s 的散射光子代替一个入射的光子,与此同时,原子进入某个终态 $|f\rangle$ 。因此原始的光子态转变为终态可以用光子湮灭算符 \hat{a}_k 和产生算符 $\hat{a}_{k_s}^\dagger$ 的乘积来表示,或用简化的算符 \hat{a} 和 \hat{a}_s^\dagger 的乘积来表示。现在,一般用激光源作为入射光束进行散射实验,这种光束可以很好地被认为是单模激发的光源。而散射光频率 ω_s 则由原子的性质所决定。

现假定原子基态的能量为零,终态能量为 $\hbar\omega_f$ 。再假定入射光被散射前有 n 个频率为 ω 的光子。对实际的光束来讲,应清楚地理解到光子数是不确定的,有一个统计分布,不过散射截面与光子分布是无关的。因而可作简化假定:认为光束中有恒定的光子数。这假定对结果并无影响。在以后讨论受激喇曼散射现象时,我们将考虑任意光子分布的情况。

在本章五中,我们已经得到了一个一般的跃迁速率表示式(7.5-31)式,将它用到

现在所要处理的散射问题时,如在相互作用哈密顿 $\hat{H}_I = \hat{H}_{E,D} + \hat{H}_{E,Q} + \hat{H}_{M,D} + \hat{H}_{V,L}$ 中略去 $\hat{H}_{E,Q}$ 和 $\hat{H}_{M,D}$ 的项,则电偶极相互作用 $\hat{H}_{E,D}$ 和相互作用的非线性项 $\hat{H}_{V,L}$ 分别对(7.5-31)式中的二阶和一阶项有贡献,即有

$$\frac{1}{\tau} = \frac{2\pi}{\hbar^2} \sum_f \sum_{k_s} \langle n-1, 1, f | \hat{H}_{V,L} | n, 0, 1 \rangle$$

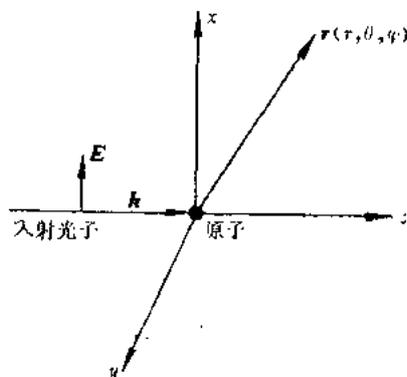


图7-6 光的散射实验的几何关系

$$\begin{aligned}
 & + \frac{1}{\hbar} \sum_i \langle n-1, 1, f | \hat{H}_{LD} | i \rangle \langle i | \hat{H}_{LD} | n, 0, 1 \rangle \\
 & \times \delta(\omega - \omega_s - \omega_f) \quad (7.6-1)
 \end{aligned}$$

刃矢 $|i\rangle$ 和刃矢 $|f\rangle$ 中的第一、第二和第三个标号分别表示关于光子 k ，光子 k_s 和原子态的始态及终态。 \sum_i 是对原子和辐射的组合系统所有可能的

态 i 求和，这里在模平方前面对终态求和 分开写成对所有可能的原子态 f 和散射的光子 k_s 求和。(7.6-1)式中各项矩阵元的物理过程如图7-7所示。画这个图的规则

和图7-2一样。图中(a)表示(7.6-1)式模平方中第一项的过程，按非线性相互作用 \hat{H}_{LD} 的二阶特性，它的作用是湮灭一个光子 k ，并同时产生一个光子 k_s 。模平方中第二项有两个电偶极相互作用的因子，其中出现中间态 $|i\rangle$ 。如按(7.4-10)式将 \hat{H}_{LD} 写成明显的形式时，对所描述的散射过程来说，显然算符的次序有两种不同的可能性：一种可能性是算符的次序为 $\hat{a}_s^\dagger \hat{a}$ ，另一种次序为 $\hat{a} \hat{a}_s^\dagger$ 。前者的物理过程如图(b)所示，后者如图(c)所示。

在图7-7中，中间态用 $|i\rangle$ 表示，其能量为 $\hbar\omega_i$ 。从图中极易看出，图(c)是图7-2中图(a)和图(d)的组合，这个图分开来看并不遵守能量守恒，但组合起来就遵守能量守恒了。按图7-7，(7.6-1)式中模平方的第二项可以写成如下更加明显的形式，即

$$\begin{aligned}
 & \frac{1}{\hbar} \sum_i \left\{ \langle n-1, 1, f | \hat{H}_{LD} | n-1, 0, i \rangle \langle n-1, 0, i | \hat{H}_{LD} | n, 0, 1 \rangle \right. \\
 & \left. + \langle n-1, 1, f | \hat{H}_{LD} | n, 1, i \rangle \langle n, 1, i | \hat{H}_{LD} | n, 0, 1 \rangle \right\} \delta(\omega - \omega_s - \omega_f) \quad (7.6-2)
 \end{aligned}$$

现在我们来估计一下图7-7中三个图所对应的物理过程对跃迁速率贡献的相对大小。因为在自由空间内， $\mu_0 \hat{H}^2$ (这里 \hat{H} 是磁场强度)的期望值与 \hat{E}_T^2/c^2 的期望值是相同的；而按(7.2-5)式和(7.2-7)式的 \hat{H}_{LD} 和 \hat{H}_{NL} 表示式可知，(7.6-1)式中第一项非线性项矩阵元和第二项电偶极矩矩阵元都含有 e^2 和 r_j^2 平方的矩阵元，主要的差别来自它们的分母，它们分别为 $8mc^2$ 、 $(\hbar\omega - \hbar\omega_i)$ 和 $(-\hbar\omega_s - \hbar\omega_i)$ 。 $8mc^2$ 的数量级为 6×10^{-13} J，而对光的散射来说，典型的原子和光子的能量的量级在 10^{-18} 到 10^{-19} J之内。由此可见，(7.6-1)式模平方中第一项的贡献可以完全忽略不予考虑。当 ω 和 ω_i 在数值上很接近时，留下的两项分母差别很大。不过一般来讲，这两项有相同的量级，因而(7.6-2)式中两项都应保留。

在忽略非线性项后，(7.6-1)式的跃迁速率的表示式便可简化为

$$\frac{1}{\tau} = \frac{2\pi}{\hbar^2} \sum_f \sum_{k_s} \frac{1}{\hbar} \sum_i \langle n-1, 1, f | \hat{H}_{LD} | i \rangle \langle i | \hat{H}_{LD} | n, 0, 1 \rangle \delta(\omega - \omega_s - \omega_f)$$

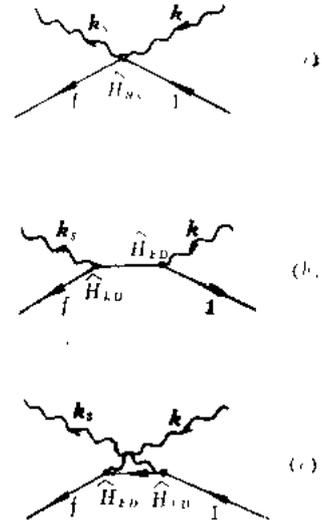


图7-7 对散射过程有贡献的三类相互作用的图解表示

$$= \frac{2\pi}{\hbar^2} \sum_f \sum_{\mathbf{k}_s} \left\{ \frac{1}{\hbar} \sum_j \left\{ \langle n-1, 1, f | \hat{H}_{ED} | n-1, 0, i \rangle \langle n-1, 0, i | \hat{H}_{ED} | n, 0, 1 \rangle \right. \right. \\ \left. \left. + \frac{\langle n-1, 1, f | \hat{H}_{ED} | n, 1, i \rangle \langle n, 1, i | \hat{H}_{ED} | n, 0, 1 \rangle}{-\omega_s - \omega_i} \right\} \right\}^2 \quad (7.6-3)$$

式中 \hat{H}_{ED} 由(7.4-10)式给出。因为(7.6-3)式中第一个因子 $\langle n-1, 1, f | \hat{H}_{ED} | n-1, 0, i \rangle$ 所描述的是产生一个 ω_s 的散射光子和原子态由 $|i\rangle$ 到 $|f\rangle$ 的过程，因而现在 \hat{H}_{ED} 的形式由(7.4-10)式变为

$$\hat{H}_{ED} = -ie \left(\frac{\hbar\omega_s}{2\epsilon_0 V} \right)^{1/2} \mathbf{u}_{\mathbf{k}_s} \cdot \mathbf{D}_{fi} \hat{a}_{\mathbf{k}_s}^\dagger \hat{b}_f^\dagger \hat{b}_i$$

这样

$$\begin{aligned} & \langle n-1, 1, f | \hat{H}_{ED} | n-1, 0, i \rangle \\ &= \langle n-1, 1, f | -ie \left(\frac{\hbar\omega_s}{2\epsilon_0 V} \right)^{1/2} \mathbf{u}_{\mathbf{k}_s} \cdot \mathbf{D}_{fi} \hat{a}_{\mathbf{k}_s}^\dagger \hat{b}_f^\dagger \hat{b}_i | n-1, 0, i \rangle \\ &= -ie \left(\frac{\hbar\omega_s}{2\epsilon_0 V} \right)^{1/2} (\mathbf{u}_{\mathbf{k}_s} \cdot \mathbf{D}_{fi}) \langle n-1, 1, f | \hat{a}_{\mathbf{k}_s}^\dagger \hat{b}_f^\dagger \hat{b}_i | n-1, 0, i \rangle \\ &= -ie \left(\frac{\hbar\omega_s}{2\epsilon_0 V} \right)^{1/2} \mathbf{u}_{\mathbf{k}_s} \cdot \mathbf{D}_{fi} \end{aligned} \quad (7.6-4)$$

又由于

$$\langle n-1, 0, i | \hat{H}_{ED} | n, 0, 1 \rangle = -ie \left(\frac{\hbar\omega}{2\epsilon_0 V} \right)^{1/2} \mathbf{u}_{\mathbf{k}} \cdot \mathbf{D}_{i1} n^{1/2}, \quad (7.6-5)$$

所以(7.6-3)式大括号中第一项为

$$e^2 \frac{\hbar(\omega_s\omega)^{1/2} n^{1/2}}{2\epsilon_0 V} \frac{\mathbf{u}_{\mathbf{k}_s} \cdot \mathbf{D}_{fi} \mathbf{u}_{\mathbf{k}} \cdot \mathbf{D}_{i1}}{\omega_i - \omega} \quad (7.6-6)$$

同理可得(7.6-3)式大括号中的第二项为

$$e^2 \frac{\hbar(\omega_s\omega)^{1/2} n^{1/2}}{2\epsilon_0 V} \frac{\mathbf{u}_{\mathbf{k}_s} \cdot \mathbf{D}_{fi} \mathbf{u}_{\mathbf{k}} \cdot \mathbf{D}_{i1}}{\omega_i + \omega_s} \quad (7.6-7)$$

将(7.6-6)式和(7.6-7)式代入(7.6-3)式，最后可得跃迁速率的表示式为

$$\begin{aligned} \frac{1}{\tau} &= \sum_f \sum_{\mathbf{k}_s} \frac{\pi e^4 \omega_s \omega n}{2\hbar^2 \epsilon_0^2 V^2} \sum_i \left(\frac{\mathbf{u}_{\mathbf{k}_s} \cdot \mathbf{D}_{fi} \mathbf{u}_{\mathbf{k}} \cdot \mathbf{D}_{i1}}{\omega_i - \omega} + \frac{\mathbf{u}_{\mathbf{k}_s} \cdot \mathbf{D}_{fi} \mathbf{u}_{\mathbf{k}} \cdot \mathbf{D}_{i1}}{\omega_i + \omega_s} \right)^2 \\ &\quad \times \delta(\omega - \omega_s - \omega_f) \end{aligned} \quad (7.6-8)$$

式中已将 $\mathbf{u}_{\mathbf{k}}$ 和 $\mathbf{u}_{\mathbf{k}_s}$ 简化为 \mathbf{u} 和 \mathbf{u}_s ，它们分别是入射光子和散射光子的单位偏振矢量。

跃迁速率与散射截面 σ 之间的关系^[12]有

$$\sigma = \frac{V}{\tau n c} \quad (7.6-9)$$

式中 c 是光速， n 与 V 的意义和(7.6-8)式中的相同。

再利用求和 Σ 变换为积分时的变换关系

$$\sum_{\mathbf{k}_s} \rightarrow \frac{V}{(2\pi)^3} \iint \mathbf{k}'_s d\mathbf{k}_s d\Omega = \frac{V}{(2\pi)^3} \iint \frac{\omega^2}{c^3} d\omega_s d\Omega \quad (7.6-10)$$

式中 $d\Omega$ 为立体角元。因为(7.6-8)式的跃迁速率是对给定偏振态 u_s 的散射光子而言的，自然(7.6-10)式也只考虑了单个偏振态。

现将(7.6-10)式的求和代入(7.6-8)式，并利用 δ 函数的性质

$$\int_{\omega_1}^{\omega_2} f(\omega) \delta(\omega_0 - \omega) d\omega = f(\omega_0) \quad \omega_1 < \omega_0 < \omega_2$$

和(7.6-9)式，最后求得微分散射截面的表示式为

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \sum_f^{\omega_f < \omega} \frac{e^4 \omega(\omega - \omega_f)^3}{16\pi^2 \epsilon_0^2 \hbar^2 c^4} \sum_i \left(\frac{\mathbf{u}_s \cdot \mathbf{D}_{fi} \mathbf{u} \cdot \mathbf{D}_{i1}}{\omega_i - \omega} + \frac{\mathbf{u} \cdot \mathbf{D}_{fi} \mathbf{u}_s \cdot \mathbf{D}_{i1}}{\omega_i - \omega_f + \omega} \right)^2 \quad (7.6-11)$$

式中对 f 求和的限制为 $\omega_f < \omega$ ，那是因为(7.6-8)式中的 δ 函数只有在原子终态 $|f\rangle$ 的激发能量 $\hbar\omega_f$ 小于 $\hbar\omega$ 时才能满足。如果我们考虑到光子的两个独立的偏振态，那么两个独立的光子偏振态的贡献加起来便得到总的微分散射截面。

(7.6-11)式就是我们所要求的微分散射截面的克雷默斯-海森堡公式。这个公式除用来讨论上述非弹性的喇曼散射外，还可用来讨论弹性的瑞利散射，只是其中用 $\omega_f = 0$ 、 $f = 1$ 代入即可。

七、光子相干性

在下面具体讨论非线性光学现象时，我们将会看到非线性光学过程会破坏光束的统计独立性，以及一个 n 个光子同时被探测的过程与光的 n 阶相干度有关。因此在具体讨论有关非线性光学过程以前，需了解光子相干性的有关概念和规律。

1. 杨氏(Young's)实验和一阶相干度

图7-8表示简化了的杨氏干涉实验的示意图，从点源发出的混乱光被透镜变成平行光后，入射在含有两条狭缝或两个针孔的屏1上，在其右边第二个屏上出现干涉条纹，为简单起见，不考虑光源的有限大小(在严格处理实验的结果时，须考虑光源垂直于光轴上的有限大小对引起干涉条纹模糊的效应)。

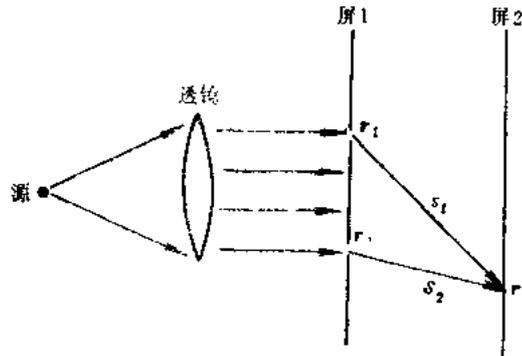


图7-8 理想的杨氏干涉实验的示意图

设 $E(\mathbf{r}, t)$ 是时刻 t 在观察屏上位置 \mathbf{r} 处总的辐射电场，这个场是较早时刻 t_1 和 t_2 在两个针孔处(位置 \mathbf{r}_1 和 \mathbf{r}_2)的电场的线性叠加，即

$$E(\mathbf{r}, t) = aE(\mathbf{r}_1, t_1) + bE(\mathbf{r}_2, t_2) \quad (7.7-1)$$

$$\text{式中} \quad t_1 = t - s_1/c, \quad t_2 = t - s_2/c \quad (7.7-2)$$

系数 a 和 b 分别与图7-8中所示的距离 s_1 和 s_2 成反比。

在位置 \mathbf{r} 处光的强度在一振荡周期内的平均值为

$$\begin{aligned} \bar{I}(\mathbf{r}, t) &= \frac{1}{2} \epsilon_0 c |E(\mathbf{r}, t)|^2 \\ &= \frac{1}{2} \epsilon_0 c \{ |a|^2 |E(\mathbf{r}_1, t_1)|^2 + |b|^2 |E(\mathbf{r}_2, t_2)|^2 \\ &\quad + 2a^* b \operatorname{Re}[E^*(\mathbf{r}_1, t_1) E(\mathbf{r}_2, t_2)] \} \quad (7.7-3) \end{aligned}$$

这里已利用了系数 a 和 b 具有纯虚数的形式^[18]。

杨氏干涉实验中的干涉条纹通常用照相板记录，或用肉眼观察。不管哪一种情况，总有一定的记录时间。因而所测量到的光的强度实际上是(7.7-3)式所表示的强度在记录时间内的平均值 $\langle \bar{I}(\mathbf{r}, t) \rangle$ 。这里符号 $\langle \rangle$ 表示对时间平均的意思。这样我们有

$$\begin{aligned} \bar{I}(\mathbf{r}) = \langle \bar{I}(\mathbf{r}, t) \rangle &= \frac{1}{2} \epsilon_0 c \{ |a|^2 \langle |E(\mathbf{r}_1, t_1)|^2 \rangle + |b|^2 \langle |E(\mathbf{r}_2, t_2)|^2 \rangle \\ &\quad + 2a^* b \operatorname{Re} \langle E^*(\mathbf{r}_1, t_1) E(\mathbf{r}_2, t_2) \rangle \} \quad (7.7-4) \end{aligned}$$

令

$$t_2 - t_1 = t_{21}, \quad (7.7-5)$$

则(7.7-4)式中 $\langle E^*(\mathbf{r}_1, t_1) E(\mathbf{r}_2, t_2) \rangle$ 明显的意义是

$$\begin{aligned} &\langle E^*(\mathbf{r}_1, t_1) E(\mathbf{r}_2, t_1 + t_{21}) \rangle \\ &= \lim_{T \rightarrow \infty} \frac{1}{T} \int_0^T E^*(\mathbf{r}_1, t_1) E(\mathbf{r}_2, t_1 + t_{21}) dt_1 \quad (7.7-6) \end{aligned}$$

这个平均值叫做在空间-时间点 (\mathbf{r}_1, t_1) 和 (\mathbf{r}_2, t_2) 场的一阶相关函数。由(7.7-4)式可见，在第二个屏上的强度由三部分贡献所组成。第一、二两项表示由每一个针孔在另一针孔不存在时所引起的强度，这两项不给出任何干涉效应。干涉条纹由第三项即两个针孔处的场的相关函数所确定。

适合于干涉实验的光束的性质可用所谓光的相干性来表示。如果在空间内或时间上的两点处的光在原则上能叠加而产生干涉效应的，则叫做光是相干的。杨氏干涉实验中的两个针孔处的光就是相干光的一个例子。具体干涉实验中干涉效应的大小用所谓光束的一阶相干度来描述，其定义是：在空间-时间点 (\mathbf{r}_1, t_1) 和 (\mathbf{r}_2, t_2) 处的光场之间的一阶相干度 $g^{(1)}(\mathbf{r}_1, t_1; \mathbf{r}_2, t_2)$ 为

$$g^{(1)}(\mathbf{r}_1, t_1; \mathbf{r}_2, t_2) = \frac{|\langle E^*(\mathbf{r}_1, t_1) E(\mathbf{r}_2, t_2) \rangle|}{(\langle |E(\mathbf{r}_1, t_1)|^2 \rangle \langle |E(\mathbf{r}_2, t_2)|^2 \rangle)^{1/2}} \quad (7.7-7)$$

或简写为 $g_{12}^{(1)}$ 。当场 $E(\mathbf{r}, t)$ 具有统计的性质时，式中符号 $\langle \rangle$ 表示系综平均。当 $g_{12}^{(1)} = 1$ 时，那我们说点 (\mathbf{r}_1, t_1) 和 (\mathbf{r}_2, t_2) 处的光是一阶相干的；如果 $g_{12}^{(1)} = 0$ ，则光是不相干的；对于 $0 < g_{12}^{(1)} < 1$ 的情况，则我们说点 (\mathbf{r}_1, t_1) 和 (\mathbf{r}_2, t_2) 处的光是部分一阶相干的。

2. 强度干涉及二阶相干度

我们现在讨论由汉伯里(Hanbury)-布朗(Brown)和特威斯(Twiss)所作的强度干涉

实验，实验装置示意图如图7-9所示。从汞弧灯发出的光经滤光后，除435.8nm的汞谱线以外，所有其它的谱线都被滤掉。用半镀银的分束镜(即半透明镜)将光束分成两部分，每一部分的光的强度都用光电倍增器探测。两个探测器输出的起伏被一起输入到相关器中，在长时间的观察时间内的积分值可提供强度起伏大小的一个量度。

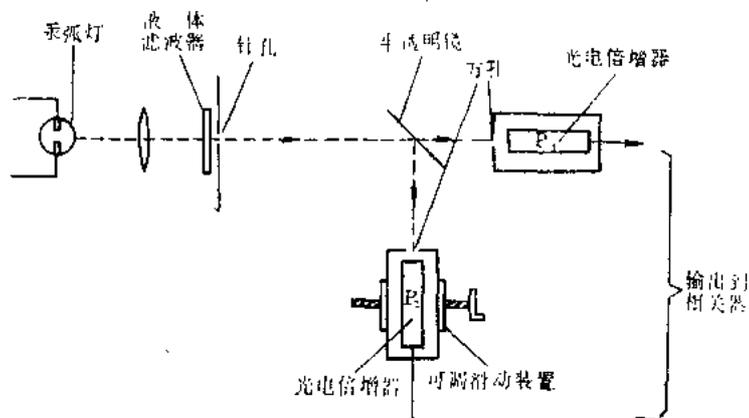


图 7-9 一个强度干涉实验中的主要部件的配置

一个探测器固定在一滑块上，所以其位置可以相对于固定的探测器侧向移动。这样，当通过针孔观察时，两个探测器的孔径可以重叠或完全分开。现假定两个探测器相对半镀银镜是对称放置的，半镀银镜恰好能产生两束相似的光束，假定每一束的周平均强度为 $\bar{I}(z, t)$ ，长时间的平均强度为 \bar{I} 。如果忽略探测器的有限响应时间，并假定实验能使两个探测器在不同时刻 t_1 和 t_2 所测量的瞬时强度起伏相关起来，则有

$$\langle (\bar{I}(z, t_1) - \bar{I})(\bar{I}(z, t_2) - \bar{I}) \rangle = \langle \bar{I}(z, t_1) \bar{I}(z, t_2) \rangle - \bar{I}^2. \quad (7.7-8)$$

这是因为 $\langle \bar{I}(z, t_1) \rangle = \langle \bar{I}(z, t_2) \rangle = \bar{I}$ (符号 $\langle \rangle$ 表示类似于(7.7-6)式的平均)。在这里从强度实验所引入的相关函数十分类似于从杨氏实验中所引入的相关函数，只是用光束强度代替电场。相关函数 $\langle \bar{I}(z, t_1) \bar{I}(z, t_2) \rangle$ 是更为一般形式

$$\begin{aligned} \langle \bar{I}(z_1, t_1) \bar{I}(z_2, t_2) \rangle &= \left(\frac{1}{2} \epsilon_0 c \right)^2 \langle |E(z_1, t_1)|^2 |E(z_2, t_2)|^2 \rangle \\ &= \left(\frac{1}{2} \epsilon_0 c \right)^2 \langle E^*(z_1, t_1) E^*(z_2, t_2) E(z_2, t_2) E(z_1, t_1) \rangle \end{aligned} \quad (7.7-9)$$

的一个特殊的情况，这叫做二阶相关函数。

类似于一阶相干度的定义，可定义在空间-时间点 (\mathbf{r}_1, t_1) 和 (\mathbf{r}_2, t_2) 处光场之间的二阶相干度为

$$\begin{aligned} g^{(2)}(\mathbf{r}_1, t_1; \mathbf{r}_2, t_2; \mathbf{r}_2, t_2; \mathbf{r}_1, t_1) &= g_{12}^{(2)} \\ &= \frac{\langle E^*(\mathbf{r}_1, t_1) E^*(\mathbf{r}_2, t_2) E(\mathbf{r}_2, t_2) E(\mathbf{r}_1, t_1) \rangle}{\langle |E(\mathbf{r}_1, t_1)|^2 \rangle \langle |E(\mathbf{r}_2, t_2)|^2 \rangle} \end{aligned} \quad (7.7-10)$$

这里的 $\langle \rangle$ 表示系综的平均。注意，这个函数是一个更普遍的二阶相干度的特殊情况，这个更普遍的情况是其中四个场是在不同的空间-时间点计算的。

如果

$$\left. \begin{aligned} g_{12}^{(2)} &= 1, \\ g_{12}^{(2)} &= 1, \end{aligned} \right\} \quad (7.7-11)$$

则点 (r_1, t_1) 和 (r_2, t_2) 处的光叫做二阶相干的。可以证明，对混乱光来说，它的二阶相干度与一阶相干度之间有一个简单的一般关系，即

$$g_{12}^{(2)} = (g_{12}^{(1)})^2 + 1. \quad (7.7-12)$$

这个结果与光的频率分布无关。对于一维的洛仑兹频率分布的混乱光来说有

$$g_{12}^{(2)} = \exp(-2\gamma|\tau| + 1); \quad (7.7-13)$$

对高斯频率分布的混乱光有

$$g_{12}^{(2)} = \exp(-\delta^2\tau^2) + 1. \quad (7.7-14)$$

式中 γ 是洛仑兹线型的线宽参数； δ 是高斯线型函数的均方根宽度； τ 是时间-空间点 (r_1, t_1) 和 (r_2, t_2) 处的场传到观察点的时间差。具有高斯和洛仑兹频率分布的混乱光的二阶相干度如图7-10所示(它们的线宽参数分别为 δ 和 γ)。图中虚线表示经典稳定波的二阶相干度，是恒定值，等于1。

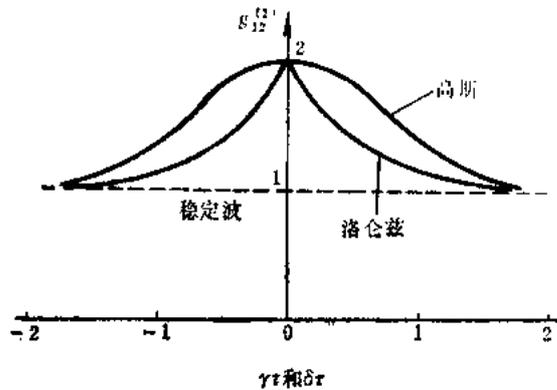


图 7-10 高斯和洛仑兹频率分布的混乱光以及经典稳定波的二阶相干度

3. n阶相干度

仿照杨氏干涉实验和强度干涉实验，如果我们想象一个一般的相干实验。在这个实验中，测量与任意个空间-时间点处电场相关的有关结果，则可引入n阶相干度的概念，其定义为

$$g^{(n)}(r_1, t_1, \dots, r_n, t_n; r_{n+1}, t_{n+1}, \dots, r_{2n}, t_{2n}) = \frac{|\langle E^*(r_1, t_1) \dots E^*(r_n, t_n) E(r_{n+1}, t_{n+1}) \dots E(r_{2n}, t_{2n}) \rangle|}{(\langle |E(r_1, t_1)|^2 \rangle \dots \langle |E(r_n, t_n)|^2 \rangle \langle |E(r_{n+1}, t_{n+1})|^2 \rangle \dots \langle |E(r_{2n}, t_{2n})|^2 \rangle)^{1/2}} \quad (7.7-15)$$

4. 相干度的量子理论表示式

在光子光学理论中，电场要用电场算符 $\hat{E}(r, t)$ 表示，它被分为两部分，即

$$\hat{E}(r, t) = \hat{E}^+(r, t) + \hat{E}^-(r, t) \quad (7.7-16)$$

式中

$$\hat{E}^+(r, t) = i \sum_k (\hbar\omega_k/2\epsilon_0 V)^{1/2} u_k \hat{a}_k \exp(-i\omega_k t + i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_1) \quad (7.7-17)$$

$$\hat{E}^-(\mathbf{r}_1, t_1) = -i \sum_{\mathbf{k}} (\hbar\omega_{\mathbf{k}}/2\epsilon_0 V)^{1/2} \mathbf{u}_{\mathbf{k}} \hat{a}_{\mathbf{k}} \exp(i\omega_{\mathbf{k}}t_1 - i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}_1). \quad (7.7-18)$$

这里 $\mathbf{u}_{\mathbf{k}}$ 是电场偏振方向的单位矢量, $\hat{a}_{\mathbf{k}}$ 和 $\hat{a}_{\mathbf{k}}^\dagger$ 分别是光子的湮灭算符和产生算符。

对单模的光束来说, 所有光子都具有相同的波矢 \mathbf{k} , 可观察的强度 I 为^[14]

$$\bar{I} = (2\epsilon_0 c^2 k / \omega_{\mathbf{k}}) \langle R | \hat{E}^-(\mathbf{r}_1, t_1) \hat{E}^+(\mathbf{r}_1, t_1) | R \rangle. \quad (7.7-19)$$

根据(7.7-17)式和(7.7-18)式, 对单模的情况有

$$\hat{E}^-(\mathbf{r}_1, t_1) \hat{E}^+(\mathbf{r}_1, t_1) = (\hbar\omega_{\mathbf{k}}/2\epsilon_0 V) \hat{a}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{a}_{\mathbf{k}} = (\hbar\omega_{\mathbf{k}}/2\epsilon_0 V) \hat{n}_{\mathbf{k}}. \quad (7.7-20)$$

这里 $\hat{n}_{\mathbf{k}}$ 是光子的数算符。如果光束中平均的光子数为 \bar{n} , 则有

$$\bar{n} = \langle R | \hat{n}_{\mathbf{k}} | R \rangle. \quad (7.7-21)$$

这样, 可观察强度(7.7-17)式变为

$$\bar{I} = (2\epsilon_0 c^2 k / \omega_{\mathbf{k}}) (\hbar\omega_{\mathbf{k}}/2\epsilon_0 V) \bar{n} = (c^2 \hbar k / V) \bar{n}. \quad (7.7-22)$$

由此应该明确, 由(7.7-19)式所定义的量子力学的光束强度与长时间平均的经典强度 \bar{I} 相类似。如果 \bar{n} 表示在统计混合态中的平均光子数, 则(7.7-22)式仍有效。

如果光束是多模的, 则可观察的强度 \bar{I} 为

$$\begin{aligned} \bar{I} &= (2\epsilon_0 c^2) \sum_R P_R \langle R | \hat{E}^-(\mathbf{r}_1, t_1) \hat{E}^+(\mathbf{r}_1, t_1) | R \rangle \\ &= (2\epsilon_0 c^2) \text{tr} \{ \hat{\rho} \hat{E}^-(\mathbf{r}_1, t_1) \hat{E}^+(\mathbf{r}_1, t_1) \}. \end{aligned} \quad (7.7-23)$$

式中 $\hat{\rho}$ 是密度算符, P_R 是与态 $|R\rangle$ 相联系的几率。

总之, 从经典观点, 光束的强度与 E^*E 的系综平均值成正比; 而从以上的讨论表明, 根据量子力学的观点, 光束强度与强度算符 $\hat{E}^-\hat{E}^+$ 的平均值成正比。这样, 类似于(7.7-7)、(7.7-10)式和(7.7-15)式, 相应的量子力学一阶、二阶和 n 阶相干度分别为

$$\begin{aligned} g^{(1)}(\mathbf{r}_1, t_1; \mathbf{r}_2, t_2) &= g_{12}^{(1)} \\ &= \frac{|\langle \hat{E}^-(\mathbf{r}_1, t_1) \hat{E}^+(\mathbf{r}_2, t_2) \rangle|}{(\langle \hat{E}^-(\mathbf{r}_1, t_1) \hat{E}^+(\mathbf{r}_1, t_1) \rangle \langle \hat{E}^-(\mathbf{r}_2, t_2) \hat{E}^+(\mathbf{r}_2, t_2) \rangle)^{1/2}}, \end{aligned} \quad (7.7-24)$$

$$\begin{aligned} g^{(2)}(\mathbf{r}_1, t_1; \mathbf{r}_2, t_2; \mathbf{r}_2, t_2; \mathbf{r}_1, t_1) &= g_{12}^{(2)} \\ &= \frac{|\langle \hat{E}^-(\mathbf{r}_1, t_1) \hat{E}^-(\mathbf{r}_2, t_2) \hat{E}^+(\mathbf{r}_2, t_2) \hat{E}^+(\mathbf{r}_1, t_1) \rangle|}{\langle \hat{E}^-(\mathbf{r}_1, t_1) \hat{E}^+(\mathbf{r}_1, t_1) \rangle \langle \hat{E}^-(\mathbf{r}_2, t_2) \hat{E}^+(\mathbf{r}_2, t_2) \rangle} \end{aligned} \quad (7.7-25)$$

和

$$\begin{aligned} g^{(n)}(\mathbf{r}_1, t_1; \dots; \mathbf{r}_n, t_n; \mathbf{r}_{n-1}, t_{n-1}; \dots; \mathbf{r}_2, t_2) \\ = \frac{|\langle \hat{E}^-(\mathbf{r}_1, t_1) \dots \hat{E}^-(\mathbf{r}_n, t_n) \hat{E}^+(\mathbf{r}_{n-1}, t_{n-1}) \dots \hat{E}^+(\mathbf{r}_2, t_2) \rangle|}{(\langle \hat{E}^-(\mathbf{r}_1, t_1) \hat{E}^+(\mathbf{r}_1, t_1) \rangle \dots \langle \hat{E}^-(\mathbf{r}_n, t_n) \hat{E}^+(\mathbf{r}_n, t_n) \rangle)^{1/2}}. \end{aligned} \quad (7.7-26)$$

式中

$$\langle \hat{E}^-(\mathbf{r}_1, t_1) \hat{E}^+(\mathbf{r}_2, t_2) \rangle = \text{tr} \{ \hat{\rho} \hat{E}^-(\mathbf{r}_1, t_1) \hat{E}^+(\mathbf{r}_2, t_2) \}. \quad (7.7-27)$$

其它有类似的关系 $\langle \hat{O} \rangle = \text{tr} \{ \hat{\rho} \hat{O} \}$ 。

最后要强调指出,由经典理论的相干度表示式变为量子理论相干度表示式时, $E^* I$ 必须用 $\hat{E}^+ \hat{E}^-$ 代替,而且具有 \hat{E}^+ 的电场算符总是排列在 \hat{E}^- 算符的右边。考虑到算符 \hat{E}^- 与光子的产生算符 \hat{a}^+ 相对应,所以光子湮灭算符总是在光子产生算符的右边。

八、双光子吸收(双光束)

1. 双光子吸收的跃迁速率

现假定有两束单模光束,频率和波矢分别为 ω_1 、 ω_2 和 k_1 、 k_2 ,按第六章双光子吸收的概念,这时物质同时吸收不同频率 ω_1 和 ω_2 的两个光子,其结果使原子从基态 $|1\rangle$ 激发到某个激发态 $|f\rangle$,激发能量为 $\hbar\omega_f$ 。在原子-辐射相互作用 $\hat{H}_I = \hat{H}_{ED} + \hat{H}_{V.I.}$ 的情况下,在一阶和二阶与时间有关的微扰理论中,对双光子吸收有贡献的三种可能的物理过程,如图7-11所示。

图7-11(a)表示一阶的过程,图(b)和图(c)表示二阶的过程。由图(a)所示过程产生的跃迁速率与由图(b)和图(c)所示过程产生的跃迁速率相比是很小的,可以忽略不计,这与上节分析光的散射的情况相类似。因而在相互作用哈密顿 \hat{H}_I 中只要保留电偶极相互作用部分即可,在现在的情况下有

$$\hat{H}_{ED} = e\mathbf{D} \cdot [\hat{\mathbf{E}}_1(\mathbf{r}) + \hat{\mathbf{E}}_2(\mathbf{r})]. \quad (7.8-1)$$

式中 $\hat{\mathbf{E}}_1(\mathbf{r})$ 和 $\hat{\mathbf{E}}_2(\mathbf{r})$ 分别是两束光在原子位置 \mathbf{r} 处的横向电场算符。双光子吸收是 \hat{H}_{ED} 的二阶贡献,光子湮灭算符 \hat{a}_1 和 \hat{a}_2 的次序有两种可能,即有 $\hat{a}_2 \hat{a}_1$ 和 $\hat{a}_1 \hat{a}_2$,它们分别与图7-11中图(b)、(c)相对应。

双光子吸收的跃迁速率可以直接由(7.5-31)式的二阶项

$$\frac{1}{\tau} = \frac{2\pi}{\hbar^2} \sum_f \frac{1}{\hbar} \sum_i \frac{\langle f | \hat{H}_{ED} | i \rangle \langle i | \hat{H}_{ED} | u \rangle}{\omega_u - \omega_f} \delta(\omega_u - \omega_f) \quad (7.8-2)$$

求得。如果我们假定在双光子吸收前后辐射场的态用 $|R\rangle$ 和 $|R_f\rangle$ 表示,则对于图7-11(b)来说,(7.8-2)式模平方中的求和项可以写为

$$\frac{1}{\hbar} \sum_{R_i} \sum_i \frac{\langle R_f, f | e\mathbf{D} \cdot \hat{\mathbf{E}}_2^+(\mathbf{r}) | R_i, i \rangle \langle R_i, i | e\mathbf{D} \cdot \hat{\mathbf{E}}_1^+(\mathbf{r}) | R, 1 \rangle}{\omega_1 - \omega_f}, \quad (7.8-3)$$

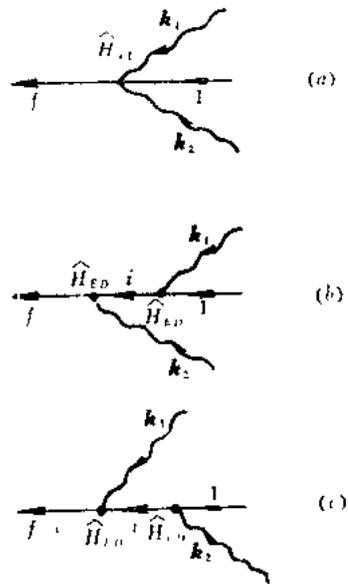


图7-11 在一阶和二阶与时间有关的微扰理论中,对双光子吸收有贡献的三种可能的物理过程的图解表示

式中 \hat{E}_2^\dagger 和 \hat{E}_1 分别与频率为 ω_2 和 ω_1 的光子的湮灭算符 \hat{a}_2 和 \hat{a}_1 相对应。 $|R_f\rangle$ 和 $|i\rangle$ 是辐射场和原子的中间态。

类似地对于图7-11(c)的过程来说, (7.8-2)式模平方中的求和项可以写为

$$\frac{1}{\hbar} \sum_{R_f} \sum_i \frac{\langle R_f | f | e \mathbf{D} \cdot \hat{E}_1^\dagger(\mathbf{r}) | R_i \rangle \langle R_i | i | e \mathbf{D} \cdot \hat{E}_2^\dagger(\mathbf{r}) | R \rangle}{\omega_2 - \omega_i} \quad (7.8-4)$$

此外, (7.8-2)式中的 $\delta(\omega_u - \omega_f)$ 在双光子吸收的情况下为

$$\delta(\omega_u - \omega_f) = \delta(\omega_1 + \omega_2 - \omega_f) \quad (7.8-5)$$

现将(7.8-3)~(7.8-5)式代入(7.8-2)式, 则(7.8-2)式变为

$$\begin{aligned} \frac{1}{\tau} = & \frac{2\pi e^4}{\hbar^4} \sum_{R_f} \left| \sum_{R_i} \sum_i \frac{\langle R_f | f | \mathbf{D} \cdot \hat{E}_1^\dagger(\mathbf{r}) | R_i \rangle \langle R_i | i | \mathbf{D} \cdot \hat{E}_2^\dagger(\mathbf{r}) | R \rangle}{\omega_1 - \omega_i} \right. \\ & \left. + \frac{\langle R_f | f | \mathbf{D} \cdot \hat{E}_2^\dagger(\mathbf{r}) | R_i \rangle \langle R_i | i | \mathbf{D} \cdot \hat{E}_1^\dagger(\mathbf{r}) | R \rangle}{\omega_2 - \omega_i} \right|^2 \delta(\omega_1 + \omega_2 - \omega_f) \quad (7.7-6) \end{aligned}$$

由上式我们可以看到, 式中因子 $\langle R_f | f | \mathbf{D} \cdot \hat{E}_2^\dagger(\mathbf{r}) | R_i \rangle$ 可以写成

$$\begin{aligned} \langle R_f | f | \mathbf{D} \cdot \hat{E}_2^\dagger(\mathbf{r}) | R_i \rangle &= \langle R_f | f | \mathbf{D} \cdot \mathbf{u}_2 \hat{E}_2^\dagger(\mathbf{r}) | R_i \rangle \\ &= \langle R_f | \hat{E}_2^\dagger(\mathbf{r}) | R_i \rangle \langle f | \mathbf{D} \cdot \mathbf{u}_2 | i \rangle = \langle R_f | \hat{E}_2^\dagger | R_i \rangle \mathbf{D}_{fi} \cdot \mathbf{u}_2 \quad (7.8-7) \end{aligned}$$

式中 \mathbf{u}_2 是第二束光的单位偏振矢量。现在矩阵元 $\langle R_f | f | \mathbf{D} \cdot \hat{E}_2^\dagger(\mathbf{r}) | R_i \rangle$ 已分成两部分,

即属于原子的部分 $\mathbf{D}_{fi} \cdot \mathbf{u}_2$ 和属于辐射场的部分 $\langle R_f | \hat{E}_2^\dagger | R_i \rangle$ 。

对于(7.8-6)式中的其它矩阵元因子, 也有相类似的关系。

这样, 当我们把(7.8-6)式中的各矩阵元用类似于(7.8-7)式的关系代入后, (7.8-6)式便变为

$$\begin{aligned} \frac{1}{\tau} = & \frac{2\pi e^4}{\hbar^4} \sum_{R_f} \left| \sum_{R_i} \sum_i \frac{\langle R_f | \hat{E}_2^\dagger(\mathbf{r}) | R_i \rangle \langle R_i | \hat{E}_1^\dagger(\mathbf{r}) | R \rangle \mathbf{D}_{fi} \cdot \mathbf{u}_2 \mathbf{D}_{i1} \cdot \mathbf{u}_1}{\omega_1 - \omega_i} \right. \\ & \left. + \frac{\langle R_f | \hat{E}_1^\dagger(\mathbf{r}) | R_i \rangle \langle R_i | \hat{E}_2^\dagger(\mathbf{r}) | R \rangle \mathbf{D}_{fi} \cdot \mathbf{u}_1 \mathbf{D}_{i1} \cdot \mathbf{u}_2}{\omega_2 - \omega_i} \right|^2 \delta(\omega_1 + \omega_2 - \omega_f) \quad (7.8-8) \end{aligned}$$

现将封闭定理

$$\sum_i |R_i\rangle \langle R_i| = 1 \quad (7.8-9)$$

应用于(7.8-8)式, 给出

$$\begin{aligned} \frac{1}{\tau} = & \frac{2\pi e^4}{\hbar^4} \sum_{R_f} \left| \sum_i \frac{\langle R_f | \hat{E}_2^\dagger(\mathbf{r}) \hat{E}_1^\dagger(\mathbf{r}) | R \rangle \mathbf{D}_{fi} \cdot \mathbf{u}_2 \mathbf{D}_{i1} \cdot \mathbf{u}_1}{\omega_1 - \omega_i} \right. \\ & \left. + \frac{\langle R_f | \hat{E}_1^\dagger(\mathbf{r}) \hat{E}_2^\dagger(\mathbf{r}) | R \rangle \mathbf{D}_{fi} \cdot \mathbf{u}_1 \mathbf{D}_{i1} \cdot \mathbf{u}_2}{\omega_2 - \omega_i} \right|^2 \delta(\omega_1 + \omega_2 - \omega_f) \end{aligned}$$

$$= \frac{2\pi e^4}{\hbar^4} \langle R | \hat{E}_1^-(r) \hat{E}_2^-(r) \hat{E}_1^+(r) \hat{E}_2^+(r) | R \rangle$$

$$\times \left| \sum_i \left(\frac{\mathbf{D}_{fi} \cdot \mathbf{u}_2 \mathbf{D}_{i1} \cdot \mathbf{u}_1}{\omega_1 - \omega_i} + \frac{\mathbf{D}_{fi} \cdot \mathbf{u}_1 \mathbf{D}_{i1} \cdot \mathbf{u}_2}{\omega_2 - \omega_i} \right) \delta(\omega_1 + \omega_2 - \omega_f) \right|^2 \quad (7.8-10)$$

式中 \mathbf{u}_1 和 \mathbf{u}_2 分别是两束光的单位偏振矢量。在给出(7.8-10)式时已利用类似

$$\sum_f \langle R | \hat{E}^-(r_f) | R \rangle^2$$

$$= \sum_f \langle R | \hat{E}^-(r) | R_f \rangle \langle R_f | \hat{E}^+(r) | R \rangle \quad (7.8-11)$$

的运算。如令

$$M_{Tf1} = \sum_i \left(\frac{\mathbf{D}_{fi} \cdot \mathbf{u}_2 \mathbf{D}_{i1} \cdot \mathbf{u}_1}{\omega_1 - \omega_i} + \frac{\mathbf{D}_{fi} \cdot \mathbf{u}_1 \mathbf{D}_{i1} \cdot \mathbf{u}_2}{\omega_2 - \omega_i} \right), \quad (7.8-12)$$

则(7.8-10)式变为

$$\frac{1}{\tau} = \frac{2\pi e^4}{\hbar^4} |M_{Tf1}|^2 \delta(\omega_1 + \omega_2 - \omega_f) \langle R | \hat{E}_1^-(r) \hat{E}_2^-(r) \hat{E}_1^+(r) \hat{E}_2^+(r) | R \rangle. \quad (7.8-13)$$

要注意, (7.8-13)式是对于辐射场的原始态为一个纯粹态而言的。如果辐射场的原始态不是纯粹态而是一个统计混合态, 那么(7.8-13)式中的因子 $\langle R | \hat{E}_1^-(r) \hat{E}_2^-(r) \hat{E}_1^+(r) \hat{E}_2^+(r) | R \rangle$ 要用 $\text{tr}\{\hat{\rho} \hat{E}_1^-(r) \hat{E}_2^-(r) \hat{E}_1^+(r) \hat{E}_2^+(r)\}$ 代替, 式中 $\hat{\rho}$ 是密度算符。这样, 在辐射场是统计混合态的情况下, (7.8-13)式变为

$$\frac{1}{\tau} = \frac{2\pi e^4}{\hbar^4} |M_{Tf1}|^2 \delta(\omega_1 + \omega_2 - \omega_f) \text{tr}\{\hat{\rho} \hat{E}_1^-(r) \hat{E}_2^-(r) \hat{E}_1^+(r) \hat{E}_2^+(r)\}. \quad (7.8-14)$$

如果我们考虑到态 $|f\rangle$ 的辐射寿命, 则按(7.5-23)式将(7.8-14)式中的 δ 函数变为如下的洛仑兹线型函数:

$$\delta(\omega_1 + \omega_2 - \omega_f) \longrightarrow \frac{\gamma_f/\pi}{(\omega_f - \omega_1 - \omega_2)^2 + \gamma_f^2}. \quad (7.8-15)$$

式中 γ_f 是能级 f 的线宽参数。在(7.8-12)式中, 当然也可以引入中间态的线宽参数, 但在这里引不引入并不重要, 因为对双光子吸收来说, 我们已限制了入射光频率 ω_1 和 ω_2 不能与任何的原子激发频率 ω_i 相接近。

由(7.8-12)式我们可以看到, 电偶极矩阵元 \mathbf{D}_{fi} 和 \mathbf{D}_{i1} 不为零的条件是态 $|f\rangle$ 和态 $|i\rangle$ 、态 $|i\rangle$ 和态 $|1\rangle$ 具有相反的宇称, 因而只有原子终态 $|f\rangle$ 和基态 $|1\rangle$ 具有相同的宇称时, 跃迁速率才不为零。这一点与单光子电偶极吸收不同, 它的原子终态与基态必须有相反的宇称。所以双光子吸收现象中原子态 $|f\rangle$ 的选择定则就是原子终态 $|f\rangle$ 和原子基态具有相同的宇称。此外, 矩阵元的大小 M_{Tf1} 还与场的偏振方向 \mathbf{u}_1 和 \mathbf{u}_2 有关, 所以即使态 $|f\rangle$ 满足双光子吸收的选择定则, 当单位偏振矢量 \mathbf{u}_1 和 \mathbf{u}_2 作某种取向时, 还可能使 M_{Tf1} 等于零。

2. 两光束的传播特性

现假定两束光都沿 z 轴传播, 并令 \bar{I}_1 和 \bar{I}_2 是在坐标 z 处光束的平均强度, 因为光束强

度的空间变化率等于光束能量密度的时间变化率，故

$$\frac{\partial \bar{I}_1}{\partial z} = -N\hbar\omega_1/V\tau, \quad (7.8-16)$$

$$\frac{\partial \bar{I}_2}{\partial z} = -N\hbar\omega_2/V\tau. \quad (7.8-17)$$

式中 N 是体积 V 中的原子数， $1/\tau$ 可由(7.8-13)式给出，只是该式中的 $|M_{TPA}|^2$ 要对原子和分子的不规则取向求平均，即用 $[\overline{|M_{TPA}|^2}]$ 代替 $|M_{TPA}|^2$ 。实际上在非线性光学中要计算取向平均常常是非常麻烦的，一般只给出符号表示。

设光在传播过程中没有线性吸收，其衰减只是由于双光子吸收所引起。即使如此，由(7.8-16)式和(7.8-17)式以及(7.8-14)式可知，一般讲求解(7.8-16)式和(7.8-17)式是很困难的，因为 $1/\tau$ 与两束光的电场有着非常复杂的关系。不过，如果两束光是统计独立的，则求解就简单了，因为这时可以将(7.8-14)式中的迹用两束光的平均强度的乘积来表示。在这种情况下，利用(7.7-23)式可得

$$\text{tr}\{\hat{\rho} \hat{E}_1 \hat{E}_2 \hat{E}_1 \hat{E}_2\} = \frac{\omega_1 \omega_2}{4\epsilon_0^2 c^4 k_1 k_2} \bar{I}_1 \bar{I}_2. \quad (7.8-18)$$

通常在双光子吸收实验中所用的光束来自不同的光源，因为它们到达吸收气体前自然是相互统计独立的。不过在以后将会了解，非线性过程会破坏光束的统计独立性，这样，当双光子吸收过程继续进行时，(7.8-18)式就不再严格保持有效。但是当吸收比较弱的情况下，这还是一个很好的近似，这也就是我们在这里所要考虑的情况。

在双光子吸收速率比较小以及可忽略频率 ω_1 和 ω_2 处的线性吸收的情况下，有

$$k_1 c = n_1 \omega_1, \quad (7.8-19)$$

$$k_2 c = n_2 \omega_2. \quad (7.8-20)$$

式中 n_1 和 n_2 分别为频率是 ω_1 和 ω_2 的光的折射率。

将(7.7-18)式代入(7.7-14)式后再代入(7.7-16)式给出

$$\frac{\partial \bar{I}_1}{\partial z} = -\frac{\pi e^4}{2\epsilon_0^2 \hbar^3 c^4} \frac{N}{V} \frac{\omega_1^2 \omega_2}{k_1 k_2} |\overline{|M_{TPA}|^2}| \delta(\omega_1 + \omega_2 - \omega_f) \bar{I}_1 \bar{I}_2. \quad (7.8-21)$$

同理可得

$$\frac{\partial \bar{I}_2}{\partial z} = -\frac{\pi e^4}{2\epsilon_0^2 \hbar^3 c^4} \frac{N}{V} \frac{\omega_1 \omega_2^2}{k_1 k_2} |\overline{|M_{TPA}|^2}| \delta(\omega_1 + \omega_2 - \omega_f) \bar{I}_1 \bar{I}_2. \quad (7.8-22)$$

(7.8-21)式和(7.8-22)式是关于 \bar{I}_1 和 \bar{I}_2 的一对耦合方程。由(7.8-16)式和(7.8-17)式或(7.8-21)式和(7.8-22)式可得 $\partial \bar{I}_1 / \partial z$ 和 $\partial \bar{I}_2 / \partial z$ 之间有如下关系：

$$\frac{1}{\omega_1} \frac{\partial \bar{I}_1}{\partial z} = \frac{1}{\omega_2} \frac{\partial \bar{I}_2}{\partial z}. \quad (7.8-23)$$

由此立即可得

$$\frac{\bar{I}_1}{\omega_1} - \frac{\bar{I}_2}{\omega_2} = \text{常数} = \frac{\bar{I}_{10}}{\omega_1} - \frac{\bar{I}_{20}}{\omega_2}. \quad (7.8-24)$$

式中 \bar{I}_{10} 和 \bar{I}_{20} 分别是 $z=0$ 处的（光束进入吸收介质时的位置）两束光的平均光强。这结果

与第六章中所讨论的结果是一样的。现在利用(7.8-24)式将(7.8-22)式中的 \bar{I}_2 消去便得到 I_1 的一个微分方程

$$\frac{\partial \bar{I}_1}{\partial z} = -K_2 \left\{ \frac{\bar{I}_1}{\omega_1 \left(\frac{\bar{I}_{10}}{\omega_1} - \frac{\bar{I}_{20}}{\omega_2} \right)} - \bar{I}_1 \right\}, \quad (7.8-25)$$

利用积分

$$\int \frac{dx}{x(a+bx)} = -\frac{1}{a} \ln \frac{a+bx}{x},$$

可求得(7.8-25)式的解为

$$\bar{I}_1 = \bar{I}_{10} \frac{(I_{10}/\omega_1) - (I_{20}/\omega_2)}{(I_{10}/\omega_1) - (\bar{I}_{20}/\omega_2) \exp(-K_2 z)}, \quad (7.8-26)$$

以及由(7.8-24)式求得

$$\bar{I}_2 = \bar{I}_{20} \frac{\{(I_{10}/\omega_1) - (I_{20}/\omega_2)\} \exp(-K_2 z)}{(I_{10}/\omega_1) - (\bar{I}_{20}/\omega_2) \exp(-K_2 z)} \quad (7.8-27)$$

式中 K_2 是双光子吸收系数,有

$$K_2 = \frac{\pi e^4}{2\epsilon_0^2 \hbar^2 c^4} \frac{N}{V} \frac{\omega_1^2 \omega_2^2}{k_1 k_2} |M_{TFA}|^2 \delta(\omega_1 + \omega_2 - \omega_f) \left(\frac{\bar{I}_{10}}{\omega_1} - \frac{\bar{I}_{20}}{\omega_2} \right). \quad (7.8-28)$$

在导出上述结果时,实际上已假定了光束1有较大的光子通量,即(7.8-24)式中的常数是正的;并且还已假定了双光子吸收是很弱的,因而可以不考虑原子跃迁的饱和效应;以及 N 个原子都处于基态。

解(7.8-26)式和(7.8-27)式对两束入射光有相同的光子通量的情况也是有效的,但是这时必须小心地计算 \bar{I}_{20}/ω_2 趋于 \bar{I}_{10}/ω_1 极限时的情况。

解(7.8-26)式和(7.8-27)式所预示的光束强度随空间变化的规律如图7-12所示。这与图6-9所示的规律是一致的。

比较(6.4-20)式和(7.8-27)式可见 $l_{T,2} = 1/K_2$ 。

在许多双光子吸收的实验中,较强的光束是利用频率固定的激光,较弱的光束是混乱光,因而其频率是可变的,这可以用来检验双光子吸收谱的详细情况。因为这时光束1比光束2强得多,因此即使光束2完全被抽空时,光束1的强度的减少是很少的,所以在很好的近似下,(7.8-27)式变为

$$\bar{I}_2 = \bar{I}_{20} \exp(-K_2 z), \quad (7.8-29)$$

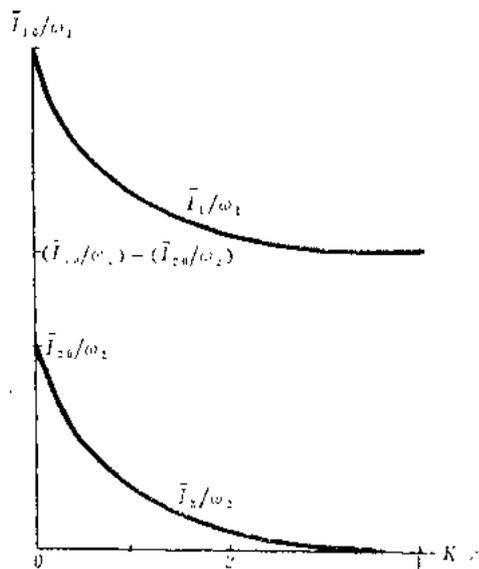


图7-12 双光子吸收的光束强度与距离的关系。垂直标度正比于光束的光子通量(单位时间通过单位面积的光子数),两束光的光子通量差与 z 无关

并且在双光子吸收系数 K_2 的表示式中可将 \bar{I}_{20} 忽略。这样,在这极限下,光束2的强度的变化规律与通常的线性吸收的规律相类似。想要从实验上观察到双光子吸收的现象,只有 K_2 尽可能的大才行,也就是必须利用高强度的激光束(其它条件不变)。

九、双光子吸收(单光束)

在只存在一光束的情况下,也可能发生双光子吸收的现象(这在第六章中已经说明过)。这时两个被吸收的光子是不可区分的,那么图7-11中的(b)和(c)不再有差别,这样(7.8-14)式便变为

$$\frac{1}{\tau} = \frac{2\pi e^4}{\hbar^4} \sum_i \frac{\mathbf{D}_{J_2} \cdot \mathbf{u}_1 \mathbf{D}_{J_1} \cdot \mathbf{u}_1}{\omega - \omega_i} \delta(2\omega_1 - \omega_f) \times \text{tr}\{\hat{\rho} \hat{E}_1^-(\mathbf{r}) \hat{E}_1^-(\mathbf{r}) \hat{E}_1^+(\mathbf{r}) \hat{E}_1^+(\mathbf{r})\}. \quad (7.9-1)$$

现利用(7.7-23)、(7.7-25)式和(7.7-27)式,则(7.9-1)式中的迹可写为

$$\text{tr}\{\hat{\rho} \hat{E}_1^-(\mathbf{r}) \hat{E}_1^-(\mathbf{r}) \hat{E}_1^+(\mathbf{r}) \hat{E}_1^+(\mathbf{r})\} = \frac{\omega_1^2}{4\epsilon_0^2 c^4 k_1^2} g^{(2)}(\mathbf{r}) \bar{I}_1. \quad (7.9-2)$$

这里出现了二阶相干度 $g^{(2)}$,这是与双光束的双光子吸收的主要差别。从(7.9-2)式可以看到从一束光中同时吸收两个光子的速率与二阶相干度有关。在下面我们讨论三次谐波产生时,又会看到从一束光中同时吸收三个光子并伴随发射一个三次谐波光子的速率与三阶相干度 $g^{(3)}$ 成正比。由此可推知, n 个光子同时被探测的过程与 n 阶相干度有关。

和双光束双光子吸收一样,假定光束沿 z 轴传播,其强度的变化规律满足类似于(7.8-16)式的方程,只是现在每发生一次双光子吸收时需要从同一光束中取走两个光子,因此有

$$\frac{\partial \bar{I}_1}{\partial z} = -2N\hbar\omega_1/V\tau. \quad (7.9-3)$$

利用方程(7.9-1)式和(7.9-2)式,(7.9-3)式可写为

$$\frac{\partial \bar{I}_1}{\partial z} = -K'_2 g^{(2)}(z) (\bar{I}_1)^2 / 2\bar{I}_{10}. \quad (7.9-4)$$

式中

$$K'_2 = \frac{4\pi e^4}{2\epsilon_0^2 \hbar^3 c^4} \frac{N}{V} \frac{\omega_1^4}{k_1^2} \left[\sum_i \frac{|\mathbf{D}_{J_2} \cdot \mathbf{u}_1 \mathbf{D}_{J_1} \cdot \mathbf{u}_1|^2}{\omega_1 - \omega_i} \right] \times \delta(2\omega_1 - \omega_f) \frac{\bar{I}_{10}}{\omega_1}. \quad (7.9-5)$$

这个表示式中的顶上一横仍表示对原子取向的平均,而且严格地应将 δ 函数用辐射增宽的洛仑兹线型来代替,如(7.8-15)式所示。应该指出,如果在双光束双光子吸收系数 K_2 的关系中略去 \bar{I}_{20} ,并令光束1和光束2等同,则 K_2 就是这里的 K'_2 。

由于(7.9-4)式中的二阶相干度一般讲是 z 的函数,因而求解该式是很困难的。如暂时

认为 $g^{(2)}$ 是常数，则其解为

$$\bar{I}_1 = \bar{I}_{10} \left(1 + \frac{1}{2} g^{(2)} K_2' z \right)^{-1} \quad (7.9-6)$$

或对于小的吸收情况来说有

$$\bar{I}_1 \approx \bar{I}_{10} \left(1 - \frac{1}{2} g^{(2)} K_2' z \right) \quad (7.9-7)$$

(7.9-6)式和(7.9-7)式表明单光束的双光子吸收速率与二阶相干度 $g^{(2)}$ 有关，其实质也就是与光的统计性质有关。关于相干光和混乱光的二阶相干度已由图7-10给出。由此可见，对于小的 z 而言，吸收单模混乱光光子的速率二倍于吸收相干光光子的速率。

双光子吸收的速率与二阶相干度大小有关，这可以定性地说明如下。因为二阶相干度 $g^{(2)}$ 与瞬时光强度的起伏有关，而且又因为双光子吸收的速率与原有一辐射相互作用时刻的强度平方成正比，因此强度起伏到较高值的光束，双光子吸收增强。例如在某一时间间隔 t 内光束的强度分布如下：在 $t=0 \sim t/2$ 的时间间隔内，光的强度为 $2\bar{I}$ ，在 $t/2 \sim t$ 的时间间隔内光的强度为零（在整个时间间隔 t 内光的强度平均值为 \bar{I} ），这种光束的双光子吸收的速率比在 $t=0 \sim t$ 整个时间间隔

内瞬时光强度都是 \bar{I} 的光束的双光子吸收速率大一倍。图7-13^[15]表示混乱光双光子吸收的情况，图(a)表示原始的一个瞬时光强度随时间起伏的混乱光；图(b)表示通过双光子吸收介质后光束强度起伏的情况；图(c)表示双光子吸收介质厚度增加后混乱光强度起伏的情况（三个图都取自同一段时间间隔内的光束，而且不同部分光束的相对时间位置相同）。由图可见，双光子吸收或光束的衰减优先发生在强度变化最大的时刻，而在低强度时双光子吸收小到可以忽略不计。这种特点与单光子吸收的规律完全不同，后者不管强度如何，都是按一定因子减小的。

由图7-13可见，双光子吸收能使强度起伏平滑，从而改变未被吸收的那部分光束的统计性质，特别是由于明显的双光子吸收而改变了二阶相干度 $g^{(2)}$ 的大小。这样，我们导出(7.9-6)式的分析基础便变得无效。更一般的情况是，在用不同光束产生的双光子吸收现象中，双光子吸收使两束光之间的统计独

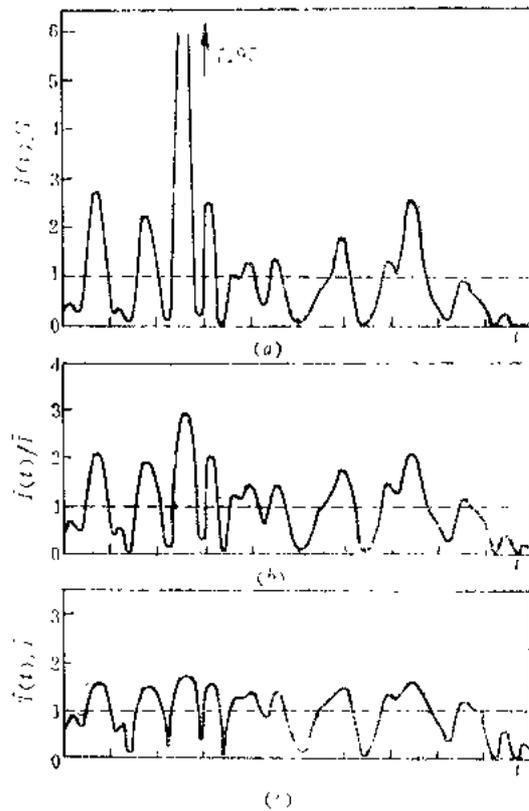


图7-13 双光子吸收对混乱光束强度起伏的影响
(a)吸收发生前的情况；
(b)在吸收路程长度 $(K_2')^{-1}$ 之后的情况；
(c)在吸收路程长度 $4(K_2')^{-1}$ 之后的情况

立性破坏,因此当 $K_0 \approx 1$ 或大于1时,原来所得的结果(7.8-26)式和(7.8-27)式需要改变。但讨论这些效应的理论^[10]是十分复杂的。

十、受激喇曼散射

除第六章中利用经典电磁理论讨论受激喇曼散射外,还可以利用普拉蔡克(Placzek)的半唯象描述和本章的理论来讨论受激喇曼散射,现分别讨论如下:

1. 普拉蔡克的半唯象描述

对给定的电子组态,一个分子的势能是简正振动坐标 X 的函数,用 $V(X)$ 表示。例如,对 H_2 分子来说, X 就是原子间的距离。 $V(X)$ 可表示为

$$V(X) = aX^2 + bX^3 + \dots \quad (7.10-1)$$

$X=0$ 的位置是平衡位置。由量子力学已知,谐振子的薛定谔方程的解给出一系列等间隔的振动能级,能量为

$$E_v = h\omega \left(v + \frac{1}{2} \right) \quad (7.10-2)$$

一般情况下,(7.10-1)式中的高次项是不能忽略的,这样,非谐振子的能级公式要复杂一些。当一个分子受到外加电场 E 的作用时,产生的感应电偶极矩为 $p_i = \epsilon_0 \alpha E$,式中 α 是分子极化率,如果分子是刚性的,可以认为 α 是常数。但对一个振动的分子来说,显然 α 是简正振动坐标 X 的函数,即有 $\alpha(X)$ 。如展开 $\alpha(X)$,并只取展开式中头两项,即

$$\alpha(X) = \alpha_0 + \left(\frac{\partial \alpha}{\partial X} \right)_0 X \quad (7.10-3)$$

式中 $\left(\frac{\partial \alpha}{\partial X} \right)_0$ 叫做微分极化率。此外,对一个非对称的分子来说,它还具有一个永久电偶极矩 p_0 ,它也是 X 的函数。如也取展开式中的头两项,则有

$$p_0(X) = p_0^0 + \left(\frac{\partial p_0}{\partial X} \right)_0 X \quad (7.10-4)$$

当我们研究分子与辐射场之间的相互作用并在振动能级之间发生跃迁的情况时,我们要考虑的微扰哈密顿为

$$\begin{aligned} \hat{H}' &= -\mathbf{p} \cdot \mathbf{E} \\ &= - \left[p_0^0 + \left(\frac{\partial p_0}{\partial X} \right)_0 X + \epsilon_0 \alpha_0 E + \epsilon_0 \left(\frac{\partial \alpha}{\partial X} \right)_0 X E \right] E \end{aligned} \quad (7.10-5)$$

(7.10-5)式中右边第一项和第三项与 X 无关,因而它们不可能引起在相邻振动能级之间的跃迁,因为本征函数 $\psi_n(X)$ 是相互正交的。式中右边第二项直接引起频率为 ω_0 的红外吸收。最后一项才是产生喇曼散射的项,即

$$H_{\text{喇曼}} = - \left(\frac{\partial \alpha}{\partial X} \right)_0 \epsilon_0 X E^2 \quad (7.10-6)$$

为说明这一点, 我们考虑由两个频率分量所组成的电场

$$E = E_p \cos \omega_p t + E_s \cos \omega_s t . \quad (7.10-7)$$

将(7.3-10)式和(7.1-29)式应用于平面波的情况时, 可以给出平面波量子化的场方程为

$$E_{py} = -i \sqrt{\frac{\hbar \omega_p}{V \epsilon}} (\hat{a}_p^\dagger - \hat{a}_p) \sin k_p z , \quad (7.10-8)$$

$$H_{pz} = \dots \sqrt{\frac{\hbar \omega_p}{V \mu}} (\hat{a}_p^\dagger + \hat{a}_p) \cos k_p z . \quad (7.10-9)$$

将(7.10-8)式代入(7.10-7)式, 可给出 E 的形式为

$$E = A(\hat{a}_p^\dagger - \hat{a}_p) \omega_p^{1/2} + B(\hat{a}_s^\dagger - \hat{a}_s) \omega_s^{1/2} . \quad (7.10-10)$$

式中 \hat{a}^\dagger 和 \hat{a} 分别是光子的产生算符和湮灭算符。此外, 由(7.1-28)式可知谐振子的简正坐标

$$X \propto (\hat{a}_s^\dagger + \hat{a}_s) . \quad (7.10-11)$$

式中 \hat{a}_s^\dagger 和 \hat{a}_s 分别是谐振子的产生算符和湮灭算符。现将(7.10-10)式和(7.10-11)式代入(7.10-6)式后, 给出

$$\hat{H}_{喇曼} \propto (\hat{a}_p^\dagger + \hat{a}_p) (A \omega_p^{1/2} (\hat{a}_p^\dagger - \hat{a}_p) + B \omega_s^{1/2} (\hat{a}_s^\dagger - \hat{a}_s))^2 . \quad (7.10-12)$$

式中含有 $\hat{a}_p \hat{a}_s^\dagger \hat{a}_s^\dagger$ 的项, 这正是表示发射一个斯托克斯光子过程的项。

现设发射斯托克斯光子的速率为 $W_{发射}$, 则有

$$W_{发射} \propto |\langle n_p - 1, n_s + 1 | \hat{a}_p \hat{a}_s^\dagger \hat{a}_s^\dagger | n_p, n_s, 0 \rangle|^2 = n_p (n_s + 1) . \quad (7.10-13)$$

式中 n_s 和 n_p 分别表示斯托克斯和激光辐射模的光子数。(7.10-13)式所表示的过程由图6-11(a)描述。与上述过程相反的过程(图6-11(b)所示)是吸收一个 ω_s 的光子并发射一个 ω_p 的激光光子的过程。设吸收率为 $W_{吸收}$, 则有

$$W_{吸收} \propto |\langle n_p + 1, n_s - 1 | \hat{a}_p^\dagger \hat{a}_s \hat{a}_s | n_p, n_s, 1 \rangle|^2 = (n_p + 1) n_s . \quad (7.10-14)$$

由此可见, 当媒质中同时存在频率为 ω_p 和 ω_s 的辐射时, 有产生斯托克斯光子的正过程, 也有吸收 ω_s 光子并发射 ω_p 光子的逆过程。现假定分子处于基态 $v=0$ 和激发态 $v=1$ 的几率分别为 P_a 和 P_b , 则根据(7.10-13)式和(7.10-14)式有

$$\frac{dn_s}{dt} = DP_a n_p (n_s + 1) - DP_b n_s (n_p + 1) . \quad (7.10-15)$$

式中 D 是待定常数。因为光子数是守恒的, 应有

$$\frac{dn_p}{dt} = -\frac{dn_s}{dt} . \quad (7.10-16)$$

又对受激喇曼散射来说, $\langle n_s \rangle \gg 1$, 所以(7.10-15)式变为

$$\frac{dn_s}{dt} = D(P_a - P_b) n_p n_s . \quad (7.10-17)$$

或

$$\frac{dn_s}{dz} = \frac{dn_s}{dt} \frac{dt}{dz} = \frac{D\eta(\omega_s)}{c} \cdot (P_a - P_b)n_p n_s \quad (7.10-18)$$

如果在散射过程中, 近似地认为激光的光子数的变化可以忽略不计, 那么频率为 ω_s 的光子密度 (或强度) 随距离便按规律

$$I_s(z) = I_s(0) \exp(g_s z) \quad (7.10-19)$$

指数增长。式中

$$g_s = \frac{D\eta(\omega_s)}{c} \cdot (P_a - P_b)n_p \quad (7.10-20)$$

是斯托克斯散射光强度的放大系数。 $\eta(\omega_s)$ 是频率为 ω_s 的辐射的折射率。在热平衡条件下 (温度为 T), 有关系^[17]

$$\frac{P_a - P_b}{P_u} = 1 - \exp(-\hbar(\omega_p - \omega_s)/KT) \quad (7.10-21)$$

2. 全量子理论

现在我们利用类似导出双光子吸收速率(7.8-14)式的步骤和方法, 对一个特殊的终态 $|f\rangle$, 可求得散射的跃迁速率为

$$\begin{aligned} \frac{1}{\tau} &= \frac{2\pi e^4}{\hbar^4} \sum_{k_s} |M_{SRE}|^2 \delta(\omega - \omega_s - \omega_f) \\ &\times \text{tr}\{\hat{\rho} \hat{E}^-(\mathbf{r}) \hat{E}^+(\mathbf{r}) \hat{E}^-(\mathbf{r}) \hat{E}^+(\mathbf{r})\} \quad (7.10-22) \end{aligned}$$

式中 $\hat{E}^-(\mathbf{r})$ 和 $\hat{E}^+(\mathbf{r})$ 是入射光束和散射光束的电场算符, M_{SRE} 为散射矩阵元

$$M_{SRE} = \sum_i \left\{ \frac{\mathbf{D}_{fi} \cdot \mathbf{n}_s \mathbf{D}_{i1} \cdot \mathbf{u}}{\omega_s - \omega} + \frac{\mathbf{D}_{fi} \cdot \mathbf{u} \mathbf{D}_{i1} \cdot \mathbf{u}_s}{\omega_1 + \omega_s} \right\} \quad (7.10-23)$$

假定散射介质对频率为 ω 和 ω_s 的辐射的折射率分别为 η 和 η_s , 则有

$$\hbar c = \eta \omega, \quad \hbar_s c = \eta_s \omega_s \quad (7.10-24)$$

式中 k 和 k_s 分别是入射光和散射光的波矢。考虑到折射率不等于1的情况, 光束强度的一般表示式为

$$\bar{I} = \frac{c^2 \hbar k}{\eta^2 V} \bar{n} = \frac{\hbar \omega^3}{k V} \bar{n} \quad (7.10-25)$$

这里 \bar{n} 是光束中的平均光子数。由(7.7-23)式可得

$$\text{tr}\{\hat{\rho} \hat{E}^- \hat{E}^+\} = \left(\frac{\omega}{2\epsilon_0 c^2 k} \right) \bar{I} = \frac{\hbar \omega^3}{2\epsilon_0 c^2 k^3 V} \bar{n} \quad (7.10-26)$$

和讨论双光子吸收一样, 如果入射光场和散射光场是统计独立的, 则我们利用(7.10-26)式可以求得(7.10-22)式中的迹为

$$\text{tr}\{\hat{\rho} \hat{E}^- \hat{E}^+ \hat{E}^- \hat{E}^+\} = \left(\frac{\hbar}{2\epsilon_0 c^2 k k_s V} \right)^2 \omega^3 \omega_s^3 \bar{n}(\bar{n} + 1) \quad (7.10-27)$$

将(7.10-27)式代入(7.10-22)式后可得跃迁速率为

$$\frac{1}{\tau} = \sum_{k_s} \frac{\pi e^4 \omega_s \bar{n} (\bar{n}_s + 1)}{2\epsilon_0^2 \eta^2 \eta_s^2 V^2} |M_{NBE}|^2 \delta(\omega - \omega_s - \omega_f), \quad (7.10-28)$$

式中 \bar{n} 和 \bar{n}_s 分别是体积 V 中的平均入射和散射光的光子数,其中因子 $(\bar{n}_s + 1)$ 来源于(7.10-27)式左边散射光子的产生算符 \hat{a}_s^\dagger 和湮灭算符 \hat{a}_s 的对易关系 $\hat{a}_s \hat{a}_s^\dagger = \hat{a}_s^\dagger \hat{a}_s + 1$ 。

我们知道,即使最强的非激光源(如水银灯),其每个模中的光子数大约只有 10^{12} 个光子,因而对一般的散射光而言,在很好的近似下,可以将(7.10-28)式中的 \bar{n}_s 忽略不计,这时跃迁速率变为

$$\frac{1}{\tau} = \sum_{k_s} \frac{\pi e^4 \omega_s \bar{n}}{2\epsilon_0^2 \eta^2 \eta_s^2 V^2} \sum_i \frac{D_{J_i \cdot u_s} D_{J_i \cdot u}}{\omega_i - \omega} + \frac{D_{J_i \cdot u} D_{J_i \cdot u_s}}{\omega_i + \omega_s} \times \delta(\omega - \omega_s - \omega_f), \quad (7.10-29)$$

这就是普通喇曼散射的情况,如果令 $\eta = 1$, $\eta_s = 1$,则(7.10-29)式就是(7.6-8)式。

由此我们知道(7.10-28)式中与因子1相联系的散射速率是由于自发发射引起的。而因子 \bar{n}_s 则是由于已存在的散射光子所引起的散射光的受激增强,这种受激散射就是熟知的受激喇曼散射。要想从实验上观察受激喇曼散射效应,在第六章中指出入射激光强度必须达到某个阈值。在这里,也就是只有功率足够高的激光源,才能使得每个辐射场模产生的散射光子数比1大得多。关于受激喇曼散射的特性,我们可以考虑在一个特殊的辐射场模 k_s 中产生散射光的情况,对进入其它辐射场模的散射光子忽略不计。如保留(7.10-27)式中的 \bar{n}_s ,使入射和散射光束的传播方程是非线性的,这就表明受激喇曼散射是一个非线性过程。假定 \bar{I} 和 \bar{I}_s 表示入射和散射光束的平均强度,并假定两束光都沿着 z 方向传播,则传播方程为

$$\frac{\partial \bar{I}_s}{\partial z} = - \frac{N \hbar \omega_s}{V \tau}, \quad (7.10-30)$$

$$\frac{\partial \bar{I}}{\partial z} = \frac{N \hbar \omega_s}{V \tau}. \quad (7.10-31)$$

式中 N 是体积 V 中的散射原子数。 τ 由(7.10-22)式给出,只是现在考虑单模的情况,可去掉对 k_s 的求和。与求解双光子吸收的(7.8-16)式和(7.8-17)式一样,求解(7.10-30)式和(7.10-31)式是很困难的,因为跃迁速率 $1/\tau$ 与光束特性的关系很复杂,即使两束光原来是统计独立的,但在散射过程中不能保持两束光始终是统计独立的。在本章最后,我们将以受激喇曼散射现象为例,详细讨论光的统计性质对受激喇曼散射效应的影响。在这里,我们暂时不考虑这种复杂性,认为在散射过程中两束光始终保持统计独立的性质。这样,利用(7.10-25)式和(7.10-26)式,传播方程(7.10-31)式变为

$$\frac{\partial \bar{I}_s}{\partial z} = \frac{\pi e^4}{2\epsilon_0^2 \hbar^3 c^4 V} \frac{N \omega_s^2}{k k_s} M_{NBE}^2 \bar{I} \left(\bar{I} + \frac{\hbar \omega_s^2}{V k_s} \right) \delta(\omega - \omega_s - \omega_f). \quad (7.10-32)$$

式中顶上一横表示对原子取向的平均。

由(7.10-30)式和(7.10-31)式给出

$$\frac{1}{\omega} \frac{\partial \bar{I}}{\partial z} + \frac{1}{\omega_s} \frac{\partial \bar{I}_s}{\partial z} = 0. \quad (7.10-33)$$

因而有与(6.5-10)式一样的关系

$$\frac{\bar{I}}{\omega} + \frac{\bar{I}_s}{\omega_s} = \text{常数} = \frac{\bar{I}_0}{\omega} + \frac{\bar{I}_{s0}}{\omega_s}. \quad (7.10-34)$$

式中 \bar{I}_0 和 \bar{I}_{s0} 分别表示 $z=0$ 处的入射光束和散射光束的平均强度。

现利用(7.10-34)式, 消去(7.10-32)式中的 \bar{I} , 可得 \bar{I}_s 的微分方程

$$\begin{aligned} \frac{\partial \bar{I}_s}{\partial z} &= \frac{\pi e^4}{2\epsilon_0^2 \hbar^3 c^4} \frac{N}{V} \frac{\omega \omega_s^2}{kk_s} |M_{SRL}|^2 \delta(\omega - \omega_s - \omega_f) \\ &\times \omega \left[\bar{I}_s + \frac{\hbar \omega_s^2}{V k_s} \right] \left[\left(\frac{\bar{I}_0}{\omega} + \frac{\bar{I}_{s0}}{\omega_s} - \frac{\bar{I}_s}{\omega_s} \right) \right] \\ &= G \left\{ - \frac{(\bar{I}_s)^2}{\omega_s \left[\left(\frac{\bar{I}_0}{\omega} + \frac{\bar{I}_{s0}}{\omega_s} \right) + \frac{\hbar \omega_s}{V k_s} \right]} + \frac{\left[\left(\frac{\bar{I}_0}{\omega} + \frac{\bar{I}_{s0}}{\omega_s} \right) - \frac{\hbar \omega_s}{V k_s} \right]}{\left[\left(\frac{\bar{I}_0}{\omega} + \frac{\bar{I}_{s0}}{\omega_s} \right) + \frac{\hbar \omega_s}{V k_s} \right]} \right. \\ &\quad \left. + \frac{\hbar \omega_s}{V k_s} \frac{\left(\frac{\bar{I}_0}{\omega} + \frac{\bar{I}_{s0}}{\omega_s} \right)}{\left[\left(\frac{\bar{I}_0}{\omega} + \frac{\bar{I}_{s0}}{\omega_s} \right) + \frac{\hbar \omega_s}{V k_s} \right]} \right\}. \end{aligned} \quad (7.10-35)$$

式中 G 是受激喇曼增益系数, 其为

$$\begin{aligned} G &= \frac{\pi e^4}{2\epsilon_0^2 \hbar^3 c^4} \frac{N}{V} \frac{\omega^2 \omega_s^2}{kk_s} |M_{SRL}|^2 \delta(\omega - \omega_s - \omega_f) \\ &\times \left(\frac{\bar{I}_0}{\omega} + \frac{\bar{I}_{s0}}{\omega_s} + \frac{\hbar \omega_s}{V k_s} \right). \end{aligned} \quad (7.10-36)$$

利用积分

$$\int \frac{dx}{a+bx+cx^2} = \frac{1}{\sqrt{q}} \frac{2cx+b-\sqrt{-q}}{2cx+b+\sqrt{-q}}$$

(式中 $q=4ac-b^2$), 可得(7.10-35)式的解为

$$I_s = \frac{\left(\frac{\bar{I}_0}{\omega} + \frac{\bar{I}_{s0}}{\omega_s} \right) \left(\bar{I}_{s0} + \frac{\hbar \omega_s^2}{V k_s} \right) \exp Gz - \frac{\hbar \omega_s^2 I_0}{V k_s \omega}}{\left(\bar{I}_{s0} + \frac{\hbar \omega_s}{V k_s} \right) \exp(Gz) + \frac{I_0}{\omega}}. \quad (7.10-37)$$

当 $Gz \ll 1$ 时, 有

$$\bar{I} \approx \bar{I}_0 - \frac{I_0}{\omega} \left\{ \bar{I}_{s0} + \frac{\hbar \omega_s^2}{V k_s} \right\} Gz. \quad (7.10-38)$$

这表明散射光束强度开始随距离线性地增加。在 z 十分大的情况下，原来存在的入射光子通量都已转变为散射光的光子通量，即有

$$\bar{I} \approx \bar{I}_0 + \bar{I}_{s0} \quad (7.10-39)$$

这时散射光束强度 \bar{I}_s 趋于饱和。在上述两个极端情况之间，散射光束随距离指数增长，有近似关系

$$\bar{I}_s \approx \left\{ 1 + \frac{\omega \bar{I}_{s0}}{\omega_s \bar{I}_0} \right\} \left\{ \bar{I}_{s0} + \frac{\hbar \omega_s^2}{V k_s} \right\} \exp(Gz) \quad (7.10-40)$$

如果原始频率为 ω_s 的光的强度 \bar{I}_{s0} 为零，则(7.10-37)式的一般解变为

$$\bar{I}_s = \frac{(\hbar \omega_s^2 / V k_s)(\exp(Gz) - 1)}{(\hbar \omega_s \omega / V k_s \bar{I}_0) \exp(Gz) + 1} \quad (7.10-41)$$

在这种情况下，散射光强度 \bar{I}_s 与 Gz 的关系如图7-14所示。开始由自发散射提供频率为 ω_s 的光子，然后由受激喇曼效应将这些自发的光子数放大而进入指数增长区。

许多实际的受激散射实验中的样品长度是足够短的，这样，(7.10-41)式中分母的第一项总比1小得多，因而可以写为

$$\bar{I}_s \approx \frac{\hbar \omega_s^2}{V k_s} (\exp(Gz) - 1) \quad (7.10-42)$$

下面我们可以利用以上结果给出线性区域内在 z 很小的情况下的自发散射的微分散射截面 $d\sigma/d\Omega$ 的表示式。

考虑一个含有 N 个原子的体积 V ，其长度为 z ，光束沿 z 传播，体积 V 的横截面积为 V/z 。由于散射而从入射光束中取走能量的速率为 $(\omega/\omega_s)\bar{I}_s(V/z)$ ，因此，按单个原子散射截面的定义有

$$N\sigma = \sum \omega \bar{I}_s V / \omega_s \bar{I}_0 z \quad (7.10-43)$$

利用对 k_s 求和变换为积分的关系(7.6-10)式和(7.10-42)式的线性项 $\bar{I}_s = (\hbar \omega_s^2 / V k_s) Gz$ ，则有

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{V}{(2\pi)^3} \int (\hbar \omega \omega_s^2 G / \bar{I}_0 c^2 N) d\omega_s \quad (7.10-44)$$

式中已假定折射率等于1。如果在 G 的表示式中仅保留最后括号中的第一项，那么(7.10-41)

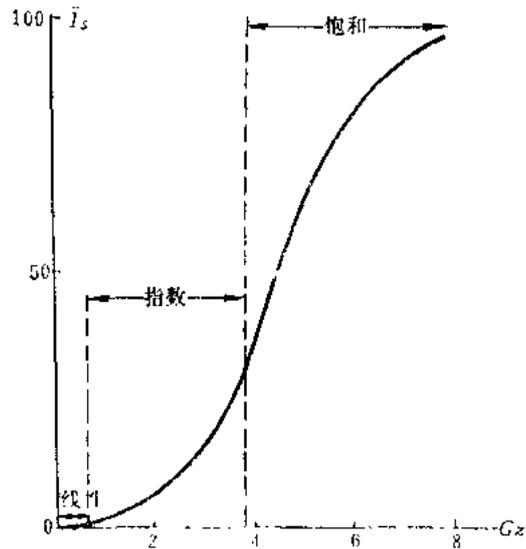


图7-14 受激喇曼效应的散射光强度随 Gz 的变化规律(有线性区、指数增长区和饱和区，强度以 $\hbar \omega_s^2 / V k_s$ 为单位，这里为方便起见已规定 $V k_s \bar{I}_0 / \hbar \omega_s \omega$ 为100，这个量取得愈大，相应的指数增长区愈长)

式变为

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{e^4 \omega(\omega - \omega_f)^3}{16\pi^2 \epsilon_0^2 \hbar^2 c^4} |M_{SRK}|^2 \quad (7.10-45)$$

在 M_{SRK} 中的 ω_s 等于 $\omega - \omega_f$ 。(7.10-45)式就是自发喇曼散射的微分散射截面的表示式。

对于 z 较大的情况, 散射光束指数增长, 在实验上增益系数 G 比 散射截面更重要。这时我们首先将(7.10-36)式中的 $\delta(\omega - \omega_s - \omega_f)$ 按类似于(7.8-15)式的关系变换为洛仑兹线型函数

$$\delta(\omega - \omega_s - \omega_f) \rightarrow \frac{\gamma_f / \pi}{(\omega_f - \omega + \omega_s)^2 + \gamma_f^2} \quad (7.10-46)$$

式中 γ_f 是原子终态的辐射增宽。由此可见, 当 $\omega_s = \omega - \omega_f$ 时有最大的增益 G_{max} , 由此给出

$$G_{max} = \frac{e^4}{2\epsilon_0^2 \hbar^2 c^4} \frac{N}{V} \frac{\omega(\omega - \omega_f)^2}{kk_s} |M_{SRK}|^2 \frac{\bar{I}_0}{\gamma_f} \quad (7.10-47)$$

这里只保留了(7.10-36)式括号中的主要项 \bar{I}_0/ω 。

在气体中受激喇曼效应的最大增益可以用单个原子的自发散射的微分散射截面表示式(7.10-45)表示。即为

$$G_{max} = \frac{d\sigma}{d\Omega} \frac{N}{V} \frac{8\pi^2 \bar{I}_0}{\hbar(\omega - \omega_f)kk_s \gamma_f} \quad (7.10-48)$$

当脉冲激光的强度大到 10^{13}W/m^2 时, G_{max} 可以大到 100m^{-1} 。

应该明确, 以上所讨论的受激喇曼效应都是在散射的辐射是单模的假定下进行的, 当然, 这是实际情况的一种近似。一般地, 有几个原子终态 $|f\rangle$ 对散射有贡献, 并且对每一个终态有若干个模 k_s 的激发。然而, 通常的情况是, 一个特殊的原子终态和一个特殊的散射场模比其它散射场模有较大的增益, 因而使散射光变成单模光束。

最后我们应该指出, 关于处理喇曼散射的理论有各种不同的数学描述。譬如根据二阶微扰理论, 将喇曼散射过程作为一个两光子过程来处理时, 这就是我们上面所讨论的情况。然而它还可以利用三阶微扰理论去处理^[1, 8], 但两者的物理内容是

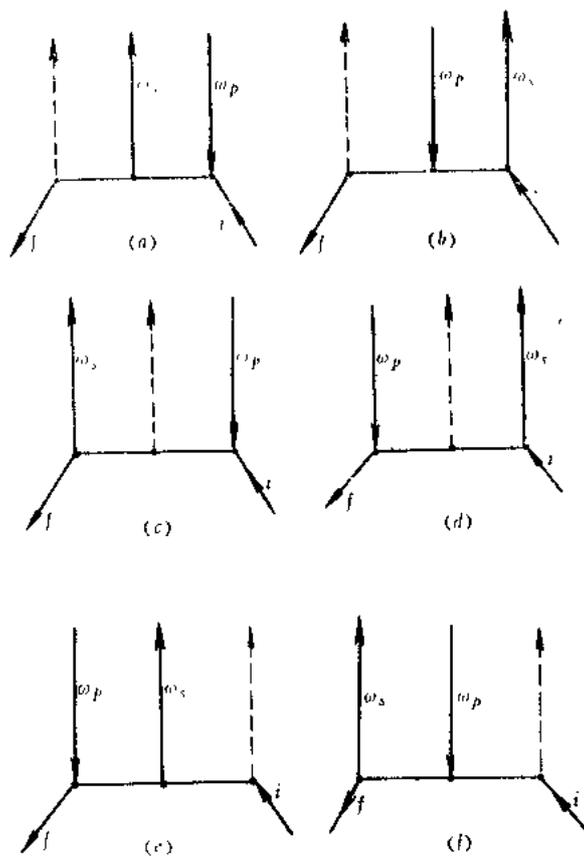


图 7-15 晶体中的喇曼效应的费曼图

等价的。此外还有第六章所用的耦合波理论和本节所用的半唯象描述。

利用三阶微扰理论处理喇曼散射的理论可用于讨论晶体中的喇曼效应。因为晶体中分子振动可以通过整个晶体传播,因此晶体中喇曼效应是包含有两个光子和一个声子参与的过程,必须用三阶微扰理论去处理。例如在晶体中,可能的喇曼过程有:首先吸收一个泵浦光子 ω_p ,然后发射一个喇曼光子 ω_s ,最后发射一个声子,用费曼图表示时,如图7-15(a)所示。其它可能的过程如图(b)、(c)、(d)、(e)、(f)所示。图中用虚线表示声子的发射。

十一、三次谐波产生

在本章八到十中我们研究了双光子吸收和受激喇曼散射效应,从讨论过程中我们清楚地看到这两种现象有点相似,就是两个光子和一个原子相互作用的结果是原子被激励到一个激发态。这种过程也就是第六章中所讲的非参量过程。这里将以三次谐波产生为例,运用本章所得的理论作一详细的讨论。我们知道三次谐波产生的过程是一个参量过程,过程后原子仍处在原来的状态,辐射和原子之间并无能量交换。

现设入射在原子上的光的频率为 ω_1 ,通过三阶非线性相互作用感应频率为 $3\omega_1$ 的电极化,从而振动的电极化产生频率为 $\omega_3 = 3\omega_1$ 的三次谐波。下面我们利用与时间有关的微扰理论来计算三次谐波的产生率。三次谐波这个过程是:每湮灭频率为 ω_1 、波矢为 k_1 的三个光子,便产生一个频率为 $3\omega_1$ 、波矢为 k_3 的光子,总共有四个电偶极相互作用,因而需要四阶微扰理论。在该过程前后,原子都在其基态 $|1\rangle$ 。但在三次谐波产生过程中,它被激发到假想的中间态。四阶微扰理论用费曼图表示时,如图7-16所示。图中有四个不同的图,它们分别对应于三次谐波光子 k_3 的发射相对于吸收三个 k_1 光子的四个可能不同的位置。四光子过程的跃迁速率直接可从(7.5-31)式求得。

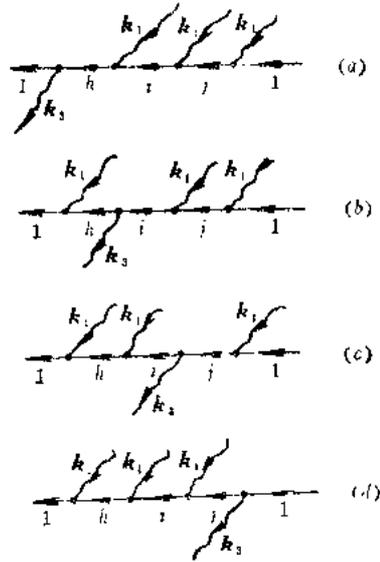


图7-16 三次谐波产生的费曼图。在每一个图中的所有四个相互作用都是由电偶极相互作用哈密顿 \hat{H}_{ED} 引起的

现由(7.5-31)式有

$$\frac{1}{\tau} = \frac{2\pi}{\hbar^2} \sum_j \left| \frac{1}{\hbar} \sum_{h, i, j} \frac{\langle f | \hat{H}_{ED} | h \rangle \langle h | \hat{H}_{ED} | i \rangle \langle i | \hat{H}_{ED} | j \rangle \langle j | \hat{H}_{ED} | u \rangle}{(\omega_u - \omega_h)(\omega_u - \omega_i)(\omega_u - \omega_j)} \right|^2 \delta(\omega_u - \omega_l) \quad (7.11-1)$$

式中 $\hat{H}_{ED} = e\mathbf{D} \cdot (\hat{\mathbf{E}}_1(\mathbf{r}) + \hat{\mathbf{E}}_3(\mathbf{r})),$ (7.11-2)

$\hat{\mathbf{E}}_1$ 和 $\hat{\mathbf{E}}_3$ 是入射光和三次谐波的电场算符。考虑到图7-16, (7.11-1)式有

$$\begin{aligned} \frac{1}{\tau} = & \sum_{R_f} \frac{2\pi e^4}{\hbar^3} \sum_h \sum_i \sum_j \sum_{R_h} \sum_{R_i} \sum_{R_j} \\ & \left\{ \begin{aligned} & \langle R_f f | \mathbf{D} \cdot \hat{\mathbf{E}}_3^- | R_h h \rangle \langle R_h h | \mathbf{D} \cdot \hat{\mathbf{E}}_1^+ | R_i i \rangle \langle R_i i | \mathbf{D} \cdot \hat{\mathbf{E}}_1^+ | R_j j \rangle \langle R_j j | \mathbf{D} \cdot \hat{\mathbf{E}}_1^+ | R_1 \rangle \\ & (3\omega_1 - \omega_h)(2\omega_1 - \omega_i)(\omega_1 - \omega_j) \\ & + \langle R_f f | \mathbf{D} \cdot \hat{\mathbf{E}}_1^+ | R_h h \rangle \langle R_h h | \mathbf{D} \cdot \hat{\mathbf{E}}_3^- | R_i i \rangle \langle R_i i | \mathbf{D} \cdot \hat{\mathbf{E}}_1^+ | R_j j \rangle \langle R_j j | \mathbf{D} \cdot \hat{\mathbf{E}}_1^+ | R_1 \rangle \\ & (-\omega_1 - \omega_h)(2\omega_1 - \omega_i)(\omega_1 - \omega_j) \\ & + \langle R_f f | \mathbf{D} \cdot \hat{\mathbf{E}}_1^+ | R_h h \rangle \langle R_h h | \mathbf{D} \cdot \hat{\mathbf{E}}_1^+ | R_i i \rangle \langle R_i i | \mathbf{D} \cdot \hat{\mathbf{E}}_3^- | R_j j \rangle \langle R_j j | \mathbf{D} \cdot \hat{\mathbf{E}}_1^+ | R_1 \rangle \\ & (-\omega_1 - \omega_h)(-2\omega_1 - \omega_i)(\omega_1 - \omega_j) \\ & + \langle R_f f | \mathbf{D} \cdot \hat{\mathbf{E}}_1^+ | R_h h \rangle \langle R_h h | \mathbf{D} \cdot \hat{\mathbf{E}}_1^+ | R_i i \rangle \langle R_i i | \mathbf{D} \cdot \hat{\mathbf{E}}_1^+ | R_j j \rangle \langle R_j j | \mathbf{D} \cdot \hat{\mathbf{E}}_3^- | R_1 \rangle \\ & (-\omega_1 - \omega_h)(-2\omega_1 - \omega_i)(-3\omega_1 - \omega_j) \end{aligned} \right\} \\ & \times \delta(3\omega_1 - \omega_3). \end{aligned} \quad (7.11-3)$$

式中已将(7.11-2)式中的原子-辐射系统的态 $|h\rangle$ 、 $|i\rangle$ 、 $|j\rangle$ 等分为原子部分的态 $|h\rangle$ 、 $|i\rangle$ 和 $|j\rangle$ 以及辐射部分的态 $|R_h\rangle$ 、 $|R_i\rangle$ 和 $|R_j\rangle$ 等,并认为在三次谐波产生前辐射场的态为纯粹态 $|R\rangle$ 。如果现在将电偶极矩阵元分成原子部分和辐射部分,并利用封闭定理 $\sum_{R_i} |R_i\rangle\langle R_i| = 1$, 则(7.11-3)式变为

$$\begin{aligned} \frac{1}{\tau} = & \frac{2\pi e^4}{\hbar^3} \sum_{R_3} \sum_h \sum_i \sum_j \\ & \left\{ \begin{aligned} & \langle 1 | \mathbf{D} \cdot \mathbf{u}_3 | h \rangle \langle h | \mathbf{D} \cdot \mathbf{u}_1 | i \rangle \langle i | \mathbf{D} \cdot \mathbf{u}_1 | j \rangle \langle j | \mathbf{D} \cdot \mathbf{u}_1 | 1 \rangle \\ & (3\omega_1 - \omega_h)(2\omega_1 - \omega_i)(\omega_1 - \omega_j) \\ & \times \langle R_f | \hat{\mathbf{E}}_3^- \hat{\mathbf{E}}_1^+ \hat{\mathbf{E}}_1^+ \hat{\mathbf{E}}_1^+ | R \rangle \\ & + \langle 1 | \mathbf{D} \cdot \mathbf{u}_1 | h \rangle \langle h | \mathbf{D} \cdot \mathbf{u}_3 | i \rangle \langle i | \mathbf{D} \cdot \mathbf{u}_1 | j \rangle \langle j | \mathbf{D} \cdot \mathbf{u}_1 | 1 \rangle \\ & (-\omega_1 - \omega_h)(2\omega_1 - \omega_i)(\omega_1 - \omega_j) \\ & \times \langle R_f | \hat{\mathbf{E}}_1^+ \hat{\mathbf{E}}_3^- \hat{\mathbf{E}}_1^+ \hat{\mathbf{E}}_1^+ | R \rangle \\ & + \langle 1 | \mathbf{D} \cdot \mathbf{u}_1 | h \rangle \langle h | \mathbf{D} \cdot \mathbf{u}_1 | i \rangle \langle i | \mathbf{D} \cdot \mathbf{u}_3 | j \rangle \langle j | \mathbf{D} \cdot \mathbf{u}_1 | 1 \rangle \\ & (-\omega_1 - \omega_h)(-2\omega_1 - \omega_i)(\omega_1 - \omega_j) \\ & \times \langle R_f | \hat{\mathbf{E}}_1^+ \hat{\mathbf{E}}_1^+ \hat{\mathbf{E}}_3^- \hat{\mathbf{E}}_1^+ | R \rangle \\ & + \langle 1 | \mathbf{D} \cdot \mathbf{u}_1 | h \rangle \langle h | \mathbf{D} \cdot \mathbf{u}_1 | i \rangle \langle i | \mathbf{D} \cdot \mathbf{u}_1 | j \rangle \langle j | \mathbf{D} \cdot \mathbf{u}_3 | 1 \rangle \\ & (-\omega_1 - \omega_h)(-2\omega_1 - \omega_i)(-3\omega_1 - \omega_j) \\ & \times \langle R_f | \hat{\mathbf{E}}_1^+ \hat{\mathbf{E}}_1^+ \hat{\mathbf{E}}_1^+ \hat{\mathbf{E}}_3^- | R \rangle \end{aligned} \right\} \delta(3\omega_1 - \omega_3). \end{aligned} \quad (7.11-4)$$

式中 \mathbf{u}_1 和 \mathbf{u}_3 分别是基波和三次谐波的偏振矢量的单位矢量。考虑到电场算符 \hat{E}_i^\dagger 和 \hat{E}_i 之间的可对易性, 则(7.11-4)式变为

$$\frac{1}{\tau} = \frac{2\pi e^8}{\hbar^8} \sum_{k_3} |M_{THG}|^2 \langle R | \hat{E}_1^- \hat{E}_1^- \hat{E}_1^- \hat{E}_3^+ \hat{E}_3^+ \hat{E}_3^+ \hat{E}_1^+ \hat{E}_1^+ \hat{E}_1^+ | R \rangle \times \delta(3\omega_1 - \omega_3). \quad (7.11-5)$$

式中

$$\begin{aligned} M_{THG} = & \sum_h \sum_i \sum_j \left\{ \frac{\mathbf{D}_{1h} \cdot \mathbf{u}_3 \mathbf{D}_{hi} \cdot \mathbf{u}_1 \mathbf{D}_{ij} \cdot \mathbf{u}_1 \mathbf{D}_{j1} \cdot \mathbf{u}_1}{(3\omega_1 - \omega_h)(2\omega_1 - \omega_i)(\omega_1 - \omega_j)} \right. \\ & + \frac{\mathbf{D}_{1h} \cdot \mathbf{u}_1 \mathbf{D}_{hi} \cdot \mathbf{u}_3 \mathbf{D}_{ij} \cdot \mathbf{u}_1 \mathbf{D}_{j1} \cdot \mathbf{u}_1}{(-\omega_1 - \omega_h)(2\omega_1 - \omega_i)(\omega_1 - \omega_j)} \\ & + \frac{\mathbf{D}_{1h} \cdot \mathbf{u}_1 \mathbf{D}_{hi} \cdot \mathbf{u}_1 \mathbf{D}_{ij} \cdot \mathbf{u}_3 \mathbf{D}_{j1} \cdot \mathbf{u}_1}{(-\omega_1 - \omega_h)(-2\omega_1 - \omega_i)(\omega_1 - \omega_j)} \\ & \left. + \frac{\mathbf{D}_{1h} \cdot \mathbf{u}_1 \mathbf{D}_{hi} \cdot \mathbf{u}_1 \mathbf{D}_{ij} \cdot \mathbf{u}_1 \mathbf{D}_{j1} \cdot \mathbf{u}_3}{(-\omega_1 - \omega_h)(-2\omega_1 - \omega_i)(-3\omega_1 - \omega_j)} \right\}. \quad (7.11-6) \end{aligned}$$

如果辐射场的原始态不是纯粹态, 而是一个统计混合态, 则(7.11-5)式中的因子 $\langle R | \hat{E}_1^- \hat{E}_1^- \hat{E}_1^- \hat{E}_3^+ \hat{E}_3^+ \hat{E}_3^+ \hat{E}_1^+ \hat{E}_1^+ \hat{E}_1^+ | R \rangle$ 应改为 $\text{tr}\{\hat{\rho} \hat{E}_1^- \hat{E}_1^- \hat{E}_1^- \hat{E}_3^+ \hat{E}_3^+ \hat{E}_3^+ \hat{E}_1^+ \hat{E}_1^+ \hat{E}_1^+\}$, 这样, 三次谐波过程的跃迁速率为

$$\frac{1}{\tau} = \frac{2\pi e^8}{\hbar^8} \sum_{k_3} |M_{THG}|^2 \text{tr}\{\hat{\rho} \hat{E}_1^- \hat{E}_1^- \hat{E}_1^- \hat{E}_3^+ \hat{E}_3^+ \hat{E}_3^+ \hat{E}_1^+ \hat{E}_1^+ \hat{E}_1^+\} \delta(3\omega_1 - \omega_3). \quad (7.11-7)$$

注意, 以上各式中的电场算符都是用原子所处位置 \mathbf{r} 处的电场进行计算的。然而三次谐波产生有一个新的特点, 而这个特点在双光子吸收和受激喇曼散射效应中是没有的。后面两个过程使原子留在一个特殊的终态, 并且每一跃迁激发一定的原子, 因而跃迁速率是各个原子跃迁速率的总和, 所以表示这两个过程的双光子吸收系数(7.8-28)式、(7.9-5)式以及受激喇曼增益系数(7.10-36)式都与原子数 N 成正比。但三次谐波的情况不同, 就所讨论的原子而言, 原子的终态和始态是相同的, 与不同原子相互作用所发生的跃迁没有什么不同。因此, 计算矩阵元时必须先对不同原子的贡献求和, 然后再平方就得总的跃迁速率。这时总的跃迁速率变为如下的形式:

$$\begin{aligned} \frac{1}{\tau} = & \frac{2\pi e^8}{\hbar^8} \sum_{k_3} |M_{THG}|^2 \delta(3\omega_1 - \omega_3) \\ & \times \sum_{\mathbf{r}\mathbf{r}'} \text{tr}\{\hat{\rho} \hat{E}_1^-(\mathbf{r}) \hat{E}_1^-(\mathbf{r}) \hat{E}_1^-(\mathbf{r}) \hat{E}_3^+(\mathbf{r}) \hat{E}_3^+(\mathbf{r}') \hat{E}_3^+(\mathbf{r}') \hat{E}_1^+(\mathbf{r}') \hat{E}_1^+(\mathbf{r}')\}. \quad (7.11-8) \end{aligned}$$

式中 \mathbf{r} 和 \mathbf{r}' 是原子的位置坐标, 求和号 $\sum_{\mathbf{r}\mathbf{r}'}$ 是对所有 N 个原子的位置求和。与位置有关的电

场算符 \hat{E}^+ 和 \hat{E}^- 的表示式按(7.1-43)式有

$$\hat{E}^+(\mathbf{r}, t) = i \sum_{\mathbf{k}} \left(\frac{\hbar \omega_{\mathbf{k}}}{2\epsilon_0 V} \right)^{1/2} \mathbf{u}_{\mathbf{k}} \hat{a}_{\mathbf{k}} \exp(-i\omega_{\mathbf{k}}t + i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}), \quad (7.11-9)$$

$$\hat{E}^-(\mathbf{r}, t) = -i \sum_{\mathbf{k}} \left(\frac{\hbar \omega_{\mathbf{k}}}{2\epsilon_0 V} \right)^{1/2} \mathbf{u}_{\mathbf{k}} \hat{a}_{\mathbf{k}}^\dagger \exp(i\omega_{\mathbf{k}}t - i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}). \quad (7.11-10)$$

将(7.11-9)式和(7.11-10)式代入(7.11-8)式,并考虑到现在 \hat{E}_3 和 \hat{E}_1 的场是频率给定的场算符,这样,在(7.11-8)式中与空间部分有关的因子是

$$\sum_{\mathbf{r}, \mathbf{r}'} \exp\{i(\mathbf{k}_3 - 3\mathbf{k}_1) \cdot (\mathbf{r} - \mathbf{r}')\} = \sum_{\mathbf{r}} \exp(i\Delta\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}) \quad (7.11-11)$$

式中 $\Delta\mathbf{k} = \mathbf{k}_3 - 3\mathbf{k}_1$. (7.11-12)

因此当利用(7.11-8)式计算跃迁速率时,如果我们用同一位置的电场算符进行计算,即如果我们想用(7.11-7)式去计算总的跃迁速率,那么必须附加一个(7.11-11)式的因子。这样,三次谐波产生过程的总的跃迁速率为

$$\frac{1}{\tau} = \frac{2\pi e^8}{\hbar^8} \sum_{\mathbf{k}_s} |M_{THO}|^2 \delta(3\omega_1 - \omega_3) \times \text{tr}\{\hat{\rho} \hat{E}_1^- \hat{E}_1^- \hat{E}_1^- \hat{E}_1^+ \hat{E}_1^+ \hat{E}_1^+ \hat{E}_1^+\} \left| \sum_{\mathbf{r}} \exp(i\Delta\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}) \right|^2. \quad (7.11-13)$$

根据三阶相干度的定义(7.7-26)式($n=3$)和单模光束强度定义(7.7-19)式,并假定两束光是统计独立的,则有

$$\begin{aligned} \text{tr}\{\hat{\rho} \hat{E}_1^- \hat{E}_1^- \hat{E}_1^- \hat{E}_1^+ \hat{E}_1^+ \hat{E}_1^+ \hat{E}_1^+\} &= g^{(3)}(\text{tr}(\hat{\rho} \hat{E}_1^- \hat{E}_1^+))^3 \text{tr}(\hat{\rho} \hat{E}_3^- \hat{E}_3^+) \\ &= g^{(3)} \left(\frac{\bar{I}_{10}^3}{(2\epsilon_0 c^2 \frac{\hbar k_1}{\omega_1})^3} \right) \left[\frac{\bar{I}_3}{2\epsilon_0 c^2 \frac{\hbar k_3}{\omega_3}} + \frac{\hbar \omega_3}{2\epsilon_0 V} \right]. \end{aligned} \quad (7.11-14)$$

三次谐波光束平均强度的增长规律由

$$\frac{\partial \bar{I}_3}{\partial z} = \hbar \omega_3 / V \tau \quad (7.11-15)$$

所描述。它与以前所给的传播方程相似,只是这里的 $1/\tau$ 应是所有原子引起的总的跃迁速率,即由(7.11-13)式给出。

至于计算光束强度的具体增长规律,那和其它非线性过程一样,在一般情况下是十分困难的。因为由于非线性相互作用的结果,两束光得到相关的统计性质。如果假定入射光束通过介质的距离足够短,使得原来的入射光束强度 \bar{I}_{10} 减弱得很少,那么在很好的近似下,两束光是保持统计独立的。也只有这样,(7.11-14)式才成立,即(7.11-14)式中的电场算符可以因子化并用平均强度去表示。

现将(7.11-14)式代入(7.11-13)式, 然后代入(7.11-15)式有

$$\begin{aligned}
 \frac{\partial \bar{I}_3}{\partial z} &= \frac{\hbar\omega_3}{V\tau} \\
 &= \frac{\hbar\omega_3}{V} \frac{2\pi e^8}{\hbar^8} \sum_{k_3} |\overline{M_{TNg}}|^2 \delta(3\omega_1 - \omega_3) \\
 &\quad \times \left| \sum_r \exp(i\Delta\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}) \right|^2 g^{(8)} \frac{\bar{I}_{10}^3}{(2\epsilon_0 c^2 k_1 \omega_1)^3} \left[-\frac{\bar{I}_3}{2\epsilon_0 c^2 k_3 \omega_3} + \frac{\hbar\omega_3}{2\epsilon_0 V} \right] \\
 &= \frac{\pi e^8}{8\epsilon_0^4 c^8 \hbar^8 V^2} \sum_{k_3} \frac{\omega_1^3 \omega_3^3}{k_1^3 k_1^3} |\overline{M_{TNg}}|^2 \delta(3\omega_1 - \omega_3) \\
 &\quad \times \left| \sum_r \exp(i\Delta\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}) \right|^2 g^{(8)} (\bar{I}_{10})^3 \left(\frac{k_3 V \bar{I}_3}{\hbar\omega_3^2} + 1 \right). \quad (7.11-16)
 \end{aligned}$$

在(7.11-16)式中已将(7.11-11)式的空间因子插入, 而且在这里对取向的平均是先对矩阵元作取向平均然后再平方。

在(7.11-16)式的最后一个括号中的两项分别表示三次谐波光子的受激发射和自发发射项。因为实际上由于存在着三次谐波光子转换为入射波光子的过程, 因而 \bar{I}_3 大大地被这种逆过程所抵消。由该式可见, 为求得三次谐波强度, 需要计算(7.11-16)式中的两个求和。对 r 求和来说, 它与产生非线性过程区域的形状有关。为此, 我们可以假想在 $z=0$ 和 $z=L$ 处有两个平行平面, 以这两个平面为边界的体积为 V , 平面垂直于光束的传播方向, 截面积为 V/L 。并假定在 x 和 y 方向的大小比 L 大得多, 那么

$$\begin{aligned}
 \left| \sum_r \exp(i\Delta\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}) \right|^2 &\rightarrow \left(\frac{N}{V} \right)^2 \int d\mathbf{r} \int d\mathbf{r}' \exp\{i\Delta\mathbf{k}\cdot(\mathbf{r}-\mathbf{r}')\} \\
 &= \left(\frac{N}{V} \right)^2 (2\pi)^3 \delta(\Delta k_x) \delta(\Delta k_y) \frac{V}{L} \left| \frac{\exp\{i\Delta k_z L\} - 1}{i\Delta k_z} \right|^2. \quad (7.11-17)
 \end{aligned}$$

式中出现 δ 函数是因为假定沿 x 和 y 轴的积分限足够大所致。同样, 对 k_3 的求和也可以将求和变换为一个积分后求得, 有

$$\begin{aligned}
 \sum_{k_3} \left| \sum_r \exp(i\Delta\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}) \right|^2 \delta(3\omega_1 - \omega_3) \\
 \Downarrow \\
 \frac{V}{(2\pi)^3} \int \left| \sum_r \exp(i\Delta\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}) \right|^2 \delta(3\omega_1 - \omega_3) dk_3 \\
 = \frac{4N^2 k_3}{2\pi L \omega_3} \frac{\sin^2((\Delta k L)/2)}{(\Delta k)^2}. \quad (7.11-18)
 \end{aligned}$$

式中 Δk_z 中的指标 z 已略, 因为(7.11-17)式中的 δ 函数使得其它分量都等于零。

将(7.11-18)式代入(7.11-16)式并仅考虑该式中的自发发射项, 便给出气体介质的出射端处的三次谐波强度为

$$\bar{I}_3 = \frac{e^8}{4\epsilon_0^2 c^8 \hbar^6} \left(\frac{N}{V}\right)^2 \frac{\omega_i^2 \omega_f^2}{k_i^2 k_f^2} |M_{if}|^2 \frac{\sin^2(\frac{1}{2} \Delta k L)}{(\Delta k)^3} g^{(3)} \bar{I}_i \bar{I}_f. \quad (7.11-19)$$

由此可见,三次谐波强度与原子数密度的平方成正比,这与受激喇曼效应和双光子吸收的线性关系不同;此外三次谐波强度还与入射光束强度的立方成正比,以及与三阶相干度 $g^{(3)}$ 成正比。对相干光束来说,三阶相干度等于1,但是当光束强度有起伏时,会使三次谐波输出增大。譬如对混乱光来说 $g^{(3)}$ 等于6 (对混乱光的任意阶相干度 $g^{(n)}(rt, \dots, rt; rt, \dots, rt) = n!$)^[19]。

三次谐波强度与路程长度 L 的关系由 (7.11-19) 式中的三角因子所控制, 当

$$\Delta k \sim 0, \sin^2\left(\frac{1}{2} \Delta k L\right) / (\Delta k)^2 = L^2/4 \quad (7.11-20)$$

时,强度最大,这种情况就是我们在第六章中说明的所谓相位匹配。

十二、光子的统计性质和非线性光学

从本章八到十一讨论双光子吸收、受激喇曼散射以及三次谐波产生的过程中可清楚地看到,在确定非线性过程的跃迁速率时,光子的统计性质起着很重要的作用。一般讲,跃迁速率与所讨论的光束的相干性有关;当所涉及的光束多于一束时,跃迁速率与光束之间的互相关性有关。因为非线性过程本身会改变光的相干性和互相关的性质,因而精确的理论必须考虑这些性质的改变。对双光子吸收的结果 (7.8-26) 式、(7.8-27) 式和 (7.9-6) 式,对受激喇曼散射效应的 (7.10-37) 式,以及对三次谐波产生的结果 (7.11-19) 式来说,一般讲,它们对通过非线性介质距离 z 或 L 的一阶近似是正确的,而对 z 的更高阶近似,它们就不正确了。在这里,非线性过程对光束的反作用开始影响光束的统计性质,下面我们将以受激喇曼散射效应为例,进行详细的说明。

当我们考虑到受激喇曼散射效应中原子终态的辐射增宽时,将 (7.10-22) 式中的 $\delta(\omega - \omega_s - \omega_f)$ 函数用洛仑兹线型的 (7.10-46) 式代替,并限于单模散射光 k_s , 散射光频率 $\omega_s = \omega - \omega_f$ 。在给定入射光子数 n 和散射光子数 n_s 时,利用 (7.10-27) 式,跃迁速率可以写为

$$1/\tau = Jn(n_s + 1). \quad (7.12-1)$$

式中

$$J = \frac{e^4}{2\epsilon_0^2 \hbar^2 c^4 V^2} \frac{\omega^3 (\omega - \omega_f)^2}{k^2 k_s^2 \gamma_f} |M_{sRE}|^2 \quad (7.12-2)$$

叫做双光子跃迁速率参数,它可以被用来确定光子统计性质的时间关系。

现令 $P_{n_s, n}$ 表示在辐射场中同时有 n 个入射光子和 n_s 个散射光子的归一化几率, 即有

$$\sum_{n_s, n} P_{n_s, n} = 1. \quad (7.12-3)$$

由于喇曼散射的结果,使光子的几率分布发生变化,改变的速率可用图7-17来加以说明。我们用一个能级表示对应于喇曼散射过程中入射光束和散射光束的光子数分布,能级间的间隔为 $\hbar(\omega - \omega_s) = \hbar\omega_f$ 。假定所有原子几乎都处在它们的基态(即在激发态上的原子集居数可以略去)。当注意到喇曼散射过程的特点,图7-17中只有向下的跃迁需要考虑,而不

需要考虑向上的跃迁。

由图7-17可见,由态 $|n+1, n_s-1\rangle$ 跃迁到态 $|n, n_s\rangle$ 和由态 $|n, n_s\rangle$ 跃迁到态 $|n-1, n_s+1\rangle$ 都使态 $|n, n_s\rangle$ 的光子几率分布 P_{n, n_s} 发生变化,变化的速率 $dP_{n, n_s}/dt$ 显然与基态上的原子数 N 成正比,与由(7.12-1)式所表示的跃迁速率 $1/\tau$ 成正比,也与原来状态的光子几率分布 P_{n, n_s} 成正比。所以有

$$\frac{dP_{n, n_s}}{dt} = NJ\{(n+1)n_s P_{n+1, n_s-1} - n(n_s+1)P_{n, n_s}\}. \quad (7.12-4)$$

式中右边第一项表示由态 $|n+1, n_s-1\rangle$ 跃迁到态 $|n, n_s\rangle$ 时几率分布 P_{n, n_s} 的变化率,第二项表示由态 $|n, n_s\rangle$ 跃迁到态 $|n-1, n_s+1\rangle$ 的几率分布 P_{n, n_s} 的变化率。

遗憾的是,(7.12-4)式是很难求解的,即使对分布的一次矩也同样是很难以求解的。例如,设入射光和散射光束中的平均光子数分别为 \bar{n} 和 \bar{n}_s ,有

$$\bar{n} = \sum_{n, n_s} n P_{n, n_s} \quad (7.12-5)$$

$$\bar{n}_s = \sum_{n, n_s} n_s P_{n, n_s} \quad (7.12-6)$$

于是由(7.12-4)式有

$$\begin{aligned} \frac{d\bar{n}_s}{dt} &= \sum_{n, n_s} \frac{dn_s}{dt} P_{n, n_s} + \sum_{n, n_s} n_s \frac{dP_{n, n_s}}{dt} \\ &= \frac{d\bar{n}_s}{dt} + \sum_{n, n_s} n_s \frac{dP_{n, n_s}}{dt} = \sum_{n, n_s} n_s \frac{dP_{n, n_s}}{dt} \end{aligned} \quad (7.12-7)$$

现将(7.12-4)式代入(7.12-7)式给出

$$\begin{aligned} \frac{dn_s}{dt} &= NJ \sum_{n, n_s} \{(n+1)n_s^2 P_{n+1, n_s-1} - nn_s(n_s+1)P_{n, n_s}\} \\ &\quad - NJ \sum_{n, n_s} n(n_s+1)P_{n, n_s} \end{aligned} \quad (7.12-8)$$

一般讲

$$\sum_{n, n_s} nn_s P_{n, n_s} = \bar{n}\bar{n}_s \neq \overline{nn_s}. \quad (7.12-9)$$

所以没有关于 P_{n, n_s} 某些附加的知识就不可能求解 n_s 。从(7.12-9)式可以看到(7.12-8)

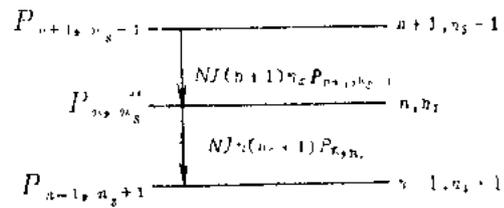


图7-17 对应于喇曼散射过程中一对入射光束和散射光束的分子数分布的能级图

式有一个特点, 即该方程将散射光子数 n_s 的一次矩 \bar{n}_s 的时间变化率和光子统计分布的高次矩 $\overline{nn_s}$ 的值联系起来, 这就使得方程 (7.12-8) 式不可能通过简单的方法求解。

如果两束光是统计独立的, 则 (7.12-9) 式中的不等号可以用等号代替, 在这种情况下, P_{n_s, n_s} 可以写为两束独立的光子束的光子几率分布 P_{n_s} 和 P_{n_s} 的乘积, 即

$$P_{n_s, n_s} = P_{n_s} P_{n_s} \quad (7.12-10)$$

从而方程 (7.12-8) 式可简化为

$$\frac{d\bar{n}_s}{dt} = NJ(\bar{n}_s + 1)\bar{n}_s \quad (7.12-11)$$

这种近似在处理受激喇曼散射效应这样的问题时是有效的。通常两束光在非线性过程的开始时是独立的, 所以 (7.12-10) 式可以作为一个起始条件, 但无论如何, 一束光的统计性质随时间的变化与另一束光的性质有关, 非线性过程逐渐地破坏了它们之间的统计独立性。

我们现在不去讨论受激喇曼散射方程的一般解, 而只是讨论一个特殊的情况, 即入射光束比散射光束强得多的情况。这样, 就可以把在图 7-14 中所示的饱和区除外即不予考虑, 而只考虑线性和指数区域。

如果只在原来入射光束中有一小部分光子被散射, 自然可以不考虑这束光的统计性质的微小的变化, 因而我们可以认为入射光子统计分布 P_{n_s} 是不随时间变化的。这样, 可以讨论 P_{n_s} 的形式对散射光束强度的影响。

现将 (7.12-8) 式对 t 微分给出

$$\begin{aligned} \frac{d^2\bar{n}_s}{dt^2} &= NJ \sum_{n_s, n_s} n(n_s + 1) \frac{dP_{n_s, n_s}}{dt} \\ &= N^2 J^2 \sum_{n_s, n_s} n(n_s + 1) \{ (n+1)n_s P_{n+1, n_s-1} - n(n_s+1) P_{n, n_s} \} \\ &= N^2 J^2 \sum_{n_s, n_s} n(n_s + 1)(n - n_s - 2) P_{n, n_s} \end{aligned} \quad (7.12-12)$$

因为假定入射光束很强, 所以 $n_s + 2$ 与 n 相比较可略去, 这样 (7.12-12) 式变为

$$\frac{d^2\bar{n}_s}{dt^2} = N^2 J^2 \sum_{n_s, n_s} n^2(n_s + 1) P_{n, n_s} \quad (7.12-13)$$

令非线性过程开始时即 $t = 0$ 时平均的散射光子数为 $\bar{n}_{s,0}$, 在散射开始时 (7.12-10) 式是有效的, 所以 (7.12-11) 式和 (7.12-13) 式在 $t = 0$ 时有

$$\left(\frac{d\bar{n}_s}{dt} \right)_0 = NJ\bar{n}_s(\bar{n}_{s,0} + 1) \quad (7.12-14)$$

和

$$\left(\frac{d^2\bar{n}_s}{dt^2} \right)_0 = N^2 J^2 \bar{n}_s^2 (\bar{n}_{s,0} + 1) \quad (7.12-15)$$

如果再利用和以上相类似的方法求 \bar{n}_s 高阶导数, 可以证明 (7.12-14) 式和 (7.12-15) 式实际上是—般结果

$$\left(\frac{d^n \bar{n}_s}{dt^n} \right)_0 = N^n J^n \bar{n}_s^n (\bar{n}_{s,0} + 1) \quad n \gg n_s \quad (7.12-16)$$

的特殊情况。式中

$$\bar{n}^r = \sum_n n^r P_n \quad (7.12-17)$$

关于 \bar{n}_s 随时间的变化规律, 可由其台劳展开式求得

$$\begin{aligned} \bar{n}_s &= \bar{n}_{s,0} + \left(\frac{d\bar{n}_s}{dt}\right)_0 t - \frac{1}{2!} \left(\frac{d^2\bar{n}_s}{dt^2}\right)_0 t^2 + \dots \\ &= (\bar{n}_{s,0} + 1) \sum_n (\exp(NJnt)) P_n - 1 \end{aligned} \quad (7.12-18)$$

我们可以将这个一般解与(7.10-37)式忽略光子统计分布效应时的结果作一比较, 当入射光束总比散射光束强得很多时, (7.10-37)式近似变为

$$\bar{I}_s = \left\{ \bar{I}_{s,0} + \left(\frac{\hbar\omega_s^2}{Vk_s}\right) \right\} \exp Gz - \frac{\hbar\omega_s^2}{Vk_s} \quad (7.12-19)$$

将平均强度按 $\bar{I} = (\hbar\omega^2/Vk)\bar{n}$ 用平均光子数表示时, (7.12-19)式可改写为

$$\bar{n}_s = (\bar{n}_{s,0} + 1) \exp(Gz) - 1 \quad (7.12-20)$$

式中的 G 由(7.10-36)式给出, 这时在它的最后一个括号中只保留第一项 \bar{I}_0/ω , 并在利用(7.12-2)式和 $\bar{I} = (\hbar\omega^2/Vk)\bar{n}$ 的关系后, G 可改写为

$$G = NJ\bar{n}k_s/\omega_s \quad (7.12-21)$$

式中已令 $\omega_s = \omega - \omega_f$ 。

比较近似解(7.12-20)式和一般解(7.12-18)式可见, 它们十分相似, 只是前者的变量是位置坐标 z , 后者的变量是时间 t , 将 $z = v_s t = \omega_s t/k_s$ 代入(7.12-21)式, 则近似结果为

$$\bar{n}_s = (\bar{n}_{s,0} + 1) \exp(NJ\bar{n}t) - 1 \quad (7.12-22)$$

如果将(7.12-18)式和(7.12-22)式都写成幂级数的形式, 则分别有

$$\begin{aligned} \bar{n}_s &= (\bar{n}_{s,0} + 1) \left[1 + \sum_n NJnt P_n + \frac{1}{2!} \sum_n (NJnt)^2 P_n + \dots \right] - 1 \\ &= (\bar{n}_{s,0} + 1) \left[1 + NJ\bar{n}t + \frac{1}{2!} N^2 J^2 t^2 \bar{n}^2 + \dots \right] - 1 \end{aligned} \quad (7.12-23)$$

和

$$\bar{n}_s = (\bar{n}_{s,0} + 1) \left[1 + NJ\bar{n}t + \frac{1}{2!} N^2 J^2 t^2 (\bar{n})^2 + \dots \right] - 1 \quad (7.12-24)$$

由此可见, 在确切解中 t^2 的系数是 \bar{n}^2 , 而在近似解中为 $(\bar{n})^2$ 。显然这两个结果一般是不相同的, 不过这两个解的常数项和线性项是相同的, 只是 t 的高次项不相同。

如果入射光是单模的相干光, 光子分布服从泊松分布

$$P_n = \frac{(\bar{n})^n}{n!} \exp(-\bar{n})$$

并且当 $NJt \ll 1$ 时, 很容易证明

$$\bar{n}_s = (\bar{n}_{s,0} + 1) \exp(NJ\bar{n}t) - 1 \quad (7.12-25)$$

同理，如果入射光是单模混乱光，光子分布为

$$P_n = \frac{(\bar{n})^n}{(1 + \bar{n})^{1+n}},$$

则可证明

$$\bar{n}_s = \frac{(\bar{n}_{s0} + N J n t)}{(1 + N J n t)} \quad (7.12-26)$$

以上结果表明(7.12-22)式的近似解与单模相干的强入射光束的结果一致。但当入射光束是混乱光时，(7.12-22)式与(7.12-26)式就不一致了。对于上述两种具体条件下的 \bar{n}_s 随 $N J n t$ 的变化规律如图7-18所示。图中 $\bar{n}_{s0} = 0$ ，即假定原始激发的散射光子数为零。由图可见，在 t 较小时，两条曲线有相同的斜率，但对于较大的 t 来说，混乱光比相干光散射得更强些。

最后应该指出的是，在许多情况下，当考虑了非线性效应引起光束统计性质的变化后，所得到的方程如(7.12-8)式不可能解析求解，因此光束的传播特性必须通过数值计算确定。

对其它非线性过程也可作类似于以上的讨论^[20]。其结论是：不管那一种非线性过程，光子统计分布在确定各种效应的空间和时间的变化规律时是很重要的。通常由于光束之间的非线性耦合所引起的统计分布的改变，会影响 z 和 t 的二次项和更高次项的系数。

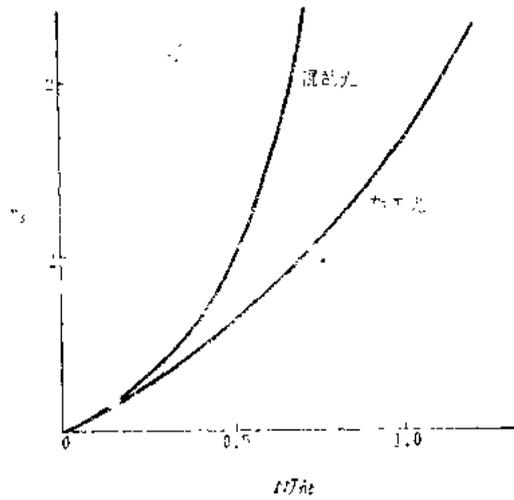


图7-18 相干光和混合光的单模光束被散射所产生的平均光子数随时间变化的规律

参 考 文 献

- [1] Slater, J.C., Microwave Electronics (Van Nostrand, Princeton, N.J., 1950).
- [2] Rodney Loudon, The Quantum Theory of Light, Clarendon Press Oxford, 1978, p.123.
- [3] Dirac, P.A.M., "Quantum Mechanics" 1th ed., Oxford Univ. Press, 1958, pp.136~139.
- [4] J.Glauber, Coherent and Incoherent States of Radiation Field, Phys. Rev Vol.131, No.6, pp.2766~2788.
- [5] 同[2], p.153.
- [6] 同[2], p.254.
- [7] Amnon Yariv, Quantum Electronics, John, Wiley & Sons, Inc., 1975, p.412.
- [8] A.E.Siegman, An Introduction to Lasers and Masers, McGraw-Hill Book Company, 1971, p.487.
- [9] 同[2], p.182.
- [10] 同[2], p.6.

- [11] 周世勋,《量子力学》,上海科学技术出版社,1963年6月,第176~177页。
- [12] 同 [2],p.205.
- [13] Born, M.and Wolf, E., Principles of Optics, Pergaman, Oxford, 1970,
p.374.
- [14] 同 [2], p.203.
- [15] 同 [2], p.306.
- [16] Weber, H.P.IEEE.J.Quantum Electron,QE-7,189,(1971)。
- [17] 同 [7],p.478.
- [18] Dietrich Marcuse, Principles of Quantum Electronics,Academic Press,
1980,p.385.
- [19] 同 [2],p.118.
- [20] Shen Y.R., Quantum Statistics of Nonlinear Optics, Phys Rev Vol. 153,
1967,p.921.

第八章 光学相位共轭技术

一、引言

众所周知,当激光束在大气或光学元件中传播时,由于大气或光学元件不均匀,将引起光束波前畸变。这种畸变对于激光束所传递的信息来讲,是一种噪声,必须将其除掉。因此,修正传输介质不均匀性引起的波前畸变,便成为激光应用中的一个重要任务。

实际上,修正波前畸变的课题早在激光出现以前的无线电波传播中就已存在。无线电波在大气中传播时,同样会因为大气的均匀性而引起波前畸变,人们为了克服这种畸变,提出了微波自适应技术^[1]。这种技术的基本思想是首先对大气引起的微波波前畸变情况进行监测,然后利用可变形天线阵发射由大气畸变信息调制的电波(以后可知,这种电波实际上就是被大气畸变了电波的相位共轭波),这样一种电波通过大气后,就消除了大气的影响。在光波段,为了克服传输介质引起的波前畸变,曾根据微波自适应技术的思想提出了光学自适应技术(COAT)^[2]。在这种COAT中,采用了含有电-光器件、声-光器件及可变形反射镜的补偿系统。显然,它需要有庞杂的监听系统,计算机控制系统,以及相应的伺服机构,无论从经济上,还是从工程上来讲,都存在着极大的困难。随着非线性光学的发展,人们发现,在某些非线性光学过程中,无需其它设备,即可实时地产生畸变光波的相位共轭波,当这种光波通过引起畸变的非均匀介质后,便可消除波前畸变。正因为这些非线性光学过程产生的相位共轭波能够奇妙地修正大气、光学元件及其它传输介质不均匀性引起的波前畸变,所以自1976年以来,它愈来愈受到人们的重视,从理论和实验上进行了广泛深入的研究。现在它已经成为相干光学中的一个非常活跃的领域,并且在非线性光学中逐渐形成了一门新技术——光学相位共轭技术。

光学相位共轭技术就是利用非线性光学效应使光波波前反演的技术,也就是产生相位共轭波的技术。

下面,我们首先讨论光学相位共轭技术的基本概念:相位共轭波的定义和修正波前畸变的物理过程。

1. 相位共轭波的定义

如果我们考察的光波沿着 z 方向传播,其光波电场表示式为

$$E_s(\mathbf{r}, t) = \text{Re}\{E_s(\mathbf{r})\exp[-i(\omega_s t - k_s z)]\} \quad (8.1-1)$$

(式中 $E_s(\mathbf{r})$ 为光波电场的复振幅),则定义该光波的相位共轭波电场为

$$E_p(\mathbf{r}, t) = \text{Re}\{E_s^*(\mathbf{r})\exp[-i(\omega_s t \pm k_s z)]\}, \quad (8.1-2)$$

式中的正、负号分别相应于光波 $E_s(\mathbf{r}, t)$ 的背向相位共轭波和前向相位共轭波。前向相位共轭波的传播方向与 $E_s(\mathbf{r}, t)$ 相同,复振幅为 $E_s(\mathbf{r})$ 的复共轭(相位的空间分布与 $E_s(\mathbf{r})$ 呈镜象对称);背向相位共轭波的传播方向与 $E_s(\mathbf{r}, t)$ 相反,复振幅也为 $E_s(\mathbf{r})$ 的复共轭(相位的空间分布与 $E_s(\mathbf{r})$ 相同)。

在有些非线性过程(例如SBS、SRS)中,在一定条件下背向散射光场的复振幅也是入

射光场复振幅的复共轭，但是它们的频率不同，尽管如此，我们仍然将其叫做入射光的背向相位共轭光。在这种情况下背向相位共轭光波总场表示式为

$$E_p(\mathbf{r}, t) = \operatorname{Re}\{E_s^*(\mathbf{r}) \exp[-i(\omega_p t + k_z z)]\}. \quad (8.1-3)$$

如果将上述光波场的复振幅表示为

$$E_s(\mathbf{r}) = A(\mathbf{r}) \exp[i\varphi(\mathbf{r})], \quad (8.1-4)$$

则共相位共轭光波场的复振幅便为

$$E_p(\mathbf{r}) = A(\mathbf{r}) \exp[-i\varphi(\mathbf{r})]. \quad (8.1-5)$$

其中 $A(\mathbf{r})$ 、 $\varphi(\mathbf{r})$ 皆为实数，分别为光波场的振幅和相位大小。

由上面的讨论我们可以看出，某光波的相位共轭波并不是该光波场总表示式的复共轭，而只是其复振幅的复共轭，完全不涉及光场表示式中的时间相位因子。

因为光波电场为实数，所以可将 $E_s(\mathbf{r}, t)$ 表示为

$$E_s(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{2} E_s(\mathbf{r}) \exp[-i(\omega t - kz)] + \frac{1}{2} E_s^*(\mathbf{r}) \exp[i(\omega t - kz)],$$

其相应的(背向)相位共轭波也可表示为

$$E_p(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{2} E_s^*(\mathbf{r}) \exp[-i(\omega t + kz)] + \frac{1}{2} E_s(\mathbf{r}) \exp[i(\omega t + kz)].$$

将上面二式进行比较，可以看出 $E_p(\mathbf{r}, t) = E_s(\mathbf{r}, -t)$ 。故此，也常称 $E_p(\mathbf{r}, t)$ 为 $E_s(\mathbf{r}, t)$ 的时间反演波。

2. 相位共轭波修正波前畸变的物理过程

如果(8.1-1)式描述的光波为线偏振光，当它在介电常数为 $\epsilon(\mathbf{r})$ 的非均匀介质中传播时，满足下面标量形式的波动方程

$$\nabla^2 E_s(\mathbf{r}, t) + \omega_s^2 \mu \epsilon(\mathbf{r}) E_s(\mathbf{r}, t) = 0. \quad (8.1-6)$$

将光场表示式代入，有

$$\nabla^2 E_s(\mathbf{r}) + [\omega_s^2 \mu \epsilon(\mathbf{r}) - k_s^2] E_s(\mathbf{r}) + 2ik_s \frac{\partial E_s(\mathbf{r})}{\partial z} = 0. \quad (8.1-7)$$

对该式取共轭，便得

$$\nabla^2 E_s^*(\mathbf{r}) + [\omega_s^2 \mu \epsilon(\mathbf{r}) - k_s^2] E_s^*(\mathbf{r}) - 2ik_s \frac{\partial E_s^*(\mathbf{r})}{\partial z} = 0. \quad (8.1-8)$$

得明显，(8.1-8)式正是光波

$$E_p(\mathbf{r}, t) = \operatorname{Re}\{E_s^*(\mathbf{r}) \exp[-i(\omega_s t + k_s z)]\} \quad (8.1-9)$$

所满足的波动方程。这个波与 $E_s(\mathbf{r}, t)$ 的传播方向相反，在空间每一点的光场复振幅为 $E_s(\mathbf{r})$ 的复共轭，因此，它就是 $E_s(\mathbf{r}, t)$ 的背向相位共轭波。如果我们进一步考察(8.1-7)式和(8.1-8)式就会发现，它们除了传播方向相反外，其场的空间分布完全一样。这就是说，如果入射波是畸变波，则 $E_p(\mathbf{r}, t)$ 也是畸变波；如果入射波是非畸变波，则 $E_p(\mathbf{r}, t)$ 也是非畸变波。这种一一对应性说明，在非均匀介质前面，由于入射波是非畸变波，所以， $E_p(\mathbf{r}, t)$ 也是非畸变波。因此，如果我们能够产生畸变光波 $E_s(\mathbf{r}, t)$ 的相位共轭波，就可以在使该相位共轭波通过非均匀介质后，将介质非均匀性引起的波前畸变消除掉。

为了形象起见，以后我们将产生相位共轭波的装置叫相位共轭镜(相位共轭反射镜)(PCM)、相位共轭透镜(PCTM)。下面，我们对光波入射到普通反射镜和相位共轭镜上的

情形进行比较,说明相位共轭波修正波前畸变的物理过程。

图8-1说明了一个点源产生的发散光入射到普通反射镜、相位共轭反射镜和相位共轭透镜上的情形。光波入射到普通反射镜上时,遵循普通的反射定律,其反射光继续发散(图8-1(a));当光入射到PCM上时,将产生该光波的背向相位共轭波,它严格地沿原光路返回,会聚到点源处(图8-1(b));当光入射到PCTM上时,将产生该光波的前向相位共轭波,它继续向前传播,并且会聚到与点源镜象对称的位置上(图8-1(c))。

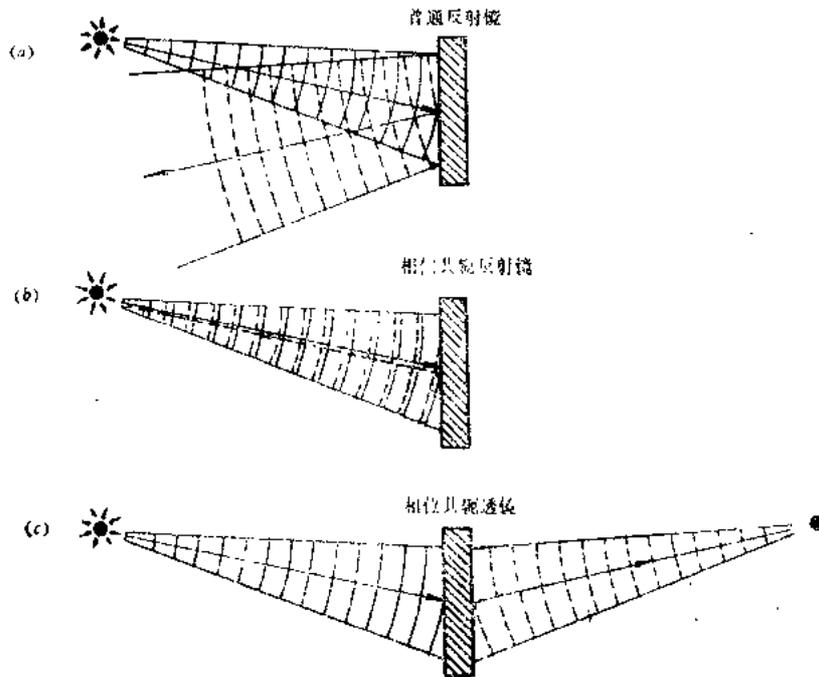


图8-1 PCM、PCTM和普通反射镜空间特性的比较

图8-2给出了一个平面光波通过畸变空间(玻璃棒)后射到普通反射镜和相位共轭镜上的情形。其中,图8-2(a)说明平面波1经过玻璃棒后变成畸变波2,它继续向前射到普通反射镜上,被反射成畸变波3,再次通过玻璃后,将变成有二倍畸变大小的畸变波4;图8-2(b)说明通过玻璃棒后的畸变波2经PCM反射,产生该光波的背向相位共轭波3,它再通过玻璃棒后,重现为均匀平面波4;图8-2(c)则说明了畸变波2入射到PCTM上后,产生其前向相位共轭波3,这个波通过与玻璃棒1完全相同的玻璃棒II后,就重现为均匀平面波4。

图8-3表示一束高斯光

$$E_1(r, t) = E_1 \exp\left(-\frac{r_{\perp}^2}{w^2}\right) \exp\left[-i\left(\omega t - kz - \frac{kr_{\perp}^2}{2\rho}\right)\right]$$

通过大气后射到PCM上的情形。式中 $r_{\perp}^2 = x^2 + y^2$, w , ρ 分别为高斯光束的光斑尺寸和曲率半径。该光波在大气中传播时,由于大气不均匀,将变成畸变波2,它有复杂的(畸变)波前,光场可以表示为

$$E_2(r, t) = E_2(r) \exp\left(-\frac{r_{\perp}^2}{w^2}\right) \exp\left[-i\left(\omega t - kz - \frac{kr_{\perp}^2}{2\rho}\right)\right].$$

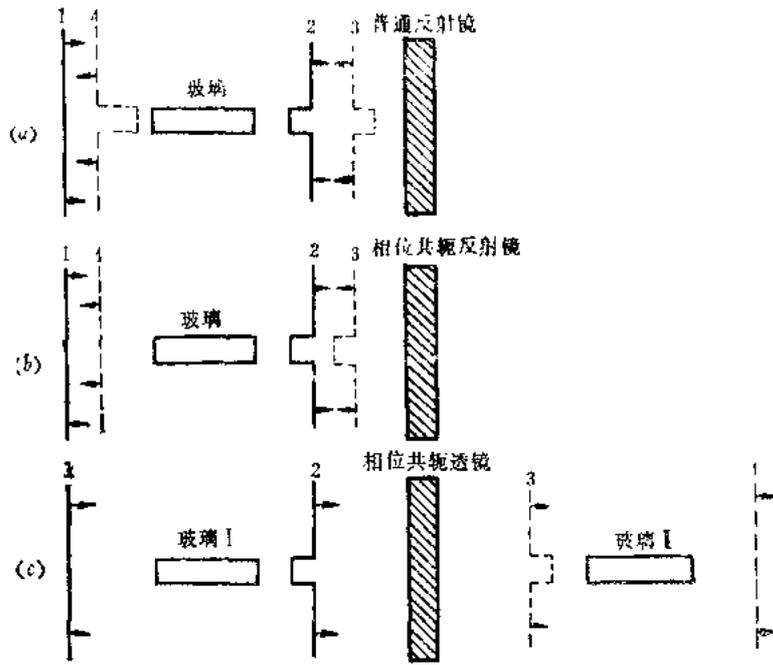


图 8-2 PCM、PCTM和普通反射镜对波前畸变的效应

该光波射到PCM上后,由于非线性作用,将产生背向相位共轭波3,它的光场

$$E_3(r, t) \propto E_2^*(r) \exp\left(-\frac{r^2}{w^2}\right) \times \exp\left[-i\left(\omega t + kz + \frac{kr^2}{2\rho}\right)\right].$$

波3再通过大气(可以认为,在这段时间内,大气的光学性质不变)后,将变为光场如下的波4:

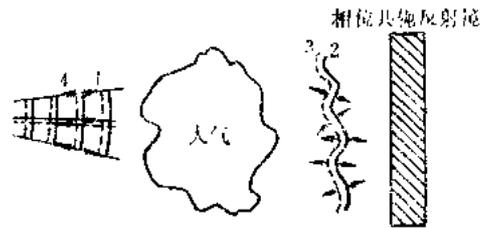


图 8-3 PCM修正大气不均匀性产生的波前畸变的物理过程

$$E_4(r, t) = E_4 \exp\left(-\frac{r^2}{w^2}\right) \exp\left[-i\left(\omega t + kz + \frac{kr^2}{2\rho}\right)\right].$$

它是一个完全消除了大气影响的高斯会聚光束。

由上面的分析可以看出,利用光学相位共轭技术修正波前畸变时,应具备两个条件:

- ①必须产生畸变波的相位共轭波;
- ②该相位共轭波必须通过其性质与入射波通过时完全相同的非均匀介质(对于一般应用来说,这种要求完全能够满足)。

3. 各种光学相位共轭技术

关于光学相位共轭技术的研究,实际上早在60年代就有人进行过。1967年,格里特森(Gerritsen)^[3]首先提出并证实了实时全息的概念,定性地讨论了图象处理问题;1971年,斯捷潘诺夫(Stepanov)等人^[4]在进行实时全息的实验中,观察到了与四波混频相位共轭现象类似的情形。但是,这一段早期的工作都是在全息领域内定性进行的,都未明确非线性光学过程的相位共轭特性。1972年,谢尔托维奇(Zeldovich)等人^[5]首先在

非线性光学领域内证实、解释了SBS相位共轭现象，并利用其修正了波前畸变。他们的工作受到了人们的注意。1976年雅里夫(Yariv)^[6]从理论上证明了三波混频光学相位共轭现象，1977年赫尔沃斯(Hellwath)^[7]提出并研究了四波混频光学相位共轭现象。此后，人们进一步对各种光学相位共轭技术进行了理论和实验研究。现在，人们已在各种不同材料上，利用不同的激光波段，采用不同的方法如三波混频、四波混频、SRS、SBS、光子回波，从不同的侧面对光学相位共轭技术进行了深入的研究，并且，逐步开展了光学相位共轭技术的应用研究。在各种非线性光学相位共轭技术中，最受重视的是四波混频光学相位共轭技术。

下面，我们对各种非线性光学相位共轭技术进行详细的讨论。

二、三波混频光学相位共轭技术

人们很早就对三波混频过程进行了研究，但是利用三波混频过程产生相位共轭波，并利用该相位共轭波修正波前畸变却是最近几年的事情。1976年雅里夫^[6]在进行光波导图象传递及再现的研究中，提出了利用晶体中三波混频过程产生的相位共轭波修正图象失真的理论，1977年，阿维佐尼斯(Avizonis)等人^[8]对硫酸锂晶体中的三波混频相位共轭进行了更具体的分析，并得到了实验验证。

由非线性光学的理论知道，三波混频过程是基于晶体中的二阶非线性极化率 $\chi^{(2)}$ 作用的参量过程。可以证明，在相位匹配条件下，三波混频过程将产生入射光的前向相位共轭光。

我们讨论的三波混频结构示意图如图8-4所示。在晶体中的三个光波场为

$$E_l(\mathbf{r}, t) = E_l(\mathbf{r}) \exp[-i(\omega_l t - \mathbf{k}_l \cdot \mathbf{r})] + C.C. \quad l = 1, 2, 3. \quad (8.2-1)$$

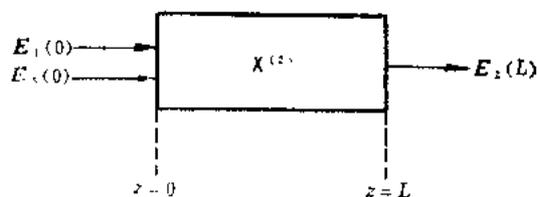


图 8-4 三波混频结构示意图

它们分别是信号光、散射光和泵浦光，它们之间的频率关系满足

$$\omega_3 = \omega_1 + \omega_2. \quad (8.2-2)$$

为了更清楚地讨论三波混频相位共轭特性，我们分别就三个光波皆为平面波和入射信号光有任意波前分布两种情况进行讨论。

1. 平面波情况

如果三个光波皆为沿 z 向传播的平面波，则可将(8.2-1)式写为

$$E_l(z, t) = E_l(z) \exp[-i(\omega_l t - k_l z)] + C.C. \quad l = 1, 2, 3. \quad (8.2-3)$$

由二阶非线性极化强度的一般关系(1.3-15)式，可以得到相应于各个频率分量的非线性极化强度的复振幅为

$$\begin{aligned}
P_1^{(2)}(z) &= 2\varepsilon_0\chi^{(2)}(\omega_3, -\omega_2) : E_3(z)E_2^*(z), \\
P_2^{(2)}(z) &= 2\varepsilon_0\chi^{(2)}(\omega_3, -\omega_1) : E_3(z)E_1^*(z), \\
P_3^{(2)}(z) &= 2\varepsilon_0\chi^{(2)}(\omega_1, \omega_2) : E_1(z)E_2(z).
\end{aligned} \tag{8.2-4}$$

按照第五章的讨论，在考虑到慢变化振幅近似的条件下，得到下面三个方程：

$$\begin{aligned}
\frac{dE_1(z)}{dz} &= \frac{i}{k_1} \mu\varepsilon_0\omega_1^2\chi_c^{(2)} E_3(z)E_2^*(z)\exp(-i\Delta kz), \\
\frac{dE_2(z)}{dz} &= \frac{i}{k_2} \mu\varepsilon_0\omega_2^2\chi_c^{(2)} E_3(z)E_1^*(z)\exp(-i\Delta kz), \\
\frac{dE_3(z)}{dz} &= \frac{i}{k_3} \mu\varepsilon_0\omega_3^2\chi_c^{(2)} E_1(z)E_2(z)\exp(i\Delta kz).
\end{aligned} \tag{8.2-5}$$

式中

$$\Delta k = k_1 + k_2 - k_3. \tag{8.2-6}$$

为了讨论三波混频相位共轭特性，就需要求解这三个方程。

下面分别采用小信号理论和大信号理论进行讨论。

(1) 小信号理论

如果在相互作用的三个光中， E_3 是强泵浦光， E_1 和 E_2 是弱信号光，它们之间满足 $|E_3|^2 \gg |E_1|^2, |E_2|^2$ ，则可以忽略泵浦抽空效应，认为泵浦光强度在介质中不变化，而在上面三个方程中，只需要考虑 E_1 和 E_2 满足的两个方程即可。

对(8.2-5)式的第一个方程取共轭，并且令

$$g_{1,2} = \frac{1}{k_{1,2}} \mu\varepsilon_0\omega_{1,2}^2\chi_c^{(2)} E_3, \tag{8.2-7}$$

就得到 E_1 和 E_2 满足的耦合方程

$$\begin{aligned}
\frac{dE_1^*(z)}{dz} &= -ig_1^*E_2(z)\exp(i\Delta kz), \\
\frac{dE_2(z)}{dz} &= ig_2E_1^*(z)\exp(-i\Delta kz).
\end{aligned} \tag{8.2-8}$$

如果边界条件为

$$\left. \begin{aligned}
E_1^*(z=0) &= E_{10}^*, \\
E_2(z=0) &= 0,
\end{aligned} \right\} \tag{8.2-9}$$

则按第五章求解耦合方程的方法对(8.2-8)式方程组求解，最后可得

$$\begin{aligned}
E_1^*(z) &= (\cosh\alpha z - i\frac{\Delta k}{2\alpha} \sinh\alpha z)E_{10}^*\exp(i\Delta kz/2), \\
E_2(z) &= i\frac{\sinh\alpha z}{\alpha} g_2E_{10}^*\exp(-i\Delta kz/2).
\end{aligned} \tag{8.2-10}$$

其中

$$a = [g_1^*g_2 - (\Delta k/2)^2]^{1/2}. \tag{8.2-11}$$

在晶体的输出面 $z=L$ 上，信号光场和散射光场分别为

$$E_1^*(L) = (\text{ch}\alpha L - i \frac{\Delta k}{2\alpha} \text{sh}\alpha L) E_{10}^* \exp(i\Delta k L/2) \quad (8.2-12a)$$

和

$$E_2(L) = i \frac{\text{sh}\alpha L}{\alpha} g_2 E_{10}^* \exp(-i\Delta k L/2). \quad (8.2-12b)$$

由此可见，在晶体输出面上，由于非线性作用产生的前向散射光是输入面上入射信号的相位共轭光，有 $E_2(L) \propto E_{10}^*$ 。但是，如果 $\Delta k \neq 0$ ，则由于相位失配，将使散射光强度大大减小。所以，为了利用三波混频作用产生前向相位共轭光，必须设计晶体系统，使其满足相位匹配条件。

(2) 大信号理论

如果在非线性介质中的三波作用不能忽略泵浦抽空效应，则为了讨论三波混频相位共轭特性，必须同时求解(8.2-5)式的三个方程，这便是大信号理论。

假设介质中的三个光波满足相位匹配条件，可将(8.4-5)式的三个方程写为

$$\left. \begin{aligned} \frac{dE_1(z)}{dz} &= iC_1 E_3(z) E_2^*(z), \\ \frac{dE_2^*(z)}{dz} &= -iC_2 E_3^*(z) E_1(z), \\ \frac{dE_3(z)}{dz} &= iC_3 E_1(z) E_2(z). \end{aligned} \right\} \quad (8.2-13)$$

式中

$$C_l = \frac{1}{k_l} \mu \epsilon_0 \omega_l^2 \chi_c^{(2)} \quad l = 1, 2, 3.$$

若令各光场的复振幅为

$$E_l(z) = A_l(z) \exp[i\varphi_l(z)] \quad l = 1, 2, 3, \quad (8.2-14)$$

代入(8.2-13)式后，得到

$$\left. \begin{aligned} \frac{dA_1(z)}{dz} + iA_1(z) \frac{d\varphi_1(z)}{dz} &= iC_1 A_2(z) A_3(z) \exp[i\Phi(z)], \\ \frac{dA_2(z)}{dz} - iA_2(z) \frac{d\varphi_2(z)}{dz} &= -iC_2 A_1(z) A_3(z) \exp[-i\Phi(z)], \\ \frac{dA_3(z)}{dz} + iA_3(z) \frac{d\varphi_3(z)}{dz} &= iC_3 A_1(z) A_2(z) \exp[-i\Phi(z)]. \end{aligned} \right\} \quad (8.2-15)$$

式中

$$\Phi(z) = \varphi_3(z) - \varphi_1(z) - \varphi_2(z). \quad (8.2-16)$$

在(8.2-15)式中，利用欧拉公式

$$\exp(i\Phi) = \cos\Phi + i\sin\Phi,$$

并使等式两边的实部、虚部分别相等，得到

$$\begin{aligned}
\frac{dA_1(z)}{dz} &= -C_1 A_2(z) A_3(z) \sin \Phi(z), \\
\frac{dA_2(z)}{dz} &= -C_2 A_1(z) A_3(z) \sin \Phi(z), \\
\frac{dA_3(z)}{dz} &= C_3 A_1(z) A_2(z) \sin \Phi(z)
\end{aligned}
\tag{8.2-17}$$

和

$$\begin{aligned}
\frac{d\varphi_1(z)}{dz} &= C_1 \frac{A_2(z) A_3(z)}{A_1(z)} \cos \Phi(z), \\
\frac{d\varphi_2(z)}{dz} &= C_2 \frac{A_1(z) A_3(z)}{A_2(z)} \cos \Phi(z), \\
\frac{d\varphi_3(z)}{dz} &= C_3 \frac{A_1(z) A_2(z)}{A_3(z)} \cos \Phi(z).
\end{aligned}
\tag{8.2-18}$$

对相位因子方程组进行运算，可以得到

$$\begin{aligned}
\frac{d\Phi(z)}{dz} &= \frac{d}{dz} [\varphi_3(z) - \varphi_2(z) - \varphi_1(z)] \\
&= \left(\frac{dA_3(z)/dz}{A_3(z)} + \frac{dA_2(z)/dz}{A_2(z)} + \frac{dA_1(z)/dz}{A_1(z)} \right) \cos \Phi(z) \\
&\quad - \sin \Phi(z).
\end{aligned}$$

经过整理后，变为

$$\frac{d}{dz} \{ \ln [A_1(z) A_2(z) A_3(z) \cos \Phi(z)] \} = 0.$$

因此有

$$A_1(z) A_2(z) A_3(z) \cos \Phi(z) = \text{常数}. \tag{8.2-19}$$

该式说明，在相互作用空间中的任一点，三个光场振幅大小与总相位因子余弦的乘积保持不变。因为对于三波混频相位共轭过程来说，总是存在一个闲置光（例如 $A_2(0) = 0$ ），所以(8.2-19)式中的常数应当等于零。但由于(8.2-19)式左边的各个振幅大小不可能恒等于零，因此，必定 $\cos \Phi(z) = 0$ ，即 $\Phi(z)$ 应满足

$$\Phi(z) = \varphi_3(z) - \varphi_2(z) - \varphi_1(z) = \pm \frac{\pi}{2}. \tag{8.2-20}$$

这就是说，在相互作用区中的任一点处，三个光的相位关系一定。对于我们所讨论的情况来说（ E_3 是泵浦光， E_1, E_2 是信号光）， $\Phi(z) = -\pi/2$ 。如果 φ_3 是与坐标无关的常数，则有

$$\begin{aligned}
\varphi_1(z) &= \frac{\pi}{2} + \varphi_3 - \varphi_2(z) \\
&= \text{常数} - \varphi_2(z).
\end{aligned}
\tag{8.2-21}$$

由此可见， $E_2(z, t)$ 是 $E_1(z, t)$ 的相位共轭波。

由于介质中三个光的相位关系一定，所以在讨论三波混频相位共轭特性时，只需求解振幅耦合方程(8.2-17)式即可。

将 $\phi(z) = -\frac{\pi}{2}$ 代入(8.2-17)式中, 得到

$$\left. \begin{aligned} \frac{dA_1(z)}{dz} &= C_1 A_2(z) A_3(z), \\ \frac{dA_2(z)}{dz} &= C_2 A_1(z) A_3(z), \\ \frac{dA_3(z)}{dz} &= -C_3 A_1(z) A_2(z). \end{aligned} \right\} \quad (8.2-22)$$

上面三式分别乘以 $2A_1(z)$ 、 $2A_2(z)$ 、 $2A_3(z)$, 经过整理以后, 变为

$$\left. \begin{aligned} \frac{dA_1^2(z)}{dz} &= 2C_1 A_1(z) A_2(z) A_3(z), \\ \frac{dA_2^2(z)}{dz} &= 2C_2 A_1(z) A_2(z) A_3(z), \\ \frac{dA_3^2(z)}{dz} &= -2C_3 A_1(z) A_2(z) A_3(z). \end{aligned} \right\} \quad (8.2-23)$$

假设边界条件为

$$\left. \begin{aligned} A_1(z=0) &= A_1(0), \\ A_2(z=0) &= 0, \end{aligned} \right\} \quad (8.2-24)$$

则由(8.2-23)式可以得到

$$\left. \begin{aligned} \frac{A_1^2(z)}{C_1} - \frac{A_2^2(z)}{C_2} &= \frac{A_1^2(0)}{C_1}, \\ \frac{A_1^2(z)}{C_1} + \frac{A_3^2(z)}{C_3} &= \frac{A_1^2(0)}{C_1} + \frac{A_3^2(0)}{C_3}, \\ \frac{A_2^2(z)}{C_2} + \frac{A_3^2(z)}{C_3} &= \frac{A_3^2(0)}{C_3}. \end{aligned} \right\} \quad (8.2-25)$$

(8.2-25)式即为我们这里所讨论的情况的曼利-罗关系。由该式可见, 只要知道介质中某一点处的 $A_3(z)$, 就可以求出相应的 $A_2(z)$ 和 $A_1(z)$ 。

下面, 我们首先求解 $A_3(z)$ 。将(8.2-22)式的第三个方程进行移项, 变为

$$dz = -\frac{dA_3(z)}{C_3 A_1(z) A_2(z)}.$$

两边对 z 求积分, 并代入(8.2-25)式的关系, 可得

$$\int_0^z dz = -\frac{1}{C_3} \int_{A_3(0)}^{A_3(z)} \frac{dA_3(z)}{(C_1 C_2)^{1/2} \left[\frac{A_1^2(0)}{C_1} + \frac{A_3^2(0)}{C_3} - \frac{A_3^2(z)}{C_3} \right]^{1/2} \left[\frac{A_1^2(0)}{C_1} - \frac{A_3^2(z)}{C_3} \right]^{1/2}}.$$

若令

$$\sin \beta = \frac{A_3(z)}{A_3(0)}, \quad (8.2-26)$$

$$k^2 = \frac{A_3^2(0)}{C_3} = \frac{A_1^2(0)}{C_1} + \frac{A_2^2(0)}{C_2}, \quad (8.2-27)$$

$$\Gamma = (C_1 C_2 C_3)^{1/2} \left[\frac{A_1^2(0)}{C_1} + \frac{A_2^2(0)}{C_2} \right]^{1/2}, \quad (8.2-28)$$

上面的积分式就变为

$$\begin{aligned} \Gamma z &= \int_{\beta}^{\pi/2} \frac{d\beta}{[1 - k^2 \sin^2 \beta]^{1/2}} \\ &= K - \int_0^{\beta} \frac{d\beta}{[1 - k^2 \sin^2 \beta]^{1/2}}. \end{aligned} \quad (8.2-29)$$

式中 K 是椭圆正弦的 $1/4$ 周期。考虑到椭圆函数的定义，并利用 (8.2-26) 式关系，可以解得

$$A_3(z) = A_3(0) \operatorname{sn}(K - \Gamma z). \quad (8.2-30)$$

进一步由曼利-罗关系 (8.2-25) 式，并利用椭圆函数的性质

$$\begin{aligned} \operatorname{cn}^2(K - \Gamma z) &= 1 - \operatorname{sn}^2(K - \Gamma z), \\ \operatorname{dn}^2(K - \Gamma z) &= 1 - k^2 \operatorname{sn}^2(K - \Gamma z), \end{aligned}$$

可以求得

$$A_2(z) = \left(\frac{C_2}{C_3} \right)^{1/2} A_3(0) \operatorname{cn}(K - \Gamma z), \quad (8.2-31)$$

$$A_1(z) = (1 - k^2)^{-1/2} A_3(0) \operatorname{dn}(K - \Gamma z). \quad (8.2-32)$$

上边两式和 (8.2-30) 式分别给出了非线性介质中三个光波场振幅的变化规律。

2. 入射信号光有任意波前分布的情况

如果入射泵浦光是强均匀平面波，入射信号光由于受到非均匀扰动，波前发生了畸变，在其波矢中含有横向分量 k_{\perp} ，则将它们的光场及相应的非线性极化强度表示式代入波动方程

$$\nabla^2 \mathbf{E} - \mu \epsilon \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} = \mu \frac{\partial^2 \mathbf{P}^{(2)}}{\partial t^2},$$

并利用慢变化振幅近似条件进行运算后，就可以得到各个场满足的波动方程。其中，散射光 $E_2(\mathbf{r}, t)$ 的复振幅满足

$$\begin{aligned} \left[\nabla_{\perp}^2 + 2i(\mathbf{k}_{\perp} \cdot \nabla) + 2ik_{z,c} \frac{\partial}{\partial z} \right] E_2(\mathbf{r}) \\ = -2\mu \epsilon_0 \omega_c^2 \chi^{(2)} E_3 E_1^*(\mathbf{r}) \exp(-i\Delta \mathbf{k} \cdot \mathbf{r}), \end{aligned} \quad (8.2-33)$$

式中

$$\nabla_{\perp}^2 = \frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2}, \quad \mathbf{r} = \mathbf{r}_{\perp} + z, \quad \mathbf{k}_{\perp 1} = \mathbf{k}_{\perp p} + \mathbf{k}_{\perp s}, \quad \Delta \mathbf{k} = \mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_3.$$

因为 (8.2-33) 式中的 $E_2(\mathbf{r})$ 沿着横向空间有任意分布，所以直接求解比较困难。为此，我们可将它进行傅里叶变换，首先求解该光场的单一平面波分量，然后通过傅里叶反变换求出这个光场的表示式。

由傅里叶分析, $E_{1,2}(\mathbf{r})$ 在横向平面中的傅里叶变换为

$$E_{1,2}(\mathbf{k}, z) = \frac{1}{(2\pi)^2} \iint_{-\infty}^{\infty} E_{1,2}(\mathbf{r}) \exp(i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_\perp) d^2\mathbf{r}, \quad (8.2-34)$$

它的反变换为

$$\begin{aligned} E_{1,2}(\mathbf{r}) &= \iint_{-\infty}^{\infty} E_{1,2}(\mathbf{k}, z) \exp(-i\mathbf{k}_\perp \cdot \mathbf{r}_\perp) d^2k_\perp \\ &= \iint_{-\infty}^{\infty} E_{1,2}(-\mathbf{k}_\perp, z) \exp(i\mathbf{k}_\perp \cdot \mathbf{r}_\perp) d^2k_\perp, \end{aligned} \quad (8.2-35)$$

其复共轭为

$$E_{1,2}^*(\mathbf{r}) = \iint_{-\infty}^{\infty} E_{1,2}^*(-\mathbf{k}_\perp, z) \exp(-i\mathbf{k}_\perp \cdot \mathbf{r}_\perp) d^2k_\perp. \quad (8.2-36)$$

将(8.2-35)式关系代入(8.2-33)式后, 得到

$$\begin{aligned} &\iint_{-\infty}^{\infty} d^2k \left[-k_\perp^2 + 2(\mathbf{k}_\perp \cdot \mathbf{k}_\perp) + 2ik_{2z} \frac{\partial}{\partial z} \right] E_2(\mathbf{k}, z) \exp(-i\mathbf{k}_\perp \cdot \mathbf{r}_\perp) \\ &= -2\mu\epsilon_0\omega^2\chi_c^{(2)} E_3 E_1^*(\mathbf{r}) \exp(-i\Delta\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}). \end{aligned}$$

两边同时乘以 $\exp(i\mathbf{k}_\perp \cdot \mathbf{r}_\perp)$, 并对 \mathbf{r} 积分, 在利用了 $\exp(i\mathbf{k}_\perp \cdot \mathbf{r}_\perp)$ 函数的正交性以后, 可得

$$\begin{aligned} &\frac{\partial E_2(\mathbf{k}_\perp, z)}{\partial z} + \frac{i}{2k_{2z}} (k_\perp^2 - 2\mathbf{k}_{\perp 1} \cdot \mathbf{k}) E_2(\mathbf{k}, z) \\ &= -\frac{i}{k_{2z}} \mu\epsilon_0\omega^2\chi_c^{(2)} E_3 E_1^*(\mathbf{k}, z) \exp(-i\Delta k_z z). \end{aligned} \quad (8.2-37)$$

式中

$$\begin{aligned} E_1^*(\mathbf{k}_\perp, z) &= \frac{1}{(2\pi)^2} \iint_{-\infty}^{\infty} d^2\mathbf{r}_\perp \exp(i\mathbf{k}_\perp \cdot \mathbf{r}_\perp) E_1^*(\mathbf{r}) \exp(-i\Delta\mathbf{k}_\perp \cdot \mathbf{r}_\perp) \\ &= E_1^*[-(\mathbf{k}_\perp - \Delta\mathbf{k}_\perp), z]. \end{aligned} \quad (8.2-38)$$

因此, $E_1^*(\mathbf{k}_\perp, z)$ 是 $E_1[-(\mathbf{k}_\perp - \Delta\mathbf{k}_\perp), z]$ 的复共轭, 并非 $E_1(\mathbf{k}_\perp, z)$ 的复共轭, 它包含了相位失配因子 $\Delta\mathbf{k}$ 的影响。

对入射场 $E_1(\mathbf{r})$ 进行类似的分析, 得到

$$\begin{aligned} &\frac{\partial E_1^*[-(\mathbf{k}_\perp - \Delta\mathbf{k}_\perp), z]}{\partial z} - \frac{i}{2k_{1z}} (k_\perp^2 + 2\mathbf{k}_{\perp 1} \cdot \mathbf{k}'_\perp) E_1^*[-(\mathbf{k}_\perp - \Delta\mathbf{k}_\perp), z] \\ &= -\frac{i}{k_{1z}} \mu\epsilon_0\omega^2\chi_c^{(2)} E_3^* E_2(\mathbf{k}, z) \exp(i\Delta k_z z). \end{aligned} \quad (8.2-39)$$

其中

$$\mathbf{k} = \mathbf{k}_\perp - \Delta\mathbf{k}_\perp.$$

由(8.2-37)式和(8.2-39)式, 即可以得到 $E_2(\mathbf{k}_\perp, z)$ 满足如下方程:

$$\frac{\partial^2 E_2(\mathbf{k}, z)}{\partial z^2} - iA \frac{\partial E_2(\mathbf{k}, z)}{\partial z} + (B - g) E_2(\mathbf{k}_\perp, z) = 0, \quad (8.2-40)$$

其中

$$\begin{aligned}
 A &= \frac{1}{2} \left(\frac{k_{\perp}^{\prime 2} + 2\mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{k}'_{\perp}}{k_{1z}} - \frac{k^2 - 2\mathbf{k}_2 \cdot \mathbf{k}}{k_{2z}} - \Delta k_z \right), \\
 B &= \frac{k_{\perp}^{\prime 2} - 2\mathbf{k}_2 \cdot \mathbf{k}}{2k_{1z}} - \frac{\left(\frac{k_{\perp}^{\prime 2} + 2\mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{k}'_{\perp}}{2k_{1z}} - \Delta k_z \right)}{2k_{1z}}, \\
 g &= \frac{1}{k_{1z}k_{2z}} \mu^2 \epsilon_0^2 \omega_1^2 \omega_2^2 (\chi_c^{(2)})^2 |E_3|^2.
 \end{aligned} \tag{8.2-41}$$

该方程通解为

$$E_2(\mathbf{k}_{\perp}, z) = (C \operatorname{sh} \alpha_0 z + D \operatorname{ch} \alpha_0 z) \exp(iAz/2). \tag{8.2-42}$$

式中

$$\alpha_0 = \frac{1}{2} [A(g-B) - A^2]^{1/2}. \tag{8.2-43}$$

假设边界条件为

$$\left. \begin{aligned}
 E_2(\mathbf{r}, z=0) &= 0, \\
 E_1^*(\mathbf{r}_1, z=0) &= E_{10}^*
 \end{aligned} \right\} \tag{8.2-44}$$

相应于单一平面波分量的边界条件为

$$\left. \begin{aligned}
 E_2(\mathbf{k}, z=0) &= 0, \\
 E_1^*(-\mathbf{k}_1, z=0) &= E_1^*(-\mathbf{k}, 0),
 \end{aligned} \right\} \tag{8.2-45}$$

则可求得散射光的单一平面波分量场为

$$E_2(\mathbf{k}_{\perp}, z) = \frac{i}{k_{2z}} \mu \epsilon_0 \omega_2^2 \chi_c^{(2)} E_3 \frac{\operatorname{sh} \alpha_0 z}{\alpha_0} E_1^*[-(\mathbf{k}_{\perp} - \Delta \mathbf{k}_{\perp}), 0] \exp(iAz/2). \tag{8.2-46}$$

显然，散射光的平面波分量 $E_2(\mathbf{k}_{\perp}, z)$ 直接与 $E_1^*[-(\mathbf{k}_{\perp} - \Delta \mathbf{k}_{\perp}), 0]$ 相耦合。由于 α_0 、 A 关系式中含有 Δk_z 和 $\Delta \mathbf{k}$ ，所以散射光平面波分量场受到相位失配 $\Delta \mathbf{k}$ 的影响。

利用傅里叶反变换，可以求得散射光场为

$$\begin{aligned}
 E_2(\mathbf{r}_1, z > 0) &= \iint_{-\infty}^{\infty} \frac{i}{k_{2z}} \mu \epsilon_0 \omega_2^2 \chi_c^{(2)} E_3 \frac{\operatorname{sh} \alpha_0 z}{\alpha_0} E_1^*[-(\mathbf{k}_{\perp} - \Delta \mathbf{k}_{\perp}), 0] \\
 &\quad \times \exp(iAz/2) \exp(-i\mathbf{k}_{\perp} \cdot \mathbf{r}_1) d^2k_{\perp} \tag{8.2-47}
 \end{aligned}$$

如果 $\Delta \mathbf{k} \neq 0$ ，则 $E_2(\mathbf{r}_1, z > 0)$ 不是入射光 $E_1(\mathbf{r}, z=0)$ 的相位共轭光。这说明，即使在系统的设计和制作中保证了晶体中沿 z 方向传播的三个平面波满足相位匹配条件，但是因为实际上入射信号有波前畸变，光束发散，从而 $\Delta \mathbf{k} \neq 0$ ，所以 $E_2(\mathbf{r}_1, z > 0)$ 仍不是入射信号的相位共轭光。如果入射信号光的波前发散很小，满足近轴传播条件，近似有 $\Delta \mathbf{k} \approx 0$ ，则当晶体的设计满足 $\Delta k_z = 0$ (取 $\omega_1 = \omega_2$) 时，便有 $A = 0$ 。此时，(8.2-40) 式变为

$$\frac{\partial^2 E_2(\mathbf{k}_{\perp}, z)}{\partial z^2} + (B - g)E_2(\mathbf{k}_{\perp}, z) = 0. \tag{8.2-48}$$

其解为

$$E_2(\mathbf{k}_{\perp}, z) = \frac{i}{k_{2z}} \mu \epsilon_0 \omega_2^2 \chi_c^{(2)} E_3 \frac{\operatorname{sh} \alpha_0 z}{\alpha_0} E_1^*(-\mathbf{k}, 0). \tag{8.2-49}$$



进一步,若 $g \gg B$,则可以忽略由波前发散引起的耦合下降,从而有 $\alpha_0 \approx g^{1/2}$ 。在这种情况下,(8.2-49)式表示的散射光单一平面波分量为入射信号光相应平面波分量的相位共轭波,并且,散射光的 k_x 分量直接与入射光的 $-k_x$ 分量耦合。相应于这种情况下的散射光为

$$E_2(\mathbf{r}) \approx \frac{i}{k_{z2}} \mu \epsilon_0 \omega_0^2 \chi^{(3)} E_0 \frac{\text{sh} \alpha_0 z}{\alpha_0} E_{10}^* \quad (8.2-50)$$

在晶体的输出面 $z=L$ 上,散射光为

$$E_2(\mathbf{r} = L) \approx \frac{i}{k_{z2}} \mu \epsilon_0 \omega_0^2 \chi^{(3)} E_0 \frac{\text{sh} \alpha_0 L}{\alpha_0} E_{10}^* \quad (8.2-51)$$

这个结果与平面波小信号理论的结果形式一致。

由上面的分析我们可以看出,在三波混频过程中,如果入射信号波前的发散度较小,并且,如果器件的设计使得沿 z 方向传播的三个平面波满足相位匹配条件,则在 $g \gg B$ 的情况下,所产生的散射光是入射信号光的相位共轭光,否则就得不到理想的相位共轭光。因此,对于三波混频相位共轭来讲,入射信号光波前畸变的程度、相位匹配的好坏是至关重要的。显然,这种苛刻的要求严重地限制了三波混频光学相位共轭技术的应用。

三、四波混频光学相位共轭技术

四波混频过程是四个波在非线性介质中相互作用的过程。可以证明,当两个泵浦光和一个信号光入射到非线性介质上时,由于非线性耦合作用,将产生第四个光——相位共轭光。由于四波作用的结构不同,既可以产生前向相位共轭光,又可以产生背向相位共轭光。

根据四波混频过程的具体条件的不同,可以对四波混频光学相位共轭进行如下的分类:

(a) 按照相互作用四个波的频率关系进行分类。如果四个光波频率相同,则叫做简并四波混频(DFWM)光学相位共轭;如果四个光波频率不同,则叫做非简并四波混频光学相位共轭。

(b) 按照四个光波频率与介质的电子共振频率的关系进行分类。如果光频等于或接近于介质的电子共振频率,则称为共振型四波混频光学相位共轭;如果光频远离介质的电子共振频率,则称为非共振型四波混频光学相位共轭。

人们最感兴趣的是简并四波混频(DFWM)光学相位共轭。

下面,我们分别讨论非共振型DFWM光学相位共轭、共振型DFWM光学相位共轭、近DFWM光学相位共轭,最后将四波混频光学相位共轭与全息过程进行比较。

1. 非共振型DFWM光学相位共轭

在非共振型四波混频过程中,光场将引起介质非线性折射率的变化。通常所采用的介质,大致可以分为两类:一类介质对本地场响应(光克尔效应^[7]),另一类介质对非本地场响应(热效应^[8]、光致折射效应^{[10][11]}、电致伸缩效应^[12]等),前者可以利用非线性极化率表征,后者不能直接利用非线性极化率表征。在这些介质中的四波混频过程都可以通过耦合波方程描述。

我们首先讨论入射光是平面波的情况。

(1) 平面波情况

①耦合方程 我们讨论的DFWM结构示意图如图 8-5 所示。其中的非线性介质是透明、无色散的类型尔介质，三阶非线性极化率是 $\chi^{(3)}$ 。在介质中相互作用的四个平面波场为

$$E_i(\mathbf{r}, t) = E_i(\mathbf{r}) \exp[-i(\omega t - \mathbf{k}_i \cdot \mathbf{r})] + C.C.,$$

$$i = 1, 2, 3, 4. \quad (8.3-1)$$

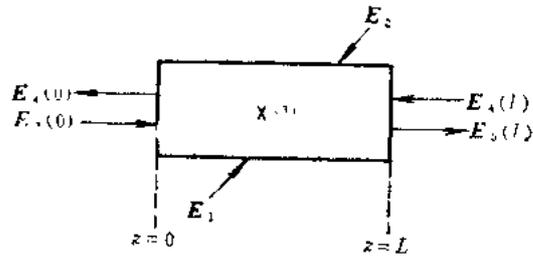


图 8-5 四波混频结构示意图

其中， E_1 、 E_2 是彼此反向传播的泵浦光波， E_3 、 E_4 是彼此反向传播的信号光波和散射光波。一般情况下，信号光和泵浦光传播方向有一个夹角，它们的波矢满足

$$\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 = \mathbf{k}_3 + \mathbf{k}_4 = 0. \quad (8.3-2)$$

如果四个光波为同向线偏振光，则根据非线性极化强度的一般关系，可以得到相应于某一场分量(如散射光 E_4)的感应非线性极化强度为

$$P_4(\mathbf{r}, t) = \epsilon_0 \chi^{(3)} \{3[2|E_1(\mathbf{r})|^2 + 2|E_2(\mathbf{r})|^2 + 2|E_3(\mathbf{r})|^2 + |E_4(\mathbf{r})|^2]E_4(\mathbf{r}) + 6E_1(\mathbf{r})E_2(\mathbf{r})E_3^*(\mathbf{r})\} \exp[-i(\omega t - \mathbf{k}_4 \cdot \mathbf{r})] + C.C.. \quad (8.3-3)$$

在考虑到慢变化振幅近似的条件下，介质中光场复振幅的变化规律满足(4.4-25)式，即

$$\frac{dE_i(\mathbf{r})}{dr_i} = \frac{i}{2k_i} \mu \epsilon_0 \omega^2 \alpha(\omega) \cdot P_{NL}(\omega, \mathbf{r}) \exp(i\mathbf{k}_i \cdot \mathbf{r}).$$

式中 r_i 是沿着波矢方向上的距离。若将非线性极化强度表示式代入该式，就得到非线性介质中四个光波场满足的耦合方程为

$$\begin{aligned} \frac{dE_1(\mathbf{r})}{dr_1} &= \frac{i}{2k_1} \mu \epsilon_0 \omega^2 \chi^{(3)} \{3[|E_1(\mathbf{r})|^2 + 2|E_2(\mathbf{r})|^2 + 2|E_3(\mathbf{r})|^2 \\ &\quad + 2|E_4(\mathbf{r})|^2]E_1(\mathbf{r}) + 6E_2^*(\mathbf{r})E_3(\mathbf{r})E_4(\mathbf{r})\}, \\ \frac{dE_2(\mathbf{r})}{dr_2} &= \frac{i}{2k_2} \mu \epsilon_0 \omega^2 \chi^{(3)} \{3[2|E_1(\mathbf{r})|^2 + |E_2(\mathbf{r})|^2 + 2|E_3(\mathbf{r})|^2 \\ &\quad + 2|E_4(\mathbf{r})|^2]E_2(\mathbf{r}) + 6E_1^*(\mathbf{r})E_3(\mathbf{r})E_4(\mathbf{r})\}, \\ \frac{dE_3(\mathbf{r})}{dr_3} &= \frac{i}{2k_3} \mu \epsilon_0 \omega^2 \chi^{(3)} \{3[2|E_1(\mathbf{r})|^2 + 2|E_2(\mathbf{r})|^2 + |E_3(\mathbf{r})|^2 \\ &\quad + 2|E_4(\mathbf{r})|^2]E_3(\mathbf{r}) + 6E_1(\mathbf{r})E_2(\mathbf{r})E_4^*(\mathbf{r})\}, \\ \frac{dE_4(\mathbf{r})}{dr_4} &= \frac{i}{2k_4} \mu \epsilon_0 \omega^2 \chi^{(3)} \{3[2|E_1(\mathbf{r})|^2 + 2|E_2(\mathbf{r})|^2 + 2|E_3(\mathbf{r})|^2 \\ &\quad + |E_4(\mathbf{r})|^2]E_4(\mathbf{r}) + 6E_1(\mathbf{r})E_2(\mathbf{r})E_3^*(\mathbf{r})\}. \end{aligned} \quad (8.3-4)$$

为了讨论DFWM相位共轭特性，就需要对上面四个方程求解。

②小信号理论 如果介质中的四个光波满足 $|E_1(\mathbf{r})|^2$ 、 $|E_2(\mathbf{r})|^2 \gg |E_3(\mathbf{r})|^2$ 、 $|E_4(\mathbf{r})|^2$ ，则可以忽略泵浦抽空效应。在这种情况下，只需考虑 $E_3(\mathbf{r})$ 和 $E_4(\mathbf{r})$ 所满足的方程即可。假设 $E_3(\mathbf{r})$ 、 $E_4(\mathbf{r})$ 沿着 z 轴传播，相应的耦合方程为

$$\frac{dE_3(z)}{dz} = \frac{i}{2k_3} \mu\epsilon_0\omega^2\chi^{(3)}\{6(|E_1|^2 + |E_2|^2)E_3(z) + 6E_1E_2E_3^*(z)\},$$

$$\frac{dE_4(z)}{dz} = -\frac{i}{2k_4} \mu\epsilon_0\omega^2\chi^{(3)}\{6(|E_1|^2 + |E_2|^2)E_4(z) + 6E_1E_2E_4^*(z)\}.$$
(8.3-5)

因为三阶电极化率是实数，所以右边第一项仅影响场的相位因子，对能量的变化没有贡献，故可以定义

$$E_3(z) = E'_3(z) \exp\left[-\frac{i}{k_3} 3\mu\epsilon_0\omega^2\chi^{(3)}(|E_1|^2 + |E_2|^2)z\right],$$

$$E_4(z) = E'_4(z) \exp\left[-\frac{i}{k_4} 3\mu\epsilon_0\omega^2\chi^{(3)}(|E_1|^2 + |E_2|^2)z\right].$$
(8.3-6)

由此，方程(8.3-5)式变为

$$\frac{dE'_3(z)}{dz} = \frac{i}{k_3} 3\mu\epsilon_0\omega^2\chi^{(3)}E_1E_2E'^*_3(z),$$
(8.3-7a)

$$\frac{dE'_4(z)}{dz} = -\frac{i}{k_4} 3\mu\epsilon_0\omega^2\chi^{(3)}E_1E_2E'_4(z).$$
(8.3-7b)

由(8.3-6)式的定义可见， $E_{3,4}$ 与 $E'_{3,4}$ 的主要差别是相差一个相位因子，因此，求出了 $E'_{3,4}$ 也就很容易得到 $E_{3,4}$ 。为了方便起见，在下面的求解过程中，我们略去右上角的撇号，并取(8.3-7a)式的复数共轭，得到

$$\frac{dE^*_3(z)}{dz} = -\frac{i}{k_3} 3\mu\epsilon_0\omega^2\chi^{(3)}E^*_1E^*_2E_3(z),$$

$$\frac{dE_4(z)}{dz} = -\frac{i}{k_4} 3\mu\epsilon_0\omega^2\chi^{(3)}E_1E_2E^*_4(z).$$
(8.3-8)

若令

$$g^* = -\frac{1}{k_4} 3\mu\epsilon_0\omega^2\chi^{(3)}E_1E_2$$
(8.3-9)

并考虑到 $k_3 = k_4$ ，则(8.3-8)式方程组变为

$$\frac{dE^*_3(z)}{dz} = igE_4(z),$$

$$\frac{dE_4(z)}{dz} = ig^*E^*_3(z).$$
(8.3-10)

假设边界条件为

$$\left. \begin{aligned} E_3(z=0) &= E_{30}, \\ E_4(z=L) &= 0, \end{aligned} \right\}$$
(8.3-11)

可以解得

$$E_3(z) = \frac{\cos(|g|(z-L))}{\cos(|g|L)} E_{30},$$

$$E_4(z) = i \frac{g^*}{|g|} \frac{\sin(|g|(z-L))}{\cos(|g|L)} E_{30}^*.$$
(8.3-12)

在两个端面上的输出光场为

$$E_3(L) = \frac{1}{\cos(|g|L)} E_{30},$$

$$E_4(0) = -i \frac{g^*}{|g|} \operatorname{tg}(|g|L) E_{30}.$$
(8.3-13)

由此我们可以得到如下的结论:

(a) 在输入面($z=0$)上,通过非线性作用产生的反射光场 $E_4(0)$ 正比于入射光场 E_{30}^* 。因此,反射光 $E_4(z<0)$ 是入射光 $E_3(z<0)$ 的背向相位共轭光。

(b) 若定义相位共轭(功率)反射系数为

$$R = \frac{|E_4(z=0)|^2}{|E_3(z=0)|^2},$$
(8.3-14)

则由(8.3-13)式得到

$$R = \operatorname{tg}^2(|g|L).$$
(8.3-15)

在 $|g|L$ 较小的情况下,随着 $|g|L$ 增大, R 也增大。如果介质长度一定,则 $|g|$ 愈大, R 也愈大。 g 的大小反映了泵浦光对散射光耦合的强弱。由(8.3-9)式可见,泵浦强度愈大、非线性极化率 $\chi^{(3)}$ 愈大,耦合就愈强,反射系数 R 也就愈大。因此,在DFWM相位共轭中,为了提高反射系数,或者选取 $\chi^{(3)}$ 较大的材料,或者提高泵浦光强度。

(c) 由(8.3-15)式可见,当 $|g|L = \frac{\pi}{2}$ 时, $R \rightarrow \infty$,这相应于振荡的情况。此时,即使没有入射信号光,也可能产生 E_3 、 E_4 输出,其功率在介质中的分布如图8-6所示。当 $\frac{3}{4}\pi > |g|L > \frac{1}{4}\pi$ 时, $R > 1$ 。此时,可以产生放大的反射光,在介质中 $E_3(z)$ 、 $E_4(z)$ 的功率分布如图8-7所示。

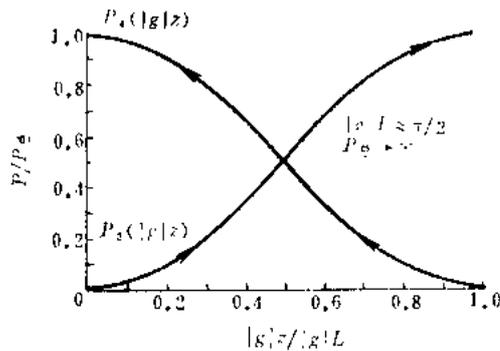


图 8-6 振荡时,在非线性介质中的信号光和共轭光强度分布

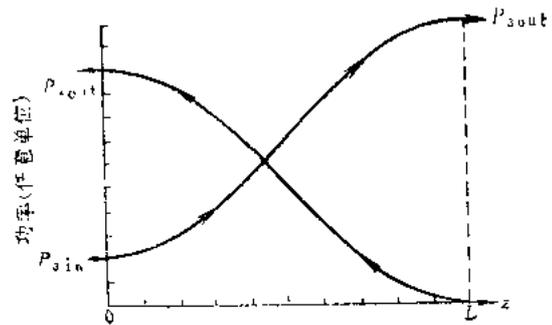


图 8-7 简并四波混频的放大特性

(d) 将DFWM相位共轭与三波混频相位共轭进行比较可以看出,在DFWM中,只要二泵浦光 E_1 、 E_2 彼此反向传播,散射光 E_4 就必然严格地沿入射信号光 E_3 的反向传播,也就是说,对于任意方向的入射光,DFWM过程皆可自动地满足相位匹配条件,所产生的散射光总是入射信号光的背向相位共轭光。而在三波混频相位共轭中,相位共轭特性对相位匹配条件有苛刻的要求。正因为这个原因,DFWM相位共轭引起了人们更大的兴趣。

(e) 上面讨论的是DFWM过程产生背向相位共轭光的情况。应当明确，DFWM过程除了能够产生背向相位共轭光以外，还可以产生前向相位共轭光。

出三阶非线性极化强度的表示式

$$P_4(\mathbf{r}, t) = 6\epsilon_0\chi^{(3)}E_1(\mathbf{r})E_2(\mathbf{r})E_3^*(\mathbf{r})\exp\{-i[(\omega_1 + \omega_2 - \omega_3)t - (\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_3) \cdot \mathbf{r}]\} + C.c.$$

可知，如果DFWM结构如图8-8所示^[13]，二泵浦光同向传播，并且 $k_1 = k_2$ ，则只有波矢满足 $k_4 = 2k_{1,2} - k_3$ 的散射光才能产生，此时散射光 E_4 仍近似沿着前向传播，所以称其为 E_3 的前向相位共轭光。如果我们将两个泵浦光视为一个光，那么，这种过程也可以看作是一个通过三阶非线性极化率作用的三波混频过程。显然，这样一种过程也对相位匹配条件有着苛刻的要求，因而严格地限制了入射光的入射方向。这种结构主要用于薄吸收样品。

③大信号理论 在DFWM过程中，如果必须考虑泵浦抽空效应，就应当同时求解(8.3-4)式的四个方程，这就是大信号理论。

我们讨论的DFWM作用结构示意图如图8-9所示。非线性介质是透明、无色散介质， E_1 、 E_2 是彼此反向传播的泵浦光， E_3 、 E_4 是彼此反向传播的信号光和相位共轭光，光波电场仍采用(8.3-1)式的形式。

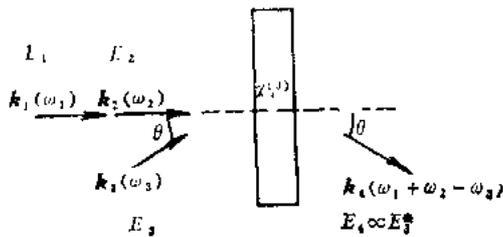


图 8-8 四波混频前向相位共轭结构示意图

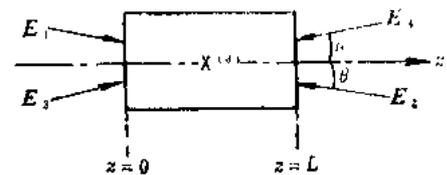


图 8-9 非共线四波混频结构示意图

为了分析简单起见，我们假设四个光场同向线偏振，并且忽略光克尔效应引起的非线性折射率变化项，在这种情况下，这四个光场复振幅满足的耦合方程由(8.3-4)式变为

$$\left. \begin{aligned} \frac{dE_1(\mathbf{r})}{dr_1} &= -\frac{i}{k_1} 3\mu\epsilon_0\omega^2\chi^{(3)}E_2^*(\mathbf{r})E_3(\mathbf{r})E_4(\mathbf{r}), \\ \frac{dE_2(\mathbf{r})}{dr_2} &= -\frac{i}{k_2} 3\mu\epsilon_0\omega^2\chi^{(3)}E_1^*(\mathbf{r})E_3(\mathbf{r})E_4(\mathbf{r}), \\ \frac{dE_3(\mathbf{r})}{dr_3} &= \frac{i}{k_3} 3\mu\epsilon_0\omega^2\chi^{(3)}E_1(\mathbf{r})E_2(\mathbf{r})E_4^*(\mathbf{r}), \\ \frac{dE_4(\mathbf{r})}{dr_4} &= \frac{i}{k_4} 3\mu\epsilon_0\omega^2\chi^{(3)}E_1(\mathbf{r})E_2(\mathbf{r})E_3^*(\mathbf{r}). \end{aligned} \right\} \quad (8.3-16)$$

在求解这些方程时，为了克服有多个坐标量的困难，我们引入了共同坐标 z 。对于平面波来说有

$$\frac{d}{dr_i} = \frac{1}{\cos\theta_i} \frac{d}{dz} \quad (8.3-17)$$

而由图8-9, 又有

$$\begin{aligned}\cos\theta_1 &= \cos\theta_3 = \cos\theta, \\ \cos\theta_2 &= \cos\theta_4 = -\cos\theta.\end{aligned}$$

于是, (8.3-16)式可以改写为

$$\begin{aligned}\frac{dE_1(z)}{dz} &= iCE_2^*(z)E_3(z)E_4(z), \\ \frac{dE_2(z)}{dz} &= -iCE_1^*(z)E_3(z)E_4(z), \\ \frac{dE_3(z)}{dz} &= iCE_1(z)E_2(z)E_4^*(z), \\ \frac{dE_4(z)}{dz} &= -iCE_1(z)E_2(z)E_3^*(z).\end{aligned}\tag{8.3-18}$$

式中

$$C = -\frac{1}{k} 3\mu\epsilon_0\omega^2\chi^{(3)}\cos\theta.\tag{8.3-19}$$

如果将光波场复振幅表示为

$$E_i(z) = A_i(z)\exp[i\varphi_i(z)]\tag{8.3-20}$$

(其中, $A_i(z)$ 、 $\varphi_i(z)$ 均为实数), 并且设

$$\Phi = \varphi_1 + \varphi_3 - \varphi_2 - \varphi_4,\tag{8.3-21}$$

则在将其代入(8.3-18)式并利用欧拉公式, 然后使等式两边的实部、虚部分别相等后, 可以得到

$$\begin{aligned}\frac{dA_1(z)}{dz} &= CA_2(z)A_3(z)A_4(z)\sin\Phi, \\ \frac{dA_2(z)}{dz} &= -CA_1(z)A_3(z)A_4(z)\sin\Phi, \\ \frac{dA_3(z)}{dz} &= -CA_1(z)A_2(z)A_4(z)\sin\Phi, \\ \frac{dA_4(z)}{dz} &= CA_1(z)A_2(z)A_3(z)\sin\Phi\end{aligned}\tag{8.3-22}$$

和

$$\begin{aligned}\frac{d\varphi_1(z)}{dz} &= C \frac{A_2(z)A_3(z)A_4(z)}{A_1(z)} \cos\Phi, \\ \frac{d\varphi_2(z)}{dz} &= -C \frac{A_1(z)A_3(z)A_4(z)}{A_2(z)} \cos\Phi, \\ \frac{d\varphi_3(z)}{dz} &= C \frac{A_1(z)A_2(z)A_4(z)}{A_3(z)} \cos\Phi, \\ \frac{d\varphi_4(z)}{dz} &= -C \frac{A_1(z)A_2(z)A_3(z)}{A_4(z)} \cos\Phi.\end{aligned}\tag{8.3-23}$$

对相位因子方程组(8.3-23)式进行运算可以得到

$$\frac{d}{dz} \{ \ln [A_1(z)A_2(z)A_3(z)A_4(z)\cos\Phi] \} = 0.$$

考虑到在DFWM相位共轭的工作中，总是存在一个闲置光，所以，应有 $\cos\Phi = 0$ ，从而

$$\Phi = \varphi_1(z) + \varphi_2(z) - \varphi_3(z) - \varphi_4(z) = \pm \frac{\pi}{2}. \quad (8.3-24)$$

如果泵浦光的相位因子 φ_1 、 φ_2 为常数，则

$$\varphi_4(z) = \text{常数} - \varphi_3(z). \quad (8.3-25)$$

即在不考虑光克尔效应引起非线性折射率变化的情况下， E_3 、 E_4 光波互成相位共轭关系。因此，我们在讨论相位共轭特性时，只需求解光场振幅耦合方程即可。

相应于我们讨论的DFWM结构， $\Phi = -\pi/2$ 。在这种情况下，若假设 $I_i = A_i^2$ ，则振幅耦合方程变为

$$\left. \begin{aligned} \frac{dI_1(z)}{dz} &= -2C[I_1(z)I_2(z)I_3(z)I_4(z)]^{1/2}, \\ \frac{dI_2(z)}{dz} &= 2C[I_1(z)I_2(z)I_3(z)I_4(z)]^{1/2}, \\ \frac{dI_3(z)}{dz} &= 2C[I_1(z)I_2(z)I_3(z)I_4(z)]^{1/2}, \\ \frac{dI_4(z)}{dz} &= -2C[I_1(z)I_2(z)I_3(z)I_4(z)]^{1/2}. \end{aligned} \right\} \quad (8.3-26)$$

若 E_4 为闲置光波，即 $I_4(L) = 0$ ，则曼利-罗关系为

$$\begin{aligned} I_2(z) &= I_2(L) - I_4(z), \\ I_1(z) &= I_1(L) + I_4(z), \\ I_3(z) &= I_3(L) - I_4(z). \end{aligned} \quad (8.3-27)$$

显然，如果我们求出了非线性介质中 $I_4(z)$ 的变化规律，也就可以确定介质中各个光场的变化规律。为了求解 $I_4(z)$ ，只需对(8.3-26)式的第四个方程进行积分运算即可。

将(8.3-27)式关系代入(8.3-26)式的第四个方程，并进行积分，得到

$$\int_L^z dz = -\frac{1}{C} \int_0^{I_4(z)} \frac{d[I_4(z)]^{1/2}}{[I_2(L) - I_4(z)]^{1/2} [I_1(L) + I_4(z)]^{1/2} [I_3(L) - I_4(z)]^{1/2}}.$$

在积分过程中，如果令

$$\left. \begin{aligned} \sin^2 \beta &= \frac{I_4(z)}{I_2(L)}, \\ p^2 &= \frac{I_2(L)}{I_1(L)}, \\ q^2 &= \frac{I_2(L)}{I_3(L)}, \\ \sin \alpha &= \frac{(1+p^2)^{1/2} \sin \beta}{(1+p^2 \sin^2 \beta)^{1/2}}, \\ k^2 &= \frac{p^2+q^2}{1+p^2}, \end{aligned} \right\} \quad (8.3-28)$$

就可以得到

$$L - z = CI_2(L) \frac{1}{(1+p^2)^{1/2}} \int_0^\alpha \frac{d\alpha}{(1-k^2 \sin^2 \alpha)^{1/2}} \quad (8.3-29)$$

其中积分项是勒让德第一类椭圆积分，改写成椭圆函数形式应为

$$\operatorname{sn} \left[CI_2(L) \frac{(1+p^2)^{1/2}}{pq} (L-z), k \right] = \frac{(1+p^2)^{1/2} \sin \beta}{(1+p^2 \sin^2 \beta)^{1/2}} \quad (8.3-30)$$

在此应当指出，考虑到实际工作情况，在(8.3-28)式中定义的 k 值可能小于1，也可能大于1，而对于 $k > 1$ 的情况，不符合椭圆积分中模数的定义。为此，我们需要对椭圆积分参量进行一些变换。

由椭圆积分定义有

$$u = \int_0^x \frac{dt}{(1-t^2)^{1/2} (1-k^2 t^2)^{1/2}} = \int_0^{\varphi = \arcsin t} \frac{d\varphi}{(1-k^2 \sin^2 \varphi)^{1/2}}$$

如果进行变量代换： $t \rightarrow kt$ ， $k \rightarrow \frac{1}{k}$ ，上面的积分变为

$$u = \frac{1}{k} \int_0^{kx} \frac{d(kt)}{[1-(kt)^2]^{1/2} [1-\frac{1}{k^2}(kt)^2]^{1/2}}$$

从而，在 $k > 1$ 的情况下，其反函数为

$$kx = \operatorname{sn} \left(ku, \frac{1}{k} \right) \quad \text{或} \quad k \sin \varphi = \operatorname{sn} \left(ku, \frac{1}{k} \right)$$

据此，在 $k > 1$ 的情况下，可将(8.3-29)式写成下面的椭圆函数形式：

$$\operatorname{sn} \left[CI_2(L) \frac{(p^2+q^2)^{1/2}}{pq} (L-z), \frac{1}{k} \right] = \frac{(p^2+q^2)^{1/2} \sin \beta}{(1+p^2 \sin^2 \beta)^{1/2}} \quad (8.3-31)$$

(8.3-30)式和(8.3-31)式就是描述这里所讨论的DFWM相位共轭功率特性的基本方程。

下面，我们从基本方程出发，就两种最常采用的DFWM激励形式来讨论DFWM的功率特性。

(a) 两端激励的情况。这种激励方式如图8-9所示，外加的泵浦光 E_1 、 E_2 分别从两个相反的方向入射。为了讨论其功率特性，我们定义几个参量：

泵浦激励强度	$I_p = C[I_1(0) + I_2(L)]L$;	(8.3-32)
信号激励强度	$I_s = CI_3(0)L$;	
信号增益	$G = \frac{I_3(L)}{I_3(0)}$;	
相位共轭反射系数	$R = \frac{I_4(0)}{I_s(0)} = G - 1$;	
泵浦抽空系数	$D = \frac{[I_1(0) - I_1(L)] + [I_2(L) - I_2(0)]}{I_1(0) + I_2(L)}$;	

根据泵浦激励强度、信号激励强度的定义式, 有

$$\frac{I_p}{I_s} = \frac{I_2(L)}{I_3(0)} \left[1 - \frac{I_1(0)}{I_2(L)} \right].$$

再由相位共轭反射系数 R 的定义式, 并利用曼利-罗关系, 可以得到

$$\frac{I_p}{I_s} = \frac{2R}{D}. \quad (8.3-33)$$

最后, 将(8.3-32)式定义的参量代入基本方程(8.3-30)式和(8.3-31)式中, 就得到

$$\begin{aligned} \operatorname{sn} \left\{ \left[\frac{1+R}{2} \frac{D}{2} \left(1 - \frac{D}{2} \right) \right]^{\frac{1}{2}} I_p, k \right\} &= \left[\frac{(1+e)^2 D}{e} \left(1 - \frac{D}{2} \right) \right]^{\frac{1}{2}} k^2 < 1, \\ \operatorname{sn} \left\{ \left[e + (1+e) \frac{D}{2R} \right]^{\frac{1}{2}} \frac{I_p}{1+e}, k \right\} &= \left[\frac{R}{1-R} \left(1 + \frac{D}{2} \frac{1+e}{Re} \right) \right]^{\frac{1}{2}} k^2 > 1. \end{aligned} \quad (8.3-34)$$

其中

$$k^2 = \frac{1}{1+R} \frac{2R}{D} \frac{e}{1+e} + 1, \quad (8.3-35)$$

$$e = \frac{I_1(0)}{I_2(L)}. \quad (8.3-36)$$

e 的大小反映了DFWM两端对称激励的程度。

在小信号工作的情况下, $I_1(0)$ 、 $I_2(L) \gg I_3(0)$, 因此, 泵浦抽空效应可以忽略不计, $D \rightarrow 0$ 。若将这个条件代入(8.3-35)式, 得到 $1/k^2 \rightarrow 0$, 从而(8.3-34)式的椭圆函数变为正弦函数, 即

$$\operatorname{sn} \left[\left(\frac{e}{1+e} \right)^{\frac{1}{2}} I_p, 0 \right] = \sin \left[\left(\frac{e}{1+e} \right)^{\frac{1}{2}} I_p \right] = \left(\frac{R}{1+R} \right)^{\frac{1}{2}}. \quad (8.3-37)$$

经过简单的运算, 可以得到小信号近似的相位共轭反射系数为

$$R = \operatorname{tg}^2 \left[\left(\frac{e}{1+e} \right)^{\frac{1}{2}} I_p \right]. \quad (8.3-38)$$

在一般情况下, DFWM 相位共轭特性可以通过对(8.3-34)式进行数值计算得到。图8-10~图8-13分别为对称激励情况下通过数值求解得到的以信号激励强度 I_s 为参量, 相位共轭反射系数 R 与泵浦激励强度 I_p 的关系曲线; 以泵浦抽空系数 D 为参量, 相位共轭反射系数 R 与泵浦激励强度 I_p 的关系曲线; 以相位共轭反射系数 R 为参量, 泵浦抽空系数 D 与泵浦激励强度 I_p 的关系曲线以及泵浦激励强度 I_p 与信号激励强度 I_s 的关系曲线。由这些曲线我们可以看出这里所讨论的DFWM模型的几个特性:

(i) 饱和特性。由图8-10可见, 在 I_s 固定的情况下, 随着 I_p 的增大, 相位共轭反射系数 R 也增大。当 I_p 增大到一定程度时, 出现饱和现象。这种饱和现象是由于非线性耦合效应和泵浦抽空效应共同作用的结果。即随着 I_p 的增大, 非线性耦合加强, 但同时泵浦抽空

效应也越来越显著,从而在 I_p 增大到一定程度时,出现相位共轭反射系数的饱和。

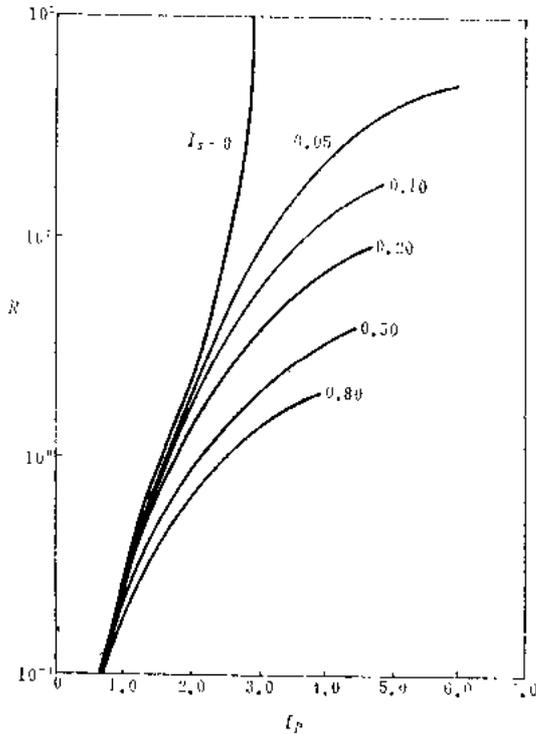


图 8-10 以信号激励强度 I_s 为参量,相位共轭反射系数 R 与泵浦激励强度 I_p 的关系曲线

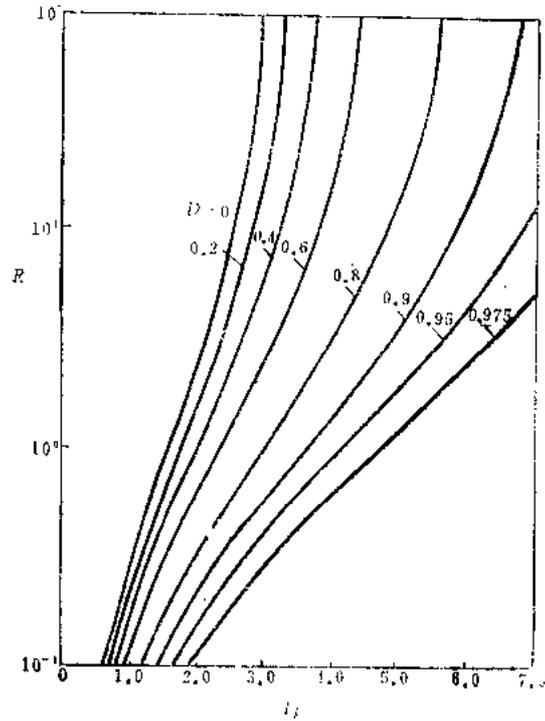


图 8-11 以泵浦抽空系数 D 为参量,相位共轭反射系数 R 与泵浦激励强度 I_p 的关系曲线

(ii) 自振荡特性。在DFWM输入信号激励强度 $I_s = 0$ 的情况下, I_p 增大到某一数值时,将产生自振荡输出($R \rightarrow \infty$)。如图8-11所示, $D = 0$ 时,振荡阈值泵浦激励强度 $I_{p,th} = \pi$,随着 D 的增大(相应于产生的振荡信号输出增大), $I_{p,th}$ 也增大。振荡阈值可由(8.3-34)式求得。

在 $e = 1$ 的对称激励情况下,(8.3-34)式为

$$\operatorname{sn}\left[\left(1 + \frac{D}{R}\right)^{\frac{1}{2}} \frac{I_p}{2}, \frac{1}{k}\right] = \left[\frac{R}{1+R} \left(1 + \frac{D}{R}\right)\right]^{\frac{1}{2}} \quad k^2 > 1. \quad (8.3-39)$$

自振荡时, $R \rightarrow \infty$,上式变为

$$\operatorname{sn}\left[\frac{I_{p,th}}{2}, \frac{1}{k}\right] = 1.$$

根据椭圆函数的性质,应有

$$\frac{I_{p,th}}{2} = K.$$

式中 K 为椭圆正弦的1/4周期值。于是,振荡阈值泵浦激励强度为

$$I_{p,th} = 2K. \quad (8.3-40)$$

由(8.3-35),在 $e = 1$ 时,有

$$\frac{1}{k^2} = \frac{1+R}{D+R} D(2-D), \quad (8.3-41)$$

振荡时为

$$\frac{1}{k^2} = D(2-D). \quad (8.3-42)$$

由此, 根据(8.3-40)式和(8.3-42)式, 就可确定振荡阈值。例如, 在 $D=0$ 时, $1/k^2=0$, 根据椭圆函数的性质, 应有 $K=\pi/2$, 故 $I_{p,th}=\pi$; 在 $D=1$ 时, $1/k^2=1$, 所以 $K \rightarrow \infty$, $I_{p,th} \rightarrow \infty$ 。

在此应当强调指出, 一旦有输入信号, 必将因泵浦抽空而导致饱和效应, 从而 R 不可能趋于无限大, 也就是说, 只要 $I_s \neq 0$, 就不可能产生自振荡!

(iii) 泵浦抽空特性, 如图8-12所示, 当 R 固定时, 随着 I_p 的增大, 泵浦抽空效应愈加显著。这是因为, 由(8.3-33)、(8.3-30)、(8.3-31)式以及图8-13可知, 在 R 固定时, I_p 增大, I_s 必定增大, 从而泵浦抽空必然严重。图中的 $D \rightarrow 1$, 意味着泵浦能量趋于完全转化为信号能量。

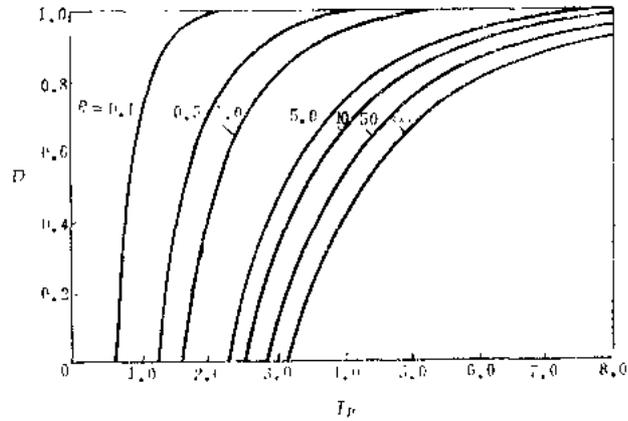


图8-12 以相位共轭反射系数 R 为参量, 泵浦抽空系数 D 与泵浦激励强度 I_p 的关系曲线

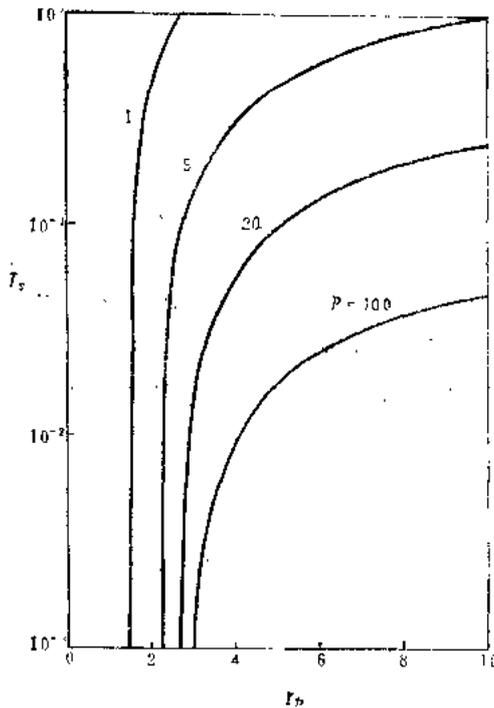


图8-13 信号激励强度 I_s 与泵浦激励强度 I_p 的关系曲线

(iv) 如果在该PCM 外放置一个普通反射镜, 如图8-14所示, 就构成了后面我们要讲到的相位共轭谐振腔(PCR)。假定普通反射镜的(振幅)反射系数为 r , 在不考虑损耗的情况下, PCR的振荡(也即是PCM的振荡)阈值条件为

$$r^2 R = 1. \quad (8.3-43)$$

相应于这种情况, PCM振荡时的相位共轭反射系数为

$$R_{th} = \frac{1}{r^2}. \quad (8.3-44)$$

例如, 当 $r=1$ 时, PCM振荡的反射系数 $R_{th}=1$, 由此, 在小信号近似的情况下, 通过(8.3-38)式求得相应的振荡阈值泵浦激励强度为 $I_{p,th}=\pi/2$ 。而当 $r=0$ 时, 则如前讨论, 要求 $I_{p,th}=\pi$ 。

(b) 背向泵浦光由通过介质的前向泵浦光全反射产生的不对称激励情况^[14]。这种

激励情况如图8-15所示。为了方便起见, 我们假设四个光共线传播。此时, 只要根据新的结构, 在(8.3-32)式定义的参量中重新定义

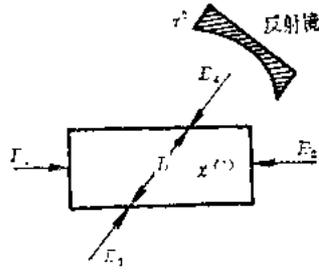


图 8-14 具有外反射镜的PCM结构

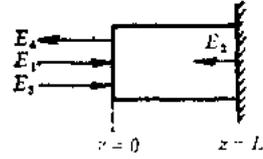


图 8-15 共线非对称激励DFWM结构。泵浦波 E_2 是泵浦波 E_1 通过介质后的全反射波

$$\begin{aligned} \text{泵浦激励强度} \quad I_p &= CI_1(0)L, \\ \text{泵浦抽空系数} \quad D &= \frac{I_1(0) - I_3(0)}{I_1(0)}, \end{aligned} \quad (8.3-45)$$

就可由(8.3-30)、(8.3-31)式的基本方程出发, 得出适合于现在情况的DFWM相位共轭功率特性的基本方程

$$\left. \begin{aligned} \text{sn}\left[\frac{1}{k}\left(1 - \frac{1}{2k^2}\right)^{-1/2}\left(1 - \frac{D}{2}\right)I_p, k\right] &= (D)^{1/2} & k^2 < 1, \\ \text{sn}\left[\left(1 - \frac{D}{2}\right)\left(1 - \frac{1}{2k^2}\right)^{-1/2}I_p, \frac{1}{k}\right] &= (D)^{1/2}k & k^2 > 1. \end{aligned} \right\} \quad (8.3-46)$$

式中

$$k^2 = \frac{1}{2} \left[\frac{R}{1+R} \left(\frac{2}{D} - 1 \right) + 1 \right]. \quad (8.3-47)$$

在小信号近似的情况下, 相位共轭反射系数为

$$R = \text{tg}^2 I_p. \quad (8.3-48)$$

在一般情况下的相位共轭特性, 可以通过对(8.3-46)式进行数值求解得到:

(i) 饱和特性。图8-16为固定输入信号激励强度 I_s 时, 相位共轭反射系数 R 与泵浦激励强度 I_p 的关系曲线。与第一种情况类似, 随着 I_p 的增大, 由于耦合作用增强, 使得 R 增大; 在 $I_s \neq 0$ 的情况下, 由于泵浦抽空效应的存在, 导致反射系数的饱和。

(ii) 自振荡特性。如图8-17所示, 在泵浦抽空固定的情况下, 随着泵浦激励强度的增强, 相位共轭反射系数增大; I_p 趋于阈值泵浦激励强度时, $R \rightarrow \infty$, PCM产生振荡。由(8.3-47)式可知, 当 $R \rightarrow \infty$ 时, $D = 1/k^2$, 代入(8.3-46)式后, 有

$$\text{sn}\left[\left(1 - \frac{1}{2k^2}\right)^{1/2}I_{p_{th}}, \frac{1}{k}\right] = 1,$$

因此,

$$\left(1 - \frac{1}{2k^2}\right)^{1/2}I_{p_{th}} = K,$$

故振荡阈值泵浦激励强度为

$$I_{p_{th}} = \frac{K}{\left(1 - \frac{1}{2k^2}\right)^{1/2}}. \quad (8.3-49)$$

在小信号近似的情况下, $1/k^2 \rightarrow 0$, 因此, $K = \pi/2$, 所以, 振荡阈值泵浦激励强度 $I_{p_{th}} = \pi/2$ 。

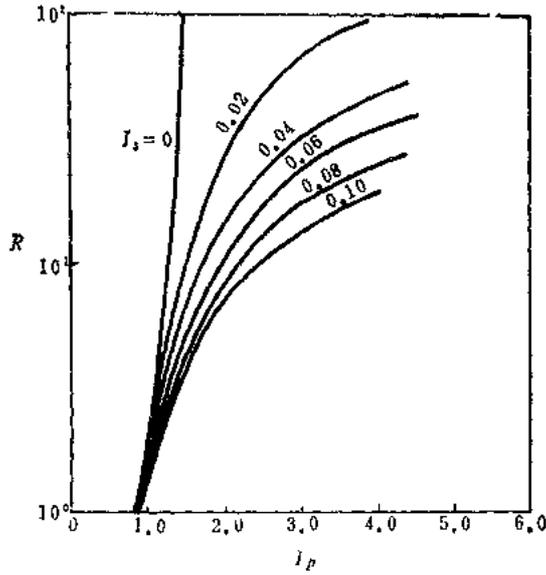


图 8-16 以信号激励强度 I_s 为参量, 相位共轭反射系数 R 与泵浦激励强度 I_p 的关系曲线

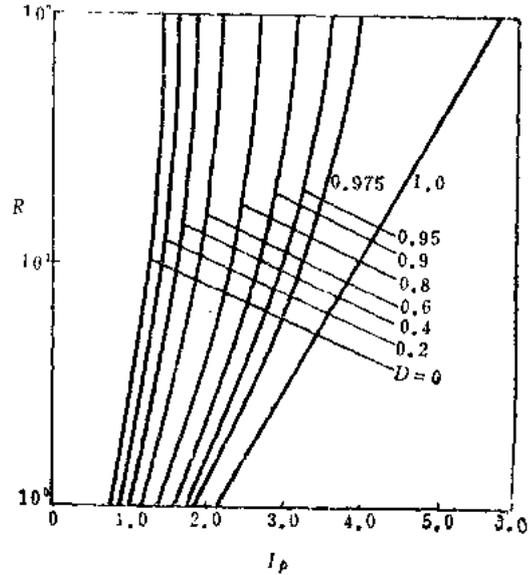


图 8-17 以泵浦抽空系数 D 为参量, 相位共轭反射系数 R 与泵浦激励强度 I_p 的关系曲线

(iii) 泵浦抽空特性。在相位共轭反射系数 R 一定的情况下, 泵浦抽空系数 D 与泵浦激励强度 I_p 的关系如图 8-18 所示。 $D=0$ 表示无抽空效应; $D>0$ 表示有抽空效应。随着 I_p 增大, 抽空效应愈加显著, I_p 趋于某值时, $D \rightarrow 1$, 这相应于泵浦光被完全抽空。如果继续增大 I_p , 则 D 反而减小, 这相应于能量从信号光反馈回被抽空的泵浦光的情况。

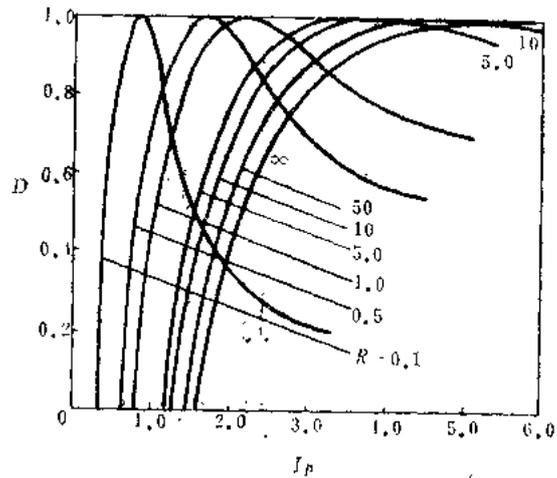


图 8-18 以相位共轭反射系数 R 为参量, 泵浦抽空系数 D 与泵浦激励强度 I_p 的关系曲线

(iv) 与第一种情况类似, 如果在 PCM 外放置一个反射系数为 r^2 的普通反射镜, 就可组成一个 PCR。在不考虑损耗的情况下, PCR 的振荡阈值条件为

$$r^2 R = 1.$$

在这种情况下, PCM 的振荡阈值泵浦激励强度(在考虑小信号近似时)为: $r=0$ 时, $I_{p,th} = \pi/2$; $r=1$ 时, $I_{p,th} = \pi/4$ 。这表明, 由于外加一个反射镜, PCM 的振荡阈值泵浦激励强度将降低。

(2) 入射信号光有任意波前分布的情况

如果入射到介质上彼此反向传播的泵浦光 E_1 、 E_2 为均匀平面波, 则在不考虑抽空的情况下, 可以表示为

$$E_{1,2}(\mathbf{r}, t) = E_{1,2} \exp[-i(\omega t - \mathbf{k}_{1,2} \cdot \mathbf{r})] + C.C., \quad (8.3-50)$$

它们的波矢满足

$$\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 = 0. \quad (8.3-51)$$

如果入射到介质上的信号光是沿 z 向传播且具有任意波前分布的近轴光波($k_3 \approx k_{3z}$), 则可以表示为

$$E_s(\mathbf{k}, t) = E_s(\mathbf{r}) \exp[-i(\omega t - k_3 z)] + C.c. \quad (8.3-52)$$

为了分析简单起见, 假设介质中的光波为同向线偏振, 在忽略光克尔效应引起的非线性折射率变化的情况下, 由这三个入射光产生的非线性极化强度为

$$P_4(\mathbf{r}, t) = 6\epsilon_0 \chi^{(3)} E_1 E_2 E_3^*(\mathbf{r}) \exp[-i(\omega t + k_4 z)] + C.c. \quad (8.3-53)$$

式中

$$\mathbf{k}_4 = -\mathbf{k}_3.$$

将介质中的光场和非线性极化强度表示式代入波动方程

$$\nabla^2 E - \mu \epsilon \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} = \mu \frac{\partial^2 P^{(3)}}{\partial t^2}$$

中, 并利用慢变化振幅近似条件

$$\left| \frac{\partial^2 E_4(\mathbf{r})}{\partial z^2} \right| \ll \left| k_4 \frac{\partial}{\partial z} E_4(\mathbf{r}) \right|,$$

便可得到DFWM过程产生的背向散射光复振幅满足的方程

$$\left[\nabla_{\perp}^2 - 2ik_4 \frac{\partial}{\partial z} \right] E_4(\mathbf{r}) = -6\mu\epsilon_0 \omega^2 \chi^{(3)} E_1 E_2 E_3^*(\mathbf{r}). \quad (8.3-54)$$

下面, 我们首先通过傅里叶分析求出单一平面波分量的解, 然后再求出散射光场 $E_4(\mathbf{r})$ 。由傅里叶分析可知, $E_4(\mathbf{r})$ 的傅里叶变换为

$$E_4(\mathbf{k}_{\perp}, z) = \frac{1}{(2\pi)^2} \iint_{-\infty}^{\infty} E_4(\mathbf{r}) \exp(i\mathbf{k}_{\perp} \cdot \mathbf{r}) d^2 r_{\perp}. \quad (8.3-55)$$

其反变换为

$$\begin{aligned} E_4(\mathbf{r}) &= \iint_{-\infty}^{\infty} E_4(\mathbf{k}_{\perp}, z) \exp(-i\mathbf{k}_{\perp} \cdot \mathbf{r}_{\perp}) d^2 k_{\perp} \\ &= \iint_{-\infty}^{\infty} E_4(-\mathbf{k}_{\perp}, z) \exp(i\mathbf{k}_{\perp} \cdot \mathbf{r}_{\perp}) d^2 k_{\perp}, \end{aligned} \quad (8.3-56)$$

相应的 $E_4^*(\mathbf{r})$ 为

$$E_4^*(\mathbf{r}) = \iint_{-\infty}^{\infty} E_4^*(-\mathbf{k}_{\perp}, z) \exp(-i\mathbf{k}_{\perp} \cdot \mathbf{r}_{\perp}) d^2 k_{\perp}. \quad (8.3-57)$$

将(8.3-56)式代入(8.3-54)式, 得到

$$\iint_{-\infty}^{\infty} \left[\nabla_{\perp}^2 - 2ik_4 \frac{\partial}{\partial z} \right] E_4(\mathbf{k}_{\perp}, z) \exp(-i\mathbf{k}_{\perp} \cdot \mathbf{r}_{\perp}) d^2 k_{\perp} = -6\mu\epsilon_0 \omega^2 \chi^{(3)} E_1 E_2 E_3^*(\mathbf{r}).$$

两边同乘 $\exp(i\mathbf{k}_{\perp} \cdot \mathbf{r}_{\perp})$, 并对 \mathbf{r}_{\perp} 积分, 再利用 $\exp(i\mathbf{k}_{\perp} \cdot \mathbf{r}_{\perp})$ 指数函数的正交性, 可得

$$\frac{\partial E_4(\mathbf{k}_{\perp}, z)}{\partial z} - \frac{i}{2k_4} k_{\perp}^2 E_4(\mathbf{k}_{\perp}, z) = -\frac{i}{k_4} 3\mu\epsilon_0 \omega^2 \chi^{(3)} E_1 E_2 E_3^*(-\mathbf{k}_{\perp}, z).$$

若令

$$g^* = -\frac{1}{k_4} 3\mu\epsilon_0 \omega^2 \chi^{(3)} E_1 E_2,$$

则 $E_4(\mathbf{k}_{\perp}, z)$ 满足的耦合方程为

$$\frac{\partial E_4(k_{\perp}, z)}{\partial z} - \frac{i}{2k_4} k_{\perp}^2 E_4(k_{\perp}, z) = i g^* E_3^*(-k_{\perp}, z). \quad (8.3-58a)$$

类似上面的推导, 在假设 $k_3 = k_4 = k$ 的情况下, 可得 $E_3^*(-k_{\perp}, z)$ 满足的耦合方程为

$$\frac{\partial E_3^*(-k_{\perp}, z)}{\partial z} - \frac{i}{2k} k_{\perp}^2 E_3^*(-k_{\perp}, z) = i g E_4(k_{\perp}, z). \quad (8.3-58b)$$

将(8.3-58a)式再对 z 求导, 并利用(8.3-58b)式关系得到

$$\frac{\partial^2 E_4(k_{\perp}, z)}{\partial z^2} - \frac{i}{k} k_{\perp}^2 \frac{\partial E_4(k_{\perp}, z)}{\partial z} - \left(\frac{k_{\perp}^4}{4k^2} - g g^* \right) E_4(k_{\perp}, z) = 0.$$

其通解为

$$E_4(k_{\perp}, z) = [C \sin(|g|z) + D \cos(|g|z)] \exp\left(i \frac{k_{\perp}^2}{2k} z\right).$$

假设边界条件为

$$\left. \begin{aligned} E_3^*(r_{\perp}, 0) &= E_3^*(r_{\perp}, 0), \\ E_4(r_{\perp}, L) &= 0; \end{aligned} \right\} \quad (8.3-59)$$

相应的单一平面波分量满足的边界条件为

$$\left. \begin{aligned} E_3^*(-k_{\perp}, z=0) &= E_3^*(-k_{\perp}, 0), \\ E_4(k_{\perp}, z=L) &= 0, \end{aligned} \right\} \quad (8.3-60)$$

则可以求得背向散射光的平面波分量为

$$E_4(k_{\perp}, z) = i \frac{g^* \sin(|g|(z-L))}{|g| \cos(|g|L)} E_3^*(-k_{\perp}, 0) \exp\left(i \frac{k_{\perp}^2}{2k} z\right). \quad (8.3-61)$$

在入射面 $z=0$ 处,

$$E_4(k_{\perp}, 0) = -i \frac{g^*}{|g|} \operatorname{tg}(|g|L) E_3^*(-k_{\perp}, 0). \quad (8.3-62)$$

由此可见, 在入射面上, 背向散射光的每一个平面波分量 $E_4(k_{\perp}, 0)$ 皆正比于相应的人射光空间平面波分量 $E_3(k_{\perp}, 0)$ 的背向复共轭。由傅里叶反变换, 可以求得入射面上的散射光场为

$$\begin{aligned} E_4(r_{\perp}, 0) &= \iint_{-\infty}^{\infty} \left[-i \frac{g^*}{|g|} \operatorname{tg}(|g|L) E_3^*(-k_{\perp}, 0) \right] \exp(-i k_{\perp} \cdot r_{\perp}) d^2 k \\ &= -i \frac{g^*}{|g|} \operatorname{tg}(|g|L) E_3^*(r_{\perp}, 0). \end{aligned} \quad (8.3-63)$$

在 $z < 0$ 的空间, 有

$$E_4(r_{\perp}, z < 0) = -i \frac{g^*}{|g|} \operatorname{tg}(|g|L) E_3^*(r_{\perp}, z < 0). \quad (8.3-64)$$

由上面的分析可见, 具有任意复杂波前的人射光, 皆可通过DFWM的非线性作用产生其背向相位共轭反射光, 而与它的人射方向无关。正因为如此, 所以人们常把这种装置叫做相位共轭反射镜。

在此应当指出, 上面的分析假定了泵浦光是均匀平面波, 如果泵浦光不是均匀平面波, 则背向散射光不再是入射信号光的理想相位共轭光。特里比诺(Trebino)和西格曼

(Siegman)^[15]对这种情况进行了讨论,并且对泵浦光为TEM₀₀模的情况进行了理论计算。

(3)非饱和损耗对相位共振特性的影响

在前面的讨论中,我们都没有考虑非线性介质中非饱和损耗的作用。实际上,在介质中是有损耗的,特别是在细长介质(例如光波导)中,必须要考虑损耗的影响。

为了讨论简单起见,我们假设四个光波共线传播,相互作用长度为L。如果介质中的线性衰减系数为α,并且不计泵浦抽空效应,则可以将泵浦光场的复振幅表示为

$$\left. \begin{aligned} E_1(z) &= E_1(0)\exp(-\alpha z/2), \\ E_2(z) &= E_2(L)\exp[\alpha(z-L)/2]. \end{aligned} \right\} \quad (8.3-65)$$

由此可以将耦合方程组(8.3-8)式修正为

$$\left. \begin{aligned} \frac{dE_3^*(z)}{dz} &= -\frac{i}{k_3} 3\mu\epsilon_0\omega^2\chi^{(3)} E_1^*(0)E_2^*(L)E_4(z)\exp(-\alpha L/2) - \frac{\alpha}{2} E_3^*(z), \\ \frac{dE_4(z)}{dz} &= -\frac{i}{k_4} 3\mu\epsilon_0\omega^2\chi^{(3)} E_1(0)E_2(L)E_3^*(z)\exp(-\alpha L/2) + \frac{\alpha}{2} E_4(z). \end{aligned} \right\} \quad (8.3-66)$$

若令

$$g^* = -\frac{1}{k} 3\mu\epsilon_0\omega^2\chi^{(3)} E_1(0)E_2(L), \quad (8.3-67)$$

并且为了分析的方便,我们将E₃(z)、E₄(z)进行下列变量代换:

$$\left. \begin{aligned} E_3(z) &= A_3(z)\exp(-\alpha z/2), \\ E_4(z) &= A_4(z)\exp[\alpha(z-L)/2], \end{aligned} \right\} \quad (8.3-68)$$

则方程组(8.3-66)式变为

$$\left. \begin{aligned} \frac{dA_3^*(z)}{dz} &= igA_4(z)\exp[\alpha(z-L)], \\ \frac{dA_4(z)}{dz} &= ig^*A_3^*(z)\exp(-\alpha z). \end{aligned} \right\} \quad (8.3-69)$$

在上面的讨论中,已经考虑了k₃=k₄=k。假设边界条件为

$$\left. \begin{aligned} A_4(L) &= 0, \\ A_3(0) &= A_{30}, \end{aligned} \right\} \quad (8.3-70)$$

则(8.3-69)式的解为

$$\left. \begin{aligned} A_3(z) &= \frac{2A_{30} \left\{ -\frac{\alpha}{2} \sin[g_e(z-L)] + g_e \cos[g_e(z-L)] \right\} \exp(\alpha z/2)}{\alpha \sin(g_e L) + 2g_e \cos(g_e L)}, \\ A_4(z) &= \frac{2ig^* A_{30} \sin[g_e(z-L)] \exp(-\alpha z/2)}{\alpha \sin(g_e L) + 2g_e \cos(g_e L)}. \end{aligned} \right\} \quad (8.3-71)$$

式中

$$g_e = \left[|g|^2 \exp(-\alpha L) - \left(\frac{\alpha}{2}\right)^2 \right]^{1/2}. \quad (8.3-72)$$

由此可得到考虑介质损耗后的信号光场为

$$E_3(z) = \frac{2E_{s0} \left\{ \frac{\alpha}{2} \sin[g_e(z-L)] + g_e \cos[g_e(z-L)] \right\}}{\alpha \sin(g_e L) + 2g_e \cos(g_e L)}, \quad (8.3-73)$$

$$E_4(z) = \frac{2ig^* E_{s0}^* \sin[g_e(z-L)] \exp(-\alpha L/2)}{\alpha \sin(g_e L) + 2g_e \cos(g_e L)}.$$

显然, 当 $\alpha = 0$ 时, (8.3-73)式就变为(8.3-12)式。

如果定义相位共轭(振幅)反射系数为

$$r = \frac{E_4(0)}{E_3^*(0)}, \quad (8.3-74)$$

则由(8.3-73)式得到

$$r = \frac{-2ig^* \operatorname{tg}(g_e L) \exp(-\alpha L/2)}{\alpha \operatorname{tg}(g_e L) + 2g_e}. \quad (8.3-75)$$

当 $r \rightarrow \infty$ 时, 产生自振荡, 其条件为

$$\operatorname{tg} \left\{ \left[|g|^2 \exp(-\alpha L) - \left(\frac{\alpha}{2}\right)^2 \right]^{1/2} L \right\} = -\frac{2}{\alpha} \left[|g|^2 \exp(-\alpha L) - \left(\frac{\alpha}{2}\right)^2 \right]^{1/2}. \quad (8.3-76)$$

因此, 在介质有损耗的情况下, 仍然可能产生振荡, 只是这时应满足下面的必要条件:

$$|g| \exp(-\alpha L/2) > \frac{\alpha}{2}. \quad (8.3-77)$$

由(8.3-67)式及(8.3-77)式可见, αL 值愈大, 为了产生振荡所要求的泵浦光强度愈大。在损耗很小($\alpha \ll |g|$)的情况下, 振荡条件为

$$(|g|L)_{\dots} = \left[\left(\frac{\pi}{2}\right)^2 + \left(\frac{\alpha L}{2}\right)^2 \right]^{1/2} \exp(\alpha L/2). \quad (8.3-78)$$

与无耗情况下的振荡阈值 $(|g|L)_{\dots} = \frac{\pi}{2}$ 进行比较可以看出, 非线性介质有损耗时的振荡阈值泵浦激励比无耗时要大。这对于实际的相位共轭系统(特别是利用光纤或损耗很大的材料)的设计很重要。

2. 共振型DFWM光学相位共轭

从上面关于非共振型DFWM相位共轭的讨论可以看到, 相位共轭反射系数 R 与介质的三阶非线性极化率 $\chi^{(3)}$ 有关, 在一定的条件下, $\chi^{(3)}$ 愈大, R 也愈大。因此, 人们一直致力于寻找 $\chi^{(3)}$ 大的材料。但是, 对于非共振型非线性介质来说, $\chi^{(3)}$ 不可能很大。所以, 人们大量地采用共振型非线性介质。当光频接近于材料的电子共振频率时, 由于极化率共振增强, 有可能大大提高相位共轭反射系数。这样, 就可以在较低的泵浦强度下, 获得较强的相位共轭波, 甚至可以连续工作。

对于共振型四波混频过程, 特别是光强接近共振跃迁的饱和强度时, 不仅三次非线性起作用, 而且更高次非线性也有贡献, 因此应当采用高强度激光理论处理。在这方面, 陶一夫(Tao-Yifu)和萨金特■(M. Sargent ■)^[16]已经进行了较严格的讨论。而艾布拉姆斯(Abrams)和林德(Lind)^[17]则利用简单的近似方法进行了分析, 得出了比较明确

的概念。

下面，我们按艾布拉姆斯和林德的处理思路对一个有强泵浦光照射的二能级静止原子系统进行讨论。

假设四波混频结构如图8-19所示， E_1 、 E_2 是沿着任意方向彼此反向传播的强泵浦光， E_3 、 E_4 是沿着 z 向彼此反向传播的弱信号和相位共轭光，它们的波矢满足 $k_1 + k_2 = k_3 + k_4 = 0$ ，并且波数相等，我们令其为 k 。为了讨论方便起见，我们认为这四个光波场同向线偏振，其中， E_1 、 E_2 是振幅相等的均匀平面波，并且在讨论中不考虑泵浦抽空效应。

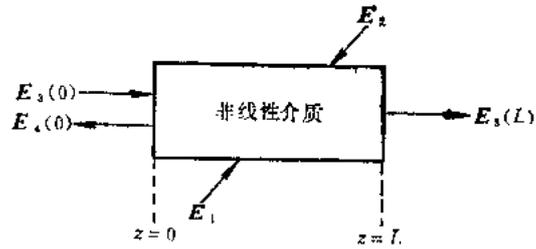


图8-19 四波混频相位共轭结构示意图

下面，我们首先求出介质中感应极化强度的表示式，然后以这个极化强度为激励源，求解辐射光波所满足的耦合方程。

根据极化强度的一般关系式

$$P = \epsilon_0 \chi(E) E, \quad (8.3-79)$$

在稳态情况下，严格求解密度矩阵方程^[18]得到极化率为

$$\chi(E) = -\frac{2\alpha_0}{k} \frac{(i + \delta)}{(1 + \delta^2 + |E/E_{s0}|^2)}. \quad (8.3-80)$$

式中， $\delta = (\omega - \omega_0)T_2$ 为偏离谱线中心的归一化失谐频率； $|E_{s0}|^2 = \hbar^2/T_1 T_2 \rho$ 为谱线中心饱和参量； $\alpha_0 = \rho^2 \Delta N_0 T_2 k / 2\epsilon_0 \hbar$ 为谱线中心的小信号吸收系数。并且 T_1 、 T_2 分别为纵向弛豫时间和横向弛豫时间， ΔN_0 为无场时的粒子数差， ρ 为原子偶极矩， k 为波数。由前面的假设，可以将介质中的光场表示为

$$E = E_0 + \Delta E, \quad (8.3-81)$$

其中 $E_0 = E_1 + E_2$ 是强泵浦光场， $\Delta E = E_3 + E_4$ 是弱信号光场。因为 $E_0 \gg \Delta E$ ，所以可以将 $\chi(E) = \chi(E_0 + \Delta E)$ 在 E_0 处展成台劳级数，并取到一次项，得

$$\chi(E_0 + \Delta E) = \chi(E_0) - \frac{\chi(E_0)}{(1 + \delta^2 + |E_0/E_{s0}|^2)} \frac{E_0^* \Delta E + E_0 \Delta E^*}{|E_0|^2}. \quad (8.3-82)$$

在这种情况下，极化强度为

$$\begin{aligned} P(\mathbf{r}, t) &= \epsilon_0 \chi(E_0)(E_0 + \Delta E) - \epsilon_0 \chi(E_0) \frac{E_0^* \Delta E + E_0 \Delta E^*}{|E_0|^2(1 + \delta^2 + |E_0/E_{s0}|^2)} E_0 \\ &= -\frac{2\epsilon_0 \alpha_0 (i + \delta)}{k(1 + \delta^2 + |E_0/E_{s0}|^2)} [2E_1 \cos(\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}) + E_3(z) \exp(ikz) + E_4(z) \\ &\quad \times \exp(-ikz)] \exp(-i\omega t) + \frac{2\epsilon_0 \alpha_0 (i + \delta)}{k|E_{s0}|^2(1 + \delta^2 + |E_0/E_{s0}|^2)^2} \\ &\quad \times \{4|E_1|^2 \cos^2(\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}) [E_3(z) \exp(ikz) + E_3^*(z) \exp(-ikz) \\ &\quad + E_4(z) \exp(-ikz) + E_4^*(z) \exp(ikz)]\} \exp(-i\omega t). \quad (8.3-83) \end{aligned}$$

显然，由于二泵浦光沿相反方向传播，所以感应极化强度 $P(\mathbf{r}, t)$ 是 $\cos(\mathbf{k} \cdot \mathbf{r})$ 的函数，它对 E_4 的贡献也是 $\cos(\mathbf{k} \cdot \mathbf{r})$ 的函数。为简化讨论，我们只考虑其平均贡献，对极化强度取平

均

$$P = \frac{1}{2\pi} \int_0^{2\pi} P(\mathbf{r}, t) d(\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}).$$

因此, 最后求得的 E_4 将有平均的意义。将(8.3-83)式对 $(\mathbf{k} \cdot \mathbf{r})$ 进行积分, 得到

$$\begin{aligned} \bar{P}(z, t) = A - & \frac{2\varepsilon_0\alpha_0(i+\delta)}{k(1+\delta^2) \left[1 + \frac{4|E_1|^2}{|E_{s0}|^2(1+\delta^2)} \right]^{1/2}} [E_3(z)\exp(ikz) \\ & + E_4(z)\exp(-ikz)] \exp(-i\omega t) + \frac{4\varepsilon_0\alpha_0(i+\delta)(1+\delta^2)|E_1|^2}{k|E_{s0}|^2(1+\delta^2)^2 \left[1 + \frac{4|E_1|^2}{|E_{s0}|^2(1+\delta^2)} \right]^{1/2}} \\ & \times [E_3(z)\exp(ikz) + E_4(z)\exp(-ikz) + E_3^*(z)\exp(-ikz) \\ & + E_4^*(z)\exp(ikz)] \exp(-i\omega t). \end{aligned} \quad (8.3-84)$$

式中 A 为与 z 无关的量。

将介质中的光场及极化强度表示式代入波动方程

$$\nabla^2 E - \mu\varepsilon_0 \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} = \mu \frac{\partial^2 P}{\partial t^2}$$

中, 利用慢变化振幅近似, 在使等式两边同指数项的系数相等后, 得到

$$\begin{aligned} \frac{dE_4(z)}{dz} &= -\frac{\alpha_0(1-i\delta)\left(1+\frac{2I}{I_s}\right)}{(1+\delta^2)\left(1+\frac{4I}{I_s}\right)^{3/2}} E_4(z) + \frac{\alpha_0(1-i\delta)\frac{2I}{I_s}}{(1+\delta^2)\left(1+\frac{4I}{I_s}\right)^{3/2}} E_3^*(z), \\ \frac{dE_3^*(z)}{dz} &= \frac{\alpha_0(1+i\delta)\left(1+\frac{2I}{I_s}\right)}{(1+\delta^2)\left(1+\frac{4I}{I_s}\right)^{3/2}} E_3^*(z) - \frac{\alpha_0(1+i\delta)\frac{2I}{I_s}}{(1+\delta^2)\left(1+\frac{4I}{I_s}\right)^{3/2}} E_4(z). \end{aligned} \quad (8.3-85)$$

式中, $I \propto |E_1|^2$ 是泵浦强度, $I_s \propto |E_{s0}|^2(1+\delta^2)$ 是与失谐有关的饱和强度。若令

$$\left. \begin{aligned} a &= -\alpha_0 \frac{(1-i\delta)\left(1+\frac{2I}{I_s}\right)}{(1+\delta^2)\left(1+\frac{4I}{I_s}\right)^{3/2}} = a_r - ia_i, \\ g^* &= -i\alpha_0 \frac{(1-i\delta)\frac{2I}{I_s}}{(1+\delta^2)\left(1+\frac{4I}{I_s}\right)^{3/2}}, \end{aligned} \right\} \quad (8.3-86)$$

则耦合方程可以写为

$$\begin{aligned} \frac{dE_4(z)}{dz} &= aE_4(z) + ig^*E_3^*(z), \\ \frac{dE_3^*(z)}{dz} &= -a^*E_3^*(z) + igE_4(z). \end{aligned} \quad (8.3-87)$$

假设边界条件为

$$\left. \begin{aligned} E_4(z=L) &= 0, \\ E_3(z=0) &= E_{s0}, \end{aligned} \right\} \quad (8.3-88)$$

其解为

$$E_4(z) = \frac{i g' \sin[g_{eff}(z-L)] \exp(-i\alpha_0 z)}{g_{eff} \cos(g_{eff}L) + \alpha_r \sin(g_{eff}L)} E_{30}^*$$

$$E_3^*(z) = \frac{\{g_{eff} \cos[g_{eff}(z-L)] - \alpha_r \sin[g_{eff}(z-L)]\} \exp(-i\alpha_0 z)}{g_{eff} \cos(g_{eff}L) + \alpha_r \sin(g_{eff}L)} E_{30}^* \quad (8.3-89)$$

式中

$$g_{eff} = (|g|^2 - \alpha_r^2)^{1/2} \quad (8.3-90)$$

由此可以得出共振型DFWM光学相位共轭的如下特性:

(a) 当信号光波 $E_3(z < 0)$ 入射到共振介质上时, 由于非线性作用, 将产生其背向相位共轭波 $E_4(z < 0)$ 。如果光波频率远离共振区、介质吸收可以忽略不计, 其结果与非共振型DFWM光学相位共轭一致。

(b) 共振型DFWM过程中入射光的透射系数为

$$T = \frac{|E_3(L)|^2}{|E_3(0)|^2} = \frac{|g_{eff}|^2}{|g_{eff} \cos(g_{eff}L) + \alpha_r \sin(g_{eff}L)|^2} \quad (8.3-91)$$

背向相位共轭光反射系数为

$$R = \frac{|E_4(0)|^2}{|E_3(0)|^2} = \frac{|g \sin(g_{eff}L)|^2}{|g_{eff} \cos(g_{eff}L) + \alpha_r \sin(g_{eff}L)|^2} \quad (8.3-92)$$

由(8.3-92)式可见, 在共振型DFWM过程中, 也可能产生振荡($R \rightarrow \infty$)。

当 $|g|^2 > \alpha_r^2$ 、非线性介质中光波间的耦合大于介质的共振吸收(或增益)时, 共振型DFWM过程的振荡条件为

$$\text{tg}(g_{eff}L) = -\frac{g_{eff}}{\alpha_r} \quad (8.3-93)$$

对于共振吸收介质($\alpha_0 > 0$), 振荡条件要求

$$g_{eff}L > \frac{\pi}{2}$$

对于共振增益介质($\alpha_0 < 0$), 振荡条件要求

$$g_{eff}L < \frac{\pi}{2}$$

远离共振区($\alpha_0 \approx 0$)时, 振荡条件要求

$$g_{eff}L \approx |g|L = \frac{\pi}{2}$$

这正是非共振型DFWM光学相位共轭的情况。

当 $|g|^2 < \alpha_r^2$ 、介质中光波间的耦合小于介质的共振吸收(或增益)时, 上面等式中的正、余弦函数变为相应的双曲函数, 反射系数变为

$$R = \frac{|g \text{sh}(g_{eff}L)|^2}{|g_{eff} \text{ch}(g_{eff}L) + \alpha_r \text{sh}(g_{eff}L)|^2} \quad (8.3-94)$$

振荡条件变为

$$\text{th}(y_{eff}L) = -\frac{y_{eff}}{\alpha_r} \quad (8.3-95)$$

由双曲函数的性质可知，只有 $\alpha_r < 0$ (即 $\alpha_0 < 0$)时上式才能成立。故只有共振增益介质才能产生振荡。

(c) 影响相位共轭反射系数 R 的主要参量是小信号吸收(或增益)系数与长度的乘积 $\alpha_0 L$ 、二能级系统泵浦强度与饱和强度之比 I/I_0 和偏离中心线的泵浦光失谐化失谐频率 δ 。

为了更明显地看出 R 的变化规律，对 R 关系式进行数值计算，可作出下面的有关曲线^{[19][20]}。

图8-20中的曲线表示了在谱线中心($\delta=0$)工作时，对各种小信号吸收($\alpha_0 L$)值的反射系数 R 与(I/I_0)的关系。在这种情况下，相位共轭反射纯由非线性极化率的虚部——介质的共振吸收贡献。由图可见， R_{max} 都发生在 I_0 附近。在 $\alpha_0 L$ 较小时， R 随着

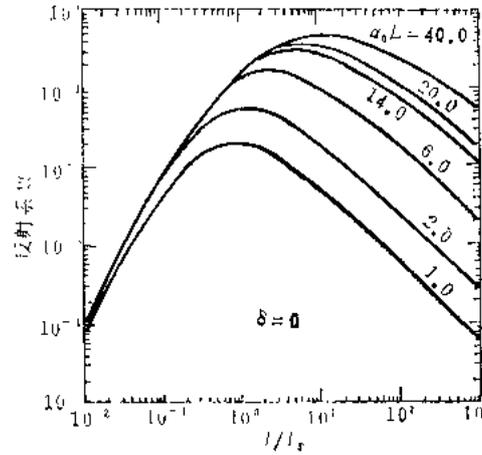


图8-20 在谱线中心工作时，以小信号吸收 $\alpha_0 L$ 为参量，反射系数 R 与归一化泵浦强度 I/I_0 的关系曲线

$\alpha_0 L$ 的增大近似线性地增大，当 $\alpha_0 L$ 较大时， R 趋于饱和，在 $\alpha_0 L$ 很大、 I/I_0 也很大的情况下， $R \rightarrow 1$ 。从物理上来讲，这种特性是由于随着 $\alpha_0 L$ 的增大，反射系数既因共振吸收而增大，又因散射光和信号光通过介质时受到吸收而减小，在它们的共同作用下，便将出现饱和。

图8-21表示失谐工作时，固定小信号吸收情况下的 R 与 I/I_0 的关系曲线。失谐时的小信号吸收为

$$\beta L = \frac{\alpha_0 L}{1 + \delta^2} \quad (8.3-96)$$

在固定 βL 的情况下，失谐 δ 增大，则要求 $\alpha_0 L$ 也相应地增大。由图可见，偏离中心工作时，可以大大提高相位共轭反射系数，如 $\beta L = 1$ 、 $\delta = 8$ 时， $R_{max} \gg 1$ 。这是由于在偏离中心工作、固定小信号吸收的情况下，除了 $\alpha_0 L$ 增大外，共振介质的色散效应对非线性耦合逐渐起了重要作用。当然，由于失谐工作，与失谐有关的饱和强度 I_0 随 $(1 + \delta^2)$ 增大。所以，为了保证反射系数增大，必须提高泵浦强度，如 $\beta L = 1$ 、 $\delta = 8$ 时，为获得 R_{max} ，要求 $I = 60I_0$ 。

除了采用共振吸收介质并使之偏离中心工作以获得 $R > 1$ 的工作状态外，还可以采用激活(增益)介质($\alpha_0 < 1$)来获取 $R > 1$ 的状态。对于这种情况，本节所推出的公式仍然有效。图8-22给出了增益介质在谱线中心工作时，相应于各种不同小信号增益($\alpha_0 L$)值的 R 与 I/I_0 关系曲线。与饱和吸收介质相比，它除了因共振增强导致非线性耦合增强外，光场还被放大。因此，反射系数可以很大。另外，因为在 $I/I_0 \gg 1$ 时，饱和增益系数下降，所以，峰值反射系数发生在 $I \ll I_0$ 处。由图可见，当增益接近于相时，呈现出振荡状态。

(d) 前面的讨论采用了小信号近似，当信号光与泵浦光强可以相比拟时，需要同时求解四个耦合方程。计算结果^{[19][20]}表明，在考虑泵浦抽空和吸收效应后，对共振附近的

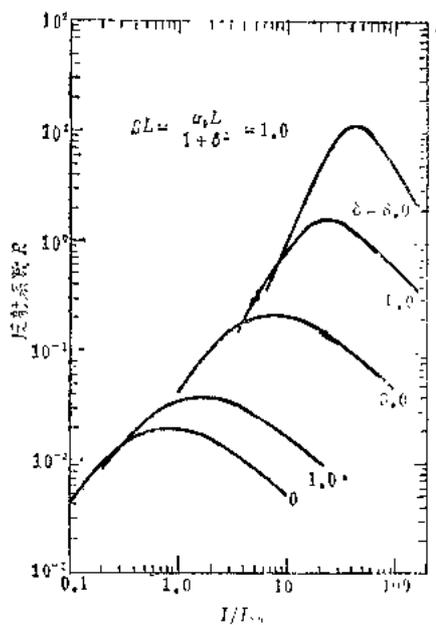


图 8-21 在小信号吸收 βL 固定时,以失谐 δ 为参量,反射系数 R 与对线中心饱和强度归一化的泵浦强度 I/I_0 的关系曲线

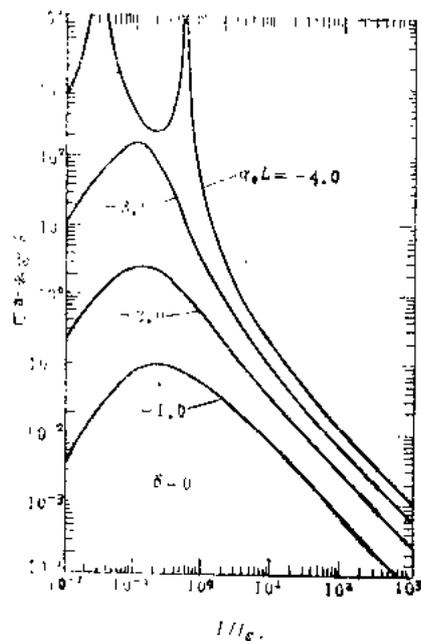


图 8-22 在增益介质谱线中心工作时,以增益 $\alpha_0 L$ 为参量,反射系数 R 与归一化泵浦强度 I/I_0 的关系曲线

反射系数影响最大。这种情况如图8-23所示。图中, A曲线为 $\beta L = 1$ 、 $\delta = 15$ 时根据(8.3-92)式计算绘出的振荡点附近的曲线,此时在两个泵浦强度值上反射系数发散。B曲线是泵浦强度低于饱和强度,因而考虑泵浦吸收但未计及泵浦抽空的情况,此时仅有一个发散的泵浦强度值。C曲线是同时考虑了泵浦抽空和吸收的情况,该曲线是在信号光强为泵浦光强的1%时的计算结果。与曲线B相比较可以看出,泵浦抽空的影响在振荡点附近最明显,此时的反射系数不再发散,而为一有限值。这从物理上来看,是很自然的。

(e) 上面的讨论是对二能级、静止原子系统进行的,当共振介质不是二能级系统时,其实验结果与上面的分析也很吻合^[19]。但是如果考虑到原子处于运动状态,则会影响非线性相互作用的效率。

沃德朱拉(Wardzura)^[19]对此情况进行了分析,结果表明,原子运动将使反射系数 R 下降。在他的分析中还指出, R 与信号和泵浦光之间的夹角有关,夹角为零时, R 最大。

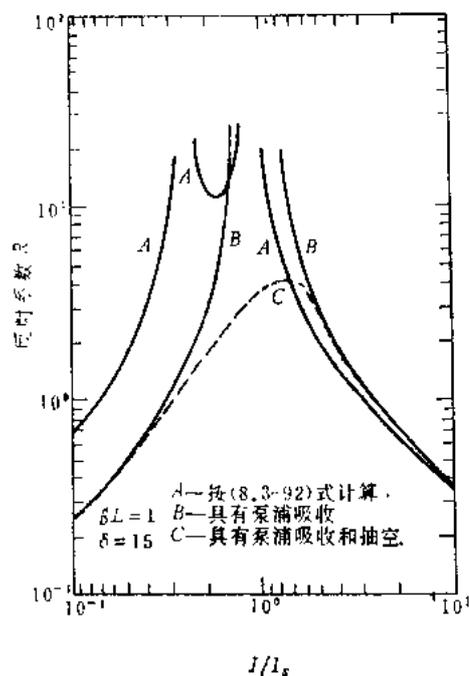


图 8-23 泵浦抽空、吸收效应对反射系数 R 的影响

3. 近DFWM光学相位共轭

前面讨论的内容都属于DFWM相位共轭，这是当前最引人注目的课题。随着光学相位共轭技术的发展，人们发现，当入射光频率近简并工作时，既能产生较好的相位共轭特性，又有较窄的频率特性，可以用作滤波器，所以也很受人们的重视。

在这里，我们只简单地介绍非共振型近DFWM相位共轭的小信号理论^[22]。

近DFWM结构仍如图8-5所示。四个光场表示式为

$$E_l(\mathbf{r}, t) = E_l(\mathbf{r}) \exp[-i(\omega_l t - \mathbf{k}_l \cdot \mathbf{r})] + C. C. . \quad l = 1, 2, 3, 4. \quad (8.3-97)$$

其中，二反向传播的泵浦光 $E_1(\mathbf{r}, t)$ 和 $E_2(\mathbf{r}, t)$ 是在某 \mathbf{r} 方向上传播、频率为 ω 的平面波；入射信号光 $E_3(z, t)$ 是沿着 z 方向传播、频率为 $(\omega + \delta)$ 的平面波(假设 $|\delta/\omega| \ll 1$)；散射光 $E_4(z, t)$ 是沿 $-z$ 方向传播、频率为 $\omega_s = \omega + \omega - (\omega + \delta) = \omega - \delta$ 的平面波。为了讨论方便起见，假设各光场同向线偏振，在不考虑由光波引起介质折射率变化的情况下，由入射光感应产生的频率为 $(\omega - \delta)$ 的非线性极化强度为

$$P_{\omega_s}(\mathbf{r}, t) = 6\epsilon_0 \chi^{(3)} E_1 E_2 E_3^*(z) \exp\{-i[(\omega + \omega - (\omega + \delta))t - (\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_3) \cdot \mathbf{r}]\} + C. C. . \quad (8.3-98)$$

将光场和极化强度表示式代入波动方程

$$\nabla^2 E - \mu \epsilon \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} = \mu \frac{\partial^2 P^{(3)}}{\partial t^2}$$

中，并考虑到以下两点：

(a) 二泵浦光波矢满足 $\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 = 0$ ，而信号光和散射光的波矢因其频率不同，故 $\mathbf{k}_3 + \mathbf{k}_4 \neq 0$ 。因此，近DFWM过程必然相位失配。其中，相位失配最小的散射光应与入射信号光反向传播。设 $\mathbf{k}_3 + \mathbf{k}_4 = \Delta \mathbf{k}$ ，在不计色散的情况下，有

$$|\Delta \mathbf{k}| = \frac{2n|\delta|}{c} = 2n\pi \frac{|\Delta \lambda|}{\lambda^2}$$

(b) 慢变化振幅近似

$$\left| \frac{\partial^2 E_l(z)}{\partial z^2} \right| \ll \left| k_l \frac{\partial E_l(z)}{\partial z} \right|$$

便可以得到散射光、信号光满足的耦合方程为

$$\left. \begin{aligned} \frac{dE_4(z)}{dz} &= i g_4^* E_3^*(z) \exp(-i \Delta k z), \\ \frac{dE_3^*(z)}{dz} &= i g_3 E_4(z) \exp(i \Delta k z). \end{aligned} \right\} \quad (8.3-99)$$

式中

$$g_i^* = -\frac{1}{k_i} 3\mu \epsilon_0 \omega_i^2 \chi^{(3)} E_1 E_2. \quad (8.3-100)$$

其通解为

$$\left. \begin{aligned} E_4(z) &= [C_1 \exp(i\beta z) + D_1 \exp(-i\beta z)] \exp(-i\Delta k z/2), \\ E_3^*(z) &= [C_2 \exp(i\beta z) + D_2 \exp(-i\beta z)] \exp(i\Delta k z/2). \end{aligned} \right\} \quad (8.3-101)$$

其中

$$\beta = \left[\left(\frac{\Delta k}{2} \right)^2 + g_3 g_4^* \right]^{1/2}. \quad (8.3-102)$$

利用边界条件

$$\left. \begin{aligned} E_4(z=L) &= 0, \\ E_3^*(z=0) &= E_{30}^*, \end{aligned} \right\} \quad (8.3-103)$$

解得

$$\left. \begin{aligned} E_4(z) &= \frac{i g_4^* \sin[\beta(z-L)]}{\beta \cos(\beta L) + i \frac{\Delta k}{2} \sin(\beta L)} E_{30}^* \exp(-i \Delta k z / 2), \\ E_3^*(z) &= \frac{\beta \cos[\beta(z-L)] - i \frac{\Delta k}{2} \sin[\beta(z-L)]}{\beta \cos(\beta L) + i \frac{\Delta k}{2} \sin(\beta L)} E_{30}^* \exp(i \Delta k z / 2). \end{aligned} \right\} \quad (8.3-104)$$

由此可见:

(a) 当入射光 $E_3(z, t)$ 是平面波时, 由于非线性作用所产生的散射光 $E_4(z, t)$ 也是(与 $E_3(z, t)$ 反向传播的)平面波, 在 $z=0$ 的输入面上

$$E_4(0) = - \frac{i g_4 \operatorname{tg}(\beta L)}{\beta + i \frac{\Delta k}{2} \operatorname{tg}(\beta L)} E_{30}^*. \quad (8.3-105)$$

因为 $\Delta k \neq 0$, 所以 $E_4(z=0, t)$ 并不是 $E_3(z=0, t)$ 的理想相位共轭光, 而只有近似相位共轭特性, Δk 愈小, 近似性愈好。如果入射信号中含有空间噪声, 则因其传播方向随机地偏离信号方向, 相位失配严重, 不可能在入射信号反方向产生强的噪声反射波, 故该过程可以起到空间滤波的作用, 将噪声滤掉, 从而可以大大地提高反射信号的信噪比。

(b) 当 $\Delta k = 0$ 时, (8.3-104) 式变为DFWM光学相位共轭的关系式(8.3-12)式。

(c) 由(8.3-105)式可以得到相位共轭(振幅)反射系数 r 为

$$r = \frac{E_4(0)}{E_3^*(0)} = - \frac{i g_4^* \operatorname{tg}(\beta L)}{\beta + i \frac{\Delta k}{2} \operatorname{tg}(\beta L)}, \quad (8.3-106)$$

其大小和相位皆为频率失谐 δ 和非线性增益 $|\beta|L$ 的函数。若定义相位共轭(功率)反射系数 R 为

$$R = \frac{|E_4(0)|^2}{|E_3^*(0)|^2},$$

则考虑到 $\delta \ll \omega$, 有 $g_3 \approx g_4 = g$ 。于是, (8.3-102) 式可以表示为

$$\beta^2 = g^2 + (\Delta k / 2)^2, \quad (8.3-107)$$

从而得到

$$R = \frac{|g|^2 \operatorname{tg}^2(\beta L)}{\beta^2 + \left(\frac{\Delta k}{2} \right)^2 \operatorname{tg}^2(\beta L)} \approx \frac{|gL|^2 \operatorname{tg}^2(\beta L)}{|gL|^2 + \left(\frac{\Delta k L}{2} \right)^2 \sec^2(\beta L)}. \quad (8.3-108)$$

在适当的 g 、 Δk 值下, R 可以大于1。

当非线性耦合很弱, 即 $|g/\Delta k| \rightarrow 0$ 时, $\beta^2 \approx (\Delta k/2)^2$, 此时,

$$R \approx |gL|^2 \frac{\sin^2(\Delta kL/2)}{(\Delta kL/2)^2} \quad (8.3-109)$$

该式正是相干光在相位失配、无抽空作用下的典型结果^[10], 它可以直接令 $\frac{dE_4^*(z)}{dz} = 0$,

然后对 $E_4(z)$ 的微分方程积分求解得到。这种情况已在实验上得到证实^[11]。

(d) 由(8.3-108)式可以看出, 功率反射系数 R 是频率失谐 δ 的函数, 其频率特性具有带通性, 故可以用作为滤波器。为说明这个特性, 根据(8.3-108)式绘出 R 与归一化波长失谐量 ψ 的关系曲线, 如图8-24所示。其中 ψ 等效于相位失配 ΔkL , 其关系为

$$\psi = \frac{\Delta kL}{2\pi} = \frac{\Delta\lambda}{2} \frac{2\pi nL}{\lambda^2} \quad (8.3-110)$$

式中 $\Delta\lambda/2$ 是 E_3 、 E_4 的波长差。在作用长度为 1cm , 波长为 $0.5\mu\text{m}$, 线性折射率 $n = 1.62$ 的情况下, 图中横坐标的单位1相应于 $|\Delta\lambda/2| = 0.00772\text{nm}$ 。由图中曲线可见, 只有非线性增益 $|g|L$ 很小时, R 才呈现为 $\text{sinc}^2 x$ 函数形式。随着 $|g|L$ 的增大, 通带愈加尖锐, 零值响应的频偏也愈小。这种现象的出现, 是因为随着 $|g|L$ 的增大, 输出振幅将增大, 因而 R 的峰值亦将增高。同时, 由(8.3-107)式可见, 随着 $|g|L$ 的增大, 相应于(8.3-103)式中 $\text{ch}(\beta L)$ 零点的 $\Delta kL/2$ 值将减小, 因而零值响应频偏亦将减小。由图中曲线还可以看出, 当 $|g|L > \pi/4$ 时, 在通带中的反射系数可以大于1。

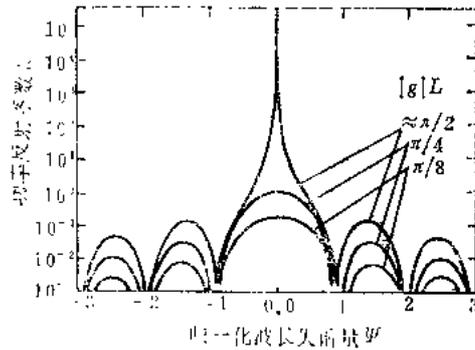


图8-24 以 $|g|L$ 为参量, 功率反射系数 R 与归一化波长失谐量 ψ 的关系曲线

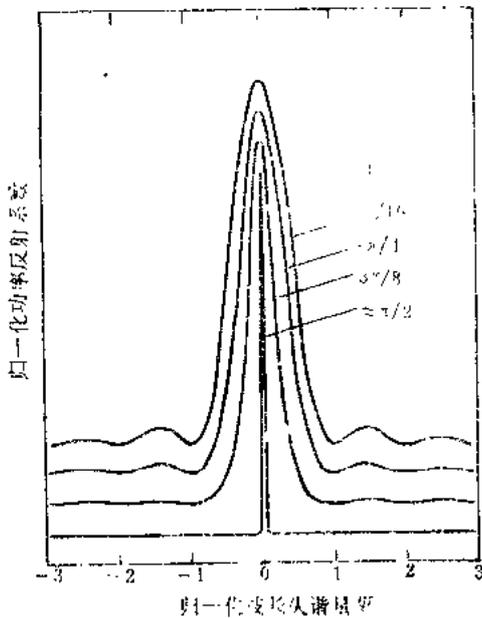


图8-25 归一化功率反射系数与归一化波长失谐量 ψ 的关系曲线

结构也随之减小, 带通响应更加尖锐。在接近振荡 ($|g|L \approx \frac{\pi}{2}$) 时, 通带带宽的最终极限为

泵浦源的线宽。

根据上面的分析，可以得到下面的结论：近DFWM过程可以用来作为有放大特性的带通滤波器，由于入射信号光可以相对泵浦光以任意角度入射（未计元件结构的本身限制），所以可以制成大视场滤波器。如果给定了非线性介质，其频率特性取决于相互作用长度和泵浦强度，即取决于 $|g|L$ 。另外，由于反射光有近相位共轭特性，所以可以通过空间滤波大大提高空间信噪比。

最后还应当指出，上面分析的是非共振型近DFWM光学相位共轭的特性。对于共振型近DFWM光学相位共轭特性，陶一夫和萨金特^[10]及尼尔森(Nilsen)和雅里夫^[23]等已分别就强泵浦情况（未计及原子运动影响）与弱泵浦($I \ll I_s$)情况（考虑了多卜勒效应），利用高强度激光理论和三阶非线性光学微扰理论进行了讨论。

4. 四波混频相位共轭与全息过程比较

从前面对四波混频相位共轭过程的讨论我们可以看出，四波混频相位共轭过程与全息过程非常相似。

普通全息过程如图8-26所示。参考光 E_1 和信号光 E_3 在全息片上干涉，形成了全息图，这就是图8-26(a)所示的记录过程。全息图的传递函数为

$$T \propto [E_1(x,y) + E_3(x,y)] \times [E_1(x,y) + E_3(x,y)]^* = |E_1(x,y)|^2 + |E_3(x,y)|^2 + E_1^*(x,y)E_3(x,y) + E_1(x,y)E_3^*(x,y).$$

(8.3-111)

式中 $E_1(x,y)$ 、 $E_3(x,y)$ 分别为参考光、信号光在全息片($z=0$)处的光场复振幅。当用再现参考光 E_2 ($E_2(\mathbf{r}) = E_1^*(\mathbf{r})$)照射全息图时，在全息图的左边就产生了衍射光 E_4 ，其复振幅为

$$E_4(x,y) = TE_2(x,y) \propto (|E_1(x,y)|^2 + |E_3(x,y)|^2)E_2(x,y) + E_1^*(x,y)E_3(x,y)E_2(x,y) + E_1(x,y)E_3^*(x,y)E_2(x,y).$$

(8.3-112)

这就是图8-26(b)所示的再现过程。在衍射光中包含有三项：第一项相应于 E_2 的透射光；第二项相应于与 E_3 成正比的再现信号光，这是一个虚象；第三项正比于信号光复振幅的复共轭，它是一个实象，该项相应于 E_3 的相位共轭光。

体全息过程必须要考虑全息片厚度的影响，只有当再现光 E_2 满足布喇格条件

$$2d \sin(\theta/2) = \lambda \quad (8.3-113)$$

入射时，才能获得最强的衍射光。其中， d 是全息光栅周期长度， $\theta/2$ 是 E_2 光与光栅条纹面夹角， λ 是 E_2 光波长。简单地分析表明^[24]，在满足布喇格条件下，只有再现光 E_2 与记录参考光 E_1 严格反向传播时，才能获得与信号光 E_3 反向传播的相位共轭衍射光。

如果我们将图8-26(a)、(b)分离的全息记录、再现过程图重叠在一起，其结构便与

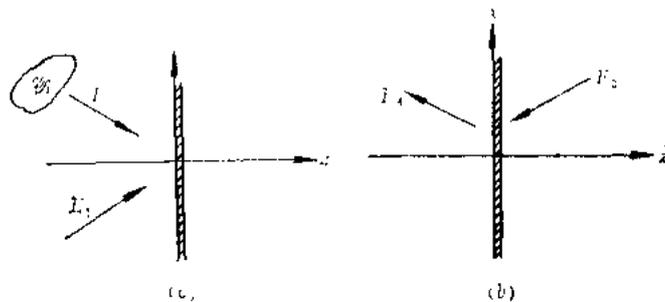


图8-26 普通全息过程
(a)记录过程，
(b)再现过程

DFWM的结构相同。此时，记录参考光、信号光、再现参考光同时存在。因此，从全息的观点来看，这三个波将在介质中同时形成三组光栅(图8-27)；第一组光栅由 $E_1(k_1)$ 和 $E_3^*(k_3)$ 形成，使 $E_2(k_2)$ 衍射，所产生的衍射光 $E_4(k_4)$ 的波矢为

$$k_4 = -k_3, k_3 - 2k_1;$$

第二组光栅由 $E_2(k_2)$ 和 $E_3(k_3)$ 形成，使 $E_1(k_1)$ 衍射，所产生的衍射光 $E_4(k_4)$ 的波矢为

$$k_4 = -k_3, k_3 + 2k_1;$$

第三组光栅由 $E_1(k_1)$ 和 $E_2(k_2)$ 形成，使 $E_3(k_3)$ 衍射，所产生的衍射光 $E_4(k_4)$ 的波矢为

$$k_4 = k_3 - 2k_1, k_3 + 2k_1.$$

在所有的衍射光中，只有 $k_4 = -k_3$ 的衍射光才是 $E_3(k_3)$ 的背向相位共轭光。

从非线性光学的观点来看上面的过程是：入射到介质上的三个光波通过非线性作用，产生三阶非线性极化强度

$$\begin{aligned} P(\omega) &= P(k_1 + k_2 - k_3, \omega) + P(-k_1 + k_2 + k_3, \omega) + P(k_1 - k_2 + k_3, \omega) \\ &= P(-k_3, \omega) + P(-2k_1 + k_3, \omega) + P(2k_1 + k_3, \omega) \\ &= 6\epsilon_0 \chi^{(3)}(-k_3, \omega) : E_1(k_1, \omega) E_2(k_2, \omega) E_3^*(k_3, \omega) \exp(-i k_3 \cdot r) \\ &\quad + 6\epsilon_0 \chi^{(3)}(-2k_1 + k_3, \omega) : E_1^*(k_1, \omega) E_2(k_2, \omega) E_3(k_3, \omega) \exp[i(-2k_1 \\ &\quad + k_3) \cdot r] + 6\epsilon_0 \chi^{(3)}(2k_1 + k_3, \omega) : E_1(k_1, \omega) E_2^*(k_2, \omega) E_3(k_3, \omega) \\ &\quad \times \exp[i(2k_1 + k_3) \cdot r], \end{aligned} \quad (8-3-114)$$

该非线性极化强度将作为激励源辐射新的光波。在非线形极化强度表示式中所包含的三个项，分别与全息过程中三个光栅的衍射项相对应。其中，后两项不满足相位匹配条件，而第一项则自动满足相位匹配条件，它正好是入射光 $E_3(k_3, \omega)$ 的背向相位共轭光。

上面的分析指出了四波混频相位共轭与全息过程之间的相似性。除了这种相似性以外，还必须要明确它们之间有着根本的差别^[26]。首先，普通全息的记录过程是通过参考光和信号光的干涉对记录介质曝光并调制其透明度实现的，所以，参考光和信号光必须同频率，否则就会形成不稳定的移动光栅，在曝光过程中会将全息图洗掉。而四波混频相位共轭过程并不要求四个波一定同频率。第二个差别是，四波混频过程中的四个波是通过三阶非线性极化率发生作用的，在一般情况下， $\chi^{(3)}$ 是一个张量，它可以使不同偏振光之间产生耦合。例如，对于各向同性介质来说，当入射三个光波为 E_1 、 E_2 、 E_3 时，相应于产生背向相位共轭波的非线性极化强度为^[26]

$$P = A(E_1 \cdot E_3^*) E_2 + B(E_2 \cdot E_3^*) E_1 + C(E_1 \cdot E_2) E_3^*$$

其中， A 、 B 、 C 取决于非线性介质的性质及相互作用波间的夹角。将它与前面的光栅图进行比较，其前面两项与前两个光栅图相对应；第一项相应于 E_1 和 E_3^* 干涉形成空间光栅，由 E_2 再现；第二项相应于 E_2 和 E_3^* 干涉形成空间光栅，由 E_1 再现。由于标乘运算的

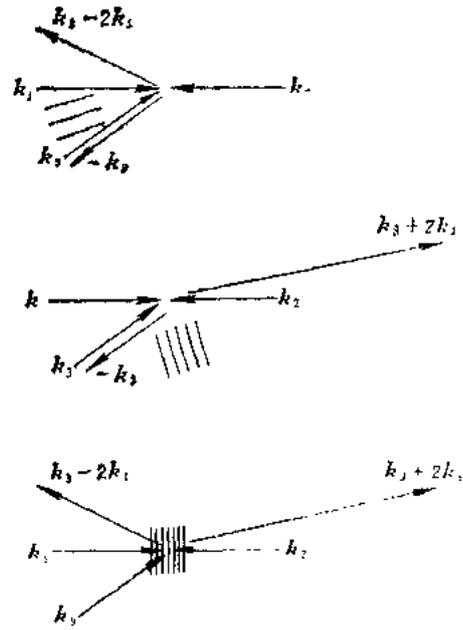


图 8-27 与DFWM过程相对应的光栅图

要求, E_1 、 E_2^* 和 E_3 、 E_4^* 必须同偏振, 这相应于在全息记录过程中, 为了产生空间干涉图, 要求入射光同偏振。但是, 上式第三项没有相应的全息光栅。这一项是两个泵浦光场的标乘, 形成的是瞬时光栅, 无固定空间干涉图形, 它相应于非线性折射率在空间上是均匀的, 在时间上以 2ω 频率调制, 它实际上相应于双光子共振过程。对于这一项, 只要 $C \neq 0$ 、 $E_1 \cdot E_2 \neq 0$, 即使 E_1 与 E_3 正交偏振, 也可以产生相位共轭波。第三个差别可以通过对四波混频过程进行量子力学讨论看出。我们知道四波混频过程是在具有三阶非线性极化率 $\chi^{(3)}$ 的介质中, 四个光波模 E_1 、 E_2 、 E_3 、 E_4 相互作用的过程, 其相互作用哈密顿

$$\hat{H} \propto E_1 E_2 E_3^* E_4^*$$

从量子力学观点来看, 每一个场都可以用谐振子波函数 $|n\rangle$ 表征 (n 为模中的量子数), 总的光场为 $|n_1, n_2, n_3, n_4\rangle$ 。如果将模 (例如 E_1) 的电场用量子化表示式 (7.1-42) 式表示, 有

$$E_1(\mathbf{r}, t) = -iu \left(\frac{\hbar \omega_1}{2V\epsilon} \right)^{1/2} [\hat{a}_1^\dagger(t) \exp(-i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}) - \hat{a}_1(t) \exp(i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r})]$$

式中

$$\begin{aligned} \hat{a}_1^\dagger(t) &= \hat{a}_1^\dagger(0) \exp(i\omega t), \\ \hat{a}_1(t) &= \hat{a}_1(0) \exp(-i\omega t). \end{aligned}$$

由此, 将 E_2^* 与 \hat{a}_1^\dagger , E_1 与 \hat{a}_1 联系起来。对于我们讨论的 E_1 、 E_2 是泵浦波, E_3 、 E_4 是信号波的过程来说, 相互作用哈密顿

$$\hat{H}' \propto \hat{a}_1 \hat{a}_2 \hat{a}_3^\dagger \hat{a}_4^\dagger$$

按费米黄金规则, \hat{H}' 可以引起如下之跃迁:

$$\langle n_1 - 1, n_2 - 1, n_3 + 1, n_4 + 1 | \hat{a}_1 \hat{a}_2 \hat{a}_3^\dagger \hat{a}_4^\dagger | n_1, n_2, n_3, n_4 \rangle$$

其中初态在模 E_1 、 E_2 、 E_3 、 E_4 中的量子数为 n_1 、 n_2 、 n_3 、 n_4 , 末态的量子数是 $n_1 - 1$, $n_2 - 1$, $n_3 + 1$, $n_4 + 1$ 。这个基本过程是模 1 (ω_1)、模 2 (ω_2) 各湮灭一个光子, 同时, 产生一个 ω_3 和一个 ω_4 的光子。因此, 入射信号光 E_3 、散射光 E_4 在各自的输出面上的强度均被增大。当然, 这种功率的增大是以抽空两个泵浦模为代价的。在这个过程中, 光子能量守恒关系为 $\omega_1 + \omega_2 = \omega_3 + \omega_4$, 光子动量守恒关系为 $\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 = \mathbf{k}_3 + \mathbf{k}_4$ 。而在普通全息过程中, E_1 和 E_3 并不与 E_4 和 E_2 同时在介质中存在, 因此, 上面的分析不适用。由于两种过程的这种差别, 导致它们的量子光学起伏不同。

鉴于上面对二种过程的各种考虑, 可以将四波混频相位共轭过程看作是一种实时全息 (动态全息) 过程, 在这种情况下, 不仅要考虑全息光栅对再现参考光的衍射作用, 而且还要考虑再现参考光、衍射光对全息光栅参量的影响。也就是说, 不仅要求四个光波波矢满足布喇格条件, 还要求其振幅满足动平衡条件, 即四个波通过与介质相互作用满足动态平衡。

根据这样一种观点我们可以将四波混频相位共轭的物理过程描绘如下: 在非共振型DFWM相位共轭中, 入射光与二反向传播的泵浦光之一干涉, 形成光强度的空间分布, 由于非线性极化率为实数, 这种干涉场分布导致折射率的空间分布, 这种折射率的空间分布形成了“相位光栅”, 同时, 满足布喇格条件(相位匹配条件)的另一束泵浦光被这个光栅衍射, 形成了与入射信号光反向传播的相位共轭光。在共振型DFWM相位共轭中, 由

于介质的非线性极化率是复数，所以，介质对光场的作用除了引起色散外，还有强度吸收（或放大）。因此，入射的信号光与泵浦光之一干涉形成空间强度分布，既在介质中形成折射率的空间分布，又调制了原子系统集居数差的空间分布，即既形成了“相位光栅”，又形成了“强度光栅”，满足相位匹配条件的反向泵浦光波被光栅衍射，形成了与入射信号光反向传播的背向相位共轭光。由于共振介质中同时存在两种光栅，特别是接近共振时，因共振增强作用，其“强度光栅”可能更为重要，所以，共振型比非共振型相位共轭作用更强。

有了上面的分析，就可以进一步形象地说明DFWM作用产生相位共轭波的过程。如图8-28(a)所示，当信号光 E_s 和泵浦光 E_p 都是平面波时，它们干涉形成了全息光栅，其光栅波矢满足

$$k_1 - k_2 = k_{\text{光栅}}$$

光栅周期为

$$d = \frac{\lambda}{2\sin(\theta/2)}$$

该光栅将泵浦光 E_p 衍射，形成了沿信号光反向传播的相位共轭光。如图8-28(b)所示，当入射信号光具有畸变波前时，例如信号光的波前中央部分相位超前 Φ_a ，

这相当于空间超前距离为 $\frac{\Phi_a}{2\pi} \frac{\lambda}{n}$ ，则信号光与平面泵浦光 E_p 干涉形成的全息光栅中央也有一凸出，凸出的位移为 $\Delta = \frac{\Phi_a}{2\pi}$

$\times \frac{\lambda}{2n\sin(\theta/2)}$ 。当 θ 很大(趋于 180°)时， $\Delta \approx \frac{\Phi_a}{2\pi} \frac{\lambda}{2n}$ 。此时，对于平面泵浦光 E_p 来说，因

光栅中央凸出，使得中央反射光较其它部分多走了 $2 \times \frac{\Phi_a}{2\pi} \frac{\lambda}{2n\sin(\theta/2)} \approx \frac{\Phi_a}{2\pi} \frac{\lambda}{n}$ ，所以反射光

波前的中央部分比其它部分落后了 $\frac{\Phi_a}{2\pi} \frac{\lambda}{n}$ ，这种波前分布恰与入射光相同，因此，该反射光即为入射光的相位共轭光。

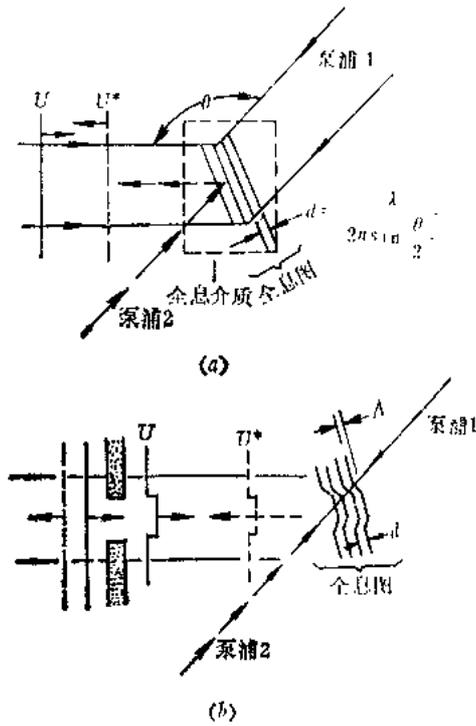


图8-28 DFWM的全息记录和再现
(a)无扰动信号波时的记录和再现；
(b)有扰动信号波时的记录和再现

四、受激散射(SRS、SBS)光学相位共轭技术

利用第六章中所讨论的光的受激散射(SRS、SBS)过程也可以产生入射光的相位共轭光，只是这两个光波频率间相差一个斯托克斯频移。1972年，谢尔托维奇等人首先利用

SBS过程实现了非线性光学相位共轭^[6]。自那以后,已有许多人对受激散射光学相位共轭进行了深入的理论和实验研究。

下面我们以前SBS过程^[6]为例,予以说明。

假设入射到非线性介质中的信号(也即是泵浦)光波和产生的背向散射光波及相干声波皆为同向线偏振并分别表示为

$$\begin{aligned} E_2(\mathbf{r}, t) &= E_2(\mathbf{r}) \exp[-i(\omega_2 t - k_2 z)] + C. C., \\ E_1(\mathbf{r}, t) &= E_1(\mathbf{r}) \exp[-i(\omega_1 t + k_1 z)] + C. C., \\ u_s(\mathbf{r}, t) &= u_s(\mathbf{r}) \exp[-i(\omega_s t - k_s z)] + C. C. \end{aligned} \quad (8.4-1)$$

这三个波的频率关系满足 $\omega_2 = \omega_1 + \omega_s$, 波矢关系满足 $k_2 = k_1 + k_s$ 。

根据(6.7-42)式, 声波方程为

$$\frac{\partial u_s(\mathbf{r})}{\partial z} + \frac{\eta}{2\rho_m v_s} u_s(\mathbf{r}) = -\frac{\gamma}{4\rho_m v_s^2} E_2(\mathbf{r}) E_1^*(\mathbf{r}). \quad (8.4-2)$$

式中, η 是唯象引入的声波耗散常数, ρ_m 是介质质量密度, v_s 是声速, γ 是描述应变引起光介电常数改变的常数。若设

$$\frac{\eta}{\rho_m v_s} = \alpha \quad (8.4-3)$$

为声波损耗, 并且, 为了进一步简化方程, 令

$$u_s(\mathbf{r}) = u'_s(\mathbf{r}) \exp(-\alpha z/2), \quad (8.4-4)$$

则(8.4-2)式变为

$$\frac{\partial u'_s(\mathbf{r})}{\partial z} = -\frac{\gamma}{4\rho_m v_s^2} E_2(\mathbf{r}) E_1^*(\mathbf{r}) \exp(\alpha z/2). \quad (8.4-5)$$

对(8.4-5)式进行积分, 可得

$$u'_s(\mathbf{r}_\perp, z) - u'_s(\mathbf{r}_\perp, 0) = -\frac{\gamma}{4\rho_m v_s^2} \int_0^z E_2(\mathbf{r}_\perp, z') E_1^*(\mathbf{r}_\perp, z') \exp(\alpha z'/2) dz'.$$

考虑到(8.4-4)关系式, 得到

$$\begin{aligned} u_s(\mathbf{r}_\perp, z) &= -\frac{\gamma}{4\rho_m v_s^2} \int_0^z E_2(\mathbf{r}_\perp, z') E_1^*(\mathbf{r}_\perp, z') \exp[-\alpha(z-z')/2] dz' \\ &\quad + u(\mathbf{r}_\perp, 0) \exp(-\alpha z/2). \end{aligned} \quad (8.4-6)$$

式中的 $u_s(\mathbf{r}_\perp, z)$ 是介质中任一点处的声波振幅, 它是 $z=0$ 处声波和介质中 $z' < z$ 各处电场激励产生的声波贡献之和, $\exp(-\alpha z/2)$ 和 $\exp[-\alpha(z-z')/2]$ 分别表示了这两处声波传到 z 处的衰减。

假设声波在传播过程中的损耗很大, 则(8.4-6)式中积分号内由 $E_2(\mathbf{r}_\perp, z')$ 和 $E_1(\mathbf{r}_\perp, z')$ 通过非线性作用贡献的声波必然只能传很短的距离, 即 $(z-z')$ 很小, 从而可以忽略电场随 z 的变化, 在计算中, 将其提到积分号外。同理, 也可将(8.4-6)式右边第二项略去不计。于是(8.4-6)式变为

$$u_s(\mathbf{r}_\perp, z) = \frac{\gamma E_2(\mathbf{r}_\perp, z) E_1^*(\mathbf{r}_\perp, z)}{4\rho_m v_s^2 \alpha/2} = \frac{\gamma}{2\eta v_s} E_2(\mathbf{r}_\perp, z) E_1^*(\mathbf{r}_\perp, z), \quad (8.4-7)$$

介质中光波电场由波动方程

$$\nabla^2 E(\mathbf{r}, t) - \mu \varepsilon \frac{\partial^2 E(\mathbf{r}, t)}{\partial t^2} = \mu \frac{\partial^2 P_{NL}(\mathbf{r}, t)}{\partial t^2}$$

描述。按第六章的讨论，利用慢变化振幅近似条件：

$$\left| \frac{\partial^2 E_1(\mathbf{r}_\perp, z)}{\partial z^2} \right| \ll \left| k_1 \frac{\partial E_1(\mathbf{r}_\perp, z)}{\partial z} \right|, |k_1^2 E_1(\mathbf{r}_\perp, z)|,$$

可以得到背向散射光场复振幅满足下面的方程：

$$\frac{\partial E_1(\mathbf{r}_\perp, z)}{\partial z} + \frac{i}{2r_1} \nabla_\perp^2 E_1(\mathbf{r}_\perp, z) = -\frac{\omega_1^2 \gamma \mu k_2}{2k_1} E_2(\mathbf{r}_\perp, z) u_1^*(\mathbf{r}_\perp, z).$$

将(8.4-7)式代入，得到

$$\frac{\partial E_1(\mathbf{r}_\perp, z)}{\partial z} + \frac{i}{2k_1} \nabla_\perp^2 E_1(\mathbf{r}_\perp, z) = \frac{\omega_1^2 \gamma^2 \mu k_2}{8\eta k_1 v_s} |E_2(\mathbf{r}_\perp, z)|^2 E_1(\mathbf{r}_\perp, z). \quad (8.4-8)$$

若令

$$g(\mathbf{r}_\perp, z) = \frac{\omega_1^2 \gamma^2 \mu k_2}{4\eta k_1 v_s} |E_2(\mathbf{r}_\perp, z)|^2 = A |E_2(\mathbf{r}_\perp, z)|^2, \quad (8.4-9)$$

则(8.4-8)式变为

$$\frac{\partial E_1(\mathbf{r}_\perp, z)}{\partial z} + \frac{i}{2k_1} \nabla_\perp^2 E_1(\mathbf{r}_\perp, z) - \frac{1}{2} g(\mathbf{r}_\perp, z) E_1(\mathbf{r}_\perp, z) = 0. \quad (8.4-10)$$

显然， $g(\mathbf{r}_\perp, z)$ 表示了背向散射光受到的非线性增益。

对于沿 z 向传播的泵浦光 $E_2(\mathbf{r}_\perp, z)$ ，如果忽略抽空效应及其它损耗，应满足

$$\frac{\partial E_2(\mathbf{r}_\perp, z)}{\partial z} - \frac{i}{2k_2} \nabla_\perp^2 E_2(\mathbf{r}_\perp, z) = 0. \quad (8.4-11)$$

我们知道，抛物线型方程

$$\frac{\partial f_n(\mathbf{r}_\perp, z)}{\partial z} + \frac{i}{2k_2} \nabla_\perp^2 f_n(\mathbf{r}_\perp, z) = 0 \quad (8.4-12)$$

中的 f_n 是一组完全正交归一化的函数，它们满足

$$\iint f_m^*(\mathbf{r}_\perp, z) f_n(\mathbf{r}_\perp, z) d^2 r_\perp = \delta_{m-n} = \begin{cases} 0 & m \neq n, \\ 1 & m = n. \end{cases} \quad (8.4-13)$$

将(8.4-11)与(8.4-12)式进行比较，选择一个函数 $f_0^*(\mathbf{r}_\perp, z)$ ，使它与泵浦场之间相差一个常数

$$E_2(\mathbf{r}_\perp, z) = B f_0^*(\mathbf{r}_\perp, z). \quad (8.4-14)$$

因为 $f_n(\mathbf{r}_\perp, z)$ 为完全正交归一化函数组，所以可将所求解的背向散射光场 $E_1(\mathbf{r}_\perp, z)$ 按其展开为

$$E_1(\mathbf{r}_\perp, z) = \sum_{n=0}^{\infty} C_n(z) f_n(\mathbf{r}_\perp, z). \quad (8.4-15)$$

将(8.4-15)式代入(8.4-10)式，得到

$$\sum_{n=0}^{\infty} \left\{ \frac{dC_n(z)}{dz} f_n(\mathbf{r}_\perp, z) + C_n(z) \frac{\partial f_n(\mathbf{r}_\perp, z)}{\partial z} + i \frac{C_n(z)}{2k_1} \nabla_\perp^2 f_n(\mathbf{r}_\perp, z) \right\}$$

$$- \frac{1}{2} AB^2 |f_0(\mathbf{r}_\perp, z)|^2 C_n(z) f_n(\mathbf{r}_\perp, z) \} = 0, \quad (8.4-16)$$

令 $\alpha' = \frac{k_2 - k_1}{k_1}$, 则(8.4-16)式中的第二、三项变为

$$C_n(z) \frac{\partial f_n(\mathbf{r}_\perp, z)}{\partial z} + \frac{C_n(z)}{2k_2} (1 + \alpha') \nabla_\perp^2 f_n(\mathbf{r}_\perp, z).$$

如果 $k_2 \approx k_1$, 则 $\alpha' \ll 1$. 在考虑到(8.4-12)式后, (8.4-16)式变为

$$\sum_{n=0}^{\infty} \left\{ \frac{dC_n(z)}{dz} f_n(\mathbf{r}_\perp, z) - \frac{1}{2} AB^2 |f_0(\mathbf{r}_\perp, z)|^2 C_n(z) f_n(\mathbf{r}_\perp, z) \right\} = 0. \quad (8.4-17)$$

两边同乘 $f_m^*(\mathbf{r}_\perp, z)$, 然后对 \mathbf{r}_\perp 进行积分, 并利用(8.4-13)式, 得到

$$\frac{dC_m(z)}{dz} - \frac{1}{2} \sum_{n=0}^{\infty} g_{mn}(z) C_n(z) = 0, \quad (8.4-18)$$

式中

$$g_{mn}(z) = AB^2 \iint d^2 \mathbf{r}_\perp |f_0(\mathbf{r}_\perp, z)|^2 f_n(\mathbf{r}_\perp, z) f_m^*(\mathbf{r}_\perp, z). \quad (8.4-19)$$

由此可见, 如果 $|f_0(\mathbf{r}_\perp, z)|^2$ 随 \mathbf{r}_\perp 起伏剧烈, 则只有

$$g_{00}(z) = AB^2 \iint d^2 \mathbf{r}_\perp |f_0(\mathbf{r}_\perp, z)|^4 \quad (8.4-20)$$

最大, 其它的 $g_{mn}(z)$ 因 $|f_0(\mathbf{r}_\perp, z)|^2$ 与 $f_n^*(\mathbf{r}_\perp, z)$ 、 $f_m(\mathbf{r}_\perp, z)$ 函数不能很好地重叠, 其值很小。在这种情况下, $C_0(z)$ 随距离 z 增加的速度比其它系数 $C_n(z)$ 都大, 结果, 在经过一段距离后, $E_1(\mathbf{r}_\perp, z)$ 中仅含有 $C_0(z)$ 项, 即

$$E_1(\mathbf{r}_\perp, z) = \sum_{n=0}^{\infty} C_n(z) f_n(\mathbf{r}_\perp, z) \approx C_0(z) f_0(\mathbf{r}_\perp, z) = \frac{C_0(z)}{B^*} E_0^*(\mathbf{r}_\perp, z). \quad (8.4-21)$$

因此, 背向散射光场(空间分量)是入射光场的复共轭, 也就是说, 背向SBS的斯托克斯光是入射光的相位共轭光。

如果 $|f_0(\mathbf{r}_\perp, z)|^2$ 随 \mathbf{r}_\perp 起伏不剧烈, 则 g_{00} 与其它的 g_{mn} 可能有同样的数量级。这样, 在背向散射光中, 既有 C_0 项(入射光的相位共轭光), 也含有 C_n 项(非相位共轭光)。因此, 在该情况下的背向散射光不是入射光的理想相位共轭光, 所以不能用来修正波前畸变。为了解决这个问题, 可以在非线性介质前面, 人为地加一个象差介质, 使入射光场随 \mathbf{r}_\perp 起伏严重, 从而保证背向散射光是入射光的理想相位共轭光, 以达到修正波前畸变之目的。

对于SBS产生相位共轭光的物理过程, 可以用下面的模型理解: 在SBS过程中, 当入射信号光强度超过阈值时, 就同时产生背向散射光和受激声波, 受激声波与入射光同向传播, 可以将其视为一个移动着的反射镜, 入射光在它的作用下将产生一个有多卜勒频移的背向散射光, 在布里渊增益最大的条件下, 入射到介质上的畸变光波产生了有相同畸变波前的声波, 因此可将这个反射镜视为可变形反射镜, 其表面

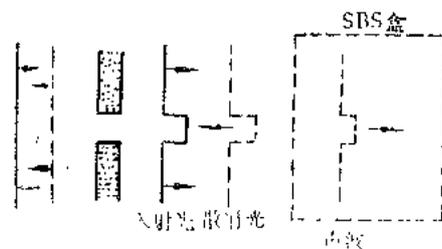


图 8-29 SRS过程产生相位共轭波及修正波前畸变的物理模型

恰使得反射光(即散射光)的波前与入射光的波前相同,所以反射光即为入射光的相位共轭光,这可形象地由图8-29说明。

如果我们将SBS相位共轭与DFWM相位共轭进行比较,就会看出:

(a) SBS相位共轭存在一个阈值强度,只有入射光强度超过该值时,才能产生背向相位共轭光(及受激声波),而DFWM相位共轭过程没有阈值限制。

(b) DFWM 相位共轭过程要求有两个独立的泵浦光,而SBS过程则无需额外的泵浦,其入射信号光本身兼起泵浦光的作用,所以它的结构更简单些。

(c) SBS 过程产生的背向相位共轭光相对入射光而言有一个斯托克斯频移,而DFWM过程产生的相位共轭光频率与入射光相同。显然,这种情况使SBS相位共轭的应用受到了限制。

(d) DFWM相位共轭反射系数可以超过1,而SBS相位共轭反射系数仅能接近于1。现在所进行的SBS实验的反射系数只达到50%~70%^[27]。

五、光子回波光学相位共轭技术

光子回波现象^[28]是强短光脉冲与共振介质的瞬态相干作用现象。它与稳态过程不同,要求光和共振介质的作用时间非常短,具体地讲,产生光子回波的条件是:入射光脉冲的脉冲宽度 $\Delta\tau < T_1, T_2^*$,入射到介质上的光脉冲之间的时间间隔 τ 满足 $T_2^* \leq \tau < T_1, T_2$ 。这里的 T_1, T_2, T_2^* 分别是原子系统的纵向弛豫时间、横向非可逆弛豫时间(等于均匀线宽的倒数,即 $T_2 = 1/(\Delta\nu)$)和横向可逆弛豫时间(等于非均匀线宽的倒数,即 $T_2^* = 1/(\Delta\nu)_{\text{非均}}$)。

图8-30是产生光子回波的结构示意图。在不同时刻、沿不同方向入射到光子回波介质上的光脉冲引起介质的共振吸收,使介质的原子(或分子)系统处于超辐射状态,这些原子(或分子)系统的相干自发辐射,就形成了光子回波。

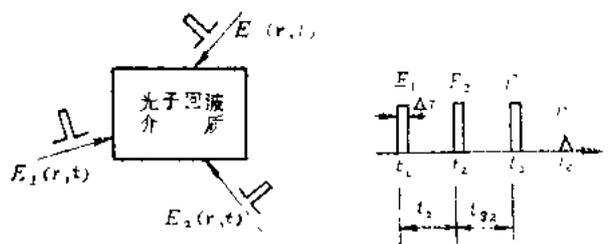


图 8-30 产生光子回波的结构示意图

由于光脉冲激励而处于超辐射状态的原子(或分子)系统既能“记忆”激励脉冲的时间分布相位,又能“记忆”其空间分布相位,所以它们所产生的光子回波可以反映出激励脉冲的特性,这正是光子回波光学相位共轭的基础。

在光学相位共轭技术的研究过程中,希尔(Hleer)^[29]等在利用与时间有关的密度矩阵理论研究光子回波聚焦问题时,分析了用光子回波进行波前修正的可能性;弗杰蒂(Fujite)等^[30]对固体和气体二能级系统中可能存在的各种三脉冲光子回波的产生条件进行了讨论;夏伦(Shiren)^[31]则直接利用DFWM相位共轭装置,从理论上证明了三脉冲回波中的背向相位共轭光子回波的产生。下面,我们以二能级静止原子系统为例,讨论光子回波现象的相位共轭特性。

假设在 t_1 时刻入射到介质中 r 处的光场为

$$E_1(r,t) = A_1(r,t) \exp\{-i[\omega t - \mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{r} - \varphi_1(r)]\} + C.c. \quad (8.5-1)$$

其中振幅 $A_i(\mathbf{r}, t)$ 是随着时间和空间慢变化的实函数, 相位信息存在于 $\varphi_i(\mathbf{r})$ 之中。光场与原子系统处于共振作用 ($\omega \approx \omega_0$)。在光场作用下, 原子的波函数满足薛定谔方程

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \phi(\mathbf{r}, t) = (\hat{H}_0 + \hat{H}') \phi(\mathbf{r}, t), \quad (8.5-2)$$

式中 \hat{H}_0 是无外场作用时的哈密顿算符, \hat{H}' 是光场引起的微扰哈密顿算符, 在只考虑偶极近似的情况下, 有

$$\hat{H}' = -\mathbf{p} \cdot \mathbf{E}_i = -\mathbf{p} \cdot \{A_i(\mathbf{r}, t) \exp[-i(\omega t - \mathbf{k}_i \cdot \mathbf{r} - \varphi_i(\mathbf{r}))] + \text{C.C.}\}. \quad (8.5-3)$$

为了求解某时刻原子系统的波函数, 我们在相互作用表象中进行讨论。由量子力学知道, 系统在薛定谔表象与相互作用表象中的态矢和微扰哈密顿满足下面的关系:

$$|\phi(t)\rangle = \exp\left[-i \frac{\hat{H}_0}{\hbar} (t - t_i)\right] |\phi_i(t)\rangle, \quad (8.5-4)$$

$$\hat{H}' = \exp\left[-i \frac{\hat{H}_0}{\hbar} (t - t_i)\right] \hat{H}'_i \exp\left[i \frac{\hat{H}_0}{\hbar} (t - t_i)\right], \quad (8.5-5)$$

将上边二式代入(8.5-2)式中, 就得到相互作用表象中的态矢满足的方程

$$\frac{\partial}{\partial t} |\phi_i(t)\rangle = -\frac{i}{\hbar} \hat{H}'_i(t) |\phi_i(t)\rangle. \quad (8.5-6)$$

令

$$|\phi_i(t)\rangle = a(t) |a\rangle + b(t) |b\rangle, \quad (8.5-7)$$

其中 $|a\rangle$ 、 $|b\rangle$ 分别为二能级系统上下能级的本征态, $a(t)$ 、 $b(t)$ 分别为原子处于上下能级的几率振幅, 将其代入(8.5-6)式, 并考虑(8.5-5)式关系, 在注意到 $\hat{H}_0 |a\rangle = \hbar\omega_a |a\rangle$, $\hat{H}_0 |b\rangle = \hbar\omega_b |b\rangle$ 后, 即得

$$\begin{aligned} \frac{da(t)}{dt} |a\rangle + \frac{db(t)}{dt} |b\rangle = & -\frac{i}{\hbar} \exp\left[i \frac{\hat{H}_0}{\hbar} (t - t_i)\right] \exp[-i\omega_a(t - t_i)] \times a(t) \hat{H}' |a\rangle \\ & - \frac{i}{\hbar} \exp\left[i \frac{\hat{H}_0}{\hbar} (t - t_i)\right] \exp[-i\omega_b(t - t_i)] b(t) \hat{H}' |b\rangle. \end{aligned}$$

如果分别用 $\langle a|$ 和 $\langle b|$ 左乘上式, 并注意到 $\langle a| \hat{H}' |a\rangle = \langle b| \hat{H}' |b\rangle = 0$, 可以得到

$$\left. \begin{aligned} \frac{da(t)}{dt} &= -ib(t) \exp[i\omega_0(t - t_i)] H'_{ab}, \\ \frac{db(t)}{dt} &= -ia(t) \exp[-i\omega_0(t - t_i)] H'_{ba}. \end{aligned} \right\} \quad (8.5-8)$$

式中 $\omega_0 = \omega_a - \omega_b$ 。在考虑到旋转波近似的条件下, 有

$$\left. \begin{aligned} H'_{ab} &= \langle a| \hat{H}' |b\rangle = -\mathbf{p}_{ab} \cdot \mathbf{A}_i(\mathbf{r}, t) \exp\{i[\varphi_i(\mathbf{r}) + \mathbf{k}_i \cdot \mathbf{r}] \exp(-i\omega t)\}, \\ H'_{ba} &= \langle b| \hat{H}' |a\rangle = -\mathbf{p}_{ba} \cdot \mathbf{A}_i(\mathbf{r}, t) \exp\{-i[\varphi_i(\mathbf{r}) + \mathbf{k}_i \cdot \mathbf{r}] \exp(i\omega t)\}. \end{aligned} \right\} \quad (8.5-9)$$

将(8.5-9)式代入(8.5-8)式中, 并注意到 $\omega \approx \omega_0$, $H'_{ab} = H'_{ba}$, $\mathbf{p}_{ab}^* = \mathbf{p}_{ba} = \mathbf{p}$, 得

$$\left. \begin{aligned} \frac{da(t)}{dt} &= \frac{i}{\hbar} \mathbf{p} \cdot \mathbf{A}_i(\mathbf{r}, t) b(t) \exp\{i[\varphi_i(\mathbf{r}) + \mathbf{k}_i \cdot \mathbf{r} - \omega t_i]\}, \\ \frac{db(t)}{dt} &= -\frac{i}{\hbar} \mathbf{p} \cdot \mathbf{A}_i(\mathbf{r}, t) a(t) \exp\{-i[\varphi_i(\mathbf{r}) + \mathbf{k}_i \cdot \mathbf{r} - \omega t_i]\}. \end{aligned} \right\} \quad (8.5-10)$$

求解上面方程，得到

$$\begin{aligned} a(t) &= a(t_i) \cos \frac{\theta_i}{2} + i b(t_i) \sin \frac{\theta_i}{2} \exp\{i[\varphi_i(\mathbf{r}) + \mathbf{k}_i \cdot \mathbf{r} - \omega t_i]\}, \\ b(t) &= i a(t_i) \sin \frac{\theta_i}{2} \exp\{-i[\varphi_i(\mathbf{r}) + \mathbf{k}_i \cdot \mathbf{r} - \omega t_i]\} + b(t_i) \cos \frac{\theta_i}{2}. \end{aligned} \quad (8.5-11)$$

式中， $a(t_i)$ 、 $b(t_i)$ 为 t_i 时刻的几率振幅值， θ_i 是光脉冲面积，其定义为

$$\theta_i(\mathbf{r}) = \frac{2}{\hbar} \int_{-\infty}^{\infty} \mathbf{p} \cdot \mathbf{A}_i(\mathbf{r}, t') dt'. \quad (8.5-12)$$

将 (8.5-11) 式代入 (8.5-7) 式中，就得到在相互作用表象中的态矢为

$$\begin{aligned} |\phi_i(t)\rangle &= a(t_i) \cos(\theta_i/2) |a\rangle + i b(t_i) \sin(\theta_i/2) \exp\{i[\varphi_i(\mathbf{r}) + \mathbf{k}_i \cdot \mathbf{r} - \omega t_i]\} |a\rangle \\ &\quad + i a(t_i) \sin(\theta_i/2) \exp\{-i[\varphi_i(\mathbf{r}) + \mathbf{k}_i \cdot \mathbf{r} - \omega t_i]\} |b\rangle + b(t_i) \cos(\theta_i/2) |b\rangle. \end{aligned} \quad (8.5-13)$$

如果我们设 \hat{U}_i 为时间演化算符，则根据量子力学知识，有

$$|\phi_i(t)\rangle = \hat{U}_i |\phi_i(t_i)\rangle. \quad (8.5-14)$$

其中 $|\phi_i(t_i)\rangle = a(t_i) |a\rangle + b(t_i) |b\rangle$ 。将 (8.5-13) 式与 (8.5-14) 式进行比较，可得

$$\hat{U}_i = \begin{bmatrix} \cos(\theta_i/2) & i \sin(\theta_i/2) \exp\{i[\varphi_i(\mathbf{r}) + \mathbf{k}_i \cdot \mathbf{r} - \omega t_i]\} \\ i \sin(\theta_i/2) \exp\{-i[\varphi_i(\mathbf{r}) + \mathbf{k}_i \cdot \mathbf{r} - \omega t_i]\} & \cos(\theta_i/2) \end{bmatrix}. \quad (8.5-15)$$

再考虑到 (8.5-4) 式的关系，应有

$$|\phi_i(t_i)\rangle = |\phi(t_i)\rangle.$$

因此，在薛定谔表象中 t 时刻的态矢可表示为

$$|\phi(t)\rangle = \exp\left[-i \frac{\hat{H}_0}{\hbar} (t - t_i)\right] \hat{U}_i |\phi(t_i)\rangle, \quad (8.5-16)$$

相应的波函数为

$$\phi(\mathbf{r}, t) = \exp\left[-i \frac{\hat{H}_0}{\hbar} (t - t_i)\right] \hat{U}_i \phi(\mathbf{r}, t_i). \quad (8.5-17)$$

由 (8.5-17) 式和 (8.5-15) 式可见，因为在 \hat{U}_i 的非对角元素中包含了入射光场的相位信息，所以在 t 时刻的状态中便“记忆”了入射光场的相位信息，从而在入射光场的激励下，在原子由起始态跃迁到终态的几率振幅中也便“记忆”了入射光场的相位信息。

下面，分别讨论二脉冲回波和三脉冲回波情况。

1. 二脉冲回波

如果入射到介质上的两个光脉冲的空间、时间关系如图8-31所示，并且假设在 $t = t_1$ 入射第一个脉冲时，介质中 \mathbf{r} 处的原子处在低能级上，即有

$$\left. \begin{aligned} a(\mathbf{r}, t = t_1) &= 0, \\ b(\mathbf{r}, t = t_1) &= 1, \end{aligned} \right\} \quad (8.5-18)$$

则在 $t > t_2$ 时刻的原子波函数为

$$\phi(\mathbf{r}, t) = \exp\left[-i \frac{\hat{H}_0}{\hbar} (t - t_2)\right] \hat{U}_2(\mathbf{r}) \exp\left[-i \frac{\hat{H}_0}{\hbar} (t_2 - t_1)\right] \hat{U}_1(\mathbf{r}) \phi(\mathbf{r}, t_1). \quad (8.5-19)$$

相应于 t 时刻的原子感应电偶极矩是电偶极矩算符的期望值

$$\begin{aligned} \langle p \rangle &= \langle \phi(t) | p | \phi(t) \rangle \\ &= a^*(t)b(t)p_{ab} + b^*(t)a(t)p_{ba} \end{aligned}$$

在某一时刻, 感应电偶极矩最大, 相应产生的辐射光场也最大, 这便是光子回波。

在计算原子感应电偶极矩时, 包含有四个指数项, 其中对光子回波有贡献的是

$$\begin{aligned} \langle p \rangle &= -i \frac{p_{ba}}{2} \sin \theta_1(\mathbf{r}) \sin^2[\theta_2(\mathbf{r})/2] \\ &\times \exp\{i[2\varphi_2(\mathbf{r}) - \varphi_1(\mathbf{r}) + (2\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1) \cdot \mathbf{r} \\ &- \omega t]\} \exp[-i\Delta\omega(t - 2t_2 + t_1)] + C.C. \end{aligned} \quad (8.5-20)$$

式中, $\Delta\omega = \omega_0 - \omega$ 。由该式可见, 当入射光脉冲面积 $\theta_1(\mathbf{r}) = \pi/2$, $\theta_2(\mathbf{r}) = \pi$ 时, 感应电偶极矩 $\langle p \rangle$ 最大。

为了求极化强度, 应对 \mathbf{r} 处所有原子的感应电偶极矩求和。考虑到在原子气体中, 由于原子热运动引起多卜勒频移; 在固体中, 由于本地晶格场引起斯塔克频移, 从而使 \mathbf{r} 处的各原子共振频率有一个非均匀分布, 因此, (8.5-20) 式中的 $\Delta\omega$ 也有一非均匀分布, 可以用连续分布函数 $g(\Delta\omega)$ 描述。所以在求极化强度时, 应对 \mathbf{r} 处所有 N 个原子在 $g(\Delta\omega)$ 上平均求和。即

$$\begin{aligned} P_e &= -i \frac{N p_{ba}}{2} \sin \theta_1(\mathbf{r}) \sin^2[\theta_2(\mathbf{r})/2] \exp\{i[2\varphi_2(\mathbf{r}) - \varphi_1(\mathbf{r}) + (2\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1) \cdot \mathbf{r} \\ &- \omega t]\} \int_{-\infty}^{\infty} \exp[-i\Delta\omega(t - 2t_2 + t_1)] g(\Delta\omega) d(\Delta\omega) + C.C. \end{aligned} \quad (8.5-21)$$

若令

$$G(t) = \int_{-\infty}^{\infty} \exp(-i\Delta\omega t) g(\Delta\omega) d(\Delta\omega), \quad (8.5-22)$$

则光子回波的感应极化强度为

$$\begin{aligned} P_e &= -i \frac{N p_{ba}}{2} \sin \theta_1(\mathbf{r}) \sin^2[\theta_2(\mathbf{r})/2] \exp\{i[2\varphi_2(\mathbf{r}) - \varphi_1(\mathbf{r}) + (2\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1) \cdot \mathbf{r} \\ &- \omega t]\} G(t - 2t_2 + t_1) + C.C. \end{aligned} \quad (8.5-23)$$

考虑到 (8.5-22) 式是各原子共振频率的非均匀分布函数的傅里叶变换, 所以, (8.5-23) 式中的 $G(t - 2t_2 + t_1)$ 因子除了 $t = 2t_2 - t_1$ 外, 其它大于 t_1 时刻的值都可忽略。

如果我们需要考虑光在介质中的传播时间, 并且假设第一个脉冲在 $t = 0$ 时刻入射到介质的 $\mathbf{r} = 0$ 处, 则这两个光脉冲到达 \mathbf{r} 处的时间为

$$\left. \begin{aligned} t_1 &= \mathbf{n}_1 \cdot \mathbf{r} / c, \\ t_2 &= t_{21} + (\mathbf{n}_2 \cdot \mathbf{r} / c) \end{aligned} \right\} \quad (8.5-24)$$

式中, \mathbf{n}_1 、 \mathbf{n}_2 分别是第一个脉冲和第二个脉冲波矢方向的单位矢量, t_{21} 是两个光脉冲的

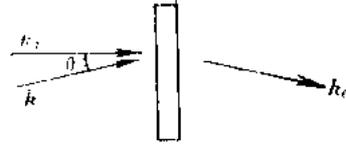


图 8-31 二脉冲回波结构示意图

时间间隔。由此可见， r 处的最大极化强度发生在

$$t = 2t_{21} + [(2n_2 - n_1) \cdot r/c] \quad (8.5-25)$$

时刻。根据电动力学知识，介质中 r 处的极化强度在介质外 R' 处、 t 时刻的辐射场为

$$E_e(R', t) = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \nabla \times \nabla \times \int \frac{[P_e(r, t')]}{|R' - r|} d^3r. \quad (8.5-26)$$

式中的积分是对整个介质进行的，在计算中必须要考虑光从 r 到 R' 处传播时间 $(t - t') = |R' - r|/c$ 的影响。将(8.5-23)式代入上式，并考虑到 $R' \gg r$ ，便得到

$$E_e(R', t) \propto \int d^3r G \left[t - \frac{R'}{c} - 2t_{21} + \frac{r}{c} \cdot (n_e - 2n_2 - n_1) \right] \sin\theta_1(r) \sin^2[\theta_2(r)/2] \\ \times \exp \left\{ i \left[2\varphi_2(r) - \varphi_1(r) + (2k_2 - k_1 - k_e) \cdot r - \omega \left(t - \frac{R'}{c} \right) \right] \right\} + C.C. \quad (8.5-27)$$

式中， $n_e = \frac{R'}{R'} = \frac{k_e}{k_e}$ 。显然，在 R' 处，当满足

$$t = 2t_{21} + \frac{R'}{c}, \quad (8.5-28)$$

$$n_e = 2n_2 - n_1 \quad (8.5-29)$$

时，出现光子回波峰。这里的(8.5-29)式类似于参量过程中的相位匹配条件。由于我们讨论的光脉冲频率相同，所以，只有 $k_e = k_1 = k_2$ （即同向传播）时才满足要求。但是，在实际工作中，为了便于将光子回波从入射脉冲中区分出来，经常采用图8-31所示的结构，在 k_1 和 k_2 间有一个小的夹角 θ ，此时光子回波将沿着与 k_1 成 2θ 角度方向传播，这显然不满足相位匹配条件。所以，随着样品厚度的增加，或者随着 θ 的增大，回波振幅将大大减小。

我们进一步考察一下(8.5-27)式可以发现，如果第二个脉冲是均匀平面波，第一个脉冲振幅的大小无空间变化，但相位有空间变化（例如一个平面波通过相位畸变介质就属这种情况），则所产生的光子回波是第一个脉冲的前向相位共轭波。如果脉冲面积很小， $\sin\theta_1(r) \approx \theta_1(r)$ ，则即使 E_1 的振幅大小有空间变化，所产生的光子回波仍是 E_1 的前向相位共轭波。于是，如图8-32所示，如果第一个脉冲是曲率为正的发散波，第二个脉冲是均匀平面波，则光子回波是曲率为负的会聚波。

在二脉冲回波的情况中，如果第二个脉冲是驻波，则会产生背向光子回波。

假设驻波脉冲场的表示式为

$$E_2(r, t) = A_2(t) \cos(k_2 \cdot r) \exp[i(\varphi_2 - \omega t)] + C.C., \quad (8.5-30)$$

其振幅 $A_2(t)$ 和相位 φ_2 在空间上均匀不变，并且该脉冲同时作用于整个介质，在这种情况下，脉冲面积为

$$D_2(r) = D_{20} \cos(k_2 \cdot r) = \frac{2}{\hbar} \int p \cdot A_2(t') \cos(k_2 \cdot r) dt'. \quad (8.5-31)$$

进行与前面同样的分析，可以得到回波脉冲场为

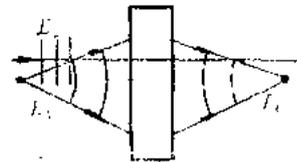


图 8-32 前向光子回波的聚焦

$$E_e(R', t) \propto \int d^3r G \left(t - \frac{R'}{c} - 2t_{21} + \frac{\mathbf{r}}{c} \cdot (\mathbf{n}_e + \mathbf{n}_1) \right) \sin\theta_1(\mathbf{r}) \sin^2[\theta_2(\mathbf{r})/2] \\ \times \exp\left\{ i2\varphi_2 - \varphi_1(\mathbf{r}) - (\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_e) \cdot \mathbf{r} - \omega \left(t - \frac{R'}{c} \right) \right\} + \text{C.C.} \quad (8.5-32)$$

为了观察辐射场与 \mathbf{k}_2 的关系, 我们将 $\sin^2[\theta_2(\mathbf{r})/2]$ 展成级数

$$\sin^2 \left[\frac{1}{2} \theta_{20} \cos(\mathbf{k}_2 \cdot \mathbf{r}) \right] = \frac{1}{2} \left[1 - \sum_{m=-\infty}^{\infty} (-1)^m J_{2m}(\theta_{20}) \exp(i2m \mathbf{k}_2 \cdot \mathbf{r}) \right], \quad (8.5-33)$$

其中 $J_{2m}(\theta_{20})$ 是贝塞尔函数。显然在 $m=0$ 时, 若

$$\left. \begin{aligned} t &= 2t_{21} + \frac{R'}{c}, \\ \mathbf{n}_e &= -\mathbf{n}_1, \end{aligned} \right\} \quad (8.5-34)$$

则将产生背向光子回波, 其振幅正比于 $[1 - J_0(\theta_{20})]$, 波矢 $\mathbf{k}_e = -\mathbf{k}_1$ 。如果 $\theta_1(\mathbf{r})$ 很小, $\sin\theta_1(\mathbf{r}) \approx \theta_1(\mathbf{r})$, 则背向光子回波是 $E_1(\mathbf{r}, t)$ 的相位共轭波。

由(8.5-32)、(8.5-33)式可见, 如果 $\mathbf{k}_2 // \mathbf{k}_1$, 在 $m=+1$ 时, $\mathbf{k}_e = 2\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1$, 这相应于前向光子回波。此时, 由于 $G\left[t - \frac{R'}{c} - 2t_{21} + \frac{\mathbf{r}}{c} \cdot (\mathbf{n}_e + \mathbf{n}_1)\right]$ 中的 $(\mathbf{n}_e + \mathbf{n}_1) \neq 0$, 所以 G 值很小, 因此, 回波振幅很小。

2. 三脉冲回波

如图8-30所示, 在 t_1 、 t_2 、 t_3 时刻分别入射三个脉冲 $E_1(\mathbf{r}, t)$ 、 $E_2(\mathbf{r}, t)$ 、 $E_3(\mathbf{r}, t)$, 则在 $t > t_3$ 时刻的原子波函数为

$$\phi(\mathbf{r}, t) = \exp\left[-i \frac{\hat{H}_e}{\hbar} (t - t_3)\right] \hat{U}_3(\mathbf{r}) \exp\left[-i \frac{\hat{H}_e}{\hbar} (t_3 - t_2)\right] \hat{U}_2(\mathbf{r}) \\ \times \exp\left[-i \frac{\hat{H}_e}{\hbar} (t_2 - t_1)\right] \hat{U}_1(\mathbf{r}) \phi(\mathbf{r}, t_1). \quad (8.5-35)$$

假设 $t = t_1$ 时刻原子处于低态 $|b\rangle$, 则 $t > t_3$ 时刻对光子回波有贡献的感应偶极矩为

$$\langle p \rangle = -i \frac{P_{ba}}{8} \sin\theta_1(\mathbf{r}) \sin\theta_2(\mathbf{r}) \sin\theta_3(\mathbf{r}) \\ \times \{ \exp\{i[\varphi_3(\mathbf{r}) + \varphi_2(\mathbf{r}) - \varphi_1(\mathbf{r}) + (\mathbf{k}_3 + \mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1) \cdot \mathbf{r} \\ - \omega t]\} \exp[-i\Delta\omega(t - t_3 - t_2 + t_1)] \\ + \exp\{i[\varphi_3(\mathbf{r}) + \varphi_1(\mathbf{r}) - \varphi_2(\mathbf{r}) + (\mathbf{k}_3 + \mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2) \cdot \mathbf{r} \\ - \omega t]\} \exp[-i\Delta\omega(t - t_3 + t_2 - t_1)] \} + \text{C.C.} \quad (8.5-36)$$

因此, \mathbf{r} 处辐射光子回波的极化强度为

$$P_e = -i \frac{N P_{ba}}{8} \sin\theta_1(\mathbf{r}) \sin\theta_2(\mathbf{r}) \sin\theta_3(\mathbf{r}) \{ \exp[i(\varphi_3(\mathbf{r}) + \varphi_2(\mathbf{r}) - \varphi_1(\mathbf{r}) \\ + (\mathbf{k}_3 + \mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1) \cdot \mathbf{r} - \omega t)] G(t - t_3 - t_2 + t_1) + \exp[i(\varphi_3(\mathbf{r}) + \varphi_1(\mathbf{r}) \\ - \varphi_2(\mathbf{r}) + (\mathbf{k}_3 + \mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2) \cdot \mathbf{r} - \omega t)] G(t - t_3 + t_2 - t_1) \} + \text{C.C.} \quad (8.5-37)$$

第一项含有 $G(t - t_3 - t_2 + t_1)$ 因子, 它在 $t = t_3 + (t_3 - t_1)$ 时刻, 即在第三个脉冲后再经

过前两个脉冲间的时间间隔达到最大值。第二项含有 $G(t - t_3 + t_3 - t_1)$ 因子，它在 $t = t_3 - (t_2 - t_1)$ 时刻达到最大，这个时刻处在第三个脉冲之前，所以不可能辐射回波。但是，弗杰蒂等人^[30]指出，在气体介质中，考虑到原子的运动时，正是这一项对背向光子回波有贡献。

类似 (8.5-24) 式的表示方法，将 t_3 表示为

$$t_3 = t_{31} + \mathbf{n}_3 \cdot \mathbf{r} / c \quad (8.5-38)$$

式中 t_{31} 是第一、三两个脉冲间的时间间隔。当第二、三两个脉冲是均匀平面波时，光子回波场为

$$E_e(\mathbf{R}', t) \propto \int d^3r \sin\theta_1(\mathbf{r}) \exp \left\{ i \left[-\varphi_1(\mathbf{r}) + (\mathbf{k}_3 + \mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_e) \cdot \mathbf{r} - \omega \left(t - \frac{R'}{c} \right) \right] \right\} G \left[t - t_{31} - t_{21} - \frac{R'}{c} + \frac{\mathbf{r}}{c} \cdot (\mathbf{n}_e - \mathbf{n}_3 - \mathbf{n}_2 + \mathbf{n}_1) \right] + \text{C.C.} \quad (8.5-39)$$

在 \mathbf{R}' 处观察到回波的条件是

$$\left. \begin{aligned} t &= t_{31} + t_{21} + (R'/c), \\ \mathbf{n}_e &= \mathbf{n}_3 + \mathbf{n}_2 - \mathbf{n}_1. \end{aligned} \right\} \quad (8.5-40)$$

若 $\mathbf{k}_1 = \mathbf{k}_2 = \mathbf{k}_3$ ，将观察到前向光子回波；若 $\mathbf{k}_2 = -\mathbf{k}_3$ ，则因有 $\mathbf{k}_e = -\mathbf{k}_1$ ，将观察到背向光子回波。如果 $\theta_1(\mathbf{r})$ 很小，该背向光子回波是第一个脉冲的背向相位共轭波。这两种情形如图 8-33 所示。

综上所述，我们可以得到如下结论：在三脉冲回波中，如果满足 $\mathbf{k}_e = 2\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1$ ，在三脉冲回波中，如果满足 $\mathbf{k}_e = \mathbf{k}_3 + \mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1$ ，则将产生前向光子回波。相应的这些相位匹配条件只有各个光波波矢都相等时才能严格满足，这要求第一个脉冲也必须是平面波。如果第一个脉冲的复振幅有空间变化，可类似前面三波、四波混频中的处理方法，即将其分解为不同波矢的平面波迭加。但是因为在此所包含的平面波分量中，只有一个能严格满足相位匹配条件，因此将降低整个光子回波相位共轭的质量。可是在三脉冲背向光子回波的情况下，由于自动满足相位匹配条件，只要 $\mathbf{k}_2 = -\mathbf{k}_3$ ，就自然有 $\mathbf{k}_e = -\mathbf{k}_1$ ，所以，即使 E_1 的复振幅有空间分布，仍可产生理想的相位共轭光子回波。

对于光子回波过程，也可以用实时全息过程描述：例如在三脉冲回波中，前两个脉冲通过介质作用，形成了空间光栅，在第三个脉冲入射时，将衍射产生第四个光脉冲，尽管这三个人射脉冲并不同时存在，但由于介质的“记忆”作用，仍可产生衍射光，并且它是第一个脉冲的相位共轭波。

可见，光子回波过程与三波、四波混频过程相比，除了前者的各个光脉冲可以不同时存在，而后者要求同时存在外，其它性质很类似。

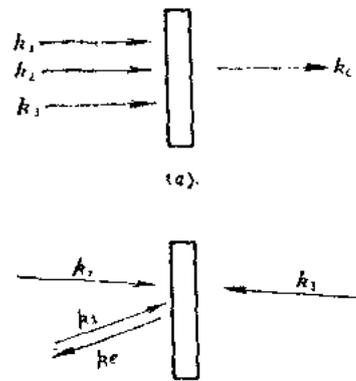


图 8-33 三脉冲回波结构示意图
(a) 前向光子回波；
(b) 背向光子回波

六、光学相位共轭技术实验

在光学相位共轭技术的发展过程中，人们除了进行深入的理论研究外，还在不同的波长上，利用不同的非线性介质，以不同的方式对各种光学相位共轭技术进行了大量的实验研究。表8-1综述了至今进行的主要实验结果^[23]。在这里，我们只简单地介绍几种典型的实验装置和结果。

表 8-1 典型实验表

波 长 激 光		工 作 方 式	非线性作用	非线性介质	主 要 结 果 (R, I, L等)
10 μ m	CO ₂	脉冲	DFWM	SF ₆	37%, 200kW/cm ² , 2cm
		脉冲	DFWM	HgCdTe	10%, 100kW/cm ² , 0.3mm
		脉冲	DFWM	CO ₂ (反转)	0.5%, 腔内
		脉冲	DFWM	Ge	25%, 10MW/cm ² , 15cm, 腔内
		脉冲	DFWM	KCl:ReO ₄	窄带响应
		脉冲	DFWM	Ge(p型)	800%, 100MW/cm ² , 3mm
		连续	DFWM	SF ₆	≈0.19%, 7W/cm ² , 10cm
		连续	DFWM	NgCdTe	1.2%, 10W/cm ² , 0.36mm, T=7.7K
5.3 μ m	CO	连续	DFWM	InSb	1%, 13mW, T=5K
3.8 μ m	DF	脉冲	DFWM	Ge	多波长非线性光学相位共轭
1.315 μ m	C ₃ F ₄ I	脉冲	SBS	SF ₆	30%~80%, 0.5m
1.06 μ m	Nd:YAG	脉冲	DFWM	Si	180%, 6MW/cm ² , 1mm
		脉冲	SBS	玻璃, CS ₂ , CH ₄	10%~90%, 锥形波导
		脉冲	DFWM	Nd:YAG	≈0.5%, 腔内并反转
		脉冲	3TWM	甲酸锂	修正差
		脉冲	DFWM	BDN(染料)	600%, 340MW/cm ²
		脉冲	DFWM	CdTe	
		脉冲	FWM	镀膜玻璃	10%
		脉冲	DFWM	Rb蒸汽	0.3%, 2kW/cm ² , 4mm
794.8nm	染料	脉冲	DFWM	Rb蒸汽	0.3%, 2kW/cm ² , 4mm
694.3nm	红宝石	脉冲	SBS	CS ₂	10%~90%
		脉冲	SBS	CH ₄	
		脉冲	DFWM	隐花青	30%
		脉冲	DFWM	CdS, CdSe, 玻璃	≈5%
		脉冲	DFWM	CS ₂	>200%, 10MW/cm ² , 40cm, 偏振识别
		脉冲	DFWM	MBBA	>100%
		脉冲	D ₆ WM	ZnSe	200%, 60MW/cm ² , 双光子
		脉冲	SBS/FWM	CS ₂	>100%
632.8nm	He-Ne	连续	DFWM	BaTiO ₃	>100%, 1mW, 3mm
		连续	DFWM	环氧树脂	1mW
~805.0nm	染料	脉冲	DFWM	DODCI	400%, 500MW/cm ² , 激光器

接下页

续表

波 长	激 光	工 作 方 式	非线性作用	非线性介质	主 要 结 果 (R, I, L 等)
589.0nm	染料	连续	DFWM	钠蒸汽	150%, 窄带
		脉冲	DFWM	钠蒸汽	10 ⁴ %, 窄带
532.0nm	Nd:YAG	脉冲	DFWM	CdS、CdSe玻璃	≈30%
		脉冲	DFWM	碘蒸汽	≈0.1%
		脉冲	DFWM	若丹明6G	>100%, 1mm
		脉冲	DFWM	若丹明B	≈10%
		脉冲	超辐射	染料	
		脉冲	DFWM	CS ₂	0.2%, 16MW/cm ² , 4mm
510.0nm	染料	脉冲	DFWM	CdS、CdSe玻璃	≈1%
488.0nm 或 514.5nm	Ar ⁺	连续	DFWM	红宝石	≈0.2%
		连续	DFWM	BSO	≈1%, 慢, 光致折射
		连续	DFWM	BaTiO ₃	>100%, 慢
		连续	DFWM	液晶	≈0.1%, 慢
		连续	DFWM	CS ₂	≈0.5%, 波导, 6m, $d=4\mu\text{m}$, 6m W
		连续	DFWM	气悬体	≈0.5%, 电致伸缩, 慢
441.6nm	HeCd	连续	DFWM	液晶	1%, 10 ⁴ W, 慢
413.1nm	Kr ⁺	连续	DFWM	LiNbO ₃	慢
351.1nm	XeF	脉冲	SBS/SRS	乙醇	60%~70%
266.0nm	四倍频	脉冲	DFWM	CS ₂ 混合物	0.1%, 40MW/cm ² , 1mm
	Nd:YAG				
249.6nm	KrF	脉冲	DFWM	若丹明6G	300%, 热光栅
			DFWM/SBS	乙醇/己烷	≈0.1%

图8-34给出了两种DFWM相位共轭的实验装置。这两种装置的主要差别在于两个彼此反向传播的泵浦波的产生方式不同。图中产生延迟时间 T_d 的器件或者是时间延迟元件(对于脉冲工作状态), 或者是光隔离器(对于连续工作状态), 以防止反射的激光影响激光器正常工作; BS是分束器; M是全反射镜; Φ 是位置可以移动的象差元件。照相机放在四个不同的位置上, 可以分别拍摄入射(无畸变)信号波、畸变信号波、(畸变的)相位共轭波和通过象差元件后的相位共轭波的光斑照片, 以确定相位共轭波修正波前畸变的能力。

图8-35给出了实验拍摄的光斑图样^[32]。其中(a)图为入射的(无畸变)激光光斑,(b)图为该激光束通过象差元件后被畸变了的光斑,(c)图为相位共轭波通过象差元件后的光斑图样, 将(a)和(c)进行比较, 证实了相位共轭波修正波前畸变的能力。

图8-36给出了布卢姆(Bloom)等人^[33]的实验结果。他们利用氮分子激光泵浦染料激光器产生6ns的光脉冲作光源, 采用钠蒸汽作非线性介质。在5cm长的热管炉中, 钠蒸汽的密度为 $3 \times 10^{14}/\text{cm}^3$, 同时还充入5Torr(1Torr=133.322Pa)的氮气作缓冲气体, 入射信号光与泵浦光夹角为0.5°。实验测得的信号增益、相位共轭反射系数与泵浦光强的关系(等效于与非线性增益的关系)曲线绘在图上, 圆圈为透射信号光的实验点, 实黑点

为背向相位共轭光的实验点。在该图上，同时还给出了按非线性光学理论计算得到的非共

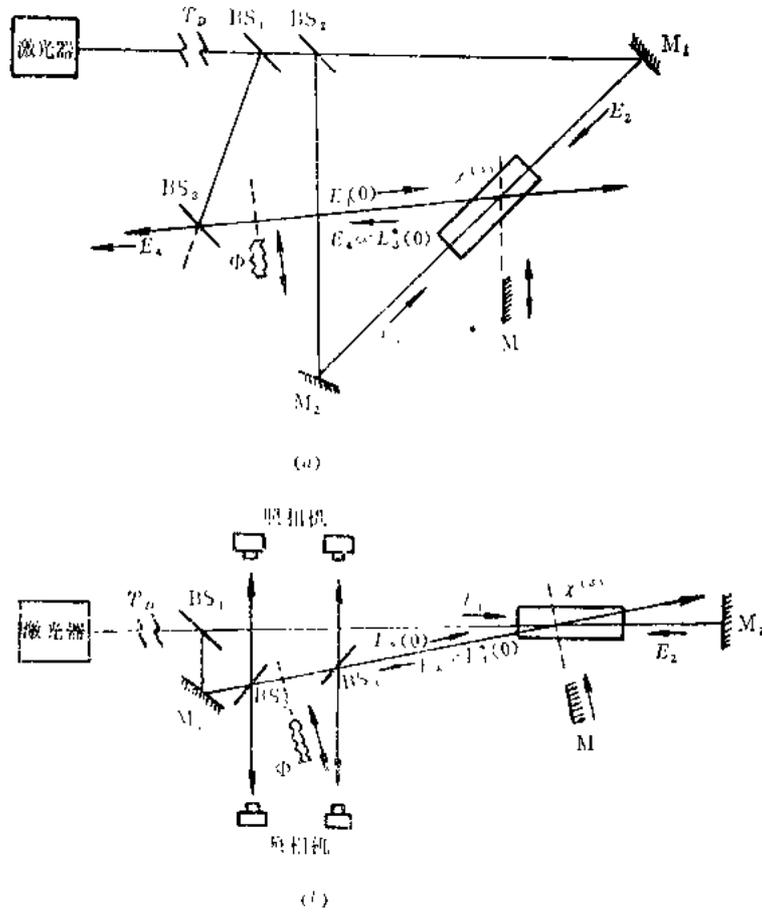


图 8-34 光学相位共轭实验
(a) 对称激励; (b) 非对称激励

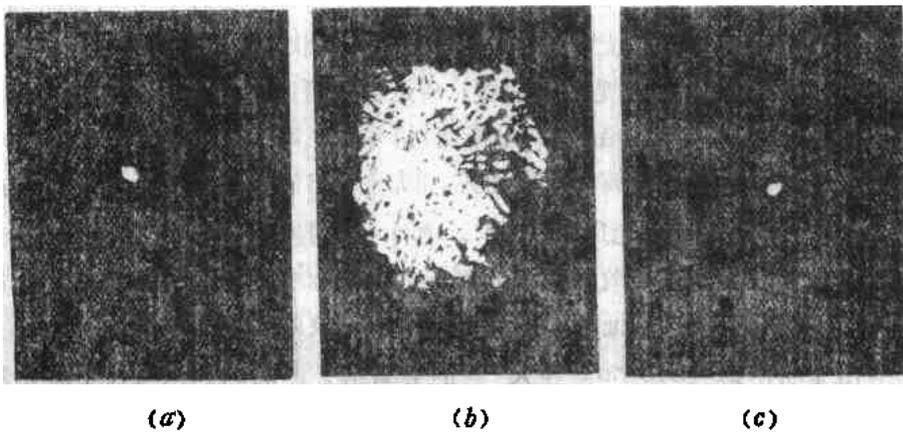


图 8-35 光学相位共轭实验照片

振型DFWM相位共轭的理论曲线;信号增益关系按 $\text{Sec}^2(|g|L)$ 绘制,背向相位共轭反射系

数按 $\lg^2(|g|L)$ 绘制。由图可见，在泵浦强度小于 30 kW/cm^2 时，理论和实验吻合较好，当泵浦强度较大时，由于钠蒸汽的可饱和吸收特性，使测量值与非共振特性发生偏离。在该图的左上角，还给出了入射信号脉冲及背向相位共轭波脉冲的波形图。可以看出，在相位共轭过程中，脉冲将被压缩，这是由于背向相位共轭波增益的非线性引起的。

在前面的分析中，我们都假设了相互作用波同向线偏振，因此，为了测量背向相位共轭波的特性，必须采用角度分离技术，即入射信号光与泵浦光方向有一夹角。这种结构必然限制了光束相互作用区，从而也就限制了非线性增益。为了解决这个问题，可以采用偏振分离技术。所谓偏振分离技术就是使信号光与泵浦光偏振正交，因而，即使四个光共线传播，也可以将相位共轭光从泵浦光中分离出来，这样可以增长四个光波相互作用的长度，因而也就提高了非线性增益。显然，为了采用偏振分离技术，介质的三阶非线性极化率张量相应的非对角元素必须不等于零。例如，泵浦光为 c 偏振，信号光为 d 偏振，则非线性极化强度应为

$$(P_{NL})_y \propto \chi_{yxxz}^{(3)} E_{1z} E_{2z} E_{3y}^*$$

由于非线性极化率的非对角元素比对角元素小，例如，对于 CS_2 有^[30]

$$\frac{\chi_{yxxz}^{(3)}}{\chi_{xxxx}^{(3)}} = 0.706,$$

所以非线性耦合下降。但是，由于实验中采用了共线传播方式，所以可通过提高作用区长度的方法予以补偿。

图8-37绘出了佩珀 (Pepper) 等人^[24] 利用偏振分离技术进行实验的装置结构。该实

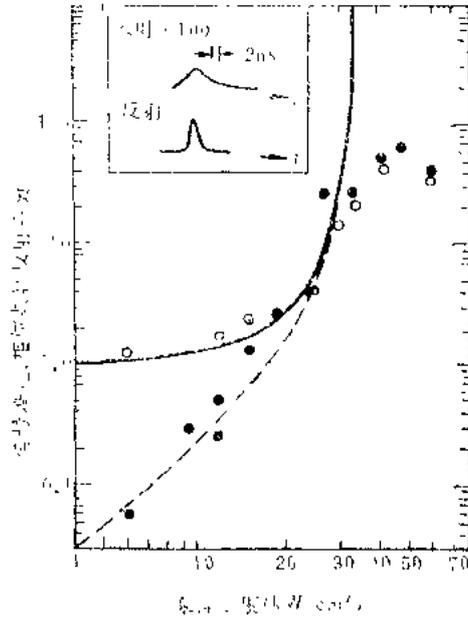


图 8-36 布卢姆等人的实验曲线

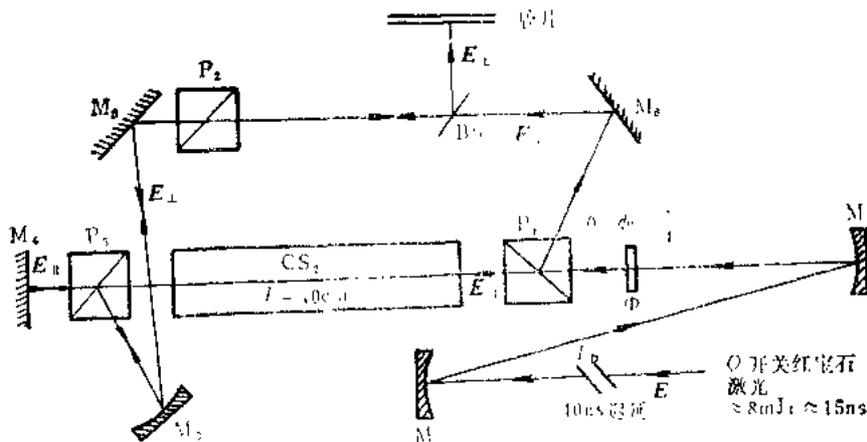


图 8-37 采用偏振分离技术的光学相位共轭实验装置

验第一次实现了反射系数大于1的工作。在该装置中，产生延迟时间 T_D 的器件是时间延迟

元件。平行偏振光通过波片 Φ 、格兰棱镜 P_1 、 P_3 及反射镜 M_4 ，形成了彼此反向传播的泵浦光。由 P_1 反射的一部分垂直偏振光通过 P_2 、 M_5 、 M_6 ，并经 P_3 反射进入 CS_2 介质，构成了入射信号光。由于非线性作用，将产生垂直偏振的背向相位共轭光，经 P_3 、 M_5 、 M_6 、 P_2 及分束器BS射到胶片上进行测量。在该装置中，入射信号光能量可以通过调整 Φ 的方位来进行改变。

前面讨论的DFWM相位共轭实验的非线性介质都是放在激光腔外，所以，为了保证二泵浦光反向传播，需要进行精细调整。如果采用腔内相位共轭即如图8-38所示的由伯格曼(Bergmann)等人^[36]进行的实验，就可以大大简化这种调整要求。该实验中的非线性介质是 CO_2 激光器输出反射镜的基板锗片，实验时，需将该反射镜反置，以使锗片处在腔内。激光器内的驻波起了彼此反向传播的泵浦作用，输出光经一系列反射镜入射到锗片上，构成了入射信号光，由于锗片内的非共振DFWM作用，产生了相位共轭光。

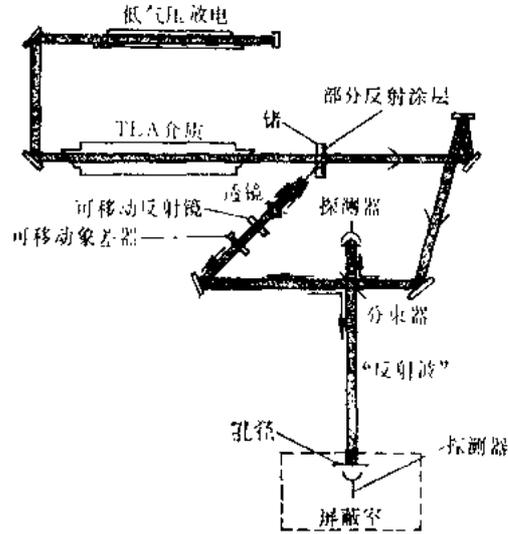


图 8-38 腔内相位共轭的实验装置

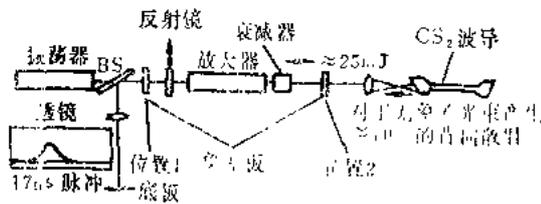


图 8-39 受激布里渊散射相位共轭实验装置

利用SBS进行相位共轭的实验装置如图8-39所示^[36]。当将反射镜插在位置2时，由照相底片可以观察入射的无畸变光斑。然后将象差板插到位置1，即可通过底片曝光，观察两次经过象差板的光束的畸变情况。当将象差板放在位置2时，激光束经过放大器、衰减器、象差板、透镜后，聚焦在 CS_2 波导内，调整激光强度超过SBS阈值后，便可产生SBS光，该光经象差板、衰减器、放大器、分束器(BS)，然后射到底片上，就可观察到SBS光的光斑。结果表明，SBS过程可以产生背向相位共轭光，该相位共轭光通过非均匀介质后，即可修正波前畸变。

七、相位共轭谐振腔

相位共轭谐振腔(PCR)是光学相位共轭技术在空域和时域内的重要应用。

所谓相位共轭谐振腔指的是在普通光学谐振腔中的一个(或两个)反射镜由相位共轭反射镜(PCM)代替。由于这种代替，使其呈现出非常好的特性^[37]，可以补偿腔内各种象差元件(如不均匀的增益介质，质量低劣的光学元件等)引起的输出光束的波前畸变，输出高质量、近衍射极限的光束；一般情况下，输出光频率被锁定在泵浦激光频率上，由于此时横模频率简并，因而可以有效地吸取增益介质内的储能；相对普通谐振腔而言，其纵模密度加倍，从而使得有效输出增大。

下面, 我们详细地讨论PCR的特性。

我们讨论的PCR原理结构如图8-40所示。其中的PCM是四波混频相位共轭反射镜, 两个反向传播的泵浦光为 E_1 、 E_2 , 当有信号光 E_s 入射时, 由于二阶非线性极化作用, 将产生背向相位共轭光 $E_r \propto E_s^*$ 。PCR的普通反射镜RM的曲率半径为 R_v 。PCR内所有其它元件都用近轴光线变换矩阵元 A' 、 B' 、 C' 、 D' 描述。

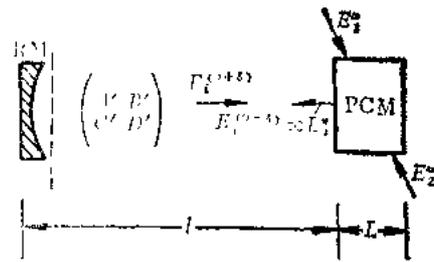


图 8-40 相位共轭谐振腔结构示意图

我们讨论PCR特性的方法是光线变换矩阵法, 在讨论中忽略PCR内任意孔径光阑引起的衍射效应, 主要分析PCR内满足自洽条件的高斯光束模结构、稳定性及谐振频率。

1. PCR的模结构及稳定性

(1) 简并情况

① 简并PCM的光线变换矩阵 如果PCM工作于DFWM状态中, 则称其为简并PCM。假设入射到简并PCM上的高斯球面光波场 E_s 为

$$E_s(\mathbf{r}, t) = E_s(\mathbf{r}) \exp \left[i \left(\omega t - kz - \frac{kr_{\perp}^2}{2q_s} \right) \right]. \quad (8.7-1)$$

式中 q_s 是复曲率半径, 其倒数为

$$\frac{1}{q_s} = \frac{1}{\rho} - i \frac{\lambda}{\pi w^2}. \quad (8.7-2)$$

ρ 和 w 分别是高斯光束的曲率半径和光斑尺寸。由于PCM的作用, 反射光的曲率半径相对入射光变号, 但是光斑尺寸的大小不变, 即反射光场为

$$E_r(\mathbf{r}, t) \propto E_s^*(\mathbf{r}) \exp \left[i \left(\omega t + kz + \frac{kr_{\perp}^2}{2\rho} \right) - \frac{r_{\perp}^2}{w^2} \right]. \quad (8.7-3)$$

它也可以表示为

$$E_r(\mathbf{r}, t) \propto E_s^*(\mathbf{r}) \exp \left[i \left(\omega t + kz - \frac{kr_{\perp}^2}{2q_r} \right) \right]. \quad (8.7-4)$$

其中复曲率半径的倒数为

$$\frac{1}{q_r} = -\frac{1}{\rho} - i \frac{\lambda}{\pi w^2} = -\frac{1}{q_s^*}. \quad (8.7-5)$$

因此,

$$q_r = -q_s^*. \quad (8.7-6)$$

根据光线变换矩阵的定义及PCM波前反转的特性, 可以得到PCM的光线变换矩阵为

$$M = \begin{bmatrix} A & B \\ C & D \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{bmatrix}. \quad (8.7-7)$$

于是, PCM的输入、输出光束间的 q 参数关系为

$$q_s = \frac{Aq_r^* + B}{Cq_r^* + D}. \quad (8.7-8)$$

将(8.7-8)式与普通光学元件的相应关系进行比较可以看出,在PCM的关系中, q^* 代替了普通光学元件的 q_i ,这是由PCM的特性决定的。

进而应当指出,如果在PCM前面放置任意实光学元件(其光线变换矩阵元 A' 、 B' 、 C' 、 D' 均为实数),则相对任意参考面的输入、输出光束 q 参数都满足下面的关系:

$$q_o = \frac{A_T q_i^* + B_T}{C_T q_i^* + D_T} \quad (8.7-9)$$

其中, A_T, B_T, C_T, D_T 是在该参考面后包括PCM在内的所有光学元件组的光线变换矩阵元。这可通过下面的简单运算看出:如图8-41所示,若参考面取在A处,A参考面后的元件都为实元件,光线变换矩阵元为 A' 、 B' 、 C' 、 D' ,则参考面后所有元件的总光线变换矩阵为

$$\begin{aligned} M_T &= \begin{bmatrix} D' & B' \\ C' & A' \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} A' & B' \\ C' & D' \end{bmatrix} \\ &= \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{bmatrix} \end{aligned}$$

因此,相对A面的输入、输出光束 q 参数关系满足

$$q_o = -q_i^*$$

图 8-41 相对任意参考面的 q 参数关系的分析模型

也就是说,(8.7-9)式的关系式总是成立的。如果腔内含有虚元件,则为了求参考面上输入、输出光束间 q 参数关系,首先应当利用普通光学元件的光线变换矩阵求出PCM输入面上入射光束的 q 参数,再利用PCM的 q 参数变换公式求出输出光束 q 参数,最后再利用普通光学元件的光线变换矩阵求出指定参考面上的输出光束 q 参数。

下面,我们首先讨论PCR内插入实元件的情况。

②一次往返高斯本征模及稳定性条件 为了确定PCR内一次往返高斯本征模,需要利用自洽公式,即光束在腔内一次往返后 q 参数再现。

(a) PCM上的高斯模参数。如图8-42所示,选PCM输入面为参考面,

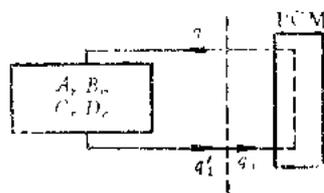


图 8-42 确定PCM上模参数的分析模型

面向右出发,经过PCM后,在腔内一次往返的光线变换矩阵为

$$(M_T)_{PCM} = \begin{bmatrix} A_r & B_r \\ C_r & D_r \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} A_r & -B_r \\ C_r & -D_r \end{bmatrix} \quad (8.7-10)$$

式中

$$\begin{aligned} \begin{bmatrix} A_r & B_r \\ C_r & D_r \end{bmatrix} &= \begin{bmatrix} A' & B' \\ C' & D' \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ -2/R_M & 1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} D' & B' \\ C' & A' \end{bmatrix} \\ &= \begin{bmatrix} A'D' + B'C' - (2B'D'/R_M) & 2A'B' - [2(B')^2/R_M] \\ 2C'D' - [2(D')^2/R_M] & A'D' + B'C' - (2B'D'/R_M) \end{bmatrix}, \end{aligned} \quad (8.7-11)$$

是除了PCM以外，腔内所有其它元件（包括普通反射镜）的光线变换矩阵，并且有

$$\left. \begin{aligned} A_r &= D_r, \\ A_r D_r - B_r C_r &= 1. \end{aligned} \right\} \quad (8.7-12)$$

对于这些元件来说，相对该参考面的输入、输出光束 q 参数关系可以表示为

$$q'_1 = \frac{A_r q_2 + B_r}{C_r q_2 + D_r}. \quad (8.7-13)$$

考虑到PCM的作用，上式可以变为

$$q'_1 = \frac{-A_r q_1^* + B_r}{-C_r q_1^* + D_r}. \quad (8.7-14)$$

利用(8.7-12)式的关系，有

$$\frac{B_r}{q'_1} = \frac{A_r^2 - 1 - (A_r B_r / q_1^*)}{A_r - (B_r / q_1^*)}. \quad (8.7-15)$$

由于高斯光束在PCR内往返一周自再现，应有 $q'_1 = q_1 = q$ ，因此，可将上式变为

$$\frac{B_r^2}{q q^*} - A_r B_r \left(\frac{1}{q} + \frac{1}{q^*} \right) + A_r^2 - 1 = 0. \quad (8.7-16)$$

若将复曲率半径定义式代入，就得到

$$\left(\frac{B_r \lambda}{\pi w_{PCM}^2} \right)^2 + \left(\frac{B_r}{\rho_{PCM}} - A_r \right)^2 = 1. \quad (8.7-17)$$

在PCR内，凡是满足该式的高斯光束均可存在。因为对应 w_{PCM} 、 ρ_{PCM} 两个参量只有一个方程限制，所以这种解有无限多个。因此，满足(8.7-16)式的高斯本征模有无限多个。

假若所研究的PCR是空腔，则

$$\begin{bmatrix} A' & B' \\ C' & D' \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 1 & l \\ 0 & 1 \end{bmatrix}. \quad (8.7-18)$$

于是

$$\begin{bmatrix} A_r & B_r \\ C_r & D_r \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 1 - (2l/R_M) & 2l[1 - (l/R_M)] \\ -2/R_M & 1 - (2l/R_M) \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 2g_1 - 1 & 2g_1 l \\ 2(g_1 - 1)/l & 2g_1 - 1 \end{bmatrix}. \quad (8.7-19)$$

式中， $g_1 = 1 - (l/R_M)$ 为普通反射镜的 g 参数。此时，(8.7-17)式可写为

$$\frac{\lambda l}{\pi w_{PCM}^2} = \left[\frac{1 - g_1}{g_1} + \frac{l}{\rho_{PCM}} \frac{2g_1 - 1}{g_1} - \left(\frac{l}{\rho_{PCM}} \right)^2 \right]^{1/2}. \quad (8.7-20)$$

该式给出了在PCM输入面上一次往返简并本征模的光斑尺寸 w_{PCM} 与曲率半径 ρ_{PCM} 间的关系。

(b) RM上的模参数。如图8-40所示，取普通反射镜前表面为参考面，光束从RM开始向右传播，一次往返的变换矩阵为

$$\begin{aligned} (M_1)_{RM} &= \begin{bmatrix} A_1 & B_1 \\ C_1 & D_1 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ -2/R_M & 1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} D' & B' \\ C' & A' \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} A' & B' \\ C' & D' \end{bmatrix} \\ &= \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ -2/R_M & 1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{bmatrix}. \end{aligned} \quad (8.7-21)$$

该式表明, 由于PCM的特性以及无源元件的可逆性, 图8-41所示的任意无源无耗光学元件与PCM组成的光学元件组的效应, 应与单独PCM存在的情况一样。因此, 在PCM前的任意象差元件对光波波前的影响, 皆可通过PCM的作用消去。在这种情况下, 可以将(8.7-9)式写为

$$q_o = \frac{A_1 q_i^* + B_1}{C_1 q_i^* + D_1}$$

考虑到一次往返的自洽要求:

$$q_o = -q_i,$$

去掉 q 参数脚标后, 便得到

$$\frac{1}{q} = \frac{C_1 + (D_1/q^*)}{A_1 + (B_1/q^*)}$$

若将复曲率半径定义式代入, 并使等式两边的虚、实部分别相等, 就有

$$\left. \begin{aligned} A_1 + D_1 &= 0, \\ B_1 \left[\frac{1}{\rho_{RM}^2} + \left(\frac{\lambda}{\pi w_{RM}^2} \right)^2 \right] + (A_1 - D_1) \frac{1}{\rho_{RM}} - C_1 &= 0. \end{aligned} \right\} \quad (8.7-22)$$

再将(8.7-21)式的矩阵元代入, 就得到

$$\rho_{RM} = -R_M \quad (8.7-23)$$

该式说明, 在RM上, 凡是波前曲率半径等于RM的曲率半径但符号相反的高斯光束, 均可在PCR内一次往返后自洽。

综上所述, 可以将简并PCR中的一次往返自洽高斯本征模结构绘出(如图8-43所示)。进一步分析(8.7-17)式、(8.7-22)式可以看出, 因为这两个关系只给出本征模曲率半径和光斑尺寸之间的关系, 因而其解不是唯一的。同时, 因为这两个方程没有对腔长、腔内元件提出要求, 所以PCR内的一次往返简并本征模是无条件稳定的。也就是说, 不管腔结构形式从普通谐振腔的角度来看是稳定的还是不稳定的, 就PCR来说, 总是稳定的。

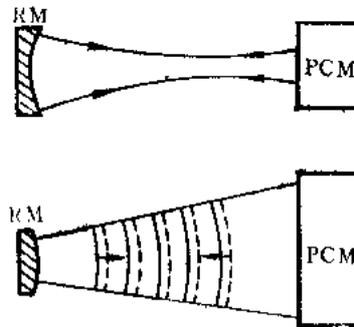


图8-43 PCR中一次往返自洽高斯本征模结构示意图

③两次往返高斯本征模及稳定性条件 在普通谐振腔中, 能稳定振荡的本征模都是在腔内一次往返自洽的。但在PCM中, 由于PCM的存在, 还存在两次往返自洽的高斯本征模。分析如下:

(a) PCM上的高斯模参数。如图8-42所示, 由参考面向右, 经PCM在腔内两次往返的光线变换矩阵为

$$\begin{aligned} (M_2)_{PCM} &= (M_1)_{PCM} (M_1)_{PCM} \\ &= \begin{bmatrix} A_r & B_r \\ C_r & D_r \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} A_r & B_r \\ C_r & D_r \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{bmatrix}. \end{aligned}$$

利用(8.7-12)式, 有

$$(M_2)_{PCM} = \begin{bmatrix} A_2 & B_2 \\ C_2 & D_2 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 1 \end{bmatrix} = I. \quad (8.7-24)$$

由此可见，不管高斯光束 q 参数如何，也不管腔内元件如何，光束在腔内两次往返后，在参考面上总能自洽。从物理上来说，这是由于光束在两次往返中，两次遇到PCM，因此， q 参数进行两次共轭运算，其值保持不变。

应当指出，两次往返自洽高斯模在经过一次往返后，在PCM上并不要求再现，而应满足(8.7-15)关系式。我们对(8.7-15)式进行配方整理，便可得到

$$\begin{pmatrix} B_r & -A_r \\ q_1 & -A_r \end{pmatrix} \begin{pmatrix} B_r & -A_r \\ q_1' & -A_r \end{pmatrix}^* = 1. \quad (8.7-25)$$

该式描述了在PCM输入面上，两次往返高斯模在一次往返前后的模参数 q_1 、 q_1' 间的关系。显然，在一般情况下， $q_1 \neq q_1'$ 。

(b) RM上的高斯模参数。如图8-40所示，光束由RM前表面向右传播，在PCR内两次往返的变换矩阵为

$$(M_2)_{RM} = (M_1)_{RM} (M_1)_{RM} = I. \quad (8.7-26)$$

显然，不管高斯光束 q 参数如何，在两次往返后，总是满足自洽条件。

类似前面的讨论，在RM上一次往返模参数满足

$$q' = \frac{A_1 q^* + B_1}{C_1 q^* + D_1}.$$

将(8.7-21)式的矩阵元代入，得到

$$q' = -\frac{q^*}{1 + (2q^*/\bar{R}_M)^*}.$$

再代入 q 参数定义式，有

$$\frac{1}{\rho'} - i \frac{\lambda}{\pi (w')^2} = -\left(\frac{2}{R_M} + \frac{1}{\rho} \right) - i \frac{\lambda}{\pi w^2}. \quad (8.7-27)$$

由此可见，在RM上，两次往返自洽模在一次往返前后，曲率半径发生变化，但光斑尺寸不变。

综上所述，简并情况下的两次往返自洽高斯模不确定，有无限多个，其腔内结构如图8-44所示。由图可见，PCM的作用类似于一个可调透镜。因为PCM对于发散光起着会聚透镜的作用，对于会聚光起着发散透镜的作用，所以在PCR内的任意高斯光束，即使其曲率半径与普通反射镜不匹配，但由于两次受到PCM的作用，仍然可以自洽（如图8-45所



图 8-44 简并PCR中两次往返自洽高斯本征模结构示意图

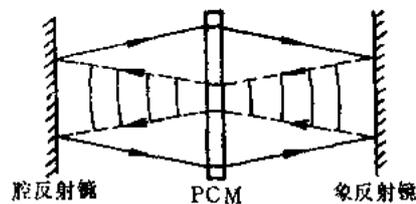


图 8-45 简并PCR中两次往返自洽高斯本征模结构分析模型

示)。进一步，由(8.7-24)式、(8.7-26)式可见，因为简并情况下的两次往返自洽模对腔长、腔内元件未提出任何限制，所以它在腔内是无条件稳定的。

(2) 非简并情况

①非简并PCM的光线变换矩阵 由近DFWM过程的讨论我们知道,若PCM的泵浦光频率为 ω ,信号光频率为 $(\omega + \delta)$,则反射光频率为 $(\omega - \delta)$ 。

如果我们考察的高斯光场为

$$E_i(\mathbf{r}, t) = E_i(\mathbf{r}) \exp \left\{ i \left[\left(1 + \frac{\delta}{\omega} \right) \omega t - \left(1 + \frac{\delta}{\omega} \right) kz - \left(1 + \frac{\delta}{\omega} \right) \frac{kr_i^2}{2q_i} \right] \right\}, \quad (8.7-28)$$

则由于PCM的作用,反射光场应为

$$E_r(\mathbf{r}, t) \propto E_i^*(\mathbf{r}) \exp \left\{ i \left[\left(1 - \frac{\delta}{\omega} \right) \omega t + \left(1 - \frac{\delta}{\omega} \right) kz - \left(1 + \frac{\delta}{\omega} \right) \frac{kr_i^2}{2(-q_i^*)} \right] \right\}, \quad (8.7-29a)$$

或写成

$$E_r(\mathbf{r}, t) \propto E_i^*(\mathbf{r}) \exp \left\{ i \left[\left(1 - \frac{\delta}{\omega} \right) \omega t + \left(1 - \frac{\delta}{\omega} \right) kz - \left(1 - \frac{\delta}{\omega} \right) \frac{kr_i^2}{2q} \right] \right\}, \quad (8.7-29b)$$

显然,这个反射光是频率为 $(\omega - \delta)$ 的高斯光束,它的复曲率半径 q_r 与入射光的复曲率半径 q_i 的关系为

$$q_r = -q_i^* \frac{1 - (\delta/\omega)}{1 + (\delta/\omega)}. \quad (8.7-30)$$

因此,在非简并情况下的PCM光线变换矩阵为

$$M = \begin{bmatrix} 1 - (\delta/\omega) & 0 \\ 0 & -(1 + (\delta/\omega)) \end{bmatrix}. \quad (8.7-31)$$

它说明非简并PCM的作用是改变高斯光束的曲率半径,但是不改变光斑尺寸。

②一次往返高斯本征模 为求解非简并PCM的一次往返高斯本征模,仍需按前面的自治方法进行。但是,因为PCM对频率为 $(\omega + \delta)$ 的入射光产生频率为 $(\omega - \delta)$ 的反射光,并且因为非简并PCM有(8.7-31)式的光线变换矩阵,所以,高斯光束在腔内一次往返后不可能自治,因此,非简并PCM没有稳定的一次往返高斯本征模。

③两次往返高斯本征模及稳定条件 虽然非简并PCM没有一次往返高斯本征模,但是却有条件地存在两次往返高斯本征模。下面,我们求解这种模结构。

(a) PCM上的高斯模参数。如图8-42所示,选PCM的输入面为参考面,光束一次往返的变换矩阵为

$$\begin{aligned} (M_1)_{PCM} &= \begin{bmatrix} A_r & B_r \\ C_r & D_r \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 1 - (\delta/\omega) & 0 \\ 0 & -(1 + (\delta/\omega)) \end{bmatrix} \\ &= \begin{bmatrix} A_r[1 - (\delta/\omega)] & -B_r(1 + (\delta/\omega)) \\ C_r[1 - (\delta/\omega)] & -D_r(1 + (\delta/\omega)) \end{bmatrix}, \end{aligned} \quad (8.7-32)$$

光束两次往返的变换矩阵为

$$\begin{aligned} (M_2)_{PCM} &= (M_1)_{PCM} (M_1)_{PCM} \\ &= \begin{bmatrix} A_r[1 + (\delta/\omega)] & -B_r[1 - (\delta/\omega)] \\ C_r[1 + (\delta/\omega)] & -D_r[1 - (\delta/\omega)] \end{bmatrix} \begin{bmatrix} A_r[1 - (\delta/\omega)] & -B_r[1 + (\delta/\omega)] \\ C_r[1 - (\delta/\omega)] & -D_r[1 + (\delta/\omega)] \end{bmatrix} \\ &= \begin{bmatrix} A_r^2[1 - (\delta/\omega)^2] - B_r C_r[1 - (\delta/\omega)]^2 & -A_r B_r[1 + (\delta/\omega)]^2 + B_r D_r[1 - (\delta/\omega)]^2 \\ A_r C_r[1 - (\delta/\omega)^2] - D_r C_r[1 - (\delta/\omega)]^2 & -B_r C_r[1 + (\delta/\omega)]^2 + D_r^2[1 - (\delta/\omega)]^2 \end{bmatrix} \\ &= \begin{bmatrix} A_2 & B_2 \\ C_2 & D_2 \end{bmatrix}. \end{aligned} \quad (8.7-33)$$

上面等式右边第一个矩阵 $(M_1)_{PCM}$ 中,以 $-\delta$ 代替了 δ ,这表示第二次往返时的入射光频率为 $(\omega - \delta)$ 。

由于在两次往返中，两次经过PCM，所以在总的效果中，实际已将共轭作用消去，故可采用普通谐振腔的自洽公式

$$q = \frac{A_2 q + B_2}{C_2 q + D_2}$$

求出自洽时 q 参数满足的关系为

$$\frac{1}{q} = \frac{D_2 - A_2}{2B_2} + i \left[-\left(\frac{D_2 - A_2}{2B_2} \right)^2 - \frac{C_2}{B_2} \right]^{1/2} \quad (8.7-34)$$

代入复曲率半径的定义式，并利用(8.7-33)式的矩阵元，得到

$$\left(\frac{1}{\rho_+} \right)_{\text{PCM}} = \frac{D_2 - A_2}{2B_2} = \frac{C_r}{A_r} \frac{1}{1 + (\delta/\omega)} \quad (8.7-35)$$

$$\begin{aligned} (\omega^2)_{\text{PCM}} &= \frac{2c}{(\omega + \delta)} \left[-\left(\frac{D_2 - A_2}{2B_2} \right)^2 - \frac{C_2}{B_2} \right]^{-1/2} \\ &= \frac{2c}{\omega} \left\{ \frac{A_r^2 B_r}{C_r [1 - (A_r^2 \delta^2 / \omega^2)]} \right\}^{1/2} \end{aligned} \quad (8.7-36)$$

式中 c 为光速。若起始入射光频率为 $(\omega - \delta)$ ，则相应的两次往返高斯本征模在PCM上的曲率半径为

$$\left(\frac{1}{\rho_-} \right)_{\text{PCM}} = \frac{C_r}{A_r} \frac{1}{1 - (\delta/\omega)} \quad (8.7-37)$$

由上面的分析可见，非简并PCR高斯本征模在PCM上的曲率半径 ρ 与入射光的频率失谐 δ 的正负有关，但光斑尺寸 ω 与 δ 的正负无关。

(b) RM上的高斯模参数。如图8-40所示，选RM前表面为参考面，则光束两次往返的变换矩阵为

$$\begin{aligned} (M_2)_{\text{RM}} &= \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ -2/R_M & 1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} D' & B' \\ C' & A' \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 1 + (\delta/\omega) & 0 \\ 0 & -(1 - (\delta/\omega)) \end{bmatrix} \begin{bmatrix} A' & B' \\ C' & D' \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ -2/R_M & 1 \end{bmatrix} \\ &= \begin{bmatrix} D' & B' \\ C' & A' \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 1 - (\delta/\omega) & 0 \\ 0 & -(1 + (\delta/\omega)) \end{bmatrix} \begin{bmatrix} A' & B' \\ C' & D' \end{bmatrix} \\ &= \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ -2/R_M & 1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} D' & B' \\ C' & A' \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 1 + (\delta/\omega) & 0 \\ 0 & -(1 - (\delta/\omega)) \end{bmatrix} \begin{bmatrix} A_r & B_r \\ C_r & C_r \end{bmatrix} \\ &= \begin{bmatrix} 1 - (\delta/\omega) & 0 \\ 0 & -(1 + (\delta/\omega)) \end{bmatrix} \begin{bmatrix} A' & B' \\ C' & D' \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} A'_2 & B'_2 \\ C'_2 & D'_2 \end{bmatrix} \end{aligned} \quad (8.7-38)$$

类似前面的分析，利用普通谐振腔的自洽公式并代入(8.7-38)式的矩阵元，得到

$$\left(\frac{1}{\rho_+} \right)_{\text{RM}} = \frac{D'_2 - A'_2}{2B'_2} = -\frac{1}{R_M} \quad (8.7-39)$$

$$\begin{aligned} (\omega^2)_{\text{RM}} &= \frac{2c}{(\omega + \delta)} \left[-\left(\frac{D'_2 - A'_2}{2B'_2} \right)^2 - \frac{C'_2}{B'_2} \right]^{-1/2} \\ &= \frac{2c}{(\omega + \delta)} \left[\frac{4B_r^2 D_r^2}{B_r C_r} \left(\frac{1 + (A_r \delta / \omega)}{1 - (A_r \delta / \omega)} \right) \right]^{1/2} \end{aligned} \quad (8.7-40)$$

由此可见，两次往返高斯本征模在RM上的曲率半径与入射光频率失谐 δ 无关，不管入射光频率是 $(\omega + \delta)$ ，还是 $(\omega - \delta)$ ，都有 $\rho_{\text{RM}} = -R_M$ ，但是光斑尺寸与入射光频率失谐 δ 的正负有

关。

对于空腔，两次往返高斯本征模在PCM和RM上的模参数分别为

$$\begin{aligned}
 (\rho_+)_\text{PCM} &= \frac{C_r}{A_r} \frac{1}{1 + (\delta/\omega)} = \frac{2}{2l - R_M} \frac{1}{1 + (\delta/\omega)}, \\
 (\rho_-)_\text{PCM} &= \frac{C_r}{A_r} \frac{1}{1 - (\delta/\omega)} = \frac{2}{2l - R_M} \frac{1}{1 - (\delta/\omega)}, \\
 (\omega^2)_\text{PCM} &= \frac{2c}{\omega} \left\{ \frac{(1 - (2l/R_M))^2 (1 - (l/R_M)) R_M l}{(1 - (2l/R_M))^2 (\delta/\omega)^2 - 1} \right\}^{1/2}, \\
 (\rho)_\text{RM} &= -R_M, \\
 (\omega^2)_\text{RM} &= \frac{2c}{(\omega + \delta)} \left\{ - \frac{R_M l}{(1 - (l/R_M))} \frac{1 + (1 - (2l/R_M))(\delta/\omega)}{1 - (1 - (2l/R_M))(\delta/\omega)} \right\}^{1/2}.
 \end{aligned} \tag{8.7-41}$$

综上所述，可以将非简并PCR中的高斯本征模结构描绘如图8-46。



图 8-46 非简并PCR中两次往返自洽高斯本征模结构示意图

(c) 稳定性条件。由(8.7-35)、(8.7-36)、(8.7-39)、(8.7-40)式可见，要想得到有意义的确定的高斯本征模，必须满足 $B_r C_r > 0$ ，或根据(8.7-12)式的关系，必须满足

$$|A_r| > 1, \tag{8.7-42}$$

若为空腔，则由(8.7-19)式得到这个稳定性条件为

$$g_1 > 1 \text{ 或 } g_1 < 0. \tag{8.7-43}$$

或者具体地说， $R > 0$ 时，稳定性条件为 $l > R$ ； $R < 0$ 时，对于任意腔长的PCR，皆有确定的高斯本征模。

因此，在腔内具有实元件的非简并PCR中，有确定的高斯本征模，但它是有条件稳定的。

(3) PCR内含有虚元件的情况^[38]

前面的讨论指出，腔内有实元件的PCR，在简并工作时，将有无限多个高斯本征模存在。下面将证明，若腔内含有虚元件，例如高斯滤波器³⁸，则PCR内有确定的高斯本征模。

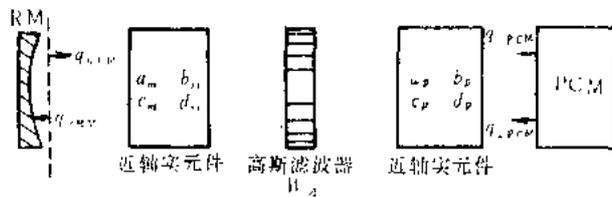


图 8-47 插入虚元件的PCR结构示意图

如图8-47所示，将一个宽度为 W_A 的高斯滤波器插在两个近轴实元件之间。高斯滤波器的光束变换矩阵为

$$M_A = \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ -i\lambda/\pi W_A^2 & 1 \end{bmatrix}. \tag{8.7-44}$$

两个实元件的光束变换矩阵

元分别为 a_m, b_m, c_m, d_m 和 a_p, b_p, c_p, d_p ，并且满足下面的关系：

$$\left. \begin{aligned}
 a_m d_m - b_m c_m &= 1, \\
 a_p d_p - b_p c_p &= 1.
 \end{aligned} \right\} \tag{8.7-45}$$

如果我们选择RM前表面为参考面, 则光束由参考面向右传播, 一次往返后, 输入、输出光束 q 参数的关系为

$$\begin{aligned}
 (q_s)_{RM} &= \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ -2/R_M & 1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} d_m & b_m \\ c_m & a_m \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ -i\lambda/\pi W_A^2 & 1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} d_p & b_p \\ c_p & a_p \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} a_p & b_p \\ c_p & d_p \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ -i\lambda/\pi W_A^2 & 1 \end{bmatrix} \\
 &\quad \times \begin{bmatrix} a_m & b_m \\ c_m & d_m \end{bmatrix} (q_0)_{RM}^* \\
 &= \begin{matrix} 1 - 2a_m b_m \frac{i\lambda}{\pi W_A^2} & -2b_m^2 \frac{i\lambda}{\pi W_A^2} \\ -\frac{2}{R_M} + \frac{4a_m b_m}{R} - \frac{i\lambda}{\pi W_A^2} - 2a_m^2 \frac{i\lambda}{\pi W_A^2} & \frac{4b_m^2}{R_M} \frac{i\lambda}{\pi W_A^2} - 1 - 2a_m b_m \frac{i\lambda}{\pi W_A^2} \end{matrix} (q_0)_{RM}^* \\
 &= \begin{bmatrix} A & B \\ C & D \end{bmatrix} (q_0)_{RM}^* .
 \end{aligned} \tag{8.7-46}$$

考虑到光束往返一周后自再现, 应有

$$q = \frac{Aq^* + B}{Cq^* + D},$$

即

$$\frac{B}{q q^*} + \frac{A}{q} - \frac{D}{q^*} - C = 0. \tag{8.7-47}$$

将矩阵元 A 、 B 、 C 、 D 及 q 的定义式代入, 并使等式两边的实、虚部分别相等, 就有

$$\left. \begin{aligned}
 b_m^2 \left(\frac{1}{\rho^2} + \frac{\lambda^2}{\pi^2 w^4} + \frac{2}{R_M} \right) + a_m \left(\frac{2b_m}{R_M} - a_m \right) &= 0, \\
 \frac{1}{\rho} + \frac{1}{R_M} + \frac{2b_m \lambda^2}{(\pi w W_A^2)^2} \left(\frac{b_m}{R_M} - a_m \right) &= 0.
 \end{aligned} \right\} \tag{8.7-48}$$

求解上面二方程, 得到

$$\left. \begin{aligned}
 \left(\frac{1}{\rho} \right)_{RM} &= -\frac{1}{R_M} + \left[\frac{X^2}{1+X^2} \left(\frac{1}{R_M} + Y \right) \right]^{1/2}, \\
 \left(\frac{\lambda}{\pi w^2} \right)_{RM} &= \left[-\frac{1}{1+X^2} \left(\frac{1}{R_M} + Y \right) \right]^{1/2}.
 \end{aligned} \right\} \tag{8.7-49}$$

其中

$$\left. \begin{aligned}
 X &= \frac{2b_m \lambda}{\pi W_A^2} \left(\frac{b_m}{R_M} - a_m \right), \\
 Y &= -\frac{a_m}{b_m} \left(\frac{2b_m}{R_M} - a_m \right).
 \end{aligned} \right\} \tag{8.7-50}$$

当 $R_M \rightarrow \infty$ 即普通反射镜为平面镜时, 可以求得RM上的高斯本征模参数为

$$\left. \begin{aligned}
 \left(\frac{1}{\rho} \right)_{RM} &= + \frac{2a_m \lambda}{\pi W_A^2} \left[1 + \left(\frac{2a_m b_m \lambda}{\pi W_A^2} \right)^2 \right]^{1/2}, \\
 \left(\frac{\lambda}{\pi w^2} \right)_{RM} &= \left[1 + \left(\frac{2a_m b_m \lambda}{\pi W_A^2} \right)^2 \right]^{1/2}.
 \end{aligned} \right\} \tag{8.7-51}$$

假若 $W_A \rightarrow \infty$, 可得

$$\left. \begin{aligned} \left(\frac{1}{\rho} \right)_{RM} &= -\frac{1}{R_M}, \\ \left(\frac{\lambda}{\pi w^2} \right)_{RM} &= \left| \frac{a_m - (b_m/R_M)}{b_m} \right|. \end{aligned} \right\} \quad (8.7-52)$$

由上面的分析, 可以看出:

(a) 当将虚元件插入简并PCR中时, 其高斯本征模 q 参数与放在PCM前面的光学元件(由矩阵元 a_p, b_p, c_p, d_p 表征)无关。其实, 这正是PCM作用的必然结果。因此, 当靠近PCM处有象差元件时, 从普通反射镜的输出, 将完全修正它所引起的相位畸变。

(b) 简并PCM内插入虚元件后, 将有一个确定的高斯本征模。

(c) 由(8.7-49)式可见, $(q)_{RM}$ 有意义的条件应为 $\left(\frac{1}{R_M^2} + Y \right) \geq 0$, 若将(8.7-50)式代入, 该条件为

$$\left(\frac{1}{R_M} - \frac{a_m}{b_m} \right)^2 \geq 0.$$

这种条件显然能够自动满足。这就是说, 该PCR内有确定的高斯本征模, 并且是无条件稳定的。

这个结论也可以从另外的角度得出: 如果现在考察一个 $W_A \rightarrow \infty$, 并且腔内元件是长度为 l 的空间, 则由(8.7-52)式有

$$\left(\frac{1}{\rho} \right)_{RM} = -\frac{1}{R_M}. \quad (8.7-53)$$

$$\left(\frac{\lambda}{\pi w^2} \right)_{RM} = \left| \frac{1 - (l/R_M)}{l} \right| = \left| \frac{g_1}{l} \right| \quad (8.7-54a)$$

或

$$(w^2)_{RM} = \frac{l\lambda}{\pi |g_1|}. \quad (8.7-54b)$$

若令PCM上高斯本征模的曲率半径 ρ_{PCM} 为PCM的等效曲率半径, 则可将PCM等效为一般的球面镜, 其等效 q 参数为

$$q_{PCM} = 1 - \frac{l}{\rho_{PCM}}. \quad (8.7-55)$$

利用光束从RM到PCM的变换矩阵, 可以得到PCM上的 q 参数与普通反射镜上的 q 参数关系为

$$q_{PCM} = q_{RM} + l. \quad (8.7-56)$$

代入 q 参数定义式, 可以得到PCM上的曲率半径和光斑尺寸为

$$\left. \begin{aligned} \left(\frac{1}{\rho} \right)_{PCM} &= \frac{2g_1 - 1}{2g_1 l}, \\ \left(\frac{\lambda}{\pi w^2} \right)_{PCM} &= \frac{1}{2|g_1| l}. \end{aligned} \right\} \quad (8.7-57)$$

于是, 由(8.7-55)式有

$$g_{PCM} g_1 = \frac{1}{2} \quad (8.7-58)$$

所以, 如果将PCR等效于(用 g 参数描述的)一般谐振腔, 则因有(8.7-58)式关系, 腔内本征模式总满足稳定条件

$$0 < g_1 g_{PCM} < 1, \quad (8.7-59)$$

即PCR是无条件稳定的。

(d) 有了上面的将PCR等效为普通球面腔的 g 参数关系, 就可以由谐振腔的一般理论, 求出腔内高斯光束束腰尺寸 w_0 及其到普通反射镜的距离 z_1 :

$$(w_0^*)^2 = \left(\frac{\lambda l}{\pi} \right) \left[\frac{g_1 g_{PCM} (1 - g_1 g_{PCM})}{g_1 + g_{PCM} - 2g_1 g_{PCM}} \right]^{1/2} = \frac{\lambda l}{2\pi} \frac{|g_1|}{g_1^2 - g_1 + 1/2} \quad (8.7-60)$$

$$z_1 = \frac{(1 - g_{PCM}) g_{PCM} l}{g_1 + g_{PCM} - 2g_1 g_{PCM}} = \frac{(1 - g_1) l}{2(g_1^2 - g_1 + 1/2)} \quad (8.7-61)$$

2. PCR内模的微扰稳定性

对于一个谐振腔来说, 除了考虑其容许存在的自洽模以外, 还需要考虑该模的微扰稳定性。这是因为, 在一个实际的谐振腔中, 由于反射镜制作的不理想, 失调, 以及激光介质的不均匀, 都会导致腔内自洽模产生一个小的微扰, 这个小微扰在腔内经过往返反射后, 如果不断减小, 则该模是微扰稳定的, 如果不断增大, 则该模是微扰不稳定的。

为了讨论PCR本征模的微扰稳定性, 我们将自洽模的复曲率半径表示为 $1/q = z$, 将腔内某种不均匀引起的起始微扰表示为 $\delta(1/q) = \delta z$ 。当光束在腔内经过一次往返后, 复曲率半径为 $1/q' = z'$, 它与起始值应满足下面的关系:

$$z' = z + \delta z' = \frac{D(z + \delta z)^* + C}{B(z + \delta z)^* + A} \quad (8.7-62)$$

考虑到微扰较小, 可以将其展开, 并取到 δz 的一次项, 然后利用 $AD - BC = 1$, 得

$$\delta z' = - \frac{1}{(A + BZ^*)^2} \delta z^* = - \frac{1}{\{A + (B/q^*)\}^2} \delta z^* \quad (8.7-63)$$

按卡斯珀森 (Casperson)^[40]的方式定义微扰增大比为

$$\frac{\delta z'}{\delta z^*} = - \frac{1}{\{A + (B/q^*)\}^2} \quad (8.7-64)$$

显然, 若 $\left| \frac{\delta z'}{\delta z^*} \right| < 1$, 则表示该模是微扰稳定的; 若 $\left| \frac{\delta z'}{\delta z^*} \right| = 1$, 则表示是临界稳定的; 若

$\left| \frac{\delta z'}{\delta z^*} \right| > 1$, 则表示是微扰不稳定的。

(1) PCR内插入实元件的情况

若PCR内插入实元件, 在非简并情况下, 满足一定条件时, 腔内有确定的两次往返高斯本征模。考虑到自洽模在腔内两次往返, 并按上面微扰稳定性的方法进行讨论, 可得

$$z + \delta z' = \frac{D(z + \delta z) + C}{B(z + \delta z) + A} \approx z + \frac{D - Bz}{A + Bz} \delta z \quad (8.7-65)$$

故有

$$\frac{\delta z'}{\delta z} = \frac{D - (B/q)}{A + (B/q)} \quad (8.7-66)$$

利用 (8.7-34) 式, 有

$$\left| \frac{\delta z'}{\delta z} \right| = \frac{\left[\frac{A_2 + D_2}{2} - iB_2 \left[-\left(\frac{D_2 - A_2}{2B_2} \right)^2 - \frac{C_2}{B_2} \right]^{1/2} \right]}{\left[\frac{A_2 + D_2}{2} + iB_2 \left[-\left(\frac{D_2 - A_2}{2B_2} \right)^2 - \frac{C_2}{B_2} \right]^{1/2} \right]} \quad (8.7-67)$$

因为 A_2 、 B_2 、 C_2 、 D_2 均为实数, 并且这里考虑的是腔内确定的高斯本征模, 因此根号下的值大于零, 所以上式的模为 1。这就是说, 腔内有实元件时, 非简并 PCR 的两次往返本征模是微扰临界稳定的。

(2) PCR 内插入虚元件的情况

由前面的讨论可知, 当腔内插入虚元件时, PCR 内有确定的本征模, 并且是无条件稳定的。为了讨论其微扰稳定性, 将 (8.7-46)、(8.7-51) 式中相应的量代入 (8.7-64) 式中, 得到

$$\left| \frac{\delta z'}{\delta z^*} \right| = \left\{ 1 + 2b_m \frac{\lambda}{\pi W_A^2} \left[\frac{a_m}{b_m} \left[1 + \left(\frac{2a_m b_m \lambda}{\pi W_A^2} \right)^2 \right]^{-1/2} \right] - i \left\{ 2a_m b_m \frac{\lambda}{\pi W_A^2} + 4a_m^2 b_m^2 \left(\frac{\lambda}{\pi W_A^2} \right)^2 \left[1 + \left(\frac{2a_m b_m \lambda}{\pi W_A^2} \right)^2 \right]^{-1/2} \right\} \right\}^{-2} \quad (8.7-68)$$

显然, 因 a_m 、 b_m 为实数, 上式可以保证小于 1。所以, 当 PCR 内插入虚元件时, 腔内有确定的模, 并且是微扰稳定的。

3. PCR 的谐振频率

由一般谐振腔理论我们知道, 谐振腔的谐振频率取决于腔长及有关参量, 其纵模间隔为

$$\Delta \nu_m = \frac{c}{2ln} \quad .$$

式中, l 为谐振腔腔长, n 为腔内介质折射率, m 为纵模次数。对于 PCR, 由于它既包含普通反射镜, 又包含 PCM, 所以它的谐振频率不仅取决于腔长及有关参量, 而且还与 PCM 的频率特性有关。

关于四波混频 PCM 的频率特性在前面已经讨论过; 在近简并工作时, 如果入射光频率为 $(\omega \pm \delta)$, 则反射光频率为 $(\omega \mp \delta)$, 反射光场与入射光场之间的关系可以写为

$$E_r(z=0) = rE_i^*(z=0) \quad (8.7-69)$$

其中, 振幅反射系数 r 可以表示为

$$r = |r| \exp(i\varphi) \quad (8.7-70)$$

近DFWM工作时的功率反射系数 R 为

$$R = \frac{|gL|^2 \operatorname{tg}^2(\beta L)}{|gL|^2 + \left| \frac{\Delta k L}{2} \right|^2 \sec^2(\beta L)} \quad (8.7-71)$$

在弱耦合情况下，它的频率关系可表示为

$$R(\omega) \approx R(\omega_0) \frac{\sin^2 \left[\frac{nL}{c} (\omega - \omega_0) \right]}{\left[\frac{nL}{c} (\omega - \omega_0) \right]^2} \quad (8.7-72)$$

式中的 ω_0 是泵浦光频率。将其绘成曲线，如图8-48所示。该图中的横坐标为频率失谐量 $\Delta\nu = (\omega - \omega_0)/2\pi$ ，相应的参量为： $L = 40\text{cm}$ ， $n = 1.62$ ， $|gL| = \pi/4$ 。

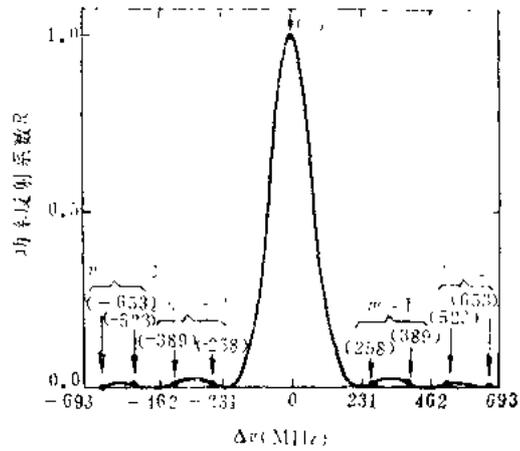


图8-48 PCR的频率特性

对于PCR来说，有两种重要的极端情况值得注意，一种是PCM盒很短，腔长很长，满足 $l \gg L$ ；一种是PCM盒很长， $L \approx l$ 。下面，我们分别讨论这两种情况的谐振频率特性。

(1) PCM盒很短时的谐振频率特性^[41]

如果 $l \gg L$ ，则PCM功率反射系数频率响应曲线中的主瓣宽度 $\Delta\nu = c/(2Ln)$ 远大于光腔纵模间隔 $\Delta\nu_m = c/(2ln_i)$ 。如果将PCM的参考面($z = 0$)取在盒中心，则至少对于弱耦合情况可以认为在主瓣内所包含频率的反射系数相位相同，因此在计算PCR的谐振频率时，可以假设PCM的反射系数的相位和大小皆为常数。

如果从腔内入射到PCM的信号光场为

$$E_i(t) = A_i(t) \exp(i\omega_0 t), \quad (8.7-73)$$

则在不考虑复振幅的横向空间变化的情况下，由PCM反射的光波场应为

$$E_r(t) = r A_i(t) \exp(i\omega_0 t). \quad (8.7-74)$$

从另一个角度来看， $E_r(t)$ 光波从PCM向腔内出发，通过腔内介质和普通反射镜，在经过一个渡越时间 $T = 2ln_i/c$ 后，变为 $E_i(t+T)$ 射向PCM。因此， $E_i(t)$ 和 $E_r(t)$ 之间的关系也可以表示为

$$E_i(t+T) = (G)^{1/2} E_r(t), \quad (8.7-75)$$

式中 G 是光束在腔内一次往返由增益介质引起的功率增益，并且已假设 G 无色散。对于我们感兴趣的振荡情况有

$$\{(G)^{1/2} r\} = 1. \quad (8.7-76)$$

于是，腔内本征模往返的自洽条件为

$$A_i(t+T) \exp(i\omega_0 T) = A_i^*(t) \exp(i\varphi), \quad (8.7-77)$$

由这个条件出发，就可以确定PCR的谐振频率。

①中心谐振频率 假设PCM的入射光频率是 ω_0 的单色波(等于泵浦光频率)，若将复振幅表示为

$$A_i = |A_i| \exp(i\theta_0), \quad (8.7-78)$$

则自洽条件变为

$$\exp(i(\theta_0 + \omega_0 T)) = \exp(i(\varphi - \theta_0)). \quad (8.7-79)$$

该式说明，只要频率为 ω_0 的入射光有确定的相位 θ_0 (在 $z=0$ 处)，并且满足

$$2\theta_0 = \varphi - \omega_0 T + 2N\pi, \quad (8.7-80)$$

则该光总可以在腔内振荡，并且频率 ω_0 与渡越时间 T 或腔长无关。在(8.7-80)式中， N 是任意整数。显然，腔内的这个光除了频率与泵浦光相同外，其时间相位 θ_0 也与泵浦光同步(泵浦光的相位包含在 φ 内)。

②PCR的纵模 如果PCM的入射光频率为 $\omega_0 + \omega_m$ ，则 $A_i(t)$ 随时间的变化规律可表示为

$$A_i(t) \propto \exp(i\omega_m t). \quad (8.7-81)$$

于是，PCM的反射光为

$$A_r(t) = r A_i^*(t) \propto \exp(-i\omega_m t). \quad (8.7-82)$$

这就是说，上偏频率($\omega_0 + \omega_m$)分量通过PCM作用变为下偏频率($\omega_0 - \omega_m$)分量，这个频率为($\omega_0 - \omega_m$)的反射光绕腔运行返回后，变为频率为($\omega_0 - \omega_m$)的入射光。因此，在稳定工作时，PCM的入射光应包含两个频率分量，即

$$A_i(t) = (A_+ \exp(i\omega_m t) + A_- \exp(-i\omega_m t)) \exp(i\theta_0). \quad (8.7-83)$$

将该场代入自洽条件关系式(8.7-77)，并利用(8.7-79)式，然后将不同的频率项分离，得到

$$\left. \begin{aligned} A_+ &= A_+^* \exp(-i\omega_m T), \\ A_- &= A_-^* \exp(i\omega_m T). \end{aligned} \right\} \quad (8.7-84)$$

对上面第二式取共轭，代入第一式后，得到

$$\exp(i2\omega_m T) = 1 = \exp(im2\pi). \quad (8.7-85)$$

式中 m 是任意整数。因此有

$$\omega_m = m \frac{\pi}{T} = 2\pi m \frac{c}{4ln_l}. \quad (8.7-86)$$

这说明，满足自洽条件的谐振频率或纵模的频率间隔为 $c/(4ln_l)$ ，它是长度为 l 的普通谐振腔纵模频率间隔的一半，故称之为半纵(轴)模。

根据上面的分析，我们可以将腔内的一般场 $E(t)$ 表示为谐振模之和，即

$$\begin{aligned} E(t) &= A(t) \exp(i(\omega_0 t + \theta_0)) \\ &= \exp(i\theta_0) \sum_m A_m \exp\left[i\left(\omega_0 t + \frac{m\pi}{T} t\right)\right]. \end{aligned} \quad (8.7-87)$$

式中包含着下面的条件：

$$A_{-m} = (-1)^m A_m^* \quad (8.7-88)$$

这等效于

$$A(t) = \sum_{m=0, 2, \dots} A_m \cos\left(\frac{m\pi}{l} t + \theta_m\right) + \sum_{m=1, 3, \dots} A_m \sin\left(\frac{m\pi}{l} t + \theta_m\right) \quad (8.7-89)$$

由上面的讨论我们可以看出，在PCR中既含有与腔长无关而仅由泵浦光频率确定的中心谐振频率 ω_0 ，又包含间隔为 $\frac{c}{4l n_i}$ —并且相对 ω_0 成对出现的半轴模，这种谐振频率特性已由林德(Lind)和斯蒂尔(Steel)从实验上加以证实^[47]。

从物理上来看，这种谐振频率特性可以如下理解：如图8-49所示，假设开始在腔内沿两个方向运行的全是上偏频率 $(\omega_0 + \omega_m)$ 分量的光波，当右行波入射到PCM上时，就产生频率为 $(\omega_0 - \omega_m)$ 的反射波，经过一短段时间后，腔内出现低频分量波，在经过一次完全的往返 (T) 后，腔内运行的全是低频分量波，然后，这个低频 $(\omega_0 - \omega_m)$ 光波入射到PCM上，将产生 $(\omega_0 + \omega_m)$ 频率的反射光，依次又经过一个完全的往返后，状态重现。由于状态重现的时间间隔是普通谐振腔的二倍 $(2T)$ ，所以，其有效纵模频率间隔为普通谐振腔的一半。

最后应当指出，对于这里所分析的短PCM盒、宽频率响应的情况来说，为了得到大的反射系数，泵浦必须很强，或者介质的非线性效应很强，这显然给实际应用带来困难。因此，一般情况下，PCR的PCM盒应当有一定的长度。

(2) PCM盒有限长时的PCR频率特性

如果 $L \approx l$ ，则PCM反射系数的频率响应主瓣宽度与腔的纵模间隔相当。在这种情况下，虽然从理论上来说，非简并的谐振频率（偏离中心的纵模）仍然可以存在，但是因为它们落在PCM反射系数曲线的边带上，反射系数很小，由于模式竞争，它们实际上不可能存在。所以，PCR只能在中心谐振频率上工作。

奥尤(Au Yeung)等人^[37]对这种情况进行了讨论，通过一次往返自洽分析，得到谐振条件为

$$\arctg\left(\frac{\omega_m n}{c \beta_m} \operatorname{tg}(\beta_m L)\right) + \frac{2\omega_m n l}{c} + (p - q + 1) \arctg \left\{ \frac{-\frac{2\omega_m}{\omega_0} \left(1 - \frac{2l}{R_0}\right) \left(1 - \frac{R}{l}\right)^{1/2}}{\left[1 - \left(\frac{\omega_m}{\omega_0}\right)^2 \left(1 - \frac{2l}{R}\right)^2\right]^{1/2} \left(2 - \frac{R}{l}\right)} \right\} = m\pi \quad (8.7-90)$$

式中 m 和 p, q 分别为PCR纵模和横模指数。对于 $l = 25\text{cm}, L = 40\text{cm}, n = 1.62, |gL| = \pi/4$ 的情况，满足(8.7-90)式的PCR模谱分布被标在图8-48上，箭头指出了PCR模频率相对泵浦频率 (ω_0) 的偏离值，对应 $m=0$ 的所有横模 (p, q) 频率简并，而对应 $m \neq 0$ 的高阶纵模的横模 (p, q) 频率不再简并，但是它们的间隔很小，在图上分不开，故在图上未标出横模频率分布。由图可见，纵模频率间隔不均匀，并且，对应每个 m 值都有两个纵模频率。

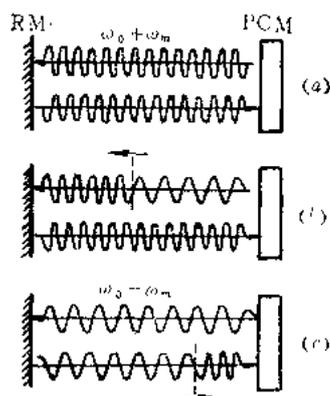


图8-19 PCR中谐振频率特性的物理图象

对于基横模, (8.7-90)式中的横模项可以不计, 变为

$$\arctg\left(\frac{\omega_m n}{c \beta_m} \operatorname{tg}(\beta_m L)\right) - \frac{2\omega_m n l}{c} - m\pi$$

或

$$\operatorname{tg}\left(\frac{2\omega_m n l}{c}\right) + \frac{\omega_m n L}{c} \operatorname{tg}(\beta_m L) = 0, \quad (8.7-91)$$

式中

$$\operatorname{tg}(\beta_m L) = \frac{\operatorname{tg}(\beta_m L)}{\beta_m L}. \quad (8.7-92)$$

对于短腔和耦合不太强的情况, 正切函数可近似等于其幅角, 此时可得

$$\omega_m \approx \frac{2\pi mc}{4n_1 l + 2nL}. \quad (8.7-93)$$

这个关系已经反映出我们前面关于弱耦合时PCM盒的有效等相参考面($z=0$)取在盒中间的

假定。此时, PCR的有效长度由 $n_1 l$ 变成了 $\left(n_1 l + \frac{nL}{2}\right)$ 。因此, 对图8-48中的实际参数, 有

效腔长于 $L_{eff} \approx n_1 l + \frac{nL}{2} = 57.4 \text{ cm}$, 纵模频率间隔近似为 $\frac{c}{4L_{eff}} \approx 131 \text{ MHz}$ 。

4. PCR的实验结果

对PCR, 人们除了从理论上进行研究外, 还进行了一系列的实验研究。下面只简单地介绍由奥尤等人^[37]进行的实验。

奥尤等人的实验装置如图8-50所示。在该装置中, 利用另外一个高质量的红宝石激光器产生PCM的两个反向传播的泵浦光 E_1 、 E_2 。原则上, 它们可以沿着与PCR光轴成任意角度的方向传播, 但是为了使作用区最长, 采用了共线结构。为了将输出光与泵浦光分离开来, 实验中采用了偏振分离技术。格兰棱镜 P_1 、 P_2 允许平行偏振泵浦光通过, 而将垂直偏振光耦合到增益介质中。只要恰当地调整PCR中红宝石的泵浦源(氙灯)激励与PCM泵浦光束同步, 就可以得到一个强的垂直偏振光脉冲输出。实验结果如图8-51所示, 图中给出了两种PCM功率反射系数的结果, 上面的结果相应于 $R \approx 25\%$, 下面的结果相应于 $R \approx 100\%$ 。在实验中, 由于采用了光学延迟, 因此, 泵浦光脉冲和输出光脉冲在时间上不重叠。由图可见, 相应于反射系数大的PCR光脉冲, 输出大, 脉冲宽, 并且在波形上, 呈现出弛豫振荡的特性。在实验中, PCR中的普通反射镜既可以是凹面镜, 也可以是凸面镜, 由此可以证明PCR中模式的稳定性。

另外一个重要的实验研究是由林德和斯蒂尔^[42]进行的连续波(CW)PCR实验。他们利用调谐到钠D, 共振线的单色CW染料激光器作钠蒸汽四波混频盒的泵浦源, 获得了大于80%的功率反射系数。他们将该盒作为具有同样波长染料激活介质的PCR的一个反射镜, 实现了CW输出。该输出是从PCR中的普通反射镜获得的, 因此, 即使在腔内插入象差元件, 仍然可以得到高质量近衍射极限光。实验还证实了从PCM输出的激光仍有严重的畸变。这个实验的另外很重要的成果是首次从实验上证实了半轴模的理论分析。

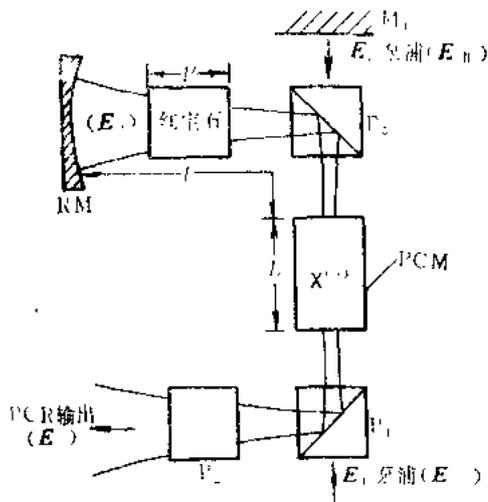


图 8-50 PCR 实验装置

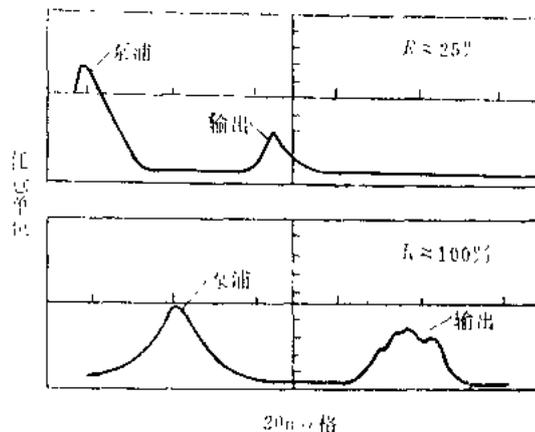


图 8-51 PCR 的实验曲线

上面的实验都是在 PCR 内放有增益介质。如果 PCM 的反射系数远大于 1，则即使腔内无增益介质，也可以产生振荡。当然，毕竟因为无增益介质而使之只适于很低功率的特殊研究^[43]。

除了上面利用外激光泵浦的 PCR 外，现在人们还正在研究自泵浦 PCR^[27]，自启动、自泵浦 PCR，以及包含被动(自泵浦)相位共轭反射镜(PPCM)的 PCR^{[44] [45] [46]}。

八、光学相位共轭技术的应用

由于光学相位共轭技术能够实时地产生相位共轭波，比较理想地修正波前畸变，所以，从一开始它就受到人们的重视。随着光学相位共轭技术的深入研究和不断地发展，越来越展现出它在光计算机、光通信、光学谐振腔、无透镜成像、激光核聚变、图象处理、时间信息处理、低噪声探测及非线性激光光谱学中有极其诱人的应用前景。

在这一节中，我们仅举几例，原理性地说明光学相位共轭技术的应用。

1. 自适应光学

由于相位共轭波通过畸变介质后能够恢复到原来波的状态，所以可将光学相位共轭技术应用于自适应光学。其基本原理可以用图 8-52 所示的激光核聚变引爆过程加以说明。

由激光器产生的高质量激光束，经过多级

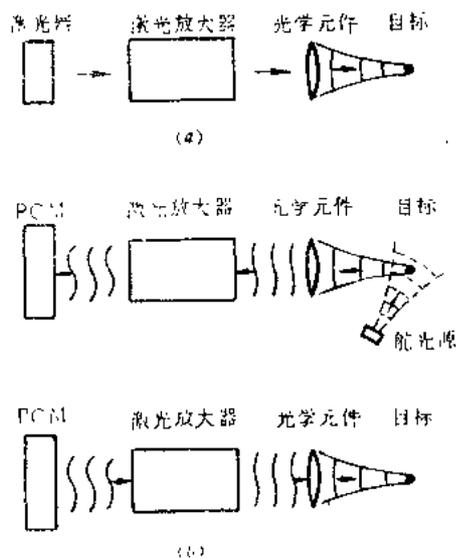


图 8-52 光学相位共轭技术用于激光核聚变

放大后,达到引爆之能量,然后,经过一系列准直元件聚焦在靶子上,进行引爆(如图8-52(a)所示)。显然,任何光路元件的不均匀性及调整的不精确性,都将影响引爆性能。所以,这种系统对激光放大器和准直元件的均匀性、加工精度、调整精度提出了非常苛刻的要求。如果在该系统中采用相位共轭技术,就可较好地解决这个问题。如图(b)所示,首先由舵光源产生舵信号光照射目标,其漫反射光的一部分进入准直元件及光放大器,这部分光一方面被放大,同时也在传播过程中带上了由这些元件的不均匀性造成的畸变信息。这个畸变了舵信号光照射到PCM上,即产生共轭相位共轭光,它将严格地沿舵信号的光路反向传播,通过放大器和准直元件后,一方面被放大到引爆所需要的能量,另一方面也消除了由这些元件不均匀性及调整不精确带来的畸变,精确地聚焦在目标上,其波前状态与舵信号照射目标的散射光相同。由此可见,一旦产生了照射目标的舵信号光,其它过程便可自动地完成。因此,这种系统与有复杂装置和精确要求的经典自适应光学系统完全不同,由于光学相位共轭技术的采用,大大降低了对于各个光路元件均匀性、加工精度的要求。

类似地考虑,还可以把相位共轭技术应用于激光大气通讯。如图8-53所示,若要将B站的信息通过人造卫星传到A站,可以首先由人造卫星向装有PCM的B站发射舵信号光,该光到达B站时,带有了大气的畸变信息。被PCM产生的背向相位共轭光,经过信息调制后,将沿着舵信号光路反向传到人造卫星上,既消除了人造卫星到B站之间的大气不均匀性的影响,又传递了信息。在人造卫星上,欲传递的信息被解调出来。其后,来自A站的舵信号光射到人造卫星上的PCM,实时地产生共轭相位共轭光,它在被传递的信息调制后,沿着舵信号光路反向传到A站,既消除了A站至人造卫星间的大气效应的影响,又将信息精确地传到A站。

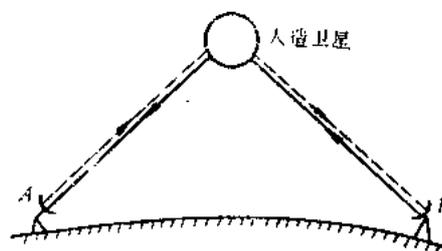


图 8-53 光学相位共轭技术用于激光人造卫星通讯

同样的设想还可以用于高激光能量的传递。现在,为了解决能源问题,许多人都设想在空间轨道站上收集太阳能,然后,将其转换为激光能量送到地面上来。这样一种计划有许多问题需要解决。例如,空间轨道站发出的激光束必须要消除大气的不均匀性引起的畸变;具有非常小的发散角;必须能同时向多个不同的(静止的或运动的)地面接收站传送能量等。如果在轨道站上采用PCM就可能解决这些问题,将激光能精确地送到各地面站。

2. 图象传递

将相位共轭技术应用于图象传递的一个典型实例是多模光纤中的图象传递。

假设多模光纤中的复正交本征模为

$$E_{m,n}(x,y)\exp(i\beta_{m,n}z).$$

其中 m,n 表示第 (m,n) 个本征模式, $\beta_{m,n}$ 为波数。被传递图象信息调制的光在 $z=0$ 处入射到光纤中,光场表示式为 $f_0(x,y,t)$,它可按完全正交本征模函数组展开,即

$$f_0(x,y,t) = \sum_{m,n} A_{m,n} E_{m,n}(x,y)\exp(-i\omega_1 t). \quad (8.8-1)$$

该光在光纤内传过长度 l 后,在输出面上的光场为

$$f_1(x, y, t) = \sum_{m, n} A_{m, n} E_{m, n}(x, y) \exp(i\beta_{m, n}L) \exp(-i\omega_1 t), \quad (8.8-2)$$

其中的每一个本征模都有一个相移 $\beta_{m, n}L$ 。由于光纤的模式色散,不同模将产生不同的相移。因此, $f_1(x, y, t)$ 相对 $f_0(x, y, t)$ 发生了图象失真。为了消除这种模式色散引起的图象失真, 可以采用如图8-54所示的三波混频相位共轭的方法: 将光纤 $z=L$ 面上的光波射到非线性晶体上, 同时还射入频率为 ω_3 的均匀平面波, 由于二阶非线性极化率的作用, 将产生一个频率为 ω_2 的散射光, 它也可以展为光纤本征模的函数组合, 其每个分量皆为入射光相应本征模的相位共轭, 即

$$f'_1(x, y, t) = \sum_{m, n} A_{m, n}^* E_{m, n}^*(x, y) \exp(-i(\omega_1 t + \beta_{m, n}L)). \quad (8.8-3)$$

其中

$$\omega_3 = \omega_1 + \omega_2.$$

如图8-55所示, 若使这个光再传过长度为 L 的同样的多模光纤, 由于相位共轭的特性, 即

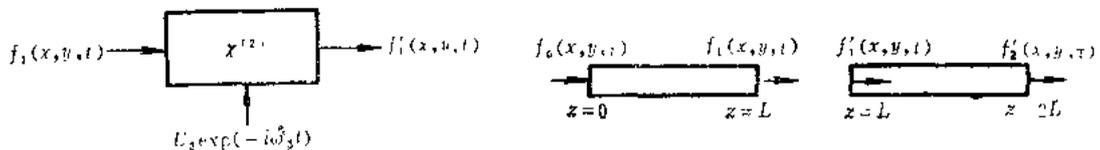


图 8-54 三波混频相位共轭结构示意图

图 8-55 修正多模光纤图象传递失真的物理过程

可消除模式色散的影响, 输出光场为

$$f'_2(x, y, t) = \sum_{m, n} A_{m, n}^* E_{m, n}^*(x, y) \exp(-i\omega_2 t). \quad (8.8-4)$$

最后, 再将该光射入非线性晶体, 利用三波混频过程, 产生 $f'_2(x, y, t)$ 的相位共轭光 $f_2(x, y, t)$, 即

$$f_2(x, y, t) = \sum_{m, n} A_{m, n} E_{m, n}(x, y) \exp(-i\omega_1 t). \quad (8.8-5)$$

它的空间分布与入射光完全一样。因此, 当采用了相位共轭技术后, 光在多模光纤中传过 $2L$ 距离, 就可以完全再现入射场, 即

$$f_2(x, y, t) \propto f_0(x, y, t). \quad (8.8-6)$$

当然, 为了实现这种图象传递系统还存在着许多具体问题, 例如, 寻找两根模式色散完全相同的光纤就有困难。

3. 无透镜成象

在微电子工业的照相制版中, 为了将复杂的图样精确地投影到光刻胶上成象, 对光学元件的均匀性、调整精度提出了严格的要求。实际上, 要满足这种要求, 还存在着不少的困难。如果采用光学相位共轭技术, 利用无透镜成象系统, 就可以解决这个问题。图8-56是这种无透镜成象系统的原理图。如图所示, 照明光束透过掩膜, 由分束器耦合到放大器中, 经过放大后, 射到PCM上, 由于非线性作用而产生的相位共轭反射光经放大器放大,

再由分束器直接射到晶片的光刻胶上成象。由于相位共轭特性，这种系统无须昂贵的光学元件即可实现光的衍射极限成象；由于掩膜和光刻胶不接触，因此可以提高成象质量。这种无透镜成象技术最近已经实现。利文森 (Levenson) 指出^{[47][48]}，这种成象系统的分辨率仅由光波长限制，预计使用紫外光及新的非线性材料后，可以获得优于1000条/mm分辨率的成象系统。

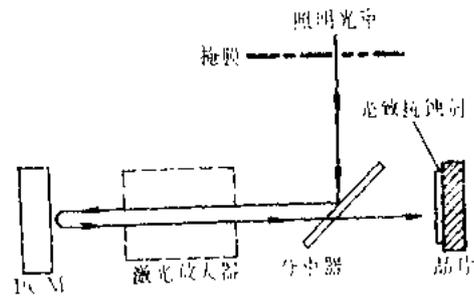


图 8-56 无透镜成象原理图

4. 实时空间相关和卷积

作为光学相位共轭技术应用于空间信息处理的一个实例，我们简单地介绍图8-57所示的实时空间相关和卷积的结构原理^[49]。如图所示，在两个透镜的公共焦面上放置非线性介

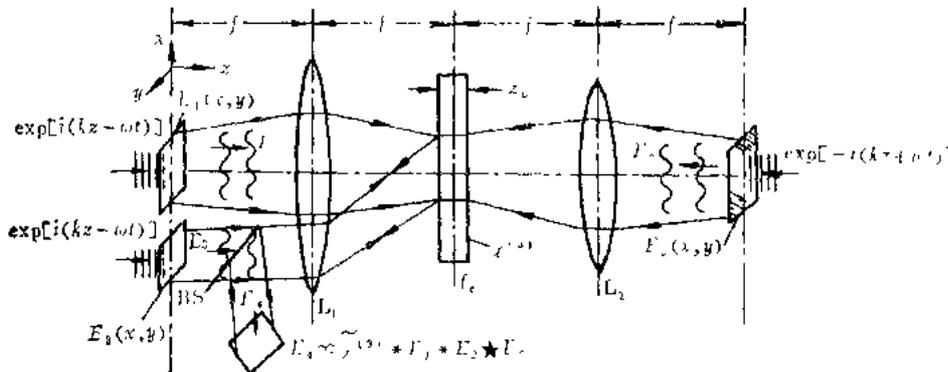


图 8-57 实时空间相关和卷积原理图

质，在透镜的另两个焦平面上放置三个空间（振幅或相位）编码的透明片，它们将三个同频率的平面波调制为有不同振幅和相位信息的输入光波 $E_1(x, y)$ 、 $E_2(x, y)$ 、 $E_3(x, y)$ 。通过透镜的傅里叶变换，它们变成非线性介质的入射光，在介质中的变换场为 \tilde{E}_1 、 \tilde{E}_2 、 \tilde{E}_3 。由DFWM作用产生的非线性极化强度为

$$P \propto \chi^{(3)} \tilde{E}_1 \tilde{E}_2 \tilde{E}_3^*$$

其输出场 E_4 即为入射场的相关与卷积运算，它基本上沿 E_3 的反向传播，在透镜 L_1 的输出面上

$$E_4 \propto \tilde{\chi}^{(3)} * E_1 * E_2 \star E_3$$

式中 \star 、 $*$ 分别为相关、卷积运算符号， $\tilde{\chi}^{(3)}$ 是三阶非线性极化率 $\chi^{(3)}$ 的空间傅里叶变换。这样一种应用，已由怀特 (White) 和雅里夫证实^[50]。

光学相位共轭技术除了用于空间信息处理外，还可用于频率滤波，时域信息处理，光学开关，时间延迟控制及逻辑运算等^[51]。此外，还可以用于双光子相干态进行低噪声量子

限探测^{[53][54]}。

综上所述,非线性光学相位共轭是相干光学中的一个新领域^[54]。它的出现对于开拓量子电子学的应用范围给出了很大的希望。特别应当指出的是,非线性光学相位共轭的概念不仅适用于光学波段,而且也适用于所有的其它电磁波段,因此,它具有更加普遍的意义。

参 考 文 献

- [1] B.A.Sichelstiel, W.M.Waters, T.A.Wild, IEEE Trans.Antennas propagat., Vol.AP-12, 150, 1960.
- [2] D.L.Fried guest ed., Special Issue on Adaptive Optics, J.Opt. Soc. Am.67, 1977.
- [3] H.J.Gerritsen, Appl.Phys.Lett.10, 237, 1967.
- [4] B.I.Stepanov, E.V.Ivakin, and A.S.Rubanov, Sov.Phys.-Dokl. 16, 46, 1971.
- [5] B.Y.Zeldovich, V.I.Popovichev, V.V.Ragulskii, and F.S.Faisullov, Sov.Phys.-JETP, 15, 109, 1972.
- [6] A.Yariv, J.Opt.Soc.Am.66, 301, 1976.
- [7] R.W.Hellwarth, J.Opt.Soc.Am.67, 1, 1977.
- [8] P.V.Avizonis, F.A.Hopf, W.D.Bomberger, S.F.Jacobs, A.Tomita, and K.H.Womack, Appl.phys.Lett.31, 435, 1977.
- [9] G.Martin and R.W.Hellwarth, Appl.Phys.Lett.34, 371, 1979.
- [10] J.Feinberg, D.Heiman, A.R.Tanguay, Jr., and R.W. Hellwarth, J.Appl.Phys.51, 1297, 1980; 52, 537, 1981.
- [11] B.Fischer, M.Cronin-Golomb, J.O.White, and A.Yariv, Opt.Lett.6, 519, 1981.
- [12] K.A.Nelson, R.J.D.Miller, D.R.Luth, and M.D.Fayer, Phys.Rev. B24, 3261, 1981; J.Appl.phys, 53, 1144, 1982.
- [13] C.V.Heer and N.C.Griffen, Opt.Lett.4, 239, 1979.
- [14] H.Hsu, Appl.Phys.Lett.34, 855, 1979.
- [15] R.Trebino and A.E.Siegman, Opt.Comm.32, 1, 1980.
- [16] Tao-Yi Fu and M.Sargent III, Opt.Lett.4, 366, 1979.
- [17] R.L.Abrams and R.C.Lind, Opt.Lett. 2, 94, 1978; Erratum, Opt. Lett.3, 205, 1978.
- [18] A.Yariv, Quantum Electronics, Second Edition, Wiley, New York, 1975.
- [19] R.C.Lind, D.G.Steel, G.J.Dunning, Opt.Eng.21,190,1982.
- [20] W.P.Brown, J.Opt.Soc.Am.73, 629, 1983.
- [21] S.M.Wandzura, Opt.Lett.4,208,1979.
- [22] D.M.Pepper and R.L.Abrams, Opt.Lett.3, 212, 1978.
- [23] J.Nielsen and A.Yariv, Appl.Opt.18, 143, 1979.

- [24] A. Yariv, *Opt. Commun.*, 25, 23, 1978.
- [25] D.M. Pepper, *Opt. Eng.*, 21, 156, 1982.
- [26] R.W. Hellwarth, *prog. Quant. Electr.*, 5, 1, 1977.
- [27] C.R. Giuliano, R.C. Lind, T.R. O'Meara, and G.C. Valley, *Laser Focus*, 55, 1983.
- [28] N.A. Kurnit, I.D. Abella, and S.R. Hartman, *phys. Rev. Lett.*, 13, 567, 1964.
- [29] C.V. Heer and P.F. McManamon, *Opt. Commun.*, 23, 49, 1977.
- [30] M. Fujita, H. Nakatsuka, H. Nakanishi, and M. Matsuoka, *phys. Rev. Lett.*, 42, 974, 1979.
- [31] N.S. Shiren, *Appl. Phys. Lett.*, 33, 299, 1978.
- [32] R.C. Lind, C.R. Giuliano, *Conf. on Laser Engineering and Applications*, Washington, D.C., June 1979.
- [33] D.M. Bloom, P.F. Liao, and N.P. Economou, *Opt. Lett.*, 2, 58, 1978.
- [34] D.M. Pepper, D. Fekete, and A. Yariv, *Appl. Phys. Lett.*, 33, 41, 1978.
- [35] E.E. Bergmann, I.J. Bigio, B.J. Feldman, and R.A. Fisher, *Opt. Lett.*, 3, 82, 1978.
- [36] V. Wang and C.R. Giuliano, *Opt. Lett.*, 2, 4, 1978.
- [37] J. AuYeung, D. Fekete, D.M. Pepper, and A. Yariv, *IEEE J. Quantum Electron.*, QE-15, 1180, 1979.
- [38] P.A. Belanger, *Opt. Eng.*, 21, 266, 1982.
- [39] A. Yariv and P. Yeh, *Opt. Commun.*, 13, 370, 1975.
- [40] L.W. Casperson, *IEEE J. Quantum Electron.*, QE-10, 629, 1974.
- [41] P.A. Belanger, A. Hardy, and A.E. Siegman, *Appl. Opt.*, 19, 602, 1980.
- [42] R.C. Lind and D.G. Steel, *Opt. Lett.*, 6, 554, 1981.
- [43] J. Feinberg and R.W. Hellwarth, *Opt. Lett.*, 5, 519, 1980; 6, 257, 1981.
- [44] M. Cronin-Golomb, B. Fischer, J.O. White, and A. Yariv, *Appl. Phys. Lett.*, 41, 689, 1982.
- [45] M. Cronin-Golomb, B. Fischer, J. Nilsen, J.O. White, and A. Yariv, *Appl. Phys. Lett.*, 41, 219, 1982.
- [46] J.O. White, M. Cronin-Golomb, B. Fischer, and A. Yariv, *Appl. Phys. Lett.*, 40, 450, 1982.
- [47] M.D. Levenson, *Opt. Lett.*, 5, 182, 1980.
- [48] M.D. Levenson, K.M. Johnson, V.C. Hanchett, and K. Chiang, *J. Opt. Soc. Am.*, 71, 737, 1981.
- [49] D.M. Pepper, J. AuYeung, D. Fekete, and A. Yariv, *Opt. Lett.*, 3, 7, 1978.
- [50] J.O. White and A. Yariv, *Appl. Phys. Lett.*, 37, 5, 1980.
- [51] T.R. O'Meara and A. Yariv, *Opt. Eng.*, 21, 237, 1982.
- [52] H.P. Yuen and J.H. Shapiro, *Opt. Lett.*, 4, 334, 1979.
- [53] N. Schubert and W. Vogel, *Opt. Commun.*, 36, 164, 1981.
- [54] A. Yariv, *IEEE J. Quantum Electron.*, QE-14, 650, 1978.

