

(2) 倒格矢 $\vec{G}_{m,n}$ 关于基波镜像对称

对比 (3.2) 式和 (3.1) 式, 发现在倒格矢 $\vec{G}_{m,n}$ 关于基波镜像对称的情况下, 基波波长大于或小于倍频匹配点的时候都有锥形二次谐波的输出, 且镜像对称。在倍频匹配的同时就有锥形谐波束输出, 且倍频匹配的亮点落在圆环内侧。增加基波波长, 亮点消失, 圆环增大, 减小基波波长时, 圆环收缩到一点。图 3.2 很清楚的给出了相位匹配示意图。

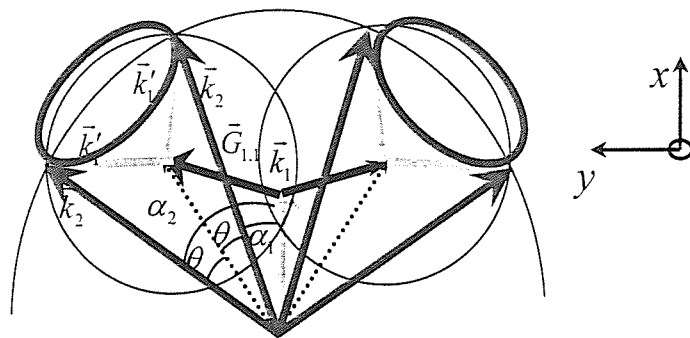


图 3.2 弹性散射与基波的和频：非共线倒格矢情形

§ 3.3 弹性散射诱导锥形二次谐波产生的实验研究

实验样品是二维六角结构的钽酸锂光学超晶格。其微观形貌图和倒空间结构见图 3.3 (亦见图 2.3, 只是涉及的倒格矢不同)。调制结构的点阵参数为 $a=9.05$ 微米。反转面积比为 40%。样品尺寸 $15.5\text{mm}(x) \times 15.5\text{mm}(y) \times 0.5\text{mm}(z)$ 。整个区域内都比较均匀, 没有畴合并现象。实验光路同第二章中检测倍频匹配点的光路, 基波来自可调谐光参量振荡器 (PL9010, Continuum, Santa Clara, CA), $\hat{z}$ 偏振, 波长可在 200nm-1700nm 范围内连续可调, 线宽 0.075cm^{-1} , 脉宽 3ns, 重复频率 10Hz。

该样品中简单的倍频过程在第二章中已经有详细介绍。这里着重研究两个有代表性的也是效率比较高的倍频匹配点。一个倍频后波长在 532nm, 通过与基波共线的倒格矢 $\vec{G}_{0,1}$ 匹配。另外一个倍频镜像对称, 倍频光波长 466.5nm, 通过与基波非共线的倒格矢 $\vec{G}_{1,1}$ 及其关于 x 轴的镜像来匹配。当调谐基波波长远离匹配

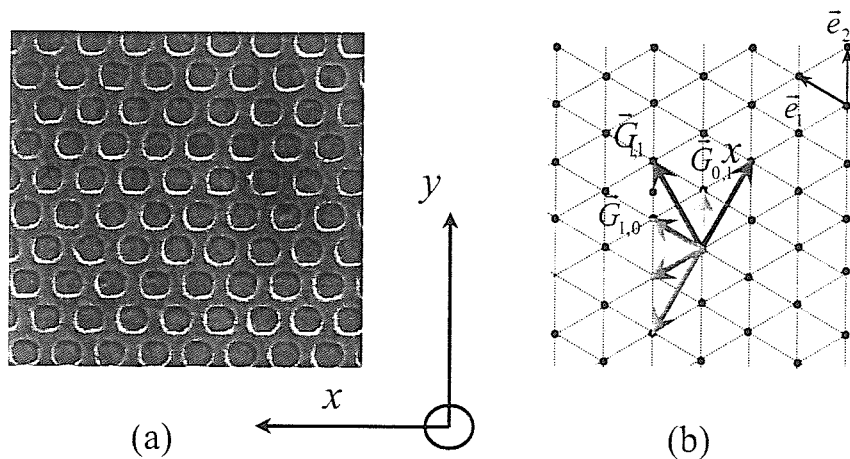
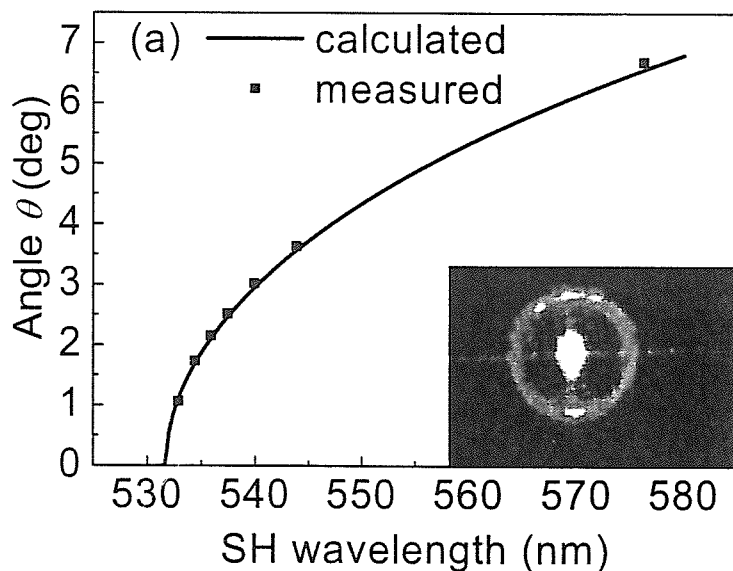


图 3.3 (a) 二维六角极化的钽酸锂晶体经腐蚀后的显微照片 (b) 其倒空间和主要倒格矢。实验中基波沿着 x 或者 y 方向入射。图中两组倒格矢大小分别为 $4\pi/\sqrt{3}a$ 和 $4\pi/a$ 。

点时，二次谐波匹配点消失，取而代之的是明亮的锥形二次谐波束，在晶体后的屏上投影为圆环，如图 3.4 所示。图 3.4 (a) 的插图是波长在 533nm 的圆环，沿基波方向轴对称分布。当基波为 1064nm 时，它就是明亮的一个匹配点，位置在这个圆环的中心。随着基波波长的增大，这个圆环的半径也在增大。

图 3.4(b) 则是另一种呈镜像分布的锥形谐波束。对应于之前讨论的倒格矢关于基波镜像对称情形，和上面情况相似，这对圆环的半径也是随着波长的增大而增大。当基波在 933nm 时，这对圆环上的内侧出现一对亮点。这就是按照式



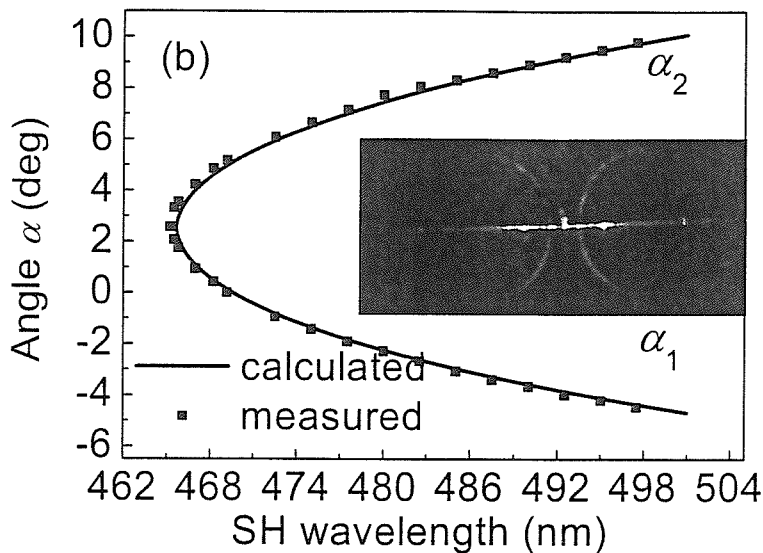


图 3.4 (a) 轴对称谐波锥角和基波波长的关系 (b) 镜像对称锥形谐波的出射角和基波波长的关系。内置插图是实验照片。

(3. 1) 匹配产生了二次谐波。当基波波长继续减小, 这个匹配条件就被破坏, 到达 930nm 时, 圆环收缩到中心形成一对稍暗的点。如果继续减少基波波长, 圆环和点都消失了。二次谐波的出射方向可以通过下式计算:

$$\cos(\theta) = \frac{|\vec{k}_2|^2 + |\vec{k}_1 + \vec{G}_{m,n}|^2 - |\vec{k}_1|^2}{2|\vec{k}_2| \cdot |\vec{k}_1 + \vec{G}_{m,n}|} \quad (3.3)$$

对于图 3. 1, 也就是倒格矢 $\vec{G}_{m,n}$ ($m=0, n=1$) 和基波共线的情形, 随着基波波长的增大, 锥形二次谐波束的锥角也在增大, 实验值和理论值吻合得相当好。对于倒格矢 $\vec{G}_{m,n}$ 和基波镜像对称的情形 (图 3. 2), $\vec{G}_{m,n}$ 就是 $\vec{G}_{1,1}$ 和它的镜像。和前一种情形非常类似, 只是现在夹角 θ 指的是 $\vec{k}_2$ 和 $\vec{k}_1 + \vec{G}_{1,1}$ 的夹角。而 $\vec{k}_1 + \vec{G}_{1,1}$ 是这种对圆环的轴向方向, 其方向是随着基波波长的减小而减小。 $\theta = 0$ 时, 也就是谐波 $\vec{k}_2$ 、散射光 $\vec{k}_1'$ 以及 $\vec{k}_1 + \vec{G}_{1,1}$ 三者共线, 对圆环收缩为一对较亮的点。实验值和理论值吻合得也相当好。这里我们定义的 α_1 和 α_2 是在 $x-y$ 平面内, 锥形二次谐波与基波的两个夹角。

需要指出的是钽酸锂是双折射晶体。在投影屏上不会是一个严格标准的圆环。然而因为实验中测到的散射角并不是太大，所以双折射效应不是很明显，计算投影环相对圆环的偏差大概为 10^{-1} 度，所以在这里可以忽略这个偏差。

当然基波的发散还可能来自于透镜聚焦。我们的实验中，基波 $\vec{k}_1$ 并未被紧聚焦，发散角很小。所以这一现象并不是由于基波发散带来的，只可能与基波的弹性散射光有关。这种弹性散射有可能来自畴界或者晶体内的非均匀性。这一非线性现象在二维光学超晶格晶体里还是首次被发现，新的空间分布花样也反应了超晶格的自身对称结构。

除了前面观察到的两种空间分布的锥形二次谐波束，我们将样品转 90 度，也就是基波沿晶体的 y 方向入射。我们能够观察到两对锥形谐波束同时出现，这是因为同时有两对倒格矢参与作用。图 3.5 (a) - (d) 就是调谐基波时两对圆环的演变情况。锥形谐波束能够在很宽波长范围内调谐，几乎覆盖了可见光波段。两对倒格矢分别为 $\vec{G}_{1,0}$ 及其镜像和 $\vec{G}_{1,1}$ 及其镜像。

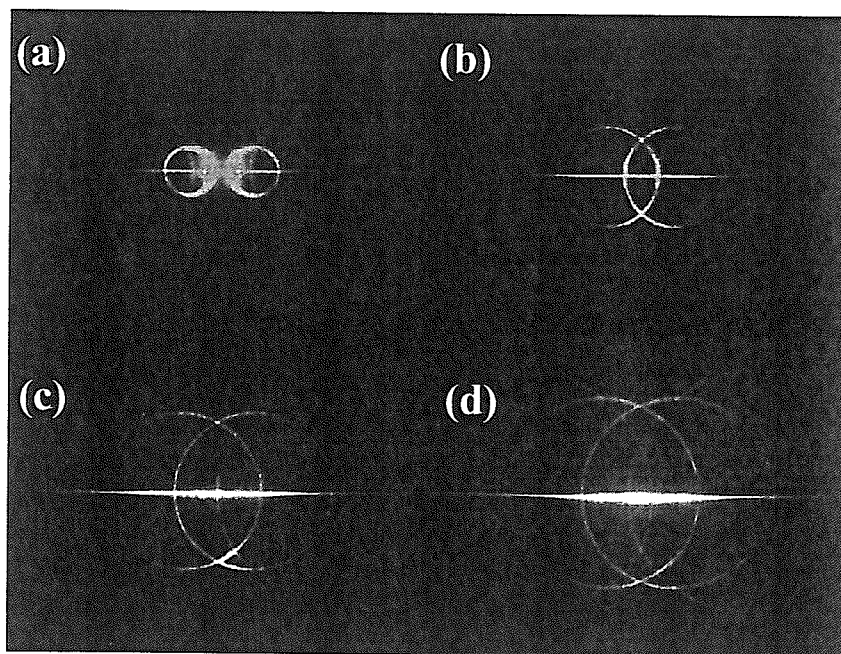


图 3.5 两对镜像对称的锥形谐波束的投影图，基波方向沿着 y 方向。

(a) $\lambda_1 = 1.12 \mu\text{m}$; (b) $\lambda_1 = 1.13 \mu\text{m}$; (c) $\lambda_1 = 1.15 \mu\text{m}$; (d) $\lambda_1 = 1.17 \mu\text{m}$.

既然弹性散射光一般都有角度分布，那么不同角度的散射光参与产生的锥形

谐波束的强度也应有相对应的分布。图 3.6 就是图 3.4(a)轴对称锥形谐波的定量测量结果。可以看出锥形谐波束的锥角小于 4 度时, 锥形谐波强度较大, 因为参与和频的近前向的弹性散射光比较强。解非线性耦合方程给出 $I(L, 2\omega) \propto I(\omega)I'(\omega)L^2$, 其中 L 是非线性耦合长度, $I(\omega)$ 是基波 $\vec{k}_1$ 的强度, $I'(\omega)$ 是弹性散射光 $\vec{k}_1'$ 的强度, 而 $I'(\omega) = \gamma I(\omega)$, γ 是散射系数。所以锥形谐波束的强度应正比于基波强度的平方。图 3.6 中的插图正是测量锥角 $\theta = 0.5^\circ$ 时的谐波与基波强度关系, 数值拟合正好符合平方关系。在基波大约 25.7mW 时获得谐波强度 3.55mW, 对应转换效率为 14%。

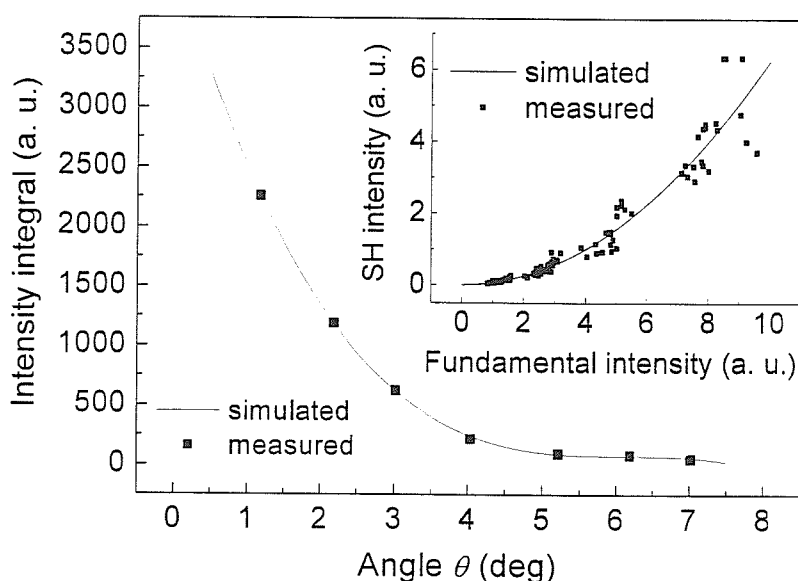


图 3.6 轴对称锥形谐波光束的强度角度关系, 插图是谐波光束和基波的强度关系

最近有关文献相继报道了几种新型的非线性参量作用, 例如具有贝塞尔函数分布的基波通过周期极化的 KTP 晶体后能产生锥形二次谐波^[2], 经由周期极化的钽酸锂晶体可以产生中空的差频光束^[3], 具有反平行畴的铌酸钡晶体在沿晶轴方向入射的基波的激发下也会产生一种锥形的二次谐波束^[4]。另外, 这种锥形谐波束甚至可以在单畴晶体中^[5]或者是一个各向同性材料中产生^[6]。这些实验研究都对基波有特殊的要求或者是同时需要两束基波。而本章研究的锥形光束的特性和产生原理和上面工作的都不相同, 对用于产生这种锥形谐波束的基波没有任何

特殊的要求。我们的对非线性极化率 $\chi^{(2)}$ 的调制使得锥形二次谐波的产生过程因为准相位匹配而大大增强；并且红外波段的散射信号与基波耦合后转化到可见光波段后易于探测。进一步研究这种锥形光束，我们不但可以获得散射光的空间分布情况还可以知道这种调制材料的结构信息。

近来出现一些从其他晶体中产生的散射花样的报道，例如在光折变晶体比如：掺铋、掺铁的铌酸锂晶体以及掺镉的铌酸钡晶体中出现的和参量过程有关的由环和线组成的散射花样^[8,9]。因为铌酸锂也是一种光折变晶体，会不会也有相同的效应？我们在 170°C 下重做这个试验，发现现象几乎没有变化，只不过由于折射率的温度依赖，圆环的直径在不同温度大小不同。根据文献报道，铌酸锂晶体在 80°C 以上光折变效应就应消除。所以我们观测到的这种锥形二次谐波应该和光折变效应无关。

在一维周期极化的铌酸锂或者铌酸锂超晶格中我们也发现了类似的锥形谐波输出。对于一维准周期极化的结构，在投影屏上是一组同心的圆环。这一组同心圆的相对半径大小直接反映了微观极化图案的信息。对这组同心锥形谐波光束的研究，可以一次性得到弹性散射光的角分布情况，与调谐入射波长相比，更为简单、高效^[10]。

值得一提的是，本章中所说的弹性散射只是由于晶体内部本身的不均匀性和折射率的空间涨落产生的，如果故意增强散射中心或者引入另外一束发散的基波，这种锥形光束的强度还可以大大提高。

§ 3.4 本章小结

本章介绍的光学超晶格中的锥形二次谐波携带了弹性散射的所有信息。因为非线性和频过程将散射光子的能量提高了一倍，更易于探测，是一种用非线性光学方法研究晶体内部散射的有用技术。同时，这种锥形光束的产生，启发我们可以通过频率转换的方法获得新型空间衍射花样，并在光学微操控、光空间整形和光子纠缠等方面找到应用。

【参考文献】

- [1] G. S. He and S. H. Liu, *Physics of Nonlinear Optics*, World cientific (2003)
- [2] A. Piskarskas *et al.*, Opt. Lett. **24**, 1053 (1999).
- [3] G. Giusfredi *et al.*, Phys. Rev. Lett. **87**, 113901 (2001).
- [4] A. R. Tunyagi *et al.*, Phys. Rev. Lett. **90**, 243901 (2003).
- [5] J. A. Giordmaine, Phys. Rev. Lett. **8**, 19 (1962)
- [6] K. D. Moll *et al.*, Phys. Rev. Lett. **88**, 153901 (2002).
- [7] P. Xu *et al.*, Phys. Rev. Lett. **93**, 133904 (2004)
- [8] M. Goulikov *et al.*, Phys. Rev. Lett. **86**, 4021 (2001).
- [9] M. Goulikov *et al.*, Phys. Rev. Lett. **91**, 243903 (2003).
- [10] Z. D. Xie, G. Zhao, P. Xu *et al.*, J. Appl. Phys. **101**, 056104 (2007)

第四章 光学超晶格中的拉曼散射

§ 4.1 引言

光与物质的相互作用除了产生弹性散射，还会有伴随能量转移的非弹性散射。拉曼散射就是最常见的一种非弹性散射。最早由印度物理学家拉曼(C.V. Raman)在 1928 年研究液体苯的散射光谱时发现的。激光发明之前，由于激发光源的方向性、单色性都不好，强度也低，只能看到微弱的自发拉曼散射。直到 1961 年，也就是激光发明后的第二年，在用硝基苯做 Q-switched 介质的红宝石激光器中，观察到了除红宝石的 694.3nm 激光谱线还有一支方向性很好的 767nm 的激光伴线，这个 767nm 相对于 694.3nm 的频移就是硝基苯分子的斯托克斯拉曼散射光。这是第一个受激拉曼散射实验。受激拉曼散射的强度和方向性等相比自发拉曼散射都有很大提高，后来发展成为人们探测物质结构的有力工具^[1]。拉曼光谱学现在已经是激光光谱学一个重要分文，应用面十分广泛。在化学方面，有有机和无机分析化学、生物化学、石油化工、高分子化学、催化和环境科学、分子签定、分子结构研究等；在物理学方面被用于发展新型激光器、产生超短光脉冲、研究分子瞬态寿命、相干时间、固体能谱等。

§ 4.2 声子极化激元拉曼散射

拉曼散射起源于介质内晶格振动或者分子振动，拉曼频移一般都对应声子本征振动频率，这就是一般传统意义上的拉曼散射。随着对固体元激发研究的深入，整个声子极化激元色散曲线上的极化激元都可以参加到拉曼散射过程中，就是声子极化激元拉曼散射(P-P Raman)。图 4.1 是典型的声子极化激元的声学支的色散曲线，图中的 $\omega_{p0} \approx 200\text{cm}^{-1}$ 对应钽酸锂晶体的最低 A_1 声子模式。拉曼系数

$$\chi_R(\Delta\omega) \propto \frac{2\Gamma}{\omega_{p0} - \Delta\omega + i\Gamma}, \text{ 其中 } \Delta\omega \text{ 是极化激元的频率，也就是实际的拉曼频移，}$$

Γ 就是共振拉曼时的谱线宽度。很显见，如果拉曼频移在共振区 ω_{p0} （例如 200cm^{-1} ）附近，拉曼系数较大，如果极化激元远离声子共振峰甚至小到几十或

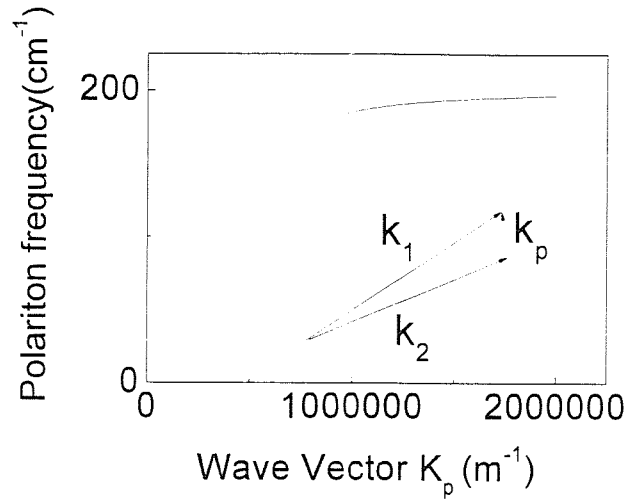


图 4.1 声子极化激元声学支色散关系

几个波数时,拉曼系数就非常小了,主要的贡献就是一个纯粹的二阶非线性过程,非线性系数是 $\chi^{(2)}(-\omega_p; \omega_0, \omega_R)$ 。这种远离共振区的声子极化激元拉曼散射过程非常弱,很难探测。

§ 4.3 增强声子极化激元拉曼散射的实验研究

前面章节中已充分展示了介电体超晶格中准相位匹配放大弱弹性信号的能力。本章的研究重点在如何利用光学超晶格来产生和放大声子极化激元拉曼散射信号。这样我们需要设计合适的超晶格结构完成下面几个过程:

- (1) 相干声子极化激元的激发;
- (2) 声子极化激元和泵浦光的耦合,形成不同阶相干拉曼的种子光场;
- (3) 不同阶拉曼的种子光场通过准相位匹配光参量过程进一步放大。

实验证明,我们确实可以在一块光学超晶格中实现了声子极化激元拉曼散射的产生和放大,斯托克斯散射和反斯托克斯散射最高分别达到 11 阶,且最低拉曼频移低到 2cm^{-1} ,实现了频率间距可调的梳状拉曼激光的输出。

第一步 相干声子极化激元的制备

类似于相干反斯托克斯拉曼散射(CARS, $\vec{k}_{as} = 2\vec{k}_1 - \vec{k}_2$, $\omega_1 > \omega_2$)和相干斯

托克斯拉曼散射(CSRS, $\vec{k}_s = 2\vec{k}_1 - \vec{k}_2$, $\omega_1 < \omega_2$), 相干声子极化激元必须由两个激光场共同激发, 且两个激发光场的波矢之差和能量之差正好落在声子极化激元的色散曲线上, 也就是说这个过程也必须满足动量守恒和能量守恒条件:

$$\vec{k}_p = \vec{k}_1 - \vec{k}_2, \quad \omega_p = \omega_1 - \omega_2. \quad (4.1)$$

这个过程可以自动相位匹配, 不需要光学超晶格提供额外的相位补偿。实际上远离声子共振峰的极化激元的色散关系基本上不受共振的影响。此时极化激元的产生实际上是 $\chi^{(2)}$ 的差频过程, 只不过差频场的波矢远小于两个激发场的波矢。该激发过程的相位匹配角非常小, 例如用 $1.0\mu\text{m}$ 附近的激光场激发 1THz 的声子极化激元, 需要两个激发光场的夹角只有 8mrad 左右。为了使两个激发光场的频率可调, 我们选择了一个准相位匹配的差频过程, 让 532nm 左右的泵浦光和 1064nm 左右的信号光在同一块超晶格中实现差频。泵浦光场较强, 信号光场较弱, 产生的差频光频率仍然在 1064nm 附近。这样原来的信号光和新产生的差频光场就是激发极化激元的两个激发光场。我们选择可调谐光参量振荡器(PL9010, Continuum, Santa Clara, CA)作为光源, 它的泵浦源的波长是 355nm 泵浦, 所以输出的二支参量光分别可以在 532nm 和 1064nm 附近调谐, 成为本实验中注入超晶格的泵浦光和信号光, 重复频率和脉宽相同, 都是 10Hz , 脉宽 3ns , 线宽 0.075cm^{-1} , z 偏振。分别用 $f = 400\text{mm}$ 和 $f = 200\text{mm}$ 的透镜将泵浦光和信号光聚焦到晶体内部, 两束光的发散角为 10mrad 和 16mrad 。这样透镜聚焦带来的发散已经可以保证激发极化激元所需的匹配角度。晶体仍然是图 2.3 所示的六角极化的钽酸锂光学超晶格。在室温下, x 方向的 $\vec{G}_{0,1}$ 倒格矢正好可以满足上面的差频过程, 实验光路示意图如图 4.2。实际上单束激光入射到晶体中应该也可以激发声子极化激元, 产生拉曼频移, 就像通常的拉曼散射一样。但是对于远离声子共振峰的极化激元这是很难的, 采用两个相干光束共同激发, 可以激发出相干极化激元场, 这对产生较强的斯托克斯和反斯托克斯信号较为有利。

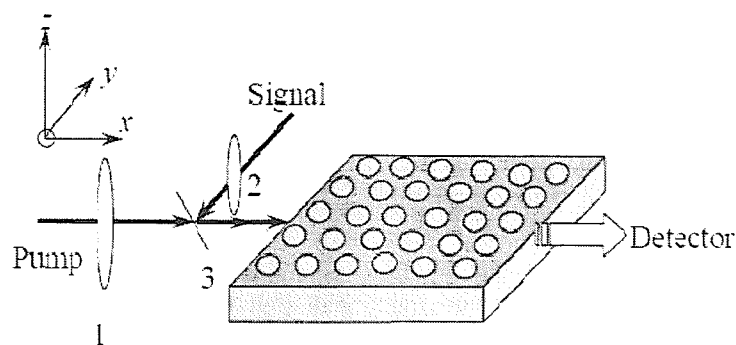


图 4.2 实验光路示意图，1 和 2 是聚焦透镜，3 是对泵浦高透对信号高反的合束镜。

第二步 高阶拉曼散射种子光场的产生

根据4.1式激发的声子极化激元，可以被两束激光相干激发，使得信号光和差频光附近都产生了新频率的拉曼散射光，其中反斯托克斯散射的频率为

$\omega_{as(n)} = \omega_1 + n\omega_p$ ，斯托克斯光的频率为 $\omega_{s(n)} = \omega_2 - n\omega_p$ ， $n=1,2,3\cdots$ 是拉曼散射的

阶数。该过程仍然需要满足动量守恒条件：

$$\vec{k}_{as(n)} = \vec{k}_{as(n-1)} + \vec{k}_p \text{ 和 } \vec{k}_{s(n)} = \vec{k}_{s(n-1)} - \vec{k}_p, \quad (4.2)$$

这里 $\vec{k}_{as(n)}$ 和 $\vec{k}_{s(n)}$ 分别是第 n 阶反斯托克斯和斯托克斯拉曼散射的波矢。对于第一

阶斯托克斯和反斯托克斯拉曼散射波矢即 $\vec{k}_{as(1)}$ 和 $\vec{k}_{s(1)}$ ，我们重新定义 $\vec{k}_{as(0)} = \vec{k}_1$

和 $\vec{k}_{s(0)} = \vec{k}_2$ 。这样（4.2）式就包含了（4.1）式，适用于不同阶拉曼散射过程，

实现了一个级联的“两步式”自动相位匹配。图 4.3 是这种级联过程的示意图。

相干声子极化激元的激发为不同阶拉曼散射做了准备。产生的声子极化激元拉曼光谱应该有 $2(n+1)$ 个拉曼峰并且各个拉曼峰之间等间距的都是声子极化激元的频率，这是拉曼散射信号的频域分布。至于空间分布情况则比较简单，因为各阶拉曼散射的散射角都很小，所以最后的空间分布还是由最初的准相位匹配的差频过程决定。当泵浦波长超过 531.64nm 时（相应的信号光波长 1068.46nm，差频光则在 1058.15nm），准相位匹配的差频过程是不共线的。也就是说 $\vec{k}_1$ 、 $\vec{k}_2$ 与 $\vec{k}_0$ 不

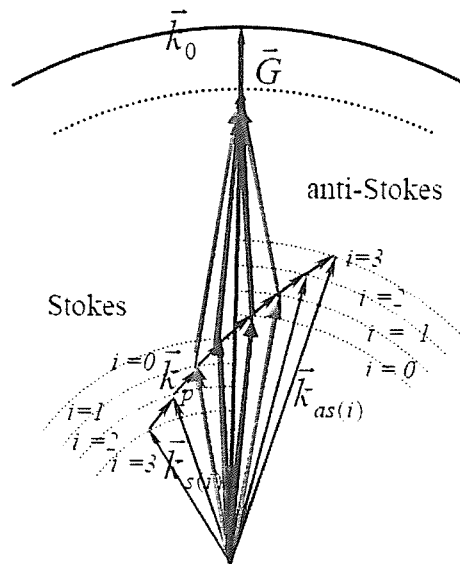


图 4.3 级联多阶斯托克斯和反斯托克斯拉曼散射产生的原理图。仅画出前三阶为例。图中有两个平行四边形，内置的是初始的准相位匹配产生两相干激发光场的过程，外面的则是准相位匹配参量放大各阶拉曼对的过程。

共线构成一个动量三角形，在晶体后面的投影屏上可以观察到一个拉曼散射光构成的圆环。级联的各阶拉曼散射都在这个圆环上。实验中，当泵浦光波长从 531.64nm 调到 532.39nm 时，屏上的各阶拉曼散射花样就从一个圆斑发展成为这样一个圆环，圆环的半径随拉曼频移的增加而缩小，和理论估计吻合的很好。实验中，通过改变泵浦光的波长激发的相干极化激元场在 $2 \sim 42\text{cm}^{-1}$ 范围内，位于 $A_1\text{-TO}$ 声子模的低频段。在这样的低频区间，声子极化激元很可能受到迪拜弛豫模式（Debye relaxation mode）、缺陷模或者其他的低频激发模式的影响。不过很多文献工作中提及在这个区域的极化激元的吸收系数非常小，所以这一区域的极化激元非常类似于透明区域的光子^[2]，而不象声子。

第三步 相干拉曼散射的准相位匹配参量放大

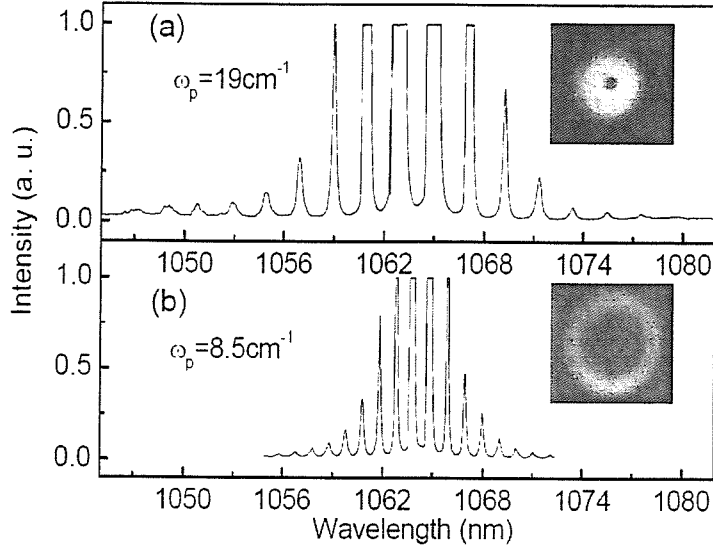


图 4.4 拉曼散射光谱, 对应的极化激元频率(a) $\omega_p = 19 \text{ cm}^{-1}$ (b) $\omega_p = 8.5 \text{ cm}^{-1}$

图 4.4 是两个具有代表性的声子极化激元拉曼谱, 极化激元频率分别在 $\omega_p = 19 \text{ cm}^{-1}$ 和 8.5 cm^{-1} 。内置的插图是从晶体中出来的拉曼散射的空间分布。我们看到, 拉曼频谱具有对称分布, 由准相位匹配差频出来的 $\vec{k}_1$, $\vec{k}_2$ 强度基本相同, 两边的每级斯托克斯和反斯托克斯的强度也基本相同, 图中拉曼散射的最高阶为 8 阶。高阶的拉曼散射信号较弱, 不过随着阶数 n 的增加, 近邻低阶的强度比值 $I_{as(n)} / I_{as(n-1)}$ 越来越大。例如图 4.4 (a) 中的反斯托克斯散射谱, 相邻阶的强度比值都不一样, 随阶数增高而增加。当 $n=1$ 时, $I_{as(n)} / I_{as(n-1)} = 14\%$, 而 $n=8$ 时, $I_{as(n)} / I_{as(n-1)} = 70\%$ 。在泵浦功率为 4mW 时, 差频出来的 $\vec{k}_1$ 和 $\vec{k}_2$ (或者叫零阶斯托克斯和零阶反斯托克斯) 的功率为 0.01mW , 此时最高阶拉曼散射的功率为 100nW 。由于受到谱仪分辨率(1.5cm^{-1})的限制, 所有测得的拉曼峰的半宽都是 1.5 cm^{-1} , 没能得到各级拉曼散射之间的带宽的精细差别。

研究这种级联“两步走”声子极化激元拉曼散射的强度, 我们需要定义一个等效三阶非线性系数 $\chi_p^{(3)}$ 以区别于一般的拉曼散射涉及或者四波混频涉及的直接非线性系数 $\chi_d^{(3)}$, $\chi_p^{(3)} = -\frac{4\pi\omega_p\chi_1^{(2)}\chi_2^{(2)}}{cn_p\alpha_p^2}$ [3], 其中 $\chi_1^{(2)} = (1-2D)\chi^{(2)}(-\omega_p; \omega_1, -\omega_2)$, $\chi_2^{(2)} = (1-2D)\chi^{(2)}(-\omega_{as(n)}; \omega_{as(n-1)}, \omega_p)$, α_p 是极化激元的吸收系数, n_p 是极化

激元的折射系数, c 是真空中光速。我们看到 $\chi_1^{(2)}$ 和 $\chi_2^{(2)}$ 分别对应极化激元激发过程和极化激元被散射过程的非线性系数, 由均匀钽酸锂材料中的二阶非线性极化张量 $\chi^{(2)}$ 和畴反转的占空比决定。在这块六角极化的准相位匹配钽酸锂晶体中利用的是 $\chi^{(2)}$ 的最大分量 d_{33} , 并且占空比的选取不仅决定了第一步的准相位匹配差频效率而且同时决定了极化激元拉曼谱的激发的强弱。实验上我们确实观察到了整个拉曼散射谱强度随占空比的变化。我们要注意的, 除了极化激元导致的拉曼散射, 实际上直接的四波混频(FWM)也可以产生这种多峰拉曼结构, 该过程利用的是三阶非线性系数 $\chi_d^{(3)}$, 满足的动量条件是 $\vec{k}_{as(n)} = 2\vec{k}_{as(n-1)} - \vec{k}_{as(n-2)}$ 和 $\vec{k}_{s(n)} = 2\vec{k}_{s(n-1)} - \vec{k}_{s(n-2)}$ 。但是在拉曼频移远离声子共振峰 A_1 的情形, $\chi_d^{(3)}$ 比上面讨论的等效三阶非线性系数 $\chi_p^{(3)}$ 要小得多, 可忽略不计。

然而等效非线性系数 $\chi_p^{(3)}$ 还是非常小, 理论估计各级拉曼散射强度应该比邻近低很多量级。调研历史上关于声子极化激元拉曼散射的工作, 发现确实非常之弱, 探测本身就是难题。例如: 在 GaP 中利用 ns 激光激发的拉曼散射效率为 $10^{-7} \sim 10^{-6}$ ^[4]; 在方解石中利用 ps 激光器散射效率为 10^{-3} ^[5]; 在体块钽酸锂中利用 fs 脉冲激发效率为 10^{-3} ^[6]。另外, 在光纤^[7]或共振腔中^[8], 直接的 $\chi^{(3)}$ 过程如受激拉曼散射(SRS)和直接的四波混频(FWM), 利用 ps 或 ns 脉冲激发的效率为 $10^{-5} \sim 10^{-3}$ 。在其它某些利用 fs 泵浦^[9]或者使用高拉曼活性的液体、气体等情形^[10], 拉曼散射效率会有所提高。前人工作的结果与理论上关于 $\chi_p^{(3)}$ 或 $\chi_d^{(3)}$ 的估计是一致的。所以, 我们利用 ns 脉冲泵浦并且激发的极化激元频率远离声子共振峰, 能够获得高效(14%~70%)的高阶($n=8$)拉曼散射, 另有机制。

这个信号放大机制就是准相位匹配的参量放大作用, 这种放大通常呈指数增长^[11], 增益相当高。那么究竟是怎样的放大过程呢? 不难发现, 每一级的斯托克斯和反斯托克斯拉曼对可以互为种子信号, 经由泵浦光 $\vec{k}_0$ 放大。满足的动量关系和第一步中差频场的产生类似:

$$\vec{k}_0 = \vec{k}_{as(n)} + \vec{k}_{s(n)} + \vec{G} \quad \text{和} \quad \omega_0 = \omega_{as(n)} + \omega_{s(n)}, \quad (4.3)$$

其中 $n=1,2,3\cdots$, 代表各级拉曼散射对。其实 $n=0$ 时, 等式 4.3 就表示第一步差频场的产生。利用的倒格矢仍然是 $\vec{G}_{0,1}$ 。

§ 4.4 增强声子极化激元拉曼散射的理论处理

本节对光学超晶格中极化激元拉曼散射的过程做数学处理。本征的极化激元的产生和散射过程实际上非常弱，通过相干激发也只能为不同阶拉曼散射提供种子。准相位匹配的参量放大过程才是最后我们能够观察到高效高阶拉曼谱的主要原因。于是各阶斯托克斯和反斯托克斯电场振幅， $E_{s(n)}$ 和 $E_{as(n)}$ 的耦合关系应该遵循如下的耦合波方程：

$$\begin{cases} \frac{dE_{as(n)}}{dx} = -i \frac{\omega_{as(n)}}{n_{as(n)}c} (f_{as(n)} \chi_p^{(3)} E_{as(n-1)} E_1 E_2^* + \chi_{eff}^{(2)} E_0 E_{s(n)}^*) \\ \frac{dE_{s(n)}}{dx} = -i \frac{\omega_{s(n)}}{n_{s(n)}c} (f_{s(n)} \chi_p^{(3)} E_{s(n-1)} E_2 E_1^* + \chi_{eff}^{(2)} E_0 E_{as(n)}^*) \end{cases}, \quad (4.4)$$

其中 E_0 、 E_1 和 E_2 分别代表泵浦光、信号光和差频光场。

$\chi_{eff}^{(2)} = \frac{f \chi^{(2)}(-\omega_{as(n)}; \omega_0, \omega_{s(n)})}{2}$ ，是准相位匹配差频过程和参量放大过程的有效非线性系数， $f = 0.34$ 是倒格矢 $\vec{G}_{0,1}$ 的傅立叶系数。 $n_{as(n)}$ 和 $n_{s(n)}$ 是各个拉曼峰对应的

的折射率，不过因为频移不大，所以应该和信号光(或者差频光场)的一样。 $f_{as(n)}$ 和 $f_{s(n)}$ 为各阶拉曼散射的空间因子，它由声子极化激元的线性衍射及极化激元场与拉曼光场的空间重叠决定^[11]。4.4 式中第一项描述的是“两步走”高阶拉曼散射起源项，第二项是参量放大项。第一项远远小于第二项的贡献，所以我们认为第一项只是提供了一个微弱的拉曼种子信号。这里有几个近似：(1) 泵浦无损耗近似，电场强度 E_0 认为是常数，因为实验中泵浦的消耗远小于 5%；(2) 高阶极化激元直接激发没有考虑在内；(3) 能量单向流动，即只从低阶流向高阶，并没有考虑回流项。这个数学处理可以用来研究传统的声子极化激元拉曼散射，只不过在没有参量放大的情形，散射效率都很低。严格的数值计算比较复杂，有很多参数的选择问题。这里作合理的简化：忽略第一项的耦合作用，直接用一个很小的初始信号代替，这样就简化为一个初值为 $I_{as(n)}(0)$ 和 $I_{s(n)}(0)$ 的参量放大过程。于是，我们可以得到拉曼散射光强和泵浦光强度的关系，规律与单一的参量下转换过程相同^[11]，以反斯托克斯拉曼散射为例，

$$G_{as(n)}(l) = \left(\frac{I_{as(n)}(l)}{I_{as(n)}(0)} - 1 \right) \propto \frac{2\omega_{as(n)}\omega_{s(n)}\mu_0(\chi_{eff}^{(2)})^2}{n_0 n_{as(n)} n_{s(n)} \epsilon_0 c^3} I_0 l^2, \quad (4.5)$$

其中 l 是晶体作用长度, n_0 是泵浦光的折射率。我们得到增益系数 $G_{as(n)}(l)$ 和泵浦强度 I_0 、晶体长度平方成正比。

为了验证 (4.5) 式的功率关系, 我们选择在几个不同的泵浦功率测量拉曼散射强度。前提是保证 $\vec{k}_1$ 和 $\vec{k}_2$ 的强度不变, 也就是尽量保证初始种子信号 $I_{as(n)}(0)$ 不变。图 4.5 (a)、(b) 是泵浦功率分别为 3.0 mW 和 8.2 mW 时的拉曼散射谱。很显然高泵浦功率下能够产生更高阶的拉曼散射, 且各阶的拉曼散射强度普遍有提高。内置的插图是一阶拉曼散射的强度随着泵浦功率的线性增长关系, 与 (4.5) 式吻合。继续增加泵浦功率, 拉曼散射强度应该会呈现更快的指数上升趋势。

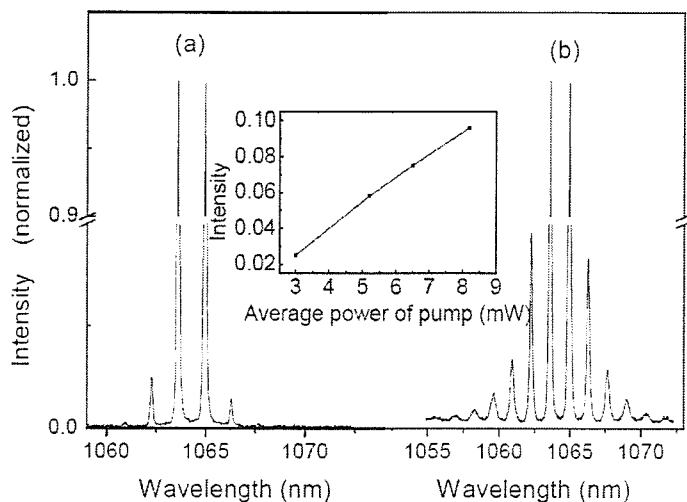


图 4.5 泵浦波长 $\lambda_0 = 531.89 \text{ nm}$ 时不同泵浦功率下的拉曼谱。(a)和(b)对应的泵浦功率分别为 3.0mW 和 8.2mW。内置插图是一阶反斯托克斯强度随泵浦功率的变化关系。

然而目前我们还不能解释为什么拉曼散射峰强度的近邻比值 $I_{as(n)} / I_{as(n-1)}$ 随着 n 的增大而增大。图 4.4 (a) 中 $I_{as(n)} / I_{as(n-1)} = 14\%$ ($n=1$), 而 $I_{as(n)} / I_{as(n-1)} = 70\%$ ($n=8$)。可能的原因是对于高阶的拉曼散射峰会有更丰富的相位匹配的可能性, 比如直接的多种四波混频等。这个有待进一步研究。

我们进一步研究泵浦光波长变化对拉曼散射的影响，也就是研究不同频率的声子极化激元的拉曼谱的差别。泵浦光波长在 531.64 nm ~ 532.39 nm 范围内变化，拉曼谱的谱形相似但是强度有所变化。在某些泵浦波长下最高阶的拉曼散射达到了 11 阶。图 4.6 是一阶和二阶反斯托克斯拉曼峰与信号光场 $\vec{k}_1$ 的强度比，以及随泵浦光波长的变化规律：

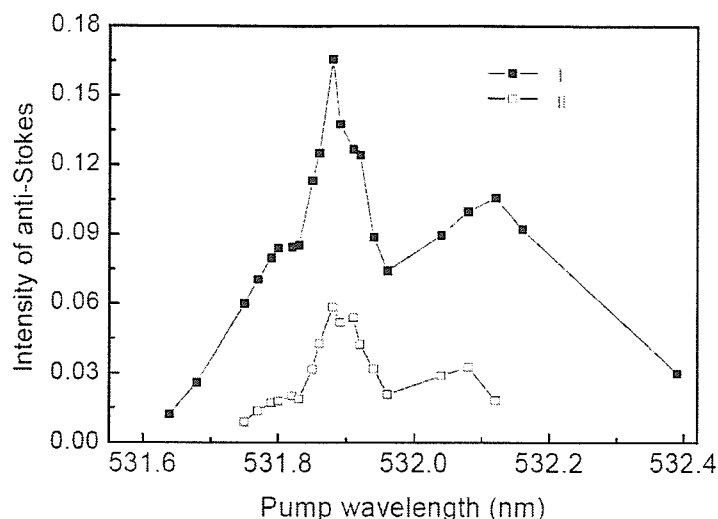


图 4.6 一阶(I)和二阶(II)反斯托克斯拉曼峰与信号光场 $\vec{k}_1$ 的强度比

我们看到无论是 $I_{as(1)} / I_{as(0)}$ 还是 $I_{as(2)} / I_{as(1)}$ 在泵浦光变化范围内都有两个极大值，也可以说有三个极小值。我们试着这样来解释：泵浦光波长为 531.64nm 时（极小值点 1），对应共线准相位匹配差频过程的最小波长，而泵浦光波长为 532.39nm 时（极小值点 2），对应非共线差频过程的最大波长。当泵浦波长处于这两种情形之外时，差频过程的作用体积变小，差频本身都变得很难。所以后面的声子极化激元的激发以及拉曼散射的效率就更低。而泵浦光波长 λ_0 靠近 532nm 时（极小值点 3），差频光和信号光几乎简并，所激发的极化激元的波长变得相当长，衍射效应增强，极化激元拉曼散射的激发变弱，所以图 4.6 中的三个极小点是预料之中的。至于两个散射极大对应的波长为什么在 531.9nm 和 532.1nm 附近（见图 4.6）还需进一步思考。其它各阶能量与泵浦功率的关系基本都遵循图 4.6，由于能量较低没有一一列出。

§ 4.5 几点讨论

我们注意到这种极化激元拉曼散射过程的强弱和晶体极化的占空比很有关系。当占空比 $D \rightarrow 0.5$ 时，产生声子极化激元拉曼谱的等效三阶非线性极化张量 $\chi_p^{(3)} \rightarrow 0$ 。这时的拉曼信号可以来自直接的四波混频过程，也能够继续被准相位匹配的参量过程放大。但是由于直接四波混频涉及的非线性系数 $\chi_d^{(3)} \ll \chi_p^{(3)}$ ，所以最后的拉曼散射还是很弱。这在实验中已被验证，我们换用占空比 $D \rightarrow 0.5$ 的一维光学超晶格没有观察到多阶拉曼散射。所以二维光学超晶格在产生声子极化激元拉曼散射有一定的优势，因为：(1) 六角极化的光学超晶格的占空比不会是 0.5，也就不会降低极化激元的产生和散射几率；(2) $\chi^{(2)}$ 的调制周期对于相同的工作频率，二维结构要大于一维结构，实验上更容易得到结构均匀的极化样品。

本章之所以集中研究低波数拉曼散射，是为了证明准相位匹配的参量过程能够有效的放大晶体内极微弱信号。这对研究晶体内不同类型的具有电磁性质的基本无激发有重要意义。如果极化激元的频率接近声子共振频率时(如 A_1 模式的 202cm^{-1} 声子峰)，拉曼散射的种子信号会增强，同时能够得到一个多阶的宽频率间隔拉曼谱。以 A_1 模的 202cm^{-1} 声子峰为例，如果各有 10 阶的斯托克斯和反斯托克斯的拉曼散射，那么整个拉曼谱就会覆盖 4000cm^{-1} ，近 400nm 的波长范围。这可以研制超宽带激光光源，用于研制超短脉冲激光。

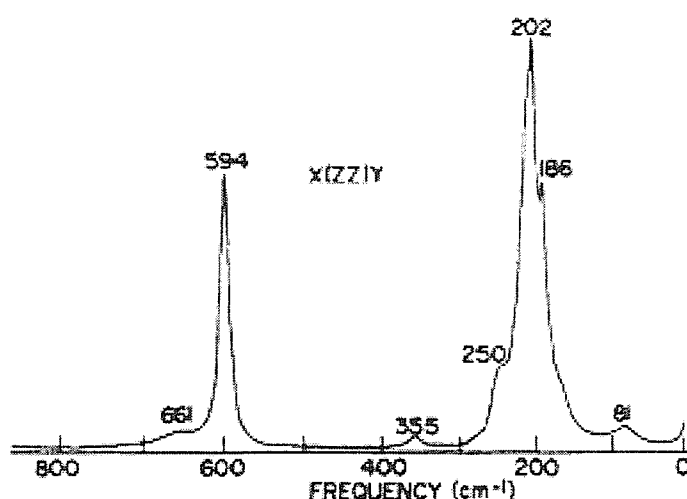


图4.7 $x(z,z)x$ 配置下的所有的 A_1 声子模式^[12]。拉曼增益最大的声子峰频率为 202cm^{-1} 。

§ 4.6 结 论

本章将非弹性散射引入到准相位匹配过程中,展示了准相位匹配对微弱信号的放大能力。实验发现六角极化的钽酸锂超晶格中的极化激元拉曼散射被增强了5~6个量级,并探测到频率间隔可调的梳形拉曼谱。该结果可用于研制新型拉曼激光器。除了声子极化激元,晶体中具有电磁特征的其他类型元激发也可以利用准相位匹配过程来放大。和光电倍增器件不一样的地方是:这种非线性光学参量放大必须满足相位匹配要求,它的优点是能够高效地放大有用信号而抑制不需要的背景噪声,因而具有很高的信噪比。

【参考文献】

- [1] G. S. He and S. H. Liu, *Physics of Nonlinear Optics*, World cientific (2003)
- [2] G. P. Wiederrecht *et al.*, *Phys. Rev. B* **51**, 916 (1995)
- [3] G. Kh. Kitaeva, A. A. Mikhailovsky, P. S. Losevsky, and A. N. Penin, *Opt. Commun.* **138**, 242 (1997); G. Kh. Kitaeva, K. A. Kuznetsov, A. A. Mikhailovsky, and A. N. Penin, *J. Raman Spectrosc.* **31**, 767 (2000)
- [4] J. P. Coffinet and F. De Martini, *Phys. Rev. Lett.* **22**, 60 (1969)
- [5] R. R. Alfano and S. L. Shapiro, *Phys. Rev. Lett.* **26**, 1247 (1971)
- [6] P. C. M. Planken *et al.*, *Phys. Rev. B* **45**, 7106 (1992)
- [7] A. V. Husakou and J. Herrmann, *Appl. Phys. Lett.* **83**, 3867 (2003)
- [8] V. Pasiskevicius, A. Fragemann, and F. Laurell, *Appl. Phys. Lett.* **82**, 325 (2003)
- [9] D. A. Akimov *et al.*, *Opt. Lett.* **28**, 1948 (2003)
- [10] H. Kawano *et al.*, *Opt. Commun.* **160**, 277 (1999)
- [11] Y. R. Shen, *The Principles of Nonlinear Optics*, Wiley, New York (1984)
- [12] A. F. Penna *et al.*, *Phys. Rev. B* **13**, 4907 (1976)

第五章 光学超晶格中的EPR双光子态

§ 5.1 EPR态

EPR 态的提出应追溯到 1935 年那场关于量子力学完备性的著名论战^[1]。Einstein 和 Podolsky, Rosen 三人假想了一种双粒子态，这种双粒子态中的任何一个粒子的物理量都是不确定的，例如坐标（或者动量），但是只要确切知道其中一个粒子的坐标（或者动量）另外一个就百分百的确定了。即便两个粒子在空间上分开无限远，这种密切的关联永远存在。这种双粒子态在数学上可简单表示为：

$$|\psi\rangle = \sum_{a,b} \delta(a+b-c_0) |a\rangle |b\rangle, \quad (5.1)$$

其中的 a 和 b 表示粒子 1 和 2 的动量或者坐标。

爱因斯坦等借助这个假想的双粒子态，在量子力学建立之初，围绕其完备性、物理实在性和定域性对量子力学理论提出了深刻的质疑。假设粒子 1 和粒子 2 相离非常远，对粒子 1 的测量不会影响到粒子 2，这是经典的定域性要求。然而由 (5.1) 式却得出的结论与此相矛盾，即：当测量发现粒子 1 处于某个位置或动量的本征态上，粒子 2 就会立即踏缩到相应的某个本征态上，量子力学似乎是非定域的。同时完备的理论中：物体的位置、动量等是一种物理实在，应该与测量无关，显然这与量子力学关于共轭物理量的表述又是一对矛盾，所以爱因斯坦等人认为量子力学对客观世界的描述是不完备的。波尔在两个月之后争锋相对的提出波包塌缩理论，认为爱因斯坦等人的描述前提有问题。虽然哥本哈更学派的波包塌缩理论现已广为接受，但是爱因斯坦的疑虑仍在，争论并没有结束。直到 1964 年，爱尔兰物理学家 Bell 提出一个不等式^[2]，这个不等式能被用于实验验证，违背这个不等式就等于证明了量子力学的非定域性。这个天才的不等式，把量子力学基本问题的讨论从哲学思辨引到了一个可以通过实验加以量化和判断的明朗境界。

第一个有说服力的检验 Bell 不等式的实验是法国 Aspect 小组在 1982 年完成的^[3]，他们使用了 Ca^{40} 原子级联跃迁过程中辐射出的纠缠光子，实验结果就像量子力学预言的那样违背了 Bell 不等式，否定了局域隐变量理论，确立了量子力

学的地位。随后美国 Yanhua Shih 等人^[4,5]利用自发参量下转换(SPDC)得到更加理想的孪生光子对去检验 Bell 不等式, 这种纠缠态的产生方案为后面量子光学信息工程奠定了基础。

§ 5.2 双折射晶体中的EPR双光子态

Shih 等人提出的通过 SPDC 方式产生双光子纠缠对是在一块双折射非线性光学晶体(BPM)例如 BBO 中完成的: 在非线性晶体中, 一个频率为 ω_p 动量为 $\vec{k}_p$ 的高频光子自发劈裂为两个低频光子, 分别叫信号光 ω_s 和闲置光 ω_i , 这个过程满足动量和能量两个守恒关系:

$$\begin{aligned}\omega_p &= \omega_s + \omega_i \\ \vec{k}_p &= \vec{k}_s + \vec{k}_i\end{aligned}\quad (5.2)$$

正是这对守恒关系建立了参量下转化双光子之间的紧密关联, 构成了这个双光态数学表达式中的两个 δ 函数:

$$|\Psi\rangle = \psi_0 \sum_{\vec{k}_1, \vec{k}_2} \delta(\omega_1 + \omega_2 - \omega_p) \delta(\vec{k}_1 + \vec{k}_2 - \vec{k}_p) \hat{a}_{\vec{k}_1}^+ \hat{a}_{\vec{k}_2}^+ |0\rangle, \quad (5.3)$$

很明显, 这就是一个标准的 EPR 态(对比 5.1 式)。比较其他的方案[3]这种采用非线性光学方法制备纠缠双光子在实验上容易实现, 因此一直延续被使用到今, 并且还被用来构建多光子纠缠态。实际上, 用这种方法产生纠缠光子的探索早就开始, 上世纪 60 年代, Klyshko 等在理论上就研究了自发参量下转换过程中产生的这种双光子态^[6], 实验上第一次观察到 SPDC 双光子非经典的时间关联是在 1970 年^[7]。真正将它用于检测 Bell 不等式实验的主要由马里兰大学的 Yanhua Shih 等人和 Rochester 大学的 Mandel 等人在上世纪 80 年代完成^[4,5]。实验用的非线性晶体是 BPM 的 LBO、BBO、KTP 或者 KDP 等。

§ 5.3 光学超晶格中的EPR双光子态

利用双折射相位匹配产生双光子纠缠态的方法已经非常成熟, 并已在量子通讯和量子计算等领域得到应用。在前面几章中我们充分地论述了光学超晶格在准相位匹配非线性频率转换方面的优势和特色, 那么在光学超晶格中能否利用准相位匹配产生纠缠光子? 能否利用有效非线性系数大的特点提高光子纠缠态对的

产生率？能否利用级联的参量过程来实现性质各异的纠缠光子对甚至制备出在常规晶体中很难做到的三个及三个以上光子的 EPR 态？…… 以下各章我们将来分析这些问题。

首先我们来量子化处理下单个参量下转化产生纠缠双光子，相互作用哈密顿写成：

$$H_I = \int d\vec{r} \frac{\epsilon_0 \chi^{(2)}(\vec{r})}{2} \{E_p^{(+)} E_s^{(-)} E_i^{(-)}\} + h.c. \quad (5.4)$$

比较双折射相位匹配方法，准相匹配利用了二阶非线性极化张量 $\chi^{(2)}$ 中的最大分量 d_{33} ，相位失配正是通过 $\chi^{(2)}(\vec{r})$ 的空间调制补偿的，在这个过程中的动量和能量守恒可分别表示为：

$$\begin{aligned} \omega_p &= \omega_s + \omega_i \\ \vec{k}_p &= \vec{k}_s + \vec{k}_i + \vec{G} \end{aligned} \quad (5.5)$$

我们先计算简单的共线匹配情况，泵浦光是连续光场，在实际过程中损耗可忽略不计，所以仍当作经典电场，信号光 E_s 和闲置光场 E_i 均做量子化处理，

$$E_j = \sum_{\omega_j} \tilde{E}(\omega_j) a(\omega_j) e^{-i(\omega_j t - \vec{k}_j \cdot \vec{z})} \quad (5.6)$$

其中 $\tilde{E}(\omega_j) = \sqrt{\hbar \omega_j / 2 \epsilon_0 n_j V_Q}$ ($j=s, i$)， V_Q 是量子化体积， n_j 是晶体的折射率。在相互作用绘景，取一阶微扰得到双光子态函数为：

$$|\Psi\rangle = \psi_0 \sum_{\omega_s, \omega_i} \delta(\omega_p - \omega_s - \omega_i) \sin c(\Delta k l / 2) \hat{a}_s^{(+)} \hat{a}_i^{(+)} |0\rangle, \quad (5.7)$$

其中 $\psi_0 = \frac{\chi^{(2)} \tilde{E}_p \tilde{E}_s \tilde{E}_i}{4}$ 。假设晶体长度为无穷长，双光子态函数简化为：

$$|\Psi\rangle = \psi_0 \sum_{\omega_s, \omega_i} \delta(\omega_1 + \omega_2 - \omega_p) \delta(k_s + k_i + G - k_p) \hat{a}_s^+ \hat{a}_i^+ |0\rangle. \quad (5.8)$$

上式表示，光学超晶格中通过 SPDC 产生的两个光子的频率或者动量都是不确定的，但是只要其中一个光子的频率或者动量确定了，另外一个就能百分百的确定。光学超晶格与双折射晶体相比不同之处在于：另一个光子的动量或位置，不仅依赖于与它关联的光子对应的物理量，与晶体的调制结构即倒格矢也有关。这就为通过微结构的设计，开拓光子纠缠研究新领域创造了条件。本章主要研究的是理想极化的超晶格中的纠缠双光子波包的情况。

§5.3.1 EPR双光子态的时间(纵向)关联

1962 年 J. Glauber 从理论研究了光场的高阶相干特性及单光子探测的理论，为量子光学的发展奠定了基础^[8]。下面就具体探讨 EPR 双光子场的二阶相干特性。

EPR 双光子态的关联特性需要通过二阶关联函数来描述。数学上表示为，

$$\begin{aligned} G^{(2)} &= \langle \Psi | E_1^{(-)}(t_1, z_1) E_2^{(-)}(t_2, z_2) E_2^{(+)}(t_2, z_2) E_1^{(+)}(t_1, z_1) | \Psi \rangle \\ &= \left| \langle 0 | E_2^{(+)}(t_2, z_2) E_1^{(+)}(t_1, z_1) | \Psi \rangle \right|^2 = |A(t_1, z_1; t_2, z_2)|^2 \end{aligned} \quad (5.9)$$

实验上，EPR 双光子对的关联测量可以通过以下方法实现：假设时空点 (t_1, z_1) 和 (t_2, z_2) 各放一个单光子探测器，分别探测信号光光子和闲置光光子。每个单光子探测器探测到一个光子就给出一个脉冲电信号，然后把两路做逻辑与处理后输出，这就是符合测量的基本原理。

探测器 i 处的电场量子化表达为： $E_i^{(+)}(z_i, t_i) = \sum_i \tilde{E}_i \hat{a}_i e^{-i(\omega_i t_i - k_i z_i)}$ ($i = 1, 2$)。

$A(t_1, z_1; t_2, z_2)$ 是双光子几率幅。设 $\tau_i = t_i - \frac{z_i}{c}$ ， $i = 1, 2$ ，则：

$$\begin{aligned} A(\tau_1, \tau_2) &= \langle 0 | E_2^{(+)}(\tau_2) E_1^{(+)}(\tau_1) | \Psi \rangle \\ &= A_0 \int d\nu e^{-i\nu\tau_{12}} \sin c(\nu D_{st} l / 2) = A_0 F_{\tau_{12}} \{ \sin c(\nu D_{st} l / 2) \} \\ &= A_0 \Pi(\tau_{12}, D_{st} l / 2) \end{aligned} \quad (5.10)$$

其中， $A_0 = \frac{\chi^{(2)} E_p \tilde{E}_s \tilde{E}_i}{4}$ 。设信号光（闲置光）的失谐量为 ν ，中心频率分别为

$\Omega_s (\Omega_i)$ 。即 $\omega_s = \Omega_s + \nu$ ， $\omega_i = \Omega_i - \nu$ ，那么 Δk 一级展开后得到 $\Delta k = \nu D_{st}$ ，其

中 $D_{st} = (\frac{1}{\frac{dk_s}{d\omega_s}|_{\Omega_s}} - \frac{1}{\frac{dk_i}{d\omega_i}|_{\Omega_i}}) = \frac{1}{u_s} - \frac{1}{u_i}$ ，代表了晶体内信号光和闲置光的群速

u_s, u_i 的倒数之差。双光子几率幅在 $\tau_+ = (\tau_1 + \tau_2)/2$ 时间轴上是自由的平面波，而在 $\tau_- = \tau_1 - \tau_2$ 时间轴却是个很窄的门函数，这个门函数的宽度由晶体的群速色散决定，对于钽酸锂晶体一般为 ps 量级。也就是说每路光子到达探测器的时间都

是随机的，但是如果将两路光子到达的时间做对比就能找到一一对应的关系。这就是纠缠双光子之间的时间关联特性。这种时间关联特性可用在远程时钟校准。

实际探测到的时间关联还受单光子探测器的抖动响应时间(jitter time)的影响，

$$R_c = G^{(2)}(\tilde{t}_1 - \tilde{t}_2) = \iint d\tilde{t}_1 d\tilde{t}_2 G^{(2)}(\tau_1 - \tau_2) D_1(\tilde{t}_1 - \tau_1) D_2(\tilde{t}_2 - \tau_2), \quad (5.11)$$

$D_j(\tilde{t}_j - \tau_j)$ 分别是 $j(j=1,2)$ 探测器的响应函数， $\tilde{t}_j$ 是考虑探测器电路响应后的实际的光子触发时间。单光子探测器 SPCM-AQR-14(Pekin Elmer) 的响应 Jitter 大概是 600ps，所以双光子实测的关联时间约为 1ns。下面是实验光路和测量处理电路的示意图：

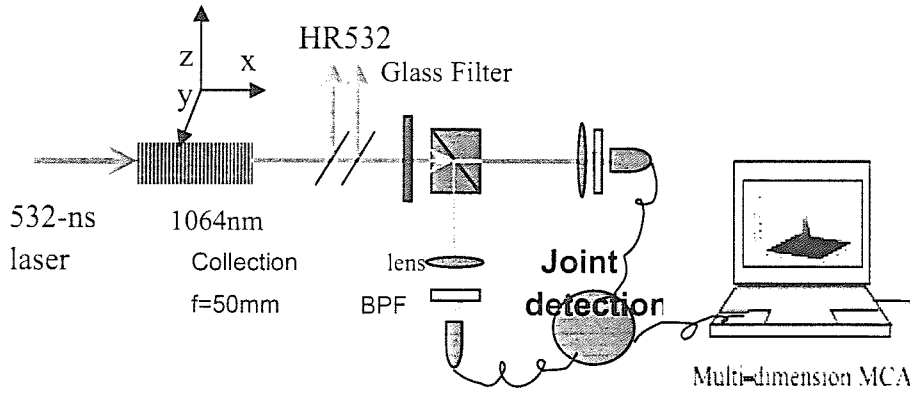


图 5.1 实验光路及符合测量系统

实验样品是周期极化的化学计量比钽酸锂光学超晶格晶体(PPSLT)，周期 $a=7.81\mu\text{m}$ ，能在 130°C 实现 532nm(Verdi-V5, Coherent)到 1064nm 的简并参量下转换。从晶体出来的光先经过两个 532nm 的高反镜，再经过一个有色玻璃截止片(GF580)，然后经非偏正分束器分束后分别送入两个单光子探测器(SPCM-AQR-14)，探测器之前分别放置 1064nm 的窄带干涉滤光片(FWHM=10nm)最后用 $f=50\text{mm}$ 的透镜收集。实验中我们采用的测量电路是 B&H 公司的 SPC630 符合测量模块，该模块集成了时间幅度转换(TAC)、模数转换(ADC)以及多道分析(MCA)等功能，时间分辨精度 813fs。图 5.2 是双光子符合计数情况，横轴是

$$\tilde{t}_1 - \tilde{t}_2。$$

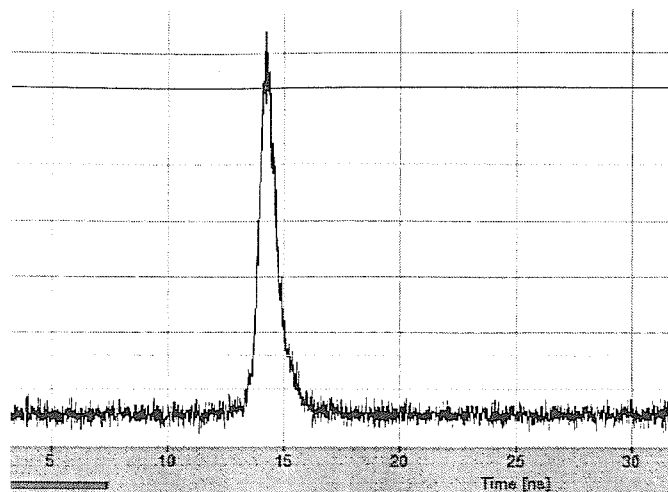


图 5.2 连续光参量下转换的双光子关联特性

对于经典测量有不等式 $\Delta(\tilde{t}_1 - \tilde{t}_2) \geq \sqrt{2}\Delta t > \max(\Delta\tilde{t}_1, \Delta\tilde{t}_2)$ ，对于连续激光器来说 $\Delta\tilde{t}_1 = \Delta\tilde{t}_2 = \infty$ ，而测得的 $\Delta(\tilde{t}_1 - \tilde{t}_2) = 1\text{ns}$ ，明显这个时间关联是非经典的。我们用脉宽 5.5ns(General Atomics)的 Q-switched 的脉冲泵浦光做了相同的实验，即 $\Delta\tilde{t}_1 = \Delta\tilde{t}_2 = 7.7\text{ns}$ ， $\Delta(\tilde{t}_1 - \tilde{t}_2)$ 却仍然是 1ns。如图 5.3：

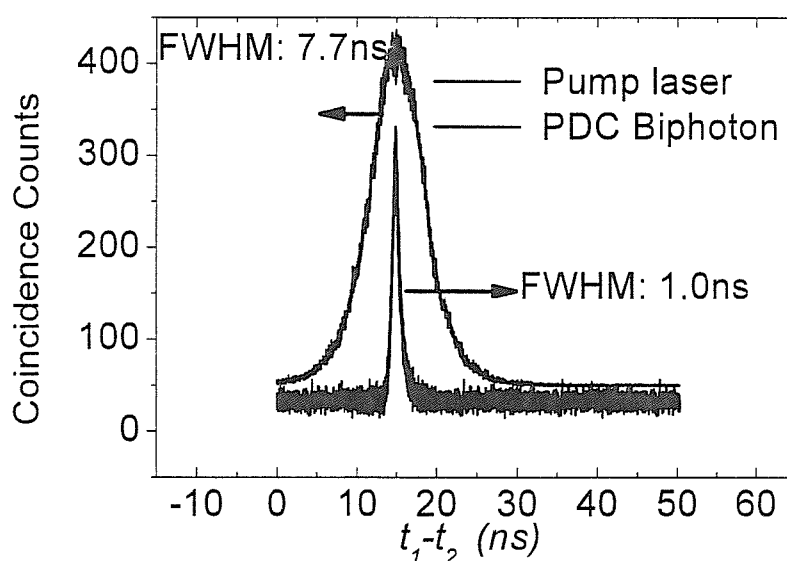


图 5.3 泵浦脉冲光参量下转换的双光子时间关联特性

§5.3.2 EPR双光子态的空间(横向)关联

阿贝(Abbe, 1840-1905)将相干光照明物理成像分成两步：第一步是照明光经夫朗和费(Fraunhofer)衍射在透镜的焦平面上得到物体的傅立叶谱，第二步频谱上各个点源按惠更斯原理最终在像平面上相干叠加。所以经典光学里我们要考察横向动量(空间频率)的情况，就研究透镜的焦平面或者远场的空间位置(动量的共轭量)的情况。上述原理可以照搬到单光子的情形，只是动量、位置等需要用算符代替。研究参量下转换过程产生的双光子态的横向关联能让我们看到进一步了解EPR双光子态的行为，同时这也是下面要介绍的量子成像的基础。

研究双光子的横向关联，必须考虑波矢的横向分量：

$$|\psi\rangle = \psi_0 \sum_{\nu} \phi_L(\nu) \sum_{\vec{k}_s, \vec{k}_i} H_T(\vec{k}_s, \vec{k}_i) \hat{a}_s^{(+)} \hat{a}_i^{(+)} |0\rangle, \quad (5.12)$$

其中 $\phi_L(\nu) = \sin c(\nu D_{sl} l / 2)$ 和 $H_T(\vec{k}_s, \vec{k}_i) = \int d\vec{\rho} e^{-i(\vec{k}_s + \vec{k}_i) \cdot \vec{\rho}}$ 分别为纵向(能量)和横向(动量)谱函数。单光子探测器 j 处的场算符：

$$E_j^{(+)}(\vec{r}_j, t_j) = \sum_{\vec{k}_j} e^{-i\omega_j t_j} g(\vec{k}_j, \omega_j; \vec{\rho}_j, z_j) \hat{a}_{\vec{k}_j}, \quad (5.13)$$

其中 $\vec{r} = (\vec{\rho}, z)$ 是探测器所在的空间位置， t_j 是探测器 j 触发到光子的时间。

$g(\vec{k}_j, \omega_j; \vec{\rho}_j, z_j)$ 是光学传播函数，描述了从超晶格后端面到探测器之间的空间传播情况。也就是我们熟知的格林函数，取傍轴近似具体的形式是：

$$g(\vec{k}_j, \omega_j; \vec{\rho}_j, z_j) = \frac{e^{ik_j z_j}}{z_j} \int d\vec{\rho}_s G(|\vec{\rho}_j - \vec{\rho}_s|, \frac{\omega_j}{cz_j}) e^{i\vec{k}_j \cdot \vec{\rho}_s}, \quad (5.14)$$

其中 $G(|\vec{\rho}_j - \vec{\rho}_s|, \frac{\omega_j}{cz_j}) = e^{i\frac{k_j}{2z_j} |\vec{\rho}_j - \vec{\rho}_s|^2} = e^{i\frac{\omega_j}{2cz_j} |\vec{\rho}_j - \vec{\rho}_s|^2}$ 称为光学传递函数，它的运算特性

参见本章附件一。双光子几率幅为：

$$A(t_1, t_2; \vec{\rho}_1, \vec{\rho}_2) = \langle 0 | E_1^{(+)} E_2^{(+)} | \psi \rangle = Lg(t_1, t_2) Tr(\vec{\rho}_1, \vec{\rho}_2) \quad (5.15)$$

其中 $Lg(t_1, t_2)$ 描述的是双光子的时间关联特性，在上一节已经作了讨论。

$Tr(\vec{\rho}_1, \vec{\rho}_2)$ 描述的是双光子的空间关联特性，

$$Tr(\vec{\rho}_1, \vec{\rho}_2) = \iint d\vec{\rho}_s d\vec{\rho}_s' \iint d\vec{k}_1 d\vec{k}_2 G(|\vec{\rho}_1 - \vec{\rho}_s|, \frac{\omega_1}{cz_1}) G(|\vec{\rho}_2 - \vec{\rho}_s'|, \frac{\omega_2}{cz_2}) e^{i(\vec{k}_s \cdot \vec{\rho}_s + \vec{k}_2 \cdot \vec{\rho}_s')} H_T(\vec{k}_1, \vec{k}_2)$$

(5.16)

我们按晶体内参量作用面积的大小分类讨论：

(1) 相互作用面积无穷大，并且横模数无穷多

这种情形的计算比较简单， $H_T(\vec{\kappa}_1, \vec{\kappa}_2) = \delta(\vec{\kappa}_1 + \vec{\kappa}_2)$ 。在远场得到：

$$Tr(\vec{\rho}_1, \vec{\rho}_2) \propto \delta\left(\frac{\omega_1}{cz_1} \vec{\rho}_1 + \frac{\omega_2}{cz_2} \vec{\rho}_2\right) \quad (5.17)$$

该式的物理意义非常清楚：纠缠双光子波包在空间上是非局域的，不能准确知道任一光子的空间位置，但是只要我们测量到光子 1 塌缩到 $(\vec{\rho}_1, z_1)$ 处，那么光子 2 就百分百的塌缩到 $(\vec{\rho}_2, z_2)$ 处。换句话说，如果想窃听这个双光子波包携带的信息，只截取倒其中一路光子会立即破坏量子态，窃听失败。这就是量子保密通信的原理。

(2) 相互作用面积有限，并且横模数无穷多

$$Tr(\vec{\rho}_1, \vec{\rho}_2) \propto \int d\vec{\rho}_s e^{-i\left(\frac{\omega_1}{cz_1} \vec{\rho}_1 + \frac{\omega_2}{cz_2} \vec{\rho}_2\right) \cdot \vec{\rho}_s} = \text{somb}\left(\left|\frac{\omega_1}{cz_1} \vec{\rho}_1 + \frac{\omega_2}{cz_2} \vec{\rho}_2\right| a\right), \quad (5.18)$$

a 是光束束腰， $\text{somb}(\xi) = \frac{J_1(\xi)}{\xi}$ 。空间关联的半宽由作用截面的面积大小决定，

即点对斑的空间关联。光束面积接近无穷时，就回到(5.17)式中理想的点对点横向关联。

(3) 相互作用面积有限，并且横模数有限

$$Tr(\vec{\rho}_1, \vec{\rho}_2) \propto \iint d\vec{\kappa}_1 d\vec{\kappa}_2 \text{somb}\left(\left|\vec{\kappa}_1 - \frac{\omega_1}{cz_1} \vec{\rho}_1\right| a\right) \text{somb}\left(\left|\vec{\kappa}_2 - \frac{\omega_2}{cz_2} \vec{\rho}_2\right| a\right) \text{somb}(|\vec{\kappa}_1 + \vec{\kappa}_2| a). \quad (5.19)$$

为了在实验上验证双光子的横向关联，需要对图 5.1 光路中稍作修改：(1)

保证远场条件，也就是探测器距离晶体 $z \gg \frac{a^2}{\lambda}$ 。实验中泵浦束腰 $500\mu\text{m}$ ，探测器离晶体后端面为 2.5m ，保证了远场条件；(2) 用点探测器代替体探测器。所以我们将探测器前面的收集透镜，固定探测器 D_1 (SPCM-AQR-14，感光面积 $125\mu\text{m}$)，扫描探测器 D_2 ，同时记录符合计数的变化。然后移动 D_1 到一个新的位

置，再次扫描 D_2 。

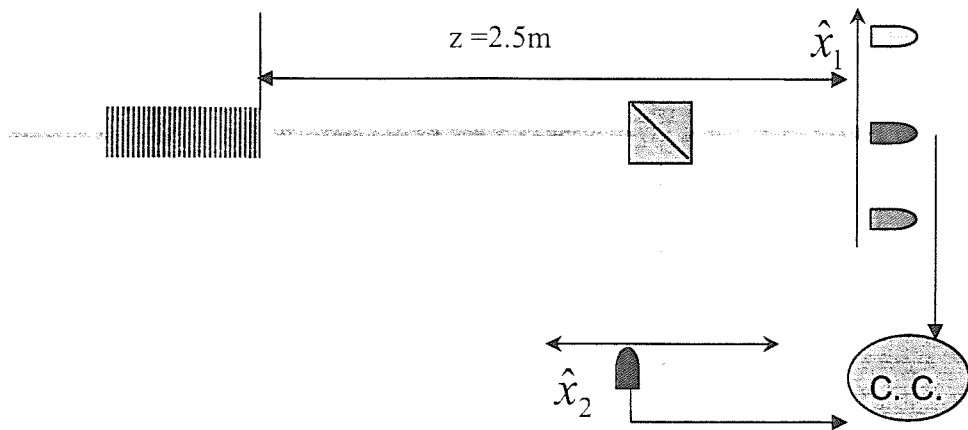


图 5.4 双光子横向关联测量的光路配置

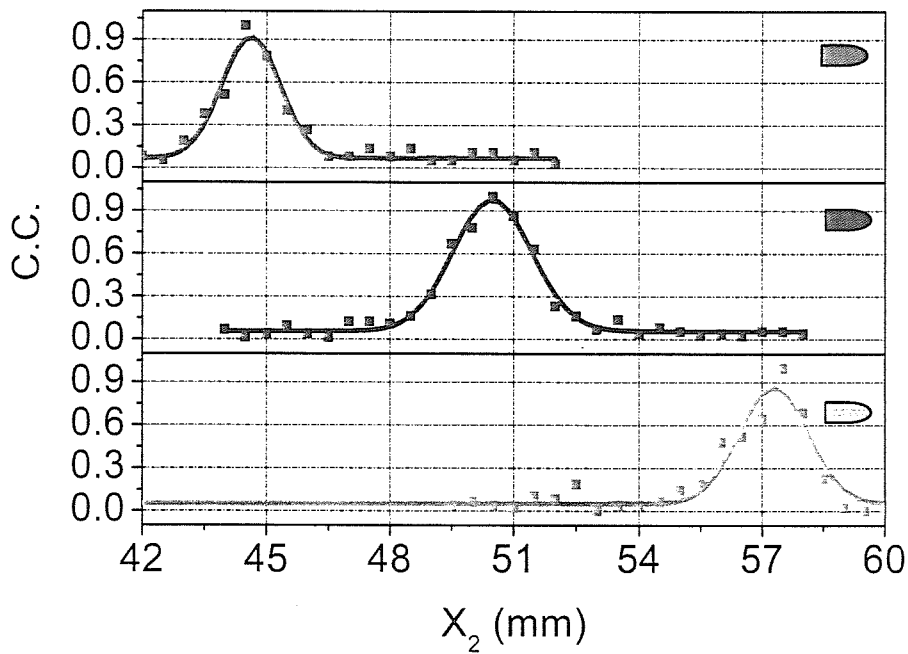


图 5.5 探测器 D_1 分别固定于 $x_1 = -5.9\text{mm}$; $x_1 = 0\text{ mm}$ 和 $x_1 = +6.9\text{mm}$ ，扫描探测器 D_2 记录符合计数最大的位置，实线是理论计算曲线。

在扫描探测过程中，信号光和闲置光的单光子计数率基本为常数。实验发现只有当探测器 D_1 和 D_2 的位置满足 $\hat{x}_1 = \hat{x}_2$ (没有分束之前应该是 $\hat{x}_1 + \hat{x}_2 = 0$)，两

路光子符合计数最大。这种点对斑的双光子空间关联可以用 (5.18) 式拟合，和实验吻合得很好。值得注意的一点是：我们在寻找空间关联时，信号光和闲置光的单光子计数率基本不变，也就是在扫描空间位置时基本不需考虑参量下转化匹配的角色散问题，这点由探测器之前的窄带干涉滤光片保证。所以我们测到的双光子空间关联与经典相位匹配的角色散无关。

§ 5.4 产生EPR双光子对的几种常用非线性光学晶体的比较

从上面的实验可以看到：参量下转换相位匹配的角色散，或者单光子计数率空间分布的常数区，直接决定了双光子空间关联的分辨率和测量过程的难易。相位匹配角色散的大小主要由晶体本身的色散、晶体的双折射等决定。所以本节主要将几种常见 BPM 晶体和我们的钽酸锂光学超晶格晶体作对比，研究各自的角色散问题。

以共线简并参量过程为例，与此同时在非零角度上还会有非共线非简并参量过程。如图 5.6：

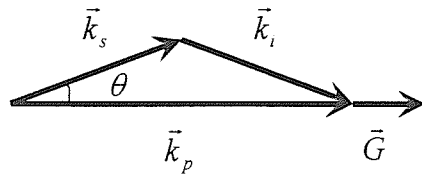


图 5.6 参量下转换角度调谐的匹配图

$$\cos \theta = \frac{|\vec{k}_s|^2 + |\vec{k}_p|^2 - |\vec{k}_i|^2}{2|\vec{k}_s| \cdot |\vec{k}_p|} \quad (5.20)$$

严格的相位匹配角色散关系 $\theta(\lambda_s)$ 由上式给出，但是如果实验中 $\theta < 5^\circ$ ，小角近似下有 $|\vec{k}_s| = |\vec{k}_i|$ 并且 $|\vec{k}_s| - |\vec{k}_{s0}| \ll |\vec{k}_{s0}|$ ，取一级近似得到：

$$\left. \frac{\partial n}{\partial \lambda} \right|_{\lambda_{s0}} \delta \lambda + \left. \frac{\partial n}{\partial \theta} \right|_{\theta=0} \delta \theta = \frac{n_{s0}(n_p - n_{s0})}{n_p} \quad (5.21)$$

从上式看出，折射率的频率色散，角度色散及折射率本身的大小共同决定了非共线相位匹配的角色散 $\theta(\lambda_s)$ 。以三种常见的非线性光学晶体为例：

KTP($\theta = 90^\circ, \varphi = 69.6^\circ$, 室温二类匹配 $532\text{nm}(e) \rightarrow 1064\text{nm}(e) + 1064(o)$)、
LBO($\theta = 0^\circ, \varphi = 42.7^\circ$, 室温二类匹配 $458\text{nm}(e) \rightarrow 916\text{nm}(e) + 916(o)$)以及我们的周期极化化学剂量比钽酸锂超晶格 PPSLT(131°C , $532\text{nm}(e) \rightarrow 1064\text{nm}(e) + 1064(e)$)。根据晶体各自的色散关系理论上给出三种晶体的角色散分别为：50mrad/10nm, 40mrad/10nm, 15mrad/10nm, 也就是说钽酸锂晶体的角色散最大。

实验中我们在单光子计数器前面放上 10nm 半宽的干涉滤光片, 分别扫描三种晶体参量下转换出来的信号光(或闲置光)的单光子计数的空间分布情况。下图是从 KTP 晶体出来的信号光计数率的空间分布。

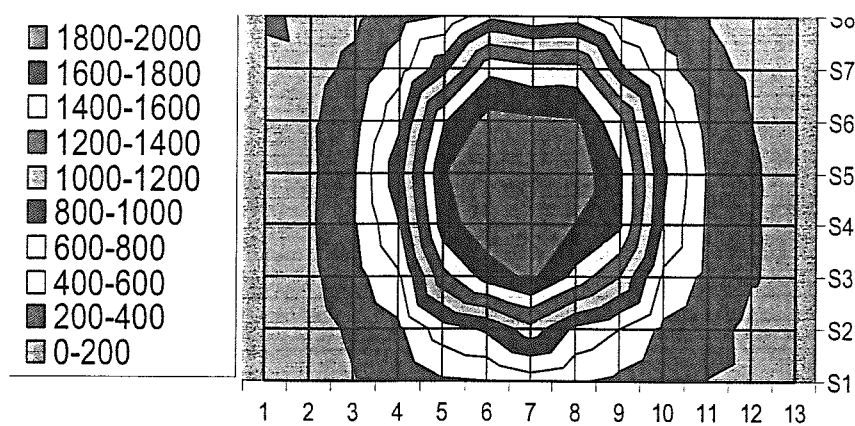


图 5.7 单光子计数的空间分布, 横轴是 y 方向, 纵轴是 z 方向

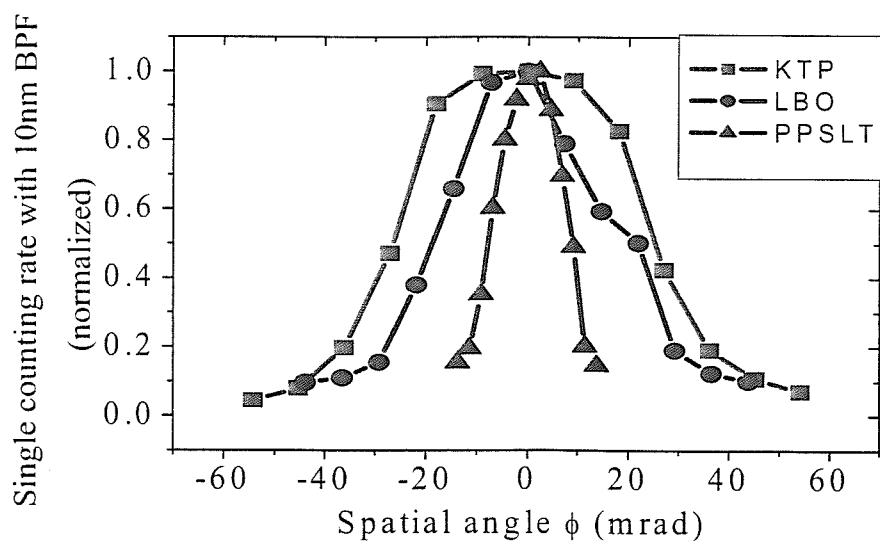


图 5.8 图 5.7 中 $z=0$ 时三种晶体沿 y 轴方向的信号光的光子计数的分布

图 5.8 中 KTP, LBO 及 PPSLT 出来的参量下转化光子的空间分布的全高半宽分别为 49.7mrad, 37.4mrad 及 16.4mrad, 和理论上吻合得相当好。可见 PPSLT 晶体参量下转换的角色散最大, 这对于测量双光子的空间关联是不利的。双光子的空间关联角为 4mrad, 虽然远小于单光子的空间发散角(16.4mrad), 但是空间关联的分辨率还是会受到影响。所以从空间关联的角度来看, 角色散大的钽酸锂晶体没有优势。要想得到更好的双光子关联的空间分辨率, 实验中必须尽量使用宽束腰的泵浦光。但是从另一个角度来说, 大的角色散意味着参量下转换的空间带宽很宽, 这样在相同的泵浦光强度下能够产生更高通量的参量下转换光子对^[9]。另外超晶格材料可以做成波导, 使参量下转换的效率提高几个量级^[10]。

§ 5.5 本章小结

本章主要研究了准相位匹配参量下转换过程产生的纠缠双光子对的时、空关联特性。研究发现超晶格中的 EPR 光子有对很好的非经典的时间（能量）关联特性和非经典的空间（动量）关联特性。由于超晶格材料设计灵活, 可以产生人们需要的任意频率的纠缠光子对, 能够迎合单光子探测器及量子存储介质的需求, 另外超晶格材料配合波导技术能够进一步增加参量下转换过程的光子通量, 这些优势使得超晶格材料在现代量子信息工程中拥有很大的发挥空间。

附件一:

光学传递函数 $G(\vec{\rho}_j - \vec{\rho}_s, \frac{\omega_j}{cz_j}) = e^{i\frac{k_j}{2z_j}|\vec{\rho}_j - \vec{\rho}_s|^2} = e^{i\frac{\omega_j}{2cz_j}|\vec{\rho}_j - \vec{\rho}_s|^2}$ 表示电磁波从辐射源

$\vec{\rho}_s$ 向探测点 $\vec{\rho}_j$ 的传播情况。对于面辐射源需要对面源上每一点积分并且附加每一点的相位信息。光学传递函数的几个特性如下:

$$\begin{aligned} G^*(\vec{\rho}, \frac{\omega}{cd}) &= G(\vec{\rho}, -\frac{\omega}{cd}) \\ G(\vec{\rho}, \frac{\omega}{c}(\frac{1}{d_1} + \frac{1}{d_2})) &= G(\vec{\rho}, \frac{\omega}{cd_1})G(\vec{\rho}, \frac{\omega}{cd_2}) \\ G(|\vec{\rho} - \vec{\rho}'|, \frac{\omega}{cd}) &= G(\vec{\rho}, \frac{\omega}{cd})G(\vec{\rho}', \frac{\omega}{cd})e^{-i\frac{\omega}{cd}\vec{\rho} \cdot \vec{\rho}'} \\ \int d\vec{\rho} G(\vec{\rho}, \frac{\omega}{cd})e^{i\vec{\alpha} \cdot \vec{\rho}} &= \frac{i2\pi cd}{\omega} G(\vec{\alpha}, -\frac{cd}{\omega}) \end{aligned}$$

光学传递函数的这几个性质在计算面源的非线性相干辐射的时候非常有用。

【参考文献】

- [1] A. Einstein, B. Podolsky, and N. Rosen, Phys. Rev. **47**, 777 (1935)
- [2] J. Bell, Physics **1**, 195 (1964)
- [3] A. Aspect, P. Grangier, and G. Roger, Phys. Rev. Lett. **49**, 91 (1982)
- [4] Y. H. Shih and C. O. Alley, Phys. Rev. Lett. **61**, 2921 (1988)
- [5] Z. Y. Ou and L. Mandel, Phys. Rev. Lett. **61**, 000050 (1988)
- [6] D. N. Klyshko, Sov. Phys. JETP Lett. **6**, 23 (1967); D. N. Klyshko, *Photons and Non-linear Optics*, Gordon and Breach Science, New York (1988)
- [7] D. C. Burnham and D. L. Weinberg, Phys. Rev. Lett. **25**, 84 (1970)
- [8] R. J. Glauber, Phys. Rev. **131**, 2766 (1963)
- [9] S. Tanzilli *et al.*, Eur. Phys. J. D **18**, 155 (2002)
- [10] F. König *et al.*, Phys. Rev. A **71**, 033805 (2005)

第六章 光学超晶格中的纠缠转移EPR双光子态

§ 6.1 引言

我们知道：自发参量下转换(SPDC)过程产生的 EPR 纠缠光子对的纠缠度非常高，是当前量子光学领域内广泛采用的纠缠光源。量子计算、量子信息、量子通讯、量子密集编码、量子光刻及量子成像^[1-5]等基本上都以这种成熟的双光子源为基础。另外目前非常热门的多光子纠缠态的产生 ($n \geq 3$) 也是由多对这种双光子源组合而成^[6]。量子通信中一个很重要的问题是如何尽可能的降低双光子纠缠源的传输损耗。所以人们选择光纤传播，尤其是波长在光纤窗口 $1.3\mu\text{m}$, $1.5\mu\text{m}$ 的传输损耗非常低。但是利用光纤传播近红外波段的单光子信号的面临低探测效率的问题。因为比较好的商用近红外单光子探测器的量子效率只有 20%左右(瑞士 Id Quantique)并且噪声很高。而目前以 Si 雪崩光电二极管为基础的可见光单光子探测器已经相当成熟了，量子探测效率最高可以达到 70%，噪声水平 $< 25\text{c/s}$ (美国 PerkinElmer 公司)。如果能将光纤传输的低损耗和可见光单光子探测器的高效率相结合就能最大限度的降低量子通讯过程中的损耗。所以一些研究组发展了利用一个很强的泵浦光去上转换近红外光子，使其尽可能的都转化到可见光波段的技术^[7-13]，这些小组报道的单光子的上转换效率几乎达到了 100%。这为未来的远程量子通讯和探测作了很好的铺垫和演示。

如果被频率上转换的单光子来自纠缠光子对，我们称这个过程称为纠缠转移^[14]，但是如何在实验上演示这个纠缠的转移，如何证实光子的纠缠性质已被转移，如何理解纠缠转移的物理本质，这就是本章的主要内容。光学超晶格的优势正如我们前面强调的就是可以集纠缠产生和纠缠转移于一身。也就是可以在一块超晶格内同时发生参量下转换和频率上转换过程，两个过程分别满足各自的动量和能量守恒条件。两个过程同时匹配这在双折射材料中是比较困难的，而在光学超晶格中只需要通过微结构的设计，使得同时有两个倒格矢参与到上述的两个参量过程，使其分别分别准相位匹配即可。

§ 6.2 利用光学超晶格实现纠缠转移

§6.2.1 纠缠转移双光子的态函数

我们设计好超晶格中的调制序列使得光学参两下转换和参量上转换过程分别满足各自的动量守恒和能量守恒。即：

$$\begin{cases} \Delta \vec{k}_1 = \vec{k}_p - \vec{k}_s - \vec{k}_i - \vec{g}_1 = 0 \\ \Delta \omega_1 = \omega_p - \omega_s - \omega_i = 0 \end{cases} \quad \text{和} \quad \begin{cases} \Delta \vec{k}_2 = \vec{k}_u - \vec{k}_p - \vec{k}_i - \vec{g}_2 = 0 \\ \Delta \omega_2 = \omega_u - \omega_p - \omega_i = 0 \end{cases}, \quad (6.1)$$

其中下标 p,s,i,u 分别代表了泵浦光、信号光、闲置光和上转换后的和频光。

系统相互作用的哈密顿写为：

$$H_I = H_{I1} + H_{I2} = \int d\vec{r} \frac{\varepsilon_0}{2} (\chi_1^{(2)} E_p^{(+)} E_s^{(-)} E_i^{(-)} + \chi_2^{(2)} E_p^{(+)} E_i^{(+)} E_u^{(-)}) + h.c., \quad (6.2)$$

在薛定谔表象，取二阶微扰，信号光与和频光的双光子波函数为：

$$|\psi\rangle = \left(\frac{1}{i\hbar}\right)^2 \int_0^\infty dt_1 \int_0^\infty dt_2 H_{I1}(t_1) H_{I1}(t_2) |0\rangle. \quad (6.3)$$

泵浦光是单色平面波，并作无损耗近似，得到波函数可以写成：

$$|\psi\rangle = \psi_0 \sum_{\vec{k}_s, \vec{k}_u} \sum_{\vec{k}_i} \iint d\vec{r}_1 d\vec{r}_2 e^{i\Delta \vec{k}_1 \cdot \vec{r}_1 + \Delta \vec{k}_2 \cdot \vec{r}_2} \delta(\Delta \omega_1) \delta(\Delta \omega_2) \hat{a}_s \hat{a}_u |0\rangle. \quad (6.4)$$

根据上面的两个能量守恒关系，我们可以设，在信号光中心频率 Ω_s 附近的失谐为 ν ，则有：

$$\begin{cases} \omega_s = \Omega_s + \nu, \omega_i = \Omega_p - \nu, \omega_u = \Omega_u - \nu \\ \left| \vec{k}_s \right| = K_s + \frac{\nu}{u_s}, \left| \vec{k}_i \right| = K_i - \frac{\nu}{u_i}, \left| \vec{k}_u \right| = K_u - \frac{\nu}{u_u} \end{cases}, \quad (6.5)$$

其中 $u_{s,i,u}$ 分别是信号光、闲置光和和频光的中心频率的群速度。中心频率和中心波矢各自满足能量守恒和动量守恒。作傍轴近似，系统的波函数简化为：

$$|\psi\rangle = \psi_0 \sum_{\nu} \phi_L(\nu) \sum_{\vec{k}_s, \vec{k}_u} H_T(\vec{k}_s, \vec{k}_u) \hat{a}_s^{(+)} \hat{a}_u^{(+)} |0\rangle, \quad (6.6)$$

其中 $\phi_L(\nu) = \sin c(\nu D_{si} l / 2) \sin c(\nu D_{ui} l / 2)$ 和 $H_T(\vec{k}_s, \vec{k}_u) = \int d\vec{k}_i T(\vec{k}_s + \vec{k}_i) T(\vec{k}_i - \vec{k}_u)$

分别为纵向（能量）和横向（动量）谱函数，其中 $T(\Delta \vec{k}_i) = \int d\vec{\rho}_i e^{-i\Delta \vec{k}_i \cdot \vec{\rho}_i}$ 是对晶

体有效作用截面的积分。 $\psi_0 = \left(\frac{1}{i\hbar}\right)^2 \frac{\varepsilon_0 \chi_1^{(2)} \tilde{E}_p \tilde{E}_s \tilde{E}_i}{2} \frac{\varepsilon_0 \chi_2^{(2)} \tilde{E}_p \tilde{E}_i \tilde{E}_u}{2}$ 是常数。

$D_{pq} = \frac{1}{u_p} - \frac{1}{u_q}$ 表示两束光群速倒数之差。横向部分中的 $\vec{\kappa}_{s,i,u}$ 是各波矢的横向分量。下面对纠缠传递双光子态的时间和空间性质进行研究。

§6.2.2 时间关联的传递

设探测器 D_1 接收的是信号光子 ω_s ，探测器 D_2 接收的是和频光子 ω_u 。讨论中我们先忽略横向分量，也就是晶体内的匹配当作是完全共线的模式。时间关联函数 $G^{(2)}(\tau_1, \tau_2) = |A(\tau_1, \tau_2)|^2$ 。 τ_1, τ_2 分别是信号光子和闲置光子触发探测器的时刻，双光子概率幅度函数 $A(\tau_1, \tau_2)$ 写成：

$$A(\tau_1, \tau_2) = \langle 0 | E_1^{(+)}(z_1, t_1) E_2^{(+)}(z_2, t_2) \psi \rangle \propto \int_{-\infty}^{+\infty} d\nu e^{-i\nu(\tau_1 - \tau_2)} \phi_L(\nu) = F_{\tau_1 - \tau_2} \{ \phi_L(\nu) \}. \quad (6.7)$$

相比和频之前的自发参量下转换的双光子时间关联函数，我们看到关联函数本身发生了质的变化。自发参量下转换的时间关联是对单个 sinc 函数的傅立叶变换，即

$$A(\tau_1, \tau_2) = A_0 e^{-i(\Omega_s \tau_1 + \Omega_u \tau_2)} F_{\tau_1 - \tau_2} \left\{ \text{sinc}\left(\frac{\nu D_{si} l}{2}\right) \right\} \propto \text{rect}\left(\frac{\tau_1 - \tau_2}{D_{si} l / 2}\right). \quad (6.8)$$

而和频后的双光子时间关联函数是对两个 sinc 函数乘积的傅立叶变换，结果是两个矩形函数的卷积。(6.8) 式进一步计算得到：

$$\begin{aligned} A(\tau_1, \tau_2) &\propto F_{\tau_1 - \tau_2} \{ \phi_L(\nu) \} = \text{rect}\left(\frac{\tau_1 - \tau_2}{D_{si} l / 2}\right) * \text{rect}\left(\frac{\tau_1 - \tau_2}{D_{ui} l / 2}\right) \\ &= \bigcap (\tau_1 - \tau_2, D_{si} l / 2, D_{ui} l / 2), \\ \text{梯形函数: } \bigcap (x, a, b) &= \begin{cases} (a+b)/4 - |x| & -|a-b|/4 \leq x \leq +(a+b)/4 \\ \min(a, b) & -|a-b|/4 \leq x \leq +|a-b|/4 \\ (a+b)/4 - |x| & +|a-b|/4 \leq x \leq +(a+b)/4 \end{cases} \quad (6.9) \end{aligned}$$

我们看到和频很好的传递了时间关联，但是因为传递后的双光子波包形状发生了变化，所以双光子时间关联具有新的特征。根据 (6.8) 式和 (6.9) 式，我们在图 6.1 中对比了和频前后两种双光子态的时间关联特性：

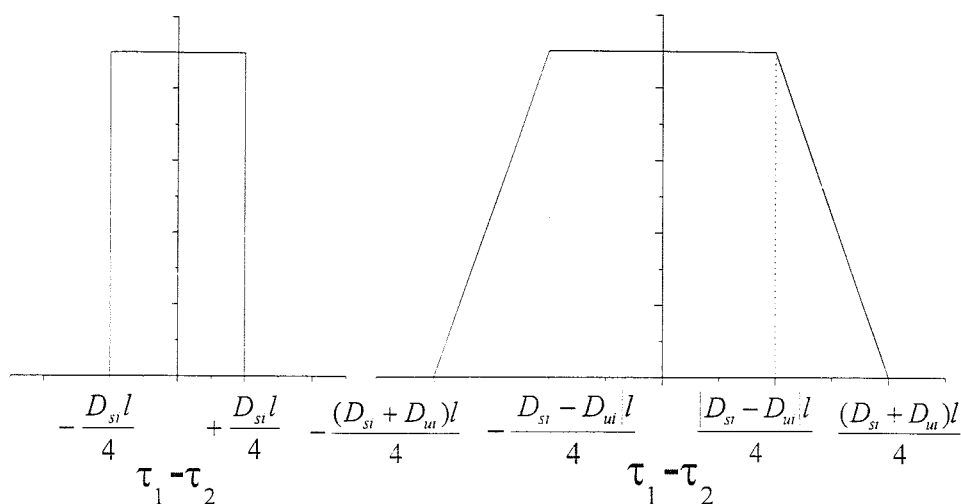


图 6.1 和频前后双光子对的时间关联特征

我们看到纠缠转移后的双光子对很好的承继了原来信号光子和闲置光子的时间关联, 关联时间的不确定度还是在 $D_{st}l/2$ 的量级。但是出现了两个新的特征:

(1) 关联时间窗口大小虽然没有量级的改变, 但是增加了一倍。物理上很好理解这一点: 我们知道自发参量下转换是可发生在晶体长度 l 内任何一点的相干过程, 每对纠缠光子的产生都是这些可能性的相干叠加, 所以我们才有双光子的关联时间带宽。同样后面级联的和频过程也是一个相干过程。和频后的双光子时间关联的不确定度就增加了。(2) 关联函数的形状由原来的矩形函数变成梯形函数。这也与级联的和频过程有关。需要注意的是, 虽然理论上给出了纠缠传递中的时间特性的变化, 但是实验中无法探测到。因为单光子探测器的响应抖动时间相对较大(约 600ps), 会完全掩盖这种微小的时间特征 (对于钽酸锂晶体, $D_{pq}l/2$ 约为几个 ps, 可参见第五章)。

§6.2.3 空间关联的传递

前面的分析给出: 纠缠光子之一被频率上转换的过程很好的传递了时间关联, 进一步, 如果纠缠双光子的空间关联也能被很好的传递的话, 那么所有和横向关联相关的现象如量子光刻、量子“鬼”成像等实验就可以转移到新的频率, 可能出现一些新的应用。目前性能较好的商用激光光源是 532nm 的半导体泵浦绿光激光器。这样通过参量下转换所产生的低频光子必定位于近红外波段, 近红外

单光子探测器的低量子效率使得这种优秀的 532nm 激光器在量子光学领域的应用处于尴尬地位。但是如果上转换和频过程被证明能够很好的传递时间和空间纠缠特性，那么新生双光子就可以都用可见光波段的单光子探测器。这种激光器就有了用武之地。

本节就是主要研究和频之后的空间关联的特征。设探测器 D_1 接收的是信号光光子 ω_s ，探测器 D_2 接收的是和频光光子 ω_u 。单光子探测器 $j(j=1,2)$ 处的场算符：

$$E_j^{(+)}(\vec{r}_j, t_j) = \sum_{\vec{k}_j} e^{-i\omega_j t_j} g(\vec{k}_j, \omega_j; \vec{\rho}_j, z) \hat{a}_{\vec{k}_j}^+ , \quad (6.10)$$

计算空间关联，必须考虑所有的空间模式。信号光与和频光这对新生纠缠光子的关联幅度函数为：

$$A(\tau_1, \tau_2; \vec{\rho}_1, \vec{\rho}_2) = A_0 L g(\tau_1, \tau_2) \text{Tr}(\vec{\rho}_1, \vec{\rho}_2) . \quad (6.11)$$

我们采用傍轴近似，上式可以独立为时间和空间两部分。其中时间关联部分在上节已经讨论过。本节着重讨论空间关联，

$$\text{Tr}(\vec{\rho}_1, \vec{\rho}_2) = \iint d\vec{\rho}_s d\vec{\rho}'_s \sum_{\vec{k}_s, \vec{k}_u, \vec{k}_i} G(|\vec{\rho}_1 - \vec{\rho}_s|, \frac{\omega_1}{cz_1}) G(|\vec{\rho}_2 - \vec{\rho}'_s|, \frac{\omega_2}{cz_2}) e^{i(\vec{k}_1 \cdot \vec{\rho}_s + \vec{k}_2 \cdot \vec{\rho}'_s)} H_T(\vec{k}_s, \vec{k}_u) . \quad (6.12)$$

在相互作用面积有限、横向模式数目也有限的情形下，远场条件下的严格解：

$$\text{Tr}(\vec{\rho}_1, \vec{\rho}_2) = A_0 \iint d\vec{k}_1 d\vec{k}_2 \prod_{i=1,2} \text{somb} \left\{ \left| \vec{k}_i - \frac{\omega_i}{cz_i} \vec{\rho}_i \right|, a \right\} \int d\vec{k}_i \text{somb} \{ |\vec{k}_1 + \vec{k}_i|, a \} \text{somb} \{ |\vec{k}_i - \vec{k}_2|, a \} , \quad (6.13)$$

相比较直接参量下转换的 (5.17) 式的双光子过程多了一个 somb 函数。这和时间关联函数多了一个 sinc 函数类似，都是来自和频过程。我们看到新生双光子的空间湮灭点 $\vec{\rho}_1, \vec{\rho}_2$ 存在着复杂的耦合关系。这种耦合正是我们期望的纠缠传递。根据我们的实验条件可以对(6.13)稍做简化：非线性相互作用面积大小有限，但是横向模式有无穷多。模式数取无穷是相对 somb 函数的带宽取的合理近似。则有：

$$\text{Tr}(\bar{\rho}_1, \bar{\rho}_2) \propto \int d\bar{\rho}_s e^{-i(\frac{\omega_1}{cz_1}\bar{\rho}_1 + \frac{\omega_2}{cz_2}\bar{\rho}_2) \cdot \bar{\rho}_s} = \text{somb}\left(\left|\frac{\omega_1}{cz_1}\bar{\rho}_1 + \frac{\omega_2}{cz_2}\bar{\rho}_2\right|a\right). \quad (6.14)$$

这就和直接参量下转换的空间关联函数 (5.18) 式完全一样。空间关联被完好的继承了下来。我们再作作用面积无穷大的近似后, 也会得到和 (5.17) 式一样的空间点对点的 δ 函数。

§6.2.4 一个重要的应用：高分辨量子光刻

§6.2.4.1 经典光刻和量子光刻

光刻在现代半导体工艺中非常重要, 是实现高密集集成化的重要技术环节。图 6.2 是一个常规光刻过程的示意图。现代微电子信息产生的迅猛发展必将将光刻的分辨率推至极限。当光刻图形的最小单元接近波长的一半时, 由于衍射极限的限制, 无法实现成像。

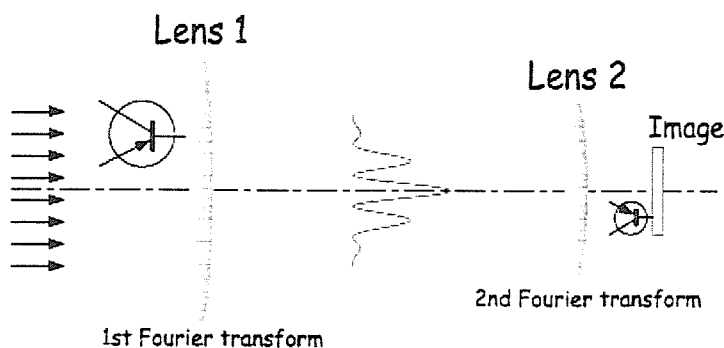


图 6.2 经典光刻示意图

当经典光刻显得力不从心的时候, 人们很快诉诸于“量子光刻”。美国德州农工(TAMU)的 Scully 教授最早提出了用多光子过程克服经典成像极限的构想, Yablonovitch 等人也提出了类似的方案。后来 Boto *et al.* 第一次提出可用纠缠光子做为光源来提高光刻的分辨率, 并称之为“量子光刻”^[5]。简单的说: 量子光刻的优势在于用 N 个光子纠缠源代替相同波长的经典光源, 可以实现 N 倍于经典光刻的分辨率。真正去实现量子光刻需要一种特殊的纠缠多光子吸收材料, 虽然这种材料目前还没有找到, 但是量子光刻的原理性实验已经有很大进展。美国马里兰大学(UMBC)的 Shih^[4]等人在这方面做出了重要贡献。图 6.3 是量子光刻原理性实验的示意图:

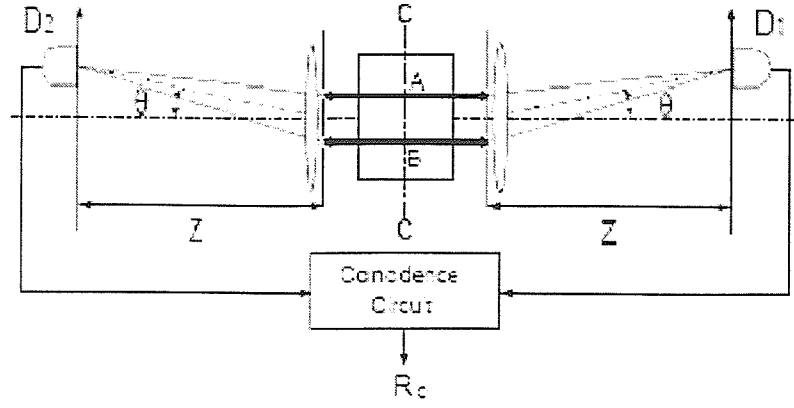


图 6.3 量子光刻原理性实验示意图

上述实验中利用的纠缠双光子对对双缝成像（双缝缝距 b ，单个缝宽 a ），在远场分别观测经典光刻和量子光刻的双缝衍射的光强分布，得到：

$$\sin^2\left(\frac{\pi a}{\lambda}\theta\right)\cos^2\left(\frac{\pi b}{\lambda}\theta\right) \quad (6.15)$$

和

$$\sin^2\left(\frac{2\pi a}{\lambda}\theta\right)\cos^2\left(\frac{2\pi b}{\lambda}\theta\right), \quad (6.16)$$

可见采用纠缠双光子源确实可以将光刻的分辨率提高一倍。

§6.2.4.2 纠缠转移双光子源光刻

光刻原理性实验配置要求：（1）泵浦光源作用面积足够大，这样可以认为一对光子是在晶体后端面同一点产生；（2）双缝必须贴着晶体，这样保证纠缠双光子要么都从狭缝 1 出来，要么都从狭缝 2 出来。所以经过双缝以后的双光子态函数为：

$$|\psi\rangle = \varepsilon[\hat{a}_s^+ \hat{a}_u^+ \exp(i\varphi_a) + \hat{b}_s^+ \hat{b}_u^+ \exp(i\varphi_b)]|0\rangle, \quad (6.17)$$

其中 s, u 分别代表信号光和和频光。

探测器 1 和探测器 2 处的电场分别为：

$$\hat{E}_1^+ = a_s \exp(ik_s r_{a1}) + b_s \exp(ik_s r_{b1}), \quad \hat{E}_2^+ = a_u \exp(ik_u r_{a2}) + b_u \exp(ik_u r_{b2}), \quad (6.18)$$

两个单光子探测器的符合计数率正比于二阶关联函数：

$$G^{(2)}(r_1, r_2) = \left| \langle 0 | \hat{E}_1^+ \hat{E}_2^+ | \varphi \rangle \right|^2 \propto \cos^2\left(\frac{k_s r_{a1} + k_u r_{a2} - k_s r_{b1} - k_u r_{b2}}{2}\right), \quad (6.19)$$