论文

和频过程中的超绝热演化与能量最大转换

朱海飞^①, 徐永刚^①, 李百宏^①, 马平平^①, 张杰^①, 董瑞芳^②, 张首刚^②, 李永放^{①*}^① 陕西师范大学, 物理学与信息技术学院, 西安 710119;^② 中国科学院国家授时中心, 中国科学院时间频率基准重点实验室, 西安 710600

*联系人, E-mail: yfli@snnu.edu.cn

收稿日期: 2014-12-15; 接受日期: 2015-03-16; 网络出版日期: 2015-04-03

中国科学院国家授时中心和中国科学院时间频率基准重点实验室开放课题资助项目

摘要 基于准相位匹配技术和量子物理中的反向透热补偿方法, 提出了一种超绝热条件下信号场能量完全转换成和频场能量的新方案. 利用几何旋转面巧妙地揭示出系统附加反向透热补偿项的物理作用机理; 类比弹性碰撞的物理过程, 形象地说明了附加反向透热补偿修正项后系统能量转换的特性. 借助于原子物理中的 Bloch 矢量法, 清晰的展示了系统在超绝热条件下的演化过程, 从新的角度图像化的揭示出体系捷径演化物理过程. 利用这一新方案可优化系统的绝热演化过程、缩短耦合区间和非线性晶体长度, 减少色散效应的影响, 且可在较弱泵浦条件下实现高效的和频能量转换. 该方案不仅为非线性光学器件的设计提供了一个很好的理论依据, 而且其物理思想可普遍应用于多个领域.

关键词 和频过程, 量子绝热, 超绝热, Bloch 矢量**PACS:** 42.65.Ky, 42.50.Ct, 03.65.Xp**doi:** 10.1360/SSPMA2014-00479

光学参量过程是拓展激光器辐射频率范围的重要方法,但在如何以较小的泵浦光强度或较小的二阶极化率张量的情况下实现非线性效应;如何在较宽的频段范围内满足相位匹配条件,如何在较短的非线性光学晶体长度中高效地实现各种频率转换,以减少色散对输出光质量的影响,这些问题是非线性光学研究过程中人们一直关注的几个重要方面. 近些年来,由于准相位匹配技术的发展^[1],极大地改善了相位匹配对能量转换的影响,并在较宽的频率范围内实现了参量下转换^[2]. 利用这一技术, Suchowsk 小组等采用与量子理论类比的方法先后提出并在实

验上利用和频 (SFG)绝热转换方案,实现了能量完全转换^[3-5]. 我们在理论上研究了 SFG 过程中的绝热过程所对应的态函数以及它们的演化规律;研究了绝热近似下的和频过程中类似于二能级系统中的 Landau-Zener 隧穿过程^[6,7]. 在上述问题中,实现能量的完全转换的前提是要求系统满足绝热条件,而如何降低绝热要求,同时又能够以较小的泵浦光的强度实现能量的完全转换,则成为要解决的下一个目标.

在研究光场与二能级原子相互作用时,可利用旋转变换使其变换到绝热表象^[8]. 在绝热表象下,系统的状态是由原来的本征矢所构成的一组叠加态来

引用格式: 朱海飞, 徐永刚, 李百宏, 等. 和频过程中的超绝热演化与能量最大转换. 中国科学: 物理学 力学 天文学, 2015, 45: 054201

Zhu H F, Xu Y G, Li B H, et al. Superadiabatic evolution and robust energy conversion in sum frequency generation (in Chinese). Sci Sin-Phys Mech Astron, 2015, 45: 054201, doi: 10.1360/SSPMA2014-00479

描述. 变换后的系统哈密顿量中包含两项, 一项由系统的本征值构成的对角化矩阵, 另一项恰好与旋转变换中转动的角速度相关. 旋转变换的角度(也称为混合角)是 Rabi 频率与失谐量的比值, 因此角速度的大小和场与原子系统相互作用相关. 当这一项远远小于该表象中本征值之差时, 系统满足绝热条件, 这时体系便一直保持在初始状态不变, 因此这一项具有使系统透热的作用. 为了完全消除透热项的作用, Demirplak 和 Rice^[9-11]提出在哈密顿量中添加一补偿量, 它的大小恰好等于透热项, 称其为反向透热补偿方案, 这样系统可以完全按照其本身的本征态进行演化. Berry 从更为一般性的含时量子态演化出发, 得出了无跃迁量子驱动方法^[12], 两种方案在实质上是相同的. 基于上述物理思想, Chen 等人^[13]提出了绝热通道捷径方法, 研究了二能级和三能级系统中粒子布居的完全转移过程; Bason 等人^[14]利用了无跃迁量子驱动原理实现了高保真量子驱动的实验研究.

无衰减泵浦近似条件下的信号光场与和频光场之间的耦合波方程类似于描述二能级系统的薛定谔方程. 我们基于反向透热补偿方法, 研究了超绝热条件下的信号场能量完全转换成和频场能量的物理过程. 利用准相位匹配条件和反向补偿的思想, 既可实现能量的最大转换, 又可减少泵浦光能量, 适当的选取耦合参数也可以减少晶体长度. 可见该方案可以同时解决非线性光学中的几个关键问题. 文中借助于原子跃迁中的 Bloch 矢量法, 将二维问题拓展到三维, 这样既可清晰的看到系统在超绝热条件下的演化途径, 又从新的角度解释了体系捷径演化通道的物理过程. 利用这种反向透热补偿方案的优点包括: 在较弱的泵浦能量条件下可以实现高效的和频能量转换, 优化了绝热过程、缩短了耦合区间, 因而可缩短晶体长度以减少色散效应. 这种方案不仅为非线性光学器件的设计提供了一个很好的理论依据, 而且其物理过程普遍存在于各个领域, 如量子计算^[15]、自旋动力学^[16]、量子化学^[17]、原子分子碰撞^[18]和玻色爱因斯坦凝聚^[19]等物理过程.

1 和频能量转换过程的基本方程

在第一类相位匹配条件下, 假设泵浦光场在传输的过程中强度保持不变, 称这种近似为无衰减泵浦近似(Undepleted Pump Approximation). 耦合波方

程经过旋转变换^[3,6,7]后可简化为

$$i \frac{d}{dz} \begin{pmatrix} A_1(z) \\ A_3(z) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} -x(z) & q_0 \\ q_0^* & x(z) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} A_1(z) \\ A_3(z) \end{pmatrix}, \quad (1)$$

其中 $q_0 = \frac{4\pi\omega_1\omega_3}{\sqrt{k_1k_3}c^2} \chi^{(2)} A_2$ 是光场间的耦合系数, 它与

泵浦光场振幅和晶体的极化率张量 $\chi^{(2)}$ 成正比. A_1, A_2, A_3 分别是信号、泵浦、与和频光场的振幅; $\omega_1, \omega_2, \omega_3$ 分别是信号场、泵浦场以及和频光场的频率; c 是真空中光速. 为不失一般性, 在下面的讨论中假设系统满足 $\omega_1 + \omega_2 = \omega_3$ 的能量守恒条件. $x(z) = (\Delta k + \Delta k'z)/2$ 与相位失配量(Phase Mismatch) $\Delta k = k_1 + k_2 - k_3$ 有关($\Delta k'$ 表示对位置坐标 z 的微分). k_1, k_2, k_3 分别是信号场、泵浦场与和频光场的波矢量(只考虑在 z 方向的传播时, 可看做是标量); z 是光在晶体中传播的位置量; 方程(1)中的矩阵称为动量传输矩阵, 对应的本征值为: $\lambda^\pm = \pm \sqrt{x(z)^2 + q_0^2}$.

利用准相位匹配(Quasi-Phase-Matching, QPM)技术在晶体中产生线性空间啁啾作用. 这时二阶非线性极化系数为 $\chi^{(2)} = 2d(z)$, 其中 $d(z)$ 可表示为^[6,7]

$$d(z) = d_m \exp[i(K_0 + D_g z)z], \quad (2)$$

其中 d_m 为常数, D_g 称为空间啁啾系数. $K_0 + D_g z$ 是由在晶体中所制备的空间光栅的周期所确定, 它表示光场在晶体中传输的波矢量与传播距离成线性关系. 若以泵浦场的频率为中心频率 $\omega_2 = \Omega_0$, 信号场的频率可表示为 $\omega_1 = \Omega_0 + \delta\Omega$, 它是在其中心频率上附加一个频率变化量 $\delta\Omega$. 这样相位失配量满足的关系便可以表示为 $\Delta k = \Delta K_0 + \delta v \delta\Omega - D_g z$, 其中 $\Delta K_0 = \Delta k_0$

$$+ \delta u \Omega_0 - K_0, \quad \Delta k_0 = k_{10} + k_{20} - k_{30}, \quad \delta u = \left(\frac{1}{u_1} + \frac{1}{u_2} - \frac{2}{u_3} \right);$$

$$\delta v = \left(\frac{1}{u_1} - \frac{1}{u_3} \right). \quad \delta u \text{ 和 } \delta v \text{ 是与耦合波之间群速度失配相关的.}$$

方程(1)中的 q_0 满足关系:

$$q_0 = \frac{8\pi\omega_1\omega_3}{\sqrt{k_1k_3}c^2} d_m A_2, \quad \text{它与 } z \text{ 无关为实常数. 将 } \Delta k \text{ 的表}$$

示带入 $x(z)$ 之中得到 $x(z) = (\Delta K_0 + \delta v \delta\Omega - 2D_g z)/2$, 最后可简化为 $x(z) = \beta - D_g z$, 它是 z 的线性函数. 根

据文献[6,7]报道的参数, 其中 $\beta = 8.5 \text{ mm}^{-1}$.

方程(1)的形式完全类似于二能级系统中两个能态之间跃迁几率所满足的微分方程. 因此系统的演化过程可由混合角的变化所确定. 令耦合方程(1)中的混合角为: $\tan(2\theta) = |q_0|/x(z)$, 角度 $\theta = \theta(z)$ 是由系统的动量矩阵参数所决定, 它是描述系统运动状态的参量. 利用方程(1)中动量传输矩阵的归一化本征矢可以构建旋转变换矩阵 R_1 和它的逆矩阵 R_1^{-1} :

$$R_1 = R_1^{-1} = \begin{pmatrix} -\cos\theta & \sin\theta \\ \sin\theta & \cos\theta \end{pmatrix}. \quad (3)$$

根据变换矩阵(3)可将方程(1)变换到绝热表象. 令 $B(z) = R_1 A(z)$, 其中 $B(z) = (B_1(z) \ B_3(z))^T$. 显然向量场 $B(z)$ 是由 $A_1(z)$ 和 $A_3(z)$ 构成的叠加场.

$$\begin{cases} B_1(z) = -\cos\theta A_1(z) + \sin\theta A_3(z), \\ B_3(z) = \sin\theta A_1(z) + \cos\theta A_3(z). \end{cases} \quad (4)$$

利用变换矩阵(3)变换后所满足的传输方程为

$$i \frac{dB(z)}{dz} = G_a B(z), \quad (5)$$

其中 $G_a = R_1^{-1} G R_1 - i R_1^{-1} \dot{R}_1 = \begin{pmatrix} \lambda^- & -i\dot{\theta} \\ i\dot{\theta} & \lambda^+ \end{pmatrix}$, $\dot{R}_1$ 为旋转矩阵对 z 的微分, G 为方程(1)中的动量传输矩阵. G_a 中的对角元素是方程(1)的本征值, 非对角元素 $i\dot{\theta}$ 源自于 $i R_1^{-1} \dot{R}_1$, $\dot{\theta}$ (上面一点或一撇表示对 z 的微分)表示混合角在传输方向中的梯度变化, 它的大小影响着系统中两个本征态 $B_1(z)$ 和 $B_3(z)$ 之间的耦合关系, 对 $B_1(z)$ 和 $B_3(z)$ 态之间的能量转移起关键作用. 根据混合角的定义可以得到: $\dot{\theta} = (q_0 D_g) / (2\lambda(z)^2)$, 其中 $\lambda(z) = \sqrt{x(z)^2 + q_0^2}$. 显然它与系统空间啁啾系数成正比, 而啁啾系数的大小决定光场相位在晶体中传输时的变化快慢, 因此 $\dot{\theta}$ 的大小表征着系统运动的快慢. 当 $\dot{\theta}$ 满足关系 $|\dot{\theta}| \ll |\lambda^+ - \lambda^-|/2$, 说明 $B_1(z)$ 和 $B_3(z)$ 之间的耦合较弱, 可忽略. 这样系统演化便只与自身初始状态相关, 因此 $|\dot{\theta}| \ll |\lambda^+ - \lambda^-|/2$ 便称为系统的绝热条件.

2 超绝热设计

2.1 基于耦合波方程超绝热演化设计

从前面的分析中可以看到, 对绝热过程起关键影响是 $i\dot{\theta}$, 若想办法将其消除, 可使系统很容易满足绝热条件, 系统会在(4)式表示的两个态中独立演化, 并保持不变. 反向透热补偿方法和无跃迁量子驱动理论便是解决这一问题的很好方案^[9-12]. 根据反向透热补偿方法, 需要在原有动量传输矩阵基础上添加一个补偿项 G_{cd} , 这样系统新的动量传输矩阵为 $G + G_{cd}$. 利用旋转变换矩阵 R_1 和它的逆矩阵 R_1^{-1} 对其做绝热表象变换, 可得到一个新的传输矩阵 G_l , 它满足关系:

$$\begin{aligned} G_l &= R_1^{-1} (G + G_{cd}) R_1 - i R_1^{-1} \dot{R}_1 \\ &= R_1^{-1} G R_1 + R_1^{-1} (G_{cd} R_1 - i \dot{R}_1), \end{aligned}$$

可以看到, 当满足 $R_1^{-1} (G_{cd} R_1 - i \dot{R}_1) = 0$ 时, 补偿项 G_{cd} 便可消除透热项 $i R_1^{-1} \dot{R}_1$ 的影响, 由此可得到反向透热补偿项 (后面简称为补偿项) 的矩阵表示为

$$G_{cd} = i \dot{R}_1 R_1^{-1} = \begin{pmatrix} 0 & i\dot{\theta} \\ -i\dot{\theta} & 0 \end{pmatrix}. \quad \text{附加了补偿项后总的动量}$$

传输矩阵便可表示为

$$G + G_{cd} = \begin{pmatrix} -x(z) & q_0 + i\dot{\theta} \\ q_0 - i\dot{\theta} & x(z) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} -x(z) & Qe^{i\delta} \\ Qe^{-i\delta} & x(z) \end{pmatrix}, \quad (6)$$

其中 $q_0 + i\dot{\theta} = Qe^{i\delta}$, $Q = Q(z) = \sqrt{q_0^2 + \dot{\theta}^2}$, $\tan\delta = \dot{\theta}/q_0$, $\delta = \delta(z)$. 这样系统的演化方程(1)便可以改写为

$$i \frac{d}{dz} \begin{pmatrix} A_1(z) \\ A_3(z) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} -x(z) & Qe^{i\delta} \\ Qe^{-i\delta} & x(z) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} A_1(z) \\ A_3(z) \end{pmatrix}, \quad (7)$$

可以看到补偿项只是对原有动量矩阵中耦合系数的修正, 修正后的耦合系数为复数.

2.2 反向透热补偿项的作用机理和影响

比较附加补偿项前后的方程(1)和(7), 可以看到, 两者只是耦合系数有所不同. 补偿后的耦合系数与 δ 角有关, 对方程(7)做旋转变换, 令 $A(z) = U_2 A'(z)$, 其变换矩阵为

$$U_2 = \begin{pmatrix} e^{i\delta/2} & 0 \\ 0 & e^{-i\delta/2} \end{pmatrix}, \quad U_2^{-1} = \begin{pmatrix} e^{-i\delta/2} & 0 \\ 0 & e^{i\delta/2} \end{pmatrix}.$$

根据变换矩阵可以看到, 变换前后的光场能量保持

不变 $|A(z)|^2 = |A'(z)|^2$. (7) 式经过旋转变换后的演化方程为

$$i \frac{d}{dz} \begin{pmatrix} A'_1(z) \\ A'_3(z) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} -(x(z) - \dot{\delta}/2) & Q \\ Q & (x(z) - \dot{\delta}/2) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} A'_1(z) \\ A'_3(z) \end{pmatrix}, \quad (8)$$

上式中的传输矩阵定义为 G' , 其本征值为: $K^\pm = \pm \sqrt{(x(z) - \dot{\delta}/2)^2 + Q^2}$. 很显然, 方程(1)和(8)在形式上一样, 两者之间的差别为: $x(z)$ 变为 $x(z) - \dot{\delta}/2$; q_0 变为 $Q = \sqrt{q_0^2 + \dot{\theta}^2}$. 这一变化, 其体现是将 $x(z)$ 和 q_0 所构成的平面转动了 δ 角, 过程如图 1 所示.

由上面的分析可以看到, 在附加补偿项之前, 混合角 $\theta = \theta(z)$ 转动的速度大小直接影响着系统的演化是否处于绝热状态. 为了消除由于系统的这种运动带来的影响, 要重新设计晶体结构, 改变原来动量传输矩阵中的耦合参数, 既添加了一个虚部 $\dot{\theta}$, 它是 $x(z)$, q_0 的函数. 根据 $\lambda = \sqrt{x(z)^2 + q_0^2}$, $Q = \sqrt{q_0^2 + \dot{\theta}^2}$ 和 $K = \sqrt{(x(z) - \dot{\delta}/2)^2 + q_0^2 + \dot{\theta}^2}$ 表示, 可以看到 $x(z)$ 和 q_0 构成了一个平面 $OABC$, 而添加的虚部 $\dot{\theta}$ 则是增加了一个新的自由度, 它垂直于 $OABC$ 平面. 因此这一改变相当于对原来的演化平面做了一个转动, 并由此又带来了新的运动. 它是原来本征值运动的平面绕 OA 转动了 δ 角, 变到了一个新的平面 $OAED$, 新的本征值 $|K^\pm| = \sqrt{(x(z) - \dot{\delta}/2)^2 + q_0^2 + \dot{\theta}^2}$ 在这一平面内演化. 这一变化使得 OA 由原来的 $OA = x(z)$ 改变为 $OA = x(z) - \dot{\delta}/2$. 可见, 附加补偿项的主要影响是由 $\dot{\delta}/2$ 来体现. 根据定义可得 $\dot{\delta}/2 = \ddot{\theta} \cos^2 \delta / (2q_0)$, 它反映的是附加补偿项引起新的旋转变化的快慢, 它也会对系统的演化过程造成影响. 很显然, 若 $\dot{\theta}$ 保持不变或变化很小时便有 $K^\pm = \lambda^\pm$, 从而保持了系统的协变性. 根据定义 $\tan \delta = \dot{\theta}/q_0$ 可以得到

$$x(z) - \dot{\delta}/2 = x(z) \frac{\lambda^4 - \left(\frac{D_g}{2}\right)^2}{\lambda^4 + \left(\frac{D_g}{2}\right)^2}, \quad (9)$$

图 1 附加反向绝热补偿项前后系统的演化关系

附加反向透热项前的系统: $AB = OC = q_0$, $OA = x(z)$, $OB = \lambda = |\lambda^\pm| = \sqrt{x(z)^2 + q_0^2}$ 是本征值的大小, 它在平面 $OABC$ 内演化, 混合角为 $\tan(2\theta) = AB/OA = q_0/x(z)$. 附加反向透热项后的系统: 平面 $OABC$ 演化到平面 $OAED$ (旋转角是 δ , 被定义为 $\tan \delta = BE/AB = \dot{\theta}/q_0$), 紧接着 OA 变为 $x(z) - \dot{\delta}/2$, 相关长度 $AE = Q = \sqrt{q_0^2 + \dot{\theta}^2}$, $OE = K = |K^\pm| = \sqrt{(x(z) - \dot{\delta}/2)^2 + q_0^2 + \dot{\theta}^2}$ (这个体系的本征值在平面 $OAED$ 内演化), 混合角 2γ 在平面 $OAED$ 内被 $\tan(2\gamma) = Q/(x(z) - \dot{\delta}/2)$ 所定义.

Figure 1 The evolution of the systems before and after adding a counterdiabatic term. The system without counterdiabatic term: where $AB = OC = q_0$, $OA = x(z)$ and $OB = \lambda = |\lambda^\pm| = \sqrt{x(z)^2 + q_0^2}$ are indicated on the plane $OABC$. The mixing angle 2θ is defined by $\tan(2\theta) = AB/OA = q_0/x(z)$. The system with counterdiabatic term: the plane $OABC$ evolves into the plane $OAED$ (the rotation angle is δ which is defined as $\tan \delta = BE/AB = \dot{\theta}/q_0$), and then OA becomes $x(z) - \dot{\delta}/2$. The related parameters are: $AE = Q = \sqrt{q_0^2 + \dot{\theta}^2}$ and $OE = K = |K^\pm| = \sqrt{(x(z) - \dot{\delta}/2)^2 + q_0^2 + \dot{\theta}^2}$ (the eigenvalues of this system which evolves on the plane $OAED$). The mixing angle 2γ is given by $\tan(2\gamma) = Q/(x(z) - \dot{\delta}/2)$ on the plane $OAED$.

其中 $\lambda = \sqrt{x(z)^2 + q_0^2} = \sqrt{(\beta - D_g z)^2 + q_0^2}$. $x(z) - \dot{\delta}/2$ 和 $x(z)$ 的差距主要体现在 $\beta - D_g z = 0$ 附近, 如图 2 所示. 图 2(a) 表示当耦合系数保持不变为 $q_0 = 1 \text{ mm}^{-1}$ 时, $x(z) - \dot{\delta}/2$ 和 $x(z)$ 随着光场在晶体中传输距离增加的变化过程, 对于不同的 D_g , $\beta - D_g z = 0$ 时的位置 z 不同, 且明显可看到随着 D_g 的减小, $x(z) - \dot{\delta}/2$ 在 $\beta - D_g z = 0$ 的左右偏离直线 $x(z)$ 越不明显. 图 2(b) 表示当晶体空间啁啾系数保持 $D_g = 1 \text{ mm}^{-2}$ 不变时, 在 $\beta - D_g z = 0$ 的附近随着耦合系数 q_0 的增加 $x(z) -$

图 2 $x(z)$ 和 $x(z) - \delta/2$ 在不同的耦合系数 q_0 和晶体中的啁啾系数 D_g 情况下随晶体中传输距离的演化关系. 参数: $\beta=8.5 \text{ mm}^{-1}$

Figure 2 Evolution of $x(z)$ and $x(z) - \delta/2$ as a function of crystal length z for different coupling coefficients q_0 and chirp parameters D_g , with $\beta=8.5 \text{ mm}^{-1}$.

$\delta/2$ 偏离直线 $x(z)$ 越不明显; 在远离 $\beta - D_g z = 0$ 点附近位置的两边, 如晶体的入射端面和出射端面均与 $x(z)$ 保持了很好的一致, 表明系统在附加补偿项后总体保持很好的协变性.

2.3 附加反向透热补偿项前后系统的绝热演化过程

为了研究系统经过补偿后的演化是否存在透热过程, 我们把修正后新体系变到绝热表象去. 演化到新体系可利用方程(8)中的动量传输矩阵的归一化本征矢构建旋转变换矩阵 R_2 和它的逆矩阵 R_2^{-1} , 其变换矩阵为

$$R_2 = R_2^{-1} = \begin{pmatrix} -\cos \gamma & \sin \gamma \\ \sin \gamma & \cos \gamma \end{pmatrix}, \quad (10)$$

其中 $\tan 2\gamma = Q/(x(z) - \delta/2)$. 令 $\mathbf{B}'(z) = R_2 \mathbf{A}'(z)$, 其中 $\mathbf{B}'(z) = (B'_1(z) \ B'_3(z))^T$. 可知向量场 $\mathbf{B}'(z)$ 是由光场 $A'_1(z)$ 和 $A'_3(z)$ 构成的叠加场:

$$\begin{cases} B'_1(z) = -\cos \gamma A'_1(z) + \sin \gamma A'_3(z), \\ B'_3(z) = \sin \gamma A'_1(z) + \cos \gamma A'_3(z). \end{cases} \quad (11)$$

利用变换矩阵(10)将方程(8)对应的体系变换到绝热表象. 根据式(1)和(4), (8)和(11)可分别数值求解信号场与和频场, 以及叠加场 $|B(z)|^2$ 和 $|B'(z)|^2$ 的能量演化过程, 依此研究系统在附加补偿项前后绝热和透热过程的差别以及补偿项的作用, 结果如图 3 所示. 图 3 在不同耦合系数下, (a)–(c)表示了系统附加补偿项前后的本征值 $\lambda^\pm$ 和 $K^\pm$ 的数值计算结果(不特殊声明期间, 下文中 $\lambda_{1,3}$ 表示 $\lambda^\pm$, $K_{1,3}$ 表示 $K^\pm$); (d)–(f)表示了系统补偿前后光场能量的转化过程; (g)–(i)表示了系统补偿前后叠加场之间的能量转移过程.

图 3 对比了附加补偿项前后系统的本征值(a)–(c), 光场(d)–(f)和叠加场(g)–(i)的演化规律. 可以看到, 当保持啁啾系数 $D_g=1 \text{ mm}^{-2}$ 不变时, 在附加补偿项前后的演化随着耦合系数从 0.5 mm^{-1} 到 1 mm^{-1} 和 1.5 mm^{-1} 的增加而逐渐趋于相同. 图 3 中左边第一列(a)–(g)表示当耦合系数为 $q_0=0.5 \text{ mm}^{-1}$, 晶体的啁啾系数为 $D_g=1 \text{ mm}^{-2}$ 时, 系统补偿前后的本征值、光场能量和叠加场的演化过程. 在附加补偿项之前, 两个本征值 $\lambda^\pm$ 在由 $\beta - D_g z = 0$ 所确定的 $z=8.5 \text{ mm}$ 处最接近. 当附加反向透热补偿项之后的本征值 $K^\pm$

图 3 对于不同的耦合系数, 系统修正前后的数值计算结果

(a)–(c) 系统补偿前后的本征值 $\lambda^\pm$ 和 $K^\pm$; (d)–(f) 系统在补偿前后光场能量的转化过程; (g)–(i) 系统补偿前后叠加场之间的能量转移. 每一列的耦合系数分别为: $q_0=0.5$, $q_0=1.0$ 和 $q_0=1.5 \text{ mm}^{-1}$. 相关参数 $D_g=1 \text{ mm}^{-2}$, $\beta=8.5 \text{ mm}^{-1}$

Figure 3 Numerical results of the systems for different coupling coefficient q_0 before and after adding a counterdiabatic term. (a)–(c) The eigenvalues $\lambda^\pm$ and $K^\pm$ as a function of coordinate z before and after adding a counterdiabatic term; (d)–(f) intensity conversion between the signal field and sum frequency field. (g)–(i) energy conversion of the superposition fields. The coupling coefficient q_0 of each column takes the values of 0.5, 1.0 and 1.5 mm^{-1} , respectively. Calculation parameters: $D_g=1 \text{ mm}^{-2}$, $\beta=8.5 \text{ mm}^{-1}$.

在原始体系本征值 $\lambda^\pm$ 最近点处彼此拉开、远离, 如图 3(a) 中实线所示. 在没有附加补偿项时, 信号场的能量 $|A_1(z)|^2$ 不能够完全转换到和频场 $|A_3(z)|^2$ 之中, 如图 3(d) 所示. 叠加场 $|B_1(z)|^2$ 在初始时能量为 1 (假设入射光场能量为 1), $|B_3(z)|^2$ 在初始时为零, 当光场传输到两个本征值最接近的点时, $|B_1(z)|^2$ 和 $|B_3(z)|^2$ 之间有明显的能量交换, 因此, 这时发生了

隧穿效应, 这一过程完全类似于原子中 Landau-Zener 隧穿过程^[7], 但不满足绝热条件. 当附加补偿项之后, 由于本征值在最近点处拉开, 信号场的能量 $|A'_1(z)|^2$ 可以完全转换成和频场能量 $|A'_3(z)|^2$ 之中. 这样的物理过程类似于两个完全相同的弹性球之间的完全弹性碰撞过程. 在碰撞时, 一个弹性球将能量无损的传递给另一个弹性球, 实现了能量的完全交换. 同时叠加场 $|B'_1(z)|^2$ 和 $|B'_3(z)|^2$ 在两个本征值最接近的

点处也有能量交换, 所不同的是两个场经过这一区间之后又恢复到各自的初始状态, 如图 3(g)所示. 这说明 $|B'_1(z)|^2$ 态将能量传递给 $|B'_3(z)|^2$ 后, 很快 $|B'_3(z)|^2$ 又将能量交还给 $|B'_1(z)|^2$, 此后两个态保持各自初始状态不变, 这是便是附加反向透热补偿项的作用结果. 以此类比, 可视为在附加补偿项之前的两个叠加态之间的碰撞为非弹性碰撞, 碰撞后, 得到能量和失去能量的两个物体都不再恢复到原来状态; 因此可以认为, 附加反向透热补偿项之后, 改变了两个光场相互作用的性质, 使两者之间完成了类似一个完全弹性碰撞过程. 为了量化描述这样的物理过程, 定义系统附加补偿项前后的能量转换系数分别为

$$\begin{cases} \eta = \frac{|A_3(z_l)|^2 - |A_1(z_l)|^2}{|A_1(0)|^2}, \\ \eta' = \frac{|A'_3(z_l)|^2 - |A'_1(z_l)|^2}{|A'_1(0)|^2}, \end{cases} \quad (12)$$

其中 $|A_1(0)|^2$ 和 $|A'_1(0)|^2$ 分别表示在晶体入射端信号场强度或能量; z_l 表示光场的出射端位置坐标. 根据图 3(d)所示, 对于附加补偿项之前在晶体的入射端有: $|A_1(0)|^2 = 1$ (假设入射信号场能量为 1), 这时的和频场有 $|A_3(0)|^2 = 0$; 在晶体的出射端有: $|A_3(z_l)|^2$ 和 $|A_1(z_l)|^2$ 都小于 1, 因此有 $0 < \eta < 1$. 而附加补偿项之后, 在晶体的入射端有: $|A'_1(0)|^2 = 1$, $|A'_3(0)|^2 = 0$; 在晶体的出射端有: $|A'_3(z_l)|^2 = 1$, $|A'_1(z_l)|^2 = 0$, 因而有 $\eta' = 1$. 这一结果说明, 前者类似于完全非弹性碰撞, 而后者则类似于完全弹性碰撞.

在图 3 的第二列(b)–(h)中, 当晶体的啁啾系数为 $D_g = 1 \text{ mm}^{-2}$, 耦合系数增加到 $q_0 = 1 \text{ mm}^{-1}$ 时, 在附加补偿项前信号场的能量 $|A_1(z)|^2$ 不能够完全转换到和频场 $|A_3(z)|^2$ 之中, 而且在 $|B_1(z)|^2$ 和 $|B_3(z)|^2$ 之间也有能量交换, 因此不满足绝热条件. 当附加补偿项之后的本征值在最近点处比原来的距离要大些, 信号场的能量 $|A'_1(z)|^2$ 可以完全转换成和频场能量 $|A'_3(z)|^2$. 同时叠加场 $|B'_1(z)|^2$ 和 $|B'_3(z)|^2$ 在两个本征值最接近的点处有能量交换, 如图 3(h)所示, 两个场经过这一点

之后又恢复到各自的初始状态, 其过程与图 3(g)类同. 图 3 中的右边一列(c)–(i)表示耦合系数为 $q_0 = 1.5 \text{ mm}^{-1}$, 晶体的啁啾系数为 $D_g = 1 \text{ mm}^{-2}$ 时, 附加补偿项前后的本征值几乎完全相同, 同时 $(|A_1(z)|^2 \text{ 和 } |A'_1(z)|^2)$ 与和频场的能量 $(|A_3(z)|^2 \text{ 和 } |A'_3(z)|^2)$ 以及叠加场 $|B_{1,3}(z)|^2$ 和 $|B'_{1,3}(z)|^2$ 都具有相同的演化规律. 这时都可以实现能量的完全转换, 说明这时系统无需附加补偿项便可实现绝热演化. 上述过程也可通过附加补偿项前后的绝热条件给予说明, 其绝热条件分别为

$$|\dot{\theta}| \ll |\lambda^+ - \lambda^-|/2, \text{ 和 } |\dot{\gamma}| \ll |K^+ - K^-|/2. \quad (13)$$

为了说明附加补偿项前后两个绝热条件的演化规律, 我们将其与本征值的演化作对比说明. 当耦合系数为 $q_0 = 0.5 \text{ mm}^{-1}$ 和 $D_g = 1 \text{ mm}^{-2}$ 时, 图 4(d)中的虚线表示是 $|\dot{\theta}|$ 的演化规律, 显然在两个本征值最近点处有最大值, 这说明此时不满足绝热条件, 有能量交换. 在附加补偿项之后, $|\dot{\gamma}|$ 的演化规律则明显不同, 它在 $|\dot{\theta}|$ 最大值的位置为最小值, 如图 4(d)中的实线所示. 而极大值则在其两边, 它们所对应的本征值之间的距离不是最近点, 因此不影响绝热演化过程, 如图 3(d)中修正后的光场能量曲线所示. 它表明了有了补偿项后, 使原来不满足绝热条件变得满足; 这样当 $|\dot{\theta}| \gg 1$ 时, $|\dot{\gamma}| \ll 1$ 的情况称为超绝热过程, 如图 4(d)中所示. 随着耦合系数的增加, $|\dot{\theta}|$ 和 $|\dot{\gamma}|$ 均明显减小. 特别是当 $q_0 = 1.5 \text{ mm}^{-1}$ 时, $|\dot{\theta}| = |\dot{\gamma}|$. 可见这时的系统演化不需要附加反向透热补偿项仍然可以实现绝热演化和能量的完全转化.

3 和频过程的布洛赫矢量演化

鉴于利用布洛赫矢量(Bloch)表示体系的演化具有形象性和直观性, 我们借鉴量子理论中的 Bloch 矢量法, 将二维问题拓展到三维, 将和频过程中的非线性光学问题形象的展现出来, 从而可深入理解和频过程中的能量转化过程.

根据量子力学中的定义, Bloch 矢量可以表示为:

$\mathbf{R}(z) = (U_{\text{SFG}}, V_{\text{SFG}}, W_{\text{SFG}})^T$, 其中的三个分量分别为

图 4 系统补偿前后的本征值和其混合角的梯度

(a)–(c) 不同耦合系数下系统补偿前后的本征值 $\lambda^\pm$ 和 $K^\pm$ 的数值计算结果; (d)–(f) 分别为系统附加补偿项前后混合角的导数. 每一列的耦合系数分别 $q_0=0.5$, $q_0=1.0$ 和 $q_0=1.5 \text{ mm}^{-1}$. 相关参数为 $D_g=1 \text{ mm}^{-2}$ 和 $\beta=8.5 \text{ mm}^{-1}$

Figure 4 The eigenvalues and the derivative of the mixing angle for systems before and after compensating a counterdiabatic term. (a)–(c) Numerical results of the eigenvalues $\lambda^\pm$ and $K^\pm$. (d)–(f) the derivative of the mixing angle θ' and γ' with respect to propagation distance z . The coupling coefficient q_0 of each column takes the values of 0.5, 1.0 and 1.5 mm^{-1} , respectively. The related parameters are $D_g=1 \text{ mm}^{-2}$ and $\beta=8.5 \text{ mm}^{-1}$.

$$U_{\text{SFG}} = A_1 A_3^* + A_3 A_1^*, \quad V_{\text{SFG}} = i(A_1 A_3^* - A_1^* A_3), \quad W_{\text{SFG}} = |A_3|^2 - |A_1|^3.$$

U_{SFG} 与光场的色散相关, V_{SFG} 表示光场被介质的损耗和吸收, W_{SFG} 表示信号场到和频场之间的能量转化, Bloch 矢量的演化满足 Liouville 方程. 根据方程 (1) 和 (8) 可以求解附加补偿项前后体系 Bloch 矢量的演化过程, 结果如图 5 所示.

图 5 是当晶体的空间啁啾系数为 $D_g=1 \text{ mm}^{-2}$ 和 $\beta=8.5 \text{ mm}^{-1}$ 情况下, 系统在附加补偿项前后不同耦合系数情况下, Bloch 矢量随着光场在晶体中的传输距离增加的演化情况. 图 5(a) 是系统在附加补偿项之前, 耦合系数为 $q_0=0.5 \text{ mm}^{-1}$ 系统的演化规律. 这时只有一部分的信号场能量转换为和频场, 不能够实现能量的最大转化. 当附加补偿项之后, 即使是耦合系数为 $q_0=0.1 \text{ mm}^{-1}$ 时仍然可以实现能量的完全转化, 如图 5(b) 所示. 而且这时可以看到, 这一过程的转化路径最短, 上下两个端点出现的黑色圆圈表示光场

振荡过程. 由此可见补偿项的作用十分明显, 并且可以实现最短路径的能量转换. 随着耦合系数 $q_0=0.5 \text{ mm}^{-1}$ 和 $q_0=1.5 \text{ mm}^{-1}$ 的增加修正后体系同样可以实现能量的最大转换, 但是整个过程路径会越来越长, 如图 5(c) 和 (d) 所示. 根据图 1, 由于附加补偿项的作用导致了 OA 改变为 $OA = x(z) - \dot{\delta}/2$, 这样的变化会影响系统协变性. 因此, 如何既利用补偿项的作用又保持系统的协变性, 以最短路径实现能量的完全转化便成为一个重要问题. 图 6 为角度 δ 的演化规律. 可以看到, δ 经历了从 0 到最大值(接近 $\pi/2$) 最后回到了 0 的一个过程. 只有当 $q_0=0.1 \text{ mm}^{-1}$ 时 δ 最接近 $\pi/2$, 而当 q_0 取 1.5 mm^{-1} 时 δ 变得很小, 如图中最下方曲线所示. 对于体系的整体演化而言, 系统在附加补偿项之后, 本征值演化平面 $OAED$ 经历了一个循环转动, 最后回到了原始位置, 整个过程 δ 演化了 π 角. 在这一过程中, 当 $\delta=0$ 和 $\delta=\pi/2$ 时, 都有 $\dot{\delta}/2=0$, 说明此时满足 $OA=x(z)$, 即保持不变. 这一结果与图 2(b)

图 5 添加补偿项前后光场通过不同耦合系数晶体 Bloch 矢量的空间演化. (a) 附加补偿项前系统的演化 $q_0=0.5 \text{ mm}^{-1}$; (b)–(d) 耦合系数分别为 $q_0=0.1$, $q_0=0.5$ 和 $q_0=1.5 \text{ mm}^{-1}$ 时, 附加补偿项后系统的演化. 计算参数: $D_g=1 \text{ mm}^{-2}$, $\beta=8.5 \text{ mm}^{-1}$

Figure 5 Spatial evolution of Bloch vector when the light fields pass through the crystal of different coupling coefficients before and after adding the counterdiabatic term. (a) Evolution of the system without the counterdiabatic term, and $q_0=0.5 \text{ mm}^{-1}$. (b)–(d) evolution of the system with the counterdiabatic term for $q_0=0.1$, $q_0=0.5$ and $q_0=1.5 \text{ mm}^{-1}$, respectively. The related parameters are $D_g=1 \text{ mm}^{-2}$, $\beta=8.5 \text{ mm}^{-1}$.

中的初始位置, 辅助虚线对应的位置以及 $x(z)-\delta/2$ 末端位置演化结果相同. 因此从图 6 可知, 只有 δ 演化了 π 角, 才可实现捷径演化, 这样一来我们可以选取系统能够以捷径实现能量最大转化条件便是

$$\int_{z_i}^{z_f} \delta dz \approx \pi. \quad (14)$$

在这一条件下, 当 $D_g=1 \text{ mm}^{-2}$ 和 $\beta=8.5 \text{ mm}^{-1}$ 时, 耦合系数越小, $\delta/2$ 越趋近于 $\pi/2$, 图 5(b) 的情况便是满足这一条件下的结果.

根据前面所述, 附加补偿项的作用是对耦合系数的修正, 这需要对非线性晶体重新设计. 由前面所述耦合系数 q_0 和非线性晶体的二阶非线性极化系数 $d(z)=d_m \exp[i(K_0+D_g z)z]$ 的表示, 对非线性晶体进行重新设计主要是在原有相位基础上增加一个相位因子, 它是传输方向的非线性函数, 具有洛伦兹线型. 修正后的二阶非线性极化系数可表示为 $d(z)=$

图 6 旋转角 δ 在晶体中传输距离的演化规律, 从顶端到底端耦合系数依次为 $(0.1, 0.2, 0.5, 1.5) \text{ mm}^{-1}$; 计算参数为 $D_g=1 \text{ mm}^{-2}$ 和 $\beta=8.5 \text{ mm}^{-1}$

Figure 6 Rotation angle δ as a function of propagation distance and coupling coefficients $q_0=(0.1, 0.2, 0.5, 1.5) \text{ mm}^{-1}$ from top to bottom. Calculation parameters: $D_g=1 \text{ mm}^{-2}$, $\beta=8.5 \text{ mm}^{-1}$.

$d'_m \exp[i((K_0+D_g z)z+\delta(z))]$. 在文献[20]中, 作者提出了一种设计思想, 在具有空间啁啾效应的基础上, 设计了具有高斯线性的相位因子. 基于这样的设计思想, 在晶体的设计和制备中实现具有洛伦兹线型的相位因子是具有可行性的, 或者说我们的研究结果在实验上是可行的.

4 结论

文中研究了在无衰减泵浦近似条件下的信号与和频光场之间的耦合问题. 由于这一问题完全类似于二能级系统的跃迁过程, 因此我们借鉴反向透热补偿方法, 研究了超绝热条件下的信号场能量以最佳捷径完全转换成和频场能量的物理过程. 利用这一思想和准相位匹配条件, 在理论上提出了既可减少泵浦光能量, 又可实现能量的最大转换的方案; 研究了以最短路径实现最大能量转换的和频过程. 文中借助于原子跃迁中的 Bloch 矢量法, 将二维问题拓展到三维, 这样可以清晰地看到系统在超绝热条件下的演化细节, 从新的角度诠释了体系在捷径演化时的物理机理. 由于耦合系数正比于泵浦光场, 因此耦合系数的减小意味着泵浦光能量的减少. 最短路径又可以使得晶体的长度减少, 因此这样的方

案解决了文章开头提出的以较小泵浦能量, 较短的晶体长度, 实现非线性效应中的光频转换过程. 但由于本问题的前提是无衰减泵浦近似条件下的结果, 因而又不能够使得泵浦光太小而不满足初始假设. 因此如何找到一个合适泵浦光便是一个具体问题. 由于 Longhi^[20]利用准相位匹配技术设计了一种具有高斯线性的耦合系数晶体, 研究了二阶级联过程实现了高效三次谐波的产生. 由此可见, 设计具有洛伦

兹线型耦合参数的晶体在实验上是可行的, 从而保证了我们所提方案具有实际意义. 利用这种方法的优点主要有: 在较小的泵浦能量条件下实现高效的和频能量转换; 优化了的绝热过程缩短了耦合区间, 对晶体尺寸缩短以减少色散效应对实际应用具有很好的指导意义. 这种方案不仅为非线性光学器件的设计提供了一个很好的理论依据, 而且其物理过程普遍存在于各个领域.

致谢 感谢中国科学院国家授时中心和中国科学院时间频率基准重点实验室对本项目的支持和建议.

参考文献

- 1 Hum D S, Fejer M M. Quasi-phasematching. *Phys C R*, 2007, 8: 180–198
- 2 Nasr M B, Carrasco S, Saleh B E A, et al. Ultrabroadband biphotons generated via chirped quasi-phase-matched optical parametric down-conversion. *Phys Rev Lett*, 2008, 100: 183601
- 3 Suchowski H, Oron D, Arie A, et al. Geometrical representation of sum frequency generation and adiabatic frequency conversion. *Phys Rev A*, 2008, 78: 063821
- 4 Suchowski H, Prabhudesai V, Oron D, et al. Robust adiabatic sum frequency conversion. *Opt Express*, 2009, 17: 12732
- 5 Suchowski H, Bruner B D, Ganany-Padowicz A, et al. Adiabatic frequency conversion of ultrafast pulses. *Appl Phys B*, 2011, 105: 697–702
- 6 Li Y F, Li B H, Ren L Q, et al. Adiabatic and diabatic of sum frequency (in Chinese). *Sci Sin-Phys Mech Astron*, 2010, 40: 1468–1475 [李永放, 李百宏, 任立庆, 等. 和频过程中的绝热与透热过程. *中国科学: 物理学 力学 天文学*, 2010, 40: 1468–1475]
- 7 Lin Q L, An L, Xu Y G, et al. Rabi oscillation and Landau-Zener tunneling process of sum frequency (in Chinese). *Sci Sin-Phys Mech Astron*, 2013, 43: 1015–1021 [林钱兰, 安澜, 徐永刚, 等. 和频过程中的 Rabi 振荡与 Landau-Zener 隧穿过程. *中国科学: 物理学 力学 天文学*, 2013, 43: 1015–1021]
- 8 Vtianov N V, Garraway B M. Landau-Zener model: Effects of finite coupling. *Phys Rev A*, 1994, 53: 4288–4304
- 9 Demirplak M, Rice S A. Adiabatic population transfer with control fields. *J Phys Chem A*, 2003, 107: 9937–9945
- 10 Demirplak M, Rice S A. Assisted adiabatic passage revisited. *J Phys Chem B*, 2005, 109: 6838–6684
- 11 Demirplak M, Rice S A. On the consistency, extremal, and global properties of counterdiabatic fields. *J Chem Phys*, 2008, 129: 154111
- 12 Berry M. Transitionless quantum driving. *J Phys A-Math Theor*, 2009, 42: 365303
- 13 Chen X, Lizuain I, Ruschhaupt A, et al. Shortcut to adiabatic passage in two- and three-level atoms. *Phys Rev Lett*, 2010, 105: 123003
- 14 Bason M G, Viteau M, Malossi N, et al. High-fidelity quantum driving. *Nat Phys*, 2012, 8: 147–152
- 15 Wei L F, Johansson J R, Cen L X, et al. Controllable coherent population transfers in superconducting qubits for quantum computing. *Phys Rev Lett*, 2008, 100: 113601
- 16 Prokofev N V, Stamp P C E. Low-temperature quantum relaxation in a system of magnetic nanomolecules. *Phys Rev Lett*, 1998, 80: 5794–5797
- 17 May V, Kuhn O. Charge and Energy Transfer Dynamics in Molecular Systems. Berlin: Wiley-VCH Verlag, 2000
- 18 Harmin D A, Price P N. Incoherent time evolution on a grid of Landau-Zener anticrossings. *Phys Rev A*, 1994, 49: 1933–1944
- 19 Yurovsky V A, Ben-Reuven A. Curve crossing in linear potential grids: The quasidegeneracy approximation. *Phys Rev A*, 2001, 63: 043404
- 20 Longhi S. Third-harmonic generation in quasi-phase-matched $\chi^{(2)}$ media with missing second harmonic. *Opt Lett*, 2007, 32: 1791–1793
- 21 Lim R, Berry M V. Superadiabatic tracking of quantum evolution. *J Phys A-Math Gen*, 1991, 24: 3255

Superadiabatic evolution and robust energy conversion in sum frequency generation

ZHU HaiFei¹, XU YongGang¹, LI BaiHong¹, MA PingPing¹, ZHANG Jie¹,
DONG RuiFang², ZHANG ShouGang² & LI YongFang^{1*}

¹ *School of Physics & Information Technology, Shaanxi Normal University, Xi'an 710119, China;*

² *Key Lab of Time and Frequency Primary Standards, National Time Service Center, Chinese Academy of Sciences, Xi'an 710600, China*

Based on the QPM technology and the counter diabatic compensation approach in quantum physics, we propose an optimal scheme that the signal field completely converts into the sum frequency field under the condition of the superadiabaticity. With the geometric rotation plane designed, we subtly reveals the physical mechanism of the systems before and after adding a counter diabatic term. The property of the energy conversion which is analogous to the elastic collision is explained for the addition counter diabatic compensation. With the help of Bloch vectors in atoms physics, we can clearly show the physics process of the complete energy conversion and the physical mechanism for the shortcuts of the superadiabaticity from a new perspective. This new scheme can optimize adiabatic process, shorten the coupling region and nonlinear crystal length, reduce the influence of the dispersion effect, and also implement the robust efficient energy conversion under the condition of relatively weak pump intensity. Not only does this scheme provide a good theoretical basis for the design of nonlinear optical devices, but also its physical thoughts can be widely used in many other fields.

sum frequency generation, quantum adiabatic, superadiabaticity, Bloch vector

PACS: 42.65.Ky, 42.50.Ct, 03.65.Xp

doi: 10.1360/SSPMA2014-00479