

高阶非线性极化率图示法的化简研究

吴 群 郭奕理 周炳琨
(清华大学无线电电子学系)

提 要

本文推演出密度矩阵元拓扑图示的最简约化方法。应用这种方法, 仅用 $n+1$ 个拓扑图即可完备表征 n 阶非线性极化率, 与此同时还给出表达式中每一项的微观通道数。

一、引 言

物质非线性极化率的量子理论, 首先要求解密度矩阵, 然后才能求极化率的系综平均。长期以来, 求解密度矩阵采用代数上的迭代微扰^[1], 这种方法数学繁琐, 非线性光学过程的一些物理内涵淹没在公式的推导过程中, 如同人们熟知的那样, 处理三阶线性极化率已经很复杂, 高阶过程更为困难, 1977年, 在非线性光学中发展运用了 Feynman 图表示密度矩阵元的方法^[2], 将原来的代数求解简化为几何图示, 同时, 还提供了微观过程时序通道的信息, 因此, 形象地反映出光波与物质相互作用的过程。

对于时序一定的瞬态效应, 只要考虑少量几个拓扑图, 叶佩弦^[3]以及国外近年文章^[4]曾作过有效的研究; 对于极化率, 必须考虑所有可能的微观时序, 原理上, 这种图示法也是可行的, 但是, 对于高阶过程, 需要考虑的拓扑图个数比特定时序的瞬态过程要多得多, 例如, 三阶要 48 个图, 四阶 384 个图。可见, 要作为处理高阶极化率的方法尚难以胜任, 迄今为止, 未见有报道, 本文将推演这些拓扑图的最简合并方法, 使得任意 n 阶非线性极化率只要用 $n+1$ 个图表示, 最后, 以五阶和频非线性极化率为例进行讨论。

二、一般理论和约定

一个无微扰哈密顿量 H_0 和含时微扰 $H'(t)$ 的量子系统, 满足薛定谔方程:

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} |\psi_i(t)\rangle = [H_0 + H'(t)] |\psi_i(t)\rangle, \quad (1)$$

形式上, 波函数 $|\psi_i(t)\rangle$ 的解可以写成:

$$|\psi_i(t)\rangle = U(t, t_0) |\psi_i(t_0)\rangle, \quad (2)$$

这里, $|\psi_i(t_0)\rangle$ 是初始时刻 t_0 的量子态, $U(t, t_0)$ 是系统由 t_0 时刻状态发展到 t 时刻状态的算符。按量子力学微扰论的一般方法^[5], 算符 $U(t, t_0)$ 可用微扰哈密顿量的幂次展开:

$$U(t, t_0) = \sum_{n=0}^{\infty} U^{(n)}(t, t_0), \quad (3)$$

其中, 对于 $n=0$,

$$U^{(0)}(t, t_0) = \exp[-(i/\hbar)(t-t_0)H_0]. \quad (4)$$

对于 $n>0$,

$$U^{(n)}(t, t_0) = \left(-\frac{i}{\hbar}\right)^n \int_{t_0}^t dt_1 \int_{t_0}^{t_1} dt_2 \cdots \int_{t_0}^{t_{n-1}} dt_n U^{(0)}(t, t_1) \cdot H'(t_1) \cdot U^{(0)}(t_1, t_2) \cdot H'(t_2) \cdots U^{(0)}(t_{n-1}, t_n) \cdot H'(t_n) \cdot U^{(0)}(t_n, t_0), \quad (5)$$

相互作用时序满足: $t > t_1 > t_2 > t_3 > \cdots > t_{n-1} > t_n > t_0$. 因此, 系统的态矢量为:

$$|\psi_i(t)\rangle = \sum_{n=0}^{\infty} |\psi_i^{(n)}(t)\rangle = \left(\sum_{n=0}^{\infty} U^{(n)}(t, t_0)\right) |\psi_i(t_0)\rangle. \quad (6)$$

取厄米共轭,

$$\langle\psi_i(t)| = \sum_{n=0}^{\infty} \langle\psi_i^{(n)}(t)| = \langle\psi_i(t_0)| \cdot \left(\sum_{n=0}^{\infty} U^{(n)*}(t, t_0)\right), \quad (7)$$

式中 $U^{(n)*}(t, t_0)$ 是(4)式、(5)式的厄米共轭算符。定义密度矩阵^[6]:

$$\rho(t) = \sum_i |\psi_i(t)\rangle W(i) \langle\psi_i(t)|. \quad (8)$$

将(6)、(7)两式代入(8)式

$$\rho(t) = \sum_{n=0}^{\infty} \rho^{(n)}(t) = \sum_{p=0}^{\infty} \sum_{m=0}^{\infty} U^{(p)}(t, t_0) \cdot U^{(m)*}(t, t_0) \cdot \rho(t_0). \quad (9)$$

$\rho(t_0) = \sum_i |\psi_i(t_0)\rangle W(i) \langle\psi_i(t_0)|$ 是初始时刻 t_0 的密度矩阵, $n=p+m$ 是密度矩阵按微扰哈密顿量展开的阶次, 将(5)式及它的厄米共轭代入(9)式可得:

$$\rho^{(n)}(t) = \sum_{m+p=n} \sum_{\substack{i_1, \dots, i_p \\ i'_1, \dots, i'_m}} \left\{ (-1)^p \cdot \left(\frac{i}{\hbar}\right)^n \int_{t_0}^t dt \int_{t_0}^{t_1} dt_2 \cdots \int_{t_0}^{t_{p-1}} dt_p \int_{t_0}^t dt'_1 \int_{t_0}^{t'_1} dt'_2 \cdots \int_{t_0}^{t'_{m-1}} dt'_m \cdot \rho(t_0) \cdot U^{(0)}(t, t_1) \cdot H'(t_1) \cdot U^{(0)}(t_1, t_2) \cdot H'(t_2) \cdots U^{(0)}(t_{p-1}, t_p) \cdot H'(t_p) \cdot U^{(0)}(t_p, t_0) \cdot U^{(0)*}(t'_m, t_0) \cdot H'(t'_m) \cdot U^{(0)*}(t'_{m-1}, t'_m) \cdot H'(t'_{m-1}) \cdots H'(t'_2) U^{(0)*}(t'_1, t'_2) H'(t'_1) \cdot U^{(0)*}(t, t'_1) \right\}. \quad (10)$$

(10)式中尽管 $t_i > t_{i+1}$ ($i=0, 1, \dots, p$), $t'_i > t'_{i+1}$ ($i=0, 1, \dots, m$), 但是, t'_i 和 t_i 的时序允许任意, 为此, (10)式的代数表达式展开后十分复杂, 下面本文按文献[7]的约定作拓扑图, 将(10)式中每一个大括号的积分式用一个图表示。

(1) 取时间轴向上, 量子态的时间发展算符,

$$U^{(0)}(t_a, t_b) = \exp[-(i/\hbar) \cdot (t_a - t_b) \cdot H_0], \quad (11)$$

$$U^{(0)*}(t'_c, t'_d) = \exp[+(i/\hbar) \cdot (t'_c - t'_d) \cdot H_0] = U^{(0)}(t'_d, t'_c), \quad (12)$$

分别由图 1(a), 图 1(b)用一段传播子线表示。

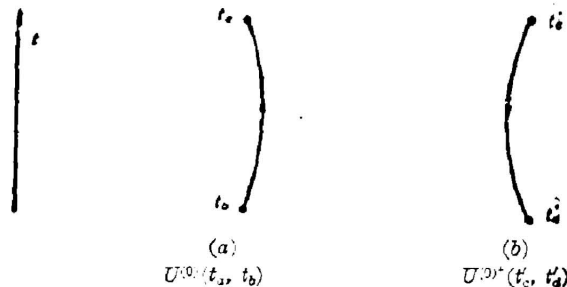


Fig. 1 Basic propagating segment

(2) 传播子线两端的实心圆点(顶点), 表示在对应时刻 t_i 或 t'_i 微扰哈密顿量 $H'(t_i)$, $H'(t'_i)$ 的作用, 如图 1 中所示。

在这种约定下, (10) 式的大括号可以由图 2 表示。左半椭圆有 m 个作用顶点, 右半椭圆 p 个顶点, 每一个 n 阶过程的拓扑图都有 $p+m=n$ 个作用点。在非线性光学中, 人们关心的是电磁偶极作用微扰,

$$H'(t) = -\mathbf{P} \cdot \mathbf{E}(t). \quad (13)$$

进一步约定, 在每一个微扰作用顶点上, 用一段波浪线表示系统与负频光子作用(箭头朝向顶点)或与正频光子作用(箭头背向顶点), 一般地说, 这要引起零级波函数的改变, 为了区别, 在每两个顶点之间的传播子线上, 用 $\alpha, \beta, \gamma, \dots$ 表示不同的量子态。

当光波场包含 k 个单色模的简谐波:

$$E(t) = \frac{1}{2} \sum_{j=1}^k (E_j e^{-i\omega_j t} + E_j^* e^{i\omega_j t}). \quad (14)$$

将(11)~(14)式代入(10)式, 通过积分可以看出, (10)式中大括号是一个代数式, 与图 2 有如下关系:

(1) 每一个图的表达式, 由下向上写出, 初始时刻 t_0 的量子态 $|\nu\rangle\langle\nu|$ 贡献一个因子 $\rho_{\nu\nu}^{(0)}$, 以后每遇上一个频率为 $\pm\omega_i$ 的光子与系统作用的顶点, 都贡献了一个因子 $H_{\mu\nu}^{\pm\omega_i}$, 下标 $\mu\nu$ 书写的顺序在顶点上为顺时针方向, 即先写传播子线箭头离开顶点的态标记, 再写箭头朝向顶点的态标记。

(2) 由下向上看, 第一个作用顶点贡献 $[i\omega_i]^{-1}$ 的因子, 这里, $\omega_i = \pm\omega_i + \omega_{\mu\nu}$, ω_i 是作用在顶点上光子频率的标记, $\omega_{\mu\nu} = (E_\mu - E_\nu)/\hbar$ (忽略了弛豫常数 $\Gamma_{\mu\nu}$) 是量子态受光子场作用后, 改变的频差, 下标 $\mu\nu$ 的书写也是顺时针方向; 以后, 每一个连续的作用点, 贡献一个因子 $[i(\omega_{i_0} + \sum_{i_1 < i_2} \omega_{i_1})]^{-1}$ 。

(3) 完整的图带有谐振频率 $\exp[i(\sum_{i_1 < i_2} \omega_{i_1})t]$ 的因子, 对所有本征态求和(不包括末态 α, β), 最后, 乘上因子 $(i/\hbar)^m (-i/\hbar)^p \cdot e^{-i\omega_{\alpha\beta}t}$ 。

例如, 图 3 的代数式:

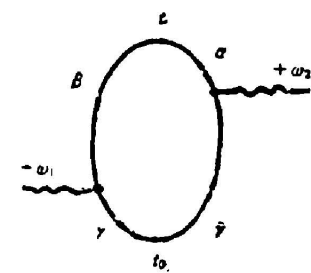


Fig. 3 Difference frequency graph at $(\omega_2 - \omega_1)$

$$(-i/\hbar) (i/\hbar) \cdot e^{-i\omega_{\alpha\beta}t} \sum_{\gamma} \rho_{\gamma\gamma}^{(0)} \cdot H_{\alpha\gamma}^{+\omega_2} \cdot H_{\gamma\beta}^{-\omega_1} \cdot \frac{\exp[i(\omega_{\alpha\gamma} + \omega_2 + \omega_{\gamma\beta} - \omega_1)t]}{i(\omega_{\gamma\beta} - \omega_1) \cdot i(\omega_{\alpha\gamma} + \omega_2 + \omega_{\gamma\beta} - \omega_1)},$$

利用 $\omega_{\mu\gamma} + \omega_{\gamma\delta} = \omega_{\mu\delta}$, 或写成

$$-(1/\hbar^2) \cdot \sum_{\gamma} \rho_{\gamma\gamma}^{(0)} \cdot H_{\alpha\gamma}^{+\omega_2} \cdot H_{\gamma\beta}^{-\omega_1} \cdot \frac{\exp[-i(\omega_1 - \omega_2)t]}{(\omega_{\gamma\beta} - \omega_1)(\omega_{\alpha\beta} - \omega_1 + \omega_2)}.$$

在上述的讨论中, 为了方便起见, 我们暂时不考虑量子态有一定寿命, 通常, 在考虑 $\Gamma_{\mu\nu}$ 后, 只要用 $(\omega_{\mu\nu} + i\Gamma_{\mu\nu})$ 取代各式的 $\omega_{\mu\nu}$, 可以得到更一般的结果。不难证明, 考虑量子态弛豫效应后, 这种取代的方法对本文以下的结论同样适用。

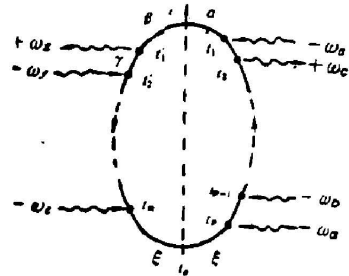


Fig. 2 Diagrammatic representation of formula (10) in the optical field perturbation

二、稳态拓扑图合并方法的推演

1. 拓扑图的相关性

按照拓扑图的规则, 一个 n 阶微扰过程的图有 n 个作用顶点, 每一个这样的点, 既可以在左半椭圆, 也可以在右半椭圆, 可辨别的图共有 2^n 个。考虑这样一个微观过程, 外界入射到物质系统的各种光子场, 它们在时间上有先后之分 ($t_{\omega_1} < t_{\omega_2} < \dots < t_{\omega_n}$), 在图 4 中的表示,

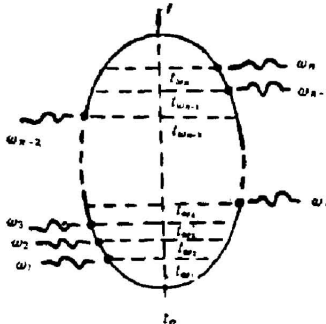


Fig. 4 Micro-channel of specific time order

意味着 $\omega_1, \omega_2, \dots, \omega_n$ 的标记在时序上只能由下到上确定的一种, 因此, 这个过程用 2^n 个图已能够表示。对于稳态过程, 各种光子场与物质系统作用的先后次序无法区分, 标记为 $\omega_1, \omega_2, \dots, \omega_n$ 的各种光子场, 每一个都可以处于 n 个作用点上的任何一个。可见, 稳态过程拓扑图的个数是时间可以分辨过程拓扑图个数的 $n!$ 倍, 要用 $n! \cdot 2^n$ 个图才能完整表示, 这正是处理的困难所在。

另一方面, 时序可分辨过程要考虑光场与系统作用间隔中状态的演变, 稳态过程不存在这个问题, 并且, 由于各种光子场与物质作用的时间顺序完全随机, 每一种微观通道出现的概率相同, 或者说总跃迁矩阵元是这 $n! \cdot 2^n$ 个图代数表示式的简单叠加。因此, 若能推演出一种方法, 把这些图按一定规律分成若干组, 每一组可以合并成一项, 并用一个新的拓扑图表示, 就可以达到简化的目的。

事实上, 上面的讨论已经包含了这样一个结论, 即可以将这些图按顶点的不同分成 2^n 组, 每一组含有 $n!$ 个图 (共 $n! \cdot 2^n$ 个图), 从每一组中任选一个对频率标记进行重新排列, 能取遍该组中所有的 $n!$ 个图。因此, 可以按照需要从每一组中任意选取一个进行合并, 并使这种合并最佳, 最后对所有频率的标记重排列求和, 这种特点在时序可分辨的过程中是不具备的。

2. 拓扑图的合并方法

下面讨论拓扑图的一个重要规律。

如图 5 所示, 右半椭圆有 p 个作用顶点, 左半椭圆有 m 个作用顶点的 n 阶 ($p+m=n$) 拓扑图, 如果让作用于左右各半椭圆的光子频率标记从下到上顺序不变, 则这样分配顶点数目的 $n!/p! \cdot m!$ 个拓扑图, 它们的表达式可以合并成一项:

$$(1/\hbar)^m \cdot (-1/\hbar)^p \cdot \exp[i(\pm\omega_1 \pm \omega_2 \pm \dots \pm \omega_p \pm \omega'_1 \pm \omega'_2 \pm \dots \pm \omega'_m)] \times \sum_{\gamma, \delta, \dots, \mu} \rho_{\gamma\gamma}^{(0)} H'_1 \cdot H'_2 \cdot \dots \cdot H'_n \left[\frac{1}{\prod_{i=1}^p (\sum_{t_i < t_j} \omega_{t_i}) \prod_{j=1}^m (\sum_{t_i < t_j} \omega_{t_i})} \right] \quad (15)$$

为了证明这个结论, 让我们先用本文第二部分介绍的方法, 写出图 6 这样一个时序的拓扑图表达式:

$$(1/\hbar)^m (-1/\hbar)^p \exp[i(\pm\omega_1 \pm \omega_2 \pm \dots \pm \omega_p \pm \omega'_1 \pm \omega'_2 \pm \dots \pm \omega'_m)] \sum_{\gamma, \delta, \dots, \mu} \rho_{\gamma\gamma}^{(0)} H'_1 \cdot H'_2 \cdot \dots \cdot H'_n \cdot \left\{ \prod_{i=1}^{p-1} \left[\sum_{t_i < t_{i+1}} (i\omega_{t_i}) \right]^{-1} \cdot \prod_{j=1}^m \left[\sum_{t_i < t_{i+1}} (i\omega_{t_i}) + \sum_{t_i < t_j} (i\omega_{t_i}) \right]^{-1} \cdot \left[\sum_{i=1}^p (i\omega_{t_i}) + \sum_{j=1}^m (i\omega_{t_j}) \right]^{-1} \right\} \quad (15')$$

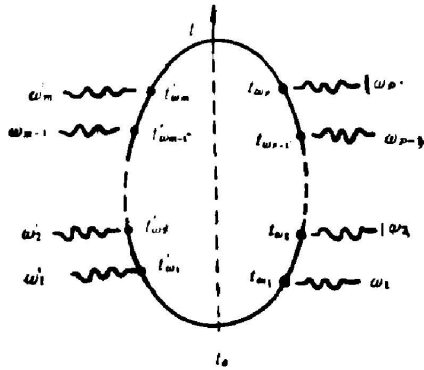


Fig. 5 The case for $t_{\omega_m} > t_{\omega_{m-1}} > \dots > t_{\omega_2} > t_{\omega_1}$
 $t_{\omega_p} > t_{\omega_{p-1}} > \dots > t_{\omega_2} > t_{\omega_1}$; but t_{ω_i}
 have nothing to do with t_{ω_j}

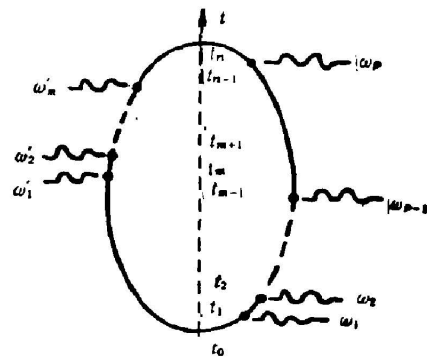


Fig. 6 An example of
 micro-channel for n -th
 $(p+m=n)$ process

用类似的方法能够写出 $n!/p!m!$ 个拓扑图的代数表达式。不难发现，每一个表达式之间，只有(15)式的大括号部分有差别，其余部分是相同的，对比(15)式可知，要证明这个结论，只需求证：

$$\sum_{\substack{(\text{共 } n! / p! m!) \\ (i+j=1 \\ i, j \text{ 不减} \\ (p+m=n))}} \prod_{\substack{(i)_{\max=p} \\ (j)_{\max=m}}} \frac{1}{(\Omega_i + \Omega'_j)} = \prod_{i=1}^p \frac{1}{\Omega_i} \prod_{j=1}^m \frac{1}{\Omega'_j}, \quad (16)$$

式中， $\Omega_i = \sum_{i_2 < i_1} \omega_{i_1}$ ， $\Omega'_j = \sum_{i_1 < i_2} \omega_{i_2}$ ，是为了书写方便。

显然，在特殊情况下， $[p=n, m=0]$ 或 $[p=0, m=n]$ ，(16)式中要满足 i, j 不减的只有一项，同时， $\Omega_0=0, \Omega'_0=0$ ，故(16)式左右两边相等。

一般地说， $p \geq 0, m \geq 0$ ，要采用数学归纳法。对于 $n=1$ ，只有两种可能，即 $[p=1, m=0]$ 或者 $[p=0, m=1]$ ，正是上述特例；对于 $n=2$ ，将有三种可能 $[p=2, m=0]$ ， $[p=0, m=2]$ 和 $[p=1, m=1]$ ，前两种也是特例，对于后一种，展开(16)式有：

$$\frac{1}{\Omega_1(\Omega_1 + \Omega'_1)} + \frac{1}{\Omega'_1(\Omega_1 + \Omega'_1)} = \frac{1}{\Omega_1} \cdot \frac{1}{\Omega'_1},$$

因此也成立。

设在 $n=n_0$ 时成立，即在 $[p=p_0, m=m_0]$ 和 $[p=p_0+1, m=m_0-1]$ 分别满足 $(p_0+m_0=n_0)$ ：

$$[p=p_0, m=m_0]: \sum_{(\text{共 } n_0! / p_0! m_0!)} \prod_{\substack{(i)_{\max=p_0} \\ (j)_{\max=m_0} \\ i, j \text{ 不减}}} \frac{1}{(\Omega_i + \Omega'_j)} = \prod_{i=1}^{p_0} \frac{1}{\Omega_i} \prod_{j=1}^{m_0} \frac{1}{\Omega'_j}, \quad (17)$$

$$[p=p_0+1, m=m_0-1]: \sum_{(\text{共 } n_0! / (p_0+1)! (m_0-1)!)} \prod_{\substack{(i)_{\max=p_0+1} \\ (j)_{\max=m_0-1} \\ i, j \text{ 不减}}} \frac{1}{(\Omega_i + \Omega'_j)} = \prod_{i=1}^{p_0+1} \frac{1}{\Omega_i} \prod_{j=1}^{m_0-1} \frac{1}{\Omega'_j}, \quad (18)$$

对于 $n=n_0+1$ 中的 $[p_0+1, m_0]$ 项，加进的 ω_{p_0+1} ，可以在两种情况下考虑。

(a) ω_{p_0+1} 作用时序在 ω'_{m_0} 之后，这与(17)式左边相比，仅仅多了一个因子 $1/(\Omega_{p_0+1} + \Omega'_{m_0})$ ，没有其他不同。

(b) ω_{p_0+1} 的作用时序在 ω'_{m_0} 之前，这时如果提取公共因子 $1/(\Omega_{p_0} + \Omega'_{m_0})$ ，相当于右半椭圆的作用点 p_0+1 不变，左半椭圆的顶点个数由 m_0 减少为 m_0-1 个，即剩余的部分相当

于 $[p=p_0+1, m=m_0-1]$ 的 n_0 阶过程。

这个问题可以从另一方面来理解，因为一个 n 阶过程的拓扑图，按 $p+m$ 划分的共有 $n!/m!p! = C_n^p$ 个，因此， $C_n^p = C_n^{p_0} + C_n^{p_0+1}$ 隐含着构成 $[p_0+1, m_0]$ 的所有拓扑图总数，可以分成 $[p_0, m_0]$ 和 $[p_0-1, m_0+1]$ 的拓扑图之和。于是：

$$\begin{aligned}
 [p_0+1, m_0] &: \sum_{(n_0+1)!, (p_0+1)m_0}^{(1) \max=p_0+1, (2) \max=m_0} \prod_{\substack{i+j=1 \\ i, j \text{ 不取}}} \frac{1}{(\Omega_i + \Omega_j)} \\
 &= \frac{1}{(\Omega_{p_0+1} + \Omega_{m_0})} \sum_{(n_0)!, p_0 m_0}^{(1) \max=p_0, (2) \max=m_0} \prod_{\substack{i+j=1 \\ i, j \text{ 不取}}} \frac{1}{(\Omega_i + \Omega_j)} \\
 &\quad + \frac{1}{(\Omega_{p_0+1} + \Omega_{m_0})} \sum_{n_0!, (p_0+1)(m_0-1)!}^{(1) \max=p_0+1, (2) \max=m_0-1} \prod_{\substack{i+j=1 \\ i, j \text{ 不取}}} \frac{1}{(\Omega_i + \Omega_j)} \\
 &= \frac{1}{(\Omega_{p_0+1} + \Omega_{m_0})} \left(\prod_{i=1}^{p_0} \frac{1}{\Omega_i} \prod_{j=1}^{m_0} \frac{1}{\Omega_j} + \prod_{i=1}^{p_0+1} \frac{1}{\Omega_i} \prod_{j=1}^{m_0-1} \frac{1}{\Omega_j} \right) \\
 &= \prod_{i=1}^{p_0+1} \frac{1}{\Omega_i} \prod_{j=1}^{m_0} \frac{1}{\Omega_j}
 \end{aligned}$$

同理可证 $[p_0, m_0+1]$ 的情形。可见，对任意 n 阶，(16) 式成立。

这个规律说明，对于 n 阶稳态非线性过程，表示密度矩阵的拓扑图可以这样选择合并：将那些顶点数目为 p, m 相同（允许时序任意），并且频率标记为 $\omega_1, \omega_2, \dots, \omega_n$ 和 $\omega'_1, \omega'_2, \dots, \omega'_n$ 在排列顺序上一致的所有图选出，它们的代数表达式合并后可以写为一项，与单独一个拓扑图表达式的不同之处，总表达式是对左右二半椭圆各自频率标记求和的因子

$$\prod_{i=1}^p (\sum_{t_i} \omega_{t_i})^{-1} \cdot \prod_{j=1}^m (\sum_{t'_j} \omega_{t'_j})^{-1},$$

而原来单项表达式是对时间次序（包括左右二半椭圆）上频率标记总求和的因子

$$\prod_{i=1}^n [\sum_{t_i} \omega_{t_i}]^{-1}.$$

对于 n 阶过程，分别可以取 $\begin{matrix} p=0, 1, 2, \dots, n \\ m=n, n-1, n-2, \dots, 0 \end{matrix}$ ，共有 $n+1$ 种，因此，从顶点可以辨别的 2^n 组分类中，按此规律各选一个图合并，最后只有 $n+1$ 项。有趣的是，这些项所包含的微观通道数，满足二项式展开系数中杨辉三角形规律（因为每一项的通道数为 $n!/m!p!$ ）。例如，对于 $n=3$ ，此三阶过程可以合并成四项，每一项的微观通道数为： $1+3+3+1=2^3$ ，这些通道数，正是幂为 3 的二项展开式系数。

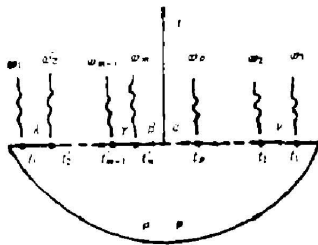


Fig. 7 Diagrammatic representation of formula (15)

我们希望也用一个拓扑图表示合并后的代数式(15)，基于这样的合并已经包括了各种不同的微观时序，表达式中各种光场与物质相互作用的先后次序不再区分，为了区别已有的拓扑图，采用图 7 表示。在这个图中，时间坐标轴仍然朝上，水平弦线上的各个作用顶点对应于同一个时刻，表示这个图的微观作用时序已无法区分。由这个图写出代数式(15)时，采用规则如下：

- (1) 初始时刻 t_0 (弧线部分) 的量子态标记 $|\mu\rangle\langle\mu|$ 贡献一个因子 $\rho_{\mu\mu}^{(0)}$ ，水平弦线上每一

个频率为 $\pm\omega_i$ 的光子与系统作用的顶点, 都贡献一个因子 $H'_{\mu\nu} e^{\pm i\omega_i t}$, 下标 $\mu\nu$ 顺序按图上自左到右的态标记选取。

(2) 图的左半部分, 由左向右读写, 第一个作用顶点贡献因子 $[\omega'_{i_1}]^{-1}$, 以后, 每一个连续的作用点贡献一个因子 $[\omega'_{i_p} + \sum_{i_1 < i_2} \omega'_{i_2}]^{-1}$, 同理, 图的右半部分, 由右向左读写, 第一个作用顶点贡献因子 $[\omega_{i_n}]^{-1}$, 以后, 每一个连续的作用点贡献一个因子 $[\omega_{i_p} + \sum_{i_1 < i_2} \omega_{i_2}]^{-1}$, 这里, i_i 不再有时序的意义, 仅仅表示序号。 $\omega_{i_i} = \pm\omega_i + \omega_{\mu\nu}$, $\omega'_{i_i} = \pm\omega'_i + \omega_{\mu\nu}$, 式中, $\pm\omega_i$ (或 $\pm\omega'_i$) 表示作用在顶点上光子频率的标记, $\omega_{\mu\nu}$ 表示受到光子作用后, 量子态改变的频差, 下标 μ, ν 是顶点两侧的态标记, $\mu\nu$ 的顺序对于左右二半图都是自左向右。

(3) 除了末态 α, β , 对所有本征态求和, 最后, 乘上因子 $(-1)^p \cdot (1/\hbar)^n \cdot \exp[i(\omega_1 + \omega_2 + \dots + \omega_p + \omega'_1 + \omega'_2 + \dots + \omega'_m) \cdot t]$, 简谐频率 $\omega_1 + \omega_2 + \dots + \omega_p + \omega'_1 + \omega'_2 + \dots + \omega'_m$ 是对 n 个作用顶点上的 n 个光频率求和(带符号)。

三、结论和应用举例

综上所述, 一个 n 阶稳态非线性过程的密度矩阵元, 可以按照图 7, 依次取

$$\begin{aligned} p &= 0, 1, 2, \dots, n \\ m &= n, n-1, n-2, \dots \end{aligned}$$

作 $n+1$ 个图, 写出每一个拓扑图的代数式, 然后, 对包括所有频率重新排列在内的各式求和。

作为一个例子, 研究 $\omega_1 + \omega_2 + \omega_3 + \omega_4 + \omega_5$ 这样一个特定的五阶和频过程极化率, 用以往任何一种方法都很复杂, 本文的方法, 可以简化为写出六个拓扑图的代数式, 图 8 是

$$\begin{aligned} p &= 0, 1, 2, 3, 4, 5 \\ m &= 5, 4, 3, 2, 1, 0 \end{aligned}$$

的六个图。

所以跃迁密度矩阵元

$$\begin{aligned} \rho_{\alpha\beta}^{(5)}(\omega_1 + \omega_2 + \omega_3 + \omega_4 + \omega_5) &= \mathbb{P}_{\omega_1\omega_2\omega_3\omega_4\omega_5} [(a) \text{式} + (b) \text{式} \\ &\quad + (c) \text{式} + (d) \text{式} + (e) \text{式} + (f) \text{式}], \end{aligned} \quad (19)$$

其中 $\mathbb{P}_{\omega_1\omega_2\omega_3\omega_4\omega_5}$ 表示对标记为 $\omega_1, \omega_2, \omega_3, \omega_4, \omega_5$ 的光频取全排列求和。另一方面, 极化矢量

$$\mathbf{P}^{(5)} = N \sum_{\alpha\beta} \rho_{\alpha\beta}^{(5)} \cdot \mathbf{P}_{\beta\alpha} = \chi^{(5)}(\omega_1 + \omega_2 + \omega_3 + \omega_4 + \omega_5) \cdot \mathbf{E}_1 \mathbf{E}_2 \mathbf{E}_3 \mathbf{E}_4 \mathbf{E}_5 \cdot e^{i(\omega_1 + \omega_2 + \omega_3 + \omega_4 + \omega_5)t}, \quad (20)$$

$$H'(t) = -\mathbf{P}_{\mu\nu} \cdot \mathbf{E}(t). \quad (21)$$

将(19), (21)式代入(20)式, 注意到 $\sum_{\alpha, \beta, \gamma, \delta, \epsilon, f}$ 对所有态指标交换求和, (a)~(f)各式的态指标交换不影响结果, 因此:

$$\begin{aligned} \chi^{(5)}(\omega_1 + \omega_2 + \omega_3 + \omega_4 + \omega_5) &= -N \cdot \left(\frac{1}{\hbar^5} \right) \cdot \mathbb{P}_{\omega_1\omega_2\omega_3\omega_4\omega_5} \cdot \sum_{\alpha, \beta, \gamma, \delta, \epsilon, f} \rho_{\alpha\beta}^{(0)} \\ &\times \left\{ \frac{P_{\alpha f} P_{f\delta} P_{\delta\epsilon} P_{\epsilon\gamma} P_{\gamma\beta} P_{\beta\alpha}}{(\omega_{\alpha f} + \omega_1)(\omega_{\alpha\delta} + \omega_1 + \omega_2)(\omega_{\alpha\delta} + \omega_1 + \omega_2 + \omega_3)(\omega_{\alpha\gamma} + \omega_1 + \omega_2 + \omega_3 + \omega_4)(\omega_{\alpha\beta} + \omega_1 + \omega_2 + \omega_3 + \omega_4 + \omega_5)} \right\} \end{aligned}$$

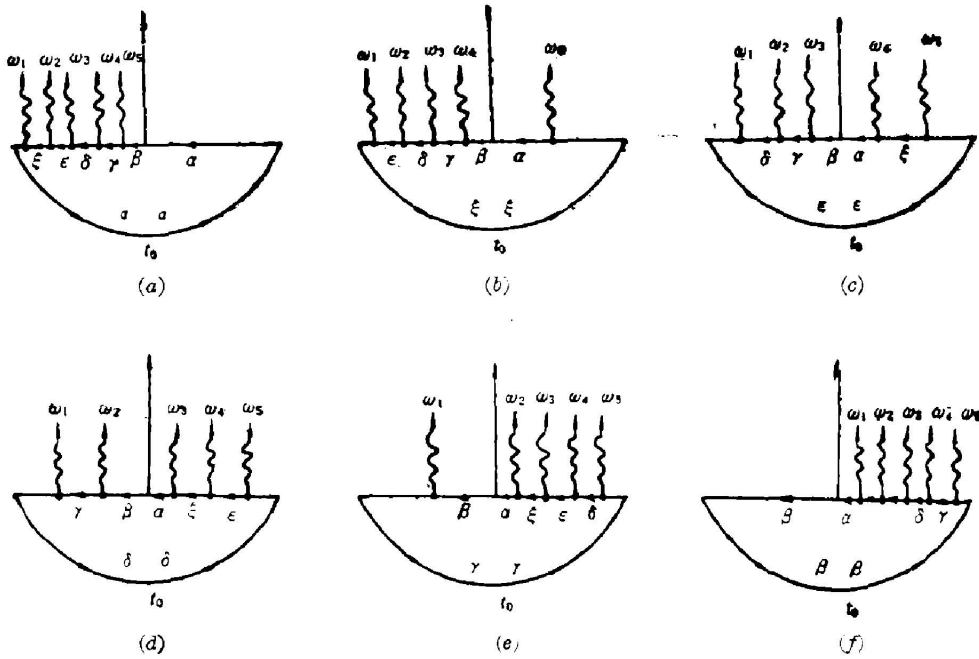


Fig. 8 All diagrams in the sum frequency of five waves

$$(\omega_1 + \omega_2 + \omega_3 + \omega_4 + \omega_5)$$

$$\begin{aligned}
 (a): & \left(\frac{1}{\hbar^5}\right) \sum_{\gamma, \delta, \epsilon, \xi} \rho_{\alpha\alpha}^{(0)} \frac{H'_{\alpha\epsilon} \cdot H'_{\delta\epsilon} \cdot H'_{\gamma\delta} \cdot H'_{\gamma\beta} \cdot \exp[i(\omega_1 + \omega_2 + \omega_3 + \omega_4 + \omega_5) \cdot t]}{(\omega_{\alpha\epsilon} + \omega_1)(\omega_{\gamma\delta} + \omega_1 + \omega_2)(\omega_{\alpha\delta} + \omega_1 + \omega_2 + \omega_3)(\omega_{\gamma\beta} + \omega_1 + \omega_2 + \omega_3 + \omega_4)(\omega_{\alpha\beta} + \omega_1 + \omega_2 + \omega_3 + \omega_4 + \omega_5)} \\
 (b): & -\left(\frac{1}{\hbar^5}\right) \sum_{\gamma, \delta, \epsilon, \xi} \rho_{\xi\xi}^{(0)} \frac{H'_{\xi\epsilon} \cdot H'_{\delta\epsilon} \cdot H'_{\delta\gamma} \cdot H'_{\gamma\alpha} \cdot H'_{\alpha\epsilon} \cdot \exp[i(\omega_1 + \omega_2 + \omega_3 + \omega_4 + \omega_5) \cdot t]}{(\omega_{\xi\epsilon} + \omega_1)(\omega_{\delta\epsilon} + \omega_1 + \omega_2)(\omega_{\delta\gamma} + \omega_1 + \omega_2 + \omega_3)(\omega_{\gamma\alpha} + \omega_1 + \omega_2 + \omega_3 + \omega_4)(\omega_{\alpha\epsilon} + \omega_5)} \\
 (c): & \left(\frac{1}{\hbar^5}\right) \sum_{\gamma, \delta, \epsilon, \xi} \rho_{\xi\xi}^{(0)} \frac{H'_{\xi\delta} \cdot H'_{\gamma\delta} \cdot H'_{\gamma\beta} \cdot H'_{\alpha\epsilon} \cdot H'_{\alpha\epsilon} \cdot \exp[i(\omega_1 + \omega_2 + \omega_3 + \omega_4 + \omega_5) \cdot t]}{(\omega_{\xi\delta} + \omega_1)(\omega_{\gamma\delta} + \omega_1 + \omega_2) \cdot \omega_{\delta\beta} \cdot (\omega_1 + \omega_2 + \omega_3)(\omega_{\xi\epsilon} + \omega_5)(\omega_{\alpha\epsilon} + \omega_5 + \omega_4)} \\
 (d): & -\left(\frac{1}{\hbar^5}\right) \sum_{\gamma, \delta, \epsilon, \xi} \rho_{\xi\xi}^{(0)} \frac{H'_{\delta\gamma} \cdot H'_{\gamma\delta} \cdot H'_{\delta\epsilon} \cdot H'_{\alpha\epsilon} \cdot H'_{\alpha\epsilon} \cdot \exp[i(\omega_1 + \omega_2 + \omega_3 + \omega_4 + \omega_5) \cdot t]}{(\omega_{\delta\gamma} + \omega_1)(\omega_{\gamma\delta} + \omega_1 + \omega_2)(\omega_{\delta\epsilon} + \omega_5)(\omega_{\alpha\epsilon} + \omega_5 + \omega_4) \cdot \omega_{\alpha\beta} \cdot (\omega_1 + \omega_2 + \omega_3 + \omega_4 + \omega_5)} \\
 (e): & \left(\frac{1}{\hbar^5}\right) \sum_{\gamma, \delta, \epsilon, \xi} \rho_{\xi\xi}^{(0)} \frac{H'_{\gamma\delta} \cdot H'_{\delta\gamma} \cdot H'_{\delta\epsilon} \cdot H'_{\alpha\epsilon} \cdot H'_{\alpha\epsilon} \cdot \exp[i(\omega_1 + \omega_2 + \omega_3 + \omega_4 + \omega_5) \cdot t]}{(\omega_{\gamma\delta} + \omega_1)(\omega_{\delta\gamma} + \omega_5)(\omega_{\delta\epsilon} + \omega_5 + \omega_4) \cdot \omega_{\alpha\beta} \cdot (\omega_1 + \omega_2 + \omega_3 + \omega_4 + \omega_5)} \\
 (f): & -\left(\frac{1}{\hbar^5}\right) \sum_{\gamma, \delta, \epsilon, \xi} \rho_{\xi\xi}^{(0)} \frac{H'_{\gamma\delta} \cdot H'_{\delta\gamma} \cdot H'_{\delta\epsilon} \cdot H'_{\alpha\epsilon} \cdot H'_{\alpha\epsilon} \cdot \exp[i(\omega_1 + \omega_2 + \omega_3 + \omega_4 + \omega_5) \cdot t]}{(\omega_{\gamma\delta} + \omega_5)(\omega_{\delta\gamma} + \omega_5 + \omega_4)(\omega_{\delta\epsilon} + \omega_5 + \omega_4 + \omega_3)(\omega_{\alpha\epsilon} + \omega_5 + \omega_4 + \omega_3 + \omega_2)(\omega_{\alpha\beta} + \omega_5 + \omega_4 + \omega_3 + \omega_2 + \omega_1)} \\
 & + \frac{P_{\alpha\delta} P_{\delta\gamma} P_{\gamma\beta} P_{\beta\epsilon} P_{\epsilon\delta} P_{\delta\alpha}}{\left\{ (\omega_{\alpha\epsilon} - \omega_5)(\omega_{\alpha\delta} + \omega_1)(\omega_{\alpha\delta} + \omega_1 + \omega_2) \cdot \omega_{\alpha\gamma} + \omega_1 + \omega_2 + \omega_3 \right\}} \\
 & \times (\omega_{\alpha\beta} + \omega_1 + \omega_2 + \omega_3 + \omega_4) \\
 & + \frac{P_{\alpha\delta} P_{\delta\gamma} P_{\gamma\beta} P_{\beta\epsilon} P_{\epsilon\delta} P_{\delta\alpha}}{(\omega_{\alpha\epsilon} - \omega_5)(\omega_{\alpha\delta} - \omega_5 - \omega_4)(\omega_{\alpha\delta} + \omega_1) \cdot \omega_{\alpha\gamma} + \omega_1 + \omega_2)(\omega_{\alpha\beta} + \omega_1 + \omega_2 + \omega_3)} \\
 & + \frac{P_{\alpha\gamma} P_{\gamma\beta} P_{\beta\delta} P_{\delta\epsilon} P_{\epsilon\delta} P_{\delta\alpha}}{(\omega_{\alpha\epsilon} - \omega_5 - \omega_4)(\omega_{\alpha\delta} - \omega_5)(\omega_{\alpha\delta} - \omega_5 - \omega_4 - \omega_3) \cdot \omega_{\alpha\gamma} + \omega_1)(\omega_{\alpha\beta} + \omega_1 + \omega_2)} \\
 & + \frac{P_{\alpha\beta} P_{\beta\gamma} P_{\gamma\delta} P_{\delta\epsilon} P_{\epsilon\delta} P_{\delta\alpha}}{(\omega_{\alpha\epsilon} - \omega_5 - \omega_4 - \omega_3)(\omega_{\alpha\delta} - \omega_5 - \omega_4)(\omega_{\alpha\delta} - \omega_5 - \omega_4 - \omega_3 - \omega_2) \cdot (\omega_{\alpha\beta} + \omega_1)} \\
 & + \left. \frac{P_{\alpha\epsilon} P_{\beta\delta} P_{\delta\epsilon} P_{\epsilon\delta} P_{\delta\gamma} P_{\gamma\alpha}}{\left\{ \omega_{\alpha\epsilon} - \omega_5 - \omega_4 - \omega_3 - \omega_2 \cdot \omega_{\alpha\delta} - \omega_5 - \omega_4 - \omega_3 \cdot \omega_{\alpha\delta} - \omega_5 - \omega_1 \right\}} \right\} \circ \tag{22}
 \end{aligned}$$

若要考虑弛豫效应, 只要用 $\omega_{\mu\nu} + i\Gamma_{\mu\nu}$ 取代 (22) 式中的 $\omega_{\mu\nu}$ 即可。有时, 人们把极化率写成张量元 $\chi_{ijlmn}^{(3)}$ 的形式, 考虑到下标 i, j, k, l, m, n 的交换对称性, 故

$$\chi_{ijklmn}^{(5)}(\omega_1 + \omega_2 + \omega_3 + \omega_4 + \omega_5) = \frac{1}{5!} \chi^{(5)}(\omega_1 + \omega_2 + \omega_3 + \omega_4 + \omega_5)。$$

在(22)式的右边, 各项微观通道数依次是 $1+5+10+10+5+1=2^5$, 除了第一和第六项, 每一项都含有多个不同时序的通道, 因此, (22)式表示的非线性极化率不适用于瞬态效应, 事实上, 在文献[3]以前, 处理瞬态效应都采用光学 Bloch 方程, 叠代微扰法求出的极化率只在稳态过程中使用, 原因就在这里。

参 考 文 献

- [1] P. G. Harper; «*Nonlinear Optics*», (Academic Press, 1977), 11.
- [2] A. Yariv; *IEEE J. Quant. Electron.*, 1977, **QE-13**, No. 12 (Dec), 943.
- [3] Peixian Ye, Y. R. Shen; *Phys. Rev. (A)*, 1982, **A25**, No. 4 (Apr), 2183.
- [4] J. G. Fujimoto et al.; *IEEE J. Quant. Electron.*, 1983, **QE-13**, No. 5 (May), 861.
- [5] K. Gottfried; «*Quantum Mechanics*», (New York, Benjamin, 1966).
- [6] A. Messiah; «*Quantum Mechanics*», (Amsterdam, North Holland, 1961).
- [7] J. P. Uymura; *IEEE J. Quant. Electron.*, 1980, **QE-16**, No. 5 (May), 472.

Investigation of the simplified diagrammatic representation of high-order nonlinear optical susceptibility

WU QUN, GUO YILI AND ZHOU BINGKUN

(Department of Radio Electronics, Tsinghua University, Beijing)

(Received 4 June 1985; revised 17 October 1985)

Abstract

The method to merge the diagrammatic representation of density matrix to the simplest form is deduced. In this way it is quite enough that the n th-susceptibility could be expressed only by $n+1$ diagrams, and microchannel number in every term of susceptibility could be obtained simultaneously.