

# 二重简并前向相干多光子散射

吴 斌 吴自遐                      胡企铨 林福成  
(武汉工业大学激光研究所)      (中国科学院上海光学精密机械研究所)

## 提 要

本文从理论上推导了非线性介质中二重简并前向相干多光子散射,得到了直接和级联两种耦合过程,实验上获得了多达15级的前向相干散射,实验结果与理论计算相符合。

## 一、引 言

简并的前向相干多光子散射在固体<sup>[1]</sup>、气体<sup>[2,3]</sup>和液体<sup>[4,5]</sup>中都已观察到。Nahiro Tan-no等<sup>[6]</sup>把介质看作一个二能级系统,两束简并的输入光与介质共振,从 Bloch 方程导出了前向相干多光子散射,并且在假设输入光频率与介质中心频率有一失谐  $\delta$  时,导出了前向半角多光子散射。

文献[6~9]报道了二重简并的1级散射光(二重简并四波混频),但关于二重简并前向相干多光子散射的理论和实验,据我们所知,还没有报道。

我们从介质的电极化强度  $\mathbf{P}$  的表达式出发,在  $\omega$  与介质系统共振,  $\omega_0$  远离共振区 ( $\omega, \omega_0$  为入射单色电磁场频率)的前提下,从理论上推导了二重简并情况下前向多光子散射,并进行了实验验证,结果表明,理论与实验相符合。

## 二、理 论

设入射到非线性介质中的光波电场为

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \sum_{i=0}^2 \mathbf{E}_i(\mathbf{r}, t), \quad (1)$$

其中

$$\mathbf{E}_i(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{2} \mathbf{A}_i(\mathbf{r}) \exp i(\omega_i t - \mathbf{K}_i \cdot \mathbf{r}) + c.c. = \frac{1}{2} \mathbf{E}_i(\mathbf{r}) \exp i\omega_i t + c.c., \quad (2)$$

$\omega_1 = \omega_2 = \omega \neq \omega_0$ , 因此,在各向同性介质中频率为  $\omega_0$  的极化强度为

$$\mathbf{P}(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{2} \sum_{n=0}^{\infty} \mathbf{P}^{(2n+1)}(\mathbf{r}) e^{i\omega_0 t} + c.c. \quad (3)$$

$$= \frac{1}{2} \mathbf{P}(\mathbf{r}) e^{i\omega_0 t} + c.c. \quad (4)$$

如果设三束入射波是极化方向相同的线偏振平面波,且  $\omega$  等于介质系统谱线中心频率,  $\omega_0$  远离共振区,则有(见附录一)

$$\begin{aligned}
 P(\mathbf{r}, t) = & \frac{1}{2} \varepsilon_0 \chi^{(1)} A_0 e^{i(\omega_0 t - \mathbf{K}_0 \cdot \mathbf{r})} \\
 & + \frac{1}{2} \sum_n \varepsilon_0 \frac{1}{2^{2n}} \chi^{(2n+1)} \Gamma^{(2n+1)} [ |A_1|^2 + |A_2|^2 ]^n A_0 e^{i(\omega_0 t - \mathbf{K}_0 \cdot \mathbf{r})} \\
 & + \frac{1}{2} \sum_n \varepsilon_0 \frac{1}{2^{2n}} \chi^{(2n+1)} \Gamma^{(2n+1)} \sum_{m=1}^n \binom{n}{m} [ |A_1|^2 + |A_2|^2 ]^{n-m} \\
 & \times \sum_{L=0}^m \binom{m}{L} A_0 (A_1^* A_2)^{m-L} (A_1 A_2^*)^L \cdot e^{i[\omega_0 t - [\mathbf{K}_0 + (m-2L)(\mathbf{K}_2 - \mathbf{K}_1)] \cdot \mathbf{r}]} + c.c. \quad (5)
 \end{aligned}$$

$n=1, 2, \dots, \Gamma^{(2n+1)}$  的意义见附录一。从 (5) 式可知, 由于介质的高阶非线性极化效应, 将产生频率为  $\omega_0$ , 波矢方向为

$$\frac{\mathbf{K}_0 + (m-2L)(\mathbf{K}_2 - \mathbf{K}_1)}{|\mathbf{K}_0 + (m-2L)(\mathbf{K}_2 - \mathbf{K}_1)|}$$

波矢大小为  $|\mathbf{K}_0|$  的相干散射, 如图 1 所示。对于  $(2n+1)$  阶极化率  $\chi^{(2n+1)}$ , 除了产生新的相干散射以外, 还产生所有  $3 \sim (2n-1)$  阶极化率  $\chi^{(2m-1)}$  所产生的相干散射。为了表述的方便, 我们把  $\chi^{(2n+1)}$  所产生的新散射叫做  $\pm n$  级散射。通常, 第  $\pm n$  级散射波的产生主要来源于  $\chi^{(2n+1)}$  (一般情况下,  $\chi^{(2(n+m)+1)}$  ( $m \geq 1$ ) 对第  $\pm n$  级散射波的贡献比  $\chi^{(2n+1)}$  的贡献小的多), 因此, 我们认为第  $\pm n$  级散射波仅仅由  $\chi^{(2n+1)}$  产生。将式 (5) 改写为

$$\begin{aligned}
 P(\mathbf{r}, t) = & \frac{1}{2} \varepsilon_0 \chi^{(1)} A_0 e^{i(\omega_0 t - \mathbf{K}_0 \cdot \mathbf{r})} \\
 & + \sum_n \varepsilon_0 \frac{1}{2^{2n+1}} \chi^{(2n+1)} \Gamma^{(2n+1)} [ |A_1|^2 + |A_2|^2 ]^n A_0 e^{i(\omega_0 t - \mathbf{K}_0 \cdot \mathbf{r})} \\
 & + \sum_n \varepsilon_0 \frac{1}{2^{2n+1}} \cdot \frac{(2n+1)!}{n!n!} \chi^{(2n+1)} (A_1^* A_2)^n A_0 e^{i[\omega_0 t - [\mathbf{K}_0 + n(\mathbf{K}_2 - \mathbf{K}_1)] \cdot \mathbf{r}]} \\
 & + \sum_n \varepsilon_0 \frac{1}{2^{2n+1}} \cdot \frac{(2n+1)!}{n!n!} \chi^{(2n+1)} (A_1 A_2^*)^n A_0 e^{i[\omega_0 t - [\mathbf{K}_0 - n(\mathbf{K}_2 - \mathbf{K}_1)] \cdot \mathbf{r}]} + c.c. \quad (6)
 \end{aligned}$$

$n=1, 2, \dots$ , 其波矢耦合关系如图 1 所示。

$E_1(\mathbf{r}, t), E_2(\mathbf{r}, t), E_0(\mathbf{r}, t)$  在非线性介质中相互作用, 产生频率为  $\omega_0$  的  $\pm n$  级散射波, 记为

$$F_{\pm n}(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{2} F_{\pm n}(\mathbf{r}) e^{i\omega_0 t} + c.c. = \frac{1}{2} f_{\pm n}(\mathbf{r}) e^{i(\omega_0 t - \beta_{\pm n} \cdot \mathbf{r})} + c.c., \quad (7)$$

$$\beta_{\pm n} = \frac{\mathbf{K}_0 \pm n(\mathbf{K}_2 - \mathbf{K}_1)}{|\mathbf{K}_0 \pm n(\mathbf{K}_2 - \mathbf{K}_1)|} |\mathbf{K}_0|. \quad (8)$$

用与附录一中同样的方法, 我们可得到  $F_{\pm n}$  与  $E_1, E_2$  相互作用所产生的极化强度为

$$\begin{aligned}
 P(\mathbf{r}, t) = & \frac{1}{2} \varepsilon_0 \chi^{(1)} f_{\pm n} e^{i(\omega_0 t - \beta_{\pm n} \cdot \mathbf{r})} \\
 & + \sum_n \varepsilon_0 \frac{1}{2^{2m+1}} \chi^{(2m+1)} \Gamma^{(2m+1)} [ |A_1|^2 + |A_2|^2 ]^m f_{\pm n} e^{i(\omega_0 t - \beta_{\pm n} \cdot \mathbf{r})}
 \end{aligned}$$

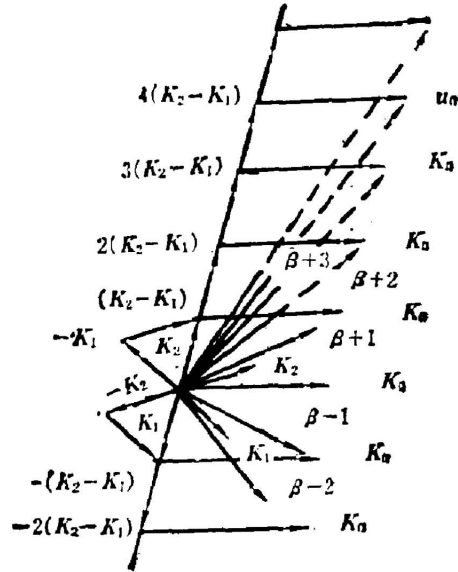


Fig. 1 Coupling diagram of wave-vectors

$$\begin{aligned}
& + \sum_m \varepsilon_0 \frac{1}{2^{2m+1}} \cdot \frac{(2m+1)!}{m!m!} \chi^{(2m+1)} (A_1^* A_2)^m f_{\pm n} e^{i[\omega_0 t - [\beta_{\pm n} + m(K_2 - K_1)] \cdot \mathbf{r}]} \\
& + \sum_n \varepsilon_0 \frac{1}{2^{2m+1}} \cdot \frac{(2m+1)!}{m!m!} \chi^{(2m+1)} (A_1 A_2^*)^m f_{\pm n} e^{i[\omega_0 t - [\beta_{\pm n} - m(K_2 - K_1)] \cdot \mathbf{r}]} + c.c. \quad (9)
\end{aligned}$$

$m=1, 2, \dots$ , 将式(8)改写为

$$\beta_{\pm n} = \mathbf{K}_0 \pm n(\mathbf{K}_2 - \mathbf{K}_1) + \Delta\beta_{\pm n} \quad (10)$$

把(10)式代入(9)式, 后二项的指数分别为:

$$\exp[i\omega_0 t - i\{[\mathbf{K}_0 + (m \pm n)(\mathbf{K}_2 - \mathbf{K}_1)] \cdot \mathbf{r} + \Delta\beta_{\pm n} \cdot \mathbf{r}\}], \quad (11)$$

$$\exp[i\omega_0 t - i\{[\mathbf{K}_0 - (m \mp n)(\mathbf{K}_2 - \mathbf{K}_1)] \cdot \mathbf{r} + \Delta\beta_{\pm n} \cdot \mathbf{r}\}]. \quad (12)$$

(11), (12) 式的物理意义是很明确的, 它表示第  $n$  级散射波经过  $\chi^{(2m+1)}$  可以耦合到第  $(n \pm m)$  级散射波中去, 这一过程称之为级联  $(2m+2)$  波混频过程。而(6)式所描述的过程称为直接  $(2n+2)$  波混频过程。因此, (6)式所描述的第  $(n+m)$  级散射过程是经过  $\chi^{[2(n+m)+1]}$  的直接  $[2(n+m)+2]$  波混频过程。式(11)可以改写为

$$\begin{aligned}
& \exp[i\omega_0 t - i\{[\mathbf{K}_0 + (m+n)(\mathbf{K}_2 - \mathbf{K}_1)] \cdot \mathbf{r} + \Delta\beta_n \cdot \mathbf{r}\}] \\
& = \exp[i\omega_0 t - i\{\beta_{(m+n)} \cdot \mathbf{r} + (-\Delta\beta_{m+n} + \Delta\beta_n) \cdot \mathbf{r}\}]. \quad (13)
\end{aligned}$$

如果  $-\Delta\beta_{(m+n)} + \Delta\beta_n = 0$ , 即位相匹配情况下, 级联过程起主导作用, 反之, 则要根据具体情况决定。

式(6), (9)还表明, 如果实验上能够区分级联过程和直接过程, 则可以比较不同阶的非线性极化率。

由(6), (9)式可知, 第  $n$  级散射波的极化强度为

$$\begin{aligned}
P_n(\mathbf{r}, t) &= \frac{1}{2} \varepsilon_0 \chi^{(1)} f_n e^{i(\omega_0 t - \beta_n \cdot \mathbf{r})} \\
&+ \sum_m \varepsilon_0 \frac{1}{2^{2m+1}} \chi^{(2m+1)} \Gamma^{(2m+1)} [ |A_1|^2 + |A_2|^2 ]^m f_n e^{i(\omega_0 t - \beta_n \cdot \mathbf{r})} \\
&+ \varepsilon_0 \frac{1}{2^{2m+1}} \cdot \frac{(2n+1)!}{n!n!} \chi^{(2n+1)} (A_1^* A_2)^n A_0 e^{i[\omega_0 t - [\mathbf{K}_0 + n(\mathbf{K}_2 + \mathbf{K}_1)] \cdot \mathbf{r}]} \\
&+ \sum_m \varepsilon_0 \frac{1}{2^{2m+1}} \cdot \frac{(2m+1)!}{m!m!} \chi^{(2m+1)} (A_1^* A_2)^m f_{n-m} \\
&\times e^{i[\omega_0 t - [\mathbf{K}_0 + n(\mathbf{K}_2 - \mathbf{K}_1)] \cdot \mathbf{r} - \Delta\beta_{n-m} \cdot \mathbf{r}]} \\
&+ \sum_m \varepsilon_0 \frac{1}{2^{2m+1}} \cdot \frac{(2m+1)!}{m!m!} \chi^{(2m+1)} (A_1 A_2^*)^m f_{n+m} \\
&\times e^{i[\omega_0 t - [\mathbf{K}_0 + n(\mathbf{K}_2 - \mathbf{K}_1)] \cdot \mathbf{r} - \Delta\beta_{n+m} \cdot \mathbf{r}]} + c.c. = P_n^L + P_n^{NL}, \quad (14)
\end{aligned}$$

其中  $m=1, 2, \dots, n=1, 2, \dots$ , 且  $n-m \neq 0$ 。光波电场在介质中传播的波过程为<sup>[12]</sup>

$$\begin{aligned}
\Delta^2 \mathbf{E} &= \mu_0 \varepsilon \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} + \mu_0 \frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathbf{P}^{NL} \\
\varepsilon &= \varepsilon_0 (1 + \chi_L) = \varepsilon_0 (1 + \chi^{(1)}). \quad (15)
\end{aligned}$$

将(14)式代入(15)式即可求得第  $n$  级散射波的波动过程。

设三束偏振方向相同的线偏振平面波  $E_1(\mathbf{r}, t)$ ,  $E_2(\mathbf{r}, t)$ ,  $E_0(\mathbf{r}, t)$  相互作用如图 2 所示。令  $\omega_0 = 2\omega$ , 则  $K_0 = 2K$ 。在  $K_1, K_2$  之间的夹角  $2\theta$  很小的情况下, 根据(10)式很容易证明频率为  $\omega_0$  的相邻散射波之间的夹角为  $\theta$ , 如图 2 虚线所示。在下面的讨论中, 我们假定  $E_0(\mathbf{r}, t)$ ,  $E_1(\mathbf{r}, t)$ ,  $E_2(\mathbf{r}, t)$  波强度的变化不受非线性相互作用的影响(即不考虑抽空效应), 而仅仅依赖于介质对它们的吸收。由前面的假设可知, 介质对  $E_1(\mathbf{r}, t)$ ,  $E_2(\mathbf{r}, t)$  波共振吸收, 吸收系数为  $\alpha(\omega, \omega) = \alpha$ , 介质对  $E_0(\mathbf{r}, t)$  波非共振吸收, 吸收系数为  $\alpha'(\omega, 2\omega) = \alpha'$ , 这里  $\omega$  为介质中心频率, 使用标准的非线性技术<sup>[10, 11]</sup>, 我们得到(见附录二)

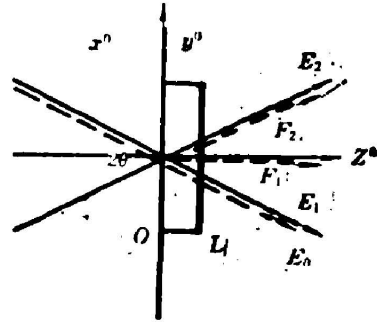


Fig. 2 Propagation of incident waves

$$\begin{aligned}
 f'_n(z) &= \frac{K_0}{2n_0^2} \left[ \text{Im} \chi^{(1)} - i \sum_{m=1} \frac{1}{2^{2m}} \chi^{(2m+1)} \Gamma^{(2m+1)} [ |A_1(0)|^2 + |A_2(0)|^2 ]^m e^{-\alpha m z} \right] f_n(z) \\
 &= -\frac{iK_0}{n_0^2} \cdot \frac{1}{2^{2n+1}} \cdot \frac{(2n+1)!}{n!n!} \chi^{(2n+1)} (A_1^*(0) A_2(0))^n e^{-\alpha n z} A_0(0) e^{-\frac{\alpha'}{2} z} e^{i\Delta E_n \cdot r} \\
 &\quad - \frac{iK_0}{n_0^2} \sum_{m=1} \frac{1}{2^{2m+1}} \cdot \frac{(2m+1)!}{m!m!} \chi^{(2m+1)} e^{i\Delta E_n \cdot r} [(A_1^*(0) A_2(0))^m e^{-\alpha m z} f_{n-m}(z) \\
 &\quad \times e^{i\Delta E_{n-m} \cdot r} + (A_1(0) A_2^*(0))^m e^{-\alpha m z} f_{n+m}(z) e^{-i\Delta E_{n-m} \cdot r}], \quad (16)
 \end{aligned}$$

其中  $m=1, 2, \dots, n=1, 2, \dots, n-m \neq 0$ ,  $n_0^2 = 1 + \text{Re} \chi^{(1)}$

令

$$f_n(z) = A_0(0) \tilde{f}_n(z) \quad (17)$$

则(16)式变为

$$\begin{aligned}
 \tilde{f}'_n(z) &= \frac{K_0}{2n_0^2} \left[ \text{Im} \chi^{(1)} - i \sum_{m=1} \frac{1}{2^{2m}} \chi^{(2m+1)} \Gamma^{(2m+1)} [ |A_1(0)|^2 + |A_2(0)|^2 ]^m e^{-\alpha m z} \right] \tilde{f}_n(z) \\
 &= -\frac{iK_0}{n_0^2} \cdot \frac{1}{2^{2n+1}} \cdot \frac{(2n+1)!}{n!n!} \chi^{(2n+1)} (A_1^*(0) A_2(0))^n e^{-\alpha n z} e^{-\frac{\alpha'}{2} z} e^{i\Delta E_n \cdot r} \\
 &\quad - \frac{iK_0}{n_0^2} \sum_{m=1} \frac{1}{2^{2m+1}} \cdot \frac{(2m+1)!}{m!m!} \chi^{(2m+1)} e^{i\Delta E_n \cdot r} \\
 &\quad \times [(A_1^*(0) A_2(0))^m e^{-\alpha m z} \tilde{f}_{n-m}(z) e^{-i\Delta E_{n-m} \cdot r} \\
 &\quad + (A_1(0) A_2^*(0))^m e^{-\alpha m z} \tilde{f}_{n+m}(z) e^{-i\Delta E_{n-m} \cdot r}]. \quad (18)
 \end{aligned}$$

从(18)式可知  $\tilde{f}_n(z)$  与  $A_0(0)$  无关, 因此从(17)式可得

$$I_{F_n}(L) = I_0(0) |\tilde{f}_n(L)|^2, \quad (19)$$

其中

$$I_0(0) = \frac{cn\epsilon_0}{2} |A_0(0)|^2, \quad I_{F_n}(L) = \frac{cn\epsilon_0}{2} |f_n(L)|^2.$$

### 三、实验验证

对于上述理论分析我们进行了实验验证, 实验装置如图 3 所示。调 Q Nd:YAG 激光器输出波长为  $1.06 \mu\text{m}$  激光脉冲, 其半最大全宽度为 20 ns。分束器  $M_1$  把  $1.06 \mu\text{m}$  激光分为两束: 第一束经 KDP 倍频晶体后变为两束光, 一束为  $E_1(1.06 \mu\text{m})$ , 另一束为

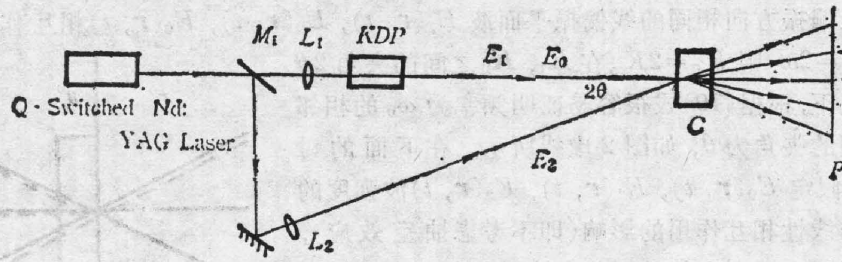


Fig. 3 Experimental setup

$E_0$  ( $0.532 \mu\text{m}$ ); 分束器  $M_1$  分出的另一束光  $E_2$  ( $1.06 \mu\text{m}$ ) 经全反镜  $M_2$  反射,  $E_0$ ,  $E_1$  和  $E_2$  经焦距为  $f=1$  米的会聚透镜  $L_1$ ,  $L_2$  聚焦到盛有非线性介质的染料盒  $C$  中, 在染料盒内光斑直径约为  $1.5 \text{ mm}$ ,  $E_1$ ,  $E_2$  的夹角  $2\theta$  为  $33 \text{ mrad}$ ,  $E_1$  的功率密度为  $1.5 \times 10^7 \text{ W/cm}^2$ ,  $E_2$  的功率密度为  $3 \times 10^7 \text{ W/cm}^2$ ,  $E_0$  的功率密度为  $1.75 \times 10^6 \text{ W/cm}^2$ 。

我们使用浓度为  $5 \times 10^{-4} \text{ M}$  的 BDN-1, 2 二氯乙烷染料溶液和  $5 \times 10^{-4} \text{ M}$  的五甲川-1, 2 二氯乙烷染料溶液分别得到了  $0.532 \mu\text{m}$  激光脉冲多达  $-1 \sim +2$  和  $-7 \sim +8$  级的前向相干多光子散射波, 如图 4a, b 所示(用照相底片在图 3P 处直接接收散射光)。照相底片与染料盒输出面的距离分别为  $48.5 \text{ cm}$  和  $36.4 \text{ cm}$ , 从图 4a, b 可量得相邻散射光之间的距离分别为  $0.8 \text{ cm}$  和  $0.6 \text{ cm}$ , 因此可得相邻散射光之间的夹角均为  $16.5 \text{ mrad}$ , 为  $E_1$ ,  $E_2$  夹角的一半, 实验与理论相符合(如图 2 虚线所示)。

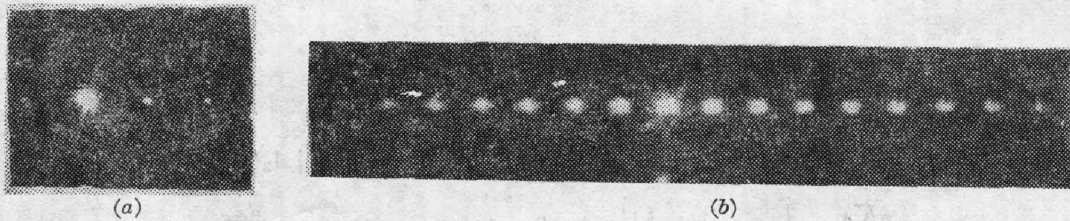


Fig. 4 Forward stimulated multiphoton scattering in organic solution

(a) dye BDN; (b) dye pentamethyldyne

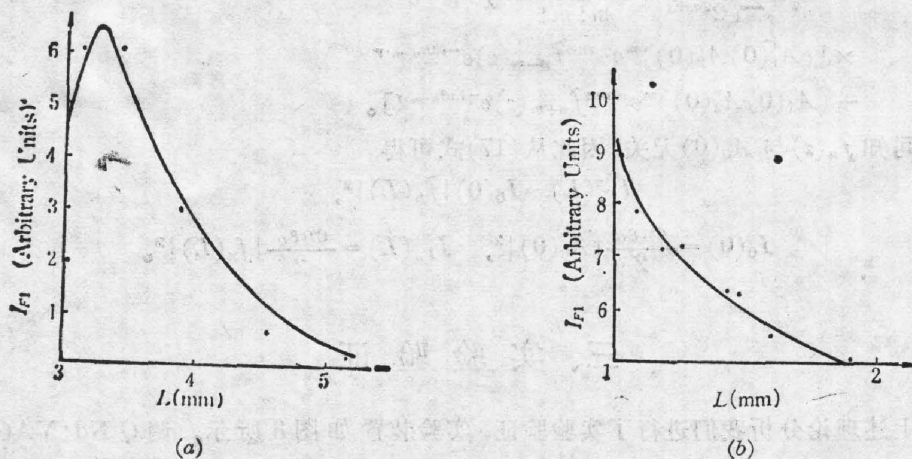


Fig. 5 Intensity of scattered wave versus interaction length solution

(a) in BDN; (b) in pentamethyldyne

用快速硅光二极管接收和示波器显示散射波强度的相对变化, 通过改变染料盒与输入光的角度, 得到了一级散射波强度  $I_F$  与相互作用长度  $L$  的关系, 如图 5a, b 所示。

用衰减片衰减输入光  $I_0(0)$ , 快速硅光二极管接收和示波器显示散射波强度的相对变化, 我们得到散射光  $I_{F1}$ ,  $I_{F2}$  与  $I_0(0)$  的关系, 如图 6, 7, 8 所示。图中  $I_{0\max}$  表示实验中输入的最大光强,  $I_{F1\max}$ ,  $I_{F2\max}$  表示与  $I_{0\max}$  对应的第一, 二级散射波的强度。图中实线为 (19) 式所表示的理论值, 实验结果表明, 理论与实验结果相符合。

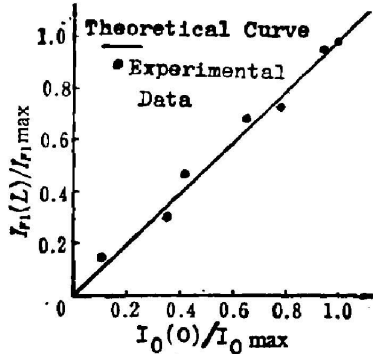


Fig. 6 Intensity of scattered wave  $I_{F1}$  versus intensity of incident wave  $I_0$  in BDN solution

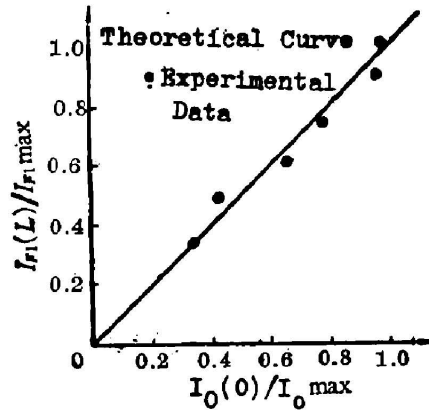


Fig. 7 Intensity of scattered wave  $I_{F1}$  versus intensity of incident wave  $I_0$  in pentamethylidyne solution

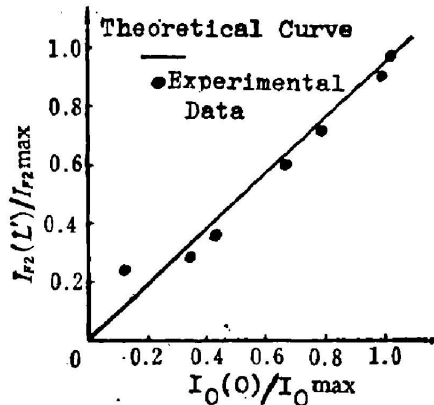


Fig. 8 Intensity of scattered wave  $I_{F2}$  versus intensity of incident wave  $I_0$  in pentamethylidyne solution

#### 四、结 论

我们理论推导并实验验证了二重简并前向相干多光子散射, 其散射过程包括直接多波混频过程和级联多波混频过程, 哪一个过程起主要作用取决于位相匹配关系, 极化率张量元以及输入光强的大小。

散射过程涉及到粒子数光栅, 克尔效应, 热光栅等复杂的微观非线性机理。如果适当地延时  $E_0$  以及改变  $E_1$ ,  $E_2$  的夹角, 可获得热光栅的信息存储特性, 此时, 散射过程是一个瞬

态过程, 散射波的强度可通过求解瞬态方程得到。

感谢邱佩华同志为我们提供五甲川染料。

### 附 录 一

从式(1)~(4)以及极化强度的定义<sup>[1]</sup>可知:

$$p^{(1)}(\mathbf{r}) = \varepsilon_0 \chi^{(1)} E_0(\mathbf{r}), \quad (\text{a})$$

$$\begin{aligned} p^{(3)}(\mathbf{r}) = & \frac{3}{2} \varepsilon_0 \chi^{(3)}(-\omega, \omega, -\omega, \omega) E_1(\mathbf{r}) E_2^*(\mathbf{r}) E_0(\mathbf{r}) \\ & + \frac{3}{2} \varepsilon_0 \chi^{(3)}(-\omega, \omega, -\omega, \omega) E_2(\mathbf{r}) E_1^*(\mathbf{r}) E_0(\mathbf{r}) \\ & + \frac{3}{2} \varepsilon_0 \chi^{(3)}(-\omega_0, \omega, -\omega, \omega_0) E_1(\mathbf{r}) E_1^*(\mathbf{r}) E_0(\mathbf{r}) \\ & + \frac{3}{2} \varepsilon_0 \chi^{(3)}(-\omega_0, \omega, -\omega, \omega_0) E_2(\mathbf{r}) E_2^*(\mathbf{r}) E_0(\mathbf{r}) \\ & + \frac{3}{4} \varepsilon_0 \chi^{(3)}(-\omega_0, \omega_0, -\omega_0, \omega_0) E_0(\mathbf{r}) E_0^*(\mathbf{r}) E_0(\mathbf{r}), \end{aligned} \quad (\text{b})$$

我们设介质对频率为  $\omega$  的光波电场共振吸收, 对频率为  $\omega_0$  的光波电场非共振吸收, 因此

$$\chi^{(3)}(-\omega_0, \omega, -\omega, \omega_0) \gg \chi^{(3)}(-\omega_0, \omega_0, -\omega_0, \omega_0).$$

在式(b)中可以略去最后一项, 得:

$$p^{(3)}(\mathbf{r}) = \varepsilon_0 \frac{1}{2^{3-1}} \chi^{(3)}(-\omega_0, \omega, -\omega, \omega_0) \Gamma^{(3)} [E_1(\mathbf{r}) + E_2(\mathbf{r})] [E_1^*(\mathbf{r}) + E_2^*(\mathbf{r})] E_0(\mathbf{r}), \quad (\text{c})$$

其中

$$\Gamma^{(3)} = 3!$$

同理,

$$p^{(5)}(\mathbf{r}) = \varepsilon_0 \frac{1}{2^{5-1}} \chi^{(5)}(-\omega_0, \omega, \omega, -\omega, -\omega, \omega_0) \Gamma^{(5)} [E_1(\mathbf{r}) + E_2(\mathbf{r})]^2 [E_1^*(\mathbf{r}) + E_2^*(\mathbf{r})]^2 E_0(\mathbf{r}), \quad (\text{d})$$

其中已略去所有比  $\chi^{(5)}(-\omega_0, \omega, \omega, -\omega, -\omega, \omega_0)$  小的项。

$\Gamma^{(5)}$  表示将  $[E_1(\mathbf{r}) + E_2(\mathbf{r})]^2 [E_1^*(\mathbf{r}) + E_2^*(\mathbf{r})]^2 E_0$  展开再合并后令各项的系数为:  $\frac{5!}{n_1! n_2! n_1^*! n_2^*!}$ ,  $n_1, n_2, n_1^*$  和  $n_2^*$  分别表示各项中  $E_1, E_2, E_1^*$  和  $E_2^*$  的个数, 此时,  $n_1 + n_2 = 2, n_1^* + n_2^* = 2$ 。由此类推得:

$$\begin{aligned} p^{(2n+1)}(\mathbf{r}) = & \varepsilon_0 \frac{1}{2^{2n}} \chi^{(2n+1)}(-\omega_0, \omega, \dots, \omega, -\omega, \dots, -\omega, \omega_0) \\ & \times \Gamma^{(2n+1)} [E_1(\mathbf{r}) + E_2(\mathbf{r})]^n [E_1^*(\mathbf{r}) + E_2^*(\mathbf{r})]^n E_0(\mathbf{r}), \end{aligned} \quad (\text{e})$$

$n=1, 2, \dots, \Gamma^{(2n+1)}$  表示将  $[E_1(\mathbf{r}) + E_2(\mathbf{r})]^n [E_1^*(\mathbf{r}) + E_2^*(\mathbf{r})]^n E_0(\mathbf{r})$  展开再合并后令各项的系数为:

$$\frac{(2n+1)!}{n_1! n_2! n_1^*! n_2^*!}, n_1, n_2, n_1^* \text{ 和 } n_2^* \text{ 分别为各项中 } E_1, E_2, E_1^* \text{ 和 } E_2^* \text{ 的个数, } n_1 + n_2 = n, n_1^* + n_2^* = n.$$

(e)式变为:

$$\begin{aligned} p^{(2n+1)}(\mathbf{r}) = & \varepsilon_0 \frac{1}{2^{2n}} \chi^{(2n+1)} \Gamma^{(2n+1)} [E_1 E_1^* + E_1 E_2^* + E_2 E_1^* + E_2 E_2^*]^n E_0 \\ = & \varepsilon_0 \frac{1}{2^{2n}} \chi^{(2n+1)} \Gamma^{(2n+1)} \sum_{m=0}^n \binom{n}{m} (E_1 E_1^* + E_2 E_2^*)^{n-m} (E_1^* E_2 + E_1 E_2^*)^m E_0, \end{aligned} \quad (\text{f})$$

其中  $n=1, 2, \dots$ ,

所以

$$\begin{aligned} p = & p^{(1)} + \sum_{n=1} p^{(2n+1)} = \varepsilon_0 \chi^{(1)} A_0 e^{-i\mathbf{K} \cdot \mathbf{r}} \\ & + \sum_{n=1} \varepsilon_0 \frac{1}{2^{2n}} \chi^{(2n+1)} \Gamma^{(2n+1)} \sum_{m=0}^n \binom{n}{m} (|A_1|^2 + |A_2|^2)^{n-m} \\ & \times [A_1^* A_2 e^{-i(\mathbf{K}, -\mathbf{K}) \cdot \mathbf{r}} + A_1 A_2^* e^{-i(\mathbf{K}, \mathbf{K}) \cdot \mathbf{r}}]^m \cdot A_0 e^{-i\mathbf{K} \cdot \mathbf{r}} \end{aligned} \quad (\text{g})$$

$$\begin{aligned}
&= \varepsilon_0 \chi^{(1)} A_0 e^{-iK \cdot r} + \sum_{n=1}^{\infty} \varepsilon_0 \frac{1}{2^{2n}} \chi^{(2n+1)} \Gamma^{(2n+1)} [ |A_1|^2 + |A_2|^2 ]^n A_0 e^{-iK \cdot r} \\
&\quad + \sum_{n=1}^{\infty} \varepsilon_0 \frac{1}{2^{2n}} \chi^{(2n+1)} \Gamma^{(2n+1)} \sum_{m=1}^n \binom{n}{m} [ |A_1|^2 + |A_2|^2 ]^{n-m} \\
&\quad \times \sum_{L=0}^m \binom{m}{L} (A_1^* A_2)^{m-L} (A_1 A_2^*)^L A_0 e^{-i(K_0 + (m-2L)K, -K_1) \cdot r} \quad (h)
\end{aligned}$$

将(h)式代入(4)式,即可得到(5)式。

## 附录二

如图2所示,取直角坐标系  $x^0, y^0, z^0$ , 使得其  $x^0$  轴方向与  $E_0$  成  $\theta$  角, 并假定  $E_1, E_2$  之间的夹角  $2\theta$  很小, 由(14), (15)式可得:

$$\begin{aligned}
&-\frac{1}{2} K_0^2 f_n(z) K - i_0 f_n'(z) + \frac{1}{2} \mu_0 \varepsilon \omega_0^2 f_n(z) \\
&= \frac{1}{2} \mu_0 (-\omega_0^2) \varepsilon_0 \left[ \sum_m \frac{1}{2^{2m}} \chi^{(2m+1)} \Gamma^{(2m+1)} ( |A_1(z)|^2 + |A_2(z)|^2 )^m f_n(z) \right. \\
&\quad + \frac{1}{2^{2n}} \cdot \frac{(2n+1)!}{n!n!} \chi^{(2n+1)} (A_1^*(z) A_2(z))^n A_0(z) e^{i\Delta\beta_n \cdot r} \\
&\quad + \sum_m \frac{1}{2^{2m}} \chi^{(2m+1)} \Gamma^{(2m+1)} (A_1^*(z) A_2(z))^m f_{n-m}(z) e^{i(\Delta\beta_n - \Delta\beta_{n-m}) \cdot r} \\
&\quad \left. + \sum_m \frac{1}{2^{2m}} \chi^{(2m+1)} \Gamma^{(2m+1)} (A_1(z) A_2^*(z))^m f_{n+m}(z) e^{i(\Delta\beta_n - \Delta\beta_{n+m}) \cdot r} \right], \quad (I)
\end{aligned}$$

$m=1, 2, \dots, n=1, 2, \dots$ , 且  $n-m \neq 0$ 。在导出(I)式时,我们使用了绝热近似。

经过整理后(I)式变为

$$\begin{aligned}
f_n'(z) &= \frac{K_0}{2n_0^2} \left[ \text{Im} \chi^{(1)} - \varepsilon \sum_m \frac{1}{2^{2m}} \chi^{(2m+1)} \Gamma^{(2m+1)} ( |A_1(z)|^2 + |A_2(z)|^2 )^m \right] f_n(z) \\
&= -\frac{iK_0}{2n_0^2} \cdot \frac{1}{2^{2n}} \cdot \frac{(2n+1)!}{n!n!} \chi^{(2n+1)} (A_1^*(z) A_2(z))^n A_0(z) e^{i\Delta\beta_n \cdot r} \\
&\quad - \frac{iK_0}{2n_0^2} \sum_m \frac{1}{2^{2m}} \cdot \frac{(2m+1)!}{m!m!} \chi^{(2m+1)} e^{i\Delta\beta_n \cdot r} [ A_1^*(z) A_2(z) ]^m f_{n-m}(z) e^{-i\Delta\beta_{n-m} \cdot r} \\
&\quad + (A_1(z) A_2^*(z))^m f_{n+m}(z) e^{-i\Delta\beta_{n+m} \cdot r}, \quad (II)
\end{aligned}$$

其中  $n_0^2 = 1 + \text{Re} \chi^{(1)}$ ,  $K_0 = \omega_0 n_0 / c$ ,  $\chi^{(1)} = \text{Re} \chi^{(1)} + i \text{Im} \chi^{(1)}$ , 我们假定  $E_0, E_1, E_2$  波强度的变化不受非线性相互作用的影响(即不考虑抽空效应), 仅仅依赖于介质对它们的吸收, 由前面的假设可知, 介质对  $E_1, E_2$  波共振吸收, 设吸收系数为  $\alpha(\omega, \omega) = \alpha$ , 介质对  $E_0$  波非共振吸收, 吸收系数为  $\alpha'(\omega, \omega_0) = \alpha'(\omega$  为介质中心频率), 使用标准的非线性技术<sup>[10,11]</sup>, 由(II)式可得到(16)式。

## 参 考 文 献

- [1] W. Yu *et al.*; *Phys. Rev. (A)*, 1975, **11**, No. 1 (Jan), 188.
- [2] C. V. Heer *et al.*; *Opt. Lett.*, 1979, **4**, No. 8(Aug), 239.
- [3] Naohiro Tan-no *et al.*; *Phys. Rev. Lett.*, 1981, **46**, No. 19 (May), 1282.
- [4] 吴存恺等;《物理学报》, 1981, **30**, No. 2 (Feb), 189.
- [5] 李书涛;《中国科学院安徽光机所硕士论文》, 1984.
- [6] G. Martin *et al.*; *Appl. Phys. Lett.*, 1979, **34**, No. 6 (Mar), 371.
- [7] Yi-Li Guo *et al.*; *IEEE J. Quant. Electron.*, 1984, **QE-20**, No. 4 (Apr), 323.
- [8] 吴存恺;《光学学报》, 1984, **4**, No. 2 (Feb), 112.
- [9] 庞胜敏等;《清华大学学报》, 1982, **22**, No. 4 (Nov), 1.
- [10] Richard G. Caro *et al.*; *IEEE J. Quant. Electron.*, 1982, **QE-18**, No. 9 (Sep), 1376.
- [11] D. C. Hanna *et al.*; *Nonlinear Optics of Free Atoms and Molecules*, (Springer, New York, 1979). Chapter. 1~5
- [12] B. A. Fisher; *Optical Phase Conjugation*, (Academic Press, New York, 1983). Chapter 1.



## Double degenerate forward coherent multiphoton scattering

WU BIN AND WU ZIXIA

*(Institute of Laser Wuhan Polytechnic University)*

HU QIQUAN AND LIN FUCHENG

*(Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Academia Sinica)*

(Received 10 October 1985; revised 7 January 1986)

### Abstract

Reported here is a theoretical treatment of double degenerate forward coherent multiphoton scattering in a nonlinear medium. Both direct-coupled and cascade-coupled processes are obtained. In a dye cell the forward coherent multiphoton scattering up to the 15th-order was observed in our experiment. The theory agrees well with the experiment results.