



南京大學

本科毕业论文

院 系 _____ 物理学院

专 业 _____ 物理学系

题 目 与 Nd:YSO 量子存储器匹配的单光子源的搭建

年 级 2016 级 学 号 161120146

学生姓名 _____ 徐李达

指导老师 马小松 职 称 教授

提交日期 2020 年 5 月 21 日

南 京 大 学

本科生毕业论文（设计）指导情况记录

开 题 简 况	论文题目： 1、选题质量（简述选题与专业培养目标、专业要求关系、题目难度、工作量、创新性、理论性、实用性）
	2、开题意见：
中 期 检 查	指导教师签名： 年 月 日
	指导教师检查论文的进展情况：（指导和培养学生查阅文献资料、综合运用知识、研究方案设计、研究方法和手段运用和外文应用等能力简况） 指导教师签名： 年 月 日

南 京 大 学

本科生毕业论文（设计）指导教师评阅意见

指导教师评语：

指导教师签名：

年 月 日

南 京 大 学

本科生毕业论文（设计）评阅教师评阅意见

评阅教师评语：

评阅教师签名：

年 月 日

南 京 大 学

本科生毕业论文（设计）答辩记录、成绩评定

答辩记录：

答辩记录人签名：

答辩小组评语：

答辩小组成员：_____

成绩_____

组长签名：

答辩时间： 年 月 日

南京大学本科生毕业论文(设计、作品)中文摘要

题目：与 Nd:YSO 量子存储器匹配的单光子源的搭建

院系：物理学院

专业：物理学系

本科生姓名：徐李达

指导老师（姓名、职称）：马小松教授

摘要：

稀土离子掺杂的 YSO 晶体作为量子存储材料，能够对以光子为介质的量子信息进行存储与分发，具有很深的应用前景。因此，对这类材料的单光子源搭建是必要的。本文为稀土离子 Nd^{3+} 掺杂在母体 Y_2SiO_5 中形成的 Nd:YSO 晶体完成了部分单光子源搭建，采用了非线性光学中的二次谐波产生与自发参量下转换产生了具有波长 883.236nm 的单光子，设计与测试了用于滤波的 FP 腔，并且理论设计了二次谐波倍频腔的模式匹配，给出了实例。本文将描述如何在实验上确定非线性过程中的相位匹配温度，对 FP 腔进行各个参量的测量方法（自由光谱程，半高全宽，中心波长）以及腔模式匹配的具体计算方法。

关键词： 单光子源；量子存储；非线性光学

南京大学本科生毕业论文(设计、作品)英文摘要

THESIS: Building up a single photon source compatible with Nd:YSO quantum memory

DEPARTMENT: School of Physics

SPECIALIZATION: Physics

UNDERGRADUATE: Lida Xu

MENTOR: Professor Xaosong Ma

ABSTRACT:

Rare-earth ion-doped YSO crystals as quantum storage materials can store and distribute quantum information with photons as the medium, which has deep application prospects. Therefore, the construction of single photon sources for such materials is necessary. In this paper, a single-photon source is constructed for the Nd:YSO crystal formed by doping the rare-earth ion Nd^{3+} in the parent Y_2SiO_5 , a single-photon with a wavelength of 883.236 nm is generated by using the second harmonic generation in nonlinear optics with spontaneous parametric down conversion, an FP cavity for filtering is designed and tested, and the mode matching of the second harmonic doubling cavity is theoretically designed. In this paper, we describe how to experimentally determine the phase matching temperature during the nonlinear process, how to measure the individual parameters (free spectral range, full width at half maximum, central wavelength) of the FP cavity and how to calculate the specific cavity mode matching.

KEY WORDS: Single Photon Source, Nonlinear Optics

目 录

目 录	V
1 绪论	1
1.1 研究背景	1
1.2 相关工作	2
1.3 本文主要工作	3
1.4 本文结构	3
2 理论准备	5
2.1 稀土离子掺杂晶体 Nd:YSO 的能级情况	5
2.2 高斯光	8
2.2.1 高斯光的描述	8
2.2.2 高斯光的变换	9
2.3 二次谐波产生与参量下转换	11
2.3.1 非线性光学简介	11
2.3.2 二次谐波产生	12
2.3.3 自发参量下转换	14
2.3.4 相匹配条件	15
2.4 滤波器件简介	17
3 实验与设计	21
3.1 实验装置	21
3.2 相位匹配温度的确定	22
3.3 滤波方案设计与 FP 腔测试	25
3.3.1 滤波方案设计	25
3.3.2 FP 腔 design A1 测试	26
3.4 倍频腔模式匹配设计	28
4 总结与讨论	33

参考文献	35
致 谢	39

第一章 绪论

1.1 研究背景

在现代社会的发展中，通信网络具有举足轻重的地位，人们可以利用它进行资源与信息的交换。一个最常见的通信网络便是互联网，它在物理上将各个信息处理系统（如计算机）链接，并进行信息的处理和分发。经典的通信系统采用经典比特，其中每一个比特只能选取 0 或者 1^[31]，物理上的电路可以通过回路的链接与断开来表示这两个状态，这也就催生了二进制在计算机科学中的应用。不过，通过几十年的发展，经典比特构成的通信网络遇到了两个问题。第一个问题是计算能力的制约：当人们想要在更小的尺寸上处理更多的信息时，会不可避免地遇到量子隧穿效应，这会导致一块芯片上面的电路之间产生相互干扰。另外，更小的芯片上面具有更多的线路，也就意味着一块芯片单位面积产生的热功率会非常大，这会带来能耗和散热的双重考验。另一个问题是经典通信的安全性。发送者和接收者之间的经典保密通信无法做到绝对安全，这是因为不论是通过什么手段，总可以存在一个第三者在传递信息的线路上截取信息，并且对其进行不发生干扰的测量，然后伪造信息交给接收者。因此，接收者不能确定第三者是否存在，更不能确定自己收到的信息是否是第三者伪造的信息。

不过，量子力学的发展为人们打开了另一扇门。在量子力学的体系中，系统的态是叠加的，只在测量时塌缩到测量算符的本征态。因此，一个比特并非只能在 0 或者 1 中选取自己的状态，它可以处于二者的任意叠加态，我们称满足这种叠加原理的比特为量子比特。显然，在同样比特数量的情况下，量子比特构成的系统比经典系统可以存储更多的态，因此对信息的处理更加高效。如果研制出量子计算机与量子网络，那么人们可以直接解决刚刚所指出的经典通信的第一个问题。量子通信网络的另一大优势是安全性。在量子力学中，对量子态的测量会干扰到量子态本身，因此当两个人 Alice 与 Bob 进行通信时，第三者窃取信息并且测量会直接导致信息发生变化。当 Alice 与 Bob 核对信息时会轻而易举意识到第三者 Eve 的存在。BB84 协议便是第一个采取量子力学原理进行保密通信的可行性方案。

如上所说，量子通信网络的意义重大。量子网络的构成和经典网络类似，包含信息终端，信息处理器，中继器以及各个元件之间的通道^[4]。对于这些量子器件的研究和应用是量子网络的一项研究热点。与经典通信网络一样，量子网络中传递的信息也会有量子损耗，如量子退相干。因此，长距离量子通信网络需要量子中继器（Quantum Repeater）来完成信息的放大，以此抵消信息损耗。量子存储器（Quantum Memory）是一种重要的量子器件，它能够完成量子态的存储与分发，因此对于量子中继器是不可或缺的。理想的存储器能够进行多模式的大容量存储，并且存储时间足够长，可进行按需存储和读取。

在各种量子系统中，量子态的物理实现方法不尽相同，其中基于光子的量子比特对于量子信息技术是理想的选择。原因在于：第一，光子以光速传播并且与其周边的环境相互作用很弱。第二，通过线性与非线性作用，光子的多个自由度，诸如偏振，动量和能量，可以被轻易地调控。这些优势使得单光子源的研究成为必要。不过，为了使得光子态能在量子网络中高效地传输，产生单光子态的单光子源必须满足多个要求。一个理想的单光子源应当具有以下几个特点：单光子的任意时间发射；发射概率为百分之百；多光子发射的概率为零；依次发射的光子之间不可区分；发射光子的时间间隔可足够小。

量子存储器的重要意义和光子的优势，使得相关研究成为重点，例如基于原子系综的固体量子存储器的 AFC 方案^{[33],[34]}。存储器由原子组成，因此存储过程本质上是原子与光子之间的相互作用。为了得到更高的存储效率，原子-光子相互作用应当尽可能大。这意味着二者之间的碰撞截面需要得到提高。通常来说有两种办法：一是采用一大块晶体作为固体存储器，这增加了原子的数量，自然提高了相互作用。二是将原子放在腔内，光子在腔内来回多次折返，与原子“碰撞”的次数越多，相互作用随之增大。

本文采用原子系综提高原子-光子相互作用。对于不同的晶体，光子各个自由度需要与量子存储器耦合。因此，给定一个固体材料，单光子源需要特别订制。例如，对于本文中的 Nd:YSO，光子的波长需要与存储能级共振（883.236nm），并且具有足够窄的带宽（约 100MHz）。本文的重点即为这种单光子源的设计与搭建。

1.2 相关工作

按照单光子发射的概率，可以将现今单光子源分为两类^{[3],[8]}。确定性单光子源（deterministic single-photon source）能够根据需要确定地发射单光

子，这类单光子源有色心（color centers），量子点^[5]（quantum dots），单原子（single atoms），单离子（single ions），单分子（single molecules）和原子系综（atomic ensembles）。与之相对，另一种单光子源称作概率性单光子源（probabilistic single-photon source）。这类单光子源利用参量下转换（Parametric Down Conversion, PDC）这一非线性过程，经过块状晶体和波导产生光子对，或者在光纤中利用四波混频（Four Wave Mixing, FWM）。在概率源中，光子对的产生是概率性的，但是其优势在于两个光子是纠缠的，因此对于量子通信具有很重要的应用。

本文研究的单光子源是概率性单光子源，它产生一对纠缠光子对，对于其中一个光子的探测即预示了另一个光子的存在。一般来说这类光子源需要一个激光对一个非线性光学材料的激发^{[6][7]}。1961年 Louisell 等人第一次理论上预言了参量下转换过程，而利用这一过程产生非经典光是由 Zeldovich 与 Kiyshko 在 1969 年实验上完成的，并且他们在 1970 年实验上验证了光子对的非经典关联。PDC 过程采用二阶非线性晶体，如 KDP 晶体（potassium dideuterium phosphate），BBO 晶体（beta barium borate），LiNbO₃ 晶体（lithium niobate）和 LiIO₃ 晶体（lithium iodate）。具体的选取需要考虑晶体的二阶非线性系数和相匹配条件，而一个有效进行相匹配的技术是将晶体周期性极化。另外，PDC 过程产生的光子对一般不具有足够的强度，即光子对数量。一个常用的办法是将非线性晶体放置在腔内，腔量子电动力学（cavity-QED）的采用可以显著提高光强。

1.3 本文主要工作

本文旨在对 Nd:YSO 材料所需要的单光子源进行方案设计，理论计算以及部分搭建。

1. 利用非线性光学产生了具有频率 883.236nm 的单光子对
2. 设计与测试了滤波 FP 腔
3. 理论上给出了进一步提高单光子源强度的方法，即倍频腔的设计方案与实例

1.4 本文结构

本文的各章节组织结构如下：

第一章：绪论。简要说明了量子通讯网络的意义以及单光子源在量子网络中的应用。概括了本文的写作脉络和本文工作。

第二章：理论准备。介绍了单光子源需要满足的要求，非线性光学理论，高斯光的描述以及滤波器件简介。

第三章：理论设计与实验。介绍了准相位匹配的实验实现，滤波方案的设计与测试，倍频腔方案的理论设计。

第四章：总结与讨论。总结全文工作，讨论存在的问题和今后可以继续研究的方向。

第二章 理论准备

2.1 稀土离子掺杂晶体 Nd:YSO 的能级情况

稀土元素指的是元素周期表中第 III 族中 17 种金属元素，包括钪 ($_{21}\text{Sc}$) 钇 ($_{39}\text{Y}$) 和镧系元素 (从 $_{57}\text{La}$ 到 $_{71}\text{Lu}$)，具有相似的化学性质。其中，镧系元素以三价离子的形式存在于氧化物中时，往往具有很好的稳定性，因此大部分情况下镧系元素呈现出三价的形式，其电子构型可以统一写为 $[\text{Xe}]4\text{f}^N$ 。f 轨道的主量子数 $n=3$ ，因此最多可以填充 14 个电子。将 4f 轨道填充零个电子的情况纳入考虑，那么稀土元素正好为十五个元素。当 4f 能级在外场作用下退简并，产生劈裂，电子在劈裂后的 4f 能级中产生的带内跃迁称为 4f-4f 跃迁。对于镧系元素，4f-4f 跃迁较为稳定并且具有极窄的线宽，因此在光学与材料学中具有很大的意义。YSO 是硅酸钇晶体 Y_2SiO_5 的简称，它属于单斜晶系中的

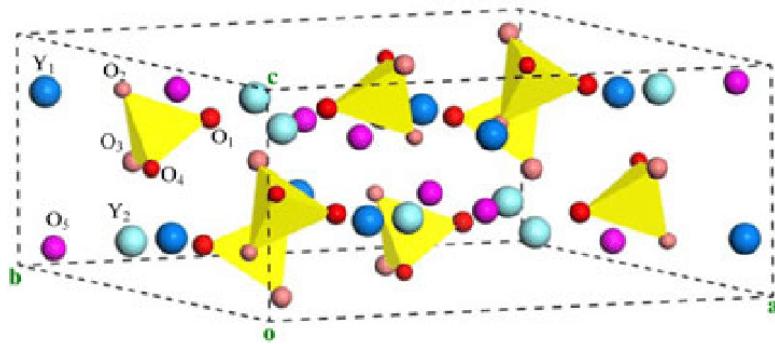


图 2-1: YSO 晶体结构图^[1]

C_{2h}^6 群，具有双折射效应，它的结构见图 2-1。YSO 晶体可以掺杂众多离子，如 Ce, Pr, Nd, Eu, Tb, Ho, Er, Tm, Tm:Ho, 和 Cr。当稀土离子被掺杂入 YSO 晶体时，晶体中原本占据 C_1 对称性两个位置的 Y^{3+} 会被掺杂离子取代。利用 YSO 作为宿主晶体掺杂稀土原子有多个优势。首先，与其它晶体，如 YAG (钇铝石榴石 $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$) 相比，掺杂后的离子具有更大的碰撞截面，因此与外界相互作用更为显著。其次，在低温条件下，掺杂在 YSO 晶体中的离子往往具有非常窄的均匀展宽 (kHz) 与较广的非均匀展宽 (GHz)。例如 $\text{Er}^{3+}:\text{YSO}$ 的均匀展宽仅有 73Hz，这是已知道固体材料中观测到的最窄的原子共振展宽。这些优势使

得掺杂稀土元素的 YSO 晶体在激光稳频，量子存储，光学信息处理和激光增益介质等方面得到广泛应用。

当离子掺杂入 YSO 晶体时，会受到晶体内部场的作用。对于掺杂在晶体中的稀土离子， $4f$ 的电子受晶体场的作用表现在屏蔽效应，跃迁法则和能级劈裂。

1. 屏蔽作用。如图 2-2 所示为稀土元素钆 (Gd) 外层电子的概率分布，其中横坐标为某处到原子核的距离，纵坐标为此处电子存在的概率密度。可以发现 $4f$ 电子集中的区域比 $5s$, $5p$, $5d$ 和 $6s$ 更靠近原子核。在稀土元素中， $5s$ - $5d$ 都是填满电子的，因此 $4f$ 的电子受到外层电子的屏蔽作用，受到晶体场的作用得到削弱。这一屏蔽作用表现在掺杂在晶体中的稀土离子与自由空间中的离子具有基本相同的 $4f$ - $4f$ 跃迁谱线。

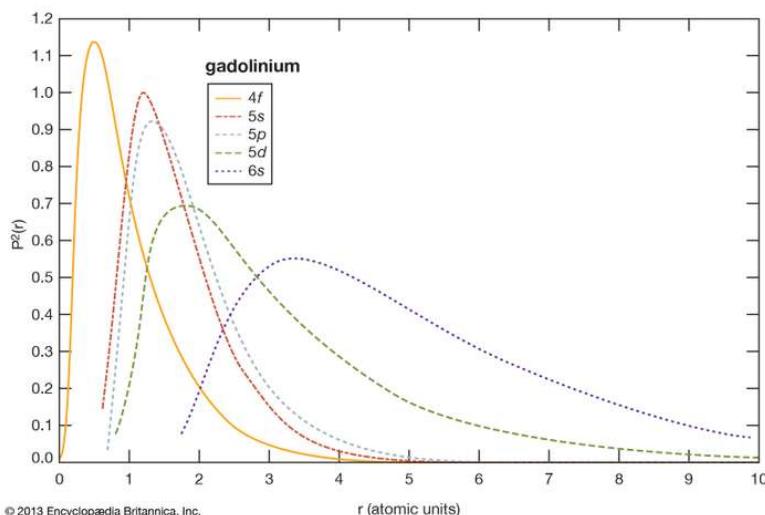


图 2-2: 钆 (Gd) 外层电子的概率分布 [2]

2. 跃迁法则。自由空间中的稀土离子与掺杂在晶体中的离子具有不同的跃迁法则。对于自由空间中的钕离子，其电子能级可以表示为 $^{2S+1}L_J$ ，其中 S 代表离子所有电子的总自旋， L 代表这些电子的总轨道角动量量子数（根据 $L=0, 1, 2, 3\dots$ 分别记作 S, P, D, F...），而 J 代表总角动量（包括自旋与轨道角动量）。这些电子角动量的计算必须要遵循量子力学的角动量相加法则而不是简单相加。由于跃迁过程需要满足一系列守恒定律，如角动量守恒和宇称守恒，可行的跃迁必须满足 $\Delta S=0$; $\Delta L=0, \pm 1$; $\Delta J=0, \pm 1$ （一个例外是 $J=0$ 无法跃迁到 $J=0$ 的态）。而当离子被掺杂在晶体中时，晶体场的作用使得电子具有了一套新的能级波函数，使得在自由离子中被禁止的跃迁在掺杂离子中被允许。

3. 能级劈裂。稀土离子可以表示为 $^{2S+1}L_J$, 具有 $2J+1$ 重简并, 在晶体场的作用下简并解除, 发生能级劈裂产生一套晶体场能级。如果离子具有核自旋, 那么晶体场进一步会出现超精细结构。如果有外加磁场, 能级会由于 Zeeman 效应再一次退简并。在低温 ($T < 30K$) 与低磁场条件下, 超精细结构与 Zeeman 效应产生的能级劈裂在 10^{-3}cm^{-1} 至 10^{-1}cm^{-1} 量级, 而晶体场劈裂的量级在 100cm^{-1} 。

如图 2-3 为 Nd^{3+} 的能级图。由于 Nd^{3+} 是 Kramers 离子, 即电子总数为奇数, 总自旋是半整数, 因此一个晶体场能级具有两个电子自旋简并, 这是为了满足时间反演对称性。所以仅仅在晶体场的作用下, $2J+1$ 的简并能级并不能完全劈裂, 只有在加了磁场以后所有的能级会最终劈裂。 Nd^{3+} 的基态能级为 $^4I_{9/2}$, 而本文讨论的 4f-4f 跃迁为 $^4F_{3/2}-^4I_{9/2}$ 。当 Nd^{3+} 掺杂入 YSO 晶体时会取代两种位置的 Y^{3+} , 并具有不同的跃迁光谱, 对应的跃迁波长分别为 883.24nm 与 883.24nm 。本文研究的是跃迁波长为 883.24nm 的掺杂方式, 因此需要搭建一个具有 883.24nm 波长的单光子源。

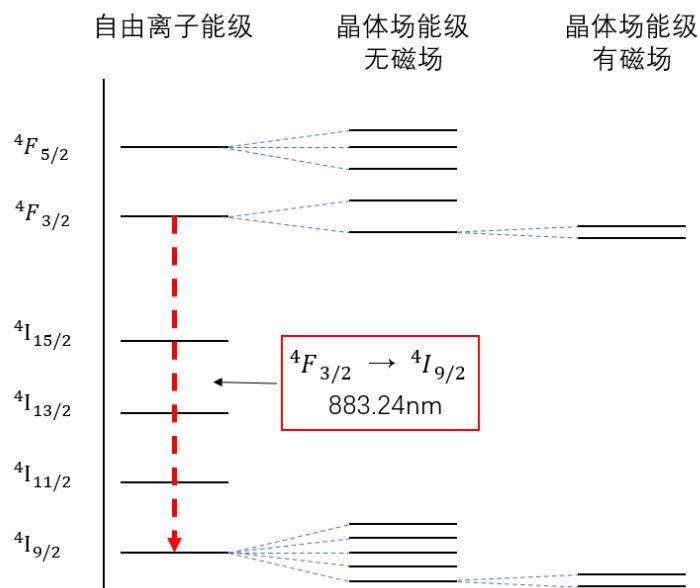


图 2-3: Nd^{3+} 的能级图

2.2 高斯光

2.2.1 高斯光的描述

实验中使用的激光并不产生平面波，而是高斯光。高斯光束具有一束腰，在束腰两边的光强分布具有对称性。本小节对高斯光的描述进行回顾。

对在 z 轴传播的光束作近轴假设以后，光波函数 $u(x,y,z)$ 成为空间调制的平面波，可表示为

$$u(x,y,z) = \psi(x,y,z) \exp(-ikz) \quad (2-1)$$

将其代入麦克斯韦方程组可以得到

$$\nabla_t^2 \psi - 2ik \frac{\partial \psi}{\partial z} = 0 \quad (2-2)$$

对上述方程考虑基模解，有

$$\psi(x,y,z) = \exp\left\{-i(P(z) + \frac{kr^2}{2q(z)})\right\}, r^2 = x^2 + y^2 \quad (2-3)$$

其中的 $P(z)$ 为一相位函数，变化很小，因此可以当作常数。 $q(z)$ 为一复函数，可以写成

$$\frac{1}{q(z)} = \frac{1}{R(z)} - i \frac{\lambda}{n\pi\omega^2(z)} \quad (2-4)$$

于是高斯波函数可以写成

$$u(x,y,z) = \exp\left\{-i(P(z) + kz + k\frac{r^2(z)}{2R(z)})\right\} \times \exp\left\{-\frac{r^2(z)}{\omega^2(z)}\right\} \quad (2-5)$$

上式的第二项为一高斯函数，与光强相联系。它的意义是，在传播方向 z 上的每一个平面，其光强都遵循高斯分布，这也是高斯光名字的由来。定义 $\omega(z)$ 为光斑半径，则在束腰处的半径 ω_0 最小。第一项为相位项，令相位 $P(z) + kz + kr^2/2R$ 等于一常数就可以求得相位面。由于 $P(z)$ 近似也为常数，知 $z + r^2/2R$ 也为一常数，这是一个具有曲率半径 R 的球面。图 2-4 给出了高斯光各个参量的示意图。以束腰面作为 $z=0$ 的基准面，绿线代表传播距离 z，红线代表 z 处光斑半径 $\omega(z)$ ，蓝线代表经过点 $(0, 0, z)$ 等相位球面的曲率半径

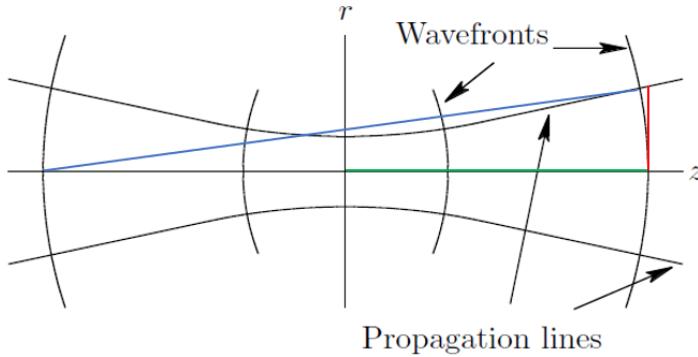


图 2-4: 高斯光各个参量示意图

R 。

进一步, 当 $z = f$ 处的光斑半径与最小束腰半径 ω_0 满足 $\omega^2(f) = 2\omega_0^2$ 时, 称 $b=2f$ 为共焦参数。点 $(0, 0, f)$ 处等相位球面的球心正好在点 $(0, 0, -f)$ 上。对于任意一点的光斑半径和曲率半径, 常用的公式如下^[17]

$$\begin{aligned}\omega_0 &= \sqrt{\left(\frac{f\lambda}{\pi}\right)} \\ \omega(z) &= \omega_0 \sqrt{1 + \left(\frac{z}{f}\right)^2} \\ R(z) &= z + \frac{f^2}{z}\end{aligned}\tag{2-6}$$

2.2.2 高斯光的变换

当高斯光在光学元件之间传播时遵循相应的变换法则, 例如经过一个焦距为 F 的薄透镜时, 设入射的高斯光具有束腰 ω_0 且束腰距离透镜距离为 l , 则出射的光也为高斯光, 具有相应的参数 ω'_0 与 l' , 相应的变换法则为^[17]

$$\begin{aligned}l' &= F + \frac{(l-F)F^2}{(l-F)^2 + \left(\frac{\pi\omega_0^2}{\lambda}\right)^2} \\ \omega'^2_0 &= \frac{\omega_0^2 F^2}{(l-F)^2 + \left(\frac{\pi\omega_0^2}{\lambda}\right)^2}\end{aligned}\tag{2-7}$$

对于高斯光传播的更普适求解需要用到函数 $q(z)$ 。由式 2-4 可知, 只要掌握了 q 函数, 对其取实部能够得到等相位面的曲率半径, 取虚部可以得到光斑半径。在束腰处, 等相位面即为 xy 平面, 因此曲率半径 R 为无穷大, 根据式 2-4 知 $q(0) = i\pi\omega_0^2/\lambda$ 。 $q(z)$ 可以由 $q(0)$ 经过变换 T 得到。

为了给出 T , 我们首先引入光学传播矩阵 M 的概念。如图 2-5 为一束光的

折射过程，入射与出射介质的折射率分别为 n_1 与 n_2 。在几何光学中，一束光的传播可以由两个参量表示：某点传播光的方向 θ 以及这点到光轴的距离 r 。对于折射过程，斯涅耳定律为

$$n_1 \theta_1 = n_2 \theta_2 \quad (2-8)$$

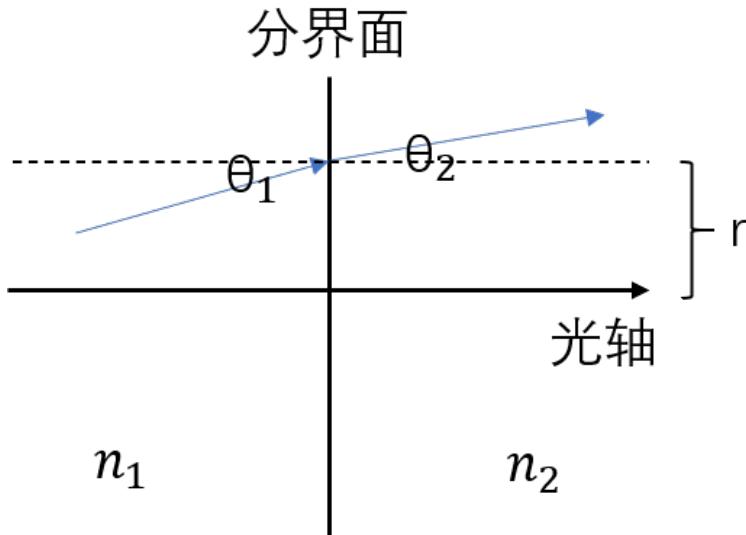


图 2-5: 折射示意图

其中用到了近轴条件。可以用二维列向量分别表示折射前后在分界面上一点的光束，那么这两点的变换可以写成如下形式

$$\begin{bmatrix} r_2 \\ \theta_2 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & n_1/n_2 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} r_1 \\ \theta_1 \end{bmatrix} \quad (2-9)$$

其中的二维矩阵就称为折射的变换矩阵。根据同样的方法可以求出其他过程（如自由传播，穿过薄透镜等）的变换矩阵。对于一个含有多个元件的光学系统，整体的传播矩阵就是各个分过程矩阵的顺序相乘。记整体传播矩阵为 M ，则有

$$M = M_1 M_2 M_3 \dots \equiv \begin{bmatrix} A & B \\ C & D \end{bmatrix} \quad (2-10)$$

$q(z)$ 的变换 T 并不是矩阵 M ，但是与 M 的各个分量 $ABCD$ 有关。从 $q(z_1)$ 到 $q(z_2)$ 的变换 $T(z_1, z_2)$ 为

$$q(z_2) = \frac{Aq(z_1) + B}{Cq(z_1) + D} \quad (2-11)$$

注意 ABCD 并不是常数，而是 z_1, z_2 的函数。通常选取 $z_1 = 0$ 进行计算得到每一处的 $q(z)$ ，达到求解整个高斯光的目的。

2.3 二次谐波产生与参量下转换

参量下转换是一个非线性过程：在能量和动量守恒的情况下，强泵浦激光器的光子被转化为一对纠缠光子，分别称为 signal 与 idler。在某种意义上来说，PDC 与合频过程是逆过程，它也是二阶非线性现象。由于 PDC 很好理解，实施起来很简单，并且能快速地产生具有良好时空模式的光子，因此是产生单光子的最广泛使用的技术。

2.3.1 非线性光学简介

在外电场 E 的作用下，介质会产生响应，其内部会产生电荷的重新分布，这种响应由极化强度 P 来表示。在线性光学中， P 正比例地依赖于 E ，因此有公式

$$P = \epsilon_0 \chi^{(1)} E \quad (2-12)$$

然而，在现实情况中，电介质对外界的电场响应并不是线性的。不过既然 P 为 E 的函数，我们可以将极化强度按照电场的不同次幂进行展开，并且将 n 次项前面除了真空介电常数的系数称为 n 阶非线性系数，记为 $\chi^{(n)}$

$$P = \epsilon_0 \chi^{(1)} E + \epsilon_0 \chi^{(2)} E^2 + \epsilon_0 \chi^{(3)} E^3 \dots \quad (2-13)$$

也可以记作

$$P = P^{(1)} + P^{(2)} + P^{(3)} \dots \quad (2-14)$$

由于在外界没有电场时，介质一般没有响应，因此展开式中不包含 $\chi^{(0)}$ 。我们称 $P^{(2)}$ 为二阶非线性极化，而 $P^{(3)}$ 为三阶非线性极化。 $\chi^{(2)}$ 一般在 10^{-12} 量级，而 $\chi^{(3)}$ 一般在 10^{-24} 量级。

二阶非线性极化可以带来诸多应用 [27]，如和频，差频，光学参量放大与二次谐波产生等等。其中，分别具有 ω_0 与 ω_1 频率的激光进入非线性介质，产

生频率为 ω_3 的光。当 $\omega_2=\omega_1+\omega_0$ 时称为和频， $\omega_2=\omega_1-\omega_0$ 时称为差频。而差频过程会导致较低频率的入射光得到放大，称为光学参量放大，可以用来实现光学参量振荡器 OPO，产生大范围连续可调波长(波长从红外到可见光甚至紫外光)激光。当具有频率 ω_1 的入射光经过二阶非线性介质产生频率为 $\omega_2=2\omega_1$ 的光时，称为二次谐波产生。

三阶非线性极化能带来克尔效应，拉曼效应与四波混频。在克尔效应中光本身的电磁场对介质折射率产生了变化，变化的大小 $n = \chi^{(3)}I$ ，其中 I 为光强。拉曼效应又称拉曼散射，也即非弹性散射。四波混频描述的是原有的两个或三个不同频率的光通过非线性介质产生新的两个或者一个频率。

本文涉及的两个非线性过程分别为二次谐波产生与自发参量下转换，它们都属于二阶非线性效应。由于二阶非线性极化不会发生在具有反演对称性的晶体中，液体，气体，非晶体和部分晶体等物质无法产生二阶非线性效应。常见的二阶非线性材料有铌酸锂 (LiNbO_3)，钽酸锂 (LiTaO_3)，磷酸氧钛钾 (KTP)、磷酸二氢钾 (KDP)、偏硼酸钡 (BBO) 等晶体。

2.3.2 二次谐波产生

在二次谐波产生过程中，两束具有相同频率 ω 的光在二阶非线性介质的作用下产生频率为 2ω 的光。一般而言，出射光除了 2ω 的光以外，依旧会有 ω 的光，因此在实验中需要通过二向色镜 (DM) 等器件滤去不想要的分量。如果出射光只有 2ω 的部分，则称产生谐波产生效率为最大。这一过程也可以从光子的角度来解读：两个频率为 ω 的光子消失的同时，系统产生了一个频率为 2ω 的光子。如图 2-6 所示，入射的光子与出射的光子满足能量与动量守恒。对



图 2-6: 二次谐波产生的示意图

于入射光而言，一个最简单的情形是一束具有振幅 E_ω 的平面波，在非线性介质中在波矢 k 的方向传播。此时在介质中会产生极化 (nonlinear...book):

$$P_{2\omega} = \epsilon_0 \chi^{(2)} E^2 = 2\epsilon_0 d_{eff}(2\omega; \omega, \omega) E^2 \quad (2-15)$$

其中, d_{eff} 是有效非线性光学系数, 它取决于 $\chi^{(2)}$ 张量中参与相互作用的部分。在忽略损耗, 并且采取缓慢变化的包络近似以后, 倍频光的振幅满足

$$\frac{\partial E_{2\omega}}{\partial z} = -\frac{i\omega}{n_{2\omega}c} d_{eff} E_\omega^2 e^{iz\Delta k} \quad (2-16)$$

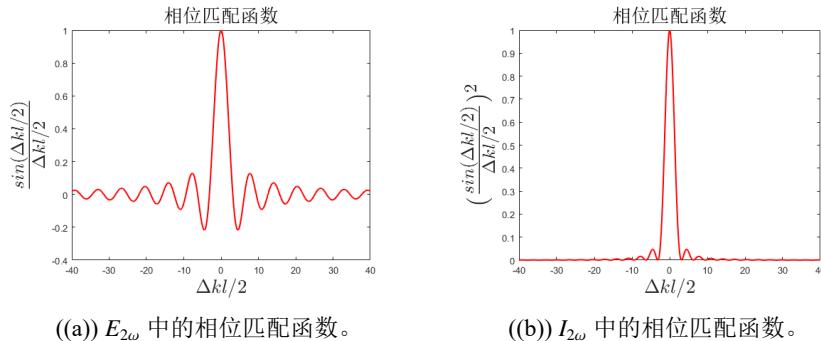
其中 z 为光传播的方向, $\Delta k = k_{2\omega} - 2k_\omega$ 。在较低产生效率情况下 (即 $E_{2\omega} \ll E_\omega$) 时, E_ω 在整个作用长度 (即晶体长度) l 内都可以看作常数。利用边界条件 $E_\omega(z=0)=0$, 可以得到出射倍频光振幅 $E_{2\omega}(z=l)$

$$E_{2\omega}(z=l) = -\frac{i\omega d_{eff}}{n_{2\omega}c} E_\omega^2 l \frac{\sin(l\Delta k/2)}{l\Delta k/2} e^{il\Delta k/2} \quad (2-17)$$

光强也即功率, 有

$$I_{2\omega}(l) = \frac{2\omega^2 d_{eff}^2 l^2}{n_{2\omega} n_\omega^2 c^3 \epsilon_0} \left(\frac{\sin(l\Delta k/2)}{l\Delta k/2} \right)^2 I_\omega^2 \quad (2-18)$$

注意到包含 Δk 的相位匹配函数在 $E_{2\omega}$ 中具有 $\sin(x)/x$ 的形式, 在 $I_{2\omega}$ 中具有 $\sin^2(x)/x^2$ 的形式, 如图 2-7 所示。当 $\Delta k=0$ 时, 相位匹配函数最大, 称为相位匹配条件, 此时二次谐波的能量最大, 效率最高。



((a)) $E_{2\omega}$ 中的相位匹配函数。

((b)) $I_{2\omega}$ 中的相位匹配函数。

图 2-7: 相位匹配函数

Boyd 和 Kleinman^[19] 考虑了如何优化高斯光的谐波产生效率。他们发现, 当光束走离效应可以忽略不计 (即波矢与坡印廷矢量夹角近似为零), 当入射激光束聚焦, 使光束腰部位于晶体的中心, 且非线性作用长度 L 与共焦参数 b 的比值等于 2.84, 波矢失配为 $\Delta k=3.2/L$ 时, 倍频能量的产生效率最高。在这种情况下, 二次谐波频率下产生的功率 $P_{2\omega}$ 与入射光 P_ω 呈二次相关, 等于

$$P_{2\omega} = K \frac{128\pi^2\omega_1^3 d_{eff}^2 L}{c^4 n_1 n_2} P_\omega^2 \quad (2-19)$$

2.3.3 自发参量下转换

PDC 过程中，一个泵浦光子经过非线性过程产生两个新光子，如图 2-8。在 PDC 中产生的光子对在 20 世纪 60 年代末和 70 年代初首次被观察到^[26]。二十年后，两个独立小组开始研究产生的单光子的相干性。Shih 和 Alley 意识到光子对可以用来研究量子力学中的基本问题，如 John Wheeler 的延迟选择实验，或 EPR 悖论。同时，Ghosh 和 Mandel 观察到了下变频光子之间的非经典干涉效应。这两个实验以及后续研究牢固地确立了参量下转换作为量子光学中的实验工具，并使之在此后成为许多量子信息处理方案的关键机制。然而，人们采取 PDC 作为实验手段的最大推动力是，在这个过程中产生的光子对是自然纠缠的。1995 年，Kwiat 和合著者们首次展示了通过 PDC 过程搭建的高纠缠光子源。这引发了一大批研究纠缠本质的实验，如用空间类分离观测器进行的贝尔试验、量子遥感、多粒子纠缠、基于纠缠的量子密码学等。



图 2-8: 参量下转换过程

按照经典理论，PDC 过程必须存在两种光子，例如只有同时存在 ω_p 与 ω_i ，才能产生 ω_s 。因此经典理论描述的是“受激参量下转换”，即除了泵浦激光以外，还需要有另一束光作用在晶体上。不过实验结果却表明，只需要一个泵浦光便可以同时产生 ω_s 与 ω_i ，实际的作用其实是“自发参量下转换”(SPDC)。采取了二次量子化方法的量子理论考虑了真空涨落的存在，能够完整刻画 PDC： ω_s 与 ω_i 分别有零点振动能，当非线性作用足够大时，零点振动得到放大，从而产生了宏观光强。这也是 PDC 常常被称作 SPDC 的原因。

根据产生的双光子偏振，SPDC 过程可分为几类。由 e 光产生两个 e 光 ($e \mapsto e + e$) 称为 Type-0 型， $e \mapsto o + o$ 称为 Type-I 型， $o \mapsto e + o$ 称为 Type-II

型。不同的类型会带来下转换光子不同的带宽，本实验采用 Type-II 型晶体以获得最窄的带宽。

现在来简略介绍一下量子理论对 PDC 过程的描述。在共线传播条件下，产生的双光子态可写为

$$\begin{aligned}
 |\Psi(t)\rangle &= |0\rangle + B' \iint \alpha(\omega_s + \omega_i) \text{sinc}[\Delta k(\omega_s, \omega_i) \frac{L}{2}] \hat{a}_s^\dagger(\omega_s) \hat{a}_i^\dagger(\omega_i) d\omega_s d\omega_i |0\rangle \\
 &= |0\rangle + B' \iint \alpha(\omega_s + \omega_i) \Phi(\omega_s, \omega_i) \hat{a}_s^\dagger(\omega_s) \hat{a}_i^\dagger(\omega_i) d\omega_s d\omega_i |0\rangle \\
 &= |0\rangle + B' \iint f(\omega_s, \omega_i) \hat{a}_s^\dagger(\omega_s) \hat{a}_i^\dagger(\omega_i) d\omega_s d\omega_i |0\rangle
 \end{aligned} \tag{2-20}$$

其中， L 为晶体长度， $\Delta k(\omega_s, \omega_i) = k_p - k_s - k_i$ 为相位失配项，因子 $B' \propto LE_p$ ，线性正比于晶体长度和泵浦光场强。第三个等式的物理意义是产生的双光子态满足联合谱振幅^[11] $f(\omega_s, \omega_i) = \alpha(\omega_s + \omega_i) \Phi(\omega_s, \omega_i)$ 。其中泵浦包络函数 $\alpha(\omega_s + \omega_i)$ 反映了能量守恒，而相位匹配函数 $\Phi(\omega_s, \omega_i)$ 则反映了动量守恒。如图 2-9 为三个函数的例子。

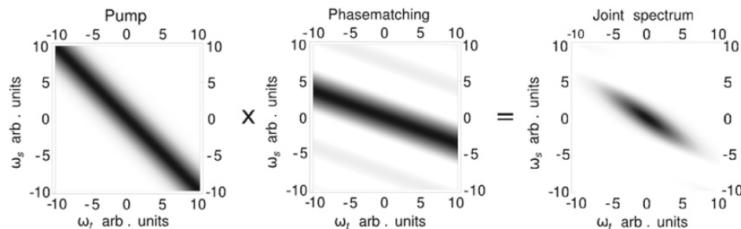


图 2-9: Alan Migdall 给出的三个函数的例子，颜色越深的地方数值越大。从左至右分别为泵浦包络函数，相匹配函数和联合谱振幅。第三张图中落在深色区域的光子频率对 (ω_s, ω_i) 同时满足能量与动量守恒律。

最后需要提及 SPDC 过程的劣势。首先，这一过程的下转换效率很低，泵浦光的大部分会穿过晶体而不发生 SPDC 作用，而入射光子中大约只有 $10^{-5} - 10^{-10}$ 才能产生下转换光子对。另外，下转换光子的带宽很大，一般从 100GHz 到 THz 量级。后续实验中的存储材料 Nd:YSO 对带宽的要求约为 100MHz，因此必须进行滤波。

2.3.4 相匹配条件

在二次谐波和参量下转换过程中都遇到了一个相匹配函数，为了达到最大转换效率，其中的相位失配 Δk 应当为零，此时称系统达到了完美相位匹配。

以 PDC 过程为例，考虑到介质的色散和温度的影响，其相位失配为

$$\begin{aligned}\Delta k &= k_p(\lambda_p, T) - k_s(\lambda_s, T) - k_i(\lambda_i, T) \\ &= \frac{n_p(\lambda_p, T)\omega_p}{c} - \frac{n_s(\lambda_s, T)\omega_s}{c} - \frac{n_i(\lambda_i, T)\omega_i}{c}\end{aligned}\quad (2-21)$$

由于色散关系的存在，介质折射率是波长与温度的函数，可以由 Sellmeier 方程进行描述^[12]。对于一个给定的晶体，折射率随着波长的色散关系已经确定，在实验上可以通过改变温度对系统进行调控。尽管如此，仅仅温度的改变往往无法方便地将 Δk 调为零。另一个思路是使用双折射晶体，由于 o 光与 e 光的折射率并不相同，可以通过改变光子波矢与晶体主平面的夹角来获得不同的折射率。不过，由于并不是所有晶体都是双折射晶体，且这一方法对角度的精确调控提出了很高的要求，因此可行性也有很大限制。

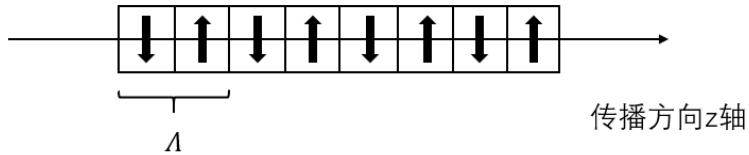


图 2-10: 周期性极化示意图

一项较为成熟的相位匹配方案则是采用周期性极化的晶体^{[9],[10],[36]}，其极化方向周期性地垂直于传播方向朝上或者朝下，具有微米数量级的周期 Λ ，如图 2-10 所示。极化方向的周期性变化使得晶体中的有效非线性系数 d_{eff} 不再是常数，而是一个随着传播距离不断改变正负号的量，可表示为

$$d(z) = d_{eff} \text{sign}[\cos(2\pi z/\Lambda)] \quad (2-22)$$

其中 $\text{sign}(x)$ 的作用是取 x 的正负，输出结果为 1 或 -1。

有效非线性系数的变化使得光强随着晶体中传播距离的增大产生阶梯式的上升。以二次谐波过程为例，根据经典理论，光强 $E_{2\omega}$ 随着传播距离 z 变化的函数为

$$E_{2\omega}(z) = \frac{4i\omega^2}{k_2 c^2} E_1^2 \int_0^z d(z) e^{i\Delta kz} dz \quad (2-23)$$

当没有周期性极化时， $d(z)$ 恒为常数，可以推导出式 2-7，发现倍频光强与传播距离的关系为 $I_{2\omega}(z) \propto z^2 \text{sinc}^2(z\Delta k/2)$ 。当达到完美相匹配条件时，

$I_{2\omega}(z) \propto z^2$, 光强随传播距离以二次方显著增大; 当相位失配不为 0 时, $I_{2\omega}(z) \propto \sin^2(z\Delta k/2)$, 呈现周期性振荡, 光强的增大受到限制。而采取了周期性极化之后, $d(z)$ 周期性地改变符号的正负。从式 2-12 可以看出, 每当积分中的相位项 $e^{i\Delta kz}$ 积累了相位 π , $d(z)$ 就变换一次符号, 这使得积分在每一个 π 相位内的部分不再相互抵消, 从而使得光强得到增大。

利用周期性极化产生的相位匹配对于光强的增大并没有完美相位匹配好, 因此称为准相位匹配。此时的相位失配被改写成

$$\Delta k = k(2\omega) - 2k(\omega) - \frac{2\pi}{\Lambda} \quad (2-24)$$

准相位匹配的实现在于制备出具有极化周期 Λ 的晶体。令 $\Delta k=0$, 则可以求得周期与波矢之间的关系

$$\Lambda = \frac{2\pi}{k(2\omega) - 2k(\omega)} \quad (2-25)$$

PDC 过程与合频过程可以看作互为逆过程, 而二次谐波产生本质上是一种合频过程, 因此它的逆过程是简并的 PDC 过程。周期性极化对 PDC 过程的相位匹配同样有效, 不同之处在于 PDC 过程必须用量子理论才能完整描述。PDC 过程的光强用哈密顿量描述为

$$\int_{t_0}^t dt \hat{H}_{PDC}(t') = Bd_{eff} \iint d\omega_s d\omega_i \alpha(\omega_s + \omega_i) L \operatorname{sinc}[\Delta k \frac{L}{2}] \hat{a}_s^\dagger(\omega_s) \hat{a}_i^\dagger(\omega_i) \quad (2-26)$$

其中准相位匹配条件为

$$\Delta k = k_p(\lambda_p, T) - k_s(\lambda_s, T) - k_i(\lambda_i, T) - \frac{2\pi}{\Lambda} = 0 \quad (2-27)$$

求得极化周期为

$$\Lambda = \frac{2\pi}{k_p(\lambda_p, T) - k_s(\lambda_s, T) - k_i(\lambda_i, T)} \quad (2-28)$$

2.4 滤波器件简介

一种最常见的滤波器件就是 FP 腔^[30]。FP 腔即法布里佩罗特腔, 又称标准具 (elalon), 是一种由两块距离为 L 的平行板组成的多光束干涉仪, 其中两

块平行板相对的内表面都具有高反射率，腔内介质的折射率为 n 。入射光在腔内来回反射，一次周期所经历的光程为 $2nL$ ，当 $2nL$ 为波长的整数倍 $m\lambda$ 时，入射光与 FP 腔共振，其透射频谱会出现很高的峰值，对应着很高的透射率。透射谱公式为

$$T = \frac{1}{1 + (4F^2/\pi^2)\sin^2(\phi/2)} \quad (2-29)$$

其中 $\phi = 4\pi nL/\lambda$ 为光在腔内一个周期经历的相移，而

$$F = \frac{\pi(R_1R_2)^{1/4}}{(1 - \sqrt{R_1R_2})} \quad (2-30)$$

为腔的精细度，它决定了腔对光的分辨本领。由式 3-3 可以算得透射峰的波长，也可以使 $T=0.5$ 计算其半高全宽（即带宽）得 $\Delta\phi_{FWHM} = 2\pi/F$ 。本实验中的滤波方案若采用 FP 腔，其透射峰应当包含波长 883.236nm，且具有带宽 100MHz。值得注意的是透射谱分别以波长或者频率作为横坐标有两种图示，半高全宽从波长到频率转换如下式

$$\Delta\lambda = \frac{c\Delta f}{f^2} \quad (2-31)$$

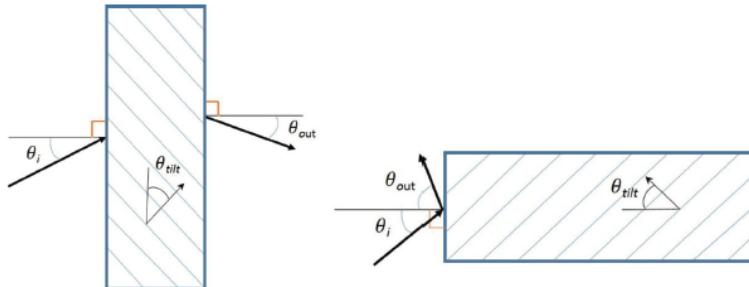


图 2-11: VBG 示意图，左边为透射式布拉格光栅 TBG，右边为反射式布拉格光栅 RBG

另一种得到广泛运用的滤波器件是 VBG^{[28],[35],[38]}。VBG 是体积布拉格光栅晶体，它对透射或反射光的频率也具有选择性，分别称为 TBG 与 RBG，如图 2-11 所示。特别地，RBG 对于窄带宽滤波实验具有更大实用价值，其反射谱的带宽可以达到 pm 量级。当入射光的波长满足布拉格条件 $\lambda = 2\Lambda\sin(\theta_i + \theta_{tilt})$ 时，它的反射谱达到峰值。其中 λ 为入射光波长， Λ 为光栅常数， θ_i, θ_{tilt} 的意义在图 2-11 中标出。图 2-12 给出了 RBG 在一例任意共振波长附近的反射谱形状。

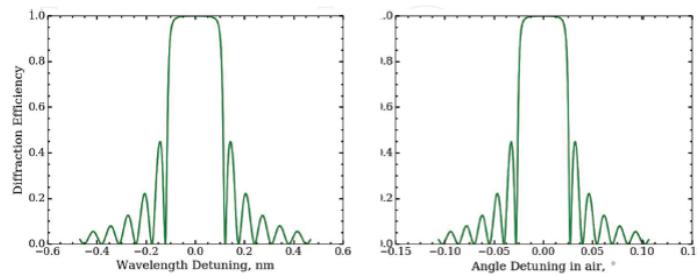


图 2-12: Ivan Divlansky 模拟的 RBG 反射谱^[29], 左右两图分别改变波长和角度。模拟的晶体厚 5.5mm, $\theta_{tilt} = 20^\circ$ 。

第三章 实验与设计

3.1 实验装置

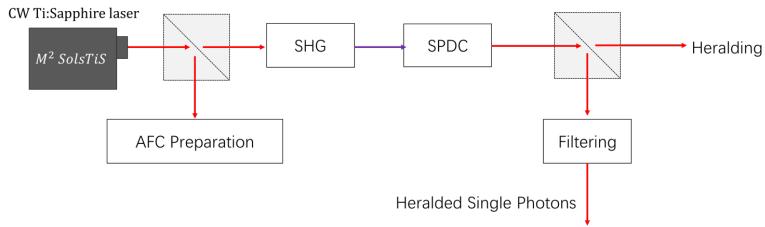


图 3-1: 单光子源实验装置示意图

如图 3-1 所示为单光子源的实验系统示意图。本实验使用的激光器是美国 M SQUARE 公司制造的连续波钛蓝宝石激光器 (CW:Ti:Sapphire laser)，它能够完成从 670nm 至 1050nm 的超窄线宽连续调节，最大输出功率可达 18W，具有紧凑和操作完全自动化的优势。通过激光器自带软件上的控制面板可以完成精度为 0.01W 的激光功率调节以及精度为 0.0001nm 的波长调节。利用激光器产生的具有波长 883.24nm 的激光经过一个 Thorlabs 公司制造的偏振分束器 (PBS)，竖直分量的光透射以制备单光子，水平分量的光折射后制备源自频率梳 (AFC)。原子频率梳是进行量子存储实验的通用方案，不是本文重点。透射的光经历 SHG 后产生倍频光，然后通过 PDC 过程产生一对纠缠单光子。将 SHG 与 SPDC 串联在一起的原因是，只有 SPDC 过程能产生具有量子性质的光，而 SPDC 过程涉及能量的下转换，因此一束光想要转化为具有相同能量的量子光，必须先经历 SHG 过程。最终产生的双光子态为^[37]

$$\Psi(\text{signal}, \text{idler}) = |H\rangle_1|V\rangle_2 + e^{i\psi}|V\rangle_1|H\rangle_2 \quad (3-1)$$

其中 H 代表水平偏振，V 代表竖直偏振，下标代表两个光子。由此可见，利用一个偏振分束器将两光子分开便可以有效利用它们的纠缠性质。当测量得到一个光子的偏振为水平时，另一个光子一定处于竖直偏振，反之亦然。单光子源搭建的最后一步是滤波，本实验采用了 SLS Optics 公司定制的 Fabry-Perot 标准具 (FP 腔) 以及 OptiGrate 公司生产的体积布拉格光栅 (VBG)，将它们串联完成滤波。

在 SHG 以及 SPDC 过程中都使用了二阶非线性晶体。本实验采用两块 Raicol 公司生产的 Type-II PPKTP 晶体，其极化周期为 $\Lambda = 18.475\mu m$ ，有效非线性系数为 $d_{eff} = 3.9 pm/V$ ，尺寸为 $1mm \times 2mm \times 10mm$ ，其中选取 $10mm$ 为非线性作用长度 L。本实验考虑简并 SPDC，即下转换的两个光子具有相同的频率，因此 SPDC 与 SHG 过程互为逆过程。在 SHG 与 SPDC 中光子转换过程分别为

$$\begin{aligned} SHG : & 883.236nm(o) + 883.236nm(e) \Rightarrow 441.618nm(o)) \\ SPDC : & 441.618nm(o)) \Rightarrow 883.236nm(o) + 883.236nm(e) \end{aligned} \quad (3-2)$$

由于 SHG 与 SPDC 互为逆过程，涉及相同一组波长，它们满足准相位匹配条件的情况是相同的，且与晶体长度无关。只需要对一个过程中的晶体确定其最佳相位匹配参数就可以应用到另一个过程上。由于在时间上 SHG 过程早于 SPDC 过程，本实验对 SHG 过程进行研究就可以寻找到最佳相匹配温度。

3.2 相位匹配温度的确定

如图 3-2 所示为 SHG 过程搭建的光路。由于 M2 激光器产生的光为高斯光束，为了使 SHG 过程效率最高，其束腰应当在 PPKTP 晶体中央。因此，我们使用一个焦距为 $100mm$ 的薄透镜 L1 与大恒光电的 GCM-V25M 位移升降台。由于入射光近似为平行光，L1 对光束的聚焦作用使得出射光的束腰就在焦点处，因此晶体中心应放置在距离透镜 $100mm$ 处。升降台的使用可以进一步将效率提高。

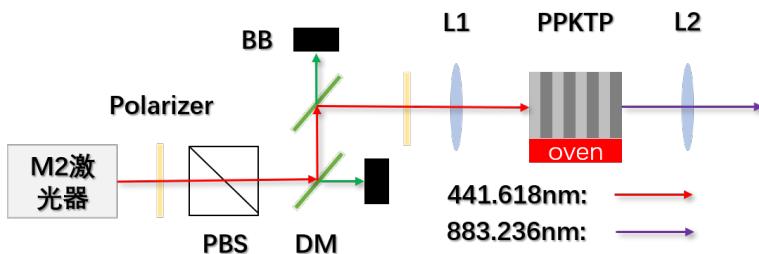


图 3-2: 二次谐波过程部分实验光路图

我们首先利用 M2 激光器将波长固定至 $883.236nm$ ，温控炉锁定温度为 $73.0^{\circ}C$ ，将入射光（基频光）的功率从 0 以 $0.2W$ 等间隔变化至 $3.4W$ 。采用 Coherent 公司的大功率计测量基频光，Thorlabs 公司的 PM100D 功率计测量倍频光强。得到的光强关系如图 3-3。由实验数据知，倍频光与基频光呈现二次

方关系，与式 2-19 的理论关系相符合。因此，为了得到最大倍频光强，基频光强应当最大。本文实验中的 M2 激光最大强度为 18.00W，在经过了各个光学元件衰减作用以后，SHG 过程之前的最大功率约为 3.4W。

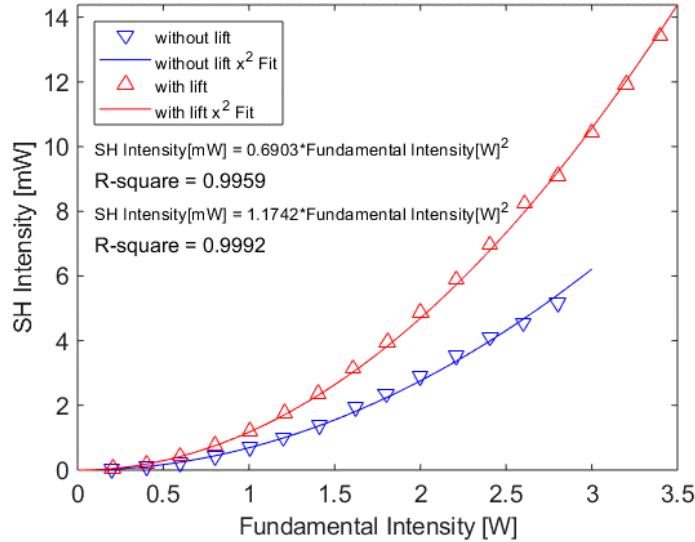


图 3-3: 倍频光与基频光的光强数据图。横坐标为基频光，纵坐标为倍频光。蓝色代表未加位移台，红色代表经过了位移台优化。

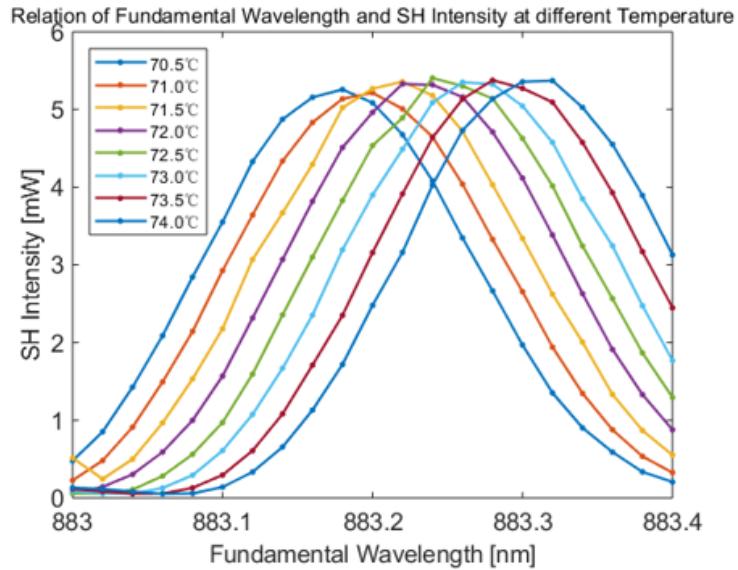


图 3-4: 不同温度下的倍频光谱。一种颜色代表一种温度。

由式 2-22 知，相位失配与温度相关，因此实验上可以通过改变温度寻找相位匹配点。我们将 PPKTP 晶体置于一最大温度为 200°C，调节精度为 0.1°C 的控温炉内。我们分别将晶体温度固定为 70.5°C 到 74.0°C，间隔 0.5°C。然后在每一个温度下利用 M2 激光器自带的软件将基频光的波长从 883.00nm 每隔 0.02nm 扫至 883.40nm。利用 Coherent 激光器固定基频光功率为 2W。对于不同

的温度得到了图 3-4。由此可知，在同一个温度下，倍频光光谱具有一峰值。增大温度之后峰值向右移动，当峰值移动到 883.236nm 时此时的温度为最佳相匹配温度。我们进一步将每一个温度对应的峰值波长进行拟合得到 3-5，可以发现二者近似满足线性关系。取波长 883.236nm，对应的温度约为 72°C，这也就是最佳相匹配温度。

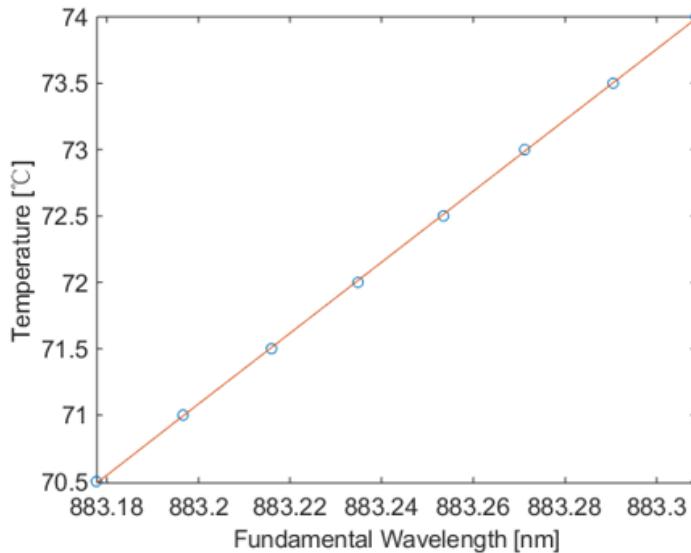


图 3-5: 温度与倍频谱峰值的关系

在光束达到了最优空间匹配和相匹配温度的情况下，基频光功率达到最大值 3.4W，此时倍频光的功率可达到 13.4mW。倍频光通过相同的方式匹配进用于 SPDC 过程（图 3-6）的第二块 PPKTP 晶体，而它的最佳相匹配温度也为 72°C。

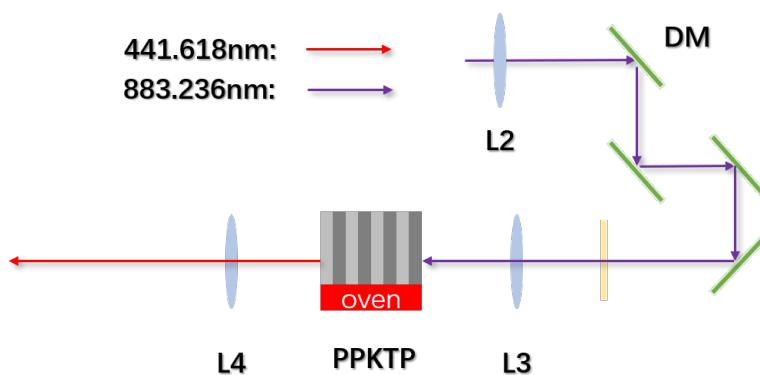


图 3-6: SPDC 过程部分实验光路图

3.3 濾波方案设计与 FP 腔测试

3.3.1 濾波方案设计

在第二章中提到 SPDC 过程产生的下转换光子具有 100GHz 甚至 THz 量级，而 Nd:YSO 的存储实验对光子带宽的要求只有约 100MHz，因此实验上需要大量滤波。本节讨论了滤波方案的设计，并且对设计后定制的 FP 腔 A1 进行了测试。

由于一个滤波元件具有多个共振频率，为了使得特定频率的光被挑选出来，我们至少需要将两个自由光谱程不同的滤波器件串联完成二级滤波。本实验设计并且从英国 SLS Optics 公司定制了两个 FP 腔，分别称为 design A1 与 design A2。两个 FP 腔的部分重要设计参数列在下表中。

	Design A1	Design A5
中心波长	883.236nm	883.236nm
自由光谱程	19.99GHz (52pm)	214.9GHz(559.2pm)
半高全宽	0.093GHz(0.2414pm)	0.888 GHz (2.31 pm)

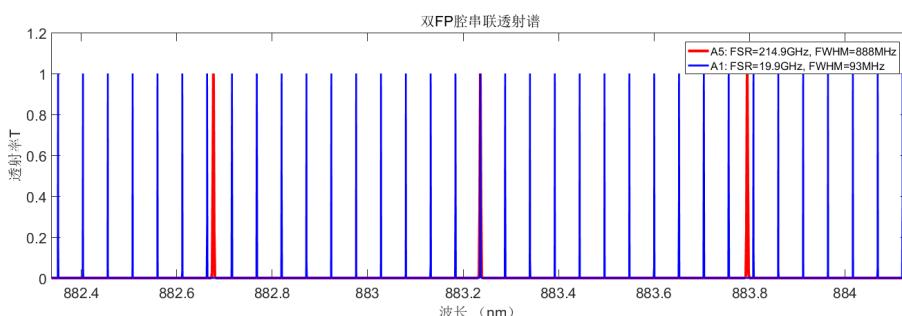


图 3-7: A1 与 A5 串联透射谱，红蓝两色分别对应 A5 与 A1。

如图 3-7 与图 3-8 为模拟所得 A1 与 A5 的串联透射谱。A1 的带宽为 93MHz，它对滤波起主要作用，但是具有较窄的 FSR，无法滤去在 883.236nm 附近的其它共振波长光。A5 的带宽为 888MHz，不过利用其较长的 FSR，它能筛去 A1 的其它共振波长。图 3-7 清晰地显示了联级滤波的作用，最终的透射谱应当为两种颜色谱的交集，即中心波长附近。图 3-8 放大了中心波长附近的透射谱，可见谱线的交集就是 A1，因此滤过之后的光应当满足中心波长 883.236nm，带宽 93MHz 的要求。

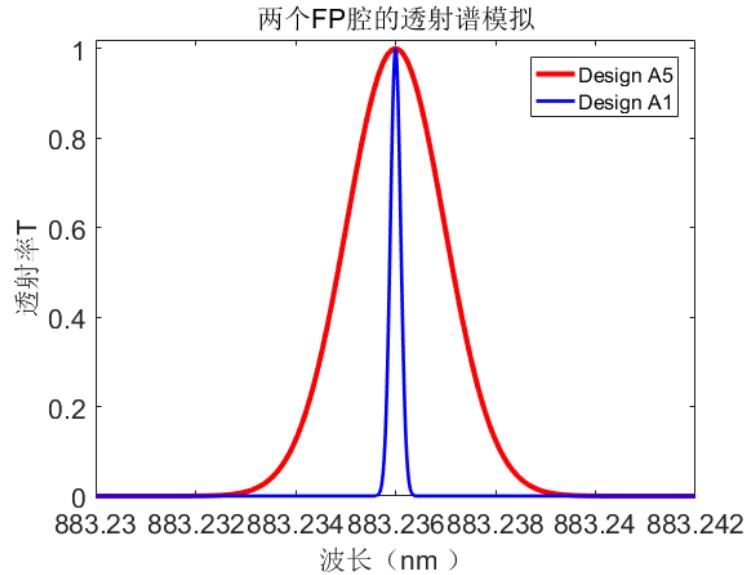


图 3-8: 883.236nm 附近 A1 与 A5 串联透射谱, 意义与图 3-7 相同

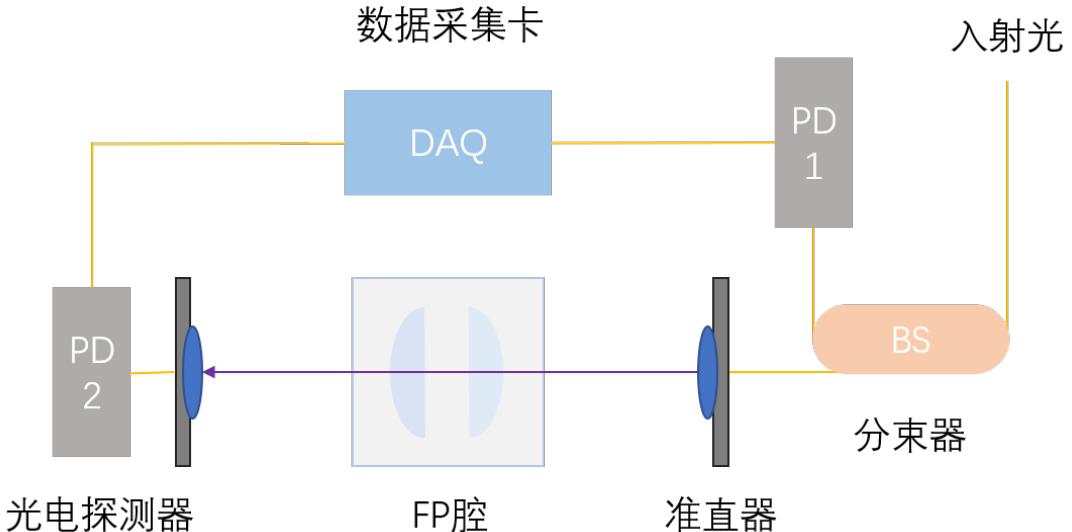


图 3-9: FP 腔测试光路示意图

3.3.2 FP 腔 design A1 测试

我们对实验室定制的 FP 腔进行了测试以验证其设计要求。如图 3-9 为测试光路图, 入射光通过一分束器 BS 分为强度比 9: 1 的两束光, 其中较弱的光以强度 I_1 直接进入光电探测器 PD1, 而较强的光穿过 FP 腔后以 I_2 进入 PD2。考虑到 BS 的分数比, 则透射率为 $T = I_2/9I_1$ 。数据采集卡 DAQ 对两个 PD 产生的电信号进行处理并反馈至电脑作出透射谱。

我们将待测试的 FP 腔放置在可调节俯仰和水平角度的大恒光电 GCM-1104 系列旋转俯仰台上, 使腔中心与入射光等高之后调整腔与入射光的角度。我们

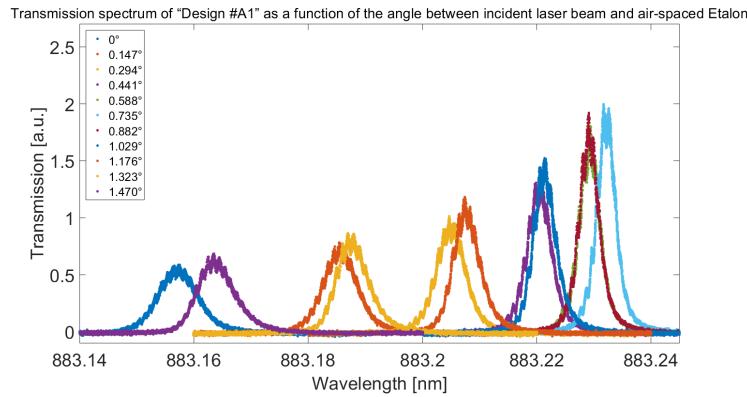


图 3-10: Design A1 的垂直入射角确定 A

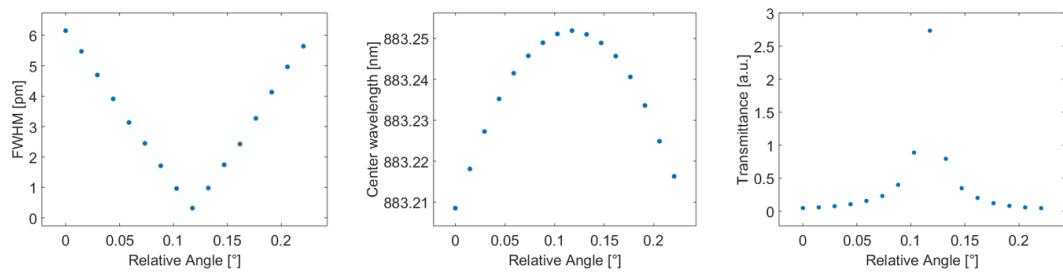


图 3-11: Design A1 的垂直入射角确定 B

首先应当确定 FP 腔入射镜面的法线与入射光重合：GCM 旋转台的角度调整为一螺旋测微计，我们选取测微计的零点为基准，将各个角度以相对角度标示，在每一个角度下扫波长得到透射谱。图 3-10 是 A1 在不同角度下的透射谱。

图 3-11 给出了半高全宽，中心波长与透射率随着角度的变化。结合两图可知，当角度连续增大，中心波长首先增大然后减小，半高全宽先减小然后增大，透射率先增大后减小。当角度约为 0.735° 时，各个量达到极值，我们认为此处为正入射情况，有中心波长为 883.232 nm，最小带宽为 4.182 pm。

由于本实验的波长要求为 883.236 nm，与正入射中心波长有 4 pm 的偏移，因此我们需要在正入射基础上改变 FP 腔角度。这会带来更大的半高全宽与更低的透射率。图 3-12(a)与图 3-12(b)给出了当中心波长为 883.236 nm 时的透射谱。由图 3-12(a)可知半高全宽为约 6.88 pm，由图 3-12(b)可知 FSR 为 52.1 pm。

下表给出了 A1 的设计值与测试值的比较。由表可知，设计值与测试值的差异并不大，而正入射的波长差异为 4 pm。考虑到正入射的半高全宽仅为 4.182 pm，在 883.236 nm 处的透射率会显著降低。

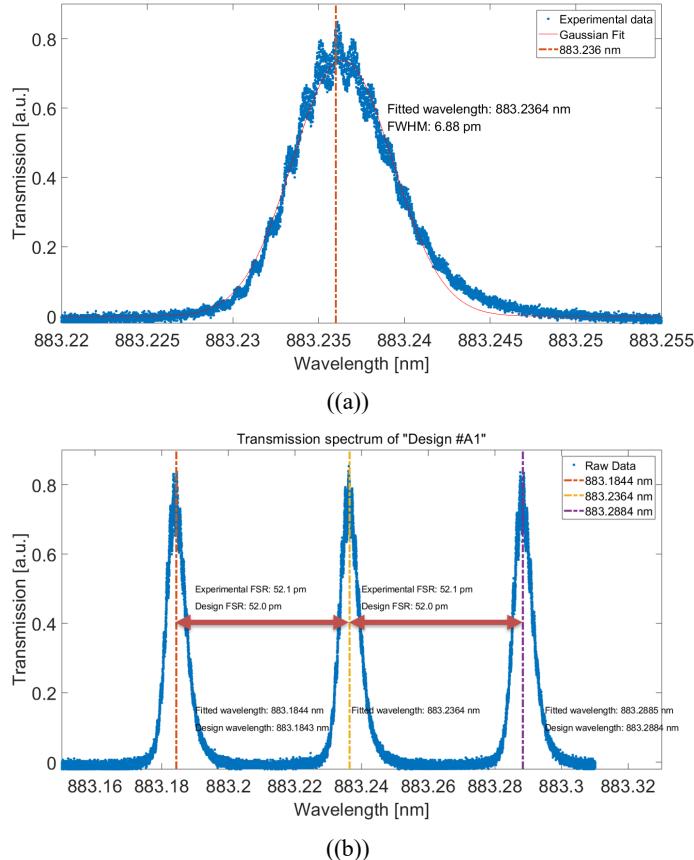


图 3-12: Design A1 在 883.236nm 处的半高全宽与自由光谱程

	设计值	测试值
正入射中心波长	883.236nm	883.232nm
883.236nm 处自由光谱程	52pm	52.1pm
883.236nm 处半高全宽	0.2414pm	6.88pm

3.4 倍频腔模式匹配设计

为了进一步提高单光子源的功率（单光子计数），本实验考虑将晶体放在光学共振腔中。本实验中包含两个过程中的两块晶体，虽然对 SPDC 过程的晶体进行谐振腔放大也有研究^{[14],[15]}但是与 SHG 过程相比光子转换率较低，因此我们对 SHG 过程的 PPKTP 晶体进行谐振腔放大^{[22],[23]}。本节讨论倍频腔模式匹配的理论设计，并给出一个设计实例。

光学非线性过程的本质仍然是光与物质相互作用，因此提高倍频效率就是

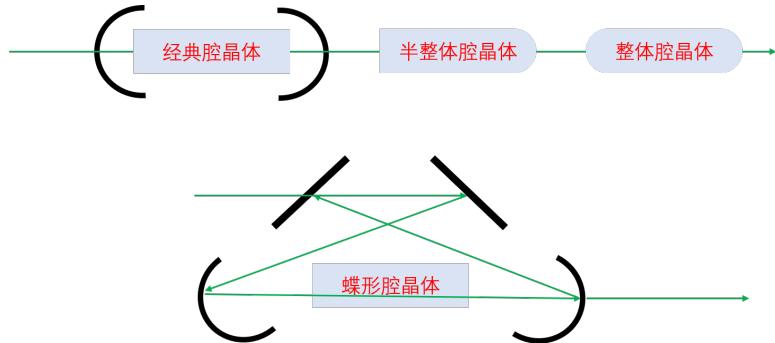


图 3-13: 腔内倍频的各种设计方案

提高光子与原子的相互作用截面：增大光强和增加晶体长度都是一种办法，但是现实系统对尺寸和激光功率都有限制。另一种方案是将晶体放置在腔中，光在两束高反射率的腔镜之间多次反射经过晶体，在效果上等同于增大晶体与光的作用长度，从而增大相互作用截面。不过倍频腔的选取不是任意的，实验上为了使得基频光与倍频腔耦合，需要对基频光与腔进行模式匹配与阻抗匹配^[24]。模式匹配的意义在于使得入射高斯激光的模式与腔的模式匹配，而阻抗匹配意味着输入光产生的反射光为零。

腔内倍频的设计方案各式各样^[16]，最经典的方案是一片晶体两边放置腔镜，除此以外也可以将一片晶体的两边打磨出弧度镀上高反射膜，称为整体腔。将晶体的一面打磨镀膜，另一面放置腔镜称为半整体腔。也可以采用四面腔镜的方案，称为蝶形腔。各种设计的示意如图 3-13。

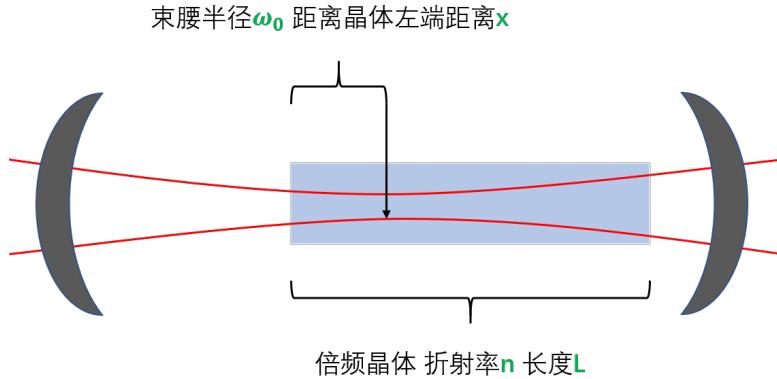
本节对经典倍频腔的模式匹配进行理论设计。对于一块腔内的晶体，整个系统以及其包含的参数如图 3-14 所示。在模式匹配的情况下，光在腔内传播一个周期后的各项参数应当保持不变。由于激光是高斯光，在距离束腰 z 处具有特征函数 $q(z)$ ，设这一点的光束在腔内经过一个轮回的光学传播矩阵为 M ，对应的 q 函数变换为 T ，则应该有 $Tq(z)=q(z)$ 。由式 2-10 与 2-11 知，

$$Cq^2(z) + (D - A)q(z) - B = 0 \quad (3-3)$$

结合式 2-4，我们可以给出模式匹配情况下各点的计算公式：

$$R = \frac{2B}{D - A} \quad (3-4)$$

$$\omega = \sqrt{\frac{2\lambda|B|}{n\pi\sqrt{4 - (A + D)^2}}} \quad (3-5)$$



束腰距离左/右侧腔镜为 d_1/d_2 , 腔总长为 D .
腔镜半径分别为 R_1/R_2

图 3-14: 经典腔内倍频的系统参数

以上各公式都需要对光学传播矩阵进行计算。在图 3-14 中, 距离晶体左端为 x 的点先传播到晶体右侧, 然后进行折射, 再在空间中传播一段距离后于右边缘面上反射, 接着传播到最左边镜面反射, 最后重新回到原点, 这一过程的传播矩阵 $M = M_1 M_2 M_3$ 如下,

$$M = M_1 M_2 M_3 = \begin{bmatrix} A & B \\ C & D \end{bmatrix} \quad (3-6)$$

$$M_1 = \begin{bmatrix} A_1 & B_1 \\ C_1 & D_1 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 1 & x \\ 0 & 1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 1/n \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 1 & d_1 - x \\ 0 & 1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ -2/R_1 & 1 \end{bmatrix} \quad (3-7)$$

$$M_2 = \begin{bmatrix} A_2 & B_2 \\ C_2 & D_2 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 1 & d_1 - x \\ 0 & 1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & n \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 1 & L \\ 0 & 1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 1/n \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 1 & d_2 - (L - x) \\ 0 & 1 \end{bmatrix} \quad (3-8)$$

$$M_3 = \begin{bmatrix} A_3 & B_3 \\ C_3 & D_3 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ -2/R_2 & 1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 1 & d_2 - (L - x) \\ 0 & 1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & n \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 1 & L - x \\ 0 & 1 \end{bmatrix} \quad (3-9)$$

从 3-4 式不仅可以计算出任意一点的曲率半径, 也可以确定束腰的位置。由于束腰处曲率半径为无穷大, 因此当某点 z 满足 $D-A=0$ 是这一点就是束腰。从 3-5 式可以计算出每一点激光半径, 注意到分母中有一项 $\sqrt{4-(A+D)^2}$, 将其定义为稳定度。为了使激光半径为实数, 稳定度必须大于零。另外, 当稳定度很小时, 激光半径很大, 意味着光斑在此点聚焦性很差。我们希望稳定度越大越好。如图 3-15 为稳定度随着腔长与晶体长度的变化。由图可知, 腔长度足

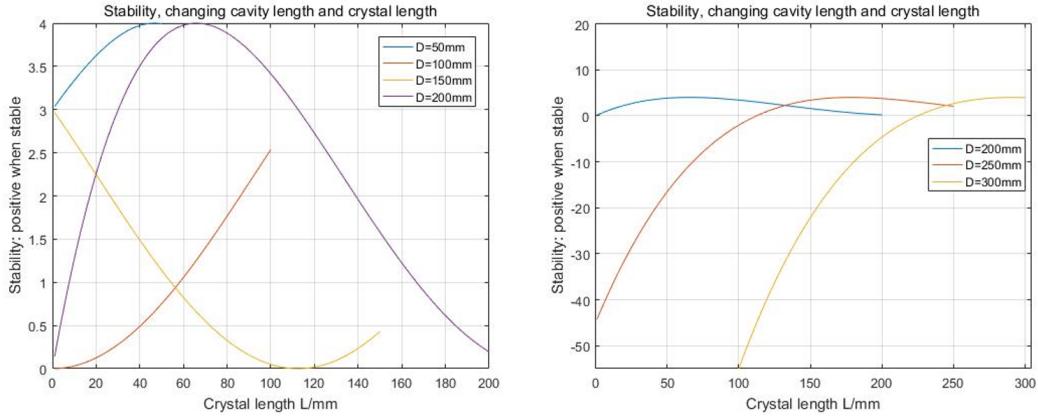


图 3-15: 采用 Type I 型 PPKTP 的参数 [19],[20],[32] 下, 稳定性随着腔长度 D 与晶体长度 L 变化的图像。 $\lambda=883\text{nm}$, $R_1=R_2=100\text{mm}$, 折射率 $n=1.8$ 。

够小时（此例中小于 200mm），晶体长度基本都可以满足稳定性，而腔长度足够大时，晶体必须不短于一个最低长度，且腔越长，这一最小长度也越长。

在满足稳定性条件下，理论上腔内可以存在一个稳定的模式，而在这些模式中存在一个最优的束腰。由式 3-4，束腰的位置应该满足 $D=A$ ，即得到方程：

$$2x \frac{n-1}{n} \left(\frac{2}{R_1} + \frac{3}{2R_2} + 3 \frac{n(L-D)-L}{nR_1R_2} \right) + \frac{4(n-1)L^2}{n^2 R_1 R_2} - \frac{4L(n-1)(L-D)}{nR_1R_2} + 2D \left(\frac{1}{R_1} - \frac{1}{R_2} \right) - \frac{4L(n-1)}{nR_1} \\ = (d_2 - d_1) \left(\frac{4L}{nR_1R_2} + \frac{4(D-L)}{R_1R_2} - \frac{2}{R_1} - \frac{2}{R_2} \right)$$

首先，为获得最大倍频效率，束腰应在晶体中央，即满足 $L=2x$ ，可解得 $d_2 - d_1$ 的表达式，与 $d_2 + d_1 = D$ 联立可以获得束腰的位置信息。另外，束腰应当最小，这样的光聚焦性最好。图 3-16给出了束腰半径随着腔长度 D 与晶体长度 L 的变化规律。由图可知，腔长足够小的时候，当腔长固定，则越长的晶体带来越小的束腰半径。当腔长超过一临界值时系统也不再稳定。因此我们需要在腔长足够小的情况下增大晶体长度以获得较小束腰半径。

图 3-17则给出了一组具有不同折射率的腔镜。腔镜的折射率变化也可以影响到束腰半径，例如给出一组 50mm 的透镜，则确定腔长的情况下，随着晶体的增长，束腰半径的减小速度更慢，但是起始值更低。

在优化了各项参数以后，本节在此对 Type I 型 PPKTP 的模式匹配优化给出一实例。如图 3-18左侧为实例示意图，右侧为绿色虚线框内放大的高斯激光半径随着距离 z 的变化图。在此实例下，晶体长度为 20mm，折射率为 1.8，束腰位置在腔与晶体的正中间，腔长 50mm，两面腔镜的半径都是 50mm，此时获得的束腰半径为 $83.78\mu\text{m}$ 。

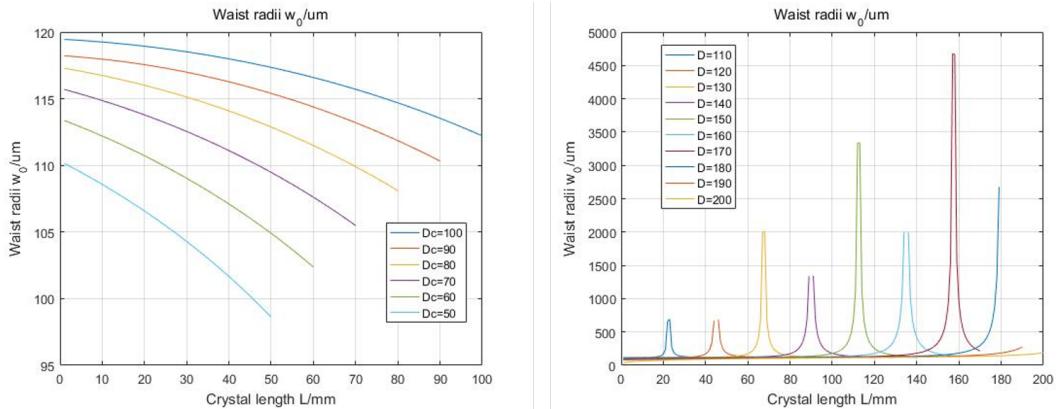


图 3-16: 采用 Type I 型 PPKTP 的参数下, 束腰随着腔长度 D 与晶体长度 L 变化的图像。
 $\lambda=883\text{nm}$, $R_1=R_2=100\text{mm}$, 折射率 $n=1.8$ 。

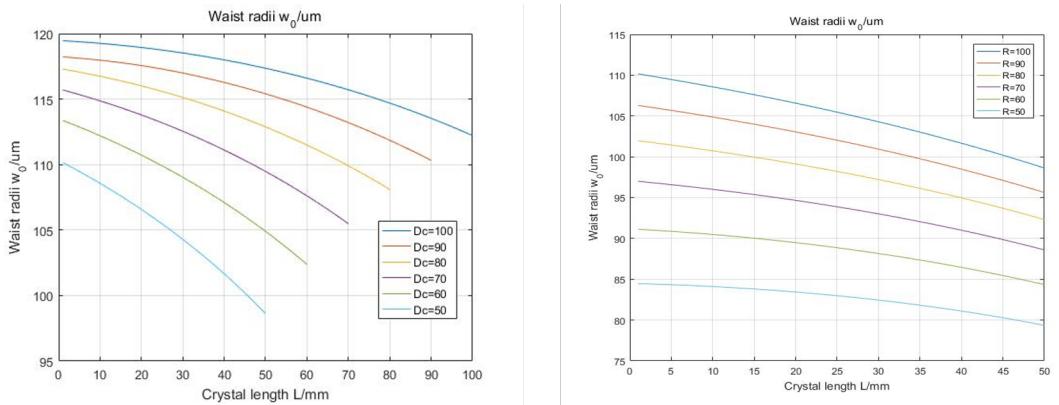


图 3-17: 采用 Type I 型 PPKTP 的参数下, 束腰随着腔长度 D 与晶体长度 L 变化的图像。
 $\lambda=883\text{nm}$, $R_1=R_2=50\text{mm}$, 折射率 $n=1.8$ 。

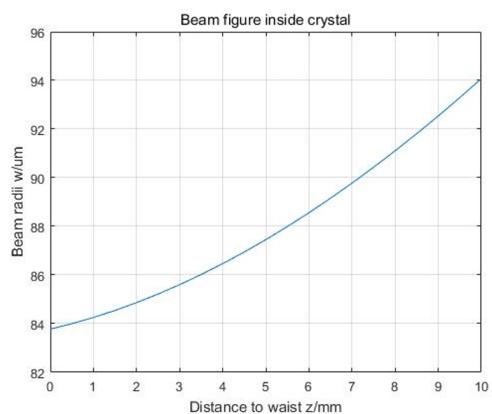
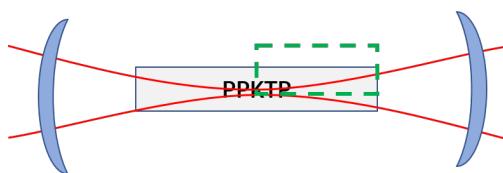


图 3-18: Type I 型 PPKTP 的模式匹配实例

第四章 总结与讨论

本文对 Nd:YSO 的单光子源进行了理论设计与部分搭建，在利用非线性光学产生单光子，FP 腔联级滤波和介绍了相关实验方法与实验结果。根据测量结果，本文使用的两块 Type II 型 PPKTP 晶体在 72°C 达到最佳相匹配条件并获得最大转换效率，其中 SHG 过程对于入射 3.4W 的光最大能够出射 13.4mW 的光。本文还对滤波部分的 FP 腔进行了设计与测试，使之基本满足在中心波长 883.236nm 附近将光的带宽滤至约 100MHz 的要求。

直接将两块晶体串联产生单光子对并且采用 FP 腔联级滤波无法稳定地实现实验要求。首先，直接将基频光透过晶体得到的倍频效率很低，本文进一步对腔内倍频的匹配模式进行了理论计算。例如理论上对于 Type I 型 PPKTP 晶体，长度为 20mm，腔长 50mm，两面腔镜的半径分别为 50mm，则得到的束腰在晶体中央，束腰为 $83.78\mu m$ 。其次，由于测试的腔参数与定制要求不符合，如 design A1 的中心波长具有 4pm 的偏移，而后续测量的 design A5 的偏移更大，我们后续考虑两个修改方案。第一，对 design A1 设计了温控腔，采用 PDH 方法实时改变温度使得透射峰保持在 883.236nm 且维持稳定。第二，将 design A5 替换成同样具有滤波效果的 VBG 晶体，并将晶体放置在温控炉中，同样通过温度调节其透射谱。

通过对 Nd:YSO 晶体单光子源的搭建，我们已经基本掌握了采用 SPDC 过程产生单光子对的技术手段。接下来对于其它稀土离子掺杂的晶体也会有相应的单光子源需求，例如 Er:YSO 晶体 1560nm 的光学跃迁，这一波长处于光纤通讯波段，因此对于量子通信而言更加有应用潜力。我们会继续朝着实现具有社会经济应用价值的固态量子存储器的目标前进。

参考文献

- [1] Liu, Bin and Wang, Jiemin and Li, Fangzhi and Wang, Jingyang and Zhou, Yanchun. Mechanism of Mono-Vacancy and Oxygen Permeability in Y₂SiO₅ Orthosilicate Studied by First-Principles Calculations Journal of the American Ceramic Society, 2012, 95.
- [2] Vitalij K. Pecharsky and Karl A. Gschneidner, Jr. Rare-earth element Encyclopaedia Britannica, 2019,
- [3] Daniel Rieländer. Quantum light source compatible with solid-state quantum memories and telecom networks Journal of the American Ceramic Society, 2016,
- [4] Kimble, H. The quantum internet. Nature, 2008,
- [5] Paudel, Uttam and Wong, Jia Jun and Goggin, Michael and Kwiat, Paul and Bracker, Allan and Yakes, Michael and Gammon, Daniel and Steel, Duncan. Direct Excitation of a Single Quantum Dot with Cavity-SPDC Photons , 2018,
- [6] Lounis, Brahim and Orrit, Michel. Single-photon sources Reports on Progress in Physics, 2005, 68
- [7] Mark Oxborrow and Alastair G Sinclair . Single-photon sources Contemporary Physics, 2005, 46
- [8] Eisaman, M. and Fan, Jingwen and Migdall, Alan and Polyakov, Sergey. Invited Review Article: Single-photon sources and detectors The Review of scientific instruments, 2011, 82
- [9] Houe, M and Townsend, P D. An introduction to methods of periodic poling for second-harmonic generation Journal of Physics D Applied Physics, 1995, 28
- [10] M. M. Fejer and G. A. Magel and D. H. Jundt and R. L. Byer. Quasi-phase-matched second harmonic generation: tuning and tolerances IEEE Journal of Quantum Electronics, 1992, 28

- [11] Kumar, Ramesh and Ghosh, Joyee. Joint spectral amplitude analysis of SPDC photon pairs in a multimode ppLN ridge waveguide , 2019,
- [12] Kato, Kiyoshi and Takaoka, Eiko. Sellmeier and Thermo-Optic Dispersion Formulas for KTP Applied optics, 2002, 41
- [13] Pomarico, Enrico and Sanguinetti, Bruno and Osorio, Clara and Herrmann, Harald and Thew, R.. Engineering integrated pure narrow-band photon sources New Journal of Physics - NEW J PHYS, 2011, 14
- [14] Slattery, Oliver and Ma, Lijun and Zong, Kevin and Tang, Xiao. Background and Review of Cavity-Enhanced Spontaneous Parametric Down-Conversion Journal of Research of the National Institute of Standards and Technology, 2019, 124
- [15] Scholz, Matthias and Koch, Lars and Benson, Oliver. Statistics of Narrow-Band Single Photons for Quantum Memories Generated by Ultrabright Cavity-Enhanced Parametric Down-Conversion Physical review letters, 2009, 102
- [16] Yulong Ge. Resonant frequency doubling study of 1560nm laser outer cavity 2015,
- [17] Nagourney, Warren. Quantum electronics for atomic physics 2020,
- [18] Beier, B. and Woll, D. and Scheidt, M. and Boller, K.-J and Wallenstein, R.. Second harmonic generation of the output of an AlGaAs diode oscillator amplifier system in critically phase matched LiB₃O₅ and β -BaB₂O₄ 1997, Applied Physics Letters - APPL PHYS LETT, 71
- [19] Boyd, G. and Kleinman, D.. Parametric Interaction of Focused Gaussian Light Beams 1968, Journal of Applied Physics, 39
- [20] Wen, Xin and Han, Yashuai and Wang, Junmin. Comparison and characterization of efficient frequency doubling at 397.5 nm with PPKTP, LBO and BiBO crystals 2016, Laser Physics, 26
- [21] Junmin Wang,Kong Zhang,Yulong Ge,Shanlong Guo. Efficient frequency doubler of 1560nm laser based on a semi-monolithic resonant cavity with a PPKTP crystal 2016, Optics Communications,

- [22] Targat, Rodolphe and Zondy, Jean-Jacques and Lemonde, Pierre. 75%-Efficiency blue generation from an intracavity PPKTP frequency doubler 2004, Optics Communications, 247
- [23] Ast, Stefan and Nia, Ramon and Schonbeck, Axel and Lastzka, Nico and Steinlechner, Jessica and Gehring, Tobias and Mehmet, Moritz and Steinlechner, Sebastian and Schnabel, Roman. High-efficiency frequency doubling of continuous-wave laser light 2011, Optics letters, 36
- [24] Rabeling, David and Chow, Jong and Gray, Malcolm and McClelland, David. Experimental demonstration of impedance match locking and control for coupled resonators 2010, Optics express, 18
- [25] Liu Tingting. Research on filters designed for atomic ensemble quantum memory 2013,
- [26] Polyakov, Sergey and Migdall, Alan and Fan, Jingyun and Bienfang, J. Single-Photon Generation and Detection 2013, ,
- [27] Boyd, Robert. Nonlinear optics 2013, ,
- [28] Xia, Haiyun and Shentu, Guoliang and Shangguan, Mingjia and Xia, Xiuxiu and Jia, Xiaodong and Wang, Chong and Zhang, Jun and Zhang, Qiang and Dou, Xiankang and Pan, Jianwei. Long-range micro-pulse aerosol lidar at 1.5 um with an up-conversion single-photon detector 2014, Optics Letters, 40
- [29] Ivan Divliansky. Volume Bragg Gratings: Fundamentals and Applications in Laser Beam Combining and Beam Phase Transformations 2017, ,
- [30] Fox, Mark and Javanainen, Juha. Quantum Optics: An Introduction 2007, Physics Today - PHYS TODAY, 60
- [31] Nielsen, Michael and Chuang, Isaac. Quantum Computation and Quantum Information 2004, Cambridge, UK: Cambridge University Press, 2010, 70
- [32] Nikogosyan, David. Nonlinear Optical Crystals: A Complete Survey 2005, 2005 XIII, 427 p. 0-387-22022-4. Berlin: Springer, 2005.,
- [33] Riedmatten, Hugues. Quantum Storage in Solid State Atomic Ensembles 2008,

- [34] Afzelius, Mikael and Simon, Christoph and Riedmatten, Hugues and Gisin, Nicolas. Multi-Mode Quantum Memory based on Atomic Frequency Combs 2008, Physical Review A 79
- [35] Hellstrom, Jonas and Jacobsson, Bjorn and Pasiskevicius, Valdas and Laurell, Fredrik. Finite Beams in Reflective Volume Bragg Gratings: Theory and Experiments 2008, Quantum Electronics, IEEE Journal of 44
- [36] Houe, M and Townsend, Peter. An introduction to methods of periodic poling for second-harmonic generation 1999, Journal of Physics D: Applied Physics 28
- [37] Couteau, Christophe. Spontaneous parametric down-conversion 2018,
- [38] Tjornhammar, Staffan. An introduction to methods of periodic poling for second-harmonic generation 2015, Properties of Volume Bragg Gratings and Nonlinear Crystals for Laser Engineering

致 谢

本论文的个人工作是在南京大学马小松教授的量子信息与量子光学实验室 Malab 完成的。我最需要感谢的是马小松教授对我的悉心指导与耐心教育，除了给了我走进量子光学学科的一把钥匙以外，也在生活上和为人处事两方面对我有谆谆教诲，对我在申请留学深造的路上也为我提供帮助。在 Malab 度过的近两年的时间，我从身边的学长学姐身上学习到了很多，收获了不少知识和研究习惯。我所在的量子存储小组由谢玉波博士领导，他能够明白我的弱势，但也能欣赏并且利用我的优势，在我迷茫的时间里帮助我重新找到科研工作的乐趣。我需要特别感谢组内的温文俊学长，他在最初的阶段以十分耐心与细心的态度引领我掌握了很多量子光学研究的重要理论和实验操作。此外，我还需要感谢 Malab 的姜明浩，郑晓冬，王凯，马文超等学长学姐对我的帮助。感谢已经毕业的学长徐波，赵通宇，王也，黎子溪，也感谢同为本科生的陶韬，张帆，王丹青，刘玉平等同学。感谢严红云老师和朱奇在器材和管理等方面的帮助。最后，感谢我的亲人长久以来对我的关心照顾和支持，在我失落的时候为我提供避风港，在我取得成就的时候与我共享喜悦。我会在所以帮助过我的人的期待下不断进取，在量子光学方向潜心研究。