

电磁推迟相互作用与非线性光学过程的时间反演对称性破坏以及对激光基础理论的影响

梅 晓 春

(福州原创物理研究所)

内容摘要 在文献(1)中我们已证明,考虑到辐射场的推迟效应后,光的受激辐射与吸收过程破坏时间反演对称性。本文在文献(1)的基础上继续讨论非线性光学中的时间反演对称性破坏问题。考虑到辐射场的推迟效应后,计算了光的三阶受激辐射与吸收过程的跃迁几率,给出光学非线性极化率的修正形式,证明一般非线性光学过程是破坏时间反演对称性的。文中还讨论了诸如光学倍频、和频、差频过程,光学双稳态过程,光学自聚焦和自发散过程,光回波现象,以及光的自变透明和自变吸收等非线性光学过程中大量存在的时间反演对称性破坏现象。最后讨论了光的受激辐射与吸收过程时间反演对称性破坏对激光基础理论的影响,更好地解释了无粒子数反转产生激光和无辐射跃迁等现象。由此我们就可以为激光和非线性光学建立更为合理的理论基础。

关键词 电磁推迟相互作用、量子力学、激光、非线性光学、时间反演对称性破坏

1. 双光子三阶过程及其时间反演

在文献(1)中我们已证明,考虑到辐射场的推迟效应后,光的受激辐射与吸收过程破坏时间反演对称性。本文继续讨论非线性光学中的时间反演对称性破坏问题,先讨论双光子吸收。按文献(1)中的(33)式,采用旋波近似,当 $2\omega = \omega_{ml}$ 时可得双光子受激吸收二阶过程跃迁几率振幅:

$$a_m^{(2)}(t)_{2\omega=\omega_{ml}} = \frac{e^{-i(2\omega-\omega_{ml})t} - 1}{\hbar(2\omega - \omega_{ml})} \left[\hat{F}_{2ml}^+ + \frac{2\hat{F}_{1ml}^+ (\hat{F}_{1ll}^+ - \hat{F}_{1mm}^+)}{\hbar\omega_{ml}} \right] \quad (1)$$

因此在双光子一阶和二阶受激吸收过程中,单位时间内总的跃迁几率为:

$$W_{2\omega=\omega_{ml}}^{(2)} = \frac{2\pi}{\hbar^2} \left\{ |\hat{F}_{2ml}^+|^2 + \frac{4}{\hbar^2\omega_{ml}^2} |\hat{F}_{1ml}^+|^2 |\hat{F}_{1ll}^+ - \hat{F}_{1mm}^+|^2 + \frac{4}{\hbar\omega_{ml}} \operatorname{Re} \left[(\hat{F}_{2ml}^+)^* \hat{F}_{1ml}^+ (\hat{F}_{1ll}^+ - \hat{F}_{1mm}^+) \right] \right\} \delta(2\omega - \omega_{ml}) \quad (2)$$

Re是取函数的实部。双光子二阶受激吸收过程跃迁几率振幅的时间反演为:

$$a_{Tm}^{(2)}(t)_{2\omega=\omega_{ml}} = - \frac{e^{-i(2\omega-\omega_{ml})t} - 1}{\hbar(2\omega - \omega_{ml})} \left[\hat{F}_{2ml}^{\prime+} + \frac{2\hat{F}_{1ml}^{\prime+} (\hat{F}_{1ll}^{\prime+} - \hat{F}_{1mm}^{\prime+})}{\hbar\omega_{ml}} \right] \quad (3)$$

本文发表于 Electromagnetic Radiation, p.19-52, Published by InTech, ISBN 978-953-51-0639-5.

由于 $|\hat{F}'_{2ml}|^2 = |\hat{F}_{2ml}|^2$, $|\hat{F}'_{1ml}|^2 = |\hat{F}_{1ml}|^2$, $\hat{F}'_{1ml} = (\hat{F}_{1ml}^+)^*$, $\hat{F}'_{1ml} = \hat{F}_{1ml}^*$, $\hat{F}'_{2ml} = (\hat{F}_{2ml}^+)^*$, $\hat{F}'_{2ml} = \hat{F}_{2ml}^*$, 双光子一阶和二阶受激辐射过程单位时间内总跃迁几率的时间反演为:

$$W_{T2\omega=\omega_{ml}}^{(2)} = \frac{2\pi}{\hbar^2} \left\{ |\hat{F}_{2ml}|^2 + \frac{4}{\hbar^2 \omega_{ml}^2} |\hat{F}_{1ml}|^2 |\hat{F}_{1ll} - \hat{F}_{1mm}|^2 \right. \\ \left. + \frac{4}{\hbar \omega_{ml}} \text{Re} \left[\hat{F}_{2ml}^* \hat{F}_{1ml} (\hat{F}_{1ll} - \hat{F}_{1mm}) \right] \right\} \delta(2\omega - \omega_{ml}) \quad (4)$$

按文献 (1) 中的 (18)、(19) 和 (32) 式, 可得:

$$(\hat{F}_{2ml}^+)^* \hat{F}_{1ml}^+ (\hat{F}_{1ll}^+ - \hat{F}_{1mm}^+) = \hat{F}_{2ml}^* \hat{F}_{1ml} (\hat{F}_{1ll} - \hat{F}_{1mm}) \quad (5)$$

以及 $|\hat{F}_{2ml}|^2 = |\hat{F}_{2ml}^+|^2$, $|\hat{F}_{1ml}|^2 = |\hat{F}_{1ml}^+|^2$, $|\hat{F}_{1ll}^+ - \hat{F}_{1mm}^+|^2 = |\hat{F}_{1ll} - \hat{F}_{1mm}|^2$, 从而有 $W_{T2\omega=\omega_{ml}}^{(2)} = W_{2\omega=\omega_{ml}}^{(2)}$ 。可见双光子一阶和二阶吸收过程不存在时间反演对称性破坏。时间反演对称性破坏需考虑三阶效应, 按文献 (1) 中的 (12) 式, 三阶吸收过程微扰过程的跃迁几率振幅为:

$$a_m^{(3)}(t) = \frac{1}{i\hbar} \sum_n \int_0^t \hat{H}'_{2mn} a_n^{(1)}(t) e^{i\omega_{mn}t} dt + \frac{1}{i\hbar} \sum_n \int_0^t \hat{H}'_{1mn} a_n^{(2)}(t) e^{i\omega_{mn}t} dt \quad (6)$$

将上式积分, 可得三阶过程单位时间的跃迁几率振幅, 结果见附录。对于 $2\omega = \omega_{ml}$ 的双光子吸收过程, 采用旋波近似, 单位时间的三阶几率振幅和总的跃迁几率分别为:

$$a_m^{(3)}(t)_{2\omega=\omega_{ml}} = \frac{\left[e^{-i(2\omega-\omega_{ml})t} - 1 \right]}{\hbar(2\omega-\omega_{ml})} \frac{4\hat{F}_{1ml}^+ (\hat{F}_{1ll}^+ - \hat{F}_{1mm}^+) (\hat{F}_{1ll} - \hat{F}_{1ml}^+)}{\hbar^2 \omega_{ml}^2} \quad (7)$$

$$W_{2\omega=\omega_{ml}}^{(3)} = \frac{2\pi}{\hbar^2} \left\{ |\hat{F}_{2ml}^+|^2 + \frac{4(1+4A_l^2)}{\hbar^2 \omega_{ml}^2} |\hat{F}_{1ml}^+|^2 |\hat{F}_{1ll}^+ - \hat{F}_{1mm}^+|^2 \right. \\ \left. + \frac{4}{\hbar \omega_{ml}} \text{Re} \left[(1+i2A_l) (\hat{F}_{2ml}^+)^* \hat{F}_{1ml}^+ (\hat{F}_{1ll}^+ - \hat{F}_{1mm}^+) \right] \right\} \delta(2\omega - \omega_{ml}) \quad (8)$$

其中 $iA_l = \hat{F}_{1ll} - \hat{F}_{1ml}^+$ 。在文献 (1) 的 (24) 式中将求和指标 $k \rightarrow j$, 可得到 (6) 式的时间反演:

$$a_{lm}^{(3)}(t) = a_l^{(3)}(-t) = -\frac{1}{i\hbar} \sum_j \int_0^t \hat{H}'_{2lj} a_j^{(1)}(-t) e^{i\omega_{jl}t} dt - \frac{1}{i\hbar} \sum_j \int_0^t \hat{H}'_{1lj} a_j^{(2)}(-t) e^{i\omega_{jl}t} dt \quad (9)$$

考虑到 $\hat{H}'_{2lj} = \hat{H}'_{2jl}^*$, $\hat{H}'_{1lj} = \hat{H}'_{1jl}^*$, $\hat{F}'_{1ml} = (\hat{F}_{1ml}^+)^*$, $\hat{F}'_{1ml} = \hat{F}_{1ml}^*$, $\hat{F}'_{2ml} = (\hat{F}_{2ml}^+)^*$, $\hat{F}'_{2ml} = \hat{F}_{2ml}^*$, 按同样的方法积分后采用旋波近似, 双光子吸收三阶过程的几率振幅和总跃迁几率的时间反演分别为:

$$a_{lm}^{(3)}(t)_{2\omega=\omega_{ml}} = \frac{\left[e^{-i(2\omega-\omega_{ml})t} - 1 \right]}{\hbar(2\omega-\omega_{ml})} \frac{4\hat{F}'_{1ml} (\hat{F}'_{1ll} - \hat{F}'_{1mm}) (\hat{F}'_{1mm} - \hat{F}'_{1ml})}{\hbar^2 \omega_{ml}^2}$$

$$= - \frac{\left[e^{-i(2\omega - \omega_{ml})t} - 1 \right]}{\hbar(2\omega - \omega_{ml})} \frac{4\hat{F}_{1ml}^* (\hat{F}_{1ll}^* - \hat{F}_{1mm}^*) (\hat{F}_{1mm} - \hat{F}_{1mm}^+)^*}{\hbar^2 \omega_{ml}^2} \quad (10)$$

$$W_{T2\omega=\omega_{ml}}^{(3)} = \frac{2\pi}{\hbar^2} \left\{ \left| \hat{F}_{2ml} \right|^2 + \frac{4(1+4A_m^2)}{\hbar^2 \omega_{ml}^2} \left| \hat{F}_{1ml} \right|^2 \left| \hat{F}_{1ll} - \hat{F}_{1mm} \right|^2 \right. \\ \left. + \frac{4}{\hbar \omega_{ml}} \operatorname{Re} \left[(1+i2A_m) \hat{F}_{2ml} \hat{F}_{1ml}^* (\hat{F}_{1ll}^* - \hat{F}_{1mm}^*) \right] \right\} \delta(2\omega - \omega_{ml}) \quad (11)$$

式中 $iA_m = \hat{F}_{1mm} - \hat{F}_{1mm}^+$ 。与(8)式比较, 由于 $A_l \neq A_m$, 时间反演对称性被破坏。但若不计辐射场的高阶多极矩效应, 三阶修正值和时间反演对称性破坏也不存在。

2 光学和频过程及其时间反演

光学和频过程对应于一个电子吸收两个频率分别为 ω_1 和 ω_2 的光子, 从低能 $|l\rangle$ 态跃迁到高能 $|m\rangle$ 态, 然后放出一个频率为 $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ 的光子, 从高能 $|m\rangle$ 态跃迁回低能 $|l\rangle$ 态。假设入射光中包含了频率为 ω_1 , ω_2 和 $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ 的平行光, 电场强度为 \vec{E}_0 , 可以将辐射场与电子的相互作用哈密顿量写为:

$$\hat{H}'_1 = \sum_{\lambda=1}^3 \left(\hat{F}_{1\lambda} e^{i\omega_\lambda t} + \hat{F}_{1\lambda}^+ e^{-i\omega_\lambda t} \right) \quad \hat{H}'_2 = \sum_{\lambda=1}^3 \left(\hat{F}_{2\lambda} e^{i\omega_\lambda t} + \hat{F}_{1\lambda}^+ e^{-i\omega_\lambda t} + \hat{F}_{0\lambda} \right) \quad (12)$$

其中:

$$\hat{F}_{1\lambda} = -\frac{q\vec{E}_0}{2\omega_\lambda \mu} \cdot e^{-i\vec{k}_\lambda \cdot \vec{R}} \hat{p} \quad \hat{F}_{1\lambda}^+ = -\frac{q\vec{E}_0}{2\omega_\lambda \mu} \cdot \hat{p}^+ e^{i\vec{k}_\lambda \cdot \vec{R}} \quad (13)$$

$$\hat{F}_{2\lambda} = \frac{q^2 E_0^2}{2\omega_\lambda^2 \mu} e^{-i2\vec{k}_\lambda \cdot \vec{R}} \quad \hat{F}_{2\lambda}^+ = \frac{q^2 E_0^2}{2\omega_\lambda^2 \mu} e^{i2\vec{k}_\lambda \cdot \vec{R}} \quad \hat{F}_{0\lambda} = \frac{q^2 E_0^2}{\omega_\lambda^2 \mu} \quad (14)$$

计算几率振幅实际上相当于在文献(1)的(33)式中和本文的三阶过程公式中令 $\omega \rightarrow \omega_\lambda$, 并对指标 λ 求和。对于电子吸收两个频率为 ω_1 和 ω_2 光子从低能 $|l\rangle$ 态跃迁到高能 $|m\rangle$ 态的过程, 几率跃迁相当于在双光子吸收公式(8)中令 $2\omega = \omega_1 + \omega_2 = \omega_{ml}$ 。当辐射场的推迟相互作用被考虑后, 电子放出一个频率为 ω_3 的光子从高能 $|m\rangle$ 态跃迁回低能 $|l\rangle$ 态时, 按文献(1)的(47)式, 跃迁几率为:

$$W_{\omega_3=\omega_{ml}}^{(2)} = \frac{2\pi}{\hbar^2} \left| \hat{F}_{1ml} \right|^2 \left\{ 1 + \frac{A_m'^2}{\hbar^2 \omega_{ml}^2} \right\} \delta(\omega_3 - \omega_{ml}) \quad (15)$$

因此对于一个电子吸收两个频率为 ω_1 和 ω_2 的光子, 从 $|l\rangle$ 态跃迁到 $|m\rangle$ 态, 然后放出一个频率为 $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ 的光子, 从 $|m\rangle$ 态跃迁回 $|l\rangle$ 态的和频过程, 考虑到三阶效应后, 总的跃迁几率为:

$$W_{\omega_1+\omega_2=\omega_{ml}}^{(2)} + W_{\omega_3=\omega_{ml}}^{(2)} = \frac{2\pi}{\hbar^2} \left\{ \left| \hat{F}_{2ml}^+ \right|^2 + \frac{4(1+4A_l^2)}{\hbar^2 \omega_{ml}^2} \left| \hat{F}_{1ml}^+ \right|^2 \left| \hat{F}_{1ll}^+ - \hat{F}_{1mm}^+ \right|^2 \right.$$

$$\begin{aligned}
& + \frac{4}{\hbar\omega_{ml}} \text{Re} \left[\left(1 + i2A_l \right) \left(\hat{F}_{2ml}^+ \right)^* \hat{F}_{1ml}^+ \left(\hat{F}_{1ll}^+ - \hat{F}_{1mm}^+ \right) \right] \delta(2\omega - \omega_{ml}) \\
& + \frac{2\pi}{\hbar^2} \left| \hat{F}_{1ml} \right|^2 \left\{ 1 + \frac{A_m'^2}{\hbar^2 \omega_{ml}^2} \right\} \delta(\omega_3 - \omega_{ml})
\end{aligned} \quad (16)$$

而按文献(1)中的(38)式, 电子吸收一个频率为 ω_3 的光子, 从 $|l\rangle$ 态跃迁到 $|m\rangle$ 态的跃迁几率为:

$$W_{T\omega_3=\omega_{ml}}^{(2)} = \frac{2\pi}{\hbar^2} \left| \hat{F}_{1ml} \right|^2 \left\{ 1 + \frac{A_l'^2}{\hbar^2 \omega_{ml}^2} \right\} \delta(\omega_3 - \omega_{ml}) \quad (17)$$

因此对于和频过程的时间反演, 即电子吸收一个频率为 ω_3 的光子从 $|l\rangle$ 态跃迁到 $|m\rangle$ 态, 然后放出两个频率为 ω_1 和 ω_2 的光子, 从 $|m\rangle$ 态跃迁回 $|l\rangle$ 态的三阶过程, 总的跃迁几率为:

$$\begin{aligned}
W_{T\omega_1+\omega_2=\omega_{ml}}^{(2)} + W_{T\omega_3=\omega_{ml}}^{(2)} & = \frac{2\pi}{\hbar^2} \left\{ \left| \hat{F}_{2ml} \right|^2 + \frac{4(1+4A_m'^2)}{\hbar^2 \omega_{ml}^2} \left| \hat{F}_{1ml} \right|^2 \left| \hat{F}_{1ll} - \hat{F}_{1mm} \right|^2 \right. \\
& + \frac{4}{\hbar\omega_{ml}} \text{Re} \left[\left(1 + i2A_m' \right) \hat{F}_{2ml} \hat{F}_{1ml}^* \left(\hat{F}_{1ll}^* - \hat{F}_{1mm}^* \right) \right] \delta(2\omega - \omega_{ml}) \\
& \left. + \frac{2\pi}{\hbar^2} \left| \hat{F}_{1ml} \right|^2 \left\{ 1 + \frac{A_l'^2}{\hbar^2 \omega_{ml}^2} \right\} \delta(\omega_3 - \omega_{ml}) \right\}
\end{aligned} \quad (18)$$

同样由于 $A_l \neq A_m'$, 和频过程也是破坏时间反演对称性的。

用同样的方法计算可知, 其他类似的非线性光学过程, 如倍频、差频和参量放大, 受激拉曼散射和受激布里渊散射等, 都是对时间反演不对称的。原因在于考虑到辐射场的推迟效应后, 光的高阶受激辐射与受激吸收过程本身对时间反演就是不对称的。

以上是从量子力学的角度来计算的, 但在大多数实际的非线性光学问题中, 我们是从直接经典电磁场方程出发来考虑问题的。为此需要讨论考虑到辐射场的推迟效应后, 非线性光学极化率的修正问题。由于现有的非线性光学理论没有考虑辐射场的推迟效应和高阶微扰过程, 仅考虑低阶偶极相互作用, 得到的非线性光学极化率是对时间反演保持不变的。由此认为非线性光学中不存在时间反演对称性破坏。但这显然是与实验事实不相符的。我们以下讨论考虑到辐射场推迟效应和高阶微扰过程后非线性光学极化率的修正, 以及非线性光学中实际上大量存在的时间反演对称性破坏现象。

3 非线性光学极化率及其时间反演

按文献(1)的(54)式, 令 $\bar{D}'_{ml} = \sqrt{1+\lambda_{ml}} \bar{D}_{ml}$ 代表考虑到辐射场推迟效应后, 修正的电子偶极矩, $\bar{D}'_{lm} = \sqrt{1+\lambda_{lm}} \bar{D}_{lm}$ 代表考虑修正值后, 修正的电子偶极矩的时间反演。我们一般有 $\lambda_{ml} \neq \lambda_{lm}$, $\bar{D}'_{ml} \neq \bar{D}'_{lm}$ 。因此只要在现有的非线性极化率 $\chi_{ij\dots k}^{(n)}$ 公式中令偶极矩 $\bar{D}_{ml} \rightarrow \bar{D}'_{ml}$, 就可以得到考虑辐射场推迟效应和高阶过程后非线性极化率的修正值。相应地令 $\bar{D}_{lm} \rightarrow \bar{D}'_{lm}$ 就可以得到非线性极化率的时间反演式 $\chi_{ij\dots k}^{(n)}$ 。显然考虑到辐射场的推迟效应和高阶微扰过程后, 非线性极化率不能对时间反演保持不变。如二阶过程的非线性极化率可以写为:

$$\chi_{ijk}^{(2)} = (-\omega_1 - \omega_2, \omega_1, \omega_2) = \frac{N}{4\varepsilon_0 \hbar^2} \sum_{m'} \sum_p \frac{(D'_i)_{\beta m'} (D'_j)_{n' n} (D'_k)_{n' \beta}}{(\omega_{n'\beta} + \omega_2)(\omega_{n\beta} + \omega_1 + \omega_2)} \quad (19)$$

其时间反演为

$$\chi_{\bar{i}\bar{j}\bar{k}}^{(2)} = (-\omega_1 - \omega_2, \omega_1, \omega_2) = \frac{N}{4\varepsilon_0 \hbar^2} \sum_{m'} \sum_p \frac{(D'_i)_{n' \beta} (D'_j)_{n n'} (D'_k)_{\beta n'}}{(\omega_{n'\beta} + \omega_2)(\omega_{n\beta} + \omega_1 + \omega_2)} \quad (20)$$

由于一般 $\bar{D}'_{m'l} \neq \bar{D}'_{lm}$ ，就有 $\chi_{ijk}^{(2)} \neq \chi_{\bar{i}\bar{j}\bar{k}}^{(2)}$ 。故一般有 $\chi_{ij..k}^{(n)} \neq \chi_{\bar{i}\bar{j}..k}^{(n)}$ ，电介质极化公式及其时间反演为：

$$\bar{P} = \varepsilon_0 (\chi_i^{(1)} E_i + \chi_{ij}^{(2)} E_i E_j + \chi_{ijk}^{(3)} E_i E_j E_k \dots) \quad (21)$$

$$\bar{P}_T = \varepsilon_0 (\chi_{\bar{i}}^{(1)} E_i + \chi_{\bar{i}\bar{j}}^{(2)} E_i E_j + \chi_{\bar{i}\bar{j}\bar{k}}^{(3)} E_i E_j E_k \dots) \quad (22)$$

因此电介质极化一般也是对时间反演不对称的，即 $\bar{P}_T \neq \bar{P}$ ，因此经典电场运动方程和它的时间反演：

$$\nabla^2 \bar{E} - \mu_0 \varepsilon_0 \frac{\partial^2 \bar{E}}{\partial t^2} = \mu_0 \frac{\partial^2 \bar{P}}{\partial t^2} \quad \nabla^2 \bar{E} - \mu_0 \varepsilon_0 \frac{\partial^2 \bar{E}}{\partial t^2} = \mu_0 \frac{\partial^2 \bar{P}_T}{\partial t^2} \quad (23)$$

一般也是不对称的。由于 (21) 和 (23) 式是我们计算光学非线性效应的基本方程，一般的非线性光学过程就是破坏时间反演对称性的。实际上我们不必做复杂的计算，通过对非线性光学现象本身进行分析，就可知非线性光学过程一般都是不可逆的。虽然过程不可逆与对过程时间反演不对称并不是完全相同的概念，但二者在本质上是一致的，以下对此进行一些初步的讨论。

4 一般非线性光学过程存在的时间反演不可逆现象

我们知道在线性光学中存在光路可逆性。光在均匀介质中的直线传播、反射、折射、偏振等，对过程都是可逆的。如图 5 所示的线性聚焦过程，一束普通的平行光穿过凸透镜 A 后聚焦于 O 点。在焦点 O 的右边对应的位置上放一个相同的凸透镜 B，则从焦点 O 发出的光通过 B 后又变成平行光。这是一个可逆的光学过程，光从 O → B 的过程可以看成光从 A → O 过程的逆过程（将 O → B 的过程翻转 180° 与 A → O 的过程重叠，可使光的传播方向反向）。又如我们可以用一个棱镜将一束白光分解成不同颜色的光谱，若将这些不同颜色的光按原路反射回棱镜，又可合成原来的白光。在非均匀介质中，如在光的双折射现象中，一束自然光经过某些晶体后形成两束在不同方向传播的偏振光。但若将这两束偏振光按原方向反射回晶体，又可以合成原来的自然光。这些可逆的光学过程对时间反演是对称的，但对于非线性光学而言，这种可逆性一般是不存在的，以下举例说明。

4.1 光学的倍频、和频、差频过程

如图 1 所示的光学倍频过程，将一束频率为 ω 的激光射入合适的双折射介质，使之满足相位匹配条件。在出射光中除了有频率为 ω 的透过光外，还会出现频率为 2ω 的倍频光。若将这两种不同频率的光按原路反射回原介质，如图 2 所示，除了有频率为 ω 和 2ω 的透过光外，受相位匹配条件的限制，还有两种可能。第一种是再次出现倍频过程，一部分频率为 ω 的光再合成现频率为 2ω 。第二种可能是会出现将频率为 2ω 的光分解成频率为 ω 的光的差频过程。因此出射光中除了频率为 ω 的光外还有频率为 2ω 的光，一般不可能全部变成频率为 ω 的光。因此系统不能复原，过程不可逆。其他形式的和频、差频和参量放大过程也一样，一般都是不可逆的。

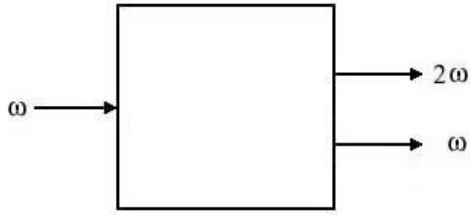


图 1 倍频过程

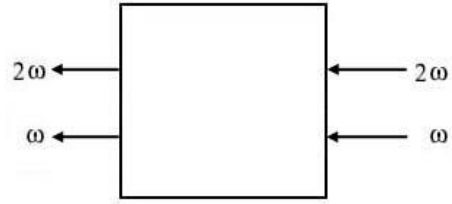


图 2 倍频过程的逆过程

4.2 光学双稳态过程⁽²⁾

实验上观察到大量的光学双稳态，如图 3 和 4 所示，其入射电场强度与出射电场强度形成回线，与铁电、铁磁体的极化磁化滞后回线完全类似。我们知道对铁电、铁磁体进行极化和磁化时，极化磁化场沿正负两个方向变化的极化和磁化曲线是不一样的，两条曲线形成所谓的电滞磁滞回路。极化磁化场沿负方向变化过程可以视为沿正方向变化过程的时间反演，因此铁电铁磁体的极化和磁化过程对时间反演是不对称的。事实上电滞和磁滞回路在形状上与热机循环过程的回路类似，二者在经历了一个循环后都产生热耗散，都是不可逆过程。由于光学双稳态过程存在入射电场强度与出射电场强度形成的回线，过程也是不可逆的，不同的只是光学双稳态过程一般不会产生大量的热耗散。

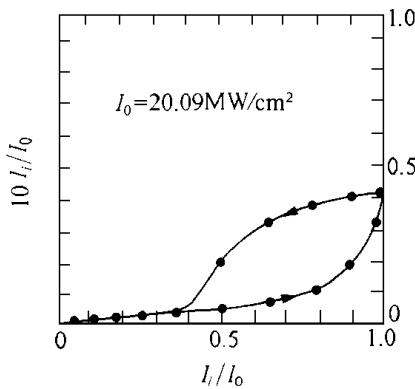


图 3 硝基苯的光学双稳态

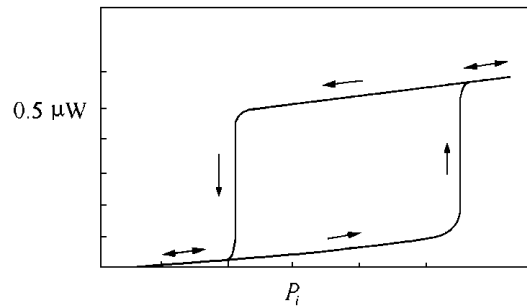


图 4 混合型双稳态

4.3 光学自聚焦和自发散过程⁽³⁾

以一束在横截面上强度分布不均匀的平行激光，如高斯分布的激光射向合适的介质，会引起折射率的非线性变化。结果相当于将介质变成一个凸透镜或凹透镜，使光束自动产生聚焦和发散现象。以稳态自聚焦过程为例，如图 6 所示，高斯激光射入介质后，光束聚焦于介质中的 O 点。入射的平行光最后变成一束很细的强聚焦光射出介质。为了说明自聚焦过程是不可逆的，可参见图 5 所示的普通光通过凸透镜产生的聚焦现象。在图 6 的自聚焦过程中，介质的 $A \rightarrow O$ 部分相当于图 5 中的凸透镜 A ，而介质的 $O \rightarrow B$ 部分则相当于于图 5 中凸透镜 B 。如果过程可逆，聚焦于焦点 O 的光将沿图中虚线所示的方式运动，射出介质后会重新变为原来的平行光。但事实上观察到的出射光却是变细了的聚焦光束，可见自聚焦过程是不可逆的。实际上自聚焦过程产生大量热，存在热耗散，过程显然是不可逆的。

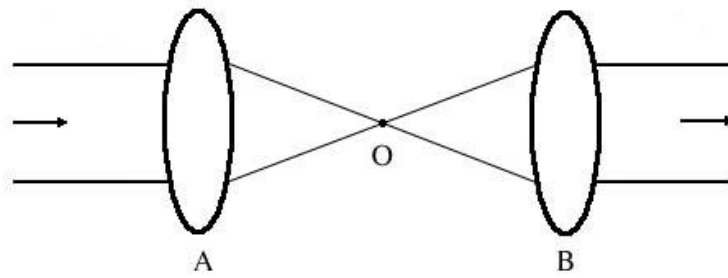


图 5 线性聚焦过程

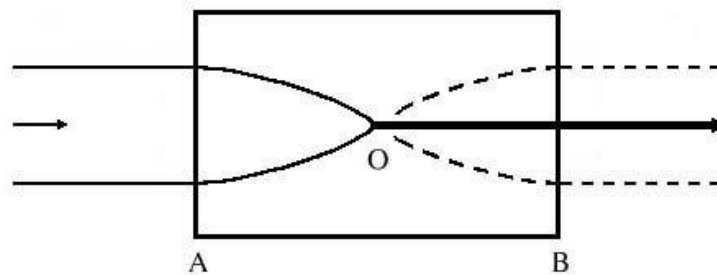


图 6 非线性自聚焦过程

4.4 双光子和多光子吸收过程⁽⁴⁾

对于双光子吸收，在激光的作用下介质原子中处于低能级的电子会同时吸收两个频率为 ω_1 和 ω_2 光子跃迁到高能级。但在此高能级上的电子跃迁回低能级时，一般仅会放出一个频率为 $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ 的光子，或放出两个频率为 $\omega'_1 \neq \omega_1$ ， $\omega'_2 \neq \omega_2$ 的光子，一般不会又重新放出频率为 ω_1 和 ω_2 光子。这种意义上，双光子吸收过程也是不可逆的。

4.5 光回波现象⁽⁵⁾

一定的温度和磁场条件下，将一束激光在通过光学调时器分成两束有时间差的光。射入合适的晶体后可以观察到三个光信号，最后一个是光回波信号，这是一种瞬态相干现象。但若将这三个输出的光信号再输回相同的系统，结果不可能还原成两个光信号。得到的可能得到三个信号（不产生新的回波）或三个以上信号（产生新的回波）。事实上还有电子自旋回波，铁磁体回波，等离子回波等现象，都是不可逆的。

4.6 光的自发辐射过程

我们知道对于光的发射，有自发发射与受激发射。但对于光的吸收，却只有受激发射，没有受激吸收。处于高能级的电子可以自发地放出一个光子跃迁回低能级，这是一个自动发生的过程。但处于低能级的电子向高能级的跃迁就不是一个可以自动发生的过程，因此光的发射与吸收过程本身就是时间反演的不对称性。这种对时间反演的不对称性是非常明显的，实际上很早就被人们注意到。

目前对时间反演对称的非线性光学理论实际上不能解释以上这些光学不可逆现象，我们需要一个更为合理的理论，来处理诸如激光和非线性光学这类存在非平衡和不可逆现象的过程。

6 对激光物理学基础理论的影响

以下讨论本文的修正结果对激光基础理论产生的影响，首先讨论二能级系统。由于考虑到高阶修正后 $B_{12} \neq B_{21}$ ，在无粒子数反转 $N_2 < N_1$ 的条件下，只要 B_{21} 比 B_{12} 大的足够多，也有可能使 $B_{21}N_2 > B_{12}N_1$ ，从而产生激光输出增益，即不必有粒子数反转也能产生激光。目前无粒子数反转产生激光已有大量的实验证据⁽⁶⁾，虽然产生的原因可能不一样，但按本文这是一个很平常的结果。实际上系统中各能级上的粒子数是一个无法从实验确定的量，至少在目前的实验技术水平上如此。实验上所能测量的是光子的数量，而光子数是用 $\rho B_{21}N_2$ ， $\rho B_{12}N_1$ 和 $A_{21}N_2$ 来计算的。可以说目前激光理论认为的，通过粒子数反转产生激光的许多情况中，可能也有一部分实际上并不存在粒子数反转。因此考虑到辐射场的高阶推迟效应后，应将产生光的受激放大的集居数条件改为 $B_{21}N_2 > B_{12}N_1$ ，而不是 $N_2 > N_1$ 。

其次，按目前的理论产生激光至少需要三个能级。对于二能级平衡系统，存在所谓的细致平衡 $B_{12}N_1\rho(\nu) = A_{21}N_2 + B_{21}N_2\rho(\nu)$ 。若 $B_{12} = B_{21}$ ， $A_{21} = k_{21}B_{21}$ ，就有：

$$\frac{N_2}{N_1} = \frac{\rho}{(\rho + \kappa_{21})} < 1 \quad (24)$$

即 $N_2 < N_1$ ，不出现粒子数反转，因此按现有理论也就不可能产生激光。若按本文修正结果，假定仍然存在关系 $A_{21} = k_{21}B_{21}$ ，达到平衡时就有：

$$\frac{N_2}{N_1} = \frac{\rho B_{12}}{(\rho + \kappa_{21})B_{21}} \quad (25)$$

由于 $B_{12} \neq B_{21}$ ，只要满足 $\rho B_{12} > (\rho + \kappa_{21})B_{21}$ ，就可以有 $N_2 > N_1$ ，使二能级系统也能出现粒子数反转。但此时却有 $B_{21}N_2 < B_{12}N_1$ ，也就是说对于二能级系统的稳定态，即使出现粒子数反转，也可能不产生激光。对于二能级系统的非稳定态，有以下两种情况：

$$\frac{dN_2}{dt} = B_{12}N_1\rho - A_{21}N_2 - B_{21}N_2\rho > 0 \quad (26)$$

$$\frac{dN_2}{dt} = B_{12}N_1\rho - A_{21}N_2 - B_{21}N_2\rho < 0 \quad (27)$$

当 $dN_2/dt > 0$ 时 $B_{12}N_1\rho > A_{21}N_2 + B_{21}N_2\rho$ ，故有 $B_{12}N_1\rho > B_{21}N_2\rho$ ，系统不可能产生激光。当 $dN_2/dt < 0$ 时 $B_{12}N_1\rho < A_{21}N_2 + B_{21}N_2\rho$ ，可能有 $B_{12}N_1\rho < B_{21}N_2\rho$ ，系统可能产生激光。但也可能有 $B_{12}N_1\rho > B_{21}N_2\rho$ ，系统不产生激光。

再来讨论修正结果对三能级系统的影响。三能级系统标准的受激辐射与吸收过程如图 7 所示，实际的产生激光过程如图 8 所示。以下分析二者的差别，从中可以显示本文修正的意义所在。按图 8，处于 E_1 基态的粒子被泵抽到 E_3 能级后，可以通过辐射跃迁也通过无辐射跃迁进入 E_2 能级，并在 E_1 和 E_2 能级间形成粒子数反转，产生频率为 ω_{21} 的激光。与图 7 相比较，图 8 的过程忽略了 E_1 和 E_3 能级间的自发辐射和受激辐射，以及粒子从 E_2 能级向 E_3 能级的跃迁。若按爱因斯坦理论，我们有 $B_{13} = B_{31}$ ，粒子从基态跃迁到 E_3 能态与粒子从 E_3 能态跃迁回基态的难易程度是一样的。基态粒子在单位时间内跃迁到 E_3 能级的粒子数为 $\rho(\nu_{13})B_{13}N_1$ ，同时就有 $\rho B_{31}N_3$ 个粒子通过受激辐射，以及 $A_{31}N_3 = \kappa_{31}B_{31}N_3$ 个粒子通过自发辐射，从 E_3 能级跃迁回基态。故大部分跃迁到 E_3 能级的粒子将在辐射出频率为 ω_{31} 的光子后直接跃迁回基态，其结果对 E_1 和 E_2 能级间形成粒子数反转可能有较大的

影响。其次若按 $B_{23} = B_{32}$ ， E_2 能级上的粒子又会有相当一部分通过受激吸收重新回到 E_3 能级，减少 E_1 和 E_2 能级间粒子数反转。

对这些问题，目前激光理论的速率方程采用较为模糊的处理方法，一方面不直接考虑粒子从 E_3 能级跃迁回基态的几率大小问题，仅用一个抽运速率 R 来代替 $\rho_{13}B_{31}N_1 - (\rho_{13} + \kappa_{31})B_{31}N_3$ 。另一方面，又用无辐射跃迁来代替 $(\rho_{23} + \kappa_{32})B_{32}N_3 - \rho_{23}B_{32}N_2$ ，这样就简化了实际过程的复杂性。

若按本文的修正，由于 $B_{ml} \neq B_{lm}$ ，就可以给出理想的三能级系统产生激光过程的更为简单合理的图象。可以认为由于 $B_{31} \ll B_{13}$ ，使得 $(\rho_{13} + \kappa_{31})B_{31}N_3 \ll \rho_{13}B_{31}N_1$ ，以至于大量粒子从基态跃迁到 E_3 能级后，只能有少数粒子通过自发辐射和受激辐射直接从 E_3 能级跃迁回基态，大部分 E_3 能级上的粒子都将跃迁到 E_2 能级。由于 $B_{23} \ll B_{32}$ ，使得 $\rho_{23}B_{23}N_2 \ll (\rho_{23} + \kappa_{32})B_{32}N_3$ ，以至于大部分从 E_3 能级跃迁到 E_2 能级上的粒子无法再跃迁回 E_3 能级。又由于 $B_{12} \ll B_{21}$ ，基态上的粒子难以通过受激吸收跃迁到 E_2 能级，却容易从 E_2 能级通过受激辐射跃迁回基态。因此对于高效的一个理想三能级激光系统，满足的条件应当是 $B_{21} \ll B_{12}$ ， $B_{31} \ll B_{13}$ ， $B_{23} \ll B_{32}$ 。可见只要认为 $B_{ml} \neq B_{lm}$ ，就可以使我们能更简单合理地解释激光的产生问题。

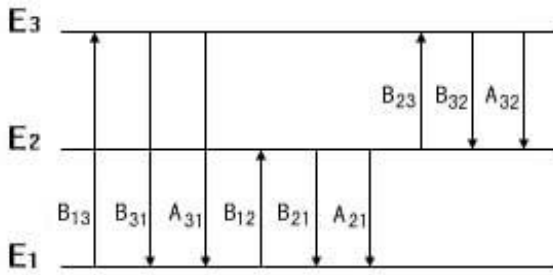


图 7 三能级过程的跃迁

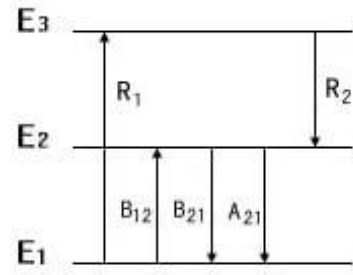


图 8 三能级跃迁过程的简化

用这种方式我们可以很好地解释光的自变透明和自变吸收现象⁽⁷⁾。实验表明在强场条件下，某些介质对光的吸收会出现饱和现象，使介质对某些频率的光变得透明。目前的理论对自透明的解释是，由于处于低能级的粒子数目 N_1 变小，而介质对光的吸收与低能级粒子的数目成正比，就使得吸收变少。同时处于高能级的粒子通过受激辐射又增大了透过光的量，从而出现饱和和吸收的自透明现象。这种解释的问题在于如果低能级上的粒子数 N_1 变小，高能级上的粒子数 N_2 变大，高能级上粒子的自发辐射量也将增大。达到稳定态后，单位时间内总有 $A_{21}N_2$ 个光子以自发辐射的方式放出。由于自发辐射在空间各方向上都会发生，就难以真正实现介质透明。而按本文修正理论，由于高阶修正系数 $\alpha_{ml} \sim E_0^2$ ，若 α_{ml} 是一个负数，在强场条件下对于某些介质可能有 $\alpha_{ml} \sim -1$ ，受激吸收系数会变得很小甚至 $B_{ml} \sim 0$ 。因此尽管大量粒子仍处于低能级，此时也会出现饱和和吸收，使介质变得透明。而按目前的理论， $B_{ml} \sim E_0^2$ ，电场强度变大时只会使吸收系数变大，不会出现受激吸收系数变小甚至 $B_{ml} \sim 0$ 的情况。与此相反，当高阶修正系数 α_{ml} 大于零时，在强场条件下 $\alpha_{ml} \sim E_0^2$ ，某些介质对光的吸收也会大大加强，出现自吸收现象。在目前的非线性光学中，自吸收现象是用双光子或多光子吸收，以及受激散射等来解释的。若按本文的修正，在强场条件下除了会产生双光子或多光子吸收等现象外，单光子吸收过程也会产生超常吸收。可见用修正理论来解释自变透明和自变吸收现象时，会显得更为自然和更为合理。

作者感谢福建师范大学物理与光电信息科技学院丘怡申教授和福州大学物理系郑仕标教授建设性的讨论。

参考文献

1. 梅晓春, 电磁推迟相互作用与光的高阶受激辐射和吸收过程的时间反演对称性破坏, 中国科学 G 辑, 37 卷, 第 5 期, 617~630 (2007).
2. S.L.McCall, H.M.Gibbs and T.N.C.Venkatesn, J. Opt. Soc. Am. 65, 1184 (1975). D.A.B.Miller, D.S.Chemla, T.C.Demen, C.Gossard, W.Wiegmann, T.H.Wood and C.A.Burrus, Appl. Phys.lette.45, 83 (1984). T.Kobayashi, N.C.Kothari and H.Uchiki, Phys.Rev. A 29, 2727 (1984). A.K.Kar, J.G.H. Mathew et al., Appl. Phys. Lett. 42, 334 (1983).
3. M.M.T.Loy and Y.R.Shen, Phys.Rev.Lett, 25, 1333 (1971); Appl.Phys.Lett. 19, 285 (1970). G.K.L.Wong and Y.R.Shen, Phys Rev. Lett 32, 527 (1973).
4. W.Kaiser and C.G.B.Garret, Phy.Rev.Lett.7, 229 (1961).
5. N.A.Kurnit, I.D.Abella and S.R.Hartman, Phys.Rev.Lett, 13, 567 (1964).
- 6.Y. Wu. et al. Phys Rev. Lett. 42, 1077 (1977). K.J. Boller et al, Phys Rev Lett., 66 2591 (1991). Jinyue Gao et al. Opt.Comm, 93, 323 (1992)
- 7.光学新世界, 雷仕湛, 科学普及出版社, 25 (1987).

附 录

光的三阶过程跃迁几率振幅为:

$$\begin{aligned}
 a_m^{(3)}(t) = & \frac{1}{\hbar^2} \sum_n \left\{ \hat{F}_{2mn} \hat{F}_{1nl} \left[\frac{e^{i(3\omega+\omega_{nl}+\omega_{mn})t} - 1}{3\omega + \omega_{nl} + \omega_{mn}} - \frac{e^{i(2\omega+\omega_{mn})t} - 1}{2\omega + \omega_{mn}} \right] \right. \\
 & - \frac{\hat{F}_{2mn} \hat{F}_{1nl}^+}{\omega - \omega_{nl}} \left[\frac{e^{i(\omega+\omega_{nl}+\omega_{mn})t} - 1}{\omega + \omega_{nl} + \omega_{mn}} - \frac{e^{i(2\omega+\omega_{mn})t} - 1}{2\omega + \omega_{mn}} \right] \\
 & - \frac{\hat{F}_{2mn}^+ \hat{F}_{1nl}}{\omega - \omega_{nl}} \left[\frac{e^{-i(\omega-\omega_{nl}-\omega_{mn})t} - 1}{\omega - \omega_{nl} - \omega_{mn}} - \frac{e^{-i(2\omega-\omega_{mn})t} - 1}{2\omega - \omega_{mn}} \right] \\
 & + \frac{\hat{F}_{2mn}^+ \hat{F}_{1nl}^+}{\omega - \omega_{nl}} \left[\frac{e^{-i(3\omega-\omega_{nl}-\omega_{mn})t} - 1}{3\omega - \omega_{nl} - \omega_{mn}} - \frac{e^{-i(2\omega-\omega_{mn})t} - 1}{2\omega - \omega_{mn}} \right] \\
 & + \frac{\hat{F}_{0mn} \hat{F}_{1nl}}{\omega + \omega_{nl}} \left[\frac{e^{i(\omega+\omega_{nl}+\omega_{mn})t} - 1}{\omega + \omega_{nl} + \omega_{mn}} - \frac{e^{i\omega_{mn}t} - 1}{\omega_{mn}} \right] \\
 & \left. + \frac{\hat{F}_{0mn} \hat{F}_{1nl}^+}{\omega - \omega_{nl}} \left[\frac{e^{-i(\omega-\omega_{nl}-\omega_{mn})t} - 1}{\omega - \omega_{nl} - \omega_{mn}} + \frac{e^{i\omega_{mn}t} - 1}{\omega_{mn}} \right] \right\}
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
& + \frac{\hat{F}_{1mn} \hat{F}_{2nl}}{2\omega + \omega_{nl}} \left[\frac{e^{i(3\omega + \omega_{nl} + \omega_{mn})t} - 1}{3\omega + \omega_{nl} + \omega_{mn}} - \frac{e^{i(\omega + \omega_{mn})t} - 1}{\omega + \omega_{mn}} \right] \\
& + \frac{\hat{F}_{1mn} \hat{F}_{2nl}^+}{2\omega - \omega_{nl}} \left[\frac{e^{-i(\omega - \omega_{nl} - \omega_{mn})t} - 1}{\omega - \omega_{nl} - \omega_{mn}} + \frac{e^{i(\omega + \omega_{mn})t} - 1}{\omega + \omega_{mn}} \right] \\
& + \frac{\hat{F}_{0nl} \hat{F}_{1mn}}{\omega_{nl}} \left[\frac{e^{i(\omega + \omega_{nl} + \omega_{mn})t} - 1}{\omega + \omega_{nl} + \omega_{mn}} - \frac{e^{i(\omega + \omega_{mn})t} - 1}{\omega + \omega_{mn}} \right] \\
& + \frac{\hat{F}_{1mn}^+ \hat{F}_{2nl}}{2\omega + \omega_{nl}} \left[\frac{e^{i(\omega + \omega_{nl} + \omega_{mn})t} - 1}{\omega + \omega_{nl} + \omega_{mn}} + \frac{e^{-i(\omega - \omega_{mn})t} - 1}{\omega - \omega_{mn}} \right] \\
& - \frac{\hat{F}_{1mn}^+ \hat{F}_{2nl}^+}{2\omega - \omega_{nl}} \left[\frac{e^{-i(3\omega - \omega_{nl} - \omega_{mn})t} - 1}{3\omega - \omega_{nl} - \omega_{mn}} - \frac{e^{-i(\omega - \omega_{mn})t} - 1}{\omega - \omega_{mn}} \right] \\
& - \frac{\hat{F}_{0nl} \hat{F}_{1mn}^+}{\omega_{nl}} \left[\frac{e^{-i(\omega - \omega_{nl} - \omega_{mn})t} - 1}{\omega - \omega_{nl} - \omega_{mn}} - \frac{e^{-i(\omega - \omega_{mn})t} - 1}{\omega - \omega_{mn}} \right] \\
& + \frac{1}{\hbar^3} \sum_{n,k} \left\{ - \frac{\hat{F}_{1mn} \hat{F}_{1nk} \hat{F}_{1kl}}{\omega + \omega_{kl}} \left[\frac{e^{i(3\omega + \omega_{nl} + \omega_{mn})t} - 1}{(2\omega + \omega_{kl} + \omega_{nk})(3\omega + \omega_{kl} + \omega_{nk} + \omega_{mn})} \right. \right. \\
& \left. \left. - \frac{e^{i(\omega + \omega_{mn})t} - 1}{(2\omega + \omega_{kl} + \omega_{nk})(\omega + \omega_{mn})} - \frac{e^{i(2\omega + \omega_{nk} + \omega_{mn})t} - 1}{(2\omega + \omega_{nk} + \omega_{mn})(\omega + \omega_{nk})} \right] \right. \\
& \left. + \frac{e^{i(\omega + \omega_{mn})t} - 1}{(\omega + \omega_{nk})(\omega + \omega_{mn})} \right] + \frac{\hat{F}_{1mn} \hat{F}_{1nk} \hat{F}_{1kl}^+}{\omega - \omega_{kl}} \left[\frac{e^{i(\omega + \omega_{kl} + \omega_{nk} + \omega_{mn})t} - 1}{(\omega_{kl} + \omega_{nk})(\omega + \omega_{kl} + \omega_{nk} + \omega_{mn})} \right. \\
& \left. - \frac{e^{i(\omega + \omega_{mn})t} - 1}{(\omega_{kl} + \omega_{nk})(\omega + \omega_{mn})} - \frac{e^{i(2\omega + \omega_{nk} + \omega_{mn})t} - 1}{(\omega + \omega_{nk})(2\omega + \omega_{nk} + \omega_{mn})} + \frac{e^{i(\omega + \omega_{mn})t} - 1}{(\omega + \omega_{nk})(\omega + \omega_{mn})} \right] \\
& - \frac{\hat{F}_{1mn} \hat{F}_{1nk}^+ \hat{F}_{1kl}^+}{\omega + \omega_{kl}} \left[\frac{e^{i(\omega + \omega_{kl} + \omega_{nk} + \omega_{mn})t} - 1}{(\omega_{kl} + \omega_{mn})(\omega + \omega_{kl} + \omega_{nk} + \omega_{mn})} \right. \\
& \left. - \frac{e^{i(\omega + \omega_{mn})t} - 1}{(\omega_{kl} + \omega_{nk})(\omega + \omega_{mn})} + \frac{e^{i(\omega_{nk} + \omega_{mn})t} - 1}{(\omega - \omega_{nk})(\omega_{nk} + \omega_{mn})} - \frac{e^{i(\omega + \omega_{mn})t} - 1}{(\omega - \omega_{nk})(\omega + \omega_{mn})} \right] \\
& + \frac{\hat{F}_{1mn} \hat{F}_{1nk}^+ \hat{F}_{1kl}^+}{\omega - \omega_{kl}} \left[\frac{e^{-i(\omega - \omega_{kl} - \omega_{nk} - \omega_{mn})t} - 1}{(2\omega - \omega_{kl} - \omega_{nk})(\omega - \omega_{kl} - \omega_{nk} - \omega_{mn})} \right. \\
& \left. + \frac{e^{i(\omega + \omega_{mn})t} - 1}{(2\omega - \omega_{kl} - \omega_{nk})(\omega + \omega_{mn})} + \frac{e^{i(\omega_{nk} + \omega_{mn})t} - 1}{(\omega - \omega_{nk})(\omega_{nk} + \omega_{mn})} - \frac{e^{i(\omega + \omega_{mn})t} - 1}{(\omega - \omega_{nk})(\omega + \omega_{mn})} \right] \\
& - \frac{\hat{F}_{1mn}^+ \hat{F}_{1nk} \hat{F}_{1kl}}{\omega + \omega_{kl}} \left[\frac{e^{i(\omega + \omega_{kl} + \omega_{nk} + \omega_{mn})t} - 1}{(\omega_{kl} + \omega_{nk})(\omega + \omega_{kl} + \omega_{nk} + \omega_{mn})} \right]
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
& + \left[\frac{e^{-i(\omega-\omega_{mn})t} - 1}{(2\omega + \omega_{kl} + \omega_{nk})(\omega - \omega_{mn})} - \frac{e^{i(\omega_{nk} + \omega_{mn})t} - 1}{(\omega + \omega_{nk})(\omega_{nk} + \omega_{mn})} - \frac{e^{-i(\omega-\omega_{mn})t} - 1}{(\omega + \omega_{nk})(\omega - \omega_{mn})} \right] \\
& - \frac{\hat{F}_{1mn}^+ \hat{F}_{1nk}^+ \hat{F}_{1kl}^+}{\omega - \omega_{kl}} \left[\frac{e^{i(\omega - \omega_{kl} - \omega_{nk} - \omega_{mn})t} - 1}{(\omega_{kl} + \omega_{nk})(\omega - \omega_{kl} - \omega_{nk} - \omega_{mn})} \right. \\
& \left. - \frac{e^{-i(\omega - \omega_{mn})t} - 1}{(\omega_{kl} + \omega_{nk})(\omega - \omega_{mn})} + \frac{e^{i(\omega_{nk} + \omega_{mn})t} - 1}{(\omega + \omega_{nk})(\omega_{nk} + \omega_{mn})} + \frac{e^{-i(\omega - \omega_{mn})t} - 1}{(\omega + \omega_{nk})(\omega - \omega_{mn})} \right] \\
& + \frac{\hat{F}_{1mn}^+ \hat{F}_{1nk}^+ \hat{F}_{1kl}^+}{\omega + \omega_{kl}} \left[\frac{e^{-i(\omega - \omega_{kl} - \omega_{nk} - \omega_{mn})t} - 1}{(\omega_{kl} + \omega_{nk})(\omega - \omega_{kl} - \omega_{nk} - \omega_{mn})} \right. \\
& \left. - \frac{e^{-i(\omega - \omega_{mn})t} - 1}{(\omega_{kl} + \omega_{nk})(\omega - \omega_{mn})} + \frac{e^{-i(2\omega - \omega_{nk} - \omega_{mn})t} - 1}{(\omega - \omega_{nk})(2\omega - \omega_{nk} - \omega_{mn})} - \frac{e^{-i(\omega - \omega_{mn})t} - 1}{(\omega - \omega_{nk})(\omega - \omega_{mn})} \right] \\
& + \frac{\hat{F}_{1mn}^+ \hat{F}_{1nk}^+ \hat{F}_{1kl}^+}{\omega - \omega_{kl}} \left[\frac{e^{-i(3\omega - \omega_{kl} - \omega_{nk} - \omega_{mn})t} - 1}{(2\omega - \omega_{kl} - \omega_{nk})(3\omega - \omega_{kl} - \omega_{nk} - \omega_{mn})} \right. \\
& \left. - \frac{e^{-i(\omega - \omega_{mn})t} - 1}{(2\omega - \omega_{kl} - \omega_{nk})(\omega - \omega_{mn})} - \frac{e^{-i(2\omega - \omega_{nk} - \omega_{mn})t} - 1}{(2\omega - \omega_{nk} - \omega_{mn})(\omega - \omega_{nk})} + \frac{e^{-i(\omega - \omega_{mn})t} - 1}{(\omega - \omega_{nk})(\omega - \omega_{mn})} \right]
\end{aligned}$$

光的三阶过程跃迁几率振幅的时间反演为：

$$\begin{aligned}
a_{lm}^{(3)}(t) &= \frac{1}{\hbar^2} \sum_n \left\{ \frac{\hat{F}'_{2nl} \hat{F}'_{1mn}}{\omega + \omega_{mn}} \left[\frac{e^{i(3\omega + \omega_{nl} + \omega_{mn})t} - 1}{3\omega + \omega_{nl} + \omega_{mn}} - \frac{e^{i(2\omega + \omega_{nl})t} - 1}{2\omega + \omega_{nl}} \right] \right. \\
& - \frac{\hat{F}'_{2nl} \hat{F}'_{1mn}}{\omega - \omega_{mn}} \left[\frac{e^{i(\omega + \omega_{nl} + \omega_{mn})t} - 1}{\omega + \omega_{nl} + \omega_{mn}} - \frac{e^{i(2\omega + \omega_{nl})t} - 1}{2\omega + \omega_{nl}} \right] \\
& - \frac{\hat{F}'_{2nl} \hat{F}'_{1mn}}{\omega + \omega_{mn}} \left[\frac{e^{-i(\omega - \omega_{nl} - \omega_{mn})t} - 1}{\omega - \omega_{nl} - \omega_{mn}} - \frac{e^{-i(2\omega - \omega_{nl})t} - 1}{2\omega - \omega_{nl}} \right] \\
& + \frac{\hat{F}'_{2nl} \hat{F}'_{1mn}}{\omega - \omega_{mn}} \left[\frac{e^{-i(3\omega - \omega_{nl} - \omega_{mn})t} - 1}{3\omega - \omega_{nl} - \omega_{mn}} - \frac{e^{-i(2\omega - \omega_{nl})t} - 1}{2\omega - \omega_{nl}} \right] \\
& + \frac{\hat{F}'_{0nl} \hat{F}'_{1mn}}{\omega + \omega_{mn}} \left[\frac{e^{i(\omega + \omega_{nl} + \omega_{mn})t} - 1}{\omega + \omega_{nl} + \omega_{mn}} - \frac{e^{i\omega_{nl}t} - 1}{\omega_{nl}} \right] \\
& - \frac{\hat{F}'_{0nl} \hat{F}'_{1mn}}{\omega - \omega_{mn}} \left[\frac{e^{-i(\omega - \omega_{nl} - \omega_{mn})t} - 1}{\omega - \omega_{nl} - \omega_{mn}} - \frac{e^{i\omega_{nl}t} - 1}{\omega_{nl}} \right] \\
& + \frac{\hat{F}'_{1nl} \hat{F}'_{2mn}}{2\omega + \omega_{mn}} \left[\frac{e^{i(3\omega + \omega_{nl} + \omega_{mn})t} - 1}{3\omega + \omega_{nl} + \omega_{mn}} - \frac{e^{i(\omega + \omega_{nl})t} - 1}{\omega + \omega_{nl}} \right]
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
& + \frac{\hat{F}'_{1nl} \hat{F}'_{2mn}}{2\omega - \omega_{mn}} \left[\frac{e^{-i(\omega - \omega_{nl} - \omega_{mn})t} - 1}{\omega - \omega_{nl} - \omega_{mn}} + \frac{e^{i(\omega + \omega_{nl})t} - 1}{\omega + \omega_{nl}} \right] \\
& + \frac{\hat{F}'_{0mn} \hat{F}'_{1nl}}{\omega_{mn}} \left[\frac{e^{i(\omega + \omega_{nl} + \omega_{mn})t} - 1}{\omega + \omega_{nl} + \omega_{mn}} - \frac{e^{i(\omega + \omega_{nl})t} - 1}{\omega + \omega_{nl}} \right] \\
& + \frac{\hat{F}'_{1nl} \hat{F}'_{2mn}}{2\omega + \omega_{mn}} \left[\frac{e^{i(\omega + \omega_{nl} + \omega_{mn})t} - 1}{\omega + \omega_{nl} + \omega_{mn}} + \frac{e^{-i(\omega - \omega_{nl})t} - 1}{\omega - \omega_{nl}} \right] \\
& + \frac{\hat{F}'_{1nl} \hat{F}'_{2mn}}{2\omega - \omega_{mn}} \left[\frac{e^{-i(3\omega - \omega_{nl} - \omega_{mn})t} - 1}{3\omega - \omega_{nl} - \omega_{mn}} - \frac{e^{-i(\omega - \omega_{nl})t} - 1}{\omega - \omega_{nl}} \right] \\
& - \frac{\hat{F}'_{0mn} \hat{F}'_{1nl}}{\omega_{mn}} \left[\frac{e^{-i(\omega - \omega_{nl} - \omega_{mn})t} - 1}{\omega - \omega_{nl} - \omega_{mn}} - \frac{e^{-i(\omega - \omega_{nl})t} - 1}{\omega - \omega_{nl}} \right] \Bigg\} \\
& + \frac{1}{\hbar^3} \sum_{n,k} \left\{ - \frac{\hat{F}'_{1nl} \hat{F}'_{1mk} \hat{F}'_{1kn}}{\omega + \omega_{mk}} \left[\frac{e^{i(3\omega + \omega_{mk} + \omega_{kn} + \omega_{nl})t} - 1}{(2\omega + \omega_{mk} + \omega_{kn})(3\omega + \omega_{mk} + \omega_{kn} + \omega_{nl})} \right. \right. \\
& - \frac{e^{i(\omega + \omega_{nl})t} - 1}{(2\omega + \omega_{mk} + \omega_{kn})(\omega + \omega_{nl})} - \frac{e^{i(2\omega + \omega_{kn} + \omega_{nl})t} - 1}{(\omega + \omega_{kn})(2\omega + \omega_{kn} + \omega_{nl})} \\
& \left. \left. + \frac{e^{i(\omega + \omega_{nl})t} - 1}{(\omega + \omega_{kn})(\omega + \omega_{nl})} \right] - \frac{(\hat{F}'_{1nl})^* \hat{F}'_{1mk} (\hat{F}'_{1kn})^*}{\omega - \omega_{mk}} \left[\frac{e^{i(\omega + \omega_{mk} + \omega_{kn} + \omega_{nl})t} - 1}{(\omega_{mk} + \omega_{kn})(\omega + \omega_{mk} + \omega_{kn} + \omega_{nl})} \right. \right. \\
& - \frac{e^{i(\omega + \omega_{nl})t} - 1}{(\omega_{mk} + \omega_{kn})(\omega + \omega_{nl})} - \frac{e^{i(2\omega + \omega_{kn} + \omega_{nl})t} - 1}{(\omega + \omega_{kn})(2\omega + \omega_{kn} + \omega_{nl})} + \frac{e^{i(\omega + \omega_{nl})t} - 1}{(\omega + \omega_{kn})(\omega + \omega_{nl})} \Bigg] \\
& + \frac{\hat{F}'_{1nl} \hat{F}'_{1mk} \hat{F}'_{1kn}}{\omega + \omega_{mk}} \left[\frac{e^{i(\omega + \omega_{mk} + \omega_{kn} + \omega_{nl})t} - 1}{(\omega_{mk} + \omega_{kn})(\omega + \omega_{mk} + \omega_{kn} + \omega_{nl})} \right. \\
& \left. - \frac{e^{i(\omega + \omega_{nl})t} - 1}{(\omega_{mk} + \omega_{kn})(\omega + \omega_{nl})} + \frac{e^{i(\omega_{kn} + \omega_{nl})t} - 1}{(\omega - \omega_{kn})(\omega_{kn} + \omega_{nl})} - \frac{e^{i(\omega + \omega_{nl})t} - 1}{(\omega - \omega_{kn})(\omega + \omega_{nl})} \right] \\
& - \frac{\hat{F}'_{1nl} \hat{F}'_{1mk} \hat{F}'_{1kn}}{\omega - \omega_{mk}} \left[\frac{e^{-i(\omega - \omega_{mk} - \omega_{kn} - \omega_{nl})t} - 1}{(2\omega - \omega_{mk} - \omega_{kn})(\omega - \omega_{mk} - \omega_{kn} - \omega_{nl})} \right. \\
& \left. + \frac{e^{i(\omega + \omega_{nl})t} - 1}{(2\omega - \omega_{mk} - \omega_{kn})(\omega + \omega_{nl})} + \frac{e^{i(\omega_{kn} + \omega_{nl})t} - 1}{(\omega - \omega_{kn})(\omega_{kn} + \omega_{nl})} - \frac{e^{i(\omega + \omega_{nl})t} - 1}{(\omega - \omega_{kn})(\omega + \omega_{nl})} \right] \\
& - \frac{\hat{F}'_{1nl} (\hat{F}'_{1mk})^* \hat{F}'_{1kn}}{\omega + \omega_{mk}} \left[\frac{e^{-i(\omega - \omega_{mk} - \omega_{kn} - \omega_{nl})t} - 1}{(\omega_{mk} + \omega_{kn})(\omega - \omega_{mk} - \omega_{kn} - \omega_{nl})} \right. \\
& \left. - \frac{e^{-i(\omega - \omega_{nl})t} - 1}{(\omega_{mk} + \omega_{kn})(\omega - \omega_{nl})} + \frac{e^{-i(2\omega - \omega_{kn} - \omega_{nl})t} - 1}{(\omega - \omega_{kn})(2\omega - \omega_{kn} - \omega_{nl})} - \frac{e^{-i(\omega - \omega_{nl})t} - 1}{(\omega - \omega_{kn})(\omega - \omega_{nl})} \right]
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
& + \frac{\hat{F}_{1nl}^{\prime+} (\hat{F}_{1mk}^{\prime+})^* (\hat{F}_{1kn}^{\prime+})^*}{\omega + \omega_{mk}} \left[\frac{e^{i(\omega + \omega_{mk} + \omega_{kn} + \omega_{nl})t} - 1}{(2\omega + \omega_{mk} + \omega_{kn})(\omega + \omega_{mk} + \omega_{kn} + \omega_{nl})} \right. \\
& + \left. \frac{e^{-i(\omega - \omega_{nl})t} - 1}{(2\omega + \omega_{mk} + \omega_{kn})(\omega - \omega_{nl})} - \frac{e^{i(\omega_{kn} + \omega_{nl})t} - 1}{(\omega + \omega_{kn})(\omega_{kn} + \omega_{nl})} - \frac{e^{-i(\omega - \omega_{nl})t} - 1}{(\omega + \omega_{kn})(\omega - \omega_{nl})} \right] \\
& + \frac{\hat{F}_{1nl}^{\prime+} \hat{F}_{1mk}^{\prime+} \hat{F}_{1kn}^{\prime+}}{\omega - \omega_{mk}} \left[\frac{e^{-i(\omega - \omega_{mk} - \omega_{kn} - \omega_{nl})t} - 1}{(\omega_{mk} + \omega_{kn})(\omega - \omega_{mk} - \omega_{kn} - \omega_{nl})} \right. \\
& - \left. \frac{e^{-i(\omega - \omega_{nl})t} - 1}{(\omega_{mk} + \omega_{kn})(\omega - \omega_{nl})} + \frac{e^{i(\omega_{kn} + \omega_{nl})t} - 1}{(\omega + \omega_{kn})(\omega_{kn} + \omega_{nl})} + \frac{e^{-i(\omega - \omega_{nl})t} - 1}{(\omega + \omega_{kn})(\omega - \omega_{nl})} \right] \\
& - \frac{\hat{F}_{1nl}^{\prime+} \hat{F}_{1mk}^{\prime+} \hat{F}_{1kn}^{\prime+}}{\omega - \omega_{mk}} \left[\frac{e^{-i(3\omega - \omega_{mk} - \omega_{kn} - \omega_{nl})t} - 1}{(2\omega - \omega_{mk} - \omega_{kn})(3\omega - \omega_{mk} - \omega_{kn} - \omega_{nl})} \right. \\
& - \left. \frac{e^{-i(\omega - \omega_{nl})t} - 1}{(2\omega - \omega_{mk} - \omega_{kn})(\omega - \omega_{nl})} - \frac{e^{-i(2\omega - \omega_{kn} - \omega_{nl})t} - 1}{(2\omega - \omega_{kn} - \omega_{nl})(\omega - \omega_{kn})} + \frac{e^{-i(\omega - \omega_{nl})t} - 1}{(\omega - \omega_{kn})(\omega - \omega_{nl})} \right]
\end{aligned}$$