arXiv:2611.32841v1 [physics.optics] 24 Nov 2026

通过瞬态分子调制实现近单位效率频率转换方案

阿图罗 MENA[1]，PAU ARCOS[1]，MARÍA SÁNCHEZ-HERNÁNDEZ[1]，AMAIA BERGANZA[2]，JOSEBA ZUBIA[1,3]，和 DAVID NOVOA[1,3,4*]

[1]巴斯克地区大学（巴斯克大学）通信工程系，西班牙毕尔巴鄂，*48013*[2]巴斯克地区大学（巴斯克大学）应用数学系，西班牙毕尔巴鄂，*48013*[3]巴斯克地区大学（巴斯克大学）*EHU*量子中心，西班牙毕尔巴鄂[4]*IKERBASQUE*，巴斯克科学基金会，西班牙毕尔巴鄂，*48009*[*]*david.novoa@ehu.eus*

编校于*2026*年*11*月*25*日

频率变换技术是连接工作于不同光谱区域的设备不可或缺的组成部分。具体而言，在不同波长之间转换弱信号是量子网络的一项基本要求，在此过程中，转换效率对于保持光的统计性质至关重要。在这方面，利用充气空芯光纤中的分子调制，是一种很有前景的方法，可实现经典光和量子光的高度可调线性频率转换。然而，近期关于这一主题的实验研究一直未能突破转换效率约70%的饱和水平。尽管这一效率已经很高，但仍可能妨碍量子性质在转换过程中的忠实传递。本文探讨了一种突破这一限制的途径，并指出了实现超过99%量子效率需要考虑的关键因素。这些结果有望为下一代量子网络开辟切实可行的基于光纤的量子频率变换方案。

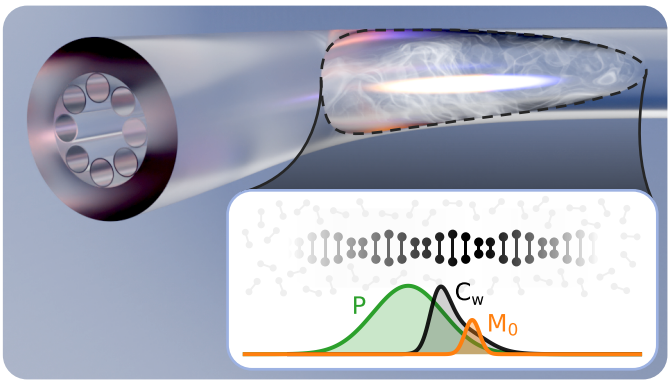


图1. 气体填充空芯光纤中的分子调制示意图。要高效转换 M_0 脉冲，与分子相干波（C_w）进行时间同步，比与泵浦（P）脉冲同步更有效。当泵浦持续时间长于 M_0 的持续时间时，这一条件可以放宽。

非线性频率转换是拓展光源光谱范围以及实现不同波长下运行的系统接口互联的关键手段 [1]。在现有的频率转换方法中，分子调制 [2]能够对相互作用场进行精细控制，从而实现任意超快光场的合成，例如 [3]。尽管早期关于分子调制的大部分研究是在气体或晶体等块体材料中开展的，但充气空芯光纤（HCFs）的出现 [4] 通过降低构建足够强分子相干所需的阈值，并使光场能够在宽带宽范围内以超低损耗传输 [5]，将这一技术提升到了新的高度。因此，充气空芯光纤中的分子调制 [6] 构成了一种高效且可调谐的方法 [7] ，可将弱信号下移至单光子水平 [8], 、转换微弱的超连续谱光束 [7], ，并进入深紫外光谱域 [9]。

分子调制依赖于预先通过受激拉曼散射（SRS）制备分子振动相干波 [3, 10, 11]。注入光纤的泵浦脉冲会从噪声中产生频率下移的斯托克斯脉冲，二者之间的拍频驱动行波相干波（见图 1）。随后，频率为$_0$ 的混频脉冲 $M^{\omega_{M_0}}$若满足相位匹配条件，便可与这道光学声子波发生散射，并通过拉曼频率 Ω 被选择性地移至反斯托克斯边带（M_1）或斯托克斯边带（M_{-1}），其频率为 $\omega_{M_{\pm1}} = \omega_{M_0} \pm \Omega$。由于分子相干已建立，这种转换没有阈值，因此可以作用于任意弱的场；这与传统 SRS 不同 [8, 9]。

在其诸多独特特征中，高转换效率在量子态下尤为重要 [12]。在量子描述中，分子调制充当频率分束器 [13, 14], ，因此，未在模式之间完成传输的光子可能会降低光的统计性质。因此，高内部效率是将这一平台用作量子频率转换器的先决条件。近期实验已展现出分子调制能够

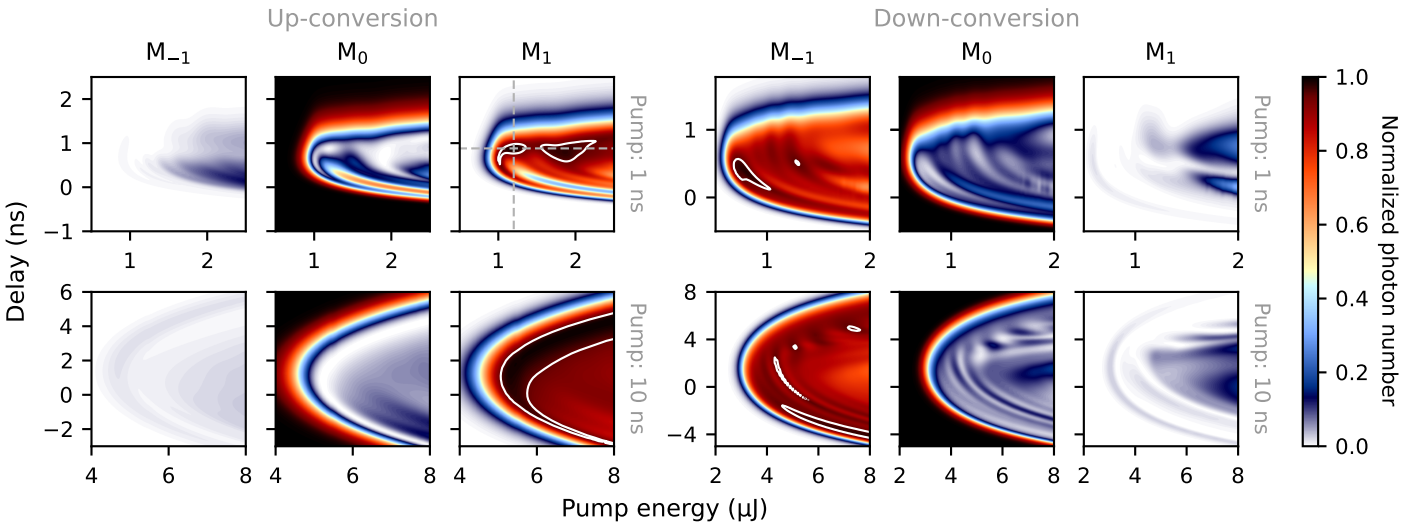


图2。 70厘米长充氢空芯光纤输出端的归一化光子数随脉冲延迟和泵浦能量的变化，纤芯直径为 ∼ 20.7 μm，壁厚为 ∼ 120 nm。光子数以输入端 M_0 光子布居为基准进行归一化。此处考虑两种泵浦持续时间：1 ns（上排）和10 ns（下排）。所有情况下，输入端 M_0 脉冲持续时间均为0.1 ns。白色等高线圈出光子数分布超过95%的区域；上转换图中使用1 ns泵浦的 M_1 子图里的虚线标示了图 3 中讨论的情况。

传输不同频率之间的双光子关联和光子数统计 [8, 15]。然而，在传播过程中始终观察到光子数布居数交换出现饱和，使得难以实现高于约 70% 的内部量子效率 [7–9, 15]。这种饱和现象的起因及其是否具有根本性，一直尚不明确。

在本文中，我们采用分子调制的半经典麦克斯韦-布洛赫形式体系，将饱和归因于相互作用强度；在相位匹配条件下，相互作用强度由脉冲包络与相干波之间的重叠积分决定。随着脉冲耗尽，这些重叠积分趋于零，粒子数交换也随之停滞。我们表明，实现高效转换的决定性条件并非使混频脉冲与泵浦同步，而是使其与真正驱动相互作用的分子相干波同步，如图 1 所示。在此基础上，我们提出一种简单方案，以克服饱和极限，使内部转换效率超过99%。

分子调制的半经典描述扩展了 SRS 的麦克斯韦-布洛赫形式 [6, 10, 16]，增加了用于描述转换中所涉及且低于拉曼阈值的 ω_k 频率的场包络方程。场包络 $E_k(z,\ \tau)$ 同时取决于沿光纤的传播距离 z 和相对时间 τ，后者是在与脉冲共同传播的参考系中测量的。在本研究中，我们关注单模线性同偏振场的振动受激拉曼散射的“瞬态”状态[6, 10] 。在此状态下，脉冲持续时间与分子退相干时间 T_2, 相当，但并不严格处于同一数量级。因此，仅考虑原始混频场的一个转换边带时，描述分子调制过程中振幅动态的方程为

$$\frac{\partial E_{m+1}}{\partial z} = -i\kappa_{2,m+1}\frac{\omega_{m+1}}{\omega_m} Q E_m e^{i(\beta_{m+1}-\beta_m)z}, \tag{1}$$

$$\frac{\partial E_m}{\partial z} = -i\kappa_{2,m+1} Q^* E_{m+1} e^{-i(\beta_{m+1}-\beta_m)z}. \tag{2}$$

这里，$\kappa_{2,m+1}$ 是耦合常数 [16]，而 β_k 表示频率为 ω_k时的模式传播常数。对于上转换，边带下标的形式为 $\{m、\ m+1\} \to \{M_0, M_1\}$；而对于下转换，$\{m、\ m+1\} \to \{M_{-1}、\ M_0\}$。

与此同时，振幅为 $Q(z,\ \tau)$的分子相干由泵浦边带驱动，而泵浦边带按照类似于方程（1）和方程（2）的耦合受激拉曼散射方程 [16] 演化。泵浦边带的场包络记为 $E_\ell(z,\ \tau)$，对应于频率 $\omega_\ell = \omega_P + \ell\Omega$，其中 ω_P 为泵浦频率。考虑所有这些因素，描述分子相干振幅$Q(z,\ \tau)$ 演化的方程为

$$\frac{\partial Q}{\partial \tau} = -\frac{Q}{T_2} - \frac{i}{4}\sum_\ell \kappa_{1,\ell} E_\ell E^*_{\ell-1} e^{-i(\beta_\ell - \beta_{\ell-1})z}, \tag{3}$$

其中，$\kappa_{1,\ell}$ 为耦合常数 [16]，并且我们假设大多数分子都保持在基态。在大多数情况下，驱动分子相干波的主要频带是泵浦（P）及其第一斯托克斯边带（S_1）。在满足能量守恒的前提下，对于给定的混频转换过程$m \leftrightarrow m+1$，可得到相位匹配条件 $\vartheta_{m+1,m} = (\beta_P - \beta_{S_1}) - (\beta_{m+1} - \beta_m) = 0$。在充气空芯光纤中，传播常数取决于光纤的横截面几何结构和填充气体的特性。因此，实际应用中，只需改变气体压力 [15]，即可在线选择频率上转换或下转换。

为了进一步了解实现近乎单位效率分子调制的要求，我们以一种特定的光纤几何结构为例进行探讨。具体而言，为避免失去一般性，我们考虑文献 [15],中所用的空芯光纤（HCF）：这是一种笼目型空芯光纤，其平面对平面纤芯直径为 ∼ 20.7 μm，壁厚为 ∼ 120nm。在这种设置下，光纤内充入加压氢气。该气体的振动 Q(1) 拉曼跃迁可实现 $\Omega \sim 2\pi \times 125$ THz 的频移。与文献 [15], 一样，泵浦波长为 ∼ 515 nm，混频波长为 ∼ 585 nm。因此，依据毛细管色散模型 [17], , 上转换和下转换的相位匹配压力分别为 ∼ 16.7 bar 和 ∼ 28.1 bar。不过，我们将不采用 ∼ 3.7 m 的光纤长度，而是

将证明，通过与相干波充分同步，即使光纤长度较短（例如 70 cm），转换效率也可超过 95%。

图 2 展示了不同泵浦半高全宽时长下的混频转换模拟，而在所有情况下，混频持续时间均设为 0.1 纳秒。模拟中，对于泵浦频率和混频频率，均考虑了两个斯托克斯频带和两个反斯托克斯频带。此外，输入脉冲被建模为高斯包络，并忽略了时间走离效应，因为在工作压力下，其值远低于 1 ps/m。由于混频转换动力学在强度方面呈线性 [9]，因此，对于这些示例，我们仅考虑泵浦频带中的导波损耗；如公式（3）所示，该损耗决定了相干波的演化图景。

在图2 中可以观察到，对于接近混频脉冲持续时间的泵浦持续时间，例如泵浦持续时间为 1 纳秒的情况，将混频脉冲延迟至泵浦脉冲的后沿（正延迟值）会使混频进入相干波占主导地位的时间区域。这会导致转换频带中的布居数增加，即使在零延迟时的某些泵浦能量下也不会观察到布居转移；在零延迟时，输入混频脉冲与输入泵浦在 $\tau = 0$处完全对齐。除此之外，对于泵浦持续时间为 1 纳秒的情况，与泵浦持续时间为 10 纳秒的情况相比，参数扫描的结构更加复杂，而后者的扫描结果更加平滑。这表明，尽管较短泵浦脉冲所需的能量较低，但转换过程对实验能量波动更加敏感，并且需要更精确的延迟调节。因此，在光纤纤芯中适当平衡脉冲持续时间与泵浦能量，对于扩大参数空间中的高效率区域至关重要。此外，在向光纤纤芯注入较低泵浦能量所对应的区域内运行也颇为值得关注，这有助于最大限度地减少转换过程中与非期望混频频带之间的串扰，而这种串扰会限制转移至目标边带的最大光子布居。此类串扰可能由例如较大的相干波振幅引发，因为其能够启动高退相干混频跃迁；也可能由除 P-S_1 边带对之外的其他泵浦边带对引起，后者会向相干波中引入额外分量。

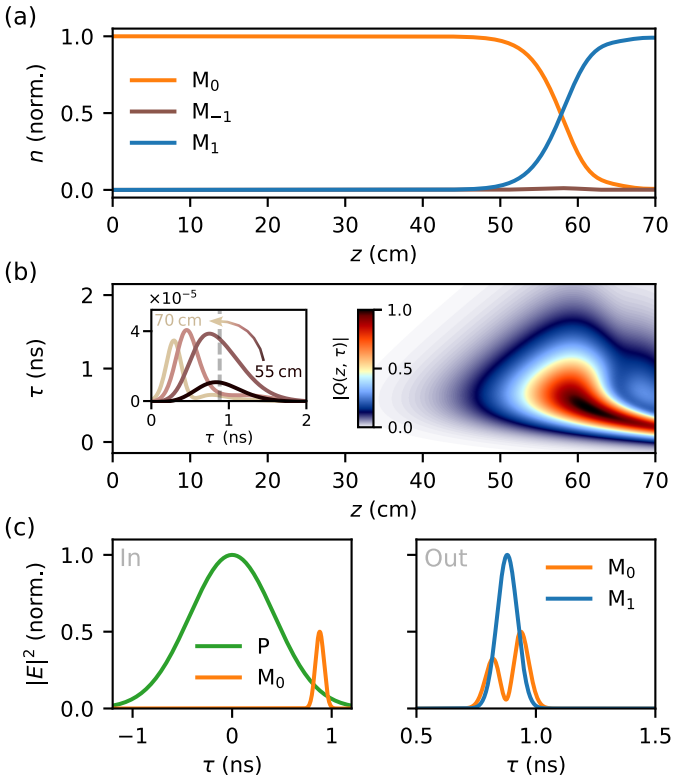


图 3. 频率上转换过程的动力学，量子效率为 99.1%，对应图 2 中采用持续 1 纳秒泵浦的情况。(a) 光子数布居随时间的演化，以输入端 M_0 光子数为基准进行归一化。(b) 沿光纤的分子相干波时空动力学。振幅以最大值为基准归一化；插图显示了 z 位置 四个截面处未归一化的包络，虚线表示输入端 M_0 脉冲的延迟。(c) 空芯光纤输入端和输出端的相关包络。各包络均以其自身最大值为基准归一化，而 M_0 包络还额外乘以 $\times 0.5$，以表明其强度低于相邻包络。

图中转换频带的最大布居数（图 2）为：对于 1 纳秒泵浦的情况，上转换在延迟 0.88 纳秒、泵浦能量 1.2 μJ 时达到 99.1%；而下转换在延迟 0.38 纳秒、泵浦能量 0.8 μJ 时达到 97.7%。对于持续 10 纳秒的泵浦，上转换在延迟 4.3 纳秒、泵浦能量 8 μJ 时达到最高值 99.2%；下转换在 −4延迟 .1 纳秒、泵浦能量 8 μJ 时达到 96.9%。

方程（1）和方程（2）表明，频带之间的振幅转移速率受乘积 $Q(z,\tau)E_m(z,\tau)$ 和 $Q^*(z,\tau)E_{m+1}(z,\tau)$ 调制，同时也受指数退相干项的影响；这些指数退相干项决定了我们先前讨论过的相位匹配条件。因此，为了在相位匹配条件下最大限度地实现混频频带之间的光子布居转移，需要沿 z 和 τ 调节这些乘积，例如，像我们在图2中看到的那样，使输入混频光束与分子相干波同步。考虑混频耗尽可忽略时麦克斯韦-布洛赫方程的解析解，也会得出这一条件；这类解与描述泵浦耗尽可忽略时斯托克斯产生的解类似 [16]，并会得到包络之间的重叠积分。

这也解释了即使在相位匹配时，实验中观察到的转换效率饱和现象的成因。在动力学过程中，例如，包络可能过早耗尽，或与相干波失去同步，从而使由重叠决定的相互作用强度降为零。然而，最大限度地增强整个光纤长度上的相互作用，也可能不利于输出效率。例如，如果光纤长度过长，或相干波过强，那么当混频频带中的光子布居全部转移至转换频带后，该频带中的光子可能开始转回混频频带，导致光子数分布发生振荡。因此，要减轻饱和效应并最大限度地提高输出转换效率，关键并非使混频脉冲与泵浦同步，也不是在相对时间 τ（此时相干振幅达到最大）与相干波同步，而是要使混频过程与驱动相互作用的分子相干波的整个演化过程适当同步。这体现了时域在这一现象学中的重要性，正如其他研究所指出的那样 [10, 11]。

我们可以通过考察图中效率为 99.1% 的情况来举例说明这一讨论。 2，其中混频延迟设定为

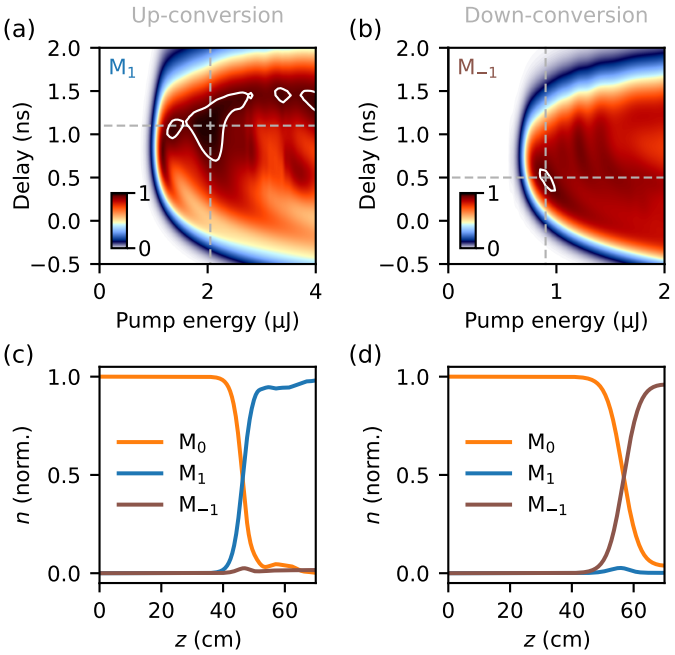


图4。采用参考文献中的参数优化分子调制 [15]，但仅使用70 cm长的空芯光纤。(a) 上转换后M_1 波段的光子数相对于输入端 M_0 值的归一化结果，作为泵浦能量和延迟的函数。(b) 与(a)相同，但显示下$_{-1}$ 转换期间M波段的结果。(c)和(d)分别显示(a)和(b)中效率最高情况下，归一化光子数动力学随z 的变化；这些情况以虚线标出。

0.88 纳秒。在这方面，图 3展示了光子数的动力学（图 3a）以及相干波振幅 $|Q(z,\ \tau)|$（图 3b），展示了光在光纤中传播时的情况。光纤输入端和输出端处相关的脉冲包络如图 3c 所示。在图 3b 中可以看到，相干波在相对脉冲时间 τ 处增强，此时混频脉冲位于该区域（见图 3c），从而启动转换，并使光子布居高效转移至上转换频带。随着布居转移达到最大值，相干波峰值恰当地移至混频包络的时间范围之外（见图 3b 的插图），使相互作用停止，并避免光子数布居中会降低输出效率的类拉比振荡。对这一动力学过程的深入理解可以应用于文献中现有的实验装置。例如，在参考文献 [15] 所述条件下，泵浦脉冲和混频脉冲的持续时间分别为 1.42 纳秒和 0.3 纳秒，图 4 中的模拟表明，仅使用 70 厘米光纤，就可以较为容易地获得分别为 98.1% 和 96% 的上转换和下转换内部量子效率。

总之，我们探究了充气空芯光纤中进行相位匹配分子调制时频率转换效率饱和的起因。在瞬态区间对半经典 Maxwell-Bloch 理论的分析 [16]指出，必须适当同步待转换的混频脉冲，使其与分子相干波的整体时空演化相匹配；分子相干波会强烈调制相互作用过程。通过合理选择泵浦能量、混频脉冲延迟以及泵浦与混频脉冲时长比，充分控制整体动力学过程，便可突破饱和极限，从而无缝实现近单位效率。我们的数值建模表明，最佳方法是选择持续时间长于混频脉冲的泵浦脉冲，使分子相干波包络的持续时间与混频脉冲相当。这还能够提高转换过程的稳定性，因为它扩大了参数空间中的高效率区域，降低了对泵浦能量稳定性和混频同步的要求；这对于补偿量子点发射器等光子源的抖动很有意义 [18]。未来，将这种高效分子调制方法与最新的超低损耗空芯光纤设计 [5, 19] 相结合，或许能够实现兼具高内部量子转导效率和高外部量子转导效率（即计入光学损耗）的实验装置设计。对于要求保持纠缠等量子性质的应用而言，这一点可能至关重要，因为光子频率子空间之间的纠缠 [20]，，其所采用的度量指标与光子布居 [13]密切相关。

经费支持。本研究获得以下资助：MICIU/AEI/10.13039/501100011033资助的PID2024-158310NB-I00、PID2024-155582OB-C31、CNS2025-166590和PRE2022-102843项目，以及欧洲区域发展基金、欧盟和“ESF+”的资助；巴斯克政府资助的IT1829-26项目、ELKARTEK SmartμS 2025/00058和Newhegaz KK 2025/00074项目；巴斯克大学的“Translight”计划；以及巴斯克政府教育部通过IKUR-IKA-23/03项目资助的IKUR战略。MS-H感谢西班牙科学、创新与大学部（MICIU）通过大学教师培养计划博士前奖学金FPU22/01451提供的支持。

利益披露。 作者声明不存在利益冲突。

数据可用性。 如有合理请求，可向作者索取本文所呈现结果的相关数据。

参考文献

1. B.Han, Y. Tao, W. Deng, 等, 《先进光子学研究》**6**, 2500012 (2025年). 2. S. E. Harris and A. V. Sokolov, 《物理评论快报》**81**, 2894 (1998年). 3. A. Nazarkin, G. Korn, M. Wittmann, and T. Elsaesser, 《物理评论快报》**83**, 2560 (1999年). 4. F. Benabid, J. Knight, G. Antonopoulos, and P. St.J. Russell, 《科学》**298**, 399 (2002年). 5. M. Petrovich, E. Numkam Fokoua, Y. Chen, 等, 《自然·光子学》 **19**, 1203 (2025年). 6. P. Arcos, A. Mena, M. Sánchez-Hernández, 等, 《欧洲物理快报》**147**, 45001 (2024年). 7. S. Bauerschmidt, D. Novoa, A. Abdolvand, and P. S. J. Russell, 《Optica》**2**, 536 (2015年). 8. R. Tyumenev, J. Hammer, N. Y. Joly, 等, 《科学》 **376**, 621 (2022年). 9. M. K. Mridha, D. Novoa, P. Hosseini, and P. S. Russell, 《Optica》 **6**, 731 (2019年). 10. Y.-H. Chen and F. Wise, 《APL光子学》 **9**, 030902 (2024年). 11. Y.-H. Chen, W. Wang, S. Hou, 等, 《Optica》**13**, 2217 (2026年). 12. C.-H. Wang, F. Li, and L. Jiang, 《自然·通讯》 **13**, 6698 (2022年). 13. T. Gonzalez-Raya, A. Mena, M. Lazo, 等, 《APL光子学》**10** (2025年). 14. J. Wang, A. V. Sokolov, and G. S. Agarwal, 《物理评论A辑》 **108**, 063706 (2023年). 15. A. Mena, P. Arcos, M. Sánchez-Hernández, 等, arXiv:2610.19964 (2026年). 16. M. Raymer and I. Walmsley, 《光学进展》 **28**, 181 (1990年). 17. M. A. Finger, N. Y. Joly, T. Weiss, and P. S. J. Russell, 《光学快报》**39**, 821 (2014年). 18. S. Buckley, K. Rivoire, and J. Vu˘ckovi´c, 《物理学进展报告》**75**, 126503 (2012年). 19. M. Sabbah, R. Mears, K. Harrington, 等, 《物理学杂志：光子学》**7**, 025019 (2025年). 20. J. Knörzer, X. Liu, B. F. Schiffer, and J. Tura, 《物理学进展报告》**89**, 074401 (2026年).