

第四章 非线性光学效应

自从 1961 年 Franken 等人在石英晶体中观察到倍频效应之后,各种非线性光学效应相继被发现。例如, 62 年 Franken 等人 (PRL 8(162) 18) 又利用两个不同工作温度的激光器发出相差 1nm 的光波在 TGS (硫酸三甘氨酸) 晶体中观测到一条和频的谱线。65 年 Giordmaine 和 Miller(PRL 14(1965)973) 在晶体中实现了光学参量振荡器。这些非线性光学效应都是典型的二阶非线性光学过程, 它们都涉及三波相互作用。

这些早期发现的最低阶非线性光学效应已经得到了深入的研究, 并已在科技实践中得到应用。二次谐波的产生已是最成熟的非线性光学技术, 其转换效率高达 80%。

三阶及更高阶非线性光学效应, 包括四波混频、自聚焦、高次谐波等也随着非线性光学研究的深入, 得到了巨大的进展, 并逐渐看到实用的前景。

所有介质都可以表现出非线性效应, 材料不同效应的大小也不同。一般情况下, 在介质中观察到非线性光学现象, 所需的电场场强大约为 1KV/cm, 对应的光强约为 2.5KW/cm²。这是通常光源无法达到的强度, 需要能量集中的激光。

非线性光学过程包含两个部分: 一是强光导致的介质非线性响应, 由介质性质方程描述; 二是介质对光的非线性调制, 由波动方程描述。

4.1 光在非线性介质中的传播

4.1.1 非线性光学过程的描述

光与介质相互作用的非线性光学过程的描述仍然是从由 Maxwell 方程导出的波动方程出发, 引入非线性极化强度 P_N

$$D = \epsilon_0 E + P^{(1)} + P_N$$

P_N 已不再是入射光场场强 E 的线性函数, 而含有 E 的非线性项。在很多情况下, 可描述成幂级数:

$$P_N = P^{(2)} + P^{(3)} + \dots$$

对应于 $P^{(1)} = \epsilon_0 \chi^{(1)} \cdot E$ (线性效应)

$$P^{(2)} = \epsilon_0 \chi^{(2)} : EE \quad (\text{二阶非线性效应})$$

$$P^{(3)} = \epsilon_0 \chi^{(3)} : EEE \quad (\text{三阶非线性效应})$$

$\chi^{(1)}$ —— 线性极化率, 二阶张量, 9 个元素

$\chi^{(2)}$ —— 二阶非线性极化率, 三阶张量, 27 个元素

$\chi^{(3)}$ —— 三阶非线性极化率, 四阶张量, 81 个元素

非线性极化率是由介质本身特性所决定的。n 阶非线性极化率是 n+1 秩张量, 有 3ⁿ⁺¹ 个张量元。这样多的张量元给实际研究将带来困难, 幸运的是张量元的结构对称性 (晶体而言)、置换特性等性质将使特定的介质所有的非零张量元个数大大减少。

4.1.2 非线性极化率的求解

在外场的作用下, 介质体系内部电荷的移动产生相应的电极化强度。对于经典的处理, 我们假定介质的极化主要是由电子的运动引起的, 求解电子移动所产生的极化强度, 即得介质的电极化强度。介质中的电子一般束缚于带有电子的原子实或分子基团, 受到库仑力的作用, 可用一个势场表示, 电子在这个势场中运动。图 4.1 给出了电子的一维势场, 电子的平衡位置在 $r = 0$ 处, $V(r)$ 是电子的势函数。

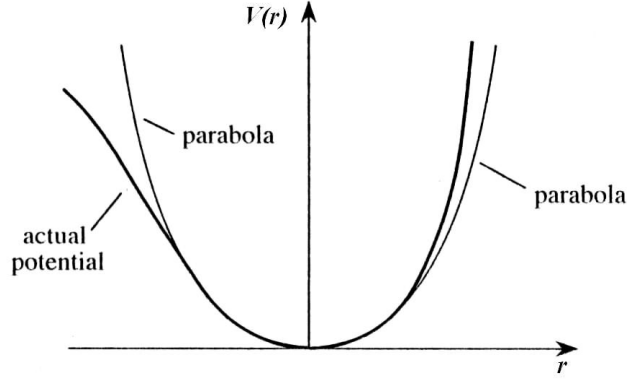


图 4.1 非中心对称介质的势能函数

第二章中我们利用简谐振子模型求出了线性极化率，并讨论了它与折射率和吸收的关系。从上图可以看出，当光场比较强，电子的移动距离比较大，简谐振子近似已不再适用，非线性项变得不可忽略。势函数可以展开为电子离开平衡位置的距离 r 的幂级数，取到三次方项

$$V(r) = \frac{1}{2}kr^2 + \frac{1}{3}D_1r^3$$

其中 k 和 D_1 分别是简谐势能和简谐势能项的系数。电子所受到的作用力为

$$F(r) = -\frac{\partial V(r)}{\partial r} = -kr - D_1r^2$$

这里考虑单一频率光场的情况，设频率为 ω 的光电场表示式为

$$E = E(\omega)e^{-i\omega t} + E^*(\omega)e^{i\omega t}$$

电子在光场作用下的运动方程表示

$$\ddot{r} + \gamma\dot{r} + \omega_0^2r + Dr^2 = -\frac{e}{m}E$$

其中 $\omega_0 = \sqrt{k/m}$ 是谐振运动的频率， $D = D_1/m$ ， m 是电子质量。如果考虑到更高阶非简谐力，方程左面还会出现 r^3, r^4, \dots 项。上面的方程直接求解比较困难，考虑到非简谐项比较小，可以根据微扰理论求解。将 r 像 $P = P^{(1)} + P^{(2)} + P^{(3)} + \dots$ 那样表示成电场幂级数有关的形式：

$$r = \sum_{k=1}^{\infty} r_k$$

其中 r_1 对应于线性项、 r_2 对应于二阶非线性项等。代入运动方程后，得到一系列 r_k 所满足的方程。在每一个方程中所包含的项，对电场来说都具有相同的级次。两个最低级次的方程为

$$\frac{d^2r_1}{dt^2} + \gamma\frac{dr_1}{dt} + \omega_0^2r_1 = -\frac{e}{m}E$$

$$\frac{d^2r_2}{dt^2} + \gamma\frac{dr_2}{dt} + \omega_0^2r_2 = -Dr_1^2$$

关于 r_1 的线性微分方程前面已经给出了解，代入到关于 r_2 的方程中就可以求出 r_2 的解。设

$$F(\omega) = \frac{1}{\omega_0^2 - \omega^2 - i\gamma\omega}$$

则运动方程得

$$r_1(t) = -\frac{e}{m} E(\omega) F(\omega) e^{-i\omega t} + c.c.$$

$$r_2 = -\frac{De^2}{m^2} E^2(\omega) F(2\omega) F(\omega) F(\omega) e^{-i2\omega t} - \frac{De^2}{m^2} E(\omega) E^*(\omega) F(0) F(\omega) F(-\omega) + c.c.$$

将极化强度 \mathbf{P} 写成如下级数形式：

$$P(t) = \sum_{k=1}^{\infty} P^{(k)}(t)$$

式中

$$P^{(k)}(t) = -Ne r_k(t)$$

是第 k 阶极化强度，则一阶和二阶极化强度分别为

$$P^{(1)}(t) = \frac{Ne^2}{m} E(\omega) F(\omega) e^{-i\omega t} + c.c.$$

$$P^{(2)} = \frac{DNe^3}{m^2} E^2(\omega) F(2\omega) F(\omega) F(\omega) e^{-i2\omega t} + \frac{DNe^3}{m^2} E(\omega) E^*(\omega) F(0) F(\omega) F(-\omega) + c.c.$$

按照极化强度和电场的关系，可将上面两式写成

$$P^{(1)}(t) = \varepsilon_0 \chi^{(1)}(-\omega, \omega) E(\omega) e^{-i\omega t} + c.c.$$

$$P^{(2)}(t) = \varepsilon_0 \chi^{(2)}(-2\omega, \omega, \omega) E^2(\omega) e^{-i2\omega t} + \varepsilon_0 \chi^{(2)}(0, \omega, -\omega) E(\omega) E(-\omega) + c.c.$$

极化率括号中第一个频率因子是产生极化强度的频率负值，后面的代表外加光场的频率值。比较上面得几个式子得

$$\chi^{(1)}(-\omega, \omega) = \frac{Ne^2}{\varepsilon_0 m} F(\omega)$$

$$\chi^{(2)}(-2\omega, \omega, \omega) = \frac{DNe^3}{\varepsilon_0 m^2} F(2\omega) F(\omega) F(\omega)$$

$$\chi^{(2)}(0, \omega, -\omega) = \frac{DNe^3}{\varepsilon_0 m^2} F(0) F(\omega) F(-\omega)$$

上面两个表达式是一般形式

$$\chi^{(2)}(-\omega_1 - \omega_2, \omega_1, \omega_2) = \frac{DNe^3}{\varepsilon_0 m^2} F(\omega_1 + \omega_2) F(\omega_1) F(\omega_2) \quad (b)$$

的特殊情况。将极化强度可以写成分量表达式，如：

$$P_i^{(2)}(t) = \varepsilon_0 \sum_{\substack{m,n \\ j,k}} \chi_{ijk}^{(2)}(-\omega_m - \omega_n, \omega_m, \omega_n) E_j(\omega_m) E_k(\omega_n) e^{-i(\omega_m + \omega_n)t}$$

其中 $i, j, k = x, y, z$ 。对频率的求和代表对组成光场的所有频率成分求和。

利用上述方法可以求出高阶非线性极化率。

4.1.3 非线性极化率的对称性

(1) 真实性条件

在非线性光学的表达式中，光电场和极化强度通常采用复数表示。对于实光电场 $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$ ，其表达式为

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{E}_0(\mathbf{r}) \cos(\omega t + \varphi)$$

或

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{E}(\omega) e^{-i\omega t} + \mathbf{E}^*(\omega) e^{i\omega t}$$

式中 $\mathbf{E}(\omega)$ 为频域复振幅，且有

$$\mathbf{E}(\omega) = \frac{1}{2} \mathbf{E}_0(\mathbf{r}) e^{-i\varphi(\mathbf{r})}$$

$E_0(\mathbf{r})$ 是光电场实振幅的大小。对于极化强度其表达式有

$$\mathbf{P}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{P}(\omega) e^{-i\omega t} + \mathbf{P}^*(\omega) e^{i\omega t}$$

式中 $\mathbf{P}(\omega)$ 为频域复振幅。

考虑到电场强度 $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$ 和极化强度 $\mathbf{P}(\mathbf{r}, t)$ 的真实性，应有

$$\mathbf{E}^*(\omega) = \mathbf{E}(-\omega)$$

$$\mathbf{P}^*(\omega) = \mathbf{P}(-\omega)$$

频域内线性极化强度和电场强度的关系为

$$\mathbf{P}^{(1)}(\omega) = \varepsilon_0 \chi^{(1)}(\omega) \cdot \mathbf{E}(\omega)$$

于是

$$[\chi^{(1)}(\omega)]^* = \chi^{(1)}(-\omega)$$

同理可知由两个频率的光场参与的二阶非线性过程和三个频率的光场参与的三阶非线性过程中的极化率有下列关系

$$[\chi^{(2)}(\omega_1, \omega_2)]^* = \chi^{(2)}(-\omega_1, -\omega_2)$$

$$[\chi^{(3)}(\omega_1, \omega_2, \omega_3)]^* = \chi^{(3)}(-\omega_1, -\omega_2, -\omega_3)$$

(2) 本征置换对称性

当两个频率分别为 ω_1 和 ω_2 的光场在介质中产生频率为 $(\omega_1 + \omega_2)$ 的极化时，两个光场的位置是完全等同的，在极化率表达式中也应处于完全对称的地位，即

$$\chi_{ijk}^{(2)}(-\omega_1 - \omega_2, \omega_1, \omega_2) = \chi_{ikj}^{(2)}(-\omega_1 - \omega_2, \omega_2, \omega_1)$$

上式是非线性极化率的本征置换对称性。高阶极化率也有同样的对称性。

(3) 全对称性

写出 $F(\omega)$ 的实部和虚部：

$$F(\omega) = \frac{\omega_0^2 - \omega^2}{(\omega_0^2 - \omega^2)^2 + \gamma^2 \omega^2} + i \frac{\gamma \omega}{(\omega_0^2 - \omega^2)^2 + \gamma^2 \omega^2}$$

虚部是由介质的吸收引起的，对于实用的混频介质，各个参与混频的光波的频率都远离共振区，吸收很小，这时虚部可以被忽略。于是我们得到

$$F(\omega) = F(-\omega)$$

根据线性和二阶极化率表达式我们得到如下结论：

$$\chi^{(1)}(-\omega) = \chi^{(1)}(\omega)$$

$\chi^{(2)}(-\omega_1 - \omega_2, \omega_1, \omega_2)$ 中用 $-(\omega_1 + \omega_2)$ 代替 ω_1 或 ω_2 其值不变，即有

$$\chi^{(2)}(\omega_1, -\omega_1 - \omega_2, \omega_2) = \chi^{(2)}(\omega_2, \omega_1, -\omega_1 - \omega_2) = \chi^{(2)}(-\omega_1 - \omega_2, \omega_1, \omega_2)$$

对于张量下角标也要作相应的交换。高阶极化率有类似的对称性。

全对称性成立的条件为：各个参与混频的光波的频率都远离共振区。

(4) Kleinman 对称性

当参与和频的光波频率远远小于共振频率时，光波处于介质体系的透明范围，

$$F(\omega) = \frac{1}{\omega_0^2 - \omega^2 - i\gamma\omega} \approx \frac{1}{\omega_0^2}$$

混频过程的非线性极化率与光场频率无关，则两组不同频率的和频过程的非线性极化率相等，如对于二阶极化率

$$\chi^{(2)}(-\omega_1 - \omega_2, \omega_1, \omega_2) = \chi^{(2)}(-\omega_1' - \omega_2', \omega_1', \omega_2')$$

这种对称性使我们可以将某些波长处的极化率参数用于其它波长处，给应用带来很多方便。要注意的是，当光场频率趋近介质体系的跃迁频率时，Kleinman 对称性明显遭到破坏。

(5) 空间对称性

由于介质的空间对称性，导致极化率张量的非零元素大大减少。根据晶体的对称特性，人们已经求出晶体七大晶系中可能存在的 32 个晶类的一阶、二阶和三阶极化率张量的空间对称形式，并已制成表，具体可参考非线性光学方面的书籍。

这里讨论一下具有对称中心的晶体没有偶数阶极化率张量这个事实，说明晶体的空间对称性对极化率张量形式的限制。二阶非线性极化强度表达式为

$$\mathbf{P}^{(2)}(t) = \sum_{m,n} \epsilon_0 \chi^{(2)} : \mathbf{E}(\omega_m) \mathbf{E}(\omega_n) e^{-i(\omega_m + \omega_n)t}$$

在 $x \rightarrow -x, y \rightarrow -y, z \rightarrow -z$ 的坐标变换下， \mathbf{E} 和 \mathbf{P} 都改变了方向，由上式得

$$-\mathbf{P}^{(2)}(t) = \mathbf{P}^{(2)}(t)$$

$$\mathbf{P}^{(2)}(t) = 0$$

因为电场不为零，只有 $\chi^{(2)} = 0$ 。类似地，也可以证明其它偶数阶非线性极化率等于零。

4.2 非线性光学相互作用下的波动方程

4.2.1 非线性波动方程

将 $\mathbf{D} = \epsilon_0 \mathbf{E} + \mathbf{P}^{(1)} + \mathbf{P}_M$ 代入波动方程，比线性方程多了 \mathbf{P}_M 的贡献，

$$\nabla^2 \mathbf{E} - \sigma \mu \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} - \epsilon \mu \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} = \mu \frac{\partial^2 \mathbf{P}_{NL}}{\partial t^2} \quad (4.1)$$

为非奇次的微分方程（右边不为零），右侧为非线性驱动项，代表不同场之间的耦合作用。 $\partial^2 \mathbf{P}_{NL} / \partial t^2$ 不为零表示电子被加速，被加速的电子可以产生电磁辐射。可以通过这一方程，求解各种非线性光学过程。

根据 \mathbf{P}_{NL} 的模式（偏振、频率、传播方向）一般把非线性光学过程分为两类：

- (1) 非线性频率变换，极化强度的模式与入射的多个电磁场的模式都不一样。包括谐波产生、和频、差频、参量放大与振荡、相干喇曼散射，光整流等。
- (2) 非线性吸收和场感生折射率变化，极化强度的模式与某一入射电磁场的模式一样。包括双光子吸收和多光子吸收、电光效应、自作用过程、场致双折射等。

4.2.2 非线性耦合波方程

非线性波动方程(4.1)中的总光场是 \mathbf{E} 许多单色场的叠加，

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \sum_n \mathbf{E}_n(\mathbf{r}, t)$$

相应地有

$$\mathbf{P}^{NL}(\mathbf{r}, t) = \sum_n \mathbf{P}_n^{NL}(\mathbf{r}, t)$$

假设光场沿 z 方向传播

$$\mathbf{E}_n(z, t) = \mathbf{E}_n(z) e^{ik_n z - i\omega_n t} + c.c.$$

$$\mathbf{P}_n^{NL}(z, t) = \mathbf{P}_n^{NL}(z) e^{ik_n' z - i\omega_n t} + c.c.$$

式中 k_n 是频率为 ω_n 的光场的波矢， k_n' 是极化波的波矢。忽略吸收， \mathbf{E}_n 满足

$$\frac{\partial^2 \mathbf{E}_n}{\partial z^2} + 2ik_n \frac{\partial \mathbf{E}_n}{\partial z} = -\mu_0 \omega_n^2 \mathbf{P}_n^{NL} e^{i\Delta k z}$$

这里 $k_n = \omega_n / c$ ， $\Delta k = k_n' - k_n$ 。采用空间的慢变振幅近似

$$\left| \frac{\partial^2 \mathbf{E}_n}{\partial z^2} \right| \ll \left| \mathbf{k}_n \cdot \frac{\partial \mathbf{E}_n}{\partial z} \right|$$

稳态条件下非线性耦合波方程为

$$\frac{\partial \mathbf{E}_n}{\partial z} = \frac{i\omega_n}{2\varepsilon_0 cn} \mathbf{P}_n^{NL} e^{i\Delta k z}$$

在计及光场振幅随时间变化时还可同时采用振幅的时间慢变近似，即 $\left| \frac{\partial^2 E_n}{\partial t^2} \right| \ll \left| \omega_n \frac{\partial E_n}{\partial t} \right|$,

得到同时包括场的时间导数项的方程

$$\frac{\partial \mathbf{E}_n}{\partial z} + \frac{n}{c} \frac{\partial \mathbf{E}_n}{\partial t} = \frac{i\omega_n}{2\varepsilon_0 cn} \mathbf{P}_n^{NL} e^{i\Delta k z}$$

对于短脉冲在非线性质介质中的传播，应采用此方程。仅当光通过介质所花的时间 $T = Ln/c$ 内 (L 为非线性介质长度)，振幅的变化不显著时，才可忽略方程中的时间导数项。

4.3 二阶非线性光学过程

4.3.1 光的二次谐波

一. 极化强度的表达式

标量形式：

考虑有两个不同频率的光场

$$E(t) = E_1 e^{-i\omega_1 t} + E_2 e^{-i\omega_2 t} + c.c.$$

二阶非线性极化强度的表达式

$$P^{(2)}(t) = \varepsilon_0 \chi^{(2)} E(t)^2 \\ = \varepsilon_0 \chi^{(2)} \left[E_1^2 e^{-2i\omega_1 t} + E_2^2 e^{-2i\omega_2 t} + 2E_1 E_2 e^{-i(\omega_1 + \omega_2)t} + 2E_1 E_2^* e^{-i(\omega_1 - \omega_2)t} + c.c. \right] + 2\varepsilon_0 \chi^{(2)} \left[E_1 E_1^* + E_2 E_2^* \right]$$

可以用下式表示极化强度：

$$P^{(2)}(t) = \sum_n P(\omega_n) e^{-i\omega_n t}$$

这里的求和遍布所有的正负频率 ω_n 。不同频率的复振幅为

$$P(2\omega_1) = \varepsilon_0 \chi^{(2)} E_1^2 \quad \text{二次谐波产生(SHG)}$$

$$P(2\omega_2) = \varepsilon_0 \chi^{(2)} E_2^2 \quad \text{二次谐波产生(SHG)}$$

$$P(\omega_1 + \omega_2) = 2\varepsilon_0 \chi^{(2)} E_1 E_2 \quad \text{和频(SFG)}$$

$$P(\omega_1 - \omega_2) = 2\varepsilon_0 \chi^{(2)} E_1 E_2^* \quad \text{差频(DFG)}$$

$$P(0) = 2\varepsilon_0 \chi^{(2)} (E_1 E_1^* + E_2 E_2^*) \quad \text{光学整流(OR)}$$

这里等号后面的系数 1 或 2 是简并因子，它反映了二阶过程中起作用的两个光子频率间的关系。如果两个光子的频率相同，即 $\omega_1 = \omega_2$ ，则简并因子为 1；如果频率不相等， $\omega_1 \neq \omega_2$ ，即对于一般和频和差频过程，简并因子为 2。上面还包括负频率部分，即上面几个公式的复共

轭。 $E_2 = 0$ 对应单色光的情况，只有二次谐波和光学整流。

由于采用复数表示，在非零频处还有负频率的响应：

$$P(-2\omega_1) = \varepsilon_0 \chi^{(2)} E_1^{*2}, \quad P(-2\omega_2) = \varepsilon_0 \chi^{(2)} E_2^{*2}$$

$$P(-\omega_1 - \omega_2) = 2\varepsilon_0 \chi^{(2)} E_1^* E_2^*, \quad P(\omega_2 - \omega_1) = 2\varepsilon_0 \chi^{(2)} E_2 E_1^*$$

矢量表达式：

$$\mathbf{P}^{(2)} = \varepsilon_0 \chi^{(2)} : \mathbf{E} \mathbf{E};$$

对于和频，具体表示为 $\mathbf{P}^{(2)}(\omega_1 + \omega_2) = \varepsilon_0 \chi^{(2)}(-\omega_1 - \omega_2, \omega_1, \omega_2) : \mathbf{E}(\omega_1) \mathbf{E}(\omega_2)$ 。

二. 三光波相互作用的耦合波方程

我们考虑三个频率分别为 ω_1 , ω_2 , 和 ω_3 沿 z 方向传播的单色平面波，记为 \mathbf{E}_1 , \mathbf{E}_2 和 \mathbf{E}_3 ，垂直射入介质，并有 $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ 。忽略二阶以上的高阶非线性效应，非线性源项为

$$\mathbf{P}^{(2)}(\omega_1) = 2\varepsilon_0 \chi^{(2)}(-\omega_1; \omega_3, -\omega_2) : \mathbf{E}_3 \mathbf{E}_2^*$$

$$\mathbf{P}^{(2)}(\omega_2) = 2\varepsilon_0 \chi^{(2)}(-\omega_2; \omega_3, -\omega_1) : \mathbf{E}_3 \mathbf{E}_1^*$$

$$\mathbf{P}^{(2)}(\omega_3) = 2\varepsilon_0 \chi^{(2)}(-\omega_3; \omega_1, \omega_2) : \mathbf{E}_1 \mathbf{E}_2$$

忽略吸收，代入到非线性波动方程

$$\frac{d\mathbf{E}_1(z)}{dz} = \frac{i\omega_1}{cn_1} \chi^{(2)}(-\omega_1; \omega_3, -\omega_2) : \mathbf{E}_3(z) \mathbf{E}_2^*(z) e^{i\Delta k z}$$

$$\frac{d\mathbf{E}_2(z)}{dz} = \frac{i\omega_2}{cn_2} \chi^{(2)}(-\omega_2; \omega_3, -\omega_1) : \mathbf{E}_3(z) \mathbf{E}_1^*(z) e^{i\Delta k z}$$

$$\frac{d\mathbf{E}_3(z)}{dz} = \frac{i\omega_3}{cn_3} \chi^{(2)}(-\omega_3; \omega_1, \omega_2) : \mathbf{E}_1(z) \mathbf{E}_2(z) e^{-i\Delta k z}$$

$\Delta k = k_3 - k_2 - k_1$ ，称为位相失配因子。如果 $\Delta k = 0$ ，相当于三光波动量守恒，则称三光波相互作用是相位匹配的。

引入光电场偏振方向的单位矢量 \mathbf{e} ，将振幅写成

$$\mathbf{E}_i(z) = E_i(z) \mathbf{e}_i, \quad i = 1, 2, 3$$

得如下标量形式

$$\frac{dE_1(z)}{dz} = \frac{i\omega_1}{cn_1} \chi^{(2)}(-\omega_1; \omega_3, -\omega_2) E_3(z) E_2^*(z) e^{i\Delta k z}$$

$$\frac{dE_2(z)}{dz} = \frac{i\omega_2}{cn_2} \chi^{(2)}(-\omega_2; \omega_3, -\omega_1) E_3(z) E_1^*(z) e^{i\Delta k z}$$

$$\frac{dE_3(z)}{dz} = \frac{i\omega_3}{cn_3} \chi^{(2)}(-\omega_3; \omega_1, \omega_2) E_1(z) E_2(z) e^{-i\Delta k z}$$

其中各标量形式的极化率

$$\chi^{(2)}(-\omega_1; \omega_3, -\omega_2) = \mathbf{e}_1 \cdot \boldsymbol{\chi}^{(2)}(-\omega_1; \omega_3, -\omega_2) : \mathbf{e}_3 \mathbf{e}_2$$

$$\chi^{(2)}(-\omega_2; \omega_3, -\omega_1) = \mathbf{e}_2 \cdot \boldsymbol{\chi}^{(2)}(-\omega_2; \omega_3, -\omega_1) : \mathbf{e}_3 \mathbf{e}_1$$

$$\chi^{(2)}(-\omega_3; \omega_1, \omega_2) = \mathbf{e}_3 \cdot \boldsymbol{\chi}^{(2)}(-\omega_3; \omega_1, \omega_2) : \mathbf{e}_1 \mathbf{e}_2$$

当 ω_1 , ω_2 , 和 ω_3 及其频率组合都远离介质的跃迁频率时, 上述三个极化率是相等的, 对于确定的介质和偏振配置它们是一个常数, 简写为 $\chi^{(2)}$ 。

三. 二次谐波产生

当频率为 ω_1 的光入射到长度为 L 的介质中产生频率为 $2\omega_1$ 的光波时, 即为二次谐波的产生。

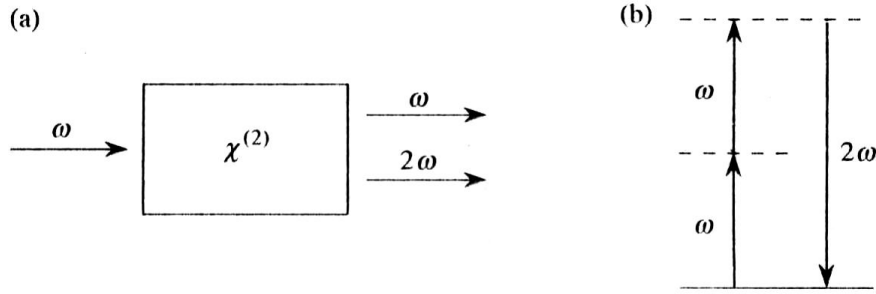


图 4.2 二次谐波产生的示意图(a)和能级图(b)

上述三波相互作用中, $2\omega_1 = 2\omega_2 = \omega_3$ 。对于小信号近似

$$\frac{dE_1(z)}{dz} = 0$$

$$\frac{dE_3(z)}{dz} = \frac{i\omega_3}{2cn_3} \chi^{(2)} E_1^2 e^{-i\Delta k z}$$

边界条件为 $E_3(0) = 0$

$$E_3(L) = -\frac{\omega_1}{cn_3 \Delta k} \chi^{(2)} E_1^2(0) (e^{-i\Delta k L} - 1)$$

在介质出射面 $z = L$, 倍频光的强度为

$$I_3 = \frac{2\omega_1^2 [\chi^{(2)}]^2 I_1^2 L^2}{c^3 n_1^2 n_3 \epsilon_0} \cdot \frac{\sin^2(\Delta k L / 2)}{(\Delta k L / 2)^2} = \frac{2\omega_1^2 [\chi^{(2)}]^2 I_1^2 L^2}{c^3 n_1^2 n_3 \epsilon_0} \text{sinc}^2\left(\frac{\Delta k L}{2}\right)$$

光倍频转换效率为倍频光功率与基频光功率之比

$$\eta = \frac{P_3}{P_1} = \frac{2\omega_1^2 [\chi^{(2)}]^2 L^2}{c^3 n_1^2 n_3 \epsilon_0} \cdot \frac{P_1}{A} \cdot \text{sinc}^2\left(\frac{\Delta k L}{2}\right)$$

式中 A 为光束的截面积。当倍频转换效率很高时, 小信号近似不再成立, 需求解耦合波方程组。

有关倍频的几个结论:

- (1) 倍频光强与基频光强的平方成正比，这是二阶非线性效应最基本的特点。
- (2) 非相位匹配情况下 ($\Delta k \neq 0$)，倍频光强随着距离显周期性变化，满足相位匹配条件时 ($\Delta k = 0$)，倍频光强随介质的长度成平方关系，可以得到最有效的倍频转换。
- (3) 倍频转换效率不仅取决于基频光的功率，更重要的是取决于介质中基频光的强度，为了提高转换效率有必要采用聚焦以提高基频光的强度。
- (4) 倍频转换效率与二阶极化率（倍频系数 d ）的平方成正比。选取合适的偏振方向可获得最大的有效倍频系数。

四. 相位匹配技术

根据电磁辐射理论，二次谐波由所对应的二阶极化强度所产生。频率为 ω 基波在介质传播过程中，由于二阶非线性效应，将产生频率为 2ω 的二阶非线性极化强度，该极化强度作为一个激励源将产生频率为 2ω 的二次谐波辐射，并由介质输出。因此极化强度的相位是由基频波的传播常数的二倍 $2k_1$ 决定的，而二次谐波在介质中传播的相位是由二次谐波的传播常数 k_3 决定的。空间不同点所产生的二次谐波辐射之间相互相干叠加，最后构成二次谐波输出。由于光在介质中传播的色散效应，谐波和基波的传播速度不相同。这样，在晶体中先后被激发的谐波之间将出现附加的位相差，叠加的结果有可能因相消干涉而使输出的谐波极弱；也可能因相互之间相长干涉而使输出极强，这就是所谓的谐波相位匹配问题。 $\Delta k = 2\omega/c [n(\omega) - n(2\omega)]$ 。

Maker 等人第一个用实验证实了在相位失配情况下，倍频光强度随相互作用长度周期性变化的行为。实验装置如下图所示，将一束聚焦的红宝石激光入射到一块可以旋转的石英晶片上，通过旋转角度 θ 来连续改变相互作用长度，输出的倍频光随相互作用长度的改变而做周期性变化。这就是著名的 Maker 条纹，它已经成为测量晶体光学倍频系数最基本的方法之一。

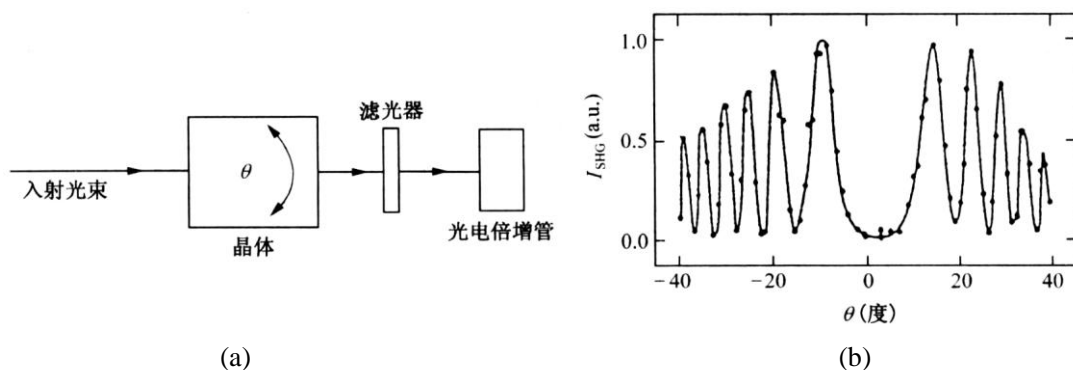


图 4.3 (a)Maker 条纹的实验装置，(b)倍频光的 Maker 条纹。

当 $\Delta k = 0$ 时， $n(\omega) = n(2\omega)$ ，表示基频波与谐波的相速度相等，称之为相位匹配。对于一般光学材料，色散的存在， $n(\omega) \neq n(2\omega)$ ，有 $\Delta k \neq 0$ ，无法实现相位匹配条件。但是，我们可以利用各向异性晶体的双折射，使基波沿晶体特定角度入射，为寻常光即 o 光（对 $n_o > n_e$ 的晶体），谐波为非常光即 e 光，有 $n_o(\omega) = n_e(2\omega, \theta)$ ，最终满足相位匹配条件。

光子的动量为 $\hbar k$ ，因此，谐波产生中相位匹配条件 $\Delta k = 0$ 实际上是反映了光子的动量守恒。频率关系则表示能量守恒的条件。对一般的三波混频过程，能量守恒和动量守恒的条件为：

$$\omega_1 + \omega_2 = \omega_3$$

$$\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 = \mathbf{k}_3$$

(1)角度相位匹配

利用晶体的双折射，找到满足 $n(\omega) = n(2\omega)$ 的特定角度，使基频光从此特定角度入射从而达到相位匹配，称为角度相位匹配。

由于工作波长一般处于正常色散区，对于正单轴晶体($n_e > n_o$)，倍频光必须取为 o 光；对于负单轴晶体($n_e < n_o$)，倍频光必须取为 e 光。基频光的偏振方向可分两种情况，如下表所示：

表 4.1 单轴晶体的相位匹配条件

晶体种类	第 I 类相位匹配		第 II 类相位匹配	
	偏振性质	相位匹配条件	偏振性质	相位匹配条件
正单轴晶体 ($n_e > n_o$)	$e + e \rightarrow o$	$n_e^\omega(\theta_m) = n_o^{2\omega}$	$o + e \rightarrow o$	$\frac{1}{2}[n_o^\omega + n_e^\omega(\theta_m)] = n_o^{2\omega}$
负单轴晶体 ($n_e < n_o$)	$o + o \rightarrow e$	$n_o^\omega = n_e^{2\omega}(\theta_m)$	$e + o \rightarrow e$	$\frac{1}{2}[n_e^\omega(\theta_m) + n_o^\omega] = n_e^{2\omega}(\theta_m)$

相位匹配角 θ_m 可以通过计算求出。

KDP 晶体和石英晶体在红宝石激光波长 694.3nm 和其倍频光 347.1nm 的折射率椭球通过光轴的截面如图 4.4 所示。考虑第 I 类相位匹配条件，对于 KDP 晶体，非常倍频光的折射率在 $\theta_m = 50.4^\circ$ 与寻常基频光的折射率相等，此时可实现相位匹配；而对于石英晶体，基频光和倍频光的折射率没有相等的时候，无法实现相位匹配。

第 II 类相位匹配角要比第 I 类相位匹配角大，对于有些晶体，能够实现第 I 类相位匹配，但不能实现第 II 类相位匹配。

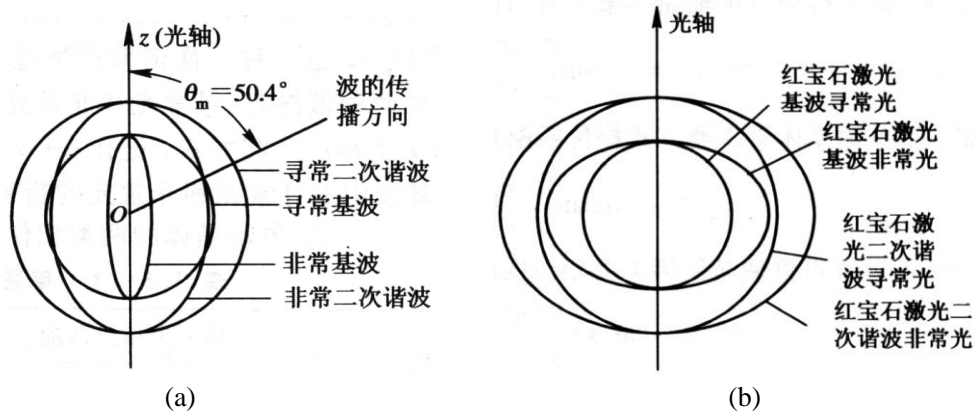


图 4.4 (a)KDP 晶体和(b)石英晶体折射率曲线

(2)温度相位匹配

根据晶体光学原理，当光在双折射晶体中传播的方向与光轴的夹角不等于 0° 或 90° 时，e 光的能流方向与波矢方向不一致，即 o 光和 e 光在传播时将逐渐分开。这意味着上述的角度匹配方法在 θ_m 不等于 90° 时产生的倍频光与基频光在空间上会离散开来。这一离散效应限制了两束光的空间交叠，大大降低了倍频效率。

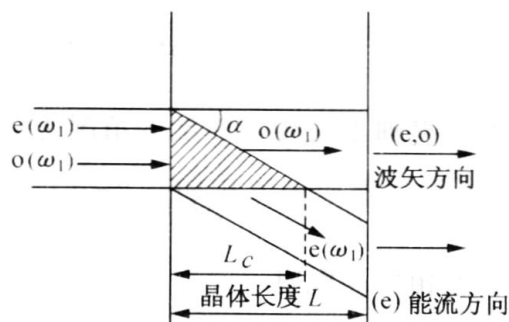


图 4.5 双折射晶体中 e 光和 o 光的离散

为了不受离散效应的影响，必须使相位匹配角 $\theta_m = 90^\circ$ 。对于某些在室温下实现第 I 类相位匹配的负单轴晶体，如果它具有正的色散温度特性及负的双折射温度特性，即

$$\frac{\partial [n_o(2\omega) - n_o(\omega)]}{\partial T} > 0$$

$$\frac{\partial [n_o(2\omega) - n_e(2\omega)]}{\partial T} < 0$$

就可以升高晶体温度使 θ_m 增大，直至某一温度 T_m 时 $\theta_m = 90^\circ$ ，于是 $n_o(\omega) = n_e(2\omega)$ 。正单轴晶体的情况与之相反。 90° 温度相位匹配亦称非临界相位匹配；角度相位匹配称为临界相位匹配。

(3) 相位匹配宽度

完全相位匹配 $\Delta k = 0$ 时，倍频的输出达到极大值。基于实际光束的情况，允许存在一个相位失配量。通常规定这一确定的相位失配量为

$$|\Delta k| = \pi / L$$

L 为晶体的长度。在允许失配的最大处倍频转换效率降至完全匹配时的 40%，但仍认为倍频有效。称这个确定的失配量为相位匹配宽度。

五. 常用的倍频晶体

上面已经提到了对于中心对称材料，倍频效应是不可能产生的。为了获得光的二次谐波，除了要求强激光条件外，还要求材料是非中心对称的。此外，在实际应用中，还要求材料满足相位匹配的条件。目前，常用的倍频晶体有：偏硼酸钡 (BBO)；磷酸二氢钾 (KDP)；磷酸二氘钾 (KD*P)；磷酸二氢氨 (ADP)；铌酸锂 (LiNbO_3) 等。

实际使用中，根据基频光波长和晶体材料的具体数据（对称性、系数和折射率等），计算出晶体材料的切割角度，从而满足相位匹配的要求。

4.3.2 其它二阶非线性光学现象

除了二次谐波以外，二阶非线性光学效应还有

光的和频 入射 ω_1, ω_2 ，产生 ω_3 : $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ (图 4.6)

差频 入射 ω_1, ω_2 ，产生 ω_3 : $\omega_3 = \omega_1 - \omega_2$ (图 4.7)

光学参量过程 入射 ω_1 ，产生 ω_2, ω_3 : $\omega_2 + \omega_3 = \omega_1$ (图 4.8)

这类效应和二次谐波一样，同样有相位匹配的要求。它们已被广泛应用于新波段激光的获得。如和频及差频可以用来产生可见、紫外或红外激光；参量过程也广泛应用于产生可调谐的红外激光。利用谐振腔，可以实现参量振荡，并通过调谐晶体的角度，可以获得连续可

调谐的红外激光输出。

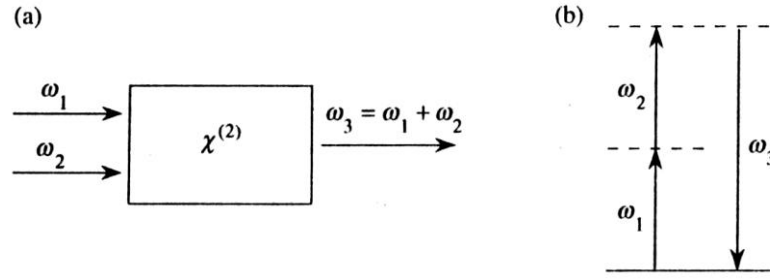


图 4.6 和频的示意图(a)和能级图(b)

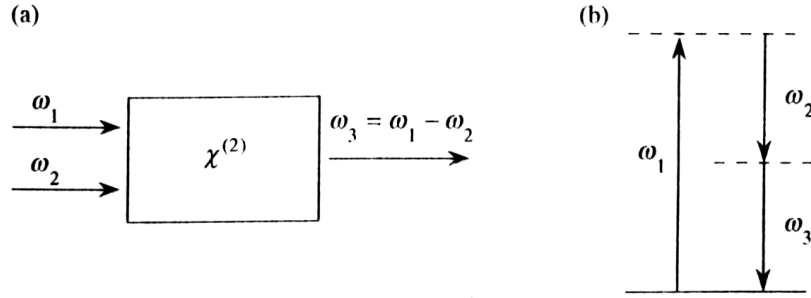


图 4.7 差频的示意图(a)和能级图(b)

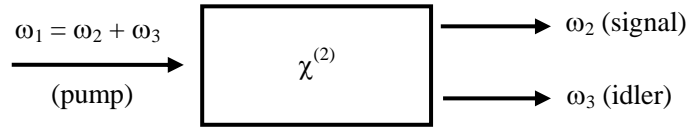


图 4.8 光学参量产生示意图

4.4 三阶及高阶非线性光学过程

4.4.1 三次谐波产生

一. 极化强度的表达式

三阶非线性光学过程对应的非线性极化强度

$$\mathbf{P}^{(3)} = \epsilon_0 \chi^{(3)} : \mathbf{EEE}$$

三阶非线性极化率 $\chi^{(3)}$ 是四秩张量 8 1 个元素。同样，可以根据材料的结构对称性、置换特性等性质将使介质所有的独立非零张量元个数大大减少。原则上，任何材料都有三阶非线性光学响应，只是因为作为更高阶次的非线性光学效应，非线性光学系数一般都比二阶系数小得多，所要求的光场强度应更强或需要材料特定的共振增强等效应来实现。

作为三阶非线性光学效应最基础的过程是三次谐波的产生。它对应于在介质中输入频率为 ω 的激光，通过三阶非线性光学系数 $\chi^{(3)}(-3\omega, \omega, \omega, \omega)$ 激发产生频率为 3ω 的激光。同样，对于三次谐波也有相位匹配的问题。通常情况下，为了提高三次谐波的效率，工作介质一般选择为气态介质。选择气态介质，一方面可以利用共振增强效应大大增大，另一方面，相对于晶体或其它凝聚态介质，气态介质有高得多的破坏阈值，保证可以用更强的入射激光。

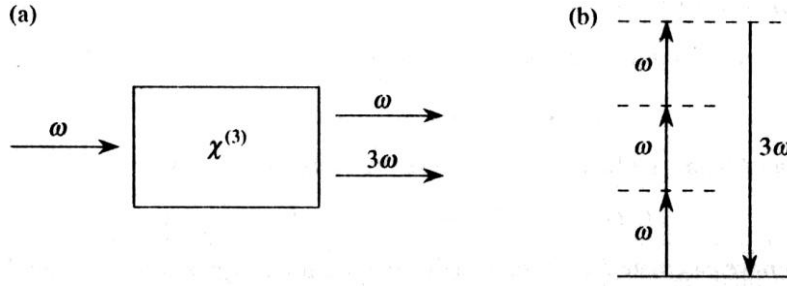


图 4.9 三次谐波产生的示意图(a)和能级图(b)

二. 相位匹配方法

不同于二阶效应利用晶体的双折射实现相位匹配, 气态介质中三次谐波的相位匹配是通过混合一定比例的惰性气体, 利用在对应波长下工作气体和惰性气体不同色散相互补偿实现

$$A n_1(3\omega) + B n_2(3\omega) = A n_1(\omega) + B n_2(\omega)$$

A、B 代表两种气体的比例。

4.4.2 光学克尔效应

外加光场引起双折射的现象叫做光学克尔效应。光学克尔效应用三阶极化率来描述, 外加频率为 ω' 的光场在 ω 处产生与外加光场的平方有关的非线性极化强度

$$\begin{aligned} \mathbf{P}(\omega) &= \mathbf{P}^{(1)}(\omega) + \mathbf{P}^{(3)}(\omega) \\ &= \varepsilon_0 \left[\chi^{(1)}(\omega) \cdot \mathbf{a}(\omega) + 6\chi^{(3)}(-\omega; \omega, -\omega', \omega') : \mathbf{a}(\omega) \mathbf{a}(\omega') \mathbf{a}(\omega') |E(\omega')|^2 \right] E(\omega) \end{aligned}$$

其中 \mathbf{a} 为偏振方向的单位矢量。外加光场改变了介电系数, 也就是折射率。克尔效应的大小用克尔系数来度量, 定义为

$$K_{\omega'}(\omega) = \frac{\Delta n_{\parallel}(\omega) - \Delta n_{\perp}(\omega)}{\lambda |E(\omega')|^2}$$

式中 Δn_{\parallel} 和 Δn_{\perp} 分别是入射信号 ω 光电场偏振方向与外加泵浦 ω' 光电场偏振方向相平行和相垂直时的折射率改变量。

这里假设介质为各向同性介质, 下面确定克尔系数和三阶极化率之间的关系。设入射光沿 z 方向传播, 外加光电场 ω' 光的偏振沿 y 方向, 其单位矢量为 $\mathbf{a}(\omega') = (0, 1, 0)$, $\mathbf{P}^{(3)}(\omega)$ 的分量形式为

$$P_{\mu}^{(3)} = 6\varepsilon_0 E(\omega) |E(\omega')|^2 \sum_{\alpha=x,y,z} \chi_{\mu\alpha yy}^{(3)}(-\omega; \omega, -\omega', \omega') a_{\alpha}(\omega)$$

对于各向同性介质, 三阶极化率张量的非零元素是

$$\begin{aligned} \chi_{xxxx}^{(3)} &= \chi_{yyyy}^{(3)} = \chi_{zzzz}^{(3)} \\ \chi_{yyxx}^{(3)} &= \chi_{zzyy}^{(3)} = \chi_{zzxx}^{(3)} = \chi_{xxzz}^{(3)} = \chi_{xyyy}^{(3)} = \chi_{yyxx}^{(3)} \\ \chi_{yzyz}^{(3)} &= \chi_{zyzy}^{(3)} = \chi_{zxzx}^{(3)} = \chi_{xzxz}^{(3)} = \chi_{xyxy}^{(3)} = \chi_{yxxy}^{(3)} \\ \chi_{yzzy}^{(3)} &= \chi_{zyyz}^{(3)} = \chi_{zxzx}^{(3)} = \chi_{xzxz}^{(3)} = \chi_{xyyx}^{(3)} = \chi_{yxxy}^{(3)} \end{aligned}$$

并有

$$\chi_{xxxx}^{(3)} = \chi_{xyxy}^{(3)} + \chi_{xyyx}^{(3)} + \chi_{yyxx}^{(3)}$$

得

$$P_x^{(3)} = 6\varepsilon_0\chi_{xyy}^{(3)}(-\omega; \omega, -\omega', \omega')a_x(\omega)E(\omega)|E(\omega')|^2$$

$$P_y^{(3)} = 6\varepsilon_0\chi_{yyy}^{(3)}(-\omega; \omega, -\omega', \omega')a_y(\omega)E(\omega)|E(\omega')|^2$$

把上式代入耦合波方程，得到与 ω' 光波偏振方向相同辐射的微分方程为

$$\frac{\partial E_y(\omega, z)}{\partial z} = \frac{3i\omega}{cn_\omega} \chi_{yyy}^{(3)}(-\omega; \omega, -\omega', \omega')a_y(\omega)E(\omega)|E(\omega')|^2$$

在认为 $E(\omega')$ 不变的情况下就有

$$E_y(\omega, z) \propto \exp\left\{\frac{i\omega}{c}\left[\frac{3\omega}{kc}|E(\omega')|^2 \chi_{yyy}^{(3)}(-\omega; \omega, -\omega', \omega')\right]z\right\}$$

上式指数因子中方括号内的量正是折射率的变化量，记为 Δn_{\parallel}

$$\Delta n_{\parallel} = \frac{3\omega}{kc}|E(\omega')|^2 \chi_{yyy}^{(3)}(-\omega; \omega, -\omega', \omega')$$

同理，对与 ω' 光波偏振方向垂直的辐射有

$$\Delta n_{\perp} = \frac{3\omega}{kc}|E(\omega')|^2 \chi_{xyy}^{(3)}(-\omega; \omega, -\omega', \omega')$$

折射率的变化与泵浦光场强度平方成正比。可得克尔系数与三阶极化率之间的关系

$$K_{\omega'}(\omega) = \frac{3\omega}{2\pi c} [\chi_{yyy}^{(3)} - \chi_{xyy}^{(3)}]$$

$\omega' = 0$ 时，上式即为电光克尔常数。

从上面的分析可看出，外加光能够改变信号光的偏振，在光路中加入起偏器和检偏器后就成为光克尔调制器，实现光控制光，如图 4.10 所示。

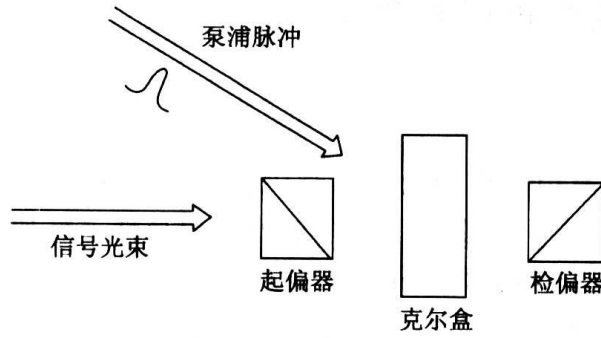


图 4.10 光克尔效应实验示意图

4.4.3 自聚焦现象

1962 年 Askaryan 首先提出了由于折射率随光强变化而使光束在传播过程中出现自聚焦的可能性（Sov. Phys. JETP 15 (1962) 1088;1161），并在 1964 年得到了证实。这种效应起源于频率为 ω 的光波场 $\mathbf{E} = \mathbf{E}(\omega)\exp[i(\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}-\omega t)] + \text{c.c.}$ 作用于非线性光学介质所引起的同频率的三阶非线性极化

$$P(\omega) = P^{(1)}(\omega) + P^{(3)}(\omega) = \varepsilon_0\chi^{(1)}(\omega)E(\omega) + 3\varepsilon_0\chi^{(3)}(-\omega; \omega, -\omega, \omega)|E(\omega)|^2 E(\omega)$$

相对介电常数

$$\varepsilon_r = 1 + \chi^{(1)} + 3\chi^{(3)}|E(\omega)|^2$$

考虑到折射率与相对介电常数的关系

$$n = \sqrt{\varepsilon_r} = \sqrt{1 + \chi^{(1)} + 3\chi^{(3)}|E(\omega)|^2} = n_0 + \Delta n$$

其中

$$n_0 = \sqrt{1 + \chi^{(1)}}$$

是线性折射率， Δn 是非线性折射率。通常 $n_0 \gg \Delta n$ ，得

$$\Delta n = \frac{3\chi^{(3)}}{2n_0}|E(\omega)|^2 = n_2|E(\omega)|^2$$

$$n = n_0 + n_2|E(\omega)|^2$$

n_2 称为非线性折射率系数，它的量纲与 $\chi^{(3)}$ 相同 (m^2V^{-2})。 $n_2|E(\omega)|^2$ 反映了光强引起的折射率变化。当高斯光束在介质中传播时，由于光强的非均匀性造成折射率的空间变化。当 $n_2 > 0$ 时，产生的折射率分布类似于正透镜，使光束聚焦，如图 4.11 所示；当 $n_2 < 0$ ，产生的折射率分布类似于负透镜，使光束散焦。

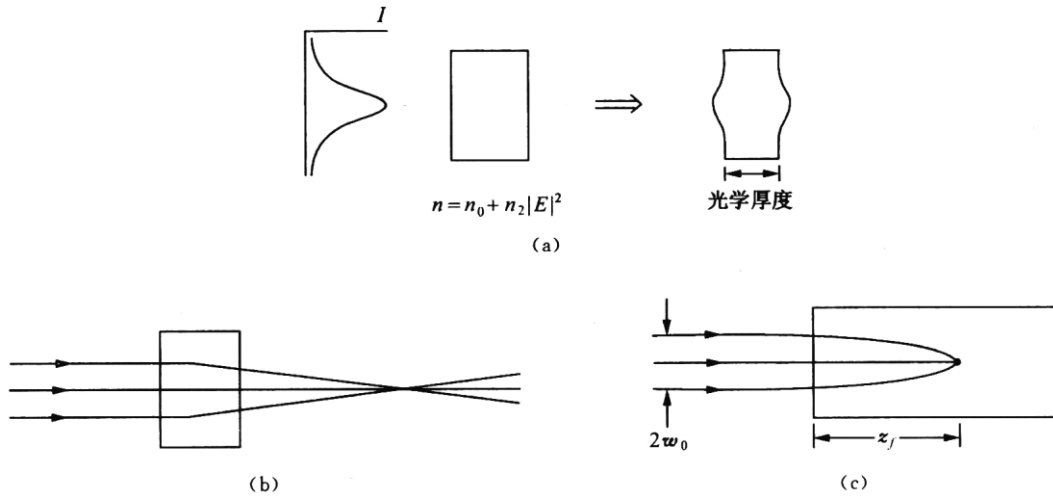


图 4.11 光的自聚焦

4.4.4 简并四波混频与光学相位共轭

一. 相位共轭波的定义

沿 z 方向传播频率为 ω 的光波电场为

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{E}(\mathbf{r})e^{-i(\omega t - kz)} + c.c.$$

该光波的相位共轭波为

$$\mathbf{E}_{pc}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{E}^*(\mathbf{r})e^{-i(\omega t \pm kz)} + c.c.$$

式中正负号分别相应与背向相位共轭波和前向相位共轭波。背向相位共轭波的传播方向与 $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$ 相反，复振幅为 $\mathbf{E}(\mathbf{r})$ 的复共轭（相位的空间分布与 $\mathbf{E}(\mathbf{r})$ 相同）；前向相位共轭波的传播

方向与 $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$ 相同, 复振幅的分布也为 $\mathbf{E}(\mathbf{r})$ 的复共轭 (相位的空间分布与 $\mathbf{E}(\mathbf{r})$ 显镜像对称)。

重新写出原始光和背向相位共轭光并加以比较,

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{E}(\mathbf{r})e^{-i(\omega t - kz)} + \mathbf{E}^*(\mathbf{r})e^{i(\omega t - kz)}$$

$$\mathbf{E}_{pc}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{E}(\mathbf{r})e^{i(\omega t + kz)} + \mathbf{E}^*(\mathbf{r})e^{-i(\omega t + kz)}$$

可以看到

$$\mathbf{E}_{pc}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{E}(\mathbf{r}, -t)$$

常把背向相位共轭波称为时间反演波。以上可以看出, 背向相位共轭波与原始波的区别仅仅在于它们的传播方向相反, 而波阵面形状在空间的分布相同。如图 4.12 所示, 利用相位共轭波可以补偿经过一畸变介质后造成的畸变, 但要两次通过同一介质。

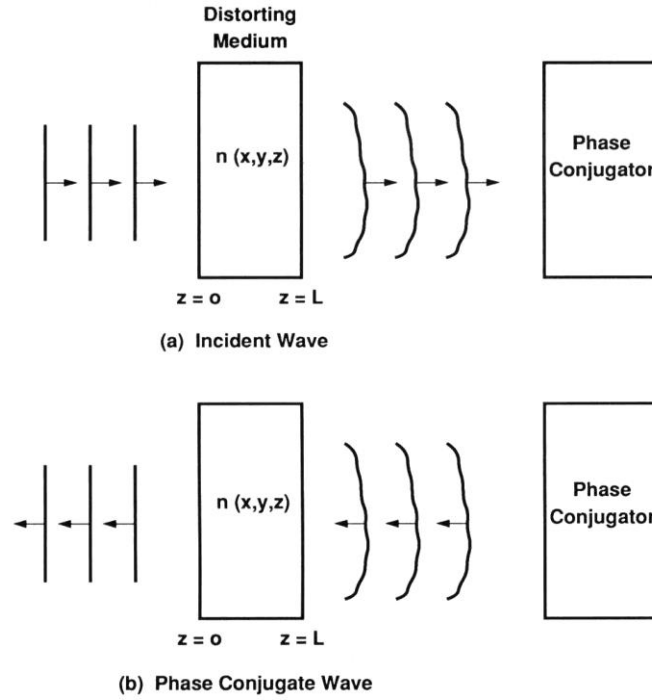


图 4.12 利用相位共轭镜(PCM)补偿畸变示意图

二. 简并四波混频

四波混频是介质中四个光波相互作用所引起的非线性光学现象, 它起因于介质的三阶非线性极化。

如果参与四波混频中的四个光波频率相等, 波矢两两相反, 即

$$\omega_1 = \omega_2 = \omega_3 = \omega_4 = \omega, \quad \mathbf{k}_1 = -\mathbf{k}_2, \quad \mathbf{k}_3 = -\mathbf{k}_4$$

则相位匹配条件自动满足, 称为简并四波混频。实验配置如图 4.13 所示, 其中 \mathbf{E}_3 的输入光强为零。产生的三阶非线性极化为

$$\begin{aligned} P_c^{(3)}(\mathbf{r}, t) &= 6\varepsilon_0\chi^{(3)}E_1(\mathbf{r})E_2(\mathbf{r})E_4^*(\mathbf{r})\exp[-i(\omega_1 + \omega_2 - \omega_4)t + i(\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_4) \cdot \mathbf{r}] + c.c. \\ &= 6\varepsilon_0\chi^{(3)}E_1(\mathbf{r})E_2(\mathbf{r})E_4^*(\mathbf{r})e^{-i(\omega t + \mathbf{k}_4 \cdot \mathbf{r})} + c.c. \end{aligned}$$

这个非线性极化强度产生的信号波 $E_3(\mathbf{r}, t)$ 与 $E_4(\mathbf{r}, t)$ 不仅在光电场的振幅上是共轭的, $E_3(\mathbf{r}, t) \propto E_4^*(\mathbf{r}, t)$, 而且其波矢也为反号, 即 $\mathbf{k}_3 = -\mathbf{k}_4$ 。从这个意义上讲, 所产生的光波是时间逆转

的波。

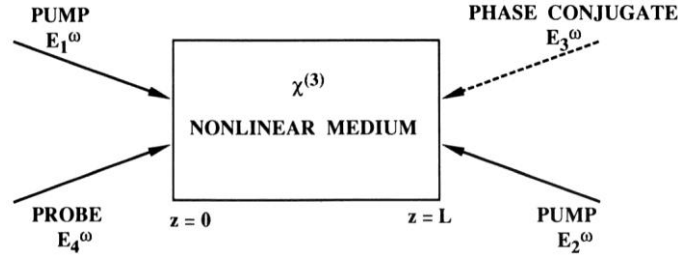


图 4.13 简并四波混频产生背向相位共轭几何配置

简并四波混频也可以从实时光栅的角度来考虑，如图 4.14 所示。 E_4 和 E_1 （或 E_2 ）干涉，通过三阶非线性效应引起折射率周期性变化，在介质中写成一个透射栅（或反射栅）， E_2 （或 E_1 ）读取这个栅产生的衍射信号即为相位共轭波 E_3 。

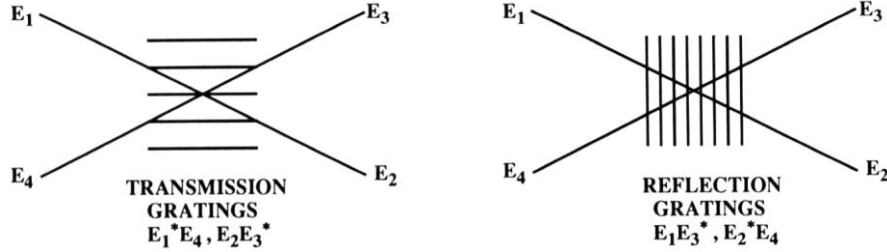


图 4.14 简并四波混频过程中所用到的透射栅和反射栅

其它的三阶效应还有光学双稳，受激拉曼散射和受激布里渊散射等。

4.4.5 高次谐波的产生

随着飞秒激光及其放大技术的成熟，超高强度的激光的获得为非线性光学提供了崭新的内容。当入射激光光强可以与原子核对电子的作用场强相当时，微扰理论下推导的有关非线性光学极化理论已不能成立，需要新的理论方法。下图是人们提出的准经典三步模型

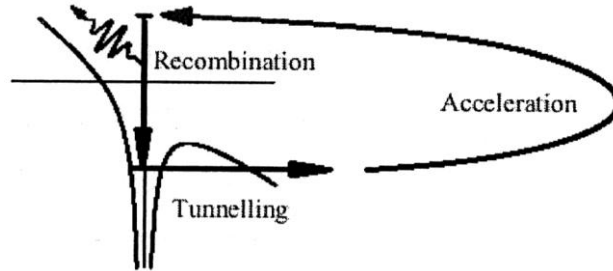


图 4.15 准经典三步模型：1)隧道电离获得准自由电子；2)电子在外场中加速，随外场改变方向；3)电子与母体离子复合，产生高次谐波。

强光作用下，气体介质的高次谐波可以达到几百次以上。高次谐波的产生为人们获得相干软 X 射线提供了有力的工具。基本实验结果一般是从 7 次谐波开始，各次奇次谐波的强度相当，即出现了平台的情况，然后在某一高次谐波后出现截止现象。目前，已获得的最短的谐波波长为 2.7nm 和 2.5nm。它们分别为 800nm 飞秒钛宝石激光的 297 次和 320 次谐波。（Phys. Rev. Lett. 79(1997)2967, 80(1998)3236）。

参考文献:

1. 《非线性光学— 原理与发展》 钱士雄 王恭明编著
2. 《非线性光学》 石顺祥 陈国夫 赵卫 刘继芳编著
3. Nonlinear optics, Robert W. Boyd 著
4. Optical phase conjugation, M. Gower, D. Proch 编

附录：非线性耦合波方程的推导

忽略吸收, $\sigma = 0$, 同频率 ω 的极化的波矢和光场的波矢不同是因为极化的波矢可能是由于与 ω 不同的两个其它频率和频、差频等引起的, 导致相位失配。将总电场和总极化强度代入非线性波动方程, 方程两侧取相同频率 ω_n 项。取稳态条件, 即 $\mathbf{E}_n, \mathbf{P}_n^{NL}$ 不随时间变化, 得:

$$\frac{\partial}{\partial z} \left[\frac{\partial \mathbf{E}_n}{\partial z} e^{i(k_n z - \omega_n t)} + i k_n \mathbf{E}_n e^{i(k_n z - \omega_n t)} \right] + \mu_0 \varepsilon \omega_n^2 \mathbf{E}_n e^{i(k_n z - \omega_n t)} = -\mu_0 \omega_n^2 \mathbf{P}_n^{NL} e^{i(k_n z - \omega_n t)}$$

将相位因子化简:

$$\frac{\partial^2 \mathbf{E}_n}{\partial z^2} + i k_n \frac{\partial \mathbf{E}_n}{\partial z} + i k_n \frac{\partial \mathbf{E}_n}{\partial z} - k_n^2 \mathbf{E}_n + \mu_0 \varepsilon \omega_n^2 \mathbf{E}_n = -\mu_0 \omega_n^2 \mathbf{P}_n^{NL} e^{i \Delta k z}$$

$$\Delta k = k_n' - k_n, \quad k_n^2 = \frac{n^2 \omega_n^2}{c^2} = \varepsilon_r \mu_0 \varepsilon_0 \omega_n^2 = \varepsilon \mu_0 \omega_n^2$$

得:

$$\frac{\partial^2 \mathbf{E}_n}{\partial z^2} + 2i k_n \frac{\partial \mathbf{E}_n}{\partial z} = -\mu_0 \omega_n^2 \mathbf{P}_n^{NL} e^{i \Delta k z} \quad (1)$$

采用空间的慢变振幅近似

$$\left| \frac{\partial^2 \mathbf{E}_n}{\partial z^2} \right| \ll \left| \mathbf{k}_n \cdot \frac{\partial \mathbf{E}_n}{\partial z} \right|$$

稳态条件下非线性耦合波方程为

$$\frac{\partial \mathbf{E}_n}{\partial z} = \frac{i \omega_n}{2 \varepsilon_0 c n} \mathbf{P}_n^{NL} e^{i \Delta k z}$$

由上式可以看到, 只要知道极化率、折射率和边界条件, 就可以求出各个频率的光场。

在计及光电场振幅随时间变化时

$$\begin{aligned} -\varepsilon \mu_0 \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} &= -\varepsilon \mu_0 \frac{\partial}{\partial t} \left[\frac{\partial \mathbf{E}_n}{\partial t} e^{i(k_n z - \omega_n t)} - \mathbf{E}_n i \omega_n e^{i(k_n z - \omega_n t)} \right] \\ &= -\varepsilon \mu_0 \left[\frac{\partial^2 \mathbf{E}_n}{\partial t^2} e^{i(k_n z - \omega_n t)} - \frac{\partial \mathbf{E}_n}{\partial t} i \omega_n e^{i(k_n z - \omega_n t)} - \frac{\partial \mathbf{E}_n}{\partial t} i \omega_n e^{i(k_n z - \omega_n t)} - \mathbf{E}_n \omega_n^2 e^{i(k_n z - \omega_n t)} \right] \\ &= -\varepsilon \mu_0 \frac{\partial^2 \mathbf{E}_n}{\partial t^2} e^{i(k_n z - \omega_n t)} + 2i \omega_n \varepsilon \mu_0 \frac{\partial \mathbf{E}_n}{\partial t} e^{i(k_n z - \omega_n t)} + \varepsilon \mu_0 \omega_n^2 \mathbf{E}_n e^{i(k_n z - \omega_n t)} \end{aligned}$$

上式比稳态情况多了等号右侧的前两项, 将这两项加入到方程(1)左侧得:

$$\frac{\partial^2 \mathbf{E}_n}{\partial z^2} + 2i k_n \frac{\partial \mathbf{E}_n}{\partial z} - \varepsilon \mu_0 \frac{\partial^2 \mathbf{E}_n}{\partial t^2} + 2i \omega_n \varepsilon \mu_0 \frac{\partial \mathbf{E}_n}{\partial t} = -\mu_0 \omega_n^2 \mathbf{P}_n^{NL} e^{i \Delta k z}$$

采用振幅的空间慢变近似和时间慢变近似:

$$\left| \frac{\partial^2 \mathbf{E}_n}{\partial t^2} \right| \ll \left| \omega_n \frac{\partial \mathbf{E}_n}{\partial t} \right|$$

$$2ik_n \frac{\partial \mathbf{E}_n}{\partial z} + 2i\omega_n \varepsilon \mu_0 \frac{\partial \mathbf{E}_n}{\partial t} = -\mu_0 \omega_n^2 \mathbf{P}_n^{NL} e^{i\Delta k z}$$

$$2i \frac{\omega_n n}{c} \frac{\partial \mathbf{E}_n}{\partial z} + 2i \frac{\omega_n n^2}{c^2} \frac{\partial \mathbf{E}_n}{\partial t} = -\frac{\omega_n^2}{\varepsilon_0 c^2} \mathbf{P}_n^{NL} e^{i\Delta k z}$$

$$\frac{\partial \mathbf{E}_n}{\partial z} + \frac{n}{c} \frac{\partial \mathbf{E}_n}{\partial t} = \frac{i\omega_n}{2\varepsilon_0 cn} \mathbf{P}_n^{NL} e^{i\Delta k z}$$

对于短脉冲在介质中的传播，应采用此方程。仅当光通过介质所花的时间 $T = Ln/c$ 内振幅变化不显著时，才可忽略方程中的时间导数。