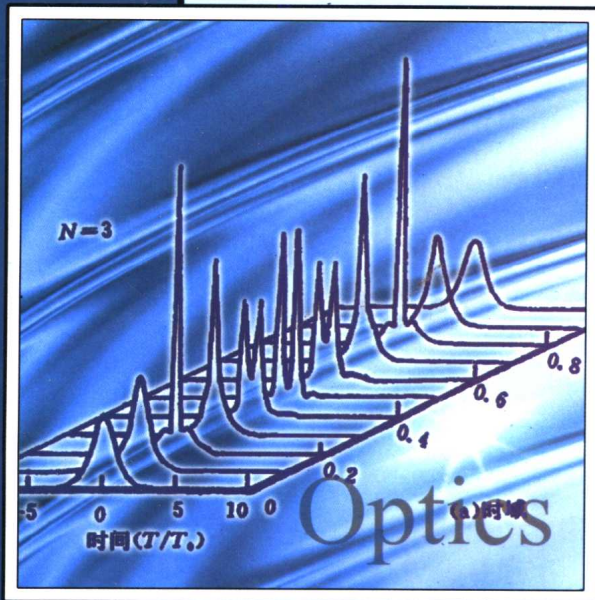




研究生系列教材

非线性光学



石顺祥
陈国夫
赵卫
刘继芳
编著

43

西安电子科技大学出版社
<http://www.xduph.com>

内 容 简 介

本书采用半经典理论体系,详尽地讲解了非线性光学的理论基础,讨论了一些当前重要的非线性光学学科分支,其内容包括光与物质相互作用的稳态过程、动态过程和瞬态过程。全书共分为10章:前三章为基本概念与原理,在简述非线性光学经典理论之后,利用量子力学理论和光的电磁理论讨论了物质对光的响应特性和辐射特性;第四、五章讨论了各种稳态二阶、三阶非线性光学效应;第六章讨论了瞬态相干光学效应;后面四章较系统地讨论了非线性光学领域中的四个分支内容:非线性光学相位共轭技术,光折变非线性光学,超短光脉冲非线性光学,光纤非线性光学。

本书可作为物理电子学、光学工程、光学以及物理等专业研究生“非线性光学”课程的教科书,亦可作为其它相关专业师生及科技人员的参考书。

图书在版编目(CIP)数据

非线性光学/石顺祥等编著.

—西安:西安电子科技大学出版社,2003.3

(研究生系列教材)

ISBN 7-5606-1201-6

I. 非… I. 石… III. 非线性光学—研究生—教材 IV. O437

中国版本图书馆 CIP 数据核字(2002)第 108864 号

策 划 夏大平

责任编辑 戚文艳 夏大平

出版发行 西安电子科技大学出版社(西安市太白南路2号)

电 话 (029)8227828 邮 编 710071

http://www.xduph.com E-mail: xdupfxb@pub.xaonline.com

经 销 新华书店

印 刷 西安文化彩印厂

版 次 2003年3月第1版 2003年3月第1次印刷

开 本 787毫米×1092毫米 1/16 印张 29.75

字 数 708千字

印 数 1~2000册

定 价 40.00元

ISBN 7-5606-1201-6/O·0061

XDUP 1472001-1

如有印装问题可调换

研究生系列教材

西安电子科技大学
研究生教材建设基金资助

序

非线性光学是随着激光技术的出现而发展形成的一门新兴的学科分支，是近代科学前沿最为活跃的学科领域之一。非线性光学研究光和物质相互作用过程中出现的一系列新现象，探索光和物质相互作用的本质和规律，为一系列具有重要应用价值的科学技术提供了新的物理基础。数十年来，非线性光学的研究取得了丰硕的成果，极大地推动了科学技术的发展，而非线性光学学科本身在此过程中也在不断提高、发展与完善。

非线性光学的研究，正逐渐从认识光和物质相互作用过程的现象、本质和规律性转向利用非线性光学原理产生极端物质条件所需的非线性光学过程，这些过程的实现孕育着科学技术上的重大突破。此等非线性过程所提供的技术，诸如阿托秒(10^{-18} s)超短光脉冲，百太瓦以上超强光脉冲，太赫以上重复频率光脉冲及其开关器件，由非线性高次谐波获得的真空紫外线乃至X射线波段的相干光源，光孤子技术，生物活体中超弱发光的非线性特征等等，均引起科学界的普遍关注，对未来科学技术的发展必将产生深远的影响。

西安电子科技大学石顺祥教授、西安光机所陈国夫研究员及其研究集体，长期从事非线性光学、超短光脉冲技术的研究工作，在理论和实践上很有建树，取得了许多有创造性的研究成果。他们还长期从事非线性光学的研究生教学工作，并编著了在国内颇有影响的非线性光学研究生教材。现在，他们又根据需要编著了这本《非线性光学》研究生教材，这是一件很有意义的工作。

这本书是一本半经典理论系统的非线性光学教科书。实际上，用半经典理论已能处理绝大部分非线性光学的学科内容。该书详尽地讲解了非线性光学理论基础，系统地讨论了一些当前重要的非线性光学学科分支，其内容包括光与物质相互作用的稳态过程、动态过程和瞬态过程，取材先进，科学性强，特别是该书注重理论与实验相结合，并有作者自己的研究成果。全书内容取舍恰当、条理清楚、层次分明、逻辑性强，符合由简入繁、由浅入深的认识规律，是一本很有特色的好书，特别适合于研究生教学，并可提供相关专业科技人员参考使用。相信这本书的出版，将会对我国非线性光学的发展及研究生培养发挥重要作用。

刘頌豪

中国科学院院士

2002年10月8日

前 言

非线性光学是激光问世后发展起来的一门新兴的学科分支，并已成为近代科学前沿最为活跃的学科领域之一。数十年来，我国的非线性光学研究得到了飞速的发展，取得了丰硕的成果。为适应我国非线性光学发展的形势，为培养该领域及相关专业研究生的需要，我们在长期从事科学研究、研究生培养以及为研究生开设“非线性光学”课程和编写教材的基础上，编著了这本《非线性光学》教科书。

本书采用半经典理论体系讨论非线性光学现象，详尽地讲解了非线性光学的理论基础，讨论了一些当前重要的非线性光学的学科分支，其内容包括光与物质相互作用的稳态过程、动态过程和瞬态过程。全书共分为10章：前三章为基本概念与原理，在简述非线性光学经典理论之后，利用量子力学理论和光的电磁理论讨论了物质对光的响应特性和辐射特性；第四、五章讨论了各种稳态二阶与三阶非线性光学效应；第六章讨论了瞬态相干光学效应；后面四章分别较系统地讨论了非线性光学领域中的四个分支内容：非线性光学相位共轭技术，光折变非线性光学，超短光脉冲非线性光学，光纤非线性光学。在内容选取上，既注意非线性光学学科的理论系统性，又注意取材的先进性，特别注重物理概念及理论与实验的结合。在内容编写中，特别注意科学性、逻辑性及符合由浅入深的认识规律。为便于教学和读者自学，每一章都选编了部分习题，并给出了主要的参考文献。

本书由石顺祥主编，石顺祥编写第一至六章，刘继芳编写第七、八章，陈国夫编写第九章，赵卫编写第十章。

在本书的定稿过程中，西北大学张纪岳教授审阅了全部书稿并提出了许多宝贵意见，在此表示感谢。在本书的编写过程中，得到了西安电子科技大学研究生院、中科院西安光机所研究生部、瞬态光学技术国家重点实验室及西安电子科技大学激光教研室的支持和帮助，在此也一并表示感谢。

由于作者水平有限，不妥或错误之处在所难免，恳望读者批评指正。

此书的出版得到了西安电子科技大学研究生教材建设基金的资助。

作 者

2002年10月

目 录

绪论	1
第一章 非线性光学极化率的经典描述	3
1.1 极化率的色散特性	3
1.2 非线性光学极化率的经典描述	9
1.3 极化率的一般性质	14
习题	17
参考文献	17
第二章 非线性光学极化率的量子力学描述	19
2.1 密度算符及其运动方程	19
2.2 非线性极化率的微扰理论	25
2.3 近独立分子体系的极化率张量及性质	33
2.4 分子间有弱相互作用介质的极化率张量	46
2.5 共振增强的极化率	50
2.6 准单色波的非线性极化	58
2.7 带电粒子可自由移动介质的极化率	62
2.8 有效场极化率	67
2.9 二能级原子系统的极化率	69
习题	73
参考文献	73
第三章 光波在非线性介质中传播的基本方程	75
3.1 光波在各向异性晶体中的传播特性	75
3.2 介质损耗对光波传播的影响	87
3.3 非线性光学耦合波方程	88
3.4 非线性介质中的场能量	92
3.5 非线性光学相位匹配	94
习题	111
参考文献	111
第四章 二阶非线性光学效应	113
4.1 线性电光效应	113
4.2 光整流效应	123
4.3 三波混频及和频、差频产生	124
4.4 二次谐波产生	131
4.5 参量转换	144

4.6 参量放大与参量振荡	147
习题	160
参考文献	161
第五章 三阶非线性光学效应	163
5.1 克尔效应与自聚焦现象	163
5.2 三次谐波产生	176
5.3 四波混频	181
5.4 双光子吸收	197
5.5 受激喇曼散射(SRS)	203
5.6 受激布里渊散射(SBS)	215
5.7 受激光散射现象的一般考虑	224
习题	225
参考文献	225
第六章 瞬态相干光学效应	228
6.1 瞬态相干光学作用概述	228
6.2 光与二能级原子系统相互作用的矢量描述	229
6.3 光学章动效应	242
6.4 光学自由感应衰减效应	246
6.5 光子回波效应	249
6.6 自感应透明效应	254
习题	267
参考文献	267
第七章 光学相位共轭技术	268
7.1 相位共轭波及其物理意义	268
7.2 三波混频相位共轭技术	272
7.3 四波混频相位共轭技术	279
7.4 受激布里渊散射(SBS)光学相位共轭技术	287
7.5 光子回波光学相位共轭技术	291
7.6 光学相位共轭技术的应用	298
习题	309
参考文献	309
第八章 光折变非线性光学	311
8.1 光折变效应动力学基础	311
8.2 光折变晶体中的二波混频及光放大	323
8.3 光折变晶体中的简并四波混频及相位共轭光	335
8.4 光折变晶体中光波的传播与自聚焦	341
8.5 光折变材料及其性能参数	348
8.6 光折变非线性光学应用	358
习题	367

参考文献	367
第九章 超短光脉冲非线性光学	368
9.1 超短光脉冲的传播方程	368
9.2 超短脉冲的二次谐波产生	374
9.3 超短光脉冲的参量作用和放大	380
9.4 非线性相位调制	390
9.5 飞秒脉冲的自聚焦	396
9.6 超短脉冲的产生	399
9.7 飞秒激光器中的孤子	406
习题	412
参考文献	412
第十章 光纤非线性光学	414
10.1 光纤的线性特性	414
10.2 光传输的基本方程	417
10.3 光信号在色散光纤中的传输	420
10.4 光纤中的克尔效应	424
10.5 自相位调制(SPM)	426
10.6 交叉相位调制(XPM)	429
10.7 四波混频(FWM)效应	434
10.8 受激非弹性散射	439
10.9 光纤中的光孤子	444
习题	455
参考文献	457
附录 各类晶体的极化率张量形式	459
附录一 七类晶体和各向同性介质的线性极化率张量 $\chi^{(1)}(\omega)$ 形式	459
附录二 七类晶体和各向同性介质的二阶极化率张量 $\chi^{(2)}(\omega_1, \omega_2)$ 形式	460
附录三 32种晶类和各向同性介质的三阶极化率张量 $\chi^{(3)}(\omega_1, \omega_2, \omega_3)$ 形式	462

绪 论

混沌初开,世界就是非线性的。与其它任何物理现象一样,光学现象从根本上来讲也是非线性的。

众所周知,光在介质中的传播过程就是光与物质相互作用的过程。对于这样一个动态过程,可以视为两个分过程:介质对光的响应过程和介质的辐射过程。如果介质对光的响应呈线性关系,其光学现象属于线性光学范畴,在这个范畴内,光在介质中的传播满足独立传播原理和线性叠加原理;如果介质对光的响应呈非线性关系,光学现象属于非线性光学范畴,此时,光在介质中传播会产生新的频率,不同频率的光波之间会产生耦合,独立传播原理和线性叠加原理不再成立。

介质对光的响应可以表现为热响应、电致伸缩响应、电子轨道畸变响应、光折变响应、光极化响应等等,不同的响应可以用不同的物理参量表征,但就其非线性光学响应而言,描述方法相同。在非线性光学理论中,通常采用光在介质中引起的极化响应过程来描述光与介质的相互作用、光在介质中的传播特性。对于线性光学现象而言,光在介质中引起的极化强度 P 与光电场 E 的关系为

$$P = \epsilon_0 \chi \cdot E$$

式中,表征介质对光极化特性的极化率张量 χ 是与光电场 E 无关的常量。对于非线性光学现象,光在介质中引起的极化强度 P 与光电场 E 的关系为

$$P = \epsilon_0 \chi(E) \cdot E$$

式中,表征介质对光极化特性的极化率张量 χ 与光电场 E 有关。

对于非线性光学过程,当入射光频率远离介质共振区或入射光比较弱时,极化强度与入射光电场的关系可以采用下面的级数形式表示:

$$\begin{aligned} P &= \epsilon_0 \chi^{(1)} \cdot E + \epsilon_0 \chi^{(2)} : EE + \epsilon_0 \chi^{(3)} : EEE + \dots \\ &= P^{(1)} + P^{(2)} + P^{(3)} + \dots \end{aligned}$$

式中, $\chi^{(1)}$ 是一阶极化率或线性极化率,它是二阶张量; $\chi^{(2)}$ 是二阶极化率,它是三阶张量; $\chi^{(3)}$ 是三阶极化率,它是四阶张量……; $P^{(1)}$ 、 $P^{(2)}$ 、 $P^{(3)}$ ……分别是一阶(或线性)、二阶、三阶……极化强度。由非线性光学理论可以证明^[1],上式相邻两项的大小之比为

$$\left| \frac{P^{(n+1)}}{P^{(n)}} \right| \sim \left| \frac{E}{E_{\text{原子}}} \right|$$

式中, $E_{\text{原子}}$ 是介质中的原子内场,典型值为 3×10^{10} V/m。在激光出现之前,一般光源所产生的光场即使经过聚焦也远小于 $E_{\text{原子}}$,因此,很难观察到非线性光学现象。1960年激光器诞生,特别是随着调Q激光技术的发展,使得所产生的激光很容易达到这样的强度。于是,在1961年,美国密执安大学的夫朗肯(Franken)等人^[2]利用红宝石激光器首次进行了二次谐波产生的非线性光学实验,继后,布卢姆伯根(Bloembergen)等人^[3]在1962年对光

学混频进行了开创性的理论工作。从这时起,非线性光学开始诞生,并逐渐形成为光学的一门分支学科。经过人们40余年的研究,非线性光学作为一门崭新的学科分支得到了飞速的发展,并使古老的光学学科焕发了青春。

非线性光学的发展经历了几个阶段:20世纪60年代主要进行了二次谐波产生、和频、差频、双光子吸收、受激喇曼(Raman)散射、受激布里渊(Brillouin)散射、光参量振荡、自聚焦、光子回波、自感应透明等非线性光学现象的观察和研究;20世纪70年代人们更深入地研究了上述现象,并进行了自旋反转受激喇曼散射、光学悬浮、消多普勒(Doppler)加宽、双光子吸收光谱技术、相干反斯托克斯(Stoker)喇曼光谱学、非线性光学相位共轭技术、光学双稳效应等非线性光学现象的研究;20世纪80年代,倍受人们注意的非线性光学新研究课题是光学分叉和混沌、光的压缩态、多光子原子电离现象等。目前,非线性光学已逐渐由基础研究阶段进入应用基础研究和应用研究阶段。

研究非线性光学的意义在于,首先,可以开拓新的相干光波段,提供从远红外(8~14 μm)到亚毫米波,从真空紫外到X射线的各种波段的相干光源。其次,可以解决诸如自聚焦、激光打靶中的受激喇曼散射、受激布里渊散射等损耗的激光技术问题。第三,可以提供一些新技术,并向其它学科渗透,促进它们的发展。例如,伴随非线性光学的发展,出现了非线性激光光谱学,大大提高了光谱分辨率;通过非线性光学相位共轭的研究,发展起了非线性光学相位共轭技术,促进了自适应光学的发展,改善了激光束的质量;在光纤和光波导非线性光学中,研究了光纤光孤子的产生和传输,推动了光孤子通信的发展;表面、界面与多量子阱非线性过程的研究,已成为探测表面物理和化学的工具。第四,由于非线性光学现象是光与物质相互作用的体现,因而可以利用非线性光学研究物质结构,并且对于许多非线性光学现象的研究,已经成为获取原子、分子微观性质信息的一种手段。

为了推动非线性光学在我国的发展,作者在长期为研究生讲授“非线性光学”课程、编写《非线性光学》(过巴吉主编,1986年出版)教材和进行非线性光学研究的基础上,编著了这本《非线性光学》研究生教材。全书共有10章,前六章为非线性光学的理论基础,后四章讨论了当前非线性光学研究领域中的几个重要分支内容。第一章讲述了非线性光学极化率的经典描述,将原子中的运动电子视为服从经典力学的电偶极子,给出了非线性光学极化率的表示式和性质;第二章至第六章重点讨论了光和物质相互作用的半经典理论,即采用经典麦克斯韦(Maxwell)方程组描述光频电磁场,采用量子力学描述物质的原子特性,为求解非线性光学极化率,采用了微扰理论、二能级原子系统与光场的相互作用理论和矢量描述理论,并进一步介绍了光在介质中传播时的稳态二阶、三阶非线性光学效应和瞬态相干光学效应;第七章至第十章讨论了非线性光学相位共轭技术、光折变非线性光学、超短光脉冲非线性光学和光纤非线性光学,这些章节可以说是非线性光学理论的具体应用,也可以看作是包括作者在内、人们在非线性光学领域对这些内容所进行的研究工作的总结。

参 考 文 献

- [1] Shen Y R. The Principles of Nonlinear Optics. John Wiley & Sons, Inc., 1984, 4
- [2] Franken P A, et al. Phys. Rev. Lett., 1961, 7:118
- [3] Bloembergen N. Nonlinear Optics. Benjamin, New York, 1965

第一章 非线性光学极化率的经典描述

本章从经典电偶极振子模型出发，导出了非线性光学极化率的表示式，并简单地介绍了极化率张量的一些基本性质。

1.1 极化率的色散特性

1.1.1 介质中的麦克斯韦方程

由光的电磁理论已知，光波是光频电磁波，它在介质中的传播规律遵从麦克斯韦方程组：

$$\left. \begin{aligned} \nabla \times \mathbf{E} &= -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} \\ \nabla \times \mathbf{H} &= \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t} + \mathbf{J} \\ \nabla \cdot \mathbf{D} &= \rho \\ \nabla \cdot \mathbf{H} &= 0 \end{aligned} \right\} \quad (1.1-1)$$

及物质方程：

$$\left. \begin{aligned} \mathbf{D} &= \epsilon_0 \mathbf{E} + \mathbf{P} \\ \mathbf{B} &= \mu_0 \mathbf{H} + \mu_0 \mathbf{M} \\ \mathbf{J} &= \sigma \mathbf{E} \end{aligned} \right\} \quad (1.1-2)$$

上面两式中的 \mathbf{J} 和 ρ 分别为介质中的自由电流密度和自由电荷密度， \mathbf{M} 为磁化强度， ϵ_0 为真空介电常数， μ_0 为真空磁导率， σ 为介质的电导率， \mathbf{P} 是介质的极化强度。由于我们研究的光与物质相互作用主要是电作用，可以假定介质是非磁性的，而且无自由电荷，即 $\mathbf{M}=0$ ， $\mathbf{J}=0$ ， $\rho=0$ 。所以，上述方程可简化为

$$\left. \begin{aligned} \nabla \times \mathbf{E} &= -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} \\ \nabla \times \mathbf{H} &= \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t} \\ \nabla \cdot \mathbf{D} &= 0 \\ \nabla \cdot \mathbf{B} &= 0 \end{aligned} \right\} \quad (1.1-3)$$

$$\left. \begin{aligned} \mathbf{D} &= \epsilon_0 \mathbf{E} + \mathbf{P} = \boldsymbol{\epsilon} \cdot \mathbf{E} \\ \mathbf{B} &= \mu_0 \mathbf{H} \end{aligned} \right\} \quad (1.1-4)$$

式中， $\boldsymbol{\epsilon}$ 是介质的介电张量。在本书中，我们均采用国际单位制。

光在介质中传播时，由于光电场的作用，将产生极化强度。若考虑到非线性相互作用，

则极化强度应包含线性项和非线性项, 即

$$\mathbf{P} = \mathbf{P}_L + \mathbf{P}_{NL} \quad (1.1-5)$$

当光电场强度很低时, 可以忽略非线性项 \mathbf{P}_{NL} , 仅保留线性项 \mathbf{P}_L , 这就是通常的线性光学问题。当光电场强度较高时, 必须考虑非线性项 \mathbf{P}_{NL} , 并可以将非线性极化强度写成级数形式:

$$\mathbf{P}_{NL} = \mathbf{P}^{(2)} + \mathbf{P}^{(3)} + \cdots + \mathbf{P}^{(r)} + \cdots \quad (1.1-6)$$

其中, $\mathbf{P}^{(r)}$ 是与光电场 \mathbf{E} 的 r 次方有关的非线性极化强度分量, 称为 r 阶非线性极化强度。在这里, 只考虑电偶极矩近似, 完全忽略电四极矩及多极矩的影响。当光电场强度很高时, 上述级数形式不再成立。特别是, 当光电场强度非常高时, 光作用于介质将会产生许多新的光学现象, 例如, 激光产生和加热等离子体, 激光感生粒子发射, 激光产生气体击穿等, 此时的光学现象可归于强光光学的研究范畴。

在本书中, 除了特别指明外, 光电场和极化强度均采用通常的复数表示法。对于实光电场 $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$, 其表示式为

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{E}_0(\mathbf{r}) \cos(\omega t + \varphi) \quad (1.1-7)$$

或

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{E}(\omega) e^{-i\omega t} + \mathbf{E}^*(\omega) e^{i\omega t} \quad (1.1-8)$$

式中的 $\mathbf{E}(\omega)$ 为频域复振幅, 且有

$$\mathbf{E}(\omega) = \frac{1}{2} \mathbf{E}_0(\mathbf{r}) e^{-i\varphi(\mathbf{r})} \quad (1.1-9)$$

$\mathbf{E}_0(\mathbf{r})$ 是光电场中的实振幅大小。对于极化强度, 其表示式为

$$\mathbf{P}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{P}(\omega) e^{-i\omega t} + \mathbf{P}^*(\omega) e^{i\omega t} \quad (1.1-10)$$

式中的 $\mathbf{P}(\omega)$ 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

$$\mathbf{E}^*(\omega) = \mathbf{E}(-\omega) \quad (1.1-11)$$

$$\mathbf{P}^*(\omega) = \mathbf{P}(-\omega) \quad (1.1-12)$$

1.1.2 极化率的色散特性

1. 介质极化的响应函数

1) 线性响应函数

众所周知, 因果性原理是物理学中的普遍规律。当光在介质中传播时, t 时刻介质所感应的线性极化强度 $\mathbf{P}(t)$ 不仅与 t 时刻的光电场 $\mathbf{E}(t)$ 有关, 还与 t 时刻前所有的光电场有关, 也就是说, t 时刻的感应极化强度与产生极化的光电场的历史有关。

现假定在时刻 t 以前任一时刻 τ 的光电场为 $\mathbf{E}(\tau)$, 它对在时间间隔 $(t-\tau)$ 以后的极化强度的贡献为 $d\mathbf{P}(t)$, 且有

$$d\mathbf{P}(t) = \epsilon_0 \mathbf{R}(t-\tau) \cdot \mathbf{E}(\tau) d\tau \quad (1.1-13)$$

式中, $\mathbf{R}(t-\tau)$ 为介质的线性响应函数, 它是一个二阶张量, 则 t 时刻的感应极化强度为

$$\mathbf{P}(t) = \int_{-\infty}^t \epsilon_0 \mathbf{R}(t-\tau) \cdot \mathbf{E}(\tau) d\tau \quad (1.1-14)$$

对上式进行变量代换, 将 $(t-\tau)$ 用 τ' 代替, 则有

$$P(t) = - \int_{-\infty}^0 \epsilon_0 \mathbf{R}(\tau') \cdot \mathbf{E}(t - \tau') d\tau'$$

考虑到积分变量的任意性, 用 τ 替换 τ' , 上式变为

$$P(t) = \int_0^{\infty} \epsilon_0 \mathbf{R}(\tau) \cdot \mathbf{E}(t - \tau) d\tau \quad (1.1-15)$$

这就是说, 在介质中, t 时刻所感应的极化强度由 t 时刻前所有 $(t - \tau)$ 时刻 $(\tau > 0)$ 的光电场所确定。实际上, (1.1-14) 式就是极化强度与光电场之间的普遍关系, 也就是介质极化响应因果性原理的数学表达式。

另外, 由因果性原理, $t' > t$ 时的光电场 $\mathbf{E}(t')$ 对 $P(t)$ 是没有贡献的, 即在 (1.1-14) 式中,

$$\mathbf{R}(t - \tau) = 0 \quad \tau > t \quad (1.1-16)$$

所以有

$$\begin{aligned} P(t) &= \int_{-\infty}^{\infty} \epsilon_0 \mathbf{R}(t - \tau) \cdot \mathbf{E}(\tau) d\tau \\ &= \int_{-\infty}^{\infty} \epsilon_0 \mathbf{R}(\tau) \cdot \mathbf{E}(t - \tau) d\tau \end{aligned} \quad (1.1-17)$$

因为光电场 $\mathbf{E}(t)$ 和极化强度 $P(t)$ 都是实函数, 所以线性响应函数 $\mathbf{R}(\tau)$ 必须是实函数才能保证上式成立, 这个条件就是响应函数所满足的真实性条件。

2) 非线性响应函数

对于二阶非线性极化强度 $P^{(2)}(t)$, 它与光电场 $\mathbf{E}(t)$ 成二次方关系, 按因果性原理应有

$$P^{(2)}(t) = \epsilon_0 \int_{-\infty}^{\infty} d\tau_1 \int_{-\infty}^{\infty} d\tau_2 \mathbf{R}^{(2)}(\tau_1, \tau_2) : \mathbf{E}(t - \tau_1) \mathbf{E}(t - \tau_2) \quad (1.1-18)$$

式中, $\mathbf{R}^{(2)}(\tau_1, \tau_2)$ 是三阶张量, 称为介质的二阶极化响应函数。

同样, 对于 r 阶非线性极化强度 $P^{(r)}(t)$ 而言, 有

$$P^{(r)}(t) = \epsilon_0 \int_{-\infty}^{\infty} d\tau_1 \int_{-\infty}^{\infty} d\tau_2 \cdots \int_{-\infty}^{\infty} d\tau_r \mathbf{R}^{(r)}(\tau_1, \tau_2, \dots, \tau_r) | \mathbf{E}(t - \tau_1) \mathbf{E}(t - \tau_2) \cdots \mathbf{E}(t - \tau_r) \quad (1.1-19)$$

式中, $\mathbf{R}^{(r)}(\tau_1, \tau_2, \dots, \tau_r)$ 是 $(r+1)$ 阶张量, 称为介质的 r 阶极化响应函数, $\mathbf{R}^{(r)}(\tau_1, \tau_2, \dots, \tau_r)$ 与 $\mathbf{E}(t - \tau_i)$ 之间的竖线表示 r 个点。

2. 介质极化率的频率色散

上面, 我们在时间域内讨论了介质的极化强度与光电场的关系, 引入了介质极化的响应函数。如果响应函数已知, 原则上可以对介质的光学性质给出完整的描述。但实际上, 由于非线性光学经常是在频率域内讨论介质的极化过程, 因此, 通常采用的不是响应函数, 而是介质极化率张量。下面, 我们通过傅里叶变换引入介质极化率张量, 并讨论其色散关系。

1) 线性极化率张量

对于 (1.1-15) 式所表示的线性极化强度关系, 取 $\mathbf{E}(t)$ 和 $P^{(1)}(t)$ 的傅里叶变换:

$$\mathbf{E}(t) = \int_{-\infty}^{\infty} \mathbf{E}(\omega) e^{-i\omega t} d\omega \quad (1.1-20)$$

$$P^{(1)}(t) = \int_{-\infty}^{\infty} P^{(1)}(\omega) e^{-i\omega t} d\omega \quad (1.1-21)$$

则有

$$\begin{aligned} \mathbf{P}^{(1)}(t) &= \int_{-\infty}^{\infty} \mathbf{P}^{(1)}(\omega) e^{-i\omega t} d\omega \\ &= \int_{-\infty}^{\infty} \epsilon_0 \mathbf{R}^{(1)}(\tau) \cdot \int_{-\infty}^{\infty} \mathbf{E}(\omega) e^{-i\omega(t-\tau)} d\omega d\tau \end{aligned} \quad (1.1-22)$$

利用频率域内线性极化强度 $\mathbf{P}^{(1)}(\omega)$ 与光电场 $\mathbf{E}(\omega)$ 的定义关系式

$$\mathbf{P}^{(1)}(\omega) = \epsilon_0 \chi^{(1)}(\omega) \cdot \mathbf{E}(\omega) \quad (1.1-23)$$

有

$$\mathbf{P}^{(1)}(t) = \epsilon_0 \int_{-\infty}^{\infty} \chi^{(1)}(\omega) \cdot \mathbf{E}(\omega) e^{-i\omega t} d\omega \quad (1.1-24)$$

比较(1.1-22)式和(1.1-24)式, 可得

$$\chi^{(1)}(\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} \mathbf{R}^{(1)}(\tau) e^{i\omega\tau} d\tau \quad (1.1-25)$$

(1.1-24)式和(1.1-25)式就是线性极化强度 $\mathbf{P}^{(1)}(t)$ 和线性极化率张量 $\chi^{(1)}(\omega)$ 的表示式。

由此可见, 线性极化率张量是频率的函数, 所表征的介质频率色散特性乃是因果性原理的直接结果。再由(1.1-25)式关系可见, 如果频率 ω 是复数, 即 $\omega = \omega' + i\omega''$, 则当 $\omega'' > 0$ 时, 在复数频率平面的上半平面内有

$$\chi^{(1)}(\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} \mathbf{R}^{(1)}(\tau) e^{i(\omega' + i\omega'')\tau} d\tau \quad (1.1-26)$$

式中的被积函数含有指数衰减因子 $\exp(-\omega''\tau)$, 因而上式积分是收敛的。这样, 在复数频率的上半平面内, $\chi^{(1)}(\omega)$ 是一个解析函数。

线性极化率 $\chi^{(1)}(\omega)$ 是一个复数, $\chi^{(1)}(\omega) = \chi'(\omega) + i\chi''(\omega)$, 其实部与虚部之间的关系称为色散关系, 由所谓克雷默斯—克朗尼(Kramers-Kronig)关系^[1]给出:

$$\chi'(\omega) = \frac{1}{\pi} \text{P. V.} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\chi''(\Omega)}{\Omega - \omega} d\Omega \quad (1.1-27)$$

$$\chi''(\omega) = -\frac{1}{\pi} \text{P. V.} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\chi'(\Omega)}{\Omega - \omega} d\Omega \quad (1.1-28)$$

式中, P. V. 表示柯西主值积分。

如果极化率 $\chi^{(1)}$ 满足交叉对称关系

$$\chi^{(1)*}(\omega) = \chi^{(1)}(-\omega) \quad (1.1-29)$$

则有

$$\chi'(\omega) = \chi'(-\omega) \quad (1.1-30)$$

$$\chi''(\omega) = -\chi''(-\omega) \quad (1.1-31)$$

即 $\chi'(\omega)$ 是频率 ω 的偶函数, $\chi''(\omega)$ 是频率 ω 的奇函数。这时, (1.1-27)式和(1.1-28)式便分别变为

$$\chi'(\omega) = \frac{2}{\pi} \text{P. V.} \int_0^{\infty} \frac{\chi''(\Omega)\Omega}{\Omega^2 - \omega^2} d\Omega \quad (1.1-32)$$

$$\chi''(\omega) = -\frac{2\omega}{\pi} \text{P. V.} \int_0^{\infty} \frac{\chi'(\Omega)}{\Omega^2 - \omega^2} d\Omega \quad (1.1-33)$$

由 $\chi^{(1)}(\omega)$ 的色散关系可知, 只要我们知道极化率实部或虚部中的任何一个, 便可通过色散

关系求出另外一个,从而获得介质极化的全部知识。

2) 非线性极化率张量

对于非线性极化强度,进行类似上面的处理,可以得到非线性极化率张量关系式。

将(1.1-18)式中的光电场 $E(t)$ 进行傅里叶变换,可得

$$P^{(2)}(t) = \epsilon_0 \int_{-\infty}^{\infty} d\tau_1 \int_{-\infty}^{\infty} d\tau_2 R^{(2)}(\tau_1, \tau_2) : \int_{-\infty}^{\infty} d\omega_1 \int_{-\infty}^{\infty} d\omega_2 E(\omega_1) E(\omega_2) e^{-i(\omega_1 + \omega_2)t} e^{i(\omega_1 \tau_1 + \omega_2 \tau_2)} \quad (1.1-34)$$

若将二阶非线性极化强度表示成如下形式:

$$P^{(2)}(t) = \epsilon_0 \int_{-\infty}^{\infty} d\omega_1 \int_{-\infty}^{\infty} d\omega_2 \chi^{(2)}(\omega_1, \omega_2) : E(\omega_1) E(\omega_2) e^{-i(\omega_1 + \omega_2)t} \quad (1.1-35)$$

并与(1.1-34)式进行比较,可以得到二阶极化率张量表示式为

$$\chi^{(2)}(\omega_1, \omega_2) = \int_{-\infty}^{\infty} d\tau_1 \int_{-\infty}^{\infty} d\tau_2 R^{(2)}(\tau_1, \tau_2) e^{i(\omega_1 \tau_1 + \omega_2 \tau_2)} \quad (1.1-36)$$

同理,若将 r 阶非线性极化强度表示为

$$P^{(r)}(t) = \epsilon_0 \int_{-\infty}^{\infty} d\omega_1 \int_{-\infty}^{\infty} d\omega_2 \cdots \int_{-\infty}^{\infty} d\omega_r \chi^{(r)}(\omega_1, \omega_2, \dots, \omega_r) | E(\omega_1) E(\omega_2) \cdots E(\omega_r) e^{-i \sum_{m=1}^r \omega_m t} \quad (1.1-37)$$

式中, $\chi^{(r)}(\omega_1, \omega_2, \dots, \omega_r)$ 与 $E(\omega_i)$ 之间的竖线表示 r 个点,则第 r 阶极化率张量表示式为

$$\chi^{(r)}(\omega_1, \omega_2, \dots, \omega_r) = \int_{-\infty}^{\infty} d\tau_1 \int_{-\infty}^{\infty} d\tau_2 \cdots \int_{-\infty}^{\infty} d\tau_r R^{(r)}(\tau_1, \tau_2, \dots, \tau_r) e^{i(\omega_1 \tau_1 + \omega_2 \tau_2 + \cdots + \omega_r \tau_r)} \quad (1.1-38)$$

如果组成光波的各个频率分量是不连续的,则极化强度表示式中的积分应由求和代替,表示式为

$$P^{(1)}(t) = \sum_n \epsilon_0 \chi^{(1)}(\omega_n) \cdot E(\omega_n) e^{-i\omega_n t} \quad (1.1-39)$$

$$P^{(2)}(t) = \sum_{m,n} \epsilon_0 \chi^{(2)}(\omega_m, \omega_n) : E(\omega_m) E(\omega_n) e^{-i(\omega_m + \omega_n)t} \quad (1.1-40)$$

$$P^{(3)}(t) = \sum_{m,n,l} \epsilon_0 \chi^{(3)}(\omega_m, \omega_n, \omega_l) : E(\omega_m) E(\omega_n) E(\omega_l) e^{-i(\omega_m + \omega_n + \omega_l)t} \quad (1.1-41)$$

⋮

$$P^{(r)}(t) = \sum_{\alpha_1, \alpha_2, \dots, \alpha_r} \epsilon_0 \chi^{(r)}(\omega_{\alpha_1}, \omega_{\alpha_2}, \dots, \omega_{\alpha_r}) | E(\omega_{\alpha_1}) E(\omega_{\alpha_2}) \cdots E(\omega_{\alpha_r}) e^{-i \sum_{m=1}^r \omega_m t} \quad (1.1-42)$$

式中, $m, n, l, \alpha_1, \alpha_2, \dots, \alpha_r$ 包括所有的正值和负值。

通常可以将上面的极化强度矢量关系写成其分量表示形式。例如,二阶极化强度分量的表示式为

$$P_{\mu}^{(2)}(t) = \epsilon_0 \sum_{\substack{m,n \\ \alpha,\beta}} \chi_{\mu\alpha\beta}^{(2)}(\omega_m, \omega_n) E_{\alpha}(\omega_m) E_{\beta}(\omega_n) e^{-i(\omega_m + \omega_n)t} \quad (1.1-43)$$

式中, $\chi_{\mu\alpha\beta}^{(2)}(\omega_m, \omega_n)$ 是二阶极化率张量分量, $\mu, \alpha, \beta = x, y, z$ 。在该式中的任意一项

$$\chi_{\mu\alpha\beta}^{(2)}(\omega_m, \omega_n) E_{\alpha}(\omega_m) E_{\beta}(\omega_n) e^{-i(\omega_m + \omega_n)t}$$

表示由频率为 ω_m 、振动方向为 α 的光电场分量 $E_{\alpha}(\omega_m)$ 和频率为 ω_n 、振动方向为 β 的光电场

分量 $E_\beta(\omega_m)$, 通过二阶非线性相互作用产生的在 μ 方向上振动且频率为 $(\omega_m + \omega_n)$ 的二阶极化强度分量 $P_\mu^{(2)}(\omega_m + \omega_n, t)$ 。考虑到爱因斯坦(Einstein)求和规则, 可以省略(1.1-43)式中对 α, β 的求和号, 表示为

$$P_\mu^{(2)}(t) = \epsilon_0 \sum_{m,n} \chi_{\mu\alpha\beta}^{(2)}(\omega_m, \omega_n) E_\alpha(\omega_m) E_\beta(\omega_n) e^{-i(\omega_m + \omega_n)t} \quad (1.1-44)$$

同理, 三阶极化强度分量的一般表示式为

$$P_\mu^{(3)}(t) = \epsilon_0 \sum_{m,n,l} \chi_{\mu\alpha\beta\gamma}^{(3)}(\omega_m, \omega_n, \omega_l) E_\alpha(\omega_m) E_\beta(\omega_n) E_\gamma(\omega_l) e^{-i(\omega_m + \omega_n + \omega_l)t} \quad (1.1-45)$$

其中任意一项

$$\epsilon_0 \chi_{\mu\alpha\beta\gamma}^{(3)}(\omega_m, \omega_n, \omega_l) E_\alpha(\omega_m) E_\beta(\omega_n) E_\gamma(\omega_l) e^{-i(\omega_m + \omega_n + \omega_l)t}$$

表示由频率为 ω_m 、振动方向为 α 的光电场分量 $E_\alpha(\omega_m)$, 频率为 ω_n 、振动方向为 β 的光电场分量 $E_\beta(\omega_n)$ 及频率为 ω_l 、振动方向为 γ 的光电场分量 $E_\gamma(\omega_l)$, 通过三阶非线性相互作用产生的在 μ 方向上振动且频率为 $(\omega_m + \omega_n + \omega_l)$ 的三阶极化强度分量 $P_\mu^{(3)}(\omega_m + \omega_n + \omega_l, t)$ 。

3. 介质极化率的空间色散^[2,3]

上面讨论了介质极化率的频率色散特性, 并指出, 这种频率色散特性起因于极化强度与光场的时间变化率有关, 是时间域内因果性原理的直接结果。此外, 由于介质内给定空间点的极化强度不仅与该点的光电场有关, 而且与邻近空间点的光电场有关, 即与光电场的空间变化率有关, 这就导致了极化率张量 χ 与光波波矢 k 有关, 这种 χ 与波矢 k 的依赖关系, 叫做介质极化率的空间色散, 其空间色散关系可以通过空间域的傅里叶变换得到。

如果同时考虑介质极化率的频率色散特性与空间色散特性, 介质极化率张量可以表示为 $\chi(\omega, k)$ 。在光频情况下, 因为光频辐射波长比电子轨道半径与晶格间的距离大得多, 因而在大多数情况下, $\chi(\omega, k)$ 的空间色散可以不考虑。但是在下面两种情况下, 空间色散效应变得很重要: ① 空间色散效应虽然小, 但由于它的存在所引起的现象却是惟一的。例如, 光沿着某些各向异性介质的光轴方向传播时所表现出的旋光现象。② 空间色散效应十分大, 大到可以与其它光学现象相竞争。例如, 在反常色散区域内折射率可以变得很大, 而大的折射率意味着在介质中传播光的波长很短, 这时, 在原子范围内的光电场就不能看作为恒量。在折射率很大的情况下, 除正常的传播模式之外, 还允许传播附加的模式, 并与正常模式干涉而产生新的效应^[4]。

1.1.3 极化率的单位^[5]

上面引入了宏观介质的极化率 $\chi^{(r)}$, 实际上在文献中还经常用到单个原子极化率这个参量, 我们用符号 $\chi^{(r)\text{mic}}$ 表示。宏观极化率与单个原子极化率间的关系为

$$\chi^{(r)} = n \chi^{(r)\text{mic}} \quad (1.1-46)$$

在国际单位制(SI)中, $\chi^{(r)}$ 和 $\chi^{(r)\text{mic}}$ 的单位分别为

$$\chi^{(r)} \quad \left(\frac{\text{m}}{\text{V}} \right)^{r-1}$$

$$\chi^{(r)\text{mic}} \quad \text{m}^3 \left(\frac{\text{m}}{\text{V}} \right)^{r-1}$$

由于目前仍有文献使用高斯单位制(c. g. s. /e. s. u.), 所以, 下面给出 $\chi^{(r)}$ 和 $\chi^{(r)\text{mic}}$ 在 c. g. s. /e. s. u. 单位制中的单位:

$$\chi^{(r)} \left(\frac{\text{cm}^3}{\text{erg}} \right)^{(r-1)/2}$$

$$\chi^{(r)\text{mic}} \text{cm}^3 \left(\frac{\text{cm}^3}{\text{erg}} \right)^{(r-1)/2}$$

在两种单位制中, 线性极化率 $\chi^{(1)}$ 都是无量纲的, 其它阶非线性极化率张量之间的关系为

$$\frac{\chi^{(r)}(\text{SI})}{\chi^{(r)}(\text{e. s. u.})} = \frac{4\pi}{(3 \times 10^4)^{r-1}} \quad (1.1-47)$$

$$\frac{\chi^{(r)\text{mic}}(\text{SI})}{\chi^{(r)\text{mic}}(\text{e. s. u.})} = \frac{4\pi}{10^6(3 \times 10^4)^{r-1}} \quad (1.1-48)$$

1.2 非线性光学极化率的经典描述^[6]

光与物质相互作用的经典理论认为, 光在介质中传播时, 介质对光的响应是电偶极振子在光电场作用下振动所产生的极化, 其极化强度为

$$P(t) = -ner(t) \quad (1.2-1)$$

式中, n 是单位体积内的振子数, e 是电子电荷, $r(t)$ 是电子在光电场作用下离开平衡位置的位移。下面, 根据牛顿定律确定一维振子的线性响应和非线性响应。

1.2.1 一维振子的线性响应

设介质是一个含有固有振动频率为 ω_0 的振子的集合。振子模型是原子中电子运动的一种粗略模型, 即认为介质中的每一个原子中的电子受到一个弹性恢复力作用, 使其保持在平衡位置上。当原子受到外加光电场作用时, 原子中的电子作强迫振动, 运动方程为

$$\frac{d^2r}{dt^2} + 2h \frac{dr}{dt} + \omega_0^2 r = -\frac{e}{m} E \quad (1.2-2)$$

式中, h 是阻尼系数, m 是电子的质量。现将 r 和 E 傅里叶展开:

$$r(t) = \int_{-\infty}^{\infty} r(\omega) e^{-i\omega t} d\omega \quad (1.2-3)$$

$$E(t) = \int_{-\infty}^{\infty} E(\omega) e^{-i\omega t} d\omega \quad (1.2-4)$$

由于方程(1.2-2)是一个线性微分方程, 因此其解 $r(t)$ 只与光电场 $E(t)$ 成线性关系, 所以对任何一个频率分量都可以得到

$$-\omega^2 r(\omega) - 2ih\omega r(\omega) + \omega_0^2 r(\omega) = -\frac{e}{m} E(\omega)$$

由此可解得

$$r(\omega) = -\frac{e}{m} E(\omega) \frac{1}{\omega_0^2 - \omega^2 - 2ih\omega} \quad (1.2-5)$$

根据介质极化强度的定义, 单位体积内的电偶极矩 $P(\omega)$ 为

$$P(\omega) = -ner(\omega) = \frac{ne^2}{m} E(\omega) \frac{1}{\omega_0^2 - \omega^2 - 2ih\omega} \quad (1.2-6)$$