

钱士雄 王恭明 编著

非线性光学

——
原理与进展

复旦大学出版社

非线性光学

——原理与进展

钱士雄 王恭明 编著

复旦大学出版社

图书在版编目(CIP)数据

非线性光学/钱士雄,王恭明编著. —上海:复旦大学出版社,
2001.10
ISBN 7-309-02953-4

I. 非… II. ①钱…②王… III. 非线性光学 IV. 0437

中国版本图书馆 CIP 数据核字(2001)第 051993 号

出版发行 复旦大学出版社

上海市国权路 579 号 200433

86-21-65118853(发行部) 86-21-65642892(编辑部)

fupnet@fudanpress.com <http://www.fudanpress.com>

经销 新华书店上海发行所

印刷 上海第二教育学院印刷厂

开本 787×1092 1/16

印张 36.75

字数 917 千

版次 2001 年 10 月第一版 2001 年 10 月第一次印刷

印数 1—2 000

定价 56.00 元

如有印装质量问题,请向复旦大学出版社发行部调换。

版权所有 侵权必究

内 容 简 介

非线性光学是在激光问世以后,系统研究光与物质的非线性相互作用的一门分支学科。主要涉及二阶、三阶非线性光学效应,研究的内容包括倍频、和频、差频、光学参量振荡及四波混频、受激散射、多光子过程等。

本书除讲述非线性光学的基本原理外,还就近年来颇受关注的有机高分子、光纤、半导体中的非线性光学效应和超快过程等领域作了比较全面的介绍。

本书内容全面、选题广泛。既可作为物理学科、材料学科和通信学科等本科生和研究生的教材和教学参考书,也可供广大科技人员阅读。

序

从牛顿时代至今,光学的发展已有300多年历史。光的折射、衍射和干涉现象的发现与研究以及光谱技术的发展在近代自然科学发展中曾起了重大作用,帮助人们拓宽了视界,改善和更新了研究手段,使人们对于大至宇宙,小至原子和分子等微观世界的认识不断深化,光学研究对20世纪初期物理学的重大突破与发展有过极其重要的贡献。

在20世纪中期,与其他物理学学科相比,光学领域略显沉闷,研究范围偏窄并有陈旧之感。然而,科学家们并未因此停步,仍在孜孜不倦地探索,寻求创新。1960年,红宝石激光器神奇的辐射一举扫除了光学领域的沉寂。高强度的相干辐射光源——激光的问世给光学学科注入了强劲的活力。各种奇异的效应如同雨后春笋展现在世人面前,光的受激放大、量子光学、非线性光学、激光光谱、全息技术、超快现象、光学信息处理以及光纤通信等许多崭新的分支学科相继脱颖而出。光学世界是如此奇妙,光与物质的相互作用是如此丰富多彩,光学学科的研究面貌为之焕然一新。

非线性光学这个分支得益于高亮度、高方向性的激光光源。它的出现使长期以来给人以稳态,光频不变感觉的线性光学显得单调和呆板。基于非线性光学效应,复杂的光学相位畸变可被矫正;相干辐射的波长随人们的意愿可以从红外,可见直至极端紫外的范围内进行调谐;由锁模等多种技术得到的超短光脉冲已短至只包括几个光电场振荡周期甚至不到一个周期;利用超快激光光谱技术已能研究物理学,化学及生物学等领域的超快动态过程;而接近1Tb/s的超高信息传输量的光纤通信正将世界各个角落紧密相联,使古人憧憬的幻想变为现实。非线性光学研究硕果累累,方兴未艾。

在非线性光学获得如此巨大飞速发展的40多年中,国内外有关非线性光学的论文及会议多不胜数。在已出版的关于非线性光学的著作中,一部分为针对某一非线性光学效应的专集,如相位共轭、光学双稳态等。而另一部分则是关于非线性光学的基本原理和综合介绍,最有代表性的是N. Bloembergen在1965年所写的 *Nonlinear Optics* 以及Y. R. Shen在80年代著的 *The Principles of Nonlinear Optics*。这些著作对于非线性光学领域的研究起了重要的推动作用和作了阶段性总结。

近年来,国内也出版了几本非线性光学书籍,但仍难适应高等院校非线性

光学教学的需要。编者认为,为更好地介绍和总结非线性光学的基本原理和研究前沿,特别是反映近 10 年来非线性光学领域的新进展,这本《非线性光学》的编写是有意义的。

本书以编者在 10 多年来为大学生和研究生讲授非线性光学课的基础上,根据学科发展的状况,力图使本书既有较系统的基本原理,又能将非线性光学的最新前沿研究成果介绍给读者,本书的读者对象为有关专业的本科生、研究生及研究人员。

第 1 章引言概述 40 年来非线性光学的发展历史;第 2 章介绍非线性光学极化率的基本理论;第 3、4 章介绍有重要应用价值的二阶非线性光学效应,即倍频、和频、差频和光学参量振荡。自第 5 章开始,则介绍各种高阶非线性光学效应,包括三倍频、自聚焦、四波混频、受激散射、相干拉曼光谱学以及在近年来有重大进展的一些领域,如光纤、半导体、有机高分子、超快过程研究和量子光学等非线性光学效应。

本书由王恭明编写第 3,4,5,6,13,14 章以及 15 章的一部分,钱士雄编写其余各章。

在本书的编写过程中,李郁芬教授等与作者进行了有益的讨论,并提供了研究资料,编者对此表示感谢。编者还感谢钱江等同学在图表、公式整理中所给予的帮助。

编者感谢中国建设银行湖北分行对本书编写工作的支持。

由于编者水平所限,在书稿中难免会有遗漏和错误,敬请专家与读者批评指正。

本书初稿毕于 1996 年 7 月,今年得以安排出版,惜时间匆匆,已无力对书稿作全面修订,只能对少数章节增补内容,难以汇集近 4 年中的最新研究成果,敬请读者见谅。

钱士雄,王恭明于
复旦大学物理系

目 录

第 1 章 引言	1
§ 1.1 非线性光学的早期 10 年(1961—1970)	3
§ 1.2 研究全面深入的 20 年	4
§ 1.3 20 世纪 90 年代的进展	9
§ 1.4 本书宗旨及内容简介	13
参考文献	15
第 2 章 非线性极化率的微观理论、基本特性和计算方法	19
§ 2.1 非线性极化率的经典理论	19
§ 2.2 非线性极化率的微扰论处理	23
§ 2.3 非线性极化率的对称性	28
§ 2.4 非线性极化率的密度矩阵法处理	32
§ 2.5 非线性极化率的阴离子基团模型	36
§ 2.6 有机材料的非线性极化率	44
参考文献	51
第 3 章 耦合波方程和光学二次谐波的产生	53
§ 3.1 耦合波方程	53
§ 3.2 光学二次谐波产生	57
§ 3.3 相位匹配技术	61
§ 3.4 有效倍频系数和最佳相位匹配	67
§ 3.5 聚焦高斯光束的光倍频	70
§ 3.6 光倍频材料和器件	73
§ 3.7 光倍频效应在其他方面的应用	76
参考文献	79
第 4 章 光学混频和光学参量振荡	82
§ 4.1 光学和频和频率上转换	82
§ 4.2 光学差频和光学参量放大	87
§ 4.3 光学参量产生和光学参量振荡	90
§ 4.4 光学参量振荡器的输出特性	94
§ 4.5 光学参量振荡器技术研究概况	99
参考文献	103
第 5 章 三阶非线性光学效应概述	106
§ 5.1 三阶非线性极化和三阶非线性极化率	106
§ 5.2 四光波相互作用的耦合波方程和相位匹配技术	108
§ 5.3 三倍频效应	114
§ 5.4 光致非线性折射率现象	119
§ 5.5 非线性折射率测量的 Z 扫描法	126
参考文献	133

第 6 章 四波混频和光学相位共轭	134
§ 6.1 光学相位共轭的物理概念	134
§ 6.2 光学混频的相位共轭原理	136
§ 6.3 简并四波混频和近简并四波混频	139
§ 6.4 共振简并四波混频的相位共轭	146
§ 6.5 四波混频和光学相位共轭的实验研究及应用	148
参考文献	154
第 7 章 受激拉曼散射和受激布里渊散射	156
§ 7.1 受激散射的基本特性	156
§ 7.2 SRS 的经典理论	156
§ 7.3 SRS 的半经典理论	160
§ 7.4 高压气体中的瞬态受激拉曼散射	166
§ 7.5 受激布里渊散射	170
§ 7.6 受激光散射的应用	178
参考文献	186
第 8 章 相干拉曼光谱学	188
§ 8.1 相干反斯托克斯拉曼光谱	188
§ 8.2 其他相干拉曼光谱研究	194
§ 8.3 钠原子中的相干拉曼混合	202
§ 8.4 微米级液滴中的相干拉曼过程	205
§ 8.5 相干拉曼光谱的应用	209
参考文献	217
第 9 章 光场与物质的共振相互作用	219
§ 9.1 光场与物质共振相互作用的微扰处理	219
§ 9.2 缀饰态的引入	224
§ 9.3 二能级系统	227
§ 9.4 三能级系统	231
§ 9.5 激发态效应与光限幅	233
参考文献	238
第 10 章 多光子过程	240
§ 10.1 多光子过程的基本处理方法	240
§ 10.2 阈值以上电离	248
§ 10.3 多光子电离的实验研究	253
§ 10.4 分子中的多光子过程	260
参考文献	265
第 11 章 相干辐射波段的扩展	266
§ 11.1 红外波段相干辐射的产生	267
§ 11.2 低次谐波和多波混频产生 VUV/XUV 辐射	274
§ 11.3 高次谐波产生	278
§ 11.4 X 射线激光器的研究	292
参考文献	301
第 12 章 光学双稳态与混沌	303

§ 12.1	引言	303
§ 12.2	光学双稳态的基本原理	306
§ 12.3	光学双稳态的实验研究	312
§ 12.4	光学双稳态中的不稳定性	318
§ 12.5	混沌	322
	参考文献	331
第 13 章	电光和光折变效应	334
§ 13.1	电光效应和电光调制器	334
§ 13.2	光折变效应	341
§ 13.3	光折变材料中的双光束耦合	344
§ 13.4	立方晶体的双光束耦合	351
§ 13.5	光折变材料中的四波混频	356
	参考文献	360
第 14 章	有机及聚合物材料的非线性光学性质	362
§ 14.1	有机材料的光学非线性起源	363
§ 14.2	有机分子结构与分子超极化率 β	365
§ 14.3	有机材料的宏观光学非线性极化率	371
§ 14.4	有机非线性光学材料研究概况	379
	参考文献	385
第 15 章	光波导和光纤中的非线性光学效应	389
§ 15.1	非线性介质光波导的特征及耦合波方程	389
§ 15.2	薄膜光波导中二次谐波的产生	391
§ 15.3	非线性导波及其应用	398
§ 15.4	光纤的基本性质	403
§ 15.5	群速失配和自相位调制	409
§ 15.6	光学孤子	415
§ 15.7	与光纤和光通信有关的非线性光学效应	427
	参考文献	438
第 16 章	半导体材料的非线性光学效应	441
§ 16.1	半导体的基本特性及线性光学性质	441
§ 16.2	非共振非线性光学效应	444
§ 16.3	共振非线性光学效应	452
§ 16.4	量子阱微结构中的非线性光学效应	458
§ 16.5	半导体激光器中的非线性光学效应	468
§ 16.6	半导体材料的超快过程研究	474
§ 16.7	纳米颗粒材料的非线性光学性质	477
	参考文献	484
第 17 章	超短脉冲激光器和超快非线性光学现象	487
§ 17.1	超短光脉冲产生的基本原理、技术与现状	487
§ 17.2	亚皮秒及飞秒时域的光学参量振荡器和光学参量放大	496
§ 17.3	飞秒时域的非线性光学效应研究	506
§ 17.4	超快激光光谱学	519

§ 17.5 飞秒化学和飞秒生物学	524
参考文献	532
第 18 章 量子光学与光学压缩态	535
§ 18.1 光场的量子化	535
§ 18.2 光学压缩态的基本性质	542
§ 18.3 光学压缩态的实验研究	549
§ 18.4 压缩态的研究进展及应用	557
参考文献	564
附录	566
附录 I 符号注释	566
附录 II 单位制及非线性光学主要公式	570
附录 III 七大晶系和各向同性介质的电极化率张量	572
附录 IV 晶体的倍频系数矩阵式和 d_{eff} 公式	577

第 1 章

引 言

非线性光学作为光学学科中一门崭新的分支学科,在新颖的高亮度光源——激光器问世以后,就以她那新奇的面貌展现在世人面前。在短短的 40 年间,非线性光学在基本原理、新型材料的研究、新效应的发现与应用方面都得到了巨大的发展,成为光学学科中最活跃和最重要的分支学科之一。

激光器问世以前,人们对于光学的认识主要限于线性光学^[1],即光束在空间或介质中的传播是互相独立的,几个光束可以通过光束的交叉区域继续独立传播而不受到其他光束的干扰;光束在传播过程中,由于衍射、折射和干涉等效应,光束的传播方向会发生改变,空间分布也会有所变化,但光的频率不会在传播过程中改变;介质的主要光学参数,如折射率、吸收系数等,都与入射光的强度无关,只是入射光的频率和偏振方向的函数。这是传统的线性光学的基本图像,人们可以用它来解释所观察到的大量的光学现象,似乎这就是光在介质中的传播及光与物质相互作用的基本规律。

然而,随着激光的出现,人们对于光学的认识发生了重要的变化。线性光学的基本观点已无法解释人们所发现的大量的新现象。当一束激光射入到介质以后,会从介质中出射另一束或几束很强的有新频率的光束。它们可以处在与入射光频率相隔很远的长波边或短波边,或是在入射光频率近旁的新的相干辐射;两个光束在传播中经过交叉区域后,其强度会互相传递,其中一个光束的强度得到增强,而另一个光束的强度会因此而减弱;介质的吸收系数已不再是恒值,它会随光束强度的增加变大或者变小。不仅如此,一个光束的光波相位信息在传播过程中,也会转移到其他光束上去,一个光束的相位可以与另一个光束的相位呈复共轭关系;某一定强度的入射光束在通过介质后,透射光束的强度可以具有两个或多个不同的值。如此众多的新奇现象,传统的线性光学的观点已无法解释,只有应用非线性光学的原理才能予以说明。

在线性光学的范畴内,人们采用电极化强度 $P(t)$ 来解释所观察到的介质中的吸收、折射及色散等现象。当一个光电场入射到介质体系中时,由于介质体系是由大量的多种荷电粒子,如电子、原子实及离子等构成,它们在外光电场的作用下会发生位移,这就会在介质中产生感应的电极化强度。一般来讲,这种感应的电极化强度是空间位置和时间的函数 $P(r, t)$,它正比于入射的光电场强度的值 $E(r, t)$,有表达式

$$P(r, t) = \epsilon_0 \chi^{(1)} \cdot E(r, t) \quad (1.0-1)$$

其中, ϵ_0 是真空介电常数, $\chi^{(1)}$ 是介质的线性极化率。通常情况, $\chi^{(1)}$ 是复数张量,如对双折射介质而言,它的各个对角元并不相等。从(1.0-1)出发,配合电磁波在介质中传播的波动方程

$$\nabla^2 E(r, t) - \mu_0 \sigma \frac{\partial E(r, t)}{\partial t} - \mu_0 \epsilon_0 \frac{\partial^2 E(r, t)}{\partial t^2} = \mu_0 \frac{\partial^2 P(r, t)}{\partial t^2} \quad (1.0-2)$$

人们可以解释介质中存在的吸收、折射和色散等效应。其中 μ_0 是真空导磁率, σ 为介质的

电导率。一般来讲, $\chi^{(1)}$ 的实部对应介质体系的折射和色散, 而 $\chi^{(1)}$ 的虚部说明介质的吸收。

实际上, 在激光器出现以前, 人们也已观察到另一类现象, 在这些现象中, 电极化强度并不只与入射的光电场有关。当人们在介质上加上一个静电场时, 发现这时介质的折射率不再是一个常数, 而与所加的静电场强度有关。对一些介质来讲, 折射率的变化量与静电场强度成线性关系, 对另一些介质来讲, 则折射率的变化量与静电场强度成平方关系, 这就是人们所熟知的普克耳(Pockels)效应及克尔(Kerr)效应。当然, 并非所有的材料都会显示这些效应, 本质上讲, 这些现象反映了介质的光学常数并非恒定不变, 而与所加的静电场有密切的关系。此外人们在散射研究中还早就发现, 在频率为 ω 的入射光场作用下, 介质中会产生有频移的散射信号, 这种自发拉曼(Raman)散射及自发布里渊(Brillouin)散射中存在的频移现象似乎超出了线性光学的范畴, 但人们在习惯上还是将它们归之于线性光学的内容之中, 因为这些信号强度与入射的激发光强度成线性关系。

而高强度的激光作用到介质体系时, 人们发现在大量的各种不同的材料中都会观察到与线性光学效应截然不同的现象, 介质的折射率会随光电场强度的变化而变化, 吸收系数也不再是一个常数等等。所有这些新现象就需要非线性光学的基本原理予以解释。

在传统的热辐射光源、放电光源的照射下, 可得到的单色功率密度一般在 $1\text{W}/\text{cm}^2\text{\AA}$ 以下, 所以人们所观察到的大量光学现象都对应于在这种强度时光与物质的相互作用。然而, 激光是具有高单色高亮度的光源, 当激光射到(或聚焦于)介质中时, 其所产生的单色功率密度会远远高于传统光源的相应值。在实验室条件下, 聚焦至介质处的单色功率密度已很容易达到 $10^{10}\text{W}/\text{cm}^2\text{\AA}$ 以上, 在比传统光源高好几个量级的光场的作用下, 表达式(1.0-1)已显然不能用于说明这时介质中所产生的极化强度与光电场强度的关系, 而必须进行修正。

普遍来讲, 光电场所感应的电极化强度与入射光电场强度的关系式中必须计及光电场强度的高幂次项, 即

$$P(\mathbf{r}, t) = \epsilon_0 \chi^{(1)} \cdot \mathbf{E} + \epsilon_0 \chi^{(2)} : \mathbf{E}\mathbf{E} + \epsilon_0 \chi^{(3)} \vdots \mathbf{E}\mathbf{E}\mathbf{E} + \dots \quad (1.0-3)$$

在(1.0-3)中, 右边第一项即是线性电极化强度项, 而第二项第三项以致更高幂次项, 即是非线性光学效应的基本根源。 $\chi^{(2)}$ 、 $\chi^{(3)}$ 分别为二阶及三阶非线性极化率张量, 它们以及高阶非线性极化率张量 $\chi^{(n)}$ 是表征光与物质非线性相互作用的基本参数。过去, 人们之所以未能感受到和测量到这些参数和其相应的效应, 则是因为过去人们所能得到的光电场太弱, 以致二阶、三阶等非线性光学效应处于测量灵敏度以下, 而无法被发现。

Bloembergen 给非线性光学效应的定义作了如下论述: 凡物质对于外加电磁场的响应, 并不是外加电磁场振幅的线性函数的光学现象, 均属于非线性光学效应的范畴^[2]。

从 Bloembergen 的这个定义出发, 我们可以把(1.0-3)中右边第一项有关的效应称为线性光学效应, 与 $\chi^{(2)} : \mathbf{E}\mathbf{E}$ 有关的效应称为二阶非线性光学效应^[3,4], 与 $\chi^{(3)} \vdots \mathbf{E}\mathbf{E}\mathbf{E}$ 有关的效应称为三阶非线性光学效应^[5], 更高阶的非线性光学效应可以此类推^[6]。其中的许多效应, 如倍频(亦称二次谐波产生, SHG)效应已经在激光产品和科学研究中得到极为广泛的应用, 三阶非线性光学的受激拉曼散射(SRS)也因其极高的转换效率而有着重要的实际应用。由于激光场可以提供极高的光电场强度, 加上人们有效地利用介质中的共振效应, 人们已经观察到几阶、几十阶以至上百阶的非线性光学效应的存在, 而这在激光器出现以前是无法想象的。

从这个普遍定义出发,也有人把 Pockels 效应和 Kerr 效应归之于非线性光学效应,因为它们与 $\chi^{(2)}$ 和 $\chi^{(3)}$ 有一定的关系。但大多数学者仍习惯把它们以及自发拉曼散射等归之于传统的光学效应范围,因此在本书中,我们也不特别讨论这些效应,而只是在与其它非线性光学效应有关联的时候再提到它们。

§ 1.1 非线性光学的早期 10 年(1961—1970)

非线性光学的一个重要发展时期是早期的 10 年。1960 年 Maiman 制得了第一台红宝石激光器以后,科学家立即意识到这是一个开拓崭新研究领域的极为重要的工具,并迅即开始了多方面的探索工作。

1961 年, Franken 将红宝石激光束入射到石英片上,发现出射的光束中不仅有红宝石的 694.3nm 光束,在紫外区还存在另一条光谱线,其波长为 347.2nm,这正好是红宝石激光波长的一半^[7]。这个实验结果揭开了非线性光学研究史的第一页,尽管石英材料是正单轴晶体,在该实验中相位匹配条件并未满足,其转换效率很低。但这已毫无疑义地确证了新的 SHG 效应。SHG 效应的发现极大地促进了无机晶体材料在相干辐射产生中的应用,具有重要的意义。

1962 年 Woodbury 在使用硝基苯材料研究调 Q 红宝石激光器时发现,从激光器出射的谱线中,除了红宝石的激光线外,还有另一条处于红区的 766nm 谱线^[8]。而且这条出射光束具有与红宝石激光束同样的传播方向和小发散角。随之人们即分析出,这是与硝基苯的分子振动密切有关的一种新的相干辐射^[9],即受激拉曼散射 SRS。SRS 在大量的介质材料(包括气体、液体及固体)中都先后观察到,至今仍然是非线性光学领域中一个热门的研究课题。

相干辐射产生的另一个效应即是受激布里渊散射(SBS),当激光束射入晶体材料后,利用高分辨率光学干涉仪器观察到在入射激光线的近旁存在着几条亮度很高的辐射线,频差在 1cm^{-1} 以下,这是与晶体等材料中声学波相联系的 SBS 效应^[10]。

除去以上受激过程外,与 SHG 效应有联系的一些效应如和频(SFG)、差频及光学参量振荡(OPO)也陆续地被发现^[11-13]。利用晶体材料的双折射效应以补偿折射率的色散,人们在许多晶体中,如 KDP, ADP, LiNbO_3 及 LiIO_3 , 实现了有效的相位匹配并得到有很高转换效率的相干辐射。利用和频,可以对相干辐射频率进行蓝移,而利用差频及光学参量振荡可以将可见激光转换至红外波段。这就为人们扩展相干辐射的波段范围又提供了几种新的方法。

在 20 世纪 60 年代,基于钕离子的钕玻璃激光器及 Nd:YAG 激光器也相继问世。在钕玻璃激光器的研究中,人们发现,在平均功率并未达到损伤阈值时,钕玻璃棒中会出现细丝状损伤,这是由于在钕玻璃棒中的非线性光学效应——自聚焦使光束在材料中被聚集,使在焦点处达到高于损伤阈值的功率密度。这种自聚焦效应在大功率激光器的研制中是一个迫切需要认识和加以避免的问题,而在一些受激过程中它又会使平均阈值功率降低^[14]。与自聚焦密切相关的自相位调制效应也得到了广泛的研究^[15]。

饱和吸收是与吸收有关的一种非线性光学效应^[16]。当增加入射激光束的强度时,介质的吸收系数会随之减小,人们称此为饱和吸收效应。由于饱和吸收效应的存在,人们可以在

有较大多普勒宽度的光谱线轮廓中得到有很窄线宽的饱和吸收下凹,也观察到了反饱和吸收现象^[17]。这种具有自然线宽宽度的窄下凹或窄尖峰的结构的存在被人们用来进行高精度的干涉计量和频标研究工作。

双光子吸收则是与饱和吸收在形式上迥异的另一种效应。它会使介质的吸收系数随光强度的增加而增大,其基本原理是,介质中的分子或原子可以经过两个光子的同时吸收而跃迁至较高的一个激发态^[18]。由于双光子吸收系数与入射光强度的平方成正比,所以人们可以将它与其他效应区分开来。双光子吸收与饱和吸收的发现,大大促进了高分辨无多普勒激光光谱的研究与发展^[19]。

在 20 世纪 60 年代,瞬态光学效应方面的研究也得到很大的进展。与微波区的磁共振技术相对应,利用脉冲激光激发后,在介质中可以观察到许多瞬态现象,包括光子回波、光学扰动、自感应透明及自由感应衰减等效应,它们与激发后介质体系中的相位演变有密切的关系。利用这些技术,人们可以研究介质的弛豫特性。

在这个阶段,为配合非线性光学实验研究的发展,在理论上也有出色的研究。Amstrong 等人在 1962 年发表了关于光场与物质的非线性相互作用的长篇论文,被后人称为 ABCD 论文,至今仍有一定参考价值。Bloembergen 在 1965 年出版了“Nonlinear Optics”一书,该书对非线性光学极化率,当时已发现的 SHG、SRS 等效应作了详细的讨论,是非线性光学领域的经典性著作^[20]。同年,Butcher 也推出了“Nonlinear Optical Phenomena”一书,从密度矩阵方程出发,推导了介质体系中非线性极化率的基本公式^[21]。这两本著作,可以称为 60 年代非线性光学的代表性著作,集中反映了 60 年代早期对非线性光学的研究成果。

§ 1.2 研究全面深入的 20 年

自 1971 年至 1990 年,非线性光学经历了深入发展的 20 年。在这 20 年中,一些新的重要的非线性光学效应相继被发现,例如光纤中孤子的形成和传播,光学双稳态及混沌,光学压缩态。新型的非线性光学晶体材料的试制成功,微微秒激光器件的广泛使用以及飞秒激光器的研制进展,使得利用超快脉冲进行非线性光学的研究得到重大推进,取得许多新的研究成果。

四波混频效应是在 1960 年代发现的。在 1970 年代至 1980 年代,四波混频(FWM)作为一种重要的产生相位复共轭光束的方法,在畸变相位的恢复,相位共轭腔的设计方面得到了广泛的应用。这主要是利用了简并四波混频(DFWM)或近简并四波混频(NDFWM)技术。在两束频率相同,方向相反的泵浦光束的作用下,同样频率的第三束探测光束入射到介质中时,会在探测光束的相反方向上从介质出射一个信号光束^[22]。它与探测光呈复共轭关系。DFWM 所具有的复共轭特性,NDFWM 的窄带反射特性,共振 DFWM 的高反射等等使得 FWM 这种技术可以用于消除激光束在大气中传播时产生的相位畸变和研制光束自导迹系统^[23]。相位共轭镜则是利用了 DFWM 或其他方法(如 SBS)的相位复共轭特性,它在高质量的有共轭腔特性的激光器的研制方面得到了极为重要的应用,可以消除腔内一些元件的畸变作用和热效应等不利影响^[24]。如在频域中进行 DFWM,还可以得到退卷积等相关操作。

与双光子吸收相联系,人们利用红外区的 CO_2 激光束射入分子体系(如 SF_6 等)时,发现分子可以得到电离或解离。从能量上来讲, CO_2 激光的光子能量仅有 0.12eV,远低于一般分子的解离能。这种现象不能从单光子吸收或双光子吸收来进行解释,而必须考虑到多光子过程的机制,才能对所观察到的电离或解离现象给出满意的解释^[2,26]。同样,利用可见光区的激光束,也在原子及分子中观察到多光子电离及多光子解离现象。SRS 和 SBS 这两种最重要的散射过程的研究在这 20 年中极富成效。由于激光器的制作技术的提高,激光器的输出脉冲能量已很容易达到几百 mJ 以上,其脉冲宽度覆盖了从 ns 至 fs 的宽阔的范围,使得 SRS 效应在大量的气体、液体及固体材料中得到了详细的研究,并用于相干辐射的波长扩展^[27,30]。由于气体介质价格低廉,又易充气,几乎无损伤阈值,在 SRS 应用上具有明显的优点。在众多材料中, H_2 具有最大的拉曼频移(4155cm^{-1})和极高的拉曼增益,故利用高压 H_2 进行斯托克斯红移和反斯托克斯蓝移得到了广泛的研究^[29]。80 年代初,从 H_2 已经得到转换效率在 45% 的斯托克斯输出^[30]。特别有意义的是,在 H_2 中的高阶反斯托克斯拉曼散射有极高的转换效率并且具有脉冲压缩效应^[31],对此,Eimerl 等人进行了相应的理论研究^[32]。利用高压 H_2 制成的拉曼转换器曾成为激光厂商的正式产品在市场上出现。此外,利用 SRS 过程可对输入的激光脉冲进行整形(Clean-up)、光束组合及光束复制,从有严重畸变的泵浦光束可以得到近于衍射极限的输出光束^[33,34]。这对高能量、高功率激光器的研制和应用具有重要意义。

利用各种金属蒸汽及气体介质中的共振效应,人们观察到在电子能级间的受激电子拉曼散射(SERS)效应^[35-37]。例如,在 Ba 蒸汽中,利用 $5d6p^3D_1$ 能级的共振效应,可以从 413.2nm 的入射脉冲得到在 659nm 和 667nm 处可调谐的 SERS 输出,调谐范围达到 300cm^{-1} ,转换效率为 30%^[35]。Brosnan 等人利用 Pb 蒸汽作拉曼增益介质的振荡器,可以由 XeCl 激光器的 308nm 泵浦光得到 459nm 处的 SERS 输出,量子效率可达到 67%^[36]。如使用振荡-放大系统,则可得到 0.73J 的高强度 SERS 输出。在 K、Na 等蒸汽中进行的 SERS 研究,可以将相干辐射向红外区域扩展,得到在 $1\sim 20\mu\text{m}$ 波长范围间分立可调谐的相干辐射^[37]。Mori 等人研究了 Na 蒸汽中的受激超拉曼散射(SHRS)效应,利用 $3s-5s$ 及 $3s-4d$ 的共振双光子激发在 $2.3\mu\text{m}$ 处获得 64% 的量子效率^[38]。钱士雄及 Chang 等在微米级液滴的研究中,观察到由于液滴这种微型球体谐振腔中的谐振增强效应而产生的高达 14 阶的斯托克斯受激拉曼振荡(SRO)输出及不同振动模的组合 SRO^[39,40]。在将相干辐射向紫外区扩展的研究工作中,反斯托克斯拉曼激光器的探索是人们极为重视的途径。如果利用化学反应或光解离过程将原子激发至激发态而得到足够大的粒子数反转就可以得到有效的反斯托克斯 SRS^[41]。例如 TlF 分子经 KrF 激光束解离而得到在 $6^2P_{3/2}$ 激发态的 Tl 原子,由此可将 532nm 的入射激光束转换至 377nm,这种反斯托克斯 SRS 输出可达到 5mJ 以上^[41]。

背向 SBS 具有很高的增益因子和很好的相位共轭特性,因此人们对高压气体或液体中的 SBS 效应进行了大量的研究,如 CH_4 、 SF_6 、 C_2F_6 、 N_2 气及甲醇等液体,转换效率可以达到 50% 以上。在这些介质中,还会存在 SBS 与 SRS 的竞争效应。一般 SBS 比 SRS 过程有更大的稳态增益,故在长脉冲作用下,SBS 过程会十分有效。但在超短脉冲作用下,必须计及瞬态效应。

由于 SBS 的相位共轭特性,可以采用 SBS 池作为激光腔的一个反射镜而构成相位共轭

腔,这种共轭腔可极大地改善激光器输出的光束质量,且输出能量可达到 1J 以上。

背向 SBS 过程可以有效地抽取泵浦光的能量,使产生的 SBS 信号顺次得到泵浦光前沿和后沿的泵浦,而得到脉冲压缩的效果。如在充有 130atm、1.3m 长的 CH_4 锥形波导中,以 20ns 的 YAG 激光泵浦,可得到 2ns 的背向 SBS 输出,脉冲压缩近 10 倍。

相干反斯托克斯拉曼散射(CARS)最早是由 Maker 和 Terhune 在 1965 年观察到的,这是一种三阶相干非线性光学过程。由于这种方法具有抗荧光干扰、信号的方向性好及频率鉴别性等特点,因而有很高的信噪比。利用这种技术,可以进行火焰温度的遥测^[44],在发动机的温度检测,炉温测量方面得到实际应用^[45]。宽带的多重 CARS 技术,能同时测量火焰中的温度以及几种成分的浓度数据^[46]。采用连续激光器可进行高分辨的振动和转动 CARS 研究,而脉冲 CARS 技术可进行化学反应动力学及各种弛豫过程的研究^[47]。增加激光强度,CARS 过程呈现饱和效应,这会影响利用 CARS 技术对温度和浓度的测试,并且高压气体中的碰撞效应会改变分子的速度分布及振动、转动等激发状态的转移,所以对于介质中 CARS 的饱和效应等也得到了广泛的研究^[48]。

1975 年贝尔实验室的 McCall, Gibbs 和 Venkatesan 从置于法布里—珀罗干涉腔中的钠蒸汽中首次测得了光学双稳态特性^[49]。这种结合谐振腔与介质的非线性特性而得到的双稳态和不稳定性等特性立即引起了科学家们极大的兴趣,因为它揭示了光学计算研究领域的美好前景。以后的短短几年中,在气体、液体及半导体等许多材料中都观察到了光学双稳态(OBIS)现象^[50-52]。Smith 等人利用电子学与光学的结合发展了混合型光学双稳态^[53],Garmire 在无腔条件下观察到双稳态现象。1975 年实现的第一个双稳态是色散型双稳态,而吸收型的光学双稳态也由 Weyer 在 1981 年从钠原子束的实验中观察到^[54]。

在 1980 年代,人们对大量材料进行了研究,并且观察到光学双稳态效应。四波混频、热效应、克尔效应以及自聚焦等过程都可以用于产生光学双稳态,在具有大的非线性特性的材料,如 InSb 中还观察到多稳态。从表面、界面及波导等结构中也可实现出射信号与入射光之间的回线关系。

与光学双稳态的实验进展相配合,Agrawal、Lugiato 等人采用平均场模型对光学双稳态作了理论处理,并在光学双稳态的稳定性和双光子光学双稳态等方面得到了许多成果^[55,56]。

光学双稳态的发现促进了人们对不稳定性的认识和研究,随着输入光强的增加,由系统出射的光强会随之变化,而且在恒定的入射光强时出射光强也会随时间而变,呈现出复杂的变化特性。这种不稳定性表现为周期性振荡、周期加倍等,最终会导致混沌现象的出现^[57]。

光纤通信是在 1970 年代初开始研究并得到广泛注意。由于低损耗石英光纤的制成以及近红外波段激光器性能的提高,光纤通信的研究取得了突飞猛进的发展,使它成为通信领域最重要和最有发展潜力的手段。为了充分利用光纤通信所拥有的极高容量和比特率,人们开展了激光束在光纤中的传播特性的研究。贝尔公司的 Stolen 首先对光纤中的 SRS 过程进行了详细的测量^[58],研究还涉及到光纤中的自相位调制(SPM)过程^[59]。光学孤子(Soliton)是在传播过程中保持形状不变的一种光波,自然是光纤通信中最理想的载波光束^[60],它可以经光束中的群速色散(GVD)和 SPM 两种过程的结合而在光纤中得到产生与传播。这 20 年中,对于孤子的理论有大量的研究工作,包括时间域的孤子和空间域的孤子,亮孤子、暗孤子和时空孤子等^[61]。

第一个孤子激光器是由 Mollenauer 和 Stolen 实现的^[62],他们所用的激光器采用了两个谐振腔体,一个是产生增益的,另一个则利用光纤对脉冲进行处理再返回增益腔,由此得到了阶数 $N=2$ 的孤子。Haus 和 Islam 随后给出了孤子激光器的理论,并对实验结果进行解释^[63]。Mollenauer 和 Nakazawa 并提出采用拉曼效应来构成光纤拉曼孤子激光器的设想^[64,65],它可以使增益与成形在同一个腔体中得到实现。这种拉曼孤子激光器已在 1987 年制成,他们采用了环形激光器的结构使得这种激光器的大部分能量能够耦合输出。

1980 年代中期,在量子光学领域有一个重大的引人注目的进展,即是光学压缩态的获得^[67,68]。人们从光纤通信的重要地位意识到,使用低噪音的光波可望极大地利用光的通信能力,这是因为光学压缩态能将光波电场的两个正交分量中的一个分量的噪音转移到另一个分量之中,以使这个分量的噪音降低至真空态的量子噪音以下。这种压缩态从经典电磁场的观点是不能理解的,这正是非经典光场的特异之处,而由于这种光场的极低噪音使得它在高精度干涉度量学、光学通信及光谱学研究中有重要的应用前景。

光学压缩态首先是由贝尔实验室的 Slusher 等人于 1985 年在钠蒸汽中采用近简并四波混频方法获得的。当时在 Texas 大学的 Kimble 小组也很快报道了他们利用光学参量下转换过程从 LiNbO_3 晶体得到的压缩态,所得到的量子噪音低于背景噪音 50% 以上。此后许多研究小组陆续报道了他们在理论与实验方面对压缩态的研究成果,这些研究结果主要都是利用与相位有关的非线性光学过程。其中一类是非共振非线性光学相互作用过程,如光学参量振荡^[69],倍频^[70]及四波混频^[71]等。另一类则是利用近共振时,场与物质的相互作用,例如双光子相关发射激光器,相干场驱动的里德堡原子激光器和共振荧光^[72]。所有这些过程的特点都在于采用与相位有关的激发过程来得到压缩态。

压缩光场实现的一个重要指标是光场的压缩量。从量子力学理论可知,一个光场分量的完全压缩会导致另一个分量中不确定量为无穷大。理论上已经证明,在一些非线性光学过程中,有可能实现完全的压缩。但在实际上,得到这种完全的压缩还取决于实验条件的严格选择与精细的调节。

关于半导体体材料的非线性光学研究在 1960 年代已经进行,主要是测量一些半导体体材料的非线性光学极化率。1970 年代以来,由于半导体微结构设想的提出与制作技术的重大突破,各种人工微结构,如半导体量子阱,超晶格都得到了实现。在这种微结构中,存在着人工制得的势阱及由此产生的阱中分立能级,使得它们的光学特性及非线性光学特性具有与体材料明显不同的特点。关于这类新型半导体微结构的非线性光学研究大致可以分为两类:一类是利用非线性光学效应研究半导体微结构中的激子、电子和空穴的结构及弛豫特性;另一类则是研究其中存在的增强的非线性光学效应,这是因为在这些微结构中存在量子限制效应,使得非线性光学参数值大为提高。

第一类研究则是利用 FWM 等多波混频及光子回波等方法来研究量子阱、微结构中的激子及载流子特性,如退相时间、线型等。Schultheis 等利用瞬态 FWM 实验研究了 Al-GaAs/GaAs 量子阱材料中激子退相时间的温度依赖关系^[73],发现其中单声子吸收是主要的退相机制。以后他们又进一步指出,自由载流子的散射比激子-激子散射更为有效地退相。Leo 采用时间分解的 DFWM 研究了量子阱中的相干极化相互作用^[74]。在相邻的厚度有差异的耦合量子阱中,人们还观察到量子拍频和电子的共振振荡^[75]。这方面的工作已经在 Haug 所编的专集中得到了很好的总结^[76]。