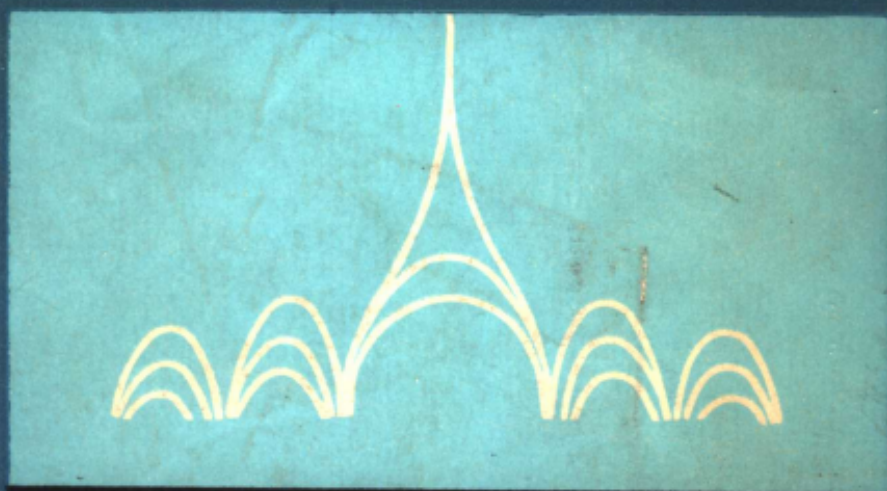


FEI XIAN XING
GUANG XUE

非线性光学



过巴吉 主编

西北电讯工程学院出版社

非线性光学

过巴吉 主编

西北电讯工程学院出版社

内 容 提 要

本书内容包括：非线性电极化率的经典理论、半经典理论和全量子理论；二阶、三阶非线性电极化所引起的各种非线性光学现象以及非线性光学相位共轭技术。

本书可作激光技术、激光光谱以及激光物理等专业研究生非线性光学课程的教科书或参考书，亦可供其它有关专业师生及科技人员参考。

非 线 性 光 学

过巴吉 主编

责任编辑 夏大平

西北电讯工程学院出版社出版发行

空军导弹学院印刷厂印刷

新华书店经销

开本787×1092 1/16 印张25 4/16 字数 618 千字

1986年12月第一版 1986年12月第一次印刷 印数1—3,000

统一书号：15322·68 定价：4.20元

前 言

非线性光学是激光问世以后才逐渐发展起来的一门新的学科分支，内容十分丰富，并已涉及许多科学技术领域。我们在科研和教学实践中深感缺乏一本较为系统的全面论述非线性光学现象的著作。鉴此，在我们开展科研、指导研究生和为研究生开设“非线性光学”、“光的量子理论”和“激光技术”等课程的基础上，编著了本书。

全书共分八章。前六章讨论了非线性电极化率的经典理论和半经典理论，以及二阶和三阶非线性电极化所引起的各种非线性光学现象，这能对非线性光学过程的基本理论和规律有一个较系统和全面的理解。第七章详细地讨论了电极化率的全量子理论，并分析了有关现象，这能对非线性光学的某些基本问题有深刻的认识。第八章详细地讨论了非线性光学中的一个十分活跃的工作，即非线性光学相位共轭技术，由于它在许多领域具有十分诱人的潜在应用，而受到人们的重视。

本书由过巴吉负责主编并执笔编写第一、二、三、四、六、七章。第八章由石顺祥执笔。第五章由安毓英执笔。

在本书定稿的过程中，中山大学物理系方心东老师审阅了全部书稿并提出了许多宝贵意见，在此表示感谢。

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。

目 录

引 言	1
第一章 电极化率的经典描述	3
一、电极化率的频率色散与空间色散	3
二、一维振子响应的经典理论	6
三、三维空间的非线性电极化强度	13
四、电极化率张量的一般性质	17
五、几点说明	21
第二章 非线性电极化率的量子力学描述	25
一、密度算符及其运动方程	25
二、密度算符的微扰级数	32
三、电极化率张量的表示式	38
四、近独立分子体系的电极化率张量	43
五、电极化率张量的完全对易对称性	56
六、完全对易对称性的若干物理结果	58
七、电极化率张量的时间反演对称性	64
八、有效场电极化率	67
九、分子间弱相互作用的效应	68
十、共振电极化率	72
十一、准单色辐射的非线性电极化	81
十二、带电粒子能在介质中自由移动情况下的电极化率张量的表示式	88
第三章 晶体的对称类型和电极化率张量的形式	98
一、对称变换	98
二、晶体的分类	101
三、电极化率张量的空间对称性	108
第四章 电磁波在介质内的传播	123
一、电磁波在各向异性晶体内的传播	123
二、折射率椭球	138
三、介质有耗对波的传播的影响	143
四、非线性相互作用的电磁公式	144

五、相位匹配	147
第五章 二阶电极化所引起的非线性现象	157
一、旋光性理论	157
二、法拉第效应	161
三、线性电光效应	163
四、光整流效应	174
五、三波耦合, 和频与差频的产生	175
六、二次谐波产生和二次谐波的有效非线性光学系数	182
七、参量变换	190
八、参量放大与振荡	193
九、背向参量放大与振荡	203
第六章 三阶电极化引起的非线性现象	207
一、克尔效应	207
二、光束的自聚焦现象	210
三、三次谐波产生	217
四、双光子吸收	224
五、受激喇曼散射	230
六、双谱泵浦过程和相干反斯托克斯喇曼散射	239
七、受激布里渊散射	243
八、受激光散射现象的一般考虑	252
第七章 非线性光学现象的全量子理论	255
一、辐射场的量子化理论	255
二、原子哈密顿的二次量子化	262
三、参量相互作用的量子力学处理	265
四、一阶电极化率的全量子理论	271
五、辐射跃迁速率的一般表示式	280
六、克雷默斯-海森堡公式	286
七、光子相干性	289
八、双光子吸收(双光束)	294
九、双光子吸收(单光束)	299
十、受激喇曼散射	301
十一、三次谐波产生	308
十二、光子的统计性质和非线性光学	313
第八章 光学相位共轭技术	319
一、引言	319

二、三波混频光学相位共轭技术.....	323
三、四波混频光学相位共轭技术.....	331
四、受激散射(SRS、SBS)光学相位共轭技术	359
五、光子回波光学相位共轭技术.....	363
六、光学相位共轭技术实验.....	370
七、相位共轭谐振腔.....	374
八、光学相位共轭技术的应用.....	391

新 知 窗
PDG

引言

众所周知,在激光出现以前,并没有非线性光学这一名词,大量的光学现象是线性光学现象。在线性光学范围内,描述电磁辐射在介质中传播规律的麦克斯韦方程组是一组线性的微分方程组,它们只包括场强矢量的一次项。因此,当单一频率的辐射入射到非吸收的透明介质时,除喇曼散射外,其频率是不会发生变化的。如果不同频率的光同时入射到介质时,它们彼此之间不会产生耦合,不可能产生新的频率。这是激光问世以前普通光学现象所描述的规律。用数学形式表示时,具有线性的关系。但在激光出现以后,介质在强激光作用下产生的电极化强度 $\mathbf{P}$ 与入射辐射的场强 $\mathbf{E}$ 的关系,不是简单的线性关系,还有二次、三次、……等非线性关系,如下式所示:

$$\mathbf{P} = \epsilon_0 \chi^{(1)} \cdot \mathbf{E} + \epsilon_0 \chi^{(2)} : \mathbf{E}\mathbf{E} + \epsilon_0 \chi^{(3)} :: \mathbf{E}\mathbf{E}\mathbf{E} + \dots$$

式中

$\chi^{(1)}$ 是一阶电极化率或线性电极化率,是二阶张量;

$\chi^{(2)}$ 是二阶电极化率,是三阶张量;

$\chi^{(3)}$ 是三阶电极化率,是四阶张量。

关于极化强度 $\mathbf{P}$ 更一般的表示式,可展开为电场、磁场和电场空间导数的幂级数,即

$$\begin{aligned} P_\mu^\omega = & P_\mu^0 + \epsilon_0 \chi_{\mu\alpha} E_\alpha^\omega + \epsilon_0 \chi_{\mu\alpha\beta} \nabla_\beta E_\alpha^\omega + \epsilon_0 \chi_{\mu\alpha\beta} E_\alpha^{\omega_1} E_\beta^{\omega_2} \\ & + \epsilon_0 \chi_{\mu\alpha\beta\gamma} E_\alpha^{\omega_1} E_\beta^{\omega_2} E_\gamma^{\omega_3} + \epsilon_0 \chi_{\mu\alpha\beta} E_\alpha^{\omega_1} B_\beta^{\omega_2} + \epsilon_0 \chi_{\mu\alpha\beta\gamma} E_\alpha^{\omega_1} B_\beta^{\omega_2} B_\gamma^{\omega_3} + \dots \end{aligned}$$

非线性光学效应的出现,并不是光束线性效应的一个小小的补充,而是一些很明显而且很重要的效应,它反映了介质与强激光束相互作用的基本规律。(注意式中不同项所用相同的 $\chi_{\mu\alpha\beta}^{(2)}$ 和 $\chi_{\mu\alpha\beta\gamma}^{(3)}$ 代表不同的物理过程所引入的量,它们的意义和量纲都是不同的。)

激光出现之后,非线性光学发展十分迅速。人们所以对非线性光学感兴趣,究其原因,第一,人们可能利用非线性光学效应作成某种器件。例如变频器,从而有可能提供从远红外(这里仅指波长为 $8 \sim 14 \mu\text{m}$ 的光波)到亚毫米波、从真空紫外到 x 射线的各种波段的相干光源。第二,由于某些非线性光学效应,例如双光子吸收、受激喇曼散射、受激布里渊散射等,会引起入射到介质中的光束的衰减,这就限制了通过介质的光通量;又如自聚焦现象会引起入射光束的畸变,强度太强时,甚至会导致介质的不可逆损伤,这就从实际中向人们提出了急需解决的问题。第三,由于非线性光学效应是通过强激光与组成非线性介质的原子或分子的相互作用体现的,因而非线性光学现象是获得这些原子或分子的微观性质信息的一种手段。

早期,研究非线性光学现象所使用的非线性介质大多是凝聚物质。近年来,人们对气体介质的非线性效应的研究渐感兴趣。这是因为晶体的双折射效应虽然可以用来补偿材料的色散效应,而且利用相位匹配可使谐波转换效率达到 80%,但是,要达到这种令人鼓舞的结果,就要求晶体具有大的 $\chi^{(2)}$ 和足够大的双折射效应、在 1cm 的范围内晶体的光学质量要非常好、能承受高的光学强度以及对入射光及被产生的光都有很好的透明度等。遗憾的是只有少数晶体材料才能满足上述要求,而最大的限制是晶体的红外和紫外吸收。此外,

对具有中心对称的晶体来说 $\chi^{(2)} = 0$ ，其非线性效应是一种更高阶的效应，效应较小。由于上述原因，就促使人们对气体和蒸汽的非线性效应进行研究。对蒸汽和气体来说，其明显的优点是，在大范围内有很好的光学质量，在高强度下不会受到不可逆损伤，并且对紫外和红外有很好的透明性。当然它与凝聚物质相比，由于单位体积内粒子数少，并且这种介质是中心对称的，最重要的非线性效应是由三阶非线性效应引起的（当只考虑电偶极矩对非线性的贡献时），因而为了能在这种介质中观察到由 $\chi^{(3)}$ 所引起的非线性现象，或者需要十分大的场强 E （例如用十分强的锁模激光脉冲），或者利用共振增强使得 $\chi^{(3)}$ 增大。

自1961年首次出现利用红宝石激光器观察到产生二次谐波以来，短短的二十多年，非线性光学已发展为光学中的一支新的学科分支，研究范围十分广泛，如波的混频，参量振荡与放大，受激散射过程，自聚焦，自相位调制，多光子效应，瞬态相干光学效应，非线性激光光谱学以及表面非线性光学等。并且在研究上述各种非线性光学现象的基础上，已提供和发展了一些实际可用的新方法和新技术。例如，非线性饱和吸收效应用于染料调Q开关、被动锁模、激光稳频和吸收光谱学；双光子吸收用于超短脉冲测量、消多卜勒加宽光谱术以及红外光子计数器；激光感应折射率变化用于信息存贮和制作双稳态元件；光学相位共轭技术用于波前畸变的自动补偿和光学信息处理等。此外，非线性光学对其它学科也有很大的影响，促进了等离子体物理、声学、无线电物理学中对非线性波现象的研究。最近又深入到利用非线性光学现象研究固体表面，把非线性光学和表面物理结合了起来。

总之，非线性光学是激光问世以后在光学领域中出现的一门崭新而又内容极为丰富、科学技术价值相当大的学科分支，其理论和实践已经并继续渗透到许多学科领域。因此，学习和研究这门学科，无疑是十分重要的。

本书内容主要有：（一）论述非线性电极化率的经典、半经典和全量子理论，以及非线性电极化率的性质；（二）讨论电磁波在非线性质内的传播规律，以及由于电磁波与介质的非线性相互作用所引起的二阶和三阶的各种非线性光学现象；（三）详细介绍非线性光学相位共轭的有关理论、技术和潜在应用。

第一章 电极化率的经典描述

本章主要内容是从经典振子模型导出各阶电极化率的表示式，并简单地介绍电极化率的一些基本性质，如真实性条件，本征对易对称性，完全对易对称性，以及晶体的空间对称性对极化率张量 $\chi^{(1)}$ 、 $\chi^{(2)}$ 和 $\chi^{(3)}$ 等的限制。

一、电极化率的频率色散与空间色散

1. 频率色散

电磁辐射在任何介质中的规律由麦克斯韦方程组

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

确定。这里我们用的是MKS单位制。任何形式的电磁场均可按傅里叶展开，在线性光学范围内，这些傅里叶分量之间是没有相互作用的。因此，我们只需讨论其中某个频率分量的场在传播中随时间变化的规律即可。如果某个频率分量的电磁辐射的电场强度为

$$\mathbf{E} = \mathbf{E}_0 \cos(\omega t + \varphi), \quad (1.1-2)$$

则写成复数振幅的形式为

$$\mathbf{E} = \mathbf{E}(\omega) \exp(-i\omega t) + \mathbf{E}^*(\omega) \exp(i\omega t). \quad (1.1-3)$$

式中 $\mathbf{E}(\omega) = \mathbf{E}_0 \exp(-i\varphi)/2$ ， $\mathbf{E}_0$ 是电场的实数振幅。与电场 $\mathbf{E}(\omega)$ 相联系的几个电磁场量 $\mathbf{D}(\omega)$ 、 $\mathbf{B}(\omega)$ 和 $\mathbf{j}(\omega)$ 有如下的关系：

$$\left. \begin{aligned} \mathbf{D}(\omega) &= \boldsymbol{\epsilon}(\omega) \cdot \mathbf{E}(\omega), \\ \mathbf{B}(\omega) &= \boldsymbol{\mu}(\omega) \cdot \mathbf{H}(\omega), \\ \mathbf{j}(\omega) &= \boldsymbol{\sigma}(\omega) \cdot \mathbf{E}(\omega), \\ \mathbf{P}^{(1)}(\omega) &= \epsilon_0 \boldsymbol{\chi}^{(1)}(\omega) \cdot \mathbf{E}(\omega). \end{aligned} \right\} \quad (1.1-4)$$

式中 $\boldsymbol{\epsilon}(\omega)$ 、 $\boldsymbol{\mu}(\omega)$ 、 $\boldsymbol{\sigma}(\omega)$ 和 $\boldsymbol{\chi}^{(1)}(\omega)$ 都是与频率有关的二阶张量，分别为介电张量、导磁率张量、电导率张量以及线性电极化率张量。

对于上式中的 $\mathbf{P}^{(1)}(\omega) = \epsilon_0 \boldsymbol{\chi}^{(1)}(\omega) \cdot \mathbf{E}(\omega)$ ，其分量可表为

$$P_\alpha^{(1)} = \sum_{\beta=x,y,z} \epsilon_0 \chi_{\alpha\beta}^{(1)} E_\beta, \quad (1.1-5)$$

写成矩阵的形式即

$$\begin{pmatrix} P_x^{(1)} \\ P_y^{(1)} \\ P_z^{(1)} \end{pmatrix} = \epsilon_0 \begin{pmatrix} \chi_{xx}^{(1)} & \chi_{xy}^{(1)} & \chi_{xz}^{(1)} \\ \chi_{yx}^{(1)} & \chi_{yy}^{(1)} & \chi_{yz}^{(1)} \\ \chi_{zx}^{(1)} & \chi_{zy}^{(1)} & \chi_{zz}^{(1)} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_x \\ E_y \\ E_z \end{pmatrix} \quad (1.1-6)$$

在以后我们会体会到把电极化强度分量表示为(1.1-5)式的形式,对描述非线性光学的现象和规律是特别方便的。在MKS单位制中, $\chi^{(1)}$ 是一个无量纲的量; $\chi^{(2)}$ 的单位为(m/V); $\chi^{(3)}$ 的单位为(m/V)²。

(1.1-4)式中的电极化率 $\chi^{(1)}$ 与频率有关,这种关系就叫做频率色散。

2. 因果性原理

在这里,我们将说明频率色散 $\chi^{(1)}(\omega)$ 乃是物理学中因果性原理的一个必然的结果。

当介质受到电磁辐射的作用时,在某给定时刻 t ,在介质中所感应的线性电极化强度 $\mathbf{P}(t)$,由该时刻 t 以前各个时刻的电场 $\mathbf{E}$ 所确定,而不是简单地由该时刻 t 的瞬时电场 $\mathbf{E}(t)$ 所确定。也就是说, t 时刻的电极化强度与产生电极化的场的历史有关。只有对于非色散介质或场的包络变化足够慢, t 时刻介质中所感应的电极化 $\mathbf{P}(t)$ 才只与瞬时场 $\mathbf{E}(t)$ 有关。这种情况叫做绝热极限,它将在第二章中详细分析讨论。

现假定在时刻 t 以前任一时刻 τ 时的电场为 $\mathbf{E}(\tau)$,它对在时间间隔 $(t-\tau)$ 以后的电极化强度的贡献为 $dP(t)$, $dP(t)$ 与 $E(\tau)$ 成正比,写成等式时,表示为

$$dP^{(1)}(t) = \epsilon_0 R(t-\tau) E(\tau) d\tau. \quad (1.1-7)$$

式中因子 $R(t-\tau)$ 被称作介质的线性电极化强度的响应函数(与电路理论中的脉冲响应函数相类似),上式对时间积分,便得到 t 时刻的线性电极化强度为

$$P^{(1)}(t) = \int_{-\infty}^t \epsilon_0 R(t-\tau) E(\tau) d\tau. \quad (1.1-8)$$

如果考虑到电极化强度与电场强度的矢量性,则基本关系变为

$$\mathbf{P}^{(1)}(t) = \int_{-\infty}^t \epsilon_0 \mathbf{R}^{(1)}(t-\tau) \cdot \mathbf{E}(\tau) d\tau. \quad (1.1-9)$$

式中 $\mathbf{R}^{(1)}(t-\tau)$ 是一个二阶张量。

现对上式作变量代换。将 $(t-\tau)$ 用 τ' 代替,则有

$$\int_{-\infty}^t \epsilon_0 \mathbf{R}^{(1)}(t-\tau) \cdot \mathbf{E}(\tau) d\tau = - \int_{\infty}^0 \epsilon_0 \mathbf{R}^{(1)}(\tau') \cdot \mathbf{E}(t-\tau') d\tau'.$$

然后再用 τ 替换 τ' ,则(1.1-9)式变为

$$\mathbf{P}^{(1)}(t) = \int_0^{\infty} \epsilon_0 \mathbf{R}^{(1)}(\tau) \cdot \mathbf{E}(t-\tau) d\tau. \quad (1.1-10)$$

这就是说,在介质中,在时刻 t 所感应的电极化强度 $\mathbf{P}^{(1)}(t)$ 由以前各时刻 $t-\tau(\tau>0)$ 时的场振幅所确定。在电磁理论中,我们会经常碰到所谓的因果性条件,实际上(1.1-10)式所表示的电极化强度与场强之间的普遍关系,就是因果性条件的数学表达式。

因为电场 $\mathbf{E}(t)$ 是实函数,响应函数 $\mathbf{R}(\tau)$ 必须是实函数才能保证 $\mathbf{P}(t)$ 也是实函数。这个条件就是所谓的真实性条件。

取 $\mathbf{P}^{(1)}(t)$ 和 $\mathbf{E}(t)$ 的傅里叶变换

$$E(t) = \int E(\omega) \exp(-i\omega t) d\omega, \quad (1.1-11)$$

$$P^{(1)}(t) = \int P^{(1)}(\omega) \exp(-i\omega t) d\omega, \quad (1.1-12)$$

并将它们代入(1.1-10)式, 有

$$\begin{aligned} & \int P^{(1)}(\omega) \exp(-i\omega t) d\omega \\ &= \int_0^\infty \epsilon_0 \mathbf{R}^{(1)}(\tau) d\tau \cdot \int E(\omega) \exp(-i\omega(t-\tau)) d\omega \\ &= \iint_0^\infty \epsilon_0 \mathbf{R}^{(1)}(\tau) \exp(i\omega\tau) d\tau \cdot E(\omega) \exp(-i\omega t) d\omega. \end{aligned}$$

所以

$$\begin{aligned} P^{(1)}(\omega) &= \left[\int_0^\infty \epsilon_0 \mathbf{R}^{(1)}(\tau) \exp(i\omega\tau) d\tau \right] \cdot E(\omega) \\ &= \epsilon_0 \chi^{(1)}(\omega) \cdot E(\omega). \end{aligned} \quad (1.1-13)$$

式中

$$\chi^{(1)}(\omega) = \int_0^\infty \mathbf{R}^{(1)}(\tau) \exp(i\omega\tau) d\tau. \quad (1.1-14)$$

由此可见, 由于(1.1-14)式来自(1.1-8)式, 这就说明 $\chi^{(1)}$ 是频率的函数乃是因果性原理的直接结果。再由(1.1-14)式可见, 如果频率 ω 是复数, 即 $\omega = \omega_0 + i\omega_1$, 则当 $\omega_1 > 0$ 时, 在复数频率平面的上半个平面内就有

$$\chi^{(1)}(\omega) = \int_0^\infty \mathbf{R}^{(1)}(\tau) \exp(i\omega_0\tau - \omega_1\tau) d\tau. \quad (1.1-15)$$

式中被积函数含有指数衰减因子 $\exp(-\omega_1\tau)$, 因而积分(1.1-15)式是收敛的。这样, 在上半个复数频率平面内, $\chi^{(1)}(\omega)$ 是一个解析函数。

3. 克雷默斯-克朗尼 (Kramers-Kronig) 关系^[1]

线性电极化率 $\chi^{(1)}(\omega)$ 是一个复数, 其实部与虚部之间的关系叫做色散关系, 由所谓克雷默斯-克朗尼关系给出为

$$\chi(\omega) = \chi'(\omega) + i\chi''(\omega), \quad (1.1-16)$$

$$\chi'(\omega) = \frac{1}{\pi} \text{P.V.} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\chi''(\omega')}{\omega' - \omega} d\omega', \quad (1.1-17)$$

$$\chi''(\omega) = -\frac{1}{\pi} \text{P.V.} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\chi'(\omega')}{\omega' - \omega} d\omega'. \quad (1.1-18)$$

式中P.V.叫做柯西主值积分。

如果电极化率 $\chi(\omega)$ 满足所谓交叉对称关系

$$\chi^*(\omega) = \chi(-\omega), \quad (1.1-19)$$

则有

$$\chi'(\omega) = \chi'(-\omega), \quad (1.1-20)$$

$$\chi''(\omega) = -\chi''(-\omega). \quad (1.1-21)$$

即 $\chi'(\omega)$ 是 ω 的偶函数, $\chi''(\omega)$ 是 ω 的奇函数。这时(1.1-17)式和(1.1-18)式便分别变为

$$\chi'(\omega) = \frac{2}{\pi} \text{P.V.} \int_0^\infty \frac{\chi''(\omega') \omega'}{(\omega')^2 - \omega^2} d\omega', \quad (1.1-22)$$

$$\chi''(\omega) = -\frac{2\omega}{\pi} \text{P.V.} \int_0^\infty \frac{\chi'(\omega')}{(\omega')^2 - \omega^2} d\omega'. \quad (1.1-23)$$

由 $\chi(\omega)$ 的色散关系可知, 只要我们知道电极化率实部或虚部的任何一个, 那么通过色散关系便可求得另一个, 从而获得电极化的全部知识。

4. 空间色散^{[3][8]}

除电极化率的频率色散外, 还有一些现象表现出光学效应与场的空间变化率有关, 例如旋光效应。这时电极化率张量 χ 与波矢 k 有关。这种 χ 与波矢 k 的依赖关系, 叫做 χ 的空间色散。和 χ 的频率色散结合起来, 电极化率张量 χ 应是频率和波矢 k 的函数, 可表示为 $\chi(\omega, k)$ 。

在光频情况下, 因为光频辐射的波长比电子轨道半径和晶格间距离大得多, 因而在大多数情况下, $\chi(\omega, k)$ 对波矢的依赖关系或空间色散可以不考虑。但是在下列两种情况下, 空间色散便变得很重要: (i) 效应虽然小, 但由于它的存在所引起的现象却是唯一的, 如电磁辐射沿某些各向异性介质的光轴传播时所表现的旋光现象, 而其它光学现象不存在。(ii) 效应十分大, 大到可以和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的波的波长很短, 这时, 在原子范围内的场就不能看作恒量。在折射率很大的情况下, 除正常的传播模之外, 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]。

总之, 产生空间色散的原因, 是由于在介质内给定点的电极化强度不仅与该点的场强有关, 而且与邻近点的场强有关, 即与场的空间导数有关, 这就导致介电张量以及电极化率张量与波矢有关。

二、一维振子响应的经典理论

1. 波动方程

在任何介质内电磁场的行为由(1.1-1)式的麦克斯韦方程组所确定, 在各向同性的均匀非电磁介质内, 对于无自由电荷的空间区域来说,

$$\nabla \cdot \mathbf{D} = 0. \quad (1.2-1)$$

由(1.1-1)式中第一式和第三式, 并考虑到介质是均匀的和(1.2-1)式, 经过简单的运算可得

$$\nabla^2 \mathbf{E} = \mu_0 \sigma \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} + \mu_0 \epsilon_0 \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} + \mu_0 \frac{\partial^2 \mathbf{P}}{\partial t^2}. \quad (1.2-2)$$

式中 ϵ_0 和 μ_0 分别是真空中介电常数和导磁率, σ 是电导率, $\mathbf{P}$ 是电极化强度, 有关系

$$\mathbf{j} = \sigma \mathbf{E}, \quad (1.2-3)$$

$$\mathbf{D} = \epsilon_0 \mathbf{E} + \mathbf{P}. \quad (1.2-4)$$

式中 $\mathbf{j}$ 是电流密度。(1.2-2)式就是我们所要求的电场源 $\mathbf{P}$ 产生的光波电场 $\mathbf{E}$ 随时间、空间变化的方程——波动方程。它形式上类似于经典的强迫振动方程, 式中右边第一项是阻尼

项,第三项是激励项,也就是说,电极化强度 $\mathbf{P}$ 作为场的激励源,由它激发电磁场。由(1.2-2)式可见,如果我们知道了场源 $\mathbf{P}$,那么求解方程就可求得场 $\mathbf{E}$ 。

在线性光学范围内,电极化强度 $\mathbf{P}$ 与场强 $\mathbf{E}$ 之间具有线性的关系,它可以用来描述线性光学一类的光学现象,但不能用来描述诸如电光效应、磁光效应、圆双折射、波的混合以及受激散射效应等非线性光学现象。只有认为 $\mathbf{P}$ 与 $\mathbf{E}$ 之间具有更普通的或者非线性关系时,才能解释非线性光学现象。代替 $\mathbf{P}$ 与 $\mathbf{E}$ 之间的线性关系 $P_i = \epsilon_0 \chi_{ij} E_j$, 电极化强度 $\mathbf{P}$ 分量的一般表示式为^[5]

$$\begin{aligned} P_{\mu}^{\omega} = & P_{\mu}^0 + \epsilon_0 \chi_{\mu\alpha} E_{\alpha}^{\omega} + \epsilon_0 \chi_{\mu\alpha\beta} \nabla_{\beta}^{\omega} E_{\alpha}^{\omega} + \epsilon_0 \chi_{\mu\alpha\beta} E_{\alpha}^{\omega_1} E_{\beta}^{\omega_2} \\ & + \epsilon_0 \chi_{\mu\alpha\beta\gamma} E_{\alpha}^{\omega_1} E_{\beta}^{\omega_2} E_{\gamma}^{\omega_3} + \epsilon_0 \chi_{\mu\alpha\beta} E_{\alpha}^{\omega_1} B_{\beta}^{\omega_2} + \epsilon_0 \chi_{\mu\alpha\beta\gamma} E_{\alpha}^{\omega_1} B_{\beta}^{\omega_2} B_{\gamma}^{\omega_3} + \dots \end{aligned} \quad (1.2-5)$$

式中各量右上角的指标表示频率;右下角指标表示笛卡尔坐标,具有重复的指标要求和。展开式中每一项可用来描述一种或几种效应,这些将在第五章和第六章中进行详细的讨论。注意式中右边第三、第四和第六项代表不同的物理过程,所以它们虽用相同的符号 $\chi_{\mu\alpha\beta}$,但有着不同的意义和量纲。同理,对右边第五项和第七项所用相同的符号 $\chi_{\mu\alpha\beta\gamma}$ 也具有不同的意义和量纲。

下面分别讨论一维振子的线性响应和非线性响应的规律。

2. 一维线性响应

设介质是一个含有固有振动频率为 ω_0 的振子集合。振子模型代表着原子中电子运动的一种粗略的模型,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使其保持在平衡位置,当原子受到外加电场作用时,原子中电子作强迫振动,运动方程为

$$\ddot{\mathbf{r}} + 2h\dot{\mathbf{r}} + \omega_0^2 \mathbf{r} = -\frac{e}{m} \mathbf{E}. \quad (1.2-6)$$

式中 h 是阻尼系数, $\mathbf{r}$ 是电子离开其平衡位置的位移, e 是电子电荷, m 是电子的质量。现将 $\mathbf{r}$ 和 $\mathbf{E}$ 按傅里叶展开

$$\left. \begin{aligned} \mathbf{r}(t) &= \int \mathbf{r}(\omega) \exp(-i\omega t) d\omega, \\ \mathbf{E}(t) &= \int \mathbf{E}(\omega) \exp(-i\omega t) d\omega. \end{aligned} \right\} \quad (1.2-7)$$

由于方程(1.2-6)式是一个线性微分方程,因此其解 $\mathbf{r}(t)$ 只与电场 $\mathbf{E}(t)$ 有线性关系,那么对任何一个频率分量来说,可以得到

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

所以

$$\mathbf{r}(\omega) = -\frac{e}{m} \mathbf{E}(\omega) \frac{1}{\omega_0^2 - \omega^2 - 2ih\omega}. \quad (1.2-8)$$

根据介质电极化强度的定义,单位体积内的电偶极矩 $\mathbf{P}(\omega)$ 为

$$\mathbf{P}(\omega) = -ne\mathbf{r}(\omega) = \frac{ne^2}{m} \mathbf{E}(\omega) \frac{1}{\omega_0^2 - \omega^2 - 2ih\omega}. \quad (1.2-9)$$

式中 n 是单位体积内的振子数。再代入线性电极化率的表示式(1.1-4)并考虑到一维的情况, 可得

$$\chi^{(1)}(\omega) = \frac{P(\omega)}{\epsilon_0 E(\omega)} = \frac{ne^2}{\epsilon_0 m} \frac{1}{\omega_0^2 - \omega^2 - 2i h \omega} \quad (1.2-10)$$

如果引入符号

$$\begin{aligned} F(\omega) &= \frac{1}{\omega_0^2 - \omega^2 - 2i h \omega} \\ &= \frac{\omega_0^2 - \omega^2}{(\omega_0^2 - \omega^2)^2 + 4h^2 \omega^2} + i \frac{2h\omega}{(\omega_0^2 - \omega^2)^2 + 4h^2 \omega^2}, \end{aligned} \quad (1.2-11)$$

则

$$\begin{aligned} \chi^{(1)}(\omega) &= \frac{ne^2}{\epsilon_0 m} F(\omega) \\ &= \chi'(\omega) + i\chi''(\omega), \end{aligned} \quad (1.2-12)$$

式中

$$\begin{aligned} \chi'(\omega) &= \frac{ne^2}{\epsilon_0 m} \frac{\omega_0^2 - \omega^2}{(\omega_0^2 - \omega^2)^2 + 4h^2 \omega^2}, \\ \chi''(\omega) &= \frac{ne^2}{\epsilon_0 m} \frac{2h\omega}{(\omega_0^2 - \omega^2)^2 + 4h^2 \omega^2}. \end{aligned} \quad (1.2-13)$$

很明显, 线性电极化率 $\chi^{(1)}(\omega)$ 的实部与虚部都是 ω 的函数; 虚部 $\chi''(\omega)$ 在 $\omega = \omega_0$ 处有一个峰值, 具有洛伦兹线型。 $\chi'(\omega)$ 和 $\chi''(\omega)$ 随频率变化的曲线如图1-1所示。由 $\chi''(\omega)$ 随频率 ω 的关系很容易求出 $\chi''(\omega) - \omega$ 曲线的半宽度为 h 。而且 h 也是 $\chi'(\omega)$ 曲线峰值处的频率与 $\chi''(\omega)$ 的中心频率 ω_0 之差。如果频率 ω 远离共振频率 ω_0 , 即如果 $(\omega - \omega_0)$ 大于几个线宽时, $\chi''(\omega) \ll \chi'(\omega)$, $\chi''(\omega)$ 可忽略不计, 这表明频率为 ω 的波在介质中传播时与介质之间没有能量交换, 亦即无吸收地传播。

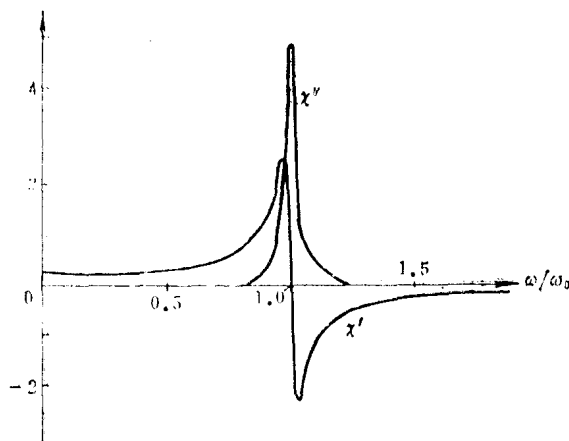


图 1-1 电极化率 $\chi(\omega)$ 的实部 $\chi'(\omega)$ 和虚部 $\chi''(\omega)$ 与频率的关系曲线示意图

3. 一维非线性响应

正如前面所指出的, 方程(1.2-6)式是一个线性微分方程, 其解(1.2-8)式与电场 E 有

线性的关系, 因此它不能用来描述非线性效应。如果考虑到在振子恢复力中存在着小的非谐和项时, 即如果用非谐和力

$$-\omega_0^2 r + Ar^2 + Br^3$$

代替谐和力 $-\omega_0^2 r$ 时, 便可以引入非线性电极化强度, 并能用来讨论非线性效应。式中 A 和 B 是表征非谐和效应的参数。这时基本的运动方程(1.2-6)式变为

$$\frac{d^2 r}{dt^2} + 2h \frac{dr}{dt} + \omega_0^2 r - Ar^2 - Br^3 = -\frac{e}{m} E. \quad (1.2-14)$$

给定电场 E , 可解出 r , 再由 $P = -ner$, 就可以求得电极化强度 P 。现在为简单起见, 暂时只考虑单个频率 ω 的电场

$$E = E(\omega) \exp(-i\omega t) + E^*(\omega) \exp(i\omega t). \quad (1.2-15)$$

由于方程(1.2-14)式是非线性的, 因此求解是十分困难的。但可以将 r 展开为幂级数的形式

$$r = \sum_{k=1}^{\infty} r_k. \quad (1.2-16)$$

将此式代入(1.2-14)式后, 可以得到一系列 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阶次。这一系列方程中最低阶次的三个方程是

$$\begin{aligned} \frac{d^2 r_1}{dt^2} + 2h \frac{dr_1}{dt} + \omega_0^2 r_1 \\ = -\frac{e}{m} [E(\omega) \exp(-i\omega t) + E^*(\omega) \exp(i\omega t)], \end{aligned} \quad (1.2-17)$$

$$\frac{d^2 r_2}{dt^2} + 2h \frac{dr_2}{dt} + \omega_0^2 r_2 = Ar_1^2, \quad (1.2-18)$$

$$\frac{d^2 r_3}{dt^2} + 2h \frac{dr_3}{dt} + \omega_0^2 r_3 = 2Ar_1 r_2 + Br_1^3. \quad (1.2-19)$$

关于(1.2-17)式的解在前面已讨论过, 其形式由(1.2-8)式给出为

$$r_1 = -\frac{e}{m} E(\omega) \frac{\exp(-i\omega t)}{\omega_0^2 - \omega^2 - 2ih\omega} + C.C. \quad (1.2-20)$$

式中 $C.C.$ 是式中右边第一项的复数共轭项。为求解(1.2-18)式, 可将

$$\begin{aligned} r_1^2 = \frac{e^2}{m^2} E^2(\omega) \frac{\exp(-2i\omega t)}{(\omega_0^2 - 2ih\omega - \omega^2)^2} + \frac{e^2}{m^2} E(\omega) E^*(\omega) \\ \times \frac{1}{(\omega_0^2 - 2ih\omega - \omega^2)(\omega_0^2 + 2ih\omega - \omega^2)} + C.C. \end{aligned} \quad (1.2-21)$$

代入(1.2-18)式, 并考虑到该式是线性的, 可对 r_2^2 项中每一项分别代入求解, 例如(1.2-21)式中第一项代入(1.2-18)式时, 其作用相当于使振子作频率为 2ω 的强迫振动, 因此相应的解为

$$\begin{aligned} r_2'(t) = r_2'(2\omega) \exp(-2i\omega t) \\ = \frac{A(e^2/m^2)E^2(\omega)}{(\omega_0^2 - 4ih\omega - 4\omega^2)(\omega_0^2 - 2ih\omega - \omega^2)^2} \exp(-2i\omega t). \end{aligned} \quad (1.2-22)$$

(1.2-21)式中的第二项与时间无关, 将这一项代入后, 可求得

$$r_2^* = A \frac{e^2}{m^2} E(\omega) E^*(\omega) \frac{1}{\omega_0^2(\omega_0^2 - 2i\hbar\omega - \omega^2)(\omega_0^2 + 2i\hbar\omega - \omega^2)} \quad (1.2-23)$$

这样(1.2-18)式的解便为

$$\begin{aligned} r_2(t) = & A \frac{e^2}{m^2} E^2(\omega) \frac{\exp(-2i\omega t)}{(\omega_0^2 - 2i\hbar\omega - \omega^2)^2(\omega_0^2 - 4i\hbar\omega - 4\omega^2)} + A \frac{e^2}{m^2} E(\omega) E^*(\omega) \\ & \times \frac{1}{\omega_0^2(\omega_0^2 - 2i\hbar\omega - \omega^2)(\omega_0^2 + 2i\hbar\omega - \omega^2)} + C.C. \quad (1.2-24) \end{aligned}$$

和上面求解 r_2 的方法相似, 将乘积 $r_1 r_2$ 以及 r_1^2 中各项分别代入(1.2-19)式求解, 不难求得(1.2-19)式的解为

$$\begin{aligned} r_3(t) = & -\frac{e^3}{m^3} E^3(\omega) \left[\frac{2A^2}{\omega_0^2 - 4i\hbar\omega - 4\omega^2} + B \right] \\ & \times \frac{\exp(-3i\omega t)}{(\omega_0^2 - 6i\hbar\omega - 9\omega^2)(\omega_0^2 - 2i\hbar\omega - \omega^2)^3} \\ & - \frac{e^2}{m^2} E^2(\omega) E^*(\omega) \left[\frac{2A^2}{\omega_0^2 - 4i\hbar\omega - 4\omega^2} + \frac{4A^2}{\omega_0^2} + 3B \right] \\ & \times \frac{\exp(-i\omega t)}{(\omega_0^2 - 2i\hbar\omega - \omega^2)^3(\omega_0^2 + 2i\hbar\omega - \omega^2)} + C.C. \quad (1.2-25) \end{aligned}$$

根据 $F(\omega)$ 的定义(1.2-11)式, 有

$$F(2\omega) = \frac{1}{\omega_0^2 - 4i\hbar\omega - 4\omega^2}, \quad (1.2-26)$$

$$F(3\omega) = \frac{1}{\omega_0^2 - 6i\hbar\omega - 9\omega^2}. \quad (1.2-27)$$

在引入 $F(\omega)$ 、 $F(2\omega)$ 和 $F(3\omega)$ 以后, 解 r_1 、 r_2 和 r_3 分别可表示为

$$r_1(t) = -\frac{e}{m} E(\omega) \exp(-i\omega t) F(\omega) + C.C., \quad (1.2-28)$$

$$\begin{aligned} r_2(t) = & \frac{e^2}{m^2} A E^2(\omega) \exp(-2i\omega t) F(2\omega) F(\omega) F(\omega) \\ & + \frac{e^2}{m^2} A E(\omega) E^*(\omega) F(\omega) F(-\omega) F(0) + C.C., \quad (1.2-29) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} r_3(t) = & -\frac{e^2}{m^2} E^3(\omega) (2A^2 F(2\omega) + B) \exp(-3i\omega t) F(3\omega) F^3(\omega) \\ & - \frac{e^3}{m^3} E^2(\omega) E^*(\omega) \left[2A^2 F(2\omega) + \frac{4A^2}{\omega_0^2} + 3B \right] \\ & \times \exp(-i\omega t) F^3(\omega) F(-\omega) + C.C. \quad (1.2-30) \end{aligned}$$

如果我们将电极化强度 P 写成如下形式: