

强 光 光 学

(非 线 性 光 学)

刘颂豪 赫光生

长春光学精密机械学院

(1982年)

强光光学（非线性光学）

作者：刘颂豪 赫光生
编辑：长春光学精密机械学院
出版：科 研
发行：长春光学精密机械学院
教材出版科
印刷：吉林省工业印刷厂

吉林省报刊登记证第(82)63号

(内部发行)

一九八二年十二月

编 印 说 明

自1961年以来，人们借助激光，发现了大量的非线性光学效应，诸如光学谐波、光学混频、光学参量放大，受激拉曼散射、受激布里渊散射、受激瑞利散射，光的自聚焦效应，自感透明、光子回波、光学章动、光学自由极化衰减，以及近年来引人注目的相位共轭效应和光学双稳性等等，它们自然地形成了一门新的光学分支——通称为非线性光学。这门学科目前仍在发展中，新的效应仍在不断出现。已经被人们掌握的一些非线性光学效应，有相当部分已被迅速地应用于技术领域（例如激光光谱技术等）。在这里我们可以说是真正看到了光学这门学科的繁盛景象。

刘颂豪同志和赫光生同志在把光学科学前沿阵地上的上述这些内容极为丰富的成果，及时地系统总结成为教材形式方面，作了相当的努力。他们合写的这本“非线性光学”，在对各种非线性光学效应给出了清晰的物理图象之后，紧跟着的理论上的讨论以及一些实验数据和原始文献的引用，对初学者和深入钻研者来说，都是非常合适的。

在二位作者即将来我院讲学之际，由我院将这本讲义印刷出版。同时我们也期待着，通过作者不断的科学实践和教学实践，以及对这本讲义内容的进一步丰富和修改，能使之成为适合我国实际情况的非线性光学方面的一部较好的教学参考书。

沈 柯

于长春光机学院

1982年12月

作 者 说 明

本讲义材料，拟专门介绍近二十年来发展形成的光学领域内的一门新兴分支学科——强光光学或非线性光学。着重介绍涉及到强激光与物质相互作用中出现的一系列新现象和新效应。其中主要包括的方面有：光学介质的非线性电极化效应，光学混频效应，受激散射效应，强光自聚焦效应，瞬态相干光学效应，光学相位共轭效应，光学双稳态效应，强光光谱学效应等。

本讲义力求作到重点突出和叙述简明，使得大学光学或激光专业师生以及有关学科领域内的读者，对这一方面的主要成果和今后发展趋势，有一概略的了解。在具体编写方式上，着重介绍：（1）各种新效应的现象特征，（2）对它们的基本理论描述，（3）主要的实验研究成果，（4）它们在学术上和技术上的价值。

本讲义材料曾于1979年首先由中国科技大学激光教研室协助编印成册，以后，又在此基础上作了较多的补充和适当的修改，现由长春光学精密机械学院协助印制成册，以作为该校或其他有关院校在开设此门专业课程时的教学参考资料。

望各方面同志对本讲义中一些不当或漏误之处提出批评和指正，以求今后进一步改正。

刘颂豪 赫光生

1981年于中国科学院上海光学精密机械研究所

目 录

第一章 强光光学效应概述

- § 1—1 强光光学的学科定义和发展历史····· 1
- § 1—2 强激光与物质作用的主要特点····· 3
- § 1—3 强光光学效应的应用价值和科学意义····· 5

第二章 非线性电极化效应理论基础

- § 2—1 光学介质的非线性电极化效应····· 7
- § 2—2 非线性介质内强光相互作用的耦合波方程····· 10

第三章 光学倍频、混频与参量效应

- § 3—1 光学倍频(二次谐波)效应····· 13
- § 3—2 光学和频与差频效应····· 21
- § 3—3 光学参量放大与振荡效应····· 23
- § 3—4 光学三次谐波和四波混频效应····· 28

第四章 受激散射效应

- § 4—1 光的散射现象概述····· 33
- § 4—2 受激瑞利散射效应····· 35
- § 4—3 受激拉曼散射效应····· 36
- § 4—4 受激布里渊散射效应····· 43
- § 4—5 受激自旋反转拉曼散射效应····· 49
- § 4—6 原子的电子跃迁受激拉曼散射····· 53

第五章 强光自聚焦与自调制效应

- § 5—1 自聚焦现象概述····· 56
- § 5—2 稳态自聚焦效应····· 59
- § 5—3 动态自聚焦效应····· 65

第六章 瞬态相干光学效应

- § 6—1 瞬态相干作用的定义和特点····· 71
- § 6—2 自感透明效应····· 72
- § 6—3 光子回波效应····· 77
- § 6—4 光学章动效应····· 82
- § 6—5 光学自由感应衰减效应····· 89

第七章 光学相位共轭效应和双稳态效应

- § 7—1 相位共轭波的定义和功用····· 93
- § 7—2 相位共轭波的产生方法和理论描述····· 95

§ 7—3	相位共轭技术的实验研究	101
§ 7—4	光学双稳态效应	109
第八章 强光光谱学效应		
§ 8—1	概 述	121
§ 8—2	饱和吸收光谱学效应	125
§ 8—3	双光子吸收光谱学效应	132
§ 8—4	相干拉曼和四波混频光谱学效应	137
§ 8—5	激光偏振光谱学效应	147
§ 8—6	激光光声光谱学效应	153
§ 8—7	激光光电流光谱学效应	157
§ 8—8	激光光谱学技术的应用和发展	162
第九章 激光分离同位素效应		
§ 9—1	激光分离同位素的光谱学知识	172
§ 9—2	激光分离同位素的方案分类	174
§ 9—3	原子系统同位素分离实验	176
§ 9—4	分子系统同位素分离实验	178
第十章 非线性电极化率的理论		
§ 10—1	电极化强度、电极化率和密度矩阵	181
§ 10—2	各阶电极化率密度矩阵方法求解	187
§ 10—3	非线性电极化率的主要性质	193
§ 10—4	分子介质非线性电极化率的B—O近似理论	201
附录 1、	线性电极化率张量元 $x_{ij}^{(1)}(\omega)$ 分布	211
附录 2、	二阶电极化率张量元 $x_{ijk}^{(2)}(\omega_1, \omega_2)$ 分布	211
附录 3、	二次谐波过程电极化率张量元 d_{ij} 分布	213
附录 4、	三阶电极化率张量元 $x_{ijk}^{(3)}(\omega_1, \omega_2, \omega_3)$ 分布	215
附录 5、	B—O近似下核三阶电极化率张量元 $x_{ijk}^{(3)''}(\omega_1, \omega_2, \omega_3)$ 分布	218
参考文献		220

第一章 强光光学效应概述

激光技术从1960年诞生到现在,已经历了二十年的发展时间。它的出现,标志着人类对光频相干电磁辐射的产生手段、控制能力及其与物质相互作用规律的认识,均达到了一个新的阶段。由于激光器的工作原理与普通光源的发光机理不同,所以能从根本上突破以往各种普通光源的种种局限性,赋予古老的光学以新的强大生命力,从而引起各种光学应用技术的革命性进展,并极大地促进了各种基础学科的发展。其中,表明激光技术对物理学发展所起促进作用的最明显的例证,就是物理学领域内,一门崭新的分支学科——强光光学(非线性光学)的出现与发展。

§ 1-1 强光光学的学科定义和发展历史

强光光学,亦可称为非线性光学,它是物理领域中,属于光学学科的一门新兴分支学科;它所研究的课题对象,主要是涉及到强激光辐射与物质相互作用过程中出现的各种新现象与新效应,包括对这些新现象与新效应产生的原因和过程规律性的深入了解,以及探索它们在当前或今后科学技术发展中的各种可能应用等。这门学科当初之所以取名为“非线性光学”,是有其一定历史原因和习惯原因的,尽管现在看来,这种称呼并不一定是最确切的。

在激光出现以前,在一些描述普通光学现象的重要公式中,常表现出数学上的“线性”特点。例如,为解释光学介质的折射率色散、散射、双折射等现象而引入一个重要的物理量——介质电极化强度矢量 \vec{P} ,并假定它与入射光波场强 \vec{E} 成简单的线性关系,亦即 $\vec{P} = \chi \vec{E}$,式中系数 χ 为介质的电极化率。与上述基本假设相联系,描述光在介质中传播与相互作用的宏观麦克斯韦方程组,也是一组线性微分方程组,亦即方程只含场强矢量的一次方项。根据这样的理论假设,单一频率的光射到非吸收的介质中,其频率不发生任何变化(频移散射现象除外);不同频率的光同时入射,彼此间不发生相互耦合作用,也不会产生任何新的频率。还可以举出一个“线性”例子。设一束初始光强为 I_0 的普通光,入射到一定的吸收介质,则经过距离 l 后,光强的衰减量可表为

$$\Delta I = I_0 - I(l) = I_0(1 - e^{-\alpha_0 l}) \quad (1-1)$$

这里假设了介质的吸收系数 α_0 为常数,从而可看出,在一定距离 l 上入射光的绝对衰减量是与初始光强成线性关系的。以上这些推论,都已为普通的光学实验所证实,也是容易为人们的常识所接受的。

在第一台激光器出现后不到一年的时间里,上面谈到的普通的光学中一些简单而被人们所公认的假设,却开始发生了根本性的动摇。首先,人们利用脉冲红宝石激光器输

出的6943 Å激光入射到石英晶体中，第一次观察到3472 Å倍频相干辐射的产生；以后，又在很短的时间内，相继在一系列介质中观察到二次谐波、三次谐波以及光学和频、差频、整流效应等。当时，这些新效应的发现者就已正确指出，只要对以前有关电极化效应的理论从根本上加以改造和推广，就可以对新效应给出完满的解释。为此，需假设在强激光作用下，介质的电极化强度不再与入射光场成简单的线性关系，而是成更一般的幂级数关系，亦即

$$\vec{P} = \chi^{(1)} \vec{E} + \chi^{(2)} \vec{E} \vec{E} + \chi^{(3)} \vec{E} \vec{E} \vec{E} + \dots \quad (1-2)$$

式中 $\chi^{(1)}$ 、 $\chi^{(2)}$ 和 $\chi^{(3)}$ 分别为介质的一次（线性）、二次（非线性）和三次（非线性）电极化率，并且在各向异性介质的情况下，它们都表现为张量形式的系数。将电极化强度的上述表示式（1—2）代入麦克斯韦方程，可导出一组包含光场强高次项的非线性电磁波动方程组；进而可解释一种单频率光入射到特定介质中时可产生倍频辐射，而多种不同频率的光同时入射，可通过介质彼此发生耦合作用并在新频率处产生混频辐射等。从这种新的非线性电极化效应的观点出发，人们把当时发现的这些效应和以后陆续发现的一些新效应（如光参量放大与振荡、自聚焦、受激散射、饱和吸收等），统称为非线性光学效应，从而把研究这些新效应的学科称为“非线性光学”，并一直沿用至今。与此相应，有人把激光出现以前，有关普通光与物质相互作用的现象称为线性光学效应，相应的光学理论称为线性光学理论。

非线性光学的发展，可粗略地划分为两个大的阶段：一个是六十年代可称为早期阶段，另一个是七十年代可称为近期阶段。

第一个阶段的特点是，大量非线性光学效应的发现以及对它们产生机理和规律性的深入研究；这个时期先后从实验上发现或证实的新效应有：光学倍频（1961年）、光学混频（和频与差频）（1961年与1963年）、光参量放大和振荡（1965年）、受激拉曼散射（1962年）、受激布里渊散射（1964年）、自聚焦（1964年）、饱和吸收、光子回波（1964年）、自感透明（1967年）、光学章动（1968年）、双光子吸收以及光学击穿等；其中比较多的研究工作是集中在二次谐波、受激散射、光参量振荡以及自聚焦等几个方面。在七十年代里，对已发现的现象和效应的研究进入了更加深入和更加广泛的新阶段，这主要表现在激光作用方式和与其发生作用的介质的种类、组成、状态的愈益多样化；与此同时，还继续发现了一批新效应和发展了一些新技术，例如自旋反转受激拉曼散射（1970年）、相干反斯托克斯拉曼光谱学（CARS）、消多卜勒加宽双光子吸收光谱学（1974年）、光声光谱学、光电流光谱学（1976年）、光学悬浮（1971年）、感应光栅效应、相位复共轭（1972年）、光学双稳态效应（1976年）等；在这一时期里，除了有大量工作继续集中在有关受激散射、自聚焦，高次谐波、光学和频等课题方面外，还有较多的工作集中在多光子过程、光学击穿、瞬态相干效应、各种激光光谱学效应以及向其他有关学科（固体物理、等离子体物理、集成光学与纤维光学、声学、力学、化学、生物学等）渗透的新现象和新效应的研究中。

在这里有必要指出的是，上面列举的大量新现象与新效应，并不是全都能用非线性电极化理论所解释清楚的；换句话说，有很多现象和效应的过程实质，并不是都能用“非线性”这样一个简单的数学概念反映得了的。因此，从这种意义上来说，把激光出

现后所发现的这些新效应，统称为“强光光学效应”，而把研究这些效应的新兴学科称为“强光光学”，似乎更为恰当。关于取这种称呼的理由，还可由下面一节的说明中更清楚地看出。

§ 1—2 强激光与物质作用的主要特点

就涉及到光与物质相互作用这一领域而言，激光技术出现后所发现的比较重要的新现象与新效应的总数，大大超过了过去长时间里人们所发现的普通光学现象和效应的总数。人们自然会问，为什么只有在激光出现后，才能发现这么多的新现象与新效应？

为了回答这个问题，必须深刻了解激光与普通光的根本区别，从而才能充分认识到强激光辐射与物质相互作用过程中蕴藏着的巨大潜力；正是由于这种潜力愈来愈得到充分发挥，所以才能不断揭示出新现象与新效应，进而把人们对光与物质相互作用规律性的认识，深入到一个更加深刻更加详尽得多的层次和水平上来。

如所周知，激光的产生基于受激辐射，而普通光的产生则基于自发辐射。两种发光机理的不同，决定了两类光辐射的本质上的区别，而这种质的区别，又充分反映在描述两类光辐射有关物理量的巨大数值差异上。通常用比较通俗而直观的术语来描述，激光具有高定向性、高单色性或高相干性特点；用辐射光力学的术语来描述，激光具有高亮度特点；用量子统计学的术语来描述，激光具有高光子简并度特点；从电磁波谱学的角度来看，激光又具有高场强和可调谐特点。其中最本质和最具有综合性的特点，是激光的高亮度或者高光子简并度特点。亮度的定义又可分为两种，一种是定向亮度，定义为单位截面积、单位立体角内的光功率，另一种是单色定向亮度，定义为单位截面积、单位立体角、单位频宽内的光功率；后者表征光功率在空间上和频率范围内的集中程度。光子简并度则定义为单个光子状态或电磁场单个本征波型（模）内的平均光子数，它与单色定向亮度是彼此相当的量（相差一数值因子）。

表1—1列出了激光与普通光源发光参数的数值比较。由其中可明显看出，与普通光相比，激光在亮度和光子简并度上有成百万倍（ 10^6 ）到亿亿倍（ 10^{16} ）以上的提高！从这个意义上来说，或者从光对物质作用的能动潜力上来说，激光与普通光的区别，类似于热核爆炸与普通炸药爆炸能力之间的区别。因此，我们可以这样理解，普通光是一种弱光，它所能提供的光波场强与组成介质的原子内部场强相比是很小的量，因此电极化强度表示式（1—2）中除第一项外，其余各项均可忽略；与此相应，采用量子力学的理论处理时，可把入射光视为很弱的微扰而取一级近似就往往可以了。而激光与物质的作用，属于强光与物质的相互作用，激光所产生的单色光频电磁场强达到可与原子内部场强相比或更高的水平，此时电极化强度表示式（1—2）中各非线性分量不能再忽略；与此相应，在采用量子理论处理时，一般需要采用二级以上的微扰近似。

综合而言，一方面，借助于激光技术发展的已有成就，人们可在很大程度上和很高的质量水平上来控制和改变激光辐射的各种参量（如功率、发散角、作用时间、波长、谱线宽度、偏振状态等）；另一方面，可用来与激光发生作用的物质的种类（无机物、

表 1-1

激光与普通光参数比较

光源种类	参数特性	单色性 $\Delta v/v$	定向性 (立体角) 球面度	相 于 性		亮 度		光子筒并度
				时间相干性	空间相干性	定向亮度 瓦/(厘米 ² · 球面度)	单色定向亮度 瓦/(厘米 ² · 球面度·赫)	
普通光源	宽广光源	白光(照明灯) 或 $10^{-4} \sim 10^{-6}$	$2\pi \sim 4\pi$	不相干(照明灯)或部分相干	不相干	极 低	极 低	$<(10^{-2} \sim 10^{-3})$
	准点光源加准直系统	(单色灯)	$10^{-2} \sim 10^{-4}$	干(单色灯)	部分相干	极 低	极 低	$<(10^{-2} \sim 10^{-3})$
	太 阳	白 光	6.8×10^{-5} (地面测)	不相干	部分相干	$\sim 10^{-3}$	$\sim 10^{-12}$	$\sim 10^{-2}$
激光器	一般气体激光器			部分相干 (多纵模)	部分相干 (多横模)	$10^4 \sim 10^8$	$10^{-2} \sim 10^2$	$10^8 \sim 10^{12}$
	一般固体激光器	$10^{-4} \sim 10^{-13}$	$10^{-8} \sim 10^{-8}$	完全相干 (单纵模)	完全相干 (单横模)	$10^7 \sim 10^{11}$	$10 \sim 10^3$	$10^{11} \sim 10^{13}$
	调Q大功率激光器					$10^{12} \sim 10^{17}$	$10^4 \sim 10^7$	$10^{14} \sim 10^{17}$

有机物、生物), 物态(固体、液体、气体、等离子体、液晶等), 作用对象(晶格、网络、分子群、分子、原子、离子、原子核、电子、色心、声子、激子、极化激元、等离子激元等)又是如此广泛和如此多样化。因此, 不难理解, 为什么在激光出现后不长的时间里, 会发现如此之多的新现象与新效应, 它们分别涉及到强光在物质中引起的光—光作用、光—电作用、光—磁作用、光—声作用、光—热作用、光—化学作用、光—生物作用等。在激光与物质发生上述各种作用的过程中, 除了表现作用的能动性或有效性特点外, 根据需要, 还可使这些过程具有共振或非共振选择性、高光谱分辨率、高时间分辨率和高空间分辨率等特点; 从而可向人们提供更多的富有价值的科学信息。

§ 1—3 强光光学效应的应用价值和科学意义

强光光学效应的研究之所以受到重视和获得迅速的进展, 诚然, 一方面是由于激光技术本身的发展提供了种种可能性; 另一方面, 也是由于开展这方面的工作, 的确具有很大的实际应用价值和比较深远的科学意义。概括起来, 这可归纳为如下几个方面:

(1) 提供了产生强相干光辐射和扩展波段的新手段——

到目前为止, 在一定频率的激光作用下, 可分别通过光学倍频、混频、参量振荡以及受激散射等效应, 而在新频率处产生相干光辐射(在某些情况下它们还是可以调谐的), 这种相干光辐射在本质上与入射激光性质相同, 因此开创了产生激光辐射的新的物理途径。人们现在正在利用这种途径来填补各类激光器件发射波长之间的空白光谱区, 并努力向更长的波段(远红外至亚毫米波)和更短的波段(真空紫外至软X射线)开拓。

(2) 解决激光技术本身提出的一些课题——

很多重要的强光光学课题, 是激光技术本身发展过程中提出来的。例如激光在工作物质内的自聚焦与感应折射率畸变, 影响到激光输出亮度的提高和场图均匀性; 自聚焦、受激布里渊散射、光学击穿等效应, 还可能导致工作物质的破坏和影响到激光束的正常传播; 受激布里渊散射等效应, 引起激光聚变打靶的馈入能量损耗等。对这些课题开展研究, 将有助于寻找出克服种种不利影响的方法和措施。

(3) 提供了一批新方法与新技术——

非线性光学的研究成果, 比较多地表现为它们能很快提供一批实际可用的新方法与新技术。例如非线性饱和吸收效应, 用于染料调Q开关和被动锁模, 还用于激光稳频以及饱和吸收光谱学中; 双光子吸收用于超短光脉冲测量, 还用于消多卜勒加宽光谱术以及红外光子计数器中; 光学击穿用于触发快速火花隙电开关; 光悬浮用于激光聚变靶球定位; 光学相位复共轭用于波面畸变补偿; 激光感应折射率变化用于信息存贮以及制成双稳态元件等。

(4) 是认识和改造物质的一种重要手段——

通过强光与物质相互作用的研究, 可以获得有关物质的组成、结构、状态、能量耦合及转移、各种内部变化动力过程的重要信息, 这些信息可在不同程度上分别反映出物

质的光学、电学、磁学、声学、力学、热学、化学、生物学等方面的特性。利用强激光作用，可以研究相变、超导、元激发、液晶、表面物理、高温等离子体等方面的问题；还可以使物质按人们所希望方式发生各种变化，如加热、致冷、压缩、冲击、熔化、汽化、膨胀、同位素分离、光聚合、可控化学反应等。

(5) 是促进基础理论发展的一种动力——

如本章开始所叙，强光光学这门学科出现的本身，就是对物理学基础理论的一种促进和发展。虽然到目前为止，强光光学的发展尚未导致有与近代物理学两大根本支柱（相对论和量子力学）不相符合或抵触之处，但这并不排除这门学科今后进一步发展会对已有理论基础产生新冲击的可能性。回顾一下上世纪末本世纪初的物理学发展历史就可知道，正是人们在深入探索光的传播（迈克尔逊—莫雷实验）以及光与物质相互作用规律性（黑体辐射、光电效应、原子线状光谱）的认识过程中，才最后导致相对论和量子论的诞生。现今，在处理有关光与物质作用的量子力学或量子电动力学理论中，仍然是基于入射光对原子的作用是弱微扰这样一种前提，而采用数学上的微扰近似加以处理。如果说这种假设对弱光作用是基本适用的话，那么它对强光和超强光作用是否仍然适用？这显然就是一个问题。又例如，在强短脉冲激光的自聚焦效应和自感透明效应研究中，曾发现运动焦点的超光束运动和增益介质中自透明脉冲的超光速运动，对这些新问题进行深入研究，有助于人们加深对狭义相对论已有结论的认识和理解。目前，关于利用激光检测横向相对论多卜勒效应、探测引力波、加速粒子、研究真空中光子光子散射、研究天体黑洞、验证广义相对论效应等可能性的讨论和探索工作正在进行之中。此外，考虑到强激光辐射可产生超高温、超高压、超高密度、超高真空、超高光子密度、超高电磁场强等极端物理条件，因此有可能在新的条件下对已有理论进行验证和发现新现象与新效应。今后如果最终能在上述某些方面取得重大的突破性进展，其意义将是相当深远的。

第二章 非线性电极化效应理论基础

如本讲义第一章所介绍的那样，对很多典型的强光光学效应，如光学倍频(谐波)、混频(和频与差频)、参量放大与振荡、多波混频、自聚焦、多级受激散射谱线的产生以及一些强光谱学等，采用有关光学介质的非线性电极化效应的理论观点来进行处理，往往是非常简便而又十分清晰的。

本章将着重介绍在强光场作用下产生非线性电极化效应的基本图象，以及描述不同频率单色强光波在介质内相互作用的基本方程——耦合波方程。⁽¹⁾

在本章中，讨论的都是强光场与非共振(即介质对所有参与作用的光场不存在共振吸收)介质的相互作用；关于强光场与共振吸收介质的相互作用，将第六章以及其他章节中专门讨论。

§ 2—1 光学介质的非线性电极化效应

对非共振透明光学介质而言，在光频电磁波入射作用下，组成介质的原子(或分子、离子)内的带电质点将围绕着它们的正常分布状态发生微小的位移或振动。电荷在入射光场作用下感应产生的运动，与以一定频率振动着的电偶极子体系相似，因此辐射出相应频率的电磁波。可把上述过程称为原子或分子体系在入射光场作用下产生感应电偶极矩并进而辐射出次电磁波的过程。在描述这种过程中，一个最重要的物理量是介质的电极化强度矢量 \vec{P} ，它定义为介质单位体积内的感应电偶极矩之和，并且在一级近似下，可认为它与光频电场强度 \vec{E} 成简单线性关系

$$\vec{P} = \alpha \vec{E} \quad (2-1)$$

式中系数 α 称为介质的电极化系数。由上式可看出，当一单色简谐光波 $\vec{E} = \vec{E}_0 \cos \omega t$ 入射到介质中时，介质内的电极化强度 \vec{P} 也以同样的频率 ω 随时间变化，从而辐射出同样频率的次电磁波，这种次波与入射光波相互干涉的结果，就决定了介质对入射波的反射、折射、散射等行为。在(2-1)式成立的条件下，单色光通过介质时频率不会发生变化(普通拉曼散射与布里渊散射现象除外)，而几种不同频率的光同时入射到介质中时，彼此间也不发生作用，也不会在任何新的频率处产生次波辐射。激光技术出现前的大量光学现象表明，上述一级近似下所作的介质线性电极化效应的假设对普通光波场而言是成立的。

在激光技术出现后，考虑到激光辐射的高单色亮度特性，在处理强光与介质的相互作用时，必须采取更高级的近似。为此，可将介质电极化强度(暂不考虑它的矢量特点)按入射光波场强的级数形式展开：

$$P = \alpha E + \beta E^2 + \gamma E^3 + \dots \quad (2-2)$$

理论分析将表明，展开式中后一项的系数与前一项的系数之比是十分小的量，即

$$\frac{\beta}{\alpha} \approx \frac{\gamma}{\beta} \approx \frac{1}{E_{\text{原子}}}$$

式中 $E_{\text{原子}}$ 为比较轻的原子内的平均场强大小，其量级约为 10^8 伏/厘米左右。对普通光辐射来说，其场强值远小于 $E_{\text{原子}}$ ，因此展开式 (2-2) 中除第一项外均可忽略；但对激光辐射来说，其光波场强数值与 $E_{\text{原子}}$ 相比一般不能忽略，因此必须考虑展开式中高次 (非线性) 项的贡献，由此就会有各种新光学效应的出现。例如，考虑 (2-2) 式中第二项的贡献，当一频率为 ω 的单色光波入射时，电极化强度的二次项可写为

$$P^{(2)} = \beta E^2 = \beta [E_0 \cos \omega t]^2 = \frac{\beta E_0^2}{2} (1 + \cos 2\omega t)$$

这表明电极化强度中包含有随时间以 2ω 频率变化的成分，因此能辐射出 2ω 频率的次电磁场波，这就是光学倍频效应；此外， $P^{(2)}$ 中还包含一项与时间无关的分量，这表明光学透明介质在强光频电磁场作用下，会产生感应直流电场，这就是所谓光学整流效应。如果以两种不同频率的单色光同时入射： $E = E_{01} \cos \omega_1 t + E_{02} \cos \omega_2 t$ ，则考虑到展开式中第二项的贡献 $P^{(2)}$ 中除了含有频率 $2\omega_1$ 和频率 $2\omega_2$ 及直流分量外，还将含有 $(\omega_1 \pm \omega_2)$ 频率的分量，亦即可以辐射出 $(\omega_1 \pm \omega_2)$ 频率的次电磁波，这就是光学混频 (和频与差频) 效应。如果进一步考虑到 (2-2) 式中第三项的贡献，则还可以产生三次谐波效应、自聚焦效应和其他的有关非线性光学效应等。

考虑到常见的倍频、混频、参量振荡与放大等效应是由 $P^{(2)}$ 项决定的，因此下面着重讨论介质的二次非线性电极化效应。

对于各向同性介质 (如气体、液体、玻璃) 以及具有对称中心的各向异性介质 (如方解石晶体)，当外界光频电场矢量倒向时，相应的电极化强度也改变本身的符号，故要求 (2-2) 式中含场强 E 偶次幂的项为零，亦即 $\beta = 0$ ；这意味着上述两类介质不能产生二次非线性电极化效应 (偶极近似下)。而只有不具对称中心的各向异性晶体才能产生二次非线性电极化效应，对这类介质而言，考虑到它们的各向异性特点以及电极化强度的矢量特点，(2-2) 式应更确切地表示为如下形式：

$$\begin{aligned} \vec{P} &= \chi^{(1)} \vec{E} + \chi^{(2)} \vec{E} \vec{E} + \chi^{(3)} \vec{E} \vec{E} \vec{E} + \dots \\ &= \vec{P}^{(1)} + \vec{P}^{(2)} + \vec{P}^{(3)} + \dots \end{aligned} \quad (2-3)$$

式中 $\chi^{(1)}$ 可称为线性电极化系数并为二阶张量； $\chi^{(2)}$ 称为二次非线性电极化系数并为三阶张量； $\chi^{(3)}$ 称为三次非线性电极化系数并为四阶张量。(2-3) 式中不同项对电极化强度矢量的贡献，可分别以直角坐标分量的形式表示为

$$\begin{aligned} P_i^{(1)} &= \sum_j \chi_{ij}^{(1)} E_j \\ P_i^{(2)} &= \sum_{jK} \chi_{ijK}^{(2)} E_j E_K \\ P_i^{(3)} &= \sum_{jKl} \chi_{ijKl}^{(3)} E_j E_K E_l \end{aligned} \quad (2-4)$$

上式中的下角标 i, j, k 可分别取 x, y, z 的标记； E_j 等分别为总入射光频电场强度矢量的某一直角坐标分量；而 $\chi_{ij}^{(1)}$ 、 $\chi_{ijK}^{(2)}$ 和 $\chi_{ijKl}^{(3)}$ 则分别为一次、二次和三次电极化系

数张量元，它们的总个数分别为9、27和81个。根据(2-3)及(2-4)式，还可将 $\vec{P}^{(1)}$ 的直角坐标分量以矩阵形式表示为

$$\begin{pmatrix} P_x^{(1)} \\ P_y^{(1)} \\ P_z^{(1)} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \chi_{xy}^{(1)} & \chi_{xz}^{(1)} & \chi_{zz}^{(1)} \\ \chi_{yx}^{(1)} & \chi_{yz}^{(1)} & \chi_{zz}^{(1)} \\ \chi_{zx}^{(1)} & \chi_{zy}^{(1)} & \chi_{zz}^{(1)} \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} E_x \\ E_y \\ E_z \end{pmatrix} \quad (2-5)$$

而将 $\vec{P}^{(2)}$ 的直角坐标分量以矩阵形式表示为

$$\begin{pmatrix} P_x^{(2)} \\ P_y^{(2)} \\ P_z^{(2)} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \chi_{xx}^{(2)} & \chi_{yy}^{(2)} & \chi_{zz}^{(2)} & \chi_{xy}^{(2)} & \chi_{yz}^{(2)} & \chi_{zx}^{(2)} & \chi_{yx}^{(2)} & \chi_{zy}^{(2)} & \chi_{zx}^{(2)} & \chi_{zy}^{(2)} & \chi_{zz}^{(2)} \\ \chi_{yx}^{(2)} & \chi_{yy}^{(2)} & \chi_{yz}^{(2)} & \chi_{xy}^{(2)} & \chi_{yz}^{(2)} & \chi_{zx}^{(2)} & \chi_{yx}^{(2)} & \chi_{yz}^{(2)} & \chi_{yx}^{(2)} & \chi_{yz}^{(2)} & \chi_{zz}^{(2)} \\ \chi_{zx}^{(2)} & \chi_{zy}^{(2)} & \chi_{zz}^{(2)} & \chi_{xy}^{(2)} & \chi_{yz}^{(2)} & \chi_{zx}^{(2)} & \chi_{yx}^{(2)} & \chi_{zy}^{(2)} & \chi_{yx}^{(2)} & \chi_{zy}^{(2)} & \chi_{zz}^{(2)} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_x E_x \\ E_x E_y \\ E_x E_z \\ E_y E_x \\ E_y E_y \\ E_y E_z \\ E_z E_x \\ E_z E_y \\ E_z E_z \end{pmatrix} \quad (2-6)$$

对于能产生非线性电极化效应的晶体介质而言，它们都具有不同的对称特性，按照晶体的对称理论的要求，限定了各次电极化系数张量元的分布形式和不为零的独立张量元的数目。例如对具对称中心的晶体而言，这种限制就表现为对所有二次电极化系数的张量元均为零。为产生二次非线性电极化效应相对晶体对称性提出的要求，与为产生压电效应而对晶体对称性提出的要求相同，因此用于二次非线性光学效应的晶体均为压电晶体，但上述两种效应产生的物理机制却完全不同，在前一效应中，涉及到的是电子振动或电子云的畸变，在后一效应中，涉及到的则是较大的离子的移动。

下面再进一步说明二次非线性电极化强度的具体表示方式和相应的二次非线性电极化系数应满足的对易关系。首先，按(2-3)式有

$$\vec{P}^{(2)} = \chi^{(2)} \vec{E} \vec{E} \quad (2-7)$$

设入射光场为两个单色简谐波

$$\vec{E} = \vec{E}_1 \cos \omega_1 t + \vec{E}_2 \cos \omega_2 t$$

则 $\vec{P}^{(2)}$ 中包含的和频与差频部分，可分别以直角坐标分量形式表示为

$$\left. \begin{aligned} P_i^{(2)}(\omega_1 + \omega_2) &= \sum_{jk} \chi_{ijk}^{(2)}(\omega_1 + \omega_2) \cdot E_{1j} E_{2k} \cdot \cos(\omega_1 + \omega_2) t \\ P_i^{(2)}(\omega_1 - \omega_2) &= \sum_{jk} \chi_{ijk}^{(2)}(\omega_1 - \omega_2) \cdot E_{1j} E_{2k} \cdot \cos(\omega_1 - \omega_2) t \end{aligned} \right\} \quad (2-7')$$

在介质有关特性为已知的情况下，原则上可用量子力学理论求出二次非线性电极化系数的具体函数表达式，从而可发现，它们不但是新产生的频率 $(\omega_1 \pm \omega_2)$ 的函数，而且也与入射光频率本身 ω_1 和 ω_2 有关，因此它们应更确切地表示为(参见第十章)

$$\left. \begin{aligned} \chi_{ijk}^{(2)}(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2; \omega_1, \omega_2) &\Rightarrow \chi_{ijk}^{(2)}(\omega_3; \omega_1, \omega_2) \\ \chi_{ijk}^{(2)}(\omega_3' = \omega_1 - \omega_2; \omega_1, \omega_2) &\Rightarrow \chi_{ijk}^{(2)}(\omega_3'; \omega_1, -\omega_2) \end{aligned} \right\} \quad (2-8)$$

理论分析还可表明，在上述系数表达式中，使有关的频率位置和下角标位置同时互换，而相应的系数保持不变，亦即有下述对易关系成立：

$$\begin{aligned} \chi_{ijk}^{(2)}(\omega_3; \omega_1, \omega_2) &= \chi_{ikj}^{(2)}(\omega_3; \omega_2, \omega_1) = \chi_{jki}^{(2)}(\omega_1, \omega_3; -\omega_2) \\ &= \chi_{jik}^{(2)}(\omega_1; -\omega_2, \omega_3) = \chi_{kji}^{(2)}(\omega_2; \omega_3; -\omega_1) = \chi_{ijl}^{(2)}(\omega_2, \omega_1; -\omega_3) \end{aligned} \quad (2-9)$$

利用上述对易关系, 可使与介质内发生的多波耦合过程有关的独立张量元数目进一步受到限制。对于下面我们要进行讨论来说, 并不需要知道非线性电极化系数各张量元的具体函数表示式或者数值大小, 只要知道它们的标记形式、代表的物理含义以及对易关系式就足够了。

§ 2-2 非线性介质内强光相互作用的耦合波方程⁽¹⁾

(一) 非线性介质内的麦克斯韦方程组

按照麦克斯韦电磁场理论, 对于非磁性绝缘透明光学介质而言, 描述电磁场随时空变化的方程为

$$\begin{aligned} \nabla \times \vec{H} &= \frac{1}{c} \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} + 4\pi \frac{\partial \vec{P}}{\partial t} \\ \nabla \times \vec{E} &= -\frac{1}{c} \frac{\partial \vec{H}}{\partial t} \end{aligned} \quad (2-10)$$

在普遍情况下, 电场强度 \vec{E} 、磁场强度 \vec{H} 及介质电极化强度 \vec{P} 可表现为任意形式的时空函数, 我们可分别把它们表为付里叶积分的形式

$$\begin{aligned} \vec{E}(t, \vec{r}) &= \int_{-\infty}^{\infty} \vec{E}(\omega, \vec{r}) e^{-i\omega t} d\omega \\ \vec{H}(t, \vec{r}) &= \int_{-\infty}^{\infty} \vec{H}(\omega, \vec{r}) e^{-i\omega t} d\omega \\ \vec{P}(t, \vec{r}) &= \int_{-\infty}^{\infty} \vec{P}(\omega, \vec{r}) e^{-i\omega t} d\omega \end{aligned} \quad (2-11)$$

这种表示的物理意义是, 任意光场均可表为无数多单色简谐波的一定形式的迭加, 式 (2-11) 中的 $\vec{E}(\omega, \vec{r})$ 等为相应单色简谐分量的振幅函数, 他们本身是频率和空间坐标 \vec{r} 的函数。

将 (2-11) 式代入 (2-10) 式后可分别得到各简谐分量满足的方程为

$$\left. \begin{aligned} \nabla \times \vec{H}(\omega, \vec{r}) &= -\frac{i\omega}{c} \vec{E}(\omega, \vec{r}) - \frac{i\omega}{c} 4\pi \vec{P}_{\text{线}}(\omega, \vec{r}) - \frac{i\omega}{c} 4\pi \vec{P}_{\text{非线}}(\omega, \vec{r}) \\ \nabla \times \vec{E}(\omega, \vec{r}) &= \frac{i\omega}{c} \vec{H}(\omega, \vec{r}) \end{aligned} \right\} \quad (2-12)$$

在导出上式过程中, 分别作了如下假设:

$$\left. \begin{aligned} \vec{P}(t, \vec{r}) &= \vec{P}_{\text{线}}(t, \vec{r}) + \vec{P}_{\text{非线}}(t, \vec{r}) \\ \vec{P}(\omega, \vec{r}) &= \vec{P}_{\text{线}}(\omega, \vec{r}) + \vec{P}_{\text{非线}}(\omega, \vec{r}) \end{aligned} \right\}$$

对 (2-12) 式中第二个方程两端同时作 $\nabla \times$ 运算并将第一个方程代入后可得

$$\left. \begin{aligned} \nabla \times \nabla \times \vec{E}(\omega, \vec{r}) &= \frac{i\omega}{c} \nabla \times \vec{H}(\omega, r) \\ &= \frac{\omega^2}{c^2} \vec{E}(\omega, \vec{r}) + \frac{4\pi\omega^2}{c^2} [\vec{P}_{\text{线}}(\omega, \vec{r}) + \vec{P}_{\text{非线}}(\omega, \vec{r})] \end{aligned} \right\} (2-13)$$

考虑到有

$$\left. \begin{aligned} \vec{P}_{\text{线}}(\omega, \vec{r}) &= \chi^{(1)}(\omega) \vec{E}(\omega, \vec{r}) \\ \epsilon(\omega) &= 1 + 4\pi\chi^{(1)}(\omega) \end{aligned} \right\} (2-14)$$

式中 $\epsilon(\omega)$ 为介质在频率 ω 处的线性介电常数,则方程(2-13)最后可写为如下形式:

$$\nabla \times \nabla \times \vec{E}(\omega, \vec{r}) - \frac{\omega^2}{c^2} \epsilon(\omega) \vec{E}(\omega, \vec{r}) = -\frac{\omega^2}{c^2} 4\pi \vec{P}_{\text{非线}}(\omega, \vec{r}) \quad (2-15)$$

以上导出的是,存在着非线性电极化效应时,介质内电场强度各单色简谐分量振幅函数满足的基本方程式,它通常称为电磁场的非线性波动方程式;一般得不到准确解析解,但在一定近似条件下,可求近似解析解或数值计算解。当 $\vec{P}_{\text{非线}}(\omega, \vec{r}) \rightarrow 0$ 时,方程式(2-15)就过渡到弱光场作用下的普通线性波动方程式。

(二) 多波相互作用的耦合波方程

下面将从电磁场非线性波动方程(2-15)式出发,讨论介质存在二次非线性电极化效应的情况下,多波间的相互作用问题。这种相互作用的起因,在于存在着能幅射出新频率次波的电极化强度的相应分量,而这一分量,又与原入射光波各频率分量之间彼此发生耦合作用。例如,对光学和频效应来说,在非线性介质内存在着 $\vec{E}(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2)$ 、 $\vec{E}(\omega_1)$ 和 $\vec{E}(\omega_2)$ 三种单色波场,其中每一种单色波场通过二次非线性电极化效应与另外两种单色波场相互耦合联系,如

$$\vec{P}^{(2)}(\omega_3, \vec{r}) = \chi^{(2)}(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2) \vec{E}(\omega_1, \vec{r}) \vec{E}(\omega_2, \vec{r}) \quad (2-16)$$

则由此可通过方程(2-15)写出一组非线性微分方程组

$$\left. \begin{aligned} \nabla \times \nabla \times \vec{E}(\omega_1, \vec{r}) - \frac{\omega_1^2}{c^2} \epsilon(\omega_1) \vec{E}(\omega_1, \vec{r}) &= 4\pi \frac{\omega_1^2}{c^2} \chi^{(2)}(\omega_1 = \omega_3 - \omega_2) \vec{E}(\omega_3, \vec{r}) \vec{E}^*(\omega_2, \vec{r}) \\ \nabla \times \nabla \times \vec{E}(\omega_2, \vec{r}) - \frac{\omega_2^2}{c^2} \epsilon(\omega_2) \vec{E}(\omega_2, \vec{r}) &= 4\pi \frac{\omega_2^2}{c^2} \chi^{(2)}(\omega_2 = \omega_3 - \omega_1) \vec{E}(\omega_3, \vec{r}) \vec{E}^*(\omega_1, \vec{r}) \\ \nabla \times \nabla \times \vec{E}(\omega_3, \vec{r}) - \frac{\omega_3^2}{c^2} \epsilon(\omega_3) \vec{E}(\omega_3, \vec{r}) &= 4\pi \frac{\omega_3^2}{c^2} \chi^{(2)}(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2) \vec{E}(\omega_1, \vec{r}) \vec{E}(\omega_2, \vec{r}) \end{aligned} \right\} (2-17)$$

上面方程式中写成简写形式的 $\chi^{(2)}(\omega_1, \omega_3, -\omega_2)$ 、 $\chi^{(2)}(\omega_2, \omega_3, -\omega_1)$ 和 $\chi^{(2)}(\omega_3, \omega_1, \omega_2)$ 等二次非线性电极化系数的各张量元之间满足由公式(2-9)所表示的对易关系。

一般说来,非线性波动方程(2-15)或(2-17)式的准确解析求解是困难的。