

非线性光学

李淳飞 著

哈尔滨工业大学出版社

内 容 提 要

本书用简明的经典极化理论方法,扼要地讲述了非线性光学的基本原理和概念。主要内容包括二阶和三阶的各种非线性光学现象,并介绍了在激发态非线性光学、光学双稳性、光学混沌、自聚焦、光孤子和全光开关等方面的最新发展与应用。

本书可作为物理、电子和仪器类光学专业的研究生的非线性光学课程教材,以及物理系高年级本科生的选修教材,也可作为从事激光、光电子和光通信技术工作的科技人员的参考书。

图书在版编目(CIP)数据

非线性光学./李淳飞著.—哈尔滨:哈尔滨工业大学出版社,2005.9

ISBN 7-5603-2142-9

I.非… II.李… III.非线性光学
IV.O 437

中国版本图书馆 CIP 数据核字(2005)第 015858 号

出版发行 哈尔滨工业大学出版社
社 址 哈尔滨市南岗区复华四道街 10 号 邮编 150006
传 真 0451-86414749
网 址 <http://hitpress.hit.edu.cn>
印 刷 哈尔滨工业大学印刷厂
开 本 787×960 1/16 印张 14.75 字数 200 千字
版 次 2005 年 9 月第 1 版 2005 年 9 月第 1 次印刷
书 号 ISBN 7-5603-2142-9/O·179
印 数 1~2 000
定 价 20.00 元

(如因印装质量问题影响阅读,我社负责调换)

前 言

“非线性光学”是激光产生以后发展起来的“现代光学”的一个分支学科,它是研究激光与物质相互作用产生各种非线性现象的学科。非线性光学有许多应用,例如,它可用于开辟激光新波段;压缩激光的脉宽;研制光开关、光放大器等光子器件;发展全光通信,光孤子通信和量子通信;提高光谱的分辨率;消除传光介质的畸变;研究表面、界面、低维、纳米结构等。随着光学和物质结构研究的发展,非线性光学的研究也与时俱进,当前它已成为发展微米尺度光子学和纳米光子学的基础。它是在各种物质尺度下实现以光控制光的基本手段。

现已出版的论述“非线性光学”的书较多,但是其中有的书数学公式比较烦杂,一般读者难以掌握其物理内含;有的书内容比较陈旧,没有反映非线性光学的最新发展。目前尚缺乏教学时数 60 学时左右的研究生教材。本人多年来为哈尔滨工业大学物理系光学专业研究生讲授“非线性光学”课程,此书是在原有讲稿的基础上整理完成的。本书的宗旨是本着少而精的原则,以经典理论和标量表述为主要方法,采用一阶非线性波动方程和速率方程等较为简单的数学工具,尽量深入浅出、系统、精练地讲解二阶和三阶非线性光学的宏观规律和物理图像,使初学者在较短时间内能够掌握非线性光学的基本原理、及其最新发展和主要应用。

在书的最后列出的参考文献中,有撰写本书主要借鉴的参考书目,还有作者本人有关非线性光学的主要学术论文的索引。这些论文是从 1980 年开始至今我与我的博士研究生们及其他研究人员合作完成的。在本书的第 7 章、第 8 章、第 10 章和第 3 章中收录了我们的部分研究成果,包括光学双稳性、光学混沌,激发态非线性光学、非线性全光开关、自聚焦和光孤子等方面的内容。

本书可作为光学专业硕士研究生的必修课教材,也可作为非光学专业研究生的选修教材,以及物理专业高年级本科生的选修教材。此外,从事激光、光电子和光通信技术工作的科技人员也可以将此书作为自学参考书。作者希望本书有较为广泛的读者,并能够对普及非线性光学知识起到一定的作用。

由于本书出版较为匆忙,不妥与疏漏之处在所难免,恳请读者批评指正,以便今后改进。

李淳飞

2005 年 8 月 16 日

目 录

第 1 章 绪论	1
1.1 研究非线性光学的意义	1
1.2 非线性光学的发展	6
1.3 非线性光学的应用	8
第 2 章 介质的非线性极化	11
2.1 非线性介质的波方程	11
2.2 非线性极化率	17
2.3 Kramers - Kronig 色散关系	22
第 3 章 光学三波耦合过程	28
3.1 三波耦合方程	28
3.2 光学二次谐波	32
3.3 光学和频、差频和参量过程	42
第 4 章 光学四波耦合过程	56
4.1 三次谐波与四波混频	56
4.2 光学相位共轭	60
第 5 章 非线性折射率效应	69
5.1 光学克尔效应	69
5.2 光束的自聚焦	75
第 6 章 非线性光散射	96
6.1 受激拉曼散射	97
6.2 受激布里渊散射	107
第 7 章 非线性光吸收与光折射	115
7.1 饱和吸收与反饱和吸收	115
7.2 饱和折射与反饱和折射	129
7.3 双光子吸收	134
第 8 章 光学双稳性与光学混沌	139
8.1 稳态光学双稳性	139

8.2 光学双稳性的不稳定性	154
第9章 光脉冲在光纤中的传播	168
9.1 非线性薛定谔方程	168
9.2 群速色散与自相位调制	174
9.3 光孤子的形成与特性	184
第10章 非线性全光开关	189
10.1 全光开关的意义与分类	189
10.2 线性和非线性光耦合器	192
10.3 低功率环腔全光开关	204
10.4 参数可调有源环腔全光开关	216
参考文献	219
1. 主要参考书	219
2. 李淳飞研究组有关非线性光学的学术论文	219

第1章 绪论

本章将论述非线性光学的研究对象和意义,非线性光学的发展历史和发展趋势,以及非线性光学的可能应用领域,并阐述非线性光学对现代光学、光子学和纳米光子学的贡献。

1.1 研究非线性光学的意义

1.1.1 非线性光学是非线性物理学的分支学科

众所周知,现代物理学是建立在20世纪初形成的量子物理学和相对论物理学两大基石之上的。量子物理学是研究分子、原子、核子、基本粒子等微观世界规律的工具;相对论物理学是研究接近光速的高速运动规律与大质量物体引力相互作用规律的理论。光学在建立量子论和相对论的过程中曾起着重要的作用:量子论建立在光的粒子性的基础上;相对论建立在光速不变的基础上。

有人认为,20世纪下半叶建立起来的非线性物理学,也是现代物理学的一块基石。非线性物理学是研究在物质间宏观强相互作用下普遍存在着的非线性现象,也就是作用和响应之间的关系是非线性的现象。非线性物理现象包含在物理学的各个领域,形成了非线性力学、非线性声学、非线性热学、非线性电子学以及非线性光学等学科。非线性光学是非线性物理学的一个分支,它是描述强光与物质发生相互作用的规律。非线性光学在激光发明之后迅速发展起来,它所揭示的大量新现象极大地丰富了非线性物理学的内容。

1.1.2 非线性光学是现代光学的分支学科

20世纪60年代初人类发现了激光,从此古老的光学焕发了青春。我们把基于自发辐射的普通光源的光学称为“传统光学”,而把基于受激辐射的激光光源的光学称为“现代光学”。20世纪下半叶,现代光学发展极快,围绕激光的研究和应用迅速形成了几个分支学科,并且很快获得广泛的应用。表1.1.1列出了几个较为成熟的现代光学分支学科的研究对象和主要应用,其中非线性光学是现代光学的一个重要分支学科。它是研究各种激光与各类物质相互作用所产生的各种非线性效应的学科。非线性光学在激光的强度控制(全光开关、光

限制)、脉冲压缩(调 Q 与锁模)、频率转换(倍频、和频、四波混频)、激光光谱(超精细结构分析)、消畸变传输(光学相位共轭)、光孤子通信、数字光计算、非线性光存储(光折变光存储、双光子光存储)等方面有重要的应用。

表 1.1.1 现代光学分支学科的研究对象和主要应用

分支学科	研究对象	主要应用
激光物理学	激光器理论以及提高激光品质的方法	各种工作物质和各种脉宽的激光器系统设计;调 Q、锁模、放大、调制、调频、谱宽压缩、偏振控制等技术
非线性光学	激光与物质相互作用产生非线性效应	脉宽压缩;频率转换;全光开关;消畸变传输;光孤子通信;数字光计算;激光光谱,非线性光存储等
傅里叶光学	傅里叶光学理论及光学信息处理应用	全息照相,全息商标,全息存储;光学图像处理:特征识别、边沿增强等;模拟光学计算,信息安全技术等
导波光学	光在光纤和平面波导中的传播与控制	光纤与平面光波导的制备;有源与无源波导器件;光束与波导、波导与波导间的耦合;色散、损耗、偏振控制等
量子光学	非经典光学现象与原子发光量子理论	利用压缩态抑制光通信噪声;利用量子纠缠态实现量子密码保密通信;量子信息处理,量子计算,量子存储等

1.1.3 非线性光学是研究激光与物质相互作用的学科

非线性光学(激光为光源)与线性光学(普通光为光源)有本质的区别,两种情况下,在光与物质相互作用或光波之间的相互作用中所表现的特性不同,主要区别列于表 1.1.2 中。

表 1.1.2 非线性光学与线性光学的主要区别

线 性 光 学	非 线 性 光 学
光在介质中传播,通过干涉、衍射、折射可以改变光的空间能量分布和传播方向,但与介质不发生能量交换,不改变光的频率	一定频率的入射光,可以通过与介质的相互作用而转换成其他频率的光(倍频等),还可以产生一系列在光谱上周期分布的不同频率和光强的光(受激拉曼散射等)
多束光在介质中交叉传播,不发生能量相互交换,不改变各自的频率	多束光在介质中交叉传播,可能发生能量相互转移,改变各自频率或产生新的频率(三波与四波混频)
光与介质相互作用,不改变介质的物理参量,这些物理参量只是光频的函数,与光场强度变化无关	光与介质相互作用,介质的物理参量如极化率、吸收系数、折射率等是光场强度的函数(非线性吸收和色散、光克尔效应、自聚焦)
光束通过光学系统,入射光强与透射光强之间一般成线性关系	光束通过光学系统,入射光强与透射光强之间呈非线性关系,从而实现光开关(光限制、光学双稳、各种干涉仪开关)
多束光在介质中交叉传播,各光束的相位信息彼此不能相互传递	光束之间可以相互传递相位信息,而且两束光的相位可以互相共轭(光学相位共轭)

按照激光与介质的相互作用,可以把非线性光学效应分为以下两类。

1. 被动非线性光学效应

被动非线性光学效应的特点是:光与介质间无能量交换,而不同频率的光波间能够发生能量交换。例如,倍频、三波混频、参量过程、四波混频、相位共轭……。图 1.1.1 以倍频与四波混频为例说明被动非线性光学效应。

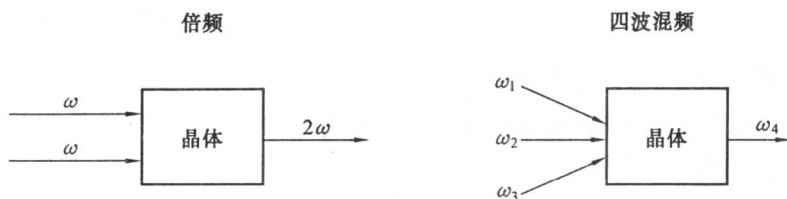


图 1.1.1 被动非线性光学效应

2. 主动非线性光学效应

主动非线性光学效应的特点是：光与介质间会发生能量交换，介质的物理参量与光场强度有关。例如，非线性吸收（饱和吸收、反饱和吸收、双光子吸收等）、非线性折射（光克尔效应、自聚焦与自散焦、折射率饱和与反饱和等）、非线性散射（受激拉曼散射、受激布里渊散射等）、光学双稳性、光限制等。图 1.1.2 以饱和吸收、光克尔效应与自聚焦为例说明主动非线性光学效应。

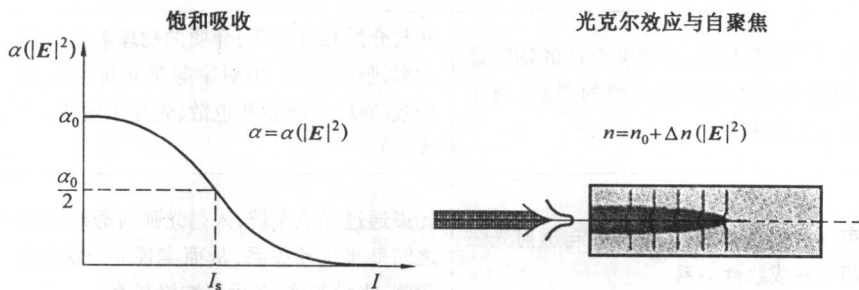


图 1.1.2 主动非线性光学效应

具有非线性光学性质的材料有许多种，不同材料的非线性机制各不相同。表 1.1.3 给出非线性光学材料及其非线性机制。

1.1.4 非线性光学现象是高级极化现象

当光入射介质，在光电场 $E(\mathbf{r}, t)$ 作用下，组成介质的激性分子、原子、电子发生位移，感生次级电场，称之为电极化强度 $P(\mathbf{r}, t)$ 。在普通光情况下， $P(\mathbf{r}, t)$ 和 $E(\mathbf{r}, t)$ 的关系是正比线性关系

$$P = \epsilon_0 \chi \cdot E \quad (1.1.1)$$

式中 ϵ_0 为真空介电系数; χ 为线性极化率, 对各向异性介质它是复数张量。

若入射光是激光, 光强比普通光高几个数量级, 极化强度展开为光场的幂级数, 要考虑高幂次项的作用

$$P = \epsilon_0 \chi^{(1)} \cdot E + \epsilon_0 \chi^{(2)} : EE + \epsilon_0 \chi^{(3)} \vdots EEE + \cdots \quad (1.1.2)$$

式中 $\chi^{(1)}$ 是线性极化率; $\chi^{(2)}$ 和 $\chi^{(3)}$ 是二阶和三阶非线性极化率。它们分别是二阶、三阶和四阶张量。等式右边第一项为线性极化项, 第二项、第三项等高阶项为二阶、三阶等高阶非线性极化项。总之, 非线性光学现象是与高阶极化有关的现象。

表 1.1.3 非线性光学材料及其非线性机制

非 线 性 光 学 材 料	非 线 性 机 制
半导体材料	电子机制、激子机制
有机、高分子材料	电子、分子极化与分子取向
电光晶体	外电光效应
光折变材料	内电光效应
液晶材料	分子取向
团簇材料(C_{60} 等)	分子极化
纳米复合材料	表面等离子体激元
手性分子材料	分子电、磁极矩
等离子体	电子、离子

1.1.5 非线性光学现象是介质的参量与光强有关的现象

对于各向同性介质, 可将(1.1.2) 式改写为标量形式

$$\begin{aligned}
 P &= \epsilon_0 \chi^{(1)} E + \epsilon_0 \chi^{(2)} EE + \epsilon_0 \chi^{(3)} EEE + \cdots \\
 &= \epsilon_0 (\chi^{(1)} + \chi^{(2)} E + \chi^{(3)} E^2 + \cdots) E \\
 &= \epsilon_0 \chi(E) E
 \end{aligned} \quad (1.1.3)$$

式中

$$\begin{aligned}\chi(E) &= \chi^{(1)} + \chi^{(2)}E + \chi^{(3)}E^2 + \cdots \\ &= \chi^{(1)} + \chi^{(2)}(E) + \chi^{(3)}(E^2) + \cdots\end{aligned}\quad (1.1.4)$$

二阶极化率为光电场强度的函数,三阶极化率为光强的函数,它们皆为复数。三阶极化率可写成实部、虚部两部分

$$\chi^{(3)}(E^2) = \chi^{(3)'}(E^2) + i\chi^{(3)''}(E^2) \quad (1.1.5)$$

可以证明实部与折射率成正比

$$\chi^{(3)'}(E^2) \propto n(E^2) \quad (1.1.6)$$

虚部与吸收系数成正比

$$\chi^{(3)''}(E^2) \propto \alpha(E^2) \quad (1.1.7)$$

可见对三阶效应,极化率、折射率和吸收系数都是光强的函数。

1.2 非线性光学的发展

1.2.1 非线性光学的发展简史

非线性光学研究从 1960 年发明激光开始,1961~1965 年经历了初期创立阶段。为总结这个阶段的成果,非线性光学的创始人诺贝尔物理学奖获得者 N. Bloembergen 1965 年出版了《Nonlinear Optical Phenomena》一书。1965~1985 年是非线性光学的发展成熟阶段。为总结这个阶段的研究成果,1984 年非线性光学权威专家 Y. R. Shen(沈元壤)出版了《The Principles of Nonlinear Optics》一书。1985~2000 年是非线性光学的初步应用阶段。至今为止,非线性光学的理论研究已经比较成熟,但在光学与光子技术上的应用还不太成熟,有待进一步研究发展。下面列出非线性光学的发展简史。

1. 非线性光学初期创立阶段

- 1961 年, Franken 实验发现红宝石激光的倍频;
- 1962~1964 年,发现受激拉曼散射、受激布里渊散射;
- 1962~1965 年,发现和频、差频、参量振荡、四波混频;
- 1963~1965 年,发现饱和吸收、反饱和吸收、双光子吸收;

1964 ~ 1966 年,发现自聚焦和自相位调制;

1965 年,实验发现光学相位共轭;

1965 年, N. Bloembergen 出版《Nonlinear Optical Phenomena》一书。

2. 非线性光学发展成熟阶段

1970 ~ 1985 年,实现半导体量子阱、超晶格,发展半导体非线性光学;

1975 ~ 1984 年,实验发现光学双稳态和光学混沌,推动光计算研究;

1984 ~ 1987 年,研究光纤中的非线性光学,实现光孤子激光器;

1985 年,实验获得光学压缩态,促进量子光学的发展;

1984 年,沈元壤出版《The Principles of Nonlinear Optics》一书。

3. 非线性光学初步应用阶段

1985 ~ 1987 年,发现新型非线性光学晶体 BBO 和 LBO,推动 ps 和 fs 瞬态光学;

1987 年,开始研究有机材料激发态非线性光学,推动光限制器研究;

1987 年,光子晶体的提出,推动了非线性光子晶体理论与器件的研究;

1989 年,掺铒光纤放大器的发明,推动了光纤通信的发展;

1995 年,研究手性分子材料非线性光学,推动生物光学的发展;

90 年代初,光孤子通信实验成功,推动孤子通信发展;

90 年代中,DWDM 光通信技术的发展,对波长转换器、光开关、拉曼放大器等非线性光学器件提出需求;

90 年代末,完成远程量子信息传输实验,促进量子通信技术发展。

1.2.2 非线性光学研究的发展趋势

非线性光学规律研究的发展趋势是,研究对象从稳态转向动态;所用光源从连续、宽脉冲转向纳秒、皮秒和飞秒甚至阿秒超短脉冲;从强光非线性的研究转向弱光非线性研究;从基态 - 激发态跃迁非线性光学研究转向激发态 - 更高激发态跃迁非线性光学研究;从研究共振峰处的现象转向研究非共振区的现象;从二能级模型的研究转向多能级模型的研究;研究物质的尺度从宏观尺度(衍射光学),到介观(纳米)尺度(近场光学),再到微观尺度(量子光学)。

非线性光学材料研究的发展趋势是,从晶体材料到非晶体材料;从无机材料到有机材料;从对称材料到非对称材料(手性材料);从单一材料到复合材料;从高维材料到低维材料,如从三维的体块材料到二维的表面、薄膜材料;从宏观材料到纳米材料,如半导体量子线和量子点、光子晶体,以及纳米管、纳米球和团簇材料等。

1.3 非线性光学的应用

1.3.1 非线性光学是光子学与纳米光子学的基础

图 1.3.1 给出了光子学与电子学发展过程的对比,发现二者有惊人的相似性。物理学的两个孪生的分支学科——电学和光学几乎都是在 18 世纪诞生的。电学的应用,产生了电工学;光学的应用,产生了工程光学。“现代光学”是因 19 世纪 60 年代激光器的发明而从“传统光学”脱胎而出的。气体、固体、染料激光器的广泛应用形成了“激光技术”,就像电学因为电子管的发明而发展为电子学一样。事实上是 1908 年先发明真空电子管,形成了“真空管电子学”,然后 1948 年发明了半导体电子管,而产生了“固体电子学”。1960 年微米尺寸的半导体集成电路的发明,导致“微电子学”和“微电子技术”的产生。10 年以后,微米尺寸的室温运转异质结半导体激光器、低损耗光纤和集成光学技术的诞生,使现代光学发展进入“光子学”阶段。光子学是微米尺度的现代光学,它是研究光子的产生、传播、控制和探测的科学。光子学的地位与微电子学相当。而光子学技术就是微米尺度的激光技术。

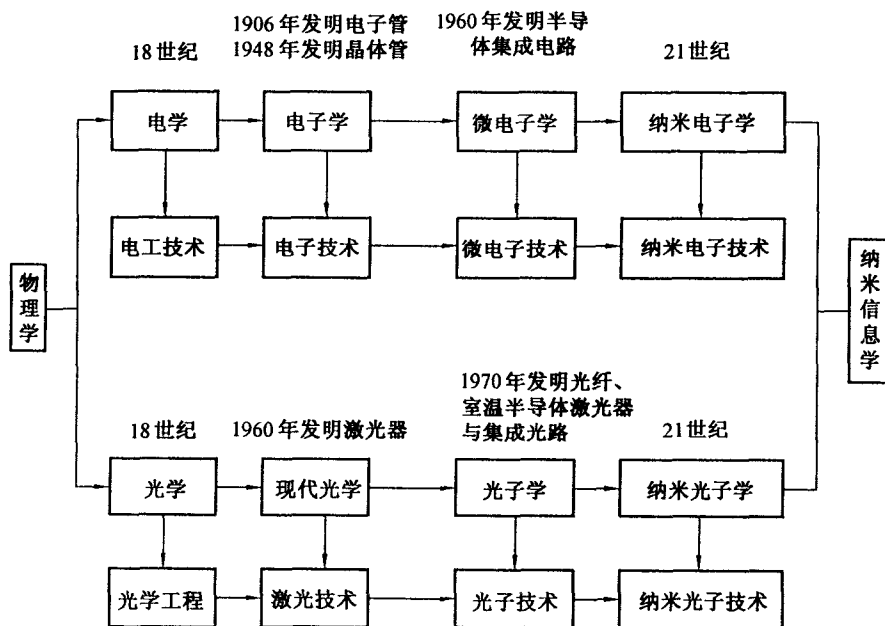


图 1.3.1 光子学的发展过程与电子学的发展过程的比较

人们不禁要问,电子学和光子学下一步的发展趋势将是什么?可以认为微电子学将发展为纳米电子学,而光子学将发展为纳米光子学。两者在 21 世纪将并驾齐驱地发展,而且有可能在纳米尺度下,微电子器件与纳米光子器件实现共集成。据报道,纳米硅能够实现电致发光和光致发光,还能实现纳米异质结构的 PN 结,甚至构成激光器。这就是说,在纳米条件下,采用硅材料集成技术,有希望实现电子技术和光子技术的统一,从而高度发展纳米信息技术。纳米信息技术将带动其他的纳米技术,如纳米材料、纳米加工、纳米机械、纳米能源、纳米生物医学等,将使人类进入一个纳米技术的新时代。

纳米光子学是研究纳米尺度的物质与光场相互作用的科学。在纳米物质周围存在着的纳米尺度的光场称之为“近场”。近场光学的测量对研究纳米光子学非常重要。在纳米条件下如何实现以光控光也是十分重要的问题,这也是纳米光子学中的非线性光学问题。

大家知道,微观粒子有波粒二重性。但光子与电子不同:电子是以粒子性为主,波动性不太明显,呈负电,相互间有强电磁作用,因此易于实现以电控制电(如三极管);但传输信号时有相互干扰(串音),不易实现并行传输;光子在传播时表现为波动性,与物质相互作用时才表现粒子性,呈中性,传输信号时几乎无相互间的干扰,故易于并行传输,但必须通过光与非线性介质的作用来实现以光控制光(如光双稳器件)。所以在光子技术以及未来的纳米光子技术中,必须通过非线性光学的方法实现对光的控制。因此我们说,研究光与物质相互作用的非线性光学也是光子学与光子技术,以及纳米光子学与纳米光子技术的基础。

1.3.2 非线性光学的应用

非线性光学有哪些具体的应用?表 1.3.1 简略地描述了非线性光学的主要应用。

这些应用包括用非线性光学方法实现对激光的振幅、相位、强度、波形、方向、偏振等参量进行控制,用非线性光学方法获得物质成分、结构、特性等信息;并在各种空间尺度和时间范围内研究光与物质之间相互作用的规律。

表 1.3.1 非线性光学的主要应用

光信息技术	光计算	光逻辑器件, 光调制器, 光存储器, 光振荡器
	光通信	光纤放大器, 光纤激光器, 光开关, 波长转换器, 光交换, 光孤子通信, 光纤中的非线性抑制
	量子信息	量子信息传输与处理, 量子保密通信, 压缩态抑制噪声
激光技术	激光器	激光脉冲压缩, 激光选模, 防止工作物质发生自聚焦等
	激光变频	用倍频、混频、拉曼散射技术产生新的激光频率与实现可调谐激光器
	激光传输	用相位共轭技术避免大气传输与激光核聚变中的光束畸变
	脉冲压缩	研究用调 Q、锁模等方法产生皮秒、飞秒、阿秒激光脉冲, 以及研究脉冲激光在物质中的传输特性
	激光防护	用非线性光限制器防止脉冲激光对人眼和探测器的破坏
纳米光子技术	纳米材料	非线性光子晶体, 量子限制效应(量子点、量子线等)材料研究
	纳米器件	纳米光开关, 纳米激光器, 纳米传感器等纳米器件研究
	纳米测量	研究纳米物质与近场光相互作用, 近场光特性测量技术

第2章 介质的非线性极化

本章将从麦克斯韦方程出发导出光在不同非线性介质中传播时的不同形式的波动方程,讨论描述介质极化的物理量——极化率的定义、性质和物理意义,并讨论极化率实部和虚部之间的关系,以及与极化率实部和虚部相对应的折射率和吸收系数之间的关系。

2.1 非线性介质的波方程

2.1.1 非线性介质的麦克斯韦方程

在激光作用下能够呈现非线性效应的介质称之为非线性介质。作为电磁波的光波在非线性介质中传播时服从麦克斯韦方程所决定的规律。介质中的麦克斯韦方程组一般可写为

$$\nabla \times \mathbf{E} = - \frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} \quad (2.1.1)$$

$$\nabla \times \mathbf{H} = \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t} + \mathbf{J} \quad (2.1.2)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{D} = \rho \quad (2.1.3)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{B} = 0 \quad (2.1.4)$$

物质方程为

$$\mathbf{D} = \epsilon_0 \mathbf{E} + \mathbf{P} \quad (2.1.5)$$

$$\mathbf{B} = \mu_0 (\mathbf{H} + \mathbf{M}) \quad (2.1.6)$$

$$\mathbf{J} = \sigma \mathbf{E} \quad (2.1.7)$$

式中 E 、 D 分别为电场强度和电感应强度； H 、 B 分别为磁场强度和磁感应强度； P 、 M 分别为介质的电极化强度和磁极化强度。对于非铁磁性材料，磁化现象通常很弱，设 $M = 0$ ； ϵ_0 和 μ_0 分别为介质的真空介电系数和真空磁导率； σ 为电导率。严格地讲，它在各向异性介质中是二阶张量，这里近似为标量。 J 为传导电流密度； ρ 为介质中的自由电荷密度。二者可以通过电荷守恒定律联系起来

$$\nabla \cdot J + \frac{\partial \rho}{\partial t} = 0 \quad (2.1.8)$$

对于金属和半导体， J 和 ρ 是有意义的，但对于我们要讨论的绝缘体介质，可假设其中不存在自由电荷，则 $\rho = 0$ 。因为物理量 σ 与光的吸收有关，故保留关系式(2.1.7)。

在激光与非线性介质作用中， P 和 E 的关系是非线性的，介质感应的 P 可以展开为 E 的幂级数

$$P = \epsilon_0 \chi^{(1)} \cdot E + \epsilon_0 \chi^{(2)} : EE + \epsilon_0 \chi^{(3)} : EEE + \cdots \quad (2.1.9)$$

式中 $\chi^{(n)}$ 是 n 阶电极化率，它为 $n+1$ 阶张量。

以 P_{NL} 表示极化强度的高次项，则极化强度 P 可分成线性和非线性两部分

$$P = \epsilon_0 \chi^{(1)} \cdot E + P_{NL} \quad (2.1.10)$$

将式(2.1.10)代入式(2.1.5)可得

$$D = \epsilon_0 E + \epsilon_0 \chi^{(1)} \cdot E + P_{NL} = \epsilon \cdot E + P_{NL} \quad (2.1.11)$$

式中

$$\epsilon = \epsilon_0 (1 + \chi^{(1)}) \quad (2.1.12)$$

是介质的线性介电常数；其中 $\chi^{(1)}$ 是线性极化率，在各向异性介质中 $\chi^{(1)}$ 和 ϵ 二者都是二阶张量。这里我们只考虑电偶极矩近似，不计电四极矩和磁偶极矩的影响。