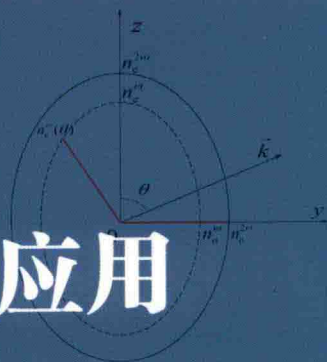


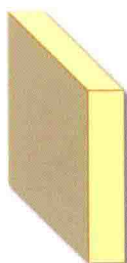
Nonlinear Optics Fundamentals and Applications

非线性光学 基础和应用



沈京玲◎编著

fs laser pulse



THz pulse



Optical Rectification



首都师范大学出版社
CAPITAL NORMAL UNIVERSITY PRESS

非线性光学基础和应用

沈京玲 编著



首都师范大学出版社
CAPITAL NORMAL UNIVERSITY PRESS

图书在版编目(CIP)数据

非线性光学基础和应用 / 沈京玲编著. —北京:首都师范大学出版社,
2019. 4
ISBN 978-7-5656-4950-9

I. ①非… II. ①沈… III. ①非线性光学—基本知识 IV. ①O437

中国版本图书馆 CIP 数据核字(2019)第 022709 号

FEIXIANXING GUANGXUE JICHU HE YINGYONG

非线性光学基础和应用

沈京玲 编著

责任编辑 禹冰
首都师范大学出版社出版发行
地 址 北京西三环北路 105 号
邮 编 100048
电 话 68418523(总编室) 68982468(发行部)
网 址 <http://cnpn.cnu.edu.cn>
印 刷 北京虎彩文化传播有限公司
经 销 全国新华书店
版 次 2019 年 4 月第 1 版
印 次 2019 年 4 月第 1 次印刷
开 本 710mm×1000mm 1/16
印 张 11.75
字 数 206 千
定 价 34.00 元

版权所有 违者必究
如有质量问题 请与出版社联系退换

内容提要

激光器在 20 世纪 60 年代的出现带来了很多研究领域的诞生，非线性光学就是其中最为重要、影响最为广泛和深远的一个。本教材以介绍基本的非线性光学理论、效应和应用为主，并增加了一些最新研究成果的简介和引文，特别是加入了一些非线性光学在太赫兹研究领域的应用，这些内容在本教材的第 4、5、7、9 章等有所体现。本教材共分 12 章。前 3 章是基本理论部分，分别解决光的传播问题和光与物质相互作用问题，并讨论晶体各向异性的光学性质。第 4 章、第 5 章和第 6 章介绍二阶非线性光学效应，其中第 6 章包括了倍频、和频、差频等重要的二阶非线性光学效应，也包括了位相匹配技术。第 8 章和第 9 章介绍三阶非线性光学效应。第 7 章、第 10 章、第 11 章和第 12 章是一些特殊的非线性光学效应和应用。本教材可以作为光学及相关专业研究生非线性光学课程的教材，也可以作为高年级本科生专业选修课的教材，还可供相关研究人员查阅和自修感兴趣的内容。

序

非线性光学是 20 世纪 60 年代伴随激光器的发明而诞生和发展起来的。它既是一门新兴的学科，又是传统光学的延伸。随着激光器特别是高功率激光器的发展和向各领域的应用扩展，非线性光学越来越成为不可缺少的基础知识和应用工具。

沈京玲教授的《非线性光学基础和应用》，在强调电磁波基础理论的基础上，与材料和电磁波谱学科交叉，偏重于太赫兹波产生、检测和应用中的非线性光学现象，有非常鲜明的特色。

在本书的前三章，从麦克斯韦方程组出发，经过缓变包络近似，推导出经典理论的非线性光学方程，包括三波和四波耦合波方程，这些方程构成了非线性光学的基础。第 4 章至第 6 章介绍了典型的二阶非线性光学效应，其中包括线性电光效应、普克尔斯效应、光整流、倍频、和频、差频等重要的二阶非线性光学效应。讲解了倍频、和频、差频等效应强烈依赖的位相匹配和准位相匹配概念、技术。特别是高斯光束的位相匹配、宽光谱的位相匹配等一般书籍关注较少的内容。第 8 章至第 10 章介绍三阶非线性光学效应，包括光学克尔效应和受激光散射效应。第 11 章是位相共轭光学。根据作者的研究经验，第 12 章还讲解了光折变效应的基础知识。这也是在一般的非线性光学书中很少见到的。

沈京玲教授最近十几年专注太赫兹波时域光谱和成像技术研究，在有机物特别是毒品检测技术上取得了卓越的成绩。书中的光整流和空气中的非线性电离效应等内容，都和太赫兹波产生有关。基于她长期知识积累、授课经验和技术创新写成的这本书，必将受到研究生读者们的欢迎。

因此，我郑重推荐沈京玲教授的这本书。

张志刚

2018 年 11 月

前 言

激光器无疑是科学史上最伟大的发明之一。激光器的出现带来了很多新研究领域的诞生,非线性光学就是其中最为重要、影响最为广泛和深远的一个。非线性光学以1961年P. A. Franken和他的同事们的倍频实验(二次谐波产生)作为学科的开端,红宝石激光器发出的694.3nm的红色激光经过石英晶体后,发出微弱的倍频信号;1962年N. Bloembergen和他的同事们建立了光学混频的理论,标志着非线性光学这门学科的诞生。之后,非线性光学以惊人的速度发展,经历了基础理论的建立、各种非线性光学基本效应的发现、非线性材料和器件的探索、向各个相关学科的交叉和渗透、在各技术领域的广泛应用等不同阶段。经过近六十年的发展,非线性光学已经渗透到几乎所有科学领域,包括光学、原子分子物理、凝聚态物理、等离子体物理、表面科学、化学、生物学、材料学等,并在这些领域获得应用。

我认为,作为物理系特别是光学专业的学生,不论是本科生还是研究生,都应该具有一定非线性光学的基础知识,为今后的教学、科研、生产实践打下必要的基础。非线性光学作为一门基础理论课,一直是首都师范大学物理系光学专业研究生的必修课和其他专业研究生的选修课,也是光电信息科学与工程和物理师范本科生的专业方向选修课。

我从1998年开始主讲非线性光学课程,至今整整20年了。20年来,在基本内容基础上,一直跟踪学科发展,补充和更新授课内容。在研究生的课上,每年都会安排学生查找最新的相关文献在课上进行交流。然而,非线性光学已经发展成包罗万象、渗透各个科学领域的活跃光学分支,不可能通过一门课和一本教材就能涵盖全部。基础是最重要的,有了基础就能根据研究兴趣和研究方向了解和解决相关问题。因此,本教材以“非线性光学基础和应用”为题。在内容上以介绍最为基本的非线性光学理论、效应和应用为主,并增加了一些最新研究成果的简介和引文。

本人在博士研究生期间曾从事光学混沌、光折变的研究,近年进入太赫兹波科学技术领域。我的学生也多为太赫兹光电子学专业方向。因此在本教材中,我加入了一些非线性光学在太赫兹研究领域的应用,包括:太赫兹时域光谱技术的电光取样方法,用光整流效应解释了飞秒激光通过晶体产生脉冲太赫兹波的原理,太赫兹参量振荡器的原理和位相匹配方法,空气产生和

探测太赫兹波的最新研究成果等。这些内容在本书的不少章节都有所体现，例如第4、5、7、9章等。可以说，非线性光学基本原理在太赫兹研究领域的应用是本教材的特色。本教材可以作为光学及相关专业研究生非线性光学课的教材，也可以作为高年级本科生专业选修课的教材，作为本科教材时可能需要略去部分内容。

我的非线性光学知识最初来自于北京大学，我在中国科学院物理研究所攻读博士学位期间，曾到北京大学物理系旁听过龚旗煌院士的《非线性光学》课。在我早期的学习过程中，还参考了北京邮电大学杨桂臣教授的《非线性光学》油印讲义，里面的很多理论推导对我帮助很大。北京大学长江学者张志刚教授在百忙之中审阅了书稿，并当面和我讨论了部分内容。凭借丰富的专业知识和科研经验，他对本书提出了一些非常好的修改意见，使我受益匪浅。在此，对以上教授表示衷心感谢！我还要感谢我的所有研究生和修过我课的学生，他们不但帮我把最初的手写教案变为电子版讲义，还不断追踪学科的进展，用他们创造的知识为我补充和更新教材内容提供素材。在整理书稿过程中，汪国崔同学帮助查找核实了很多参考文献。

感谢首都师范大学出版基金的支持，使我在退休之前完成了非线性光学讲义的正式出版。这对我来说也是一件标志性的大事。

首都师范大学是培养人才的沃土，我漫长的职业生涯中的大部分时间都在这里度过。美丽的校园里留下了我深深的足迹。我对首都师范大学有着深深的热爱和留恋。

最后，感谢我所有的同事、同行、朋友和我的家人，感谢你们所有的爱和付出！

沈京玲

2018年10月

目 录

引 言	(1)
1 波动光学的普遍方程(General Equations for Optical Waves)	(4)
1.1 非磁性介质中电磁场的矢量波动方程及能量方程	(4)
1.2 非线性极化强度复振幅的计算	(6)
1.3 缓变(慢变)振幅近似	(8)
2 光与微观粒子系统的相互作用(Interaction Between Light and Micro-system)	(10)
2.1 非简谐振子模型	(10)
2.2 量子力学描述	(13)
2.3 非线性极化率的性质	(19)
3 光在晶体中的传播(Light Propagation in Crystal)	(25)
3.1 各向异性介质的介电张量	(25)
3.2 菲涅耳方程	(27)
3.3 折射率椭球、菲涅耳方程的图解	(30)
3.4 光在不同晶体中传播的双折射现象	(32)
4 线性电光效应和电光调制(Linear Electro-optical Effect and Electro-optical Modulation)	(35)
4.1 普克尔斯效应、电光张量	(35)
4.2 普克尔斯效应的应用、电光调制原理	(42)
5 光学整流效应(Optical Rectification)	(50)
5.1 光学整流	(50)
5.2 亚皮秒光整流	(52)
6 三波混频(Three-wave Frequency Mixing)	(55)
6.1 二次谐波(倍频)效应(SHG)	(55)
6.2 三波耦合的位相匹配技术和晶体的有效非线性极化系数	(63)
6.3 非线性界面上的反射和折射	(76)
6.4 三波耦合的普遍方程	(78)

6.5	和频与频率上转换 差频与频率下转换	(81)
6.6	小结	(85)
7	光学参量振荡器(Optical Parametric Oscillator, OPO)	(87)
7.1	参量放大和参量荧光	(87)
7.2	光学参量振荡器(OPO)	(93)
7.3	OPO 的输出功率与转换效率	(96)
7.4	OPO 的调谐特性和增益带宽	(101)
7.5	太赫兹参量振荡器(THz-wave Parametric Oscillator, TPO)	(108)
8	克尔效应(Kerr Effect)	(112)
8.1	克尔效应	(112)
8.2	光克尔效应	(116)
8.3	自作用效应(Self-action Effects)	(119)
9	气态介质中的非线性参量过程(Nonlinear Parametric Process in Gaseous Media)	(124)
9.1	气体中参量方程的解	(124)
9.2	气态介质中的三次谐波	(127)
9.3	气态介质中的和频和差频	(130)
9.4	空气产生 THz 波以及在空气中探测 THz 波	(132)
10	受激光散射(Stimulated Light Scattering, SLS)	(136)
10.1	引言	(136)
10.2	受激拉曼散射(SRS)	(137)
10.3	受激布里渊散射(SBS)	(141)
11	位相共轭光学(Optical Phase Conjugation)	(148)
11.1	位相共轭波的概念	(148)
11.2	三波差频实现位相共轭波	(151)
11.3	简并四波混频产生位相共轭波	(152)
11.4	光学位相共轭的应用	(154)
12	光折变效应(Photorefractive Effect)	(156)
12.1	光折变现象及其特点	(156)
12.2	Kukhtarev 方程和光场感生电场 E_{sc} 的计算	(158)
12.3	双光束耦合(两波耦合、位相光栅自衍射)	(163)
12.4	光折变简并四波混频	(168)
12.5	自泵浦位相共轭和互泵浦位相共轭	(172)

引 言

光是电磁波，经典物理用麦克斯韦(Maxwell)方程组解决光及其相关问题。物质方程则体现了光和物质相互作用的关系。例如物质方程之一 $\vec{D} = \epsilon_0 \vec{E} + \vec{P}$ ，表示光引起介质极化，用极化强度 $\vec{P}$ 表示。极化后的介质反过来改变电磁场在介质中的分布，这种相互作用最终可达到动态平衡状态。在过去学习过的电磁学和电动力学中，我们所考虑的电极化强度 $\vec{P}$ 与电场强度 $\vec{E}$ 是线性关系：

各向同性介质： $\vec{P} = \epsilon_0 \chi \vec{E}$ ， $\vec{D} = \epsilon_0 \vec{E} + \epsilon_0 \chi \vec{E} = \epsilon_0 (1 + \chi) \vec{E}$ (χ ：线性极化率)

各向异性介质： $\vec{P} = \epsilon_0 \vec{\chi} \cdot \vec{E}$ ， $\vec{D} = \epsilon_0 \vec{E} + \epsilon_0 \vec{\chi} \cdot \vec{E} = \epsilon_0 (\vec{I} + \vec{\chi}) \cdot \vec{E}$ ($\vec{\chi}$ ：线性极化率张量)

上述关系中，不论是各向同性还是各向异性介质，极化强度与电场强度都是成线性关系，即： $P \propto E$ 。上面提到的各向异性介质，可能有些读者不是很熟悉。简单地说，各向异性就是介质沿不同方向的物理性质不同，比如光学中常用的晶体，多数都是各向异性的。

对单色光而言， $E \propto e^{-j\omega t}$ ，其中的 ω 是该单色波的圆频率。如果是线性极化， $P \propto E$ ，则极化强度也是相同频率，因此，线性关系不会引起频率 ω 的变化。

如果是非线性极化，即： P 与 E 的二次方及二次方以上成正比，那么，极化强度的频率会发生变化，这意味着由此激发的电场的频率也会发生变化。例如，若 $P \propto E^2$ ，则 $P \propto (e^{-j\omega t})^2 = e^{-j2\omega t}$ ，极化强度的频率就是 2ω ，会导致倍频光输出，这就是非线性的频率转换效应。

普遍地，可以把电极化强度 $\vec{P}$ 与电场强度 $\vec{E}$ 的关系表示为如下非线性关系：

$$\begin{aligned} \vec{P}/\epsilon_0 &= \vec{\chi}^{(1)} \cdot \vec{E} + \vec{\chi}^{(2)} : \vec{E}\vec{E} + \vec{\chi}^{(3)} :: \vec{E}\vec{E}\vec{E} + \dots \\ &= \vec{P}^{(1)} + \vec{P}^{(2)} + \vec{P}^{(3)} + \dots = \vec{P}^L + \vec{P}^{NL} \end{aligned} \quad (0-1)$$

式中： $\vec{P}^L$ ——线性极化强度；

$\vec{P}^{NL}$ ——非线性极化强度；

$\vec{\chi}^{(n)}$ ($n=1, 2, 3, \dots$)—— n 阶非线性极化率，是 $n+1$ 阶张量；

$\vec{E}\vec{E}$ ， $\vec{E}\vec{E}\vec{E}$ ——并矢量，也是张量，分别是二阶或者三阶张量。

关于张量的性质和运算方法，将在后续内容中做适当介绍。

式(0-1)所表示的关系是普遍的各向异性非线性极化规律表达式。显然，单色光与物质相互作用后，光频率会发生变化。因此，光的频率发生变化是光与介质非线性相互作用的重要表现。但是非线性光学效应不仅仅表现为频率的变化，还有很多其他效应，将在本书相关章节做介绍。

线性和非线性电极化强度 $\vec{P}$ 从量级上看，一般来说有 3 个数量级的差别，即：

$$\left| \frac{P^{NL}}{P^L} \right| \approx \left| \frac{P_{n+1}^{NL}}{P_n^{NL}} \right| \approx 10^{-3}$$

式中： P_n —— n 阶非线性极化强度；

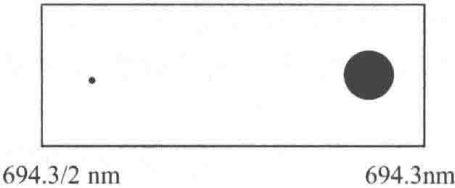
P_{n+1} —— $n+1$ 阶非线性极化强度。

因此，非线性效应比线性效应更难于观察到。

非线性光学作为一门学科，是从 1960 年人类发明激光器以后才建立的。

激光的主要特点是光强强，相干性好，方向性好。从世界上第一台红宝石激光器到如今的脉冲激光器，激光脉宽已做到阿秒量级($1\text{as}=10^{-18}\text{s}$)，强度可达几百太瓦($10^{12}\text{W}/\text{cm}^2$)量级。有了强光源，才有可能发现和研究非线性光学效应和规律。

1961 年，P. A. Franken 等人首次观察到非线性光学现象，这是二次谐波效应(SHG)，即倍频效应，相关论文发表在 Phys. Rev. Lett. 7, 118 (1961)^[1]。具体实验结果是，用波长 694.3 nm 的红宝石激光聚焦到石英晶体，观察到了波长 694.3/2 nm 的激光输出。接收到的输出如下图所示，其中较弱的感光点就是倍频光。由于当时的实验并没有实现位相匹配，所以倍频转换效率很低，大约是 10^{-6} 。有趣的是，当时杂志编排工作人员修版时差点把那个图中的小黑点修掉，他怎明白，一个小小的黑点标志着一个学科——非线性光学的诞生！



人类首次观察到的二次谐波效应示意图

有关非线性光学最早的理论 1962 年由 N. Bloembergen (1981 年诺贝尔物理学奖得主) 等人完成，该工作的相关文章发表于 Phys. Rev. 127, 1918 (1962)^[2]。非线性光学研究本质上就是研究光与物质相互作用出现的光学效

应。对光场的描述是从麦克斯韦方程组出发,引入非线性极化强度 $\vec{P}^{NL}$,在慢变化振幅近似下得出耦合波方程并进行求解。研究光与物质相互作用的目的是求出介质各阶非线性极化率系数,方法是采用量子理论,引入密度矩阵。

本书共分 12 章。第 1 章(波动光学的普遍方程)和第 2 章(光与微观粒子系统的相互作用)是基本理论部分,分别解决光的传播问题和光与物质相互作用问题。第 3 章(光在晶体中的传播)讨论晶体的光学性质,属于线性问题。但非线性光学中遇到的很多介质是各向异性介质,因此本章也是很重要的基础。第 4 章(线性电光效应和电光调制)、第 5 章(光学整流效应)和第 6 章(三波混频)介绍二阶非线性光学效应,其中第 6 章包括了倍频、和频、差频等重要的二阶非线性光学效应,也包括了位相匹配技术。第 8 章(克尔效应及三倍频效应)和第 9 章(气体介质中的非线性参量过程)介绍三阶非线性光学效应。第 7 章(光学参量振荡器)、第 10 章(受激光散射)、第 11 章(位相共轭光学)和第 12 章(光折变效应)是一些特殊的非线性光学效应和应用。特别是在第 4、5、7、9 等章中,涉及在近二十年中发展起来的与太赫兹科学技术相关的一些非线性光学问题,包括电光取样、光整流、太赫兹参量振荡和放大器、空气产生和探测太赫兹波等问题。此外,有机材料和聚合物的非线性光学、半导体多量子阱的非线性光学、介电体超晶格的非线性光学、光纤与光波导中的非线性光学、产生超短光脉冲的非线性光学方法等,都是 20 世纪 80 年代以后的研究成果。

参考文献

- [1] P A FRANKEN, A E HILL, C W PETERS, et al. Generation of Optical Harmonics[J]. Phys. Rev. Lett., 1961(7): 118—119.
- [2] J A ARMSTRONG, N BLOEMBERGEN, J DUCUING, et al. Interactions between Light Waves in a Nonlinear Dielectric[J]. Phys. Rev., 1962(127): 1918—1939.

1 波动光学的普遍方程

(General Equations for Optical Waves)

1.1 非磁性介质中电磁场的矢量波动方程及能量方程

光学介质一般为绝缘、非磁性，因此取 $\rho=0$ ， $\mu=\mu_0$ ， $\vec{M}=0$ ；为了表示介质的损耗，保留电流密度 $\vec{j}$ ，用电导率张量 $\vec{\sigma}$ 反映损耗大小。因此，麦克斯韦方程组的微分形式及物质方程为：

$$\begin{cases} \nabla \times \vec{E} = -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t} \\ \nabla \times \vec{H} = \frac{\partial \vec{D}}{\partial t} + \vec{j} \\ \nabla \cdot \vec{D} = 0 \\ \nabla \cdot \vec{B} = 0 \end{cases} \quad \begin{cases} \vec{D} = \epsilon_0 \vec{E} + \vec{P} \\ \vec{B} = \mu_0 \vec{H} \\ \vec{j} = \vec{\sigma} \cdot \vec{E} \end{cases}$$

一、波动方程

由上述麦克斯韦方程组的微分形式并考虑右边的物质方程，有：

$$\begin{aligned} \nabla \times (\nabla \times \vec{E}) &= -\frac{\partial}{\partial t} (\nabla \times \vec{B}) = -\frac{\partial}{\partial t} \mu_0 \nabla \times \vec{H} = -\frac{\partial}{\partial t} \mu_0 \left(\frac{\partial \vec{D}}{\partial t} + \vec{j} \right) \\ &= -\mu_0 \frac{\partial^2}{\partial t^2} (\epsilon_0 \vec{E} + \vec{P}) - \mu_0 \frac{\partial}{\partial t} (\vec{\sigma} \cdot \vec{E}) \end{aligned}$$

$$\text{因此有：} \nabla \times (\nabla \times \vec{E}) + \mu_0 \vec{\sigma} \cdot \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} + \epsilon_0 \mu_0 \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} = -\mu_0 \frac{\partial^2 \vec{P}}{\partial t^2} \quad (1-1)$$

此为非磁性介质中电磁场的矢量波动方程。

若将极化强度 $\vec{P}$ 分为线性 (linear, L) 和非线性 (nonlinear, NL) 两部分：
 $\vec{P}(\vec{r}, t) = \vec{P}^L(\vec{r}, t) + \vec{P}^{NL}(\vec{r}, t)$ ，其中非线性极化强度包括二阶、三阶等；
 $\vec{P}^{NL}(\vec{r}, t) = \vec{P}^{(2)}(\vec{r}, t) + \vec{P}^{(3)}(\vec{r}, t) + \dots$ ，因此式(1-1)可写成：

$$\nabla \times (\nabla \times \vec{E}) + \mu_0 \vec{\sigma} \cdot \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} + \epsilon_0 \mu_0 \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} + \mu_0 \frac{\partial^2 \vec{P}^L}{\partial t^2} = -\mu_0 \frac{\partial^2 \vec{P}^{NL}}{\partial t^2} \quad (1-2)$$

当 $\vec{P}^{NL}=0$ ，式(1-2)为线性波动方程。

$\vec{P}^{NL} \neq 0$ 的介质为非线性介质，它作为激励源，可产生各种频率的场，即使原来是单色场。

因为任意复色场由单色场迭加而成，即：

$$\vec{E}(\vec{r}, t) = \sum_{\omega} \vec{E}(\omega, \vec{r}) e^{-j\omega t} \quad (1-3)$$

极化波也可写为：

$$\vec{P}(\vec{r}, t) = \sum_{\omega} \vec{P}(\omega, \vec{r}) e^{-j\omega t} \quad (1-4)$$

因为极化波与电磁场互相激发， $\vec{P}$ 与 $\vec{E}$ 的频率成份相同，又因为 $\vec{E}(\vec{r}, t)$ ， $\vec{P}(\vec{r}, t)$ 都是实函数， $e^{-j\omega t}$ 与 $e^{j\omega t}$ 成对出现，即 $\pm\omega$ 同时出现，将式(1-3)、式(1-4)代入式(1-2)，并使 $e^{-j\omega t}$ 的系数相等，得复振幅 $\vec{E}(\omega, \vec{r})$ ， $\vec{P}(\omega, \vec{r})$ 满足的方程：

$$\nabla \times [\nabla \times \vec{E}(\vec{r})] - j\mu_0 \omega \vec{\sigma} \cdot \vec{E}(\vec{r}) - \frac{\omega^2}{c^2} \vec{E}(\vec{r}) - \mu_0 \omega^2 \vec{P}^L(\vec{r}) = \mu_0 \omega^2 \vec{P}^{NL}(\vec{r}) \quad (1-5)$$

式中： $\vec{E}(\vec{r}) = \vec{E}(\omega, \vec{r})$ ， $\vec{P}(\vec{r}) = \vec{P}(\omega, \vec{r})$ ——单色光的电场强度和极化强度复振幅。

将线性极化强度与电场强度的关系 $\vec{P}^L(\vec{r}) = \epsilon_0 \vec{\chi}^{(1)} \cdot \vec{E}(\vec{r})$ 代入式(1-5)，其中左边第三、四项为：

$$\frac{\omega^2}{c^2} \vec{E}(\vec{r}) + \mu_0 \omega^2 \epsilon_0 \vec{\chi}^{(1)} \cdot \vec{E}(\vec{r}) = \omega^2 \mu_0 \epsilon_0 [\vec{E}(\vec{r}) + \vec{\chi}^{(1)} \cdot \vec{E}(\vec{r})] = \frac{\omega^2}{c^2} \vec{\epsilon} \cdot \vec{E}(\vec{r})$$

式中： $\vec{\epsilon} = \vec{I} + \vec{\chi}^{(1)}$ ，称为介电张量。（注意： $\vec{\chi}$ 和 $\vec{\epsilon}$ 都是与频率有关的函数。）

将上述结果代入式(1-5)，有：

$$\nabla \times [\nabla \times \vec{E}(\vec{r})] - j\mu_0 \omega \vec{\sigma} \cdot \vec{E}(\vec{r}) - \frac{\omega^2}{c^2} \vec{\epsilon} \cdot \vec{E}(\vec{r}) = \mu_0 \omega^2 \vec{P}^{NL}(\vec{r}) \quad (1-6)$$

式(1-6)是描写非线性光学现象的普遍波动方程。

二、能量关系

从 Maxwell 方程组及其物质方程出发，并利用矢量运算关系 $\nabla \cdot (\vec{E} \times \vec{H}) = (\nabla \times \vec{E}) \cdot \vec{H} - \vec{E} \cdot (\nabla \times \vec{H})$ ，可得：

$$\begin{aligned} -\nabla \cdot (\vec{E} \times \vec{H}) &= \vec{E} \cdot \vec{j} + \frac{\partial}{\partial t} \left(\frac{1}{2} \epsilon_0 \vec{E} \cdot \vec{E} + \frac{1}{2} \mu_0 \vec{H} \cdot \vec{H} \right) \\ &\quad + \vec{E} \cdot \frac{\partial \vec{P}}{\partial t} + \mu_0 \vec{H} \cdot \frac{\partial \vec{M}}{\partial t} \end{aligned} \quad (1-7)$$

式(1-7)第一项是玻印廷矢量，负号表示流入的单位体积的电磁功率；第二项表示场对运动电荷做功的功率；第三项表示真空电磁场贮存能量的增加；第

四项表示场增加时电极化做的功率(使介质极化时,场做功的功率密度);第五项表示磁化所做的功率。

由右边第三项,非线性极化强度 $\vec{P}^{NL}(\vec{r}, t) = \vec{P}^{NL}(\vec{r})e^{-j\omega t} + c.c.$ (c.c.表示复数共轭)向光波场 $\vec{E}(\vec{r}, t) = \vec{E}(\vec{r})e^{-j\omega t} + c.c.$ 输送的平均功率密度 $W(\vec{r})$ 为:

$$W(\vec{r}) = -\langle \vec{E}(\vec{r}, t) \cdot \frac{\partial}{\partial t} \vec{P}^{NL}(\vec{r}, t) \rangle \quad (1-8)$$

式(1-8)中负号表示能量方向是 $\vec{P} \rightarrow \vec{E}$, 即从极化到场。

$$\text{具体运算后得: } W(\vec{r}) = -2\omega \text{Im}[\vec{E}^*(\vec{r}) \cdot \vec{P}^{NL}(\vec{r})] \quad (1-9)$$

式(1-9)推导过程:

$$\begin{aligned} W(\vec{r}) &= -\langle [\vec{E}(\vec{r})e^{-j\omega t} + \vec{E}^*(\vec{r})e^{j\omega t}] \cdot (-j\omega \vec{P}^{NL}e^{-j\omega t} + j\omega \vec{P}^{*NL}e^{j\omega t}) \rangle \\ &= -j\omega [\vec{E}(\vec{r}) \cdot \vec{P}^{*NL}(\vec{r}) - \vec{E}^*(\vec{r}) \cdot \vec{P}^{NL}(\vec{r})] \\ &= -j\omega \{ [\vec{E}^*(\vec{r}) \cdot \vec{P}^{NL}(\vec{r})]^* - \vec{E}^*(\vec{r}) \cdot \vec{P}^{NL}(\vec{r}) \} \\ &= -j\omega \{ -2j \text{Im}[\vec{E}^*(\vec{r}) \cdot \vec{P}^{NL}(\vec{r})] \} \\ &= -2\omega \text{Im}[\vec{E}^*(\vec{r}) \cdot \vec{P}^{NL}(\vec{r})] \end{aligned}$$

通过分析式(1-9)的符号及大小,可得能量交换的进行方向:

$$\because \vec{E}(\vec{r}) = \frac{1}{2} \vec{\epsilon} e^{j(\vec{k} \cdot \vec{r} + \phi)}, \quad \vec{P}^{NL}(\vec{r}) = \frac{1}{2} \vec{P}^{NL} e^{j(\vec{\kappa}^N \cdot \vec{r} + \phi^N)}$$

$$\therefore W(\vec{r}) = \frac{1}{2} \omega (\vec{\epsilon} \cdot \vec{P}^{NL}) \sin[(\vec{k} - \vec{\kappa}^N) \cdot \vec{r} + (\phi - \phi^N)]$$

由上式看出:(1) $\vec{P}^{NL}$ 在 $\vec{E}$ 方向的分量对 $W(\vec{r})$ 有贡献;

(2) 当 $\vec{k} - \vec{\kappa}^N \neq 0$, $W(\vec{r})$ 将随 $\vec{r}$ 振荡, 所以只有 $\vec{k} - \vec{\kappa}^N = 0$, 才能保证能量的单向转换。 $\vec{k} - \vec{\kappa}^N = 0$ 为位相匹配条件, 这是今后经常讨论的话题。

1.2 非线性极化强度复振幅的计算

设电磁场由单色分量迭加而成: $\vec{E}(\vec{r}, t) = \sum_{\omega} \vec{E}(\omega, \vec{r}) e^{-j\omega t}$, 则各阶极化强度可表示为:

$$\vec{P}^{(1)}(\vec{r}, t) = \sum_{\omega} \epsilon_0 \vec{\chi}^{(1)}(\omega) \cdot \vec{E}(\omega, \vec{r}) e^{-j\omega t}$$

$$\vec{P}^{(2)}(\vec{r}, t) = \sum_{\omega', \omega''} \epsilon_0 \vec{\chi}^{(2)}(\omega', \omega'') : \vec{E}(\omega', \vec{r}) \vec{E}(\omega'', \vec{r}) e^{-j(\omega' + \omega'')t}$$

...

$$\vec{P}^{(n)}(\vec{r}, t) = \sum_{\omega_1, \dots, \omega_n} \epsilon_0 \overset{\leftrightarrow}{\chi}^{(n)}(\omega_1, \omega_2, \dots, \omega_n; \vec{E}(\omega_1, \vec{r}) \vec{E}(\omega_2, \vec{r}) \cdots \vec{E}(\omega_n, \vec{r})) e^{-j t \sum_{m=1}^n \omega_m} \quad (1-10)$$

上面各式中, $\overset{\leftrightarrow}{\chi}$ 表示张量, $\overset{\leftrightarrow}{\chi}^{(n)}$ 表示 n 阶非线性极化率张量, 是 $n+1$ 阶张量。

因为 $\vec{P}^{(n)}(\vec{r}, t) = \sum_{\omega} \vec{P}^{(n)}(\omega, \vec{r}) e^{-j \omega t}$, 表示所有频率之和, 将其带入式 (1-10), 同频率振幅相等, 所以:

$$\vec{P}^{(n)}(\omega, \vec{r}) = \sum_{\omega_1 + \omega_2 + \dots + \omega_n = \omega} \epsilon_0 \overset{\leftrightarrow}{\chi}^{(n)}(\omega_1, \dots, \omega_n; \vec{E}(\omega_1, \vec{r}) \cdots \vec{E}(\omega_n, \vec{r})) \quad (1-11)$$

求和遍及满足 $\omega_1 + \dots + \omega_n = \omega$ 的所有项, 将 $\overset{\leftrightarrow}{\chi}^{(n)}(\omega_1, \dots, \omega_n)$ 写为 $\overset{\leftrightarrow}{\chi}^{(n)}(-\omega, \omega_1, \dots, \omega_n)$, 可表示出全置换对称性^{[1][2][3]}。

例: 三束单色波耦合, 频率分别为 $\omega_1, \omega_2, \omega_3$, 且 $\omega_1 + \omega_2 = \omega_3$

$$\begin{aligned} \vec{P}^{(2)}(\omega_3, \vec{r}) &= \sum_{\omega_1 + \omega_2 = \omega_3} \epsilon_0 \overset{\leftrightarrow}{\chi}^{(2)}(-\omega_3, \omega_1, \omega_2; \vec{E}(\omega_1, \vec{r}) \vec{E}(\omega_2, \vec{r})) \\ &= \epsilon_0 \overset{\leftrightarrow}{\chi}^{(2)}(-\omega_3, \omega_1, \omega_2; \vec{E}(\omega_1, \vec{r}) \vec{E}(\omega_2, \vec{r})) + \epsilon_0 \overset{\leftrightarrow}{\chi}^{(2)}(-\omega_3, \omega_2, \omega_1; \vec{E}(\omega_2, \vec{r}) \vec{E}(\omega_1, \vec{r})) \\ &= 2\epsilon_0 \overset{\leftrightarrow}{\chi}^{(2)}(-\omega_3, \omega_1, \omega_2; \vec{E}(\omega_1, \vec{r}) \vec{E}(\omega_2, \vec{r})) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \text{同理: } \vec{P}^{(2)}(\omega_1, \vec{r}) &= 2\epsilon_0 \overset{\leftrightarrow}{\chi}^{(2)}(-\omega_1, \omega_3, -\omega_2; \vec{E}(\omega_3, \vec{r}) \vec{E}(-\omega_2, \vec{r})) \\ &= 2\epsilon_0 \overset{\leftrightarrow}{\chi}^{(2)}(-\omega_1, \omega_3, -\omega_2; \vec{E}(\omega_3, \vec{r}) \vec{E}^*(\omega_2, \vec{r})) \end{aligned}$$

$$\vec{P}^{(2)}(\omega_2, \vec{r}) = 2\epsilon_0 \overset{\leftrightarrow}{\chi}^{(2)}(-\omega_2, \omega_3, -\omega_1; \vec{E}(\omega_3, \vec{r}) \vec{E}^*(\omega_1, \vec{r}))$$

下面看极化强度 $\vec{P}$ 与电场强度 $\vec{E}$ 的波矢之间的关系。

$\vec{P}$ 与 $\vec{E}$ 复振幅分别可表示为:

$$\vec{P}^{(2)}(\omega_3, \vec{r}) = \frac{1}{2} \vec{P}^N(\omega_3) e^{j(\vec{k}_3^N \cdot \vec{r} + \phi_3^N)}$$

$$\vec{E}(\omega_i, \vec{r}) = \frac{1}{2} \vec{E}(\omega_i) e^{j(\vec{k}_i \cdot \vec{r} + \phi_i)} \quad (i = 1, 2, 3)$$

$$\therefore \vec{P}^{(2)}(\omega_3, \vec{r}) = \frac{1}{2} \epsilon_0 \overset{\leftrightarrow}{\chi}^{(2)}(-\omega_3, \omega_1, \omega_2; \vec{E}(\omega_1) \vec{E}(\omega_2)) e^{j[(\vec{k}_1 + \vec{k}_2) \cdot \vec{r} + \phi_1 + \phi_2]}$$

$$\therefore \vec{k}_3^N = \vec{k}_1 + \vec{k}_2, \phi_3^N = \phi_1 + \phi_2$$

$$\text{同理: } \vec{k}_1^N = \vec{k}_3 - \vec{k}_2, \vec{k}_2^N = \vec{k}_3 - \vec{k}_1$$

当 $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2 = 2\omega$ 时, 即 $\omega_1 = \omega_2 = \omega$ 。这样, 求和之中只有一种组合, 此时:

$$\vec{P}^{(2)}(2\omega, \vec{r}) = \epsilon_0 \overset{\leftrightarrow}{\chi}^{(2)}(-2\omega, \omega, \omega; \vec{E}(\omega, \vec{r}) \vec{E}(\omega, \vec{r})), \vec{k}_{2\omega}^N = 2\vec{k}_\omega$$

一般地, n 个频率, 有 n_i 个相同, 则有:

$$\begin{aligned}\vec{P}^{(n)}(\omega, \vec{r}) &= \sum \epsilon_0 \vec{\chi}^{(n)}(-\omega, \omega_1, \dots, \omega_n) : \vec{E}(\omega_1, \vec{r}) \vec{E}(\omega_2, \vec{r}) \dots \vec{E}(\omega_n, \vec{r}) \\ &= \frac{n!}{\prod_i n_i!} \epsilon_0 \vec{\chi}^{(n)}(-\omega, \omega_1, \dots, \omega_n) : \vec{E}(\omega_1, \vec{r}) \vec{E}(\omega_2, \vec{r}) \dots \vec{E}(\omega_n, \vec{r})\end{aligned}$$

如: $n = 4$, $n_1 = 2$, $n_2 = 2$, 即 4 个频率是: $\omega_1, \omega_1, \omega_2, \omega_2$, 则:

$$\frac{n!}{n_1! n_2!} = \frac{4 \times 3 \times 2 \times 1}{2 \times 1 \times 2 \times 1} = 6, \text{ 对应的结果中可能的组合有六种:}$$

$$\begin{aligned}&\omega_1, \omega_1, \omega_2, \omega_2; \omega_1, \omega_2, \omega_1, \omega_2; \omega_1, \omega_2, \omega_2, \omega_1 \\ &\omega_2, \omega_2, \omega_1, \omega_1; \omega_2, \omega_1, \omega_2, \omega_1; \omega_2, \omega_1, \omega_1, \omega_2\end{aligned}$$

再如: $n=3$, 若为 $\omega_1, \omega_2, \omega_3$ (不同), 则 $3! = 6$, 即: $(1, 2, 3)(2, 3, 1)(3, 1, 2)(3, 2, 1)(1, 3, 2)(2, 1, 3)$ 六种不同组合; 若为 $\omega_1, \omega_2, \omega_2$ (两个相同), 则 $\frac{3!}{2!} = 3$, 即: $(1, 2, 2)(2, 1, 2)(2, 2, 1)$ 三种不同组合。

1.3 缓变(慢变)振幅近似

由方程(1-6)和方程(1-11), 即解二阶非线性矢量方程组, 原则上可以得到 n 阶极化强度 $\vec{P}$ 产生的电场 $\vec{E}$ 。但方程组复杂得几乎无法求解, 所以需要近似。

首先考虑无非线性极化, 且无损耗。式(1-6)为:

$$\nabla \times (\nabla \times \vec{E}) - \frac{\omega^2}{c^2} \vec{\epsilon} \cdot \vec{E} = 0$$

上式具有平面波形式的解:

$$\vec{E} = \vec{a} A e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}} = \vec{a} A e^{i\frac{\omega}{c} n \vec{\sigma} \cdot \vec{r}}$$

式中: $\vec{k}$ ——波矢; $\vec{k} = \frac{\omega}{c} n \vec{\sigma}$;

$\vec{a}$ ——入射波电场 $\vec{E}$ 的偏振方向;

$\vec{\sigma}$ ——传播方向的单位矢量;

A ——振幅。

设非线性介质的作用只将振幅 A 改变为 $A(\xi)$, 即:

$$\vec{E}(\xi) = \vec{a} A(\xi) e^{i k \xi}$$

若波动沿着 z 轴方向传播, 则 $\vec{E}(z) = \vec{a} A(z) e^{i k z}$, 代入方程(1-6), 并做如下

近似: $\left| \frac{\partial^2 A}{\partial z^2} \right| \ll \left| k \frac{\partial A}{\partial z} \right|$, 此为慢变化振幅近似, 即: 忽略对 A 的二次导数,

经推导得:

$$\frac{dA(z)}{dz} = j \frac{\mu_0 \omega^2}{2k \cos^2 \alpha} (\vec{a} \cdot \vec{P}^{NL}) e^{-i k z}$$