

第一章

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 $1\text{ W/cm}^2\text{ Å}$ 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 $10^{10}\text{ W/cm}^2\text{ Å}$ 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

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

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 $\chi^{(2)} : EE$ 有关的效应称为二阶非线性光学效应^[3,4] 与 $\chi^{(3)} : EEE$ 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,而只是在与其他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。但这已毫无疑问地确证了新的 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相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^[27,28]。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 15% 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度色散 (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]。

由于量子阱材料中量子限制效应的存在,量子阱结构的非线性光学参数,包括非线性饱和,非线性吸收系数及非线性折射率可以得到极大的增强^{77-79]}。贝尔实验室的 Miller 和 Chemla 等人以及 USC 的 Garmire 在这方面进行了大量的研究工作。在激光照射 AlGaAs/GaAs 量子阱材料后,所产生的自由电子空穴对激子的库仑场进行了屏蔽,使激子的束缚能下降,导致吸收下降甚至消失。与体 GaAs 材料相比,饱和光强下降很多。实验测得的非线性吸收系数和非线性折射率系数分别为 40cm/W 及 $2 \times 10^{-4}\text{cm}^2/\text{W}$,由此求得的唯象三阶非线性极化率可以达到非常大的数值 $7 \times 10^{-21}\text{m}^2/\text{V}^2$ 。半导体量子阱微结构的这种特殊非线性光学性质使得它们在锁模、高速调制器、光学双稳态以及新型的光电子器件方面有广泛的应用前景^{80-82]}。

鉴于极短波长激光器,包括真空紫外(VUV),极端真空紫外(XUV)及软 X 射线区的激光器在超大规模集成电路光刻,用于观察原子和分子等微观世界的全息技术以及高激发态光谱研究方面的重要意义,人们对其一直在努力开拓。

利用非线性光学效应产生 VUV, XUV 波段的相关辐射是一种现实的方法,因为直接制造这些波段的激光器在技术上存在许多困难。采用非共振 FWM 或多波混频可以在惰性气体,甚至金属蒸汽中得到 VUV 及 XUV 波段的相关辐射。尽管采用相位匹配,效率仍然很低,一般仅为 10^{-7} 左右。采用双光子共振的 FWM 过程以及采用多光子共振的多波混频则可以提高转换的效率。人们从四波混频和三次谐波已可获得波长在 72nm 以上大部分区域的 VUV 及 XUV 相关辐射^[83-86]。而从更高次的谐波过程,还可得到波长短至 38nm 的相关辐射。

在软 X 射线区,当波长短至 10nm 以下时,由于介质在这些区域的显著吸收,相关辐射的产生就需要借助于如高温等离子体、核爆炸、强激光轰击金属靶等方法。

非线性光学材料的研究在这 20 年中有了重大的进展。中国科学家在无机非线性晶体的研究中取得的成绩令世人瞩目。

1960 年代时,大量使用的非线性光学晶体是 KDP, ADP, LiNbO_3 和 LiIO_3 等,它们在 SHG, SFG 及 OPO 器件上得到了广泛的应用,但是它们在损伤阈值、短波吸收及大气中的稳定性方面都有相当的局限性。

1970 年代以来,人们先是在有机非线性晶体材料的研究方面得到了一些进展,例如制得了尿素晶体,但它在损伤阈值等方面与无机晶体材料还有一定差距。KTP 的发现(KTiPO_4),为无机非线性晶体材料家族增添了一种有大的非线性光学系数、高损伤阈值的材料。中国科学家陈创天等人从 1970 年代以来致力于非线性晶体材料的探索,他们提出了非线性极化率的离子基团模型,并应用于硼体系无机晶体,在 1980 年代成功地推出了 $\beta\text{-BaB}_2\text{O}_4$ (BBO) 及 LiB_3O_5 (LBO) 两种性能优越的晶体^[87,88]。这两种晶体的短波吸收限比 KDP 和 ADP 更短,而且具有大的非线性光学系数,如 BBO 的 d_{22} 比 KDP 的 d_{36} 高了 2 倍多。它们已被广泛地应用在超短脉冲区的 SHG, SFG 及 OPO 等相关辐射的转换,对新型激光器件的研制起了极大的推动作用^[89,90]。

与非线性光学研究的蓬勃发展和深入相配合,在这 20 年中,大量的非线性光学专著得到出版,如在四波混频,光学相位共轭,相关辐射的扩展,光学双稳态,多光子过程,光纤和有机材料中的非线性光学效应等领域都有相应的书籍。至于国际学术会议论文集及一些著名学术刊物所编辑的专集则为数极多^[91-94]。

这段时期中,关于非线性光学的基本原理和研究工作比较全面总结的则首推 Y. R Shen 的“*The Principles of Nonlinear Optics*”^[95]。

§ 1.3 20 世纪 90 年代的进展

1990 年代中,非线性光学研究又在几个方面取得了重大的进展。

最引人注目的进展之一是利用新型的非线性光学晶体,如 β -BaB₂O₄ (BBO), LiB₃O₅ (LBO) 及 KTiPO₄ (KTP) 等,制作在宽广波长范围可调谐的连续或皮秒 (ps),飞秒 (fs) 脉冲光学参量振荡器^[96,97],及光学参量放大器 (OPA)^[98]。在这以前,人们一般采用染料激光器或者钛宝石激光器以得到调谐的相干辐射,然而由于染料及钛宝石激光器覆盖波长的局限性,使得它们在波长调谐的实际应用方面受到限制。而基于 1980 年代 ps 及 fs 全固态激光器的研制成功及高质量非线性光学晶体的发现, OPO 及 OPA 等技术在 ps 和 fs 调谐激光及连续波调谐激光方面的应用重新被人们所重视,充分显示了极大的应用潜力。

双共振 (DRO) OPO 由于其低的阈值在连续波 OPO 产生上有独特优点 Eckardt 及 Lee 等人详细研究分析了 I 型和 II 型连续波 OPO 的性质,他们使用了 KTP 晶体和特殊的腔体设计,可以得到 DRO OPO 的信号与闲频光的频差为 THz 的调谐范围^[99,100]。Gerstenberger 等人采用二极管激光器泵浦的单频,连续波 Nd:YAG 激光器的倍频输出去泵浦 LiNbO₃ 的单共振 (SRO) OPO 得到了 966nm 至 1165nm 范围内的调谐输出,功率可达 100mW^[101]。法国的研究小组首次采用有机非线性晶体制作了覆盖 0.9 μ m 至 1.7 μ m 的红外脉冲 OPO^[102]。从 CdGeAs₂、GaSe 等晶体经差频已可得到 6—20 μ m 范围的调谐输出,从 GaSe 得到的 140fs 红外输出,其平均功率已达到 1 μ W^[103]。

Cornell 大学的 Tang 小组在超快脉冲 OPO 的研究方面进行了长期的卓有成效的工作^[104]。他们采用钛宝石激光束为泵浦光,得到了高重复率的、脉宽短至 57fs 的可见及红外区 OPO,这是当时所报道的最短脉冲宽度的 OPO 输出。他们指出,如果采用新的红外非线性晶体 In:KTA(KTiOAsO₄) 有可能将这种超快 OPO 的输出波长延伸至 5 μ m。Hall 和 McCarthy 等研制的 LBO 或 KTP 晶体的 OPO,可以在很低的泵浦功率下得到高的效率,输出的脉冲宽度在 1.7ps 左右。目前这种高重复率的 ps 级的 OPO 输出已经接近变换极限,平均功率接近 100mW。在行波 OPA 的研究方面也得到了很好的成果,由于行波 OPA 有简便的结构,高的输出功率和很宽的调谐范围,在超快过程的研究方面有重要的应用前景^[105]。

所有这些红外或可见波段,连续波或超短脉冲, DRO 或 SRO 的 OPO 及 OPA 技术的巨大进展已经有效地促进了激光光谱及非线性光学研究,为更高精度和 fs 量级的非线性光学研究提供了有效的红外相干辐射光源^[106,107]。

第二个极为引人注目的进展是 fs 区非线性光学研究。在 1990 年代,fs 激光器已经实现商品化,并在实验室得到广泛应用。再利用非线性光学过程可进一步压缩及放大超短脉冲或转换超短脉冲的波长,这对于利用非线性光学效应研究各种材料中的超快过程起了重要的推动作用。

掺有稀土元素 Er 光纤的制备,使得在光通信最感兴趣的波段得到了高增益介质。Er 光纤具有很大的增益带宽,可用于产生和放大超短脉冲,Ainslie 等人已经从 Er 光纤成功地

放大了 200fs 的光脉冲^[108]。光纤激光器的锁模技术一般采用主动和被动两种，在被动锁模激光器中，使用非线性的放大环路可以得到 300fs 的孤子脉冲输出。而采用附加脉冲锁模技术并耦合于一个非线性外腔，即所谓耦合腔锁模技术已经从色心激光器获得 100fs 的输出。利用色心激光器的 fs 光束在光纤中的自相位调制引发的 FWM 效应可以将 1.5 μm 波长处的 90fs 脉冲转换至 1.3 μm 处^[109]。

在 fs 区，由于光脉冲的时间特别短，所以功率密度相对地比较高，故很容易引起 SPM 以及其他高阶非线性光学效应。法国的 Paye 采用 100fs 的光脉冲研究了半导体非线性法布里—珀罗标准具的响应特性^[110]。他们发现，从标准具透射或反射的光脉冲都会受到标准具的滤光性能、群速色散及自相位调制的影响，其光谱特性和时间特性都会因此变化。Arabat 用 90fs 的光脉冲在玻璃中观察到 6 波混频效应，测量了透明玻璃的 $\chi^{(5)}$ 的对称张量元与不对称张量元之比^[111]。

fs 光脉冲是研究有 ps 及 fs 量级的快速过程的重要工具，许多科学家已经利用 fs 激光来进行差分透射光谱、时间分辨四波混频及时间分辨的相干拉曼光谱等测量。日本东京大学的 Kobayashi 用对撞锁模环形染料激光器的 60fs 光束，采用泵浦—探测方法测量了无定形 GaAs 及玻璃样品中的微分透射光谱，观测到超短脉冲引起的感生相位调制^[112]。这种方法可用于测量材料非线性极化率的实部和虚部。Tahen 等用 DFWM 技术测量了 GaN 7 μm 厚的膜层的非线性折射率系数，得到 $n_2 = 1 \times 10^{-3} \text{ cm}^2/\text{GW}$ ^[113]。对厚度大于 100nm 的 GaAs 外延层，观测到了有趣的尺寸效应。

具有量子限制效应的半导体量子阱材料在制作调制器，光开关等光电子器件方面应用前景广阔，对其非线性光学性质和超快光响应业已有大量研究。In_{0.13}Ga_{0.87}As 单量子阱的瞬态吸收测量表明，其响应快于 1ps^[114]。Bayer 等对 InGaAs/GaAs 的量子阱和量子线样品进行了时间分辨 FWM 实验，测得量子线样品的量子拍的时间间隔为 430fs，表示大的量子限制效应使重空穴子能级间隔进一步加大^[115]。Netti 等采用 150fs 的双色瞬态吸收实验研究了 II-VI 族 ZnCdSe/ZnSe 多量子阱材料，发现由于光生载流子的多体效应，使激子线展宽恢复时间在 15ps^[116]。对于 1.5 μm 波段光通信光电接收器的 InGaAs/AlAs 量子阱材料利用 130fs 的泵浦—探测技术，测量了其子带间的粒子数弛豫时间为 2.7ps 与理论计算的比较表明，子带内的能量弛豫过程必须考虑在内。

由于半导体激光器在光通信、光盘存贮等领域的重要应用前景，有关半导体激光器的研究近年来得到了很大的进展。除了 GaAs/AlGaAs 多量子阱激光器以外，利用应变型量子阱 InGaAs/InGaAsP/InP，InGaAs/AlGaAs，InGaAs/AlInAs 等材料都得到了激光输出。II-VI 族宽禁带材料及 GaN 等 III 族材料所制作的发光及激光器件也有重要的突破^[117,118]，它们在增宽调谐范围，提高调制速度方面有其独特之处。而在这些半导体激光器的研制之中，伴随着许多非线性光学研究课题。

在半导体激光器中注入外界信号时，可以观察到一系列与非线性光学有关的现象，如注入锁定、四波混频甚至混沌行为。在法布里—珀罗腔中，四波混频信号可以与输出的放大信号有同一量级。这些过程其实都是产生于注入信号引起的激光场的振幅调制和相位调制。UCLA 的 Liu 等人详细研究了半导体激光器中的四波混频及光调制特性^[119]，从激光场的振幅及相位调制可以解释观察到的四波混频谱的不对称性^[120]，并且指出，测量四波混频等信号的功率谱及光谱，可以了解激光器中的一些重要参数，如弛豫率、共振频率及线宽增宽

因子等。Li采用小信号分析处理了外界注入信号对的激光器行为,计算表明,当调节注入信号的失谐时,则可以使激光器的增益呈现双稳特性^[121]。而且对一个固定的半导体激光器偏压,为得到大的双稳环宽度,就必须增加注入信号的强度,这与 Hui等人的实验有很好的致^[122]。Freeman等人在1993年报道了采用半导体激光器加上外腔反馈系统,在室温时得到了压缩度达1.8dB的振幅压缩态,这是当时在室温时所创得到的最好的振幅压缩度^[123]。而在此前,人们利用激光二极管已经在低温时得到8.3dB的压缩度。

光纤通信的神速发展并如此深刻地影响人类社会是科学技术的一个重大成就。为充分挖掘和利用光纤通信的波段范围,人们已在开拓高密度波分复用技术(DWDM)即采用尽可能多的光学频道,预计频道数可接近一千个,而每个频道运载有足够多的信息。这样要在一根光纤中同时传输许多在波长上紧密相依(间隔约为0.4nm)而载有信息的光波,必然需要许多复杂的光子学与光电子学技术和系统与之配合。如多波长激光器,高速调制器,光学分叉复用器(OADM),光学开关,光电接收器等。它们应该有极高的响应速度以对超高容量信息进行接收、处理、分类和再发送。这将涉及到许多非线性光学技术和材料的超快响应。根据DWDM的发展规划,预计未来10年中,地球上的信息交流将会畅通无阻^[124]。

在光纤通信的发展计划中,光孤子通信受到人们的密切注视。光孤子由于其极好的波形保持特性,对无误码率信息传输的应用前景十分诱人。由此,科学家们在20世纪80年代发现光孤子的基础上,近几年来,在时间孤子、空间孤子以及时空孤子(STS)都有大量的研究工作。空间孤子可以有几种类型,即准稳态型、屏蔽型和光伏型。人们不仅从理论上预见到,并已在实验上观测到这些空间孤子。实验大多采用光致折变晶体,晶体在光作用下可产生载流子和电场,并引起折射率的变化,产生的空间孤子可为一维或二维。She等人从Cu:KNSBN晶体观测到二维光伏空间孤子,并由背景辐射感应产生的电场作用解释了实验结果^[125]。关于在二阶非线性介质中经级联非线性光学效应产生时空孤子已有理论预测,研究了在介质中基频光和倍频光之间经非相位匹配条件的耦合而互相俘获,以补偿存在的衍射效应和群速色散。Liu等采用110fs的强激光脉冲在三倍于相互作用长度的LiIO₃晶体中,对零群速失配和大的群速失配情况都观测到了(1+1+1)的时空孤子^[126]。

光孤子通信的实验探索业已取得很大进展。1990年代初,Mollenauer等在色散位移光纤(DSF)中,采用锁模二极管激光器,可将信号以2.4Gb/s的速率传播至5000km。Nakazawa利用色心激光器或直接调制的二极管激光器,并由Er光纤的放大对损耗进行补偿,得到20Gb/s的孤子的产生和传输。在1998年底瑞典Chalmers技术大学的科学家,采用商用的DSF光缆已将40Gb/s信息的载波孤子传输了400km,发现孤子对偏振模色散等有极好的抗干扰性,采用孤子的脉冲持续时间为10ps。1999年法国Alcatel公司宣布已成功地将每个载有10Gb/s的32个光波在同一根光纤中传输了6150km。后来,日本NTT公司也报道了载有40Gb/s的单频道孤子传输达70000km^[127]孤子信息是由4个10Gb/s的孤子叠加而成,实验采用250km长度的环路,每经过一次环路,对光孤子进行控制和滤波。这些研究工作表明,实现信息量为1Tb/s的越洋传输已是指日可待。

Chernikov等人从全光纤被动锁模的Er光纤孤子激光器输出经特殊的色散衰减光纤(DOF)可使脉宽得到进一步压缩,利用这种组合,已将630fs的孤子脉冲压缩至115fs。这种技术提供了一种极为简单、稳定和高质量的压缩技术,可望获得几十fs的孤子脉冲。美国的Jin等人证明,采用暗孤子可以对亮孤子进行压缩。

自 1980 年代末期至今,在相干辐射扩展方面取得的一个重要突破是在于高次谐波的产生(HHG)及 X 射线激光器的研究。人们采用亚皮秒及飞秒级的高功率激光聚焦后得到 10^{14} W/cm^2 以上的功率密度,已从惰性气体及其他气体中得到了高达百阶以上的谐波输出。如 Huiller 等从 He、Ne 气体中得到了 $1.053 \mu\text{m}$ 波长的基频光的 135 阶谐波,其对应的 HHG 波长为 7.8 nm 。1996 年 Preston 报道了采用 248 nm 的 KrF 激光从 He 气中得到了 37 阶谐波,波长可短至 6.7 nm 。这种在气体中得到的处于 XUV 及软 X 射线波段的 HHG 输出引起了人们的极大兴趣,不论是从 HHG 产生机理的研究或作为新颖激光技术的应用都有重要意义。研究人员已经采用微扰论或非微扰论方法对此过程进行分析研究,初步解释了 HHG 过程中存在的平台区及快速截止区,还研究了原子及离子的贡献,讨论了改善相位匹配以提高 HHG 转换效率的途径。

为进一步改善 HHG 中的相位匹配并降低在强激光照射下所产生的高密度自由电子或离子的影响,人们采用波导型介质的 HHG 装置并采用超短脉冲激光(短至 40 fs 甚至 5 fs),得到了很好的结果。 26 fs 的激光已在 He 和 Ne 中产生分别高达 221 阶和 297 阶的 HHG 输出,He 的 HHG 最短波长已达到 2.7 nm ,处于软 X 射线的水窗口^[128]。至今有好些实验已得到水窗的 HHG 输出,对生物全息等研究带来希望^[129]。HHG 输出的极宽的波长范围及其相位关系提示人们,它们有望用于产生更短的激光脉冲(10^{-18} s 阿秒)对此已有设计的实施方案和模拟计算,表明 HHG 在阿秒脉冲的产生方面有重要地位^[130]。

X 射线激光器因在 X 射线显微镜、生物分子全息等领域的重要应用前景而备受关注。人们特别感兴趣于采用小型激光器产生 X 激光的台式 XRL 系统。近年来,利用飞秒激光器输出的高功率激光轰击 Li, Al, Au 等材料已得到了相应的 X 光的发射,斯坦福大学的 Lemoff 等以脉冲能量为 70 mJ 的 40 fs 激光将 Xe 原子电离成 Xe^{12+} 离子,在 41.81 nm 的发射线上得到了 $e^{12.4}$ 的增益^[131]。Rocca 等则对充有 Ar 气的毛细管进行大电流(40 kA)脉冲放电,经磁场约束,得到了 $300 \mu\text{m}$ 直径的高温、高密度的类氙的氩等离子体,随放电轴向柱的增长,观察到增益的明显增大,在 15 cm 长的放电柱中增益可达 e^{14} 。另一个研究组采用两束激光先后照射 Ti 靶,第一束激光用于产生等离子体,随后的第二束激光则加热所产生的等离子体以得到瞬时的粒子数反转,由放大信号的测量估算增益为 $e^{9.5}$,另外还提出里德堡 XRL 的设想。最近,从 Yb、Zr 等原子已得到类 Ni 离子的软 X 射线发射,波长为 20 nm 左右,小信号增益已达到 21 cm^{-1} ^[132]。而采用两束泵浦光可更好控制等离子体的形状及配置,从类 Ni 的 Yb、Hf 离子已得到 5 nm 左右的软 X 射线输出^[133]。这些研究结果表明,在 X 射线波段已达到的增益与为饱和一个碰撞激发激光系统所需的增益值 e^{15} 已相距不远,故期望在不久实现台式 XRL 的设想看来已非过份。

fs 激光应用的另一个重要领域是 fs 化学和 fs 生物学。在使用 ps 激光研究超快化学反应的基础上,很早就开始了 fs 化学的研究。fs 化学主要是研究化学反应中的超快动力学过程,化学键的断裂和生成,异构化以及反应的中间过渡物等。由此可以了解化学反应是如何发生的,与反应条件有何关系。在 fs 化学研究中,人们主要采用 fs 泵浦—探测,瞬态吸收,fs 激光与分子束和飞行时间质谱相结合等技术。已对 ICN, I_2 , CH_3I 等多种分子的激光解离过程进行了研究,发现 I_2 的光解离时间短于 240 fs ,而 $\text{Cr}(\text{CO})_6$ 的 CO 剥离仅需 40 fs 利用 fs 激光还研究了原子团簇的激发态,分子间的质子传递等^[134—135]。

近 10 年来,利用 fs 激光已对光合作用的原初过程,视觉的超快光响应以及蛋白质等进

行了研究^[136]。高等植物及细菌的光能捕获及光能传递是光合作用的重要一步。对紫菌的 fs 超快光谱测量揭示,不同 B800 天线分子间的传递时间为 500fs 而由 B800 传递至 B850 的时间为 1.2ps 再由 B850 经 LH1 传递至反应中心的时间分别为 3ps 和 35ps。对视紫质中 11-顺色素的异构化过程研究,发现这是一种无势垒的 200fs 特征时间的超快过程^[137]。飞秒生物学这一门崭新的交叉学科,必将揭示更多的生物学奥秘^[138]。

量子光学在经历了 1980 年代中期以来的飞快发展期后,在压缩态的产生机制及实验研究方面都继续有大量研究工作。理论工作着重于探索各种有效产生压缩态的方法,以寻求实现压缩态的最佳方案,而实验上则要得到有高的压缩度的光学压缩态。

Janszky 等人研究了利用超短脉冲激发分子时,由于极短光脉冲的频谱可以覆盖几个振动激发态,使得在电子激发时,分子处于一种不稳定的振动态,即是一些具有高的量子数的振动态的相干叠加。这时在核尚未来得及移动前,电子激发已经发生,使得分子的振动基态变换成为一种压缩态^[139]。核间距离的量子不确定性会小于具有相应的振动位势的基振动态的不确定性。对短脉冲来讲,振动频率的非绝热变化是主要的压缩机制。Agarwal 证明了当激活介质中有较长寿命的原子时,这时激光腔中可以从激活介质内的四波混频过程得到增益而并不存在粒子数反转。由四波混频产生的光子间有很强的关联,使得处于阈值以上的双光子激光器有更窄的线宽,这时的激光输出更具有压缩特性^[140]。有人研究相干驱动的三能级 Λ 系统中的稳态压缩,发现当系统中的荧光衰减速率大于其他跃迁过程的速率时,可以得到很好的压缩特性。另外,由于近来激光冷却技术的发展,利用荧光的外差接收技术从激光冷却到俘获的单个原子的共振荧光也有可能观察到光学压缩^[141]。

在实验研究方面一直处于领先地位的 Kimble 已经在 1992 年报道了利用纯光学系统得到 70% 的压缩度 ($\sim 5.2\text{dB}$)^[142]。

基于光学压缩态的成功产生,人们开展了压缩态光场在高精度原子光谱、低噪声光通信及高精度测量方面的应用研究。例如,旨在免除测量过程中附加噪声的量子非破坏探测,近年来已得到了广泛的重视与研究。

除了以上介绍的几方面进展外,1990 年代以来在利用 SRS 和 SBS 效应对激光脉冲的压缩^[143],高分子和纳米材料的研究^[144],时间和空间分辨的非线性光学测试技术等许多方面都有不少工作。无论从基础研究及应用研究来讲,非线性光学正在日益显示它极其丰富的内容和极为活跃的创新。展望未来,这朵光学学科中的奇葩,必将会有更多更新的成果奉献于自然科学之林,为 21 世纪的科学技术发展继续开拓,作出贡献。

§ 1.4 本书宗旨及内容简介

本书讲述非线性光学的基本原理、基本效应,并介绍非线性光学在近 10 多年中在各个主要方面的重要进展。

本书的编写有两个目的,一是作为综合性大学以及工科院校有关专业的本科生及研究生的非线性光学参考教材,所以我们在本书中对非线性光学的基本原理及一些重要效应给以充分的论述,在列出必要的理论推导的同时,也有明确的物理机制的解释,使得学生能通过本书的阅读了解并掌握非线性光学的基本原理及这门分支学科所涉及到的主要的研究内容,为他们今后进行有关非线性光学研究打下扎实的基础。同时,本书又希望给予在这个

领域工作的中青年研究人员一定的参考，使得他们在深入进行某一方面的研究工作的同时能了解非线性光学的最近进展及主要研究动向。为此我们在编写中查阅了这几年来发表的有关资料，将它们编辑并纳入有关章节，希图将当今非线性光学的发展现状及重要前沿研究介绍给他们，以有助于他们进行非线性光学有关前沿领域的研究工作。

由于本书篇幅及作者水平所限，本书不可能将非线性光学领域的所有研究领域都编辑在内，而只能选择其中最具有代表性又最为重要的一些效应及研究成果作介绍。

本书第二章将讲述非线性光学极化率的基本理论，从量子力学理论出发推导极化率的基本公式，由此讨论它们的基本性质，随后介绍在探索新型非线性光学晶体方面取得重大成功的陈创天的离子基团理论以及量子化学理论在研究有机非线性光学材料方面的一些工作。第三章至第四章将依次讲述二阶非线性光学效应，主要是在应用上有重大意义的倍频、和频及差频效应，和近年来得到很大重视和进展的光学参量振荡。第五章以后则是三阶和高阶非线性光学效应的内容。第五章对三阶非线性光学效应作概略的综述，同时介绍自聚焦及自相位调制效应。第六章讲述四波混频效应、简并四波混频及其在相位共轭技术上的应用。以后几章的内容分别为，几种重要的受激散射、受激拉曼散射、受激布里渊散射的基本原理及应用；相干拉曼光谱学；光场与物质的共振相互作用，缀饰态的引入；利用四波混频、受激反斯托克斯拉曼散射和受激电子拉曼散射等方法实现相干辐射向短波长和红外区的扩展；多光子电离和多光子解离过程；光学双稳态的基本原理，光学不稳定性及光学混沌；在应用上有极大潜力的介质波导和光纤中的非线性光学效应；新型非线性光学材料——有机聚合物材料的研究；在光电子学应用上有极重要地位的半导体材料及半导体微结构中的非线性光学效应；fs 光脉冲与超快过程的研究；量子光学与光学压缩态等。

本书采用国际单位制进行编写，这与国际上很多作者的做法相一致。但是鉴于国际上目前仍有不少论文和书籍采用 CGSE 制来写作，而且一些物理量的取法也很不相同，给读者带来许多不便。本书在附录中给出非线性光学中一些重要的物理量及公式在两种不同单位制时的对照表，供读者参阅。

对于电极化强度及光电场强度，我们在本书中采用如下写法（下面仅以光电场强度为例），与时间及空间有关的单色光电场强度 $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$ 可以对时间作展开，也可以以平面波形式作展开，分别取展开式为：

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{2} \mathcal{E}(\mathbf{r}) e^{-i\omega t} + \text{c. c.} \quad (1.4-1a)$$

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{2} \mathbf{E}(\omega) e^{-i\omega t + ikz} + \text{c. c.} \quad (1.4-1b)$$

在以上两个展开式的右边均包含有 $(1/2)$ 因子。 $\mathcal{E}(\mathbf{r})$ 则包括与空间有关的全部信息，而 $\mathbf{E}(\omega)$ 则是频率为 ω 的 z 向传播的单色平面波的光电场振幅。与一些书籍中采用的其他写法相比，我们认为取这种展开写法比较合理。本书自始至终将采用这种统一的展开方式。

由于大量的论文、书籍在单位制、光电场强度的展开以及其他一些定义的差异，读者在比较不同的书籍和论文中的公式及数据时必须谨慎处理，不可简单照搬。

参 考 文 献

1. M. Born and E. Wolf, *Principles of Optics*, Pergamon Press, 1975
2. N. Bloembergen, in *Nonlinear Spectroscopy*, ed by N. Bloembergen, North-Holland, Amsterdam, 1977
3. P. Kurz, R. Paschotta, K. Fieldler, A. Sizmann, G. Leuchsand, J. Mlynek, *Appl. Phys.* **B55**, 216 (1992)
4. *Quantum Electronics: A Treatise, I*, ed. H. Rabin and T. L. Tang, eds. Academic Press, 1975
5. J. F. Reintjes, *Nonlinear Optical Parametric Processes in Liquids and Gases*, Academic Press, 1984
6. A. L. Huillier and P. Bacon, *Phys. Rev. Lett.* **70**, 774 (1993)
7. P. A. Franken, A. E. Hill, C. W. Peters and G. Weinreich, *Phys. Rev. Lett.* **19**, 556 (1961)
8. E. J. Woodbury and W. K. Ng, *Proc. IRE*, **50**, 2347 (1962)
9. R. W. Hellwarth, *Phys. Rev.* **130**, 1850 (1963)
10. R. Y. Chiao, C. H. Townes and B. P. Stoicheff, *Phys. Rev. Lett.* **12**, 592 (1964)
11. M. Bass, P. A. Franken, A. E. Hill, C. W. Peters and G. Weinreich, *Phys. Rev. Lett.* **8**, 18 (1962)
12. D. W. Farries, K. A. Gehring, P. L. Richards and Y. R. Shen, *Phys. Rev.* **180**, 363 (1969)
13. J. A. Giordmaine and R. C. Miller, *Phys. Rev. Lett.* **14**, 973 (1965)
14. M. Hercher, *J. Opt. Soc. Am.* **54**, 563 (1964)
15. N. Bloembergen and P. Lallemand, *Phys. Rev. Lett.* **16**, 81 (1966)
16. A. Szoke and A. Javan, *Phys. Rev. Lett.* **10**, 521 (1963)
17. W. E. Lamb, *Phys. Rev. A* **134**, 1429 (1964)
18. W. Kaiser and C. G. B. Garret, *Phys. Rev. Lett.* **7**, 229 (1961)
19. D. Frohlich and B. Stagninus, *Phys. Rev. Lett.* **19**, 496 (1967)
20. N. Bloembergen, *Nonlinear Optics*, Benjamin, 1965
21. P. N. Butcher, *Nonlinear Optical Phenomena*, Ohio State University Press, 1965
22. P. D. Maker and R. W. Terhune, *Phys. Rev.* **A137**, 801 (1965)
23. R. W. Hellwarth, *J. Opt. Soc. Am.* **67**, 1 (1977)
24. A. Yariv, *IEEE QE* **14**, 650 (1978)
25. N. R. Isenor and M. C. Richardson, *Appl. Phys. Lett.* **18**, 224 (1971)
26. D. Krajnovitch, F. Huisken, Z. Zhang, Y. R. Shen and Y. T. Lee, *J. Chem. Phys.* **77**, 5977 (1982)
27. M. G. Raymer, J. Mostowski and J. L. Carlsten, *Phys. Rev. A* **19**, 2304 (1979)
28. *Nonlinear infrared generation*, ed. Y. R. Shen, Springer-Verlag, 1977
29. M. D. Duncan, R. Mahon, L. L. Tankersley and J. Reintjes, *J. Opt. Soc. Am.* **B5**, 37 (1988)
30. C. Reiser, T. D. Raymond, R. B. Michie and A. P. Hickman, *J. Opt. Soc. Am.* **B10**, 1859 (1989)
31. P. Rabinowitz *et al*, *IEEE QE* **22**, 797 (1988)
32. D. Eimerl, R. S. Hargrovs and J. R. Paisner, *Phys. Rev. Lett.* **46**, 651 (1981)
33. J. Goldhar, M. W. Taylor and J. R. Murray, *IEEE QE* **20**, 772 (1984)
34. J. Reinjes, R. H. Lehmberg, R. S. F. Chang, M. T. Duignan and G. Calame, *J. Opt. Soc. Am.* **B3**, 1408 (1986)
35. R. D. Verma, S. M. Jaywant and Z. Iqbal, *J. Opt. Soc. Am.* **B2**, 403 (1985)
36. S. J. Brosnan, H. Komine, E. A. Stappaerts, M. J. Plummer and J. B. West, *Opt. Lett.* **7**, 154 (1982)
37. 马祖光, 卞晓峰, 吕振国, *光学学报* **7**, 17 (1987)
38. K. Mori, Y. Yasuda, N. Sokabe and A. Murai, *Opt. Commun.* **57**, 418 (1986)

39. ShiXiong Qian and R. K. Chang, *Phys. Rev. Lett.* **56**,926(1986)
40. ShiXiong Qian, *Acta Optica sinica* , **7**,690(1987)
41. S. Wellengehansen, K. Ludewigt and H. Welling, *ECOOSA Conf. Proc.* 1984
42. D. T. Hon, *Opt. Lett.* **5**,516(1980)
43. M. A. Davydov and I. N. Koshevnikova, *Phys. Lett. A* **127**,345(1988)
44. M. Pealet, J. P. E. Taran and F. Moya, *Opt. & Laser Tech.* **12**,21(1980)
45. I. R. Beattie, J. D. Black, T. R. Gilson and J. A. Shirley, *SPIE* **158**,09(1978)
46. W. B. Roh, P. W. Schreiber and J. P. E. Taran, *Appl. Phys. Lett.* **29**,174(1976)
47. A. Laubereau and W. Kaiser, *Rev. Mod. Phys.* **50**,607(1978)
48. R. P. Lucht and R. L. Farrow, *J. Opt. Soc. Am.* **B10**,2313(1989)
49. S. L. McCall, H. M. Gibbs and T. N. C. Venkatesan, *J. Opt. Soc. Am.* **65**,1184(1975)
50. S. L. McCall, H. M. Gibbs, *J. Opt. Soc. Am.* **68**,1378(1978)
51. D. A. B. Miller, D. S. Chemla, T. C. Damen, A. C. Gossard, W. Wiegmann, T. H. Wood and C. A. Bur-
rus, *Appl. Phys. Lett.* **45**,83(1984)
52. T. Kobayashi, N. C. Kothari and H. Uchiki, *Phys. Rev.* **A29**,2727(1984)
53. P. W. Smith, *Opt. Eng.* **19**,456(1980)
54. K. C. Weyer, H. Wiedenmann, M. Rateike, W. R. MacGillivray, P. Meystre and H. Walther, *Opt.*
Commun. **37**,426(1981)
55. G. P. Agrawal and C. Flytzanis, *Phys. Rev.* **A24**,3173(1981)
56. L. A. Lugiato and R. J. Horowicz *et al.* , *Phys. Rev.* **A30**,1366(1984)
57. J. V. Moloney, *Opt. Commun.* **48**,435(1984)
58. R. H. Stolen, G. P. Ippen and A. R. Tynes, *Appl. Phys. Lett.* **20**,62(1972)
59. A. Haseguwa, *Appl. Opt.* **23**,3302(1984)
60. V. M. Mitev and L. M. Kovechev, *Opt. Commun.* **63**, 421(1987)
61. W. Zhao and E. Bourkoff, *Opt. Lett.* **14**,703(1984)
62. L. F. Mollenauer and R. H. Stolen, *Opt. Lett.* **9**, 13(1984)
63. H. A. Haus and M. N. Islam, *IEEE QE* **21**,1172(1985)
64. I. F. Mollenauer, U. S. *Patent* 4635253(Jan. 1987)
65. M. Nakazawa, *Opt. Lett.* **10**,193(1985)
66. H. A. Haus and M. Nakazawa, *J. Opt. Soc. Am.* **B4**,652(1987)
67. R. E. Slusher, L. W. Hollberg, B. Yurke, J. C. Merta *et al* , *Phys. Rev. Lett.* **55**,2409(1985)
68. H. J. Kimble and J. L. Hall, *Technical Digest of 14th IQEC* , 86(1986)
69. L. Wu, H. J. Kimble and H. Wu, *Phys. Rev. Lett.* **57**,2520(1986)
70. S. F. Ferreira, M. Xiao, H. J. Kimble and J. L. Hall, *Phys. Rev.* **A38**,4931(1988)
71. G. J. Milburn, D. F. Walls and M. D. Levenson, *J. Opt. Soc. Am.* **B1**,790(1984)
72. L. A. Lugiato, *Phys. Rev. A* **33**,4079(1986)
73. L. Schultheis, A. Honold, J. Kuhl, K. Kohler and C. W. Tu, *Phys. Rev.* **B34**,9027(1986)
74. K. Leo, M. Wegener, J. Shah, D. S. Chemla, E. O. Gobel, T. C. Damen, S. Schmitt-Rink and W. Scha-
fer, *Phys. Rev. Lett.* **65**,1340(1990)
75. E. O. Gobel, K. Leo, T. C. Damen, J. Shah, S. Schmitt-Rink, J. F. Mueller and K. Kohler, *Phys. Rev.*
Lett. **64**,1801(1990)
76. *Optical Nonlinearities and Instabilities in Semiconductors* , ed. H. Haug, Academic, 1998
77. D. S. Chemla, D. A. B. Miller and P. W. Smith, *Opt. Eng.* **24**,556(1985)

78. D. A. B. Miller, D. S. Chemla, D. J. Eilenberger, P. W. Smith, A. C. Gossard, W. T. Tsang, *Appl. Phys. Lett.* **41**, 962(1982)
79. H. C. Lee, A. Hariz, P. D. Dapkus, A. Kost, M. Kawase and E. Garmire, *Appl. Phys. Lett.* **50**, 1182 (1987)
80. R. Jin, C. L. Chuang, H. M. Gibbs, S. W. Koch, J. N. Polky and G. A. Pubanz, *Appl. Phys. Lett.* **53**, 1791(1988)
81. D. J. Newson and A. Kurobe, *Appl. Phys. Lett.* **51**, 1670(1987)
82. W. F. Sharfin and M. Dagenais, *Appl. Phys. Lett.* **46**, 819(1985)
83. W. Jamorz, P. E. Larocque and B. P. Stoicheff, *Opt. Lett.* **7**, 617(1982)
84. P. H. Page, K. J. Larkin, A. H. Kung, Y. R. Shen and Y. T. Lee, *Rev. Sci. Instrum.* **58**, 1616(1987)
85. J. P. Marangos, N. Shen, H. Ma, M. H. R. Hutchinson and J. P. Connerade, *J. Opt. Soc. Am.* **B7**, 1254 (1990)
86. G. Hilber, A. Lago and R. Wallenstein, *J. Opt. Soc. Am.* **B4**, 1753(1987)
87. C. T. Chen, B. C. Wu, A. Jiang, and G. M. You, *Sci. Sin.* **B18**, 235(1985)
88. C. T. Chen, Y. C. Wu, A. Jiang, B. C. Wu, G. M. You, R. K. Li and S. J. Lin, *J. Opt. Soc. Am.* **B6**, 616 (1989)
89. Y. X. Fan, R. C. Eckardt, R. L. Byer, C. Chen and A. D. Jiang, *IEEE QE* **25**, 1196(1989)
90. L. J. Bromley, A. Guy and D. C. Hanna, *Opt. Commun.* **67**, 316(1988)
91. R. A. Fisher, *Optical Phase Conjugation*, Academic Press, 1983
92. M. D. Levenson, *Introduction to Nonlinear Laser Spectroscopy*, Academic Press 1984
93. A. D. Bandrauk, *Atoms and molecular processes with short intense laser pulses*, Plenum Press, New York, 1988
94. H. M. Gibbs, *Optical Bistability*, Academic press, 1985
95. Y. R. Shen, *The principles of Nonlinear Optics*, John Wiley & Sons, 1984
96. S. T. Yang, R. C. Eckardt and R. L. Byer, *Opt. Lett.* **18**, 971(1993)
97. S. T. Yang, C. C. Pohalski, E. K. Gustafson, R. L. Byer, R. S. Feigelson, R. J. Raymakers and R. K. Route, *J. Opt. Soc. Am.* **B10**, 1695(1993)
98. R. Danielius, A. Piskarskas, D. Podenas, P. Di Trapani, A. Varanavicius and G. P. Banfi, *Opt. Commun.* **87**, 23(1992)
99. R. C. Eckardt, C. D. Nabors, W. J. Kozlovski and R. L. Byer, *J. Opt. Soc. Am.* **B8**, 646(1991)
100. D. Lee and N. C. Wong, *J. Opt. Soc. Am.* **B10**, 1659(1993)
101. D. C. Gerstenberger and R. W. Wallace, *J. Opt. Soc. Am.* **B10**, 1681(1993)
102. S. X. Dou, D. Josse and J. Zyss, *J. Opt. Soc. Am.* **B10**, 1708(1993)
103. R. A. Kaundl, D. C. Smith *et al.*, *Opt. Lett.* **23**, 861(1998)
104. P. E. Powers, R. J. Ellingson, W. S. Pelouch and C. L. Tang, *J. Opt. Soc. Am.* **B10**, 2162(1993)
105. W. Joosen, P. Agostini, G. Petite, J. P. Chambaret and A. Antonetti, *Opt. Lett.* **17**, 133(1992)
106. F. Hanson and D. Dick, *Opt. Lett.* **16**, 205(1991)
107. Y. Cui, M. H. Dunn, C. J. Norrie, W. Sibbett, B. D. Sinclair, Y. Tang and J. A. C. Terry, *Opt. Lett.* **17**, 646(1992)
108. B. J. Ainslie, K. J. Blow, A. S. Gouveia-Neto, P. G. J. Wigley, A. S. B. Sombra and J. R. Taylor, *Electron Lett.* **26**, 186(1990)
109. Z. Su, X. Zhu and W. Sibbett, *J. Opt. Soc. Am.* **B10**, 1050(1993)
110. J. Paye and D. Hulin, *J. Opt. Soc. Am.* **B10**, 2371(1993)