



第六章 非线性光学



本章主要内容:

1 二阶非线性光学

2 三阶非线性光学

光学克尔效应

二波混频

四波混频

3 非线性波方程

4 三波混频的耦合波理论

二次谐波的产生

频率转换

参量放大和参量振荡

5 四波混频的耦合波理论



§ 6-1 引言

按照光的电磁波理论，光波是具有电场和磁场的一种电磁波，电场和磁场的时空变化规律由麦克斯韦方程组描述。电场和磁场通过相互感应形成在真空中传播的电磁波，其传播速度为 $c = 1/\sqrt{\mu_0\epsilon_0}$ 。

光进入介质后，光波中的电场和磁场将引起介质的极化和磁化，发生光与介质的相互作用，如果将介质看作是电偶极子的集合，那么在光波电场的作用下，电偶极子将以光频振荡，并辐射出次波。合成的次波形成介质中的光波，其速度 $v = c/n$ 。依赖于介质的折射率 n 。

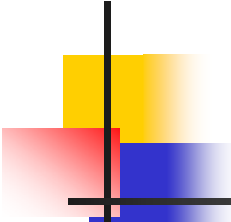


在激光问世之前，光学介质被认为是线性的。即：

(1) 波速 v ，折射率 n 及吸收系数 α 与光频和传播方向有关，而与光强无关；

(2) 光波的叠加原理成立。波的叠加原理指出，当介质中同时存在两个以上的光扰动时、各个光扰动的作用是独立的；

(3) 光通过线性光学介质后，光的频率不发生变化，改变的仅仅是光的波长 $\lambda = \lambda_0/n$ 。



自1960年激光问世以来，出现了高光强、高单色性的相干光。激光在介质中传播时，将引起显著的非线性光学效应。1961年，用694.3nm的激光聚焦在石英晶片上，使输出光中出现347.15nm的二倍频光，从此开创了非线性光学时代。

在所谓非线性光学介质中，介质的折射率 n 和吸收系数 α 依赖于光强；

波的叠加原理不再成立，光通过非线性介质后的频率可以发生变化；

在非线性光学介质中，光波可以控制光，即某一光场可以与其它光场发生相互作用，也可以与自身发生作用。

为什么会发生这些非线性光学现象呢？按照介质的偶极子模型，如果引起极化的光场强度远小于原子的内电场强度，极化可看作是线性的，即 $\mathbf{P} = \epsilon_0 \chi \mathbf{E}$ 成立。然而当光场强度接近原子的内电场时，介质的极化强度应由光场的泰勒级数展开式表示，即

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

对于各向同性介质，上式具有标量形式：

$$P = \epsilon_0 \chi^{(1)} E + \epsilon_0 \chi^{(2)} E^2 + \epsilon_0 \chi^{(3)} E^3 + \dots = P_L + P_{NL}$$

上两式中的第一项是线性极化项，描述线性光学现象；

其他项是非线性极化项，描述非线性光学现象。

它们是描述非线性光学介质的基本方程。



对介质方程的说明:

(1) 如果将极化强度 P 看作是介质对光场 E 的响应函数, 那么以上两方程是描述介质对光场瞬态响应的关系式, 即 t 时刻的光场 $E(t)$ 引起 t 时刻的极化 $P(t)$ 。这种对光场作出瞬时响应的介质称**非色散介质**。

若介质的极化率是频率的函数, 这种介质称**色散介质**。

(2) 介质的非线性光学性质不仅取决于入射光的光强, 还与光场的相干性密切相关。

(3) 介质方程是将光学介质看作为电偶极子集合这样一个模型给出的。它描述了偶极子极化对光场的非线性响应, 然而它也可作为描述更一般非线性光学介质的方程。

§ 6-2 二阶非线性光学

为了简化讨论，我们以各向同性非线性光学介质作为讨论的主要对象。

在光场作用下，各向同性的非线性光学介质的极化强度包含线性极化和非线性极化两部分，即

$$P = P_L + P_{NL}$$

将其代入到麦克斯韦波方程

$$\nabla^2 E - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} = \mu_0 \frac{\partial^2 P}{\partial t^2}$$

得

$$\nabla^2 E - \frac{1}{v^2} \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} = \mu_0 \frac{\partial^2 P_{NL}}{\partial t^2}$$

标量波方程。

起着波源的作用，由它

可导致各种非线性光学现象，

讨论:

(1) 如果忽略非线性极化强度中 $\chi^{(3)}$ 以上的高阶项, 那么介质的非线性光学性质主要由 $P_{NL}^{(2)} = \epsilon_0 \chi^{(2)} E^2$ 决定, 假定入射光是频率为 ω 的单色光

$$E(t) = \frac{1}{2} E(\omega) \exp(i\omega t) + c.c.$$

二阶非线性极化强度 $P_{NL}^{(2)}$ 可表示为:

$$\begin{aligned} P_{NL}^{(2)}(t) &= \epsilon_0 \chi^{(2)} E^2(t) = 2 \times \frac{1}{2^2} \epsilon_0 \chi^{(2)} E(\omega) E^*(\omega) \\ &+ \frac{1}{2^2} \epsilon_0 \chi^{(2)} E^2(\omega) \exp(i2\omega t) + c.c. \\ &= \boxed{P_{NL}^{(2)}(\omega = 0)} + \boxed{\frac{1}{2} P_{NL}^{(2)}(2\omega)} \exp(i2\omega t) + c.c. \end{aligned}$$

与频率无关的直流成份, 描述光学整流效应。

描述二次谐波的产生, 作为波源将辐射出频率为 2ω 的光。

(2) 如果电场是由频率为 ω 的光场和频率为 0 的直流电场组成, 即

$$E(t) = E(0) + \frac{1}{2} E(\omega) \exp(i\omega t) + c.c.$$

那么二阶非线性极化强度为

直流成份

$$P_{NL}^{(2)}(t) = \epsilon_0 \chi^{(2)} E^2(t) = \epsilon_0 \chi^{(2)} E^2(0) + 2 \times \frac{1}{2} \epsilon_0 \chi^{(2)} E(\omega) E^*(\omega)$$

$$+ 2 \times \frac{1}{2} \epsilon_0 \chi^{(2)} E(0) E(\omega) \exp(i\omega t) + c.c.$$

形式上等同

$$+ \frac{1}{2} \epsilon_0 \chi^{(2)} E^2(\omega) \exp(i2\omega t) + c.c.$$

于线性极化

因为 $P_{NL}^{(2)}(\omega)$ 正比于光场 $E(\omega)$, 但比例系数中含有偏置直流电场量 $E(0)$ 。通过控制 $E(0)$ 可放大入射光。

(3) 如果入射光场是频率分别为 ω_1 和 ω_2 的两列平面单色波。它们的波矢分别为 k_1 和 k_2 ，即

$$E(t) = \frac{1}{2} E_1(\omega_1) \exp(i\omega_1 t) + c.c. + \frac{1}{2} E_2(\omega_2) \exp(i\omega_2 t) + c.c.$$

那么介质中的二阶非线性极化强度为

$$P_{NL}^{(2)}(t) = 2 \cdot \frac{1}{2^2} \epsilon_0 \chi^{(2)} [|E_1(\omega_1)|^2 + |E_2(\omega_2)|^2]$$

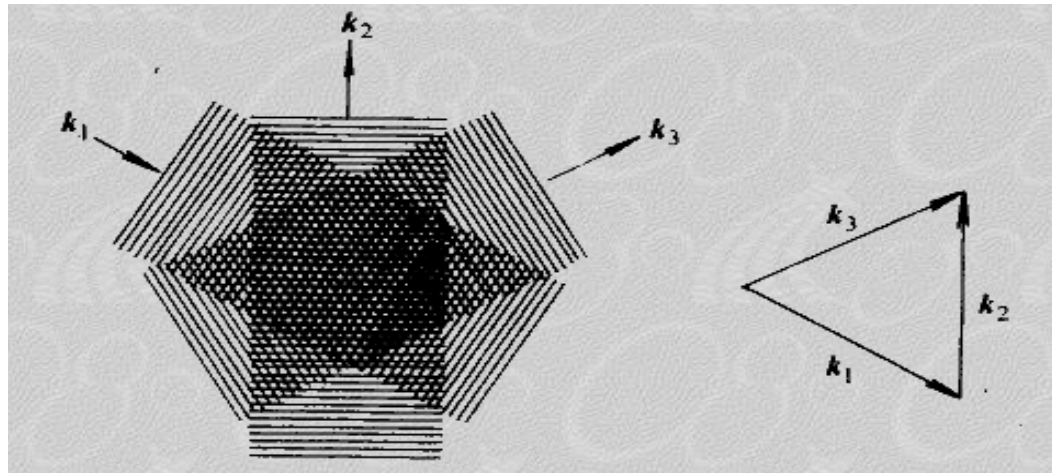
$$+ \frac{1}{2^2} \epsilon_0 \chi^{(2)} [E_1^2(\omega_1) \exp(i2\omega_1 t) + c.c. + E_2^2(\omega_2) \exp(i2\omega_2 t) + c.c.] + 2 \cdot \frac{1}{2^2} \epsilon_0 \chi^{(2)}$$

$$\cdot \{ E_1(\omega_1) E_2(\omega_2) \exp[i(\omega_1 + \omega_2)t] + c.c. + E_1(\omega_1) E_2^*(\omega_2) \exp[i(\omega_1 - \omega_2)t] + c.c. \}$$

↓
增加的项

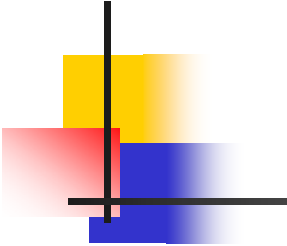
这表明。当频率为 ω_1 和 ω_2 的二列光通过二阶非线性光学介质时，将会产生频率为 $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ 的和频或差频光，但还要满足相应的波矢关系。

对于和频光的波矢关系是 $k_3 = k_1 + k_2$ (其中 k_1 和 k_2 是两列入射光的波矢)。这一关系又称**相位匹配关系**。



如果这三列波沿同一方向传播，则相位匹配关系为：

$$n_3 \omega_3 / c = n_1 \omega_1 / c + n_2 \omega_2 / c$$



一旦由非线性极化 $P_{NL}^{(2)}(\omega_3 = \omega_1 \pm \omega_2)$ 产生出频率为 ω_3 的光，那么 ω_3 与 ω_1 的光， ω_3 与 ω_2 的光也将在介质中类似地激发相应的二阶非线性极化 $P_{NL}^{(2)}(\omega_2 = \omega_3 - \omega_1)$ 和 $P_{NL}^{(2)}(\omega_1 = \omega_3 - \omega_2)$ ；

它们分别辐射出 $\omega_1 = \omega_3 - \omega_2$ 和 $\omega_2 = \omega_3 - \omega_1$ 的光，并满足同样的相位匹配关系，它们与原入射光 ω_1 和 ω_2 分别发生相干叠加，在介质中形成三波耦合，又称之为**三波混频**。

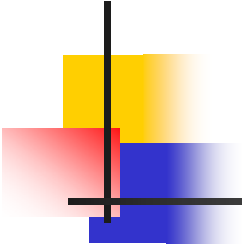


三波混频是参量作用过程。

在参量作用中，按照输入光波和输出光波的频率关系分为频率上转换和频率下转换、参量放大和参量振荡。

如果频率 ω_1 和 ω_2 的入射光，通过介质产生出高频光 $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ ，则称频率上转换；

若 ω_3 和 ω_1 的入射光，通过介质产生低频光 $\omega_2 = \omega_3 - \omega_1$ ，则称频率下转换。



如果泵浦光 ω_1 与信号光 ω_2 同时输入，输出光中不仅使信号光(ω_2)得到放大，同时还产生出空闲波 $\omega_1 = \omega_3 - \omega_2$ ，这称为参量放大。

如果进一步对这种参量放大器提供适当的正反馈，那么仅在一束泵浦光的照射下，也会产生出 ω_1 和 ω_2 的光，这称为参量振荡。



§ 6-3 三阶非线性光学

当光学介质只有中心对称性时，二阶非线性极化不再出现。这是由于在反演操作下，矢量 $\mathbf{P}_{NL}^{(2)}$ ， \mathbf{E} 改变符号，而中心对称性又要求介质的性质（如极化强度）不发生变化，这只能是 $\chi^{(2)} = 0$ 。对于具有中心对称性的介质，其非线性极化由三阶项描述：

$$\mathbf{P}_{NL}^{(3)} = \epsilon_0 \chi^{(3)} \mathbf{E}^3$$

这样的介质称为三阶非线性光学介质。

§ 6-3-1 光学克尔效应

考虑频率为 ω 的单色光

$$E(t) = \frac{1}{2} E(\omega) \exp(i\omega t) + c.c.$$

入射在三阶非线性光学介质中，将引起三阶非线性极化：

描述光学克尔效应

$$P_{NL}^{(3)}(t) = \epsilon_0 \chi^{(3)} E^3(t) = \frac{3}{2^3} \epsilon_0 \chi^{(3)} |E(\omega)|^2 E(\omega) \exp(i\omega t) + c.c.$$

负责二次谐波的产生

$$+ \frac{1}{2^3} \epsilon_0 \chi^{(3)} E^3(\omega) \exp(i3\omega t) + c.c.$$

在二次电光效应中，人们把正比于外电场平方的折射率变化称为**克尔效应**，所以将正比于光强的折射率变化称为**光克尔效应**。这种效应是光的一种自感应现象，光的相速度自洽地受自身光强所调制，从而显示出各种有趣的非线性光学现象。

(1) 自相位调制

一束光通过光克尔介质时，将引起光感应折射率变化 $\Delta n = n_2 I$ ，这将导致光波在传播过程中的附加相移

$$\Delta\varphi = 2\pi \frac{\Delta n L}{\lambda} = 2\pi \frac{n_2 L I}{\lambda} = 2\pi n_2 \frac{PL}{\lambda A}$$

式中P是光功率，A是光束截面，L是光传播的距离， λ 是真空波长。上式指出，光波相位变化正比于自身的光功率，因此称之为自相位调制。

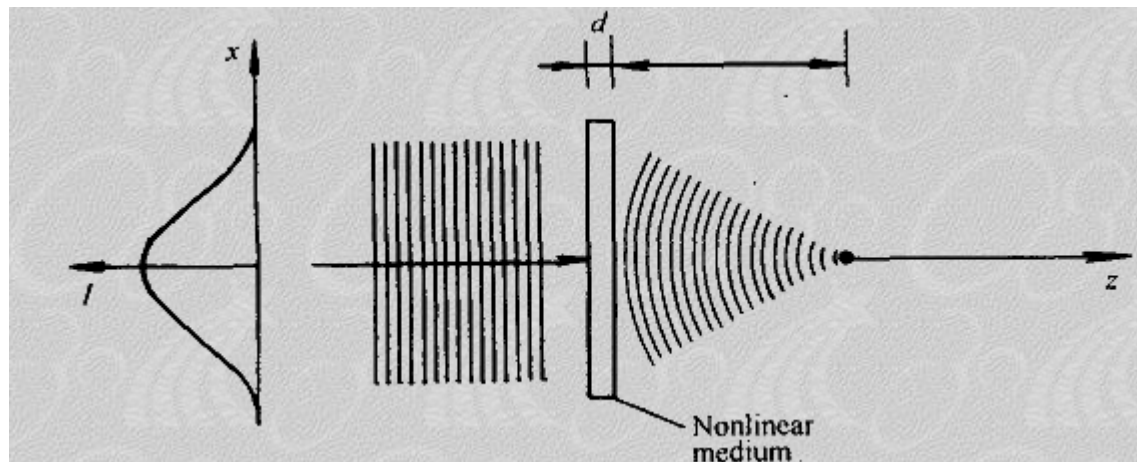
亦可写成：

$$\Delta\varphi = 2\pi n_2 \frac{PL}{\lambda A} = \frac{3\eta_0 LP}{2n^2 \lambda A} (\chi' + i\chi'')$$

其中实部引起相位的变化，而虚部将产生增益 $e^{\gamma L}$

(2) 自聚焦

在三阶非线性光学介质中，与自相位调制相关的另一种非线性光学现象是光强的自聚焦。当光束具有横向分布的光强（如高斯光束）通过三阶非线性光学介质时，由于光学克尔效应将引起折射率正比光强分布的变化。对于 $n_2 > 0$ 在光束截面的中央区域感应出高于周边的折射率，形成折射率的梯度分布。其作用如同一块正透镜将平面波前的光波变换成球面波前的波，并会聚于一点，如图所示。

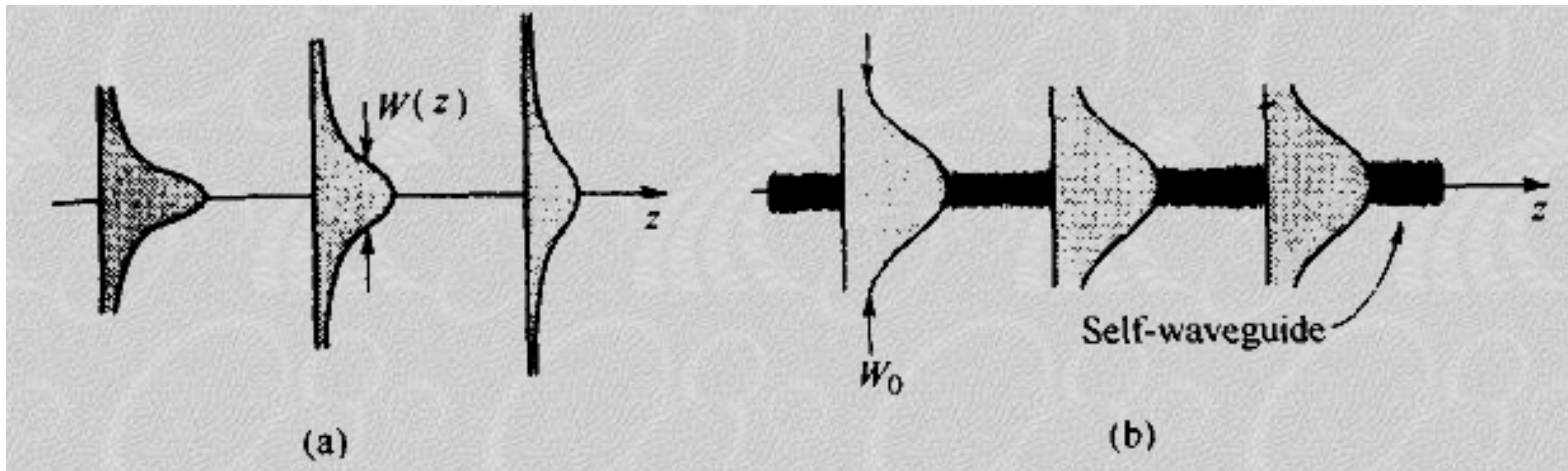




(3) 光学空间孤子

与光学自聚焦效应密切相关的另一种非线性光学现象是**光学空间孤子**。

当一束光强具有横向分布的光通过一定厚度、均匀的三阶非线性光学介质时，光学克尔效应将引起介质折射率的梯度变化。折射率的这种梯度分布使介质成为自波导器件，将光束自陷在自感应的波导中。如果光束的横向衍射效应正好被这种自陷效应处处所补偿，光波作为介质中的模将保持其形状不变，无衍射地传播，如图所示。



(a)在线性介质中的衍射；

(b)在三阶非线性介质中的自波导光束 - 空间孤子

这种自陷光束又称空间光学孤子。

§ 6-3-2 二波混频

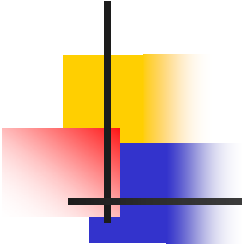
频率分别为 ω_1 和 ω_2 、波矢分别为 k_1 和 k_2 的两列平面波

$$E(t) = \frac{1}{2} E_1(\omega_1) \exp(i\omega_1 t) + c.c. + \frac{1}{2} E_2(\omega_2) \exp(i\omega_2 t) + c.c.$$

同时入射在三阶非线性光学介质中，在介质中将引起三阶非线性极化 $P_{NL}^{(3)}(t) = \epsilon_0 \chi^{(3)} E^3(t)$ 。它包含有64项，其中

$$P_{NL}^{(3)}(3\omega_j) = \frac{1}{2^2} \epsilon_0 \chi^{(3)} E^3(\omega_j) \quad (j = 1, 2)$$

描述**二次谐波的产生**。它指出当频率为 ω_j 的单色光通过介质时，会产生出三倍频 $(3\omega_j)$ 的输出光；其中


$$P_{NL}^{(3)}(\omega_i) = \frac{6}{4} \epsilon_0 \chi^{(3)} |E(\omega_j)|^2 E(\omega_i) \quad (i, j = 1, 2)$$

将引起二波混频作用。

令

$$\chi^{(3)} = \chi' + i\chi''$$

其实部将引起二波相位耦合；

虚部将导致二波的振幅耦合。

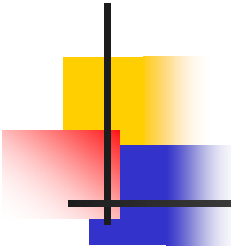
§ 6-3-3 四波混频

三列不同频率的光在三阶非线性光学介质中传播，并不发生相互耦合，除非有第四列波也同时存在。考虑频率分别为 ω_1, ω_2 和 ω_3 的三列波

$$E(t) = \frac{1}{2} E_1(\omega_1) \exp(i\omega_1 t) + c.c. + \frac{1}{2} E_2(\omega_2) \exp(i\omega_2 t) + c.c. \\ + \frac{1}{2} E_3(\omega_3) \exp(i\omega_3 t) + c.c. = \sum_{q=\pm 1, \pm 2, \pm 3} \frac{1}{2} E(\omega_q) \exp(i\omega_q t)$$

其中

$$\omega_{-q} = -\omega_q, E(-\omega_q) = E^*(\omega_q)$$



当它们入射在三阶非线性光学介质上时，其三阶非线性极化：

$$P_{NL}^{(3)}(t) = \frac{1}{8} \epsilon_0 \chi^{(3)} \sum_{q,r,l=\pm 1,\pm 2,\pm 3} E(\omega_q) E(\omega_r) E(\omega_l) \exp[i(\omega_q + \omega_r + \omega_l)t]$$

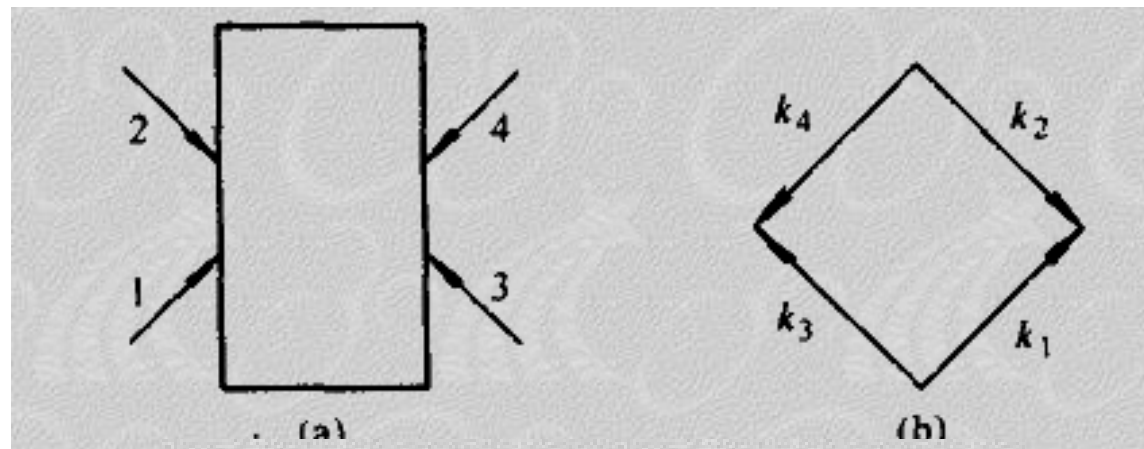
共包含216项，其中 $P_{NL}^{(3)}(\omega_4 = \omega_2 + \omega_3 - \omega_1)$ 分量含有六项，即

$$P_{NL}^{(3)}(\omega_4 = \omega_2 + \omega_3 - \omega_1) = \frac{6}{4} \epsilon_0 \chi^{(3)} E(\omega_2) E(\omega_3) E^*(\omega_1)$$

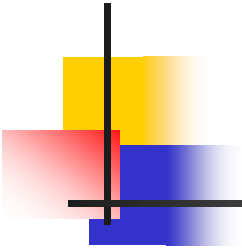
它将产生**第四列光波**

$$E(\omega_4) \propto E(\omega_2) E(\omega_3) E^*(\omega_1)$$

背向四波混频组态是一种形式简单，又有实际应用价值的四波混频形式，由它可方便地产生出信号光的相位共扼波。如果四列波的频率相同，其波矢又满足 $k_2 = -k_3$, $k_4 = -k_1$ ，那么这种四波混频称为**简并背向四波混频**。



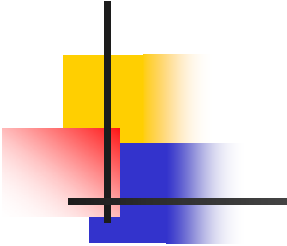
(a) 背向四波混频；(b) 相位匹配条件



由 $P_{NL}^{(3)}(\omega_4 = \omega_2 + \omega_3 - \omega_1)$ 产生出频率为 ω_4 的光场

$$E_4(\mathbf{r}) \propto E_2 E_3 E_1^*(\mathbf{r})$$

可见如果2、3光束是平面波，1是信号光，那么由背向四波混频组态所产生的第四列波4是信号光1的相位共轭波。因为波4的复振幅 E_4 正比于信号光 E_1 的复共轭。



设一列沿z方向传播的单色光波，其波场为

$$\begin{aligned} E(\mathbf{r}, t) &= A(\mathbf{r}) \exp[i(\omega t - kz)] + c.c. \\ &= \text{Re} \{ \boxed{A(\mathbf{r})} \exp[i(\omega t - kz)] \} \end{aligned}$$

↓
波场的复振幅，是空间缓慢变化部分

因此上式可看作是平面波的近似表示。

其中复振幅 $A(\mathbf{r})$ 描述了与平面波的偏离。这可能是由于波在传播过程中的畸变、传播中的衍射也可能是由于光束中携带了空间信息，总之复振幅含有振幅、相位和偏振诸信息。



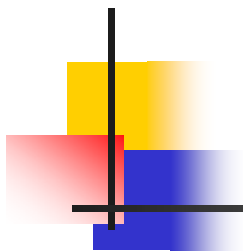
一列波的相位共扼波定义为

$$E_{pc}(\mathbf{r}, t) = \text{Re} \{ \mathbf{A}^*(\mathbf{r}) \exp[i(\omega t + kz)] \}$$

比较不难看出，原波的相位共扼波 $E_{cp}(\mathbf{r}, t)$ 是保留时间因子不变、将空间部分取复共扼的产物。

又由于任一复函数的实部与其复共扼的实部相同，因此上式还可写为

$$\begin{aligned} E_{pc}(\mathbf{r}, t) &= \text{Re} \{ \mathbf{A}^*(\mathbf{r}) \exp[i(\omega t + kz)] \}^* \\ &= \text{Re} \{ \mathbf{A}(\mathbf{r}) \exp[-i(\omega t + kz)] \} \end{aligned}$$



可知相位共轭波也是原光波的时间反演、空间部分保持不变的结果，即

$$E_{pc}(\mathbf{r}, t) = E(\mathbf{r}, -t)$$

因此相位共轭波是原始光波的时间反演再现。这个性质在实时畸变修复中具有重要的意义。



§ 6-4 非线性波方程

我们将从电磁场的麦克斯韦方程出发，借助非线性光学介质的物质方程，给出波在介质中传播的非线性波方程。并在振幅慢变化近似下，导出描述非线性光学现象的耦合波方程。



非线性光学介质由如下物质方程描述

$$\mathbf{D} = \epsilon_0 \mathbf{E} + \mathbf{P} = \epsilon_0 \mathbf{E} + \mathbf{P}_L + \mathbf{P}_{NL} = \epsilon_0 \epsilon_1 \mathbf{E} + \mathbf{P}_{NL} = \epsilon \mathbf{E} + \mathbf{P}_{NL}$$

$$\mathbf{B} = \mu_0 \mathbf{H} \text{ (非磁性介质)}$$

按照电磁场的麦克斯韦方程组，通过如下运算

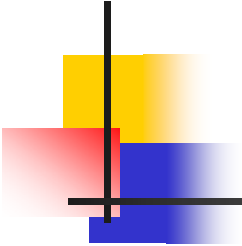
$$\begin{aligned} \nabla \times \left(\nabla \times \mathbf{E} = -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} = -\mu_0 \frac{\partial \mathbf{H}}{\partial t} \right) &= -\mu_0 \frac{\partial}{\partial t} \left(\nabla \times \mathbf{H} = \mathbf{J} + \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t} \right) \\ &= -\mu_0 \frac{\partial}{\partial t} \left(\sigma \mathbf{E} + \frac{\partial(\epsilon \mathbf{E})}{\partial t} + \mu_0 \frac{\partial \mathbf{P}_{NL}}{\partial t} \right) \end{aligned}$$

给出

$$\nabla \times (\nabla \times \mathbf{E}) + \mu_0 \sigma \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} + \mu_0 \frac{\partial^2(\epsilon \mathbf{E})}{\partial t^2} = \boxed{-\mu_0 \frac{\partial^2 \mathbf{P}_{NL}}{\partial t^2}}$$

→ 非线性麦克斯韦波方程

↓
作为驱动项，起着新波源的作用。



如果 $P_{NL}(t)$ 随时间以指数函数 $\exp(i\omega t)$ 形式变化. 那么稳态光场 $E(\mathbf{r})$ 也将以 $\exp(i\omega t)$ 形式变化, 故可将方程中时间因子消去, 成为

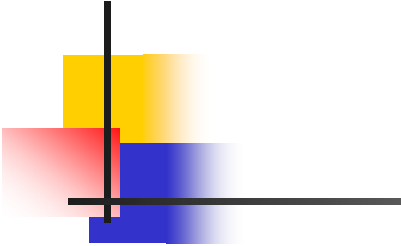
$$\nabla \times (\nabla \times \mathbf{E}) + i\omega\mu_0\sigma\mathbf{E} - \mu_0\epsilon\omega^2\mathbf{E} = \mu_0\omega^2\mathbf{P}_{NL}$$

-----约化波方程或稳态波方程。

对于各向同性均匀光学介质, 方程可化简为:

$$\nabla^2\mathbf{E} - \mu_0\sigma\frac{\partial\mathbf{E}}{\partial t} - \mu_0\epsilon\frac{\partial^2\mathbf{E}}{\partial t^2} = \mu_0\frac{\partial^2\mathbf{P}_{NL}}{\partial t^2}$$

-----标量波方程:



利用

$$\mu_0 \epsilon \omega^2 = k^2, \quad i\omega\mu_0\sigma = ik \sqrt{\frac{\mu_0}{\epsilon}} \sigma = i2k\alpha$$

$$\left(\alpha = \frac{\sigma}{2} \sqrt{\frac{\mu_0}{\epsilon}} = \frac{\sigma}{2n} \eta_0 \right)$$

约化波方程化简为:

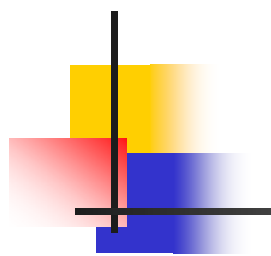
$$\nabla^2 E - i2k\alpha E + k^2 E = -\mu_0 \omega^2 P_{NL}$$

如果光波是沿z方向传播的单色波, 复振幅表为

$$E = A(z) \exp(-ikz)$$

这意味着光场由沿z方向的快变化 $\exp(ikz)$ 和慢变化 $A(z)$

两个因子组成。将其代入上式后, $\nabla^2 E$ 为



可忽略

$$\frac{d^2}{dz^2} [A(z) \exp(-ikz)] = \left(\frac{d^2 A}{dz^2} - i2k \frac{dA}{dz} - k^2 A \right) \exp(-ikz)$$

如果在一个波长范围内，振幅A(z)的变化很小，则如下关系成立：

$$\left| \frac{d^2 A}{dz^2} \right| \ll k \left| \frac{dA}{dz} \right| \ll k^2 A$$

故上式化简为：

$$i2k \frac{dA}{dz} + i2k\alpha E = \mu_0 \omega^2 P_{NL} \exp(ikz)$$

————→ 振幅慢变化近似下的非线性标量波方程 (1)

以上内容仅为本文档的试下载部分，为可阅读页数的一半内容。如要下载或阅读全文，请访问：<https://d.book118.com/166133124115010242>