



## 几种三阶非线性光学效应

### 二阶非线性光学效应特点：

- (1) 只在非中心对称的介质中才能发生
- (2) 二阶非线性过程中介质和光场之间没有能量交换

### 三阶非线性极化效应特点：

- (1) 可以发生在任何介质中
- (2) 既有如三次谐波和四波混频等与介质无能量交换的混频效应；也有伴随能量交换的非参量过程：双光子吸收、受激拉曼散射和受激布里渊散射等效应。





### 2. 光克尔效应

假定频率为 $\omega$ 的光电场作用于介质的同时，还有另一束任意频率为 $\omega'$ 的光电场作用于该介质，则由于 $\omega'$ 光电场的作用，会使介质对 $\omega$ 光波的作用有所改变。通过三阶非线性极化效应，将产生与频率为 $\omega'$ 光电场平方有关的三阶非线性极化强度的复振幅  $P^{(3)}(\omega)$  为

$$P^{(3)}(\omega) = 6\epsilon_0\chi^{(3)}(\omega, \omega', -\omega') : E(\omega)E(\omega')E^*(\omega') \quad (5.1 - 3)$$

光克尔效应的大小可以用克尔常数量度。对各向同性介质，克尔常数定义为





$$K_{\omega'}(\omega) = \frac{\Delta n_{//}(\omega) - \Delta n_{\perp}(\omega)}{\lambda E_0^2(\omega')} \quad (5.1 - 4)$$

其中  $\Delta n_{//}(\omega)$  和  $\Delta n_{\perp}(\omega)$  分别是频率为  $\omega$  的信号光感受到的与频率为  $\omega'$  光场偏振方向平行和垂直的折射率改变量。

假定频率为  $\omega$  的光波沿  $z$  方向传播, 由(5.1 - 3)式可得

$$P^{(3)}(\omega) = 6\varepsilon_0 \chi^{(3)}(\omega, \omega', -\omega') : \vec{a}(\omega) \vec{a}(\omega') \vec{a}(\omega') \\ \times E(\omega) |E(\omega')|^2 e^{ikz} \quad (5.1 - 5)$$

假定频率为  $\omega'$  的光电场在  $y$  方向偏振,





$$P_x^{(3)}(\omega) = \frac{3}{2} \varepsilon_0 E_0^2(\omega') \chi_{xxyy}^{(3)}(\omega, \omega', -\omega') a_x(\omega) E(\omega) e^{ikz} \quad (5.1-7a)$$

$$P_y^{(3)}(\omega) = \frac{3}{2} \varepsilon_0 E_0^2(\omega') \chi_{yyyy}^{(3)}(\omega, \omega', -\omega') a_y(\omega) E(\omega) e^{ikz} \quad (5.1-7b)$$

将(5.1-7)式代入基本方程(3.3-23)式,可以得到与频率为 $\omega'$ 的光波偏振方向相同的光电场方程

$$\begin{aligned} \frac{dE(\omega, z)}{dz} &= \frac{i\omega^2 \mu_0}{2k} \vec{a}(\omega) \bullet P^{(3)}(\omega) e^{-ikz} \\ &= \frac{i\omega^2 \mu_0}{2k} P_y^{(3)}(\omega) e^{-ikz} \\ &= \frac{3}{4} \frac{i\varepsilon_0 \mu_0 \omega^2}{k} E_0^2(\omega') E(\omega) \chi_{yyyy}^{(3)}(\omega, \omega', -\omega') \end{aligned} \quad (5.1-8)$$





在假定 $E_0(\omega)$ 不变的情况下，有

$$E(\omega, z) \propto e^{i\frac{\omega}{c}[\frac{3i\varepsilon_0\mu_0\omega^2}{4k}E_0^2(\omega')\chi_{yyyy}^{(3)}(\omega, \omega', -\omega')]z} \quad (5.1-9)$$

上式指数因子中括号内的量是折射率的变化量，记为 $\Delta n_{//}(\omega)$ ，

$$\Delta n_{//}(\omega) = \frac{3i\varepsilon_0\mu_0\omega^2}{4k}E_0^2(\omega')\chi_{yyyy}^{(3)}(\omega, \omega', -\omega') \quad (5.1-10)$$

同理，对于偏振方向与频率为 $\omega'$ 的光波垂直的光电场，有

$$\Delta n_{\perp}(\omega) = \frac{3i\varepsilon_0\mu_0\omega^2}{4k}E_0^2(\omega')\chi_{xxyy}^{(3)}(\omega, \omega', -\omega') \quad (5.1-12)$$

可见，折射率变化与光电场平方成正比。将(5.1-12)和(5.1-10)式代入(5.1-4)式，可以得到





$$K_{\omega'}(\omega) = \frac{3\omega}{8\pi c} [\chi_{yyyy}^{(3)}(\omega, \omega', -\omega') - \chi_{xxyy}^{(3)}(\omega, \omega', -\omega')] \quad (5.1-13)$$

当频率为 $\omega$ 的光电场作用于各向同性介质时，介质由于光克尔效应变成各向异性介质，与外加光场 $E$ 平行和垂直的光波通过介质时，产生的相位差为

$$\Delta\varphi = \frac{2\pi}{\lambda} (\Delta n_{//} - \Delta n_{\perp}) l \quad (5.1-14)$$

因为 $\Delta n$ 与泵浦光场强度的平方成正比，所以位相差 $\Delta\varphi$ 可以通过改变泵浦光强调节，结果使得线偏振的探测光偏振旋转（或变为椭圆偏光）。因此，可以用与入射探测光束的偏振正交的检偏器来测出这种相差。





所测定的克尔信号强度，

$$I_s \propto I_0 \sin^2(\delta\phi / 2) \quad (1.7)$$

$I_0$  为探测光的入射光强。

由上式可知，通过克尔信号的测量可以推算出  $\delta\phi$ ，从而推算出  $\delta n_1$ 。





## ●光克尔效应---超快全光开关

在克尔效应装置中，用超短脉冲的泵浦光控制探测光的透过率，实现探测光的“开”和“关”。

开关处于关闭状态：无泵浦光时，探测光为低透过，

开关处于开启状态：有泵浦光时，泵浦光脉冲  $\rightarrow$  光致双折射  $\delta n \rightarrow$  探测光的x和y分量的相位差变化  $\delta\phi \rightarrow$  探测光的透过率变化  $\Delta T$ 。

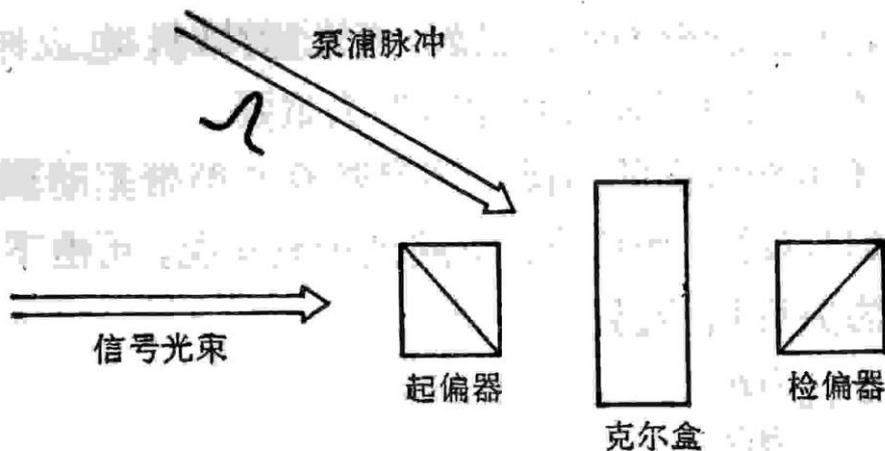


图 16.3 用作快速光闸的光克尔盒。

## • 非线性材料 $\chi^{(3)}$ 的测量





引起光束自聚焦的光致折射率变化的物理机制主要有：

(1) 原子和分子内电子云的畸变（响应时间小于 $10^{-13}\text{s}$ ）：强光场使组成介质的分子或原子中的电子分布发生变化，这导致介质宏观电极化的变化，从而使折射率发生变化。

(2) 与极性分子取向有关的高频克尔效应(响应时间 $10^{-11}$ - $10^{-12}\text{s}$ )：对含有各向异性分子的液体（如 $\text{CS}_2$ 、苯及其衍生物）来说，与分子取向有关的高频克尔效应是引起折射率变化的主要原因。

(3) 电致伸缩效应（响应时间 $10^{-8}$  - $10^{-9}\text{s}$ ）：在强光场作用下的电致伸缩效应使介质密度发生起伏，从而引起折射率发生相应的变化。

(4) 热效应（响应时间 $1\sim 0.1\text{s}$ ）：由于各种介质对入射光束均存在着不同程度的吸收，导致介质温度升高，从而引起介质折射率变化。





## 5.2 三次谐波产生

### 5.2.1 平面波的三次谐波产生

设有一束频率为 $\omega$ 的线偏振光作用于非线性介质, 光波电场为

$$E(z, t) = E(\omega)e^{-i\omega t} + c.c. \quad (5.2 - 1)$$

式中, 复振幅 $E(\omega)$ 为

$$E(\omega) = E_0 a(\omega) e^{i\frac{\omega n_1}{c} z} \quad (5.2 - 2)$$

其中,  $E_0$ 、 $a(\omega)$ 和 $n_1$ 分别为入射基波的振幅、 振动方向的单位矢量和折射率。 由三阶非线性效应产生的三次谐波极化强度的复振幅为





$$P^{(3)}(3\omega, z) = \varepsilon_0 \chi^{(3)}(\omega, \omega, \omega) : E(\omega)E(\omega)E(\omega) \quad (5.2 - 3)$$

按(3.3 - 2 3)式, 三次谐波光电场满足的耦合波方程为

$$\frac{dE(3\omega, z)}{dz} = \frac{i(3\omega)^2 \mu_0}{2k_3} a(3\omega) \cdot P^{(3)}(3\omega, z) e^{-ik_3 z} \quad (5.2 - 4)$$

式中  $k_3 = 3\omega n_3 / c$ 。组合(5.2 - 2)式、(5.2 - 3)式和(5.2 - 4)式, 并令

$$\chi_{eff}^{(3)} = a(3\omega) \cdot \chi^{(3)}(\omega, \omega, \omega) : a(\omega)a(\omega)a(\omega) \quad (5.2 - 5)$$

$$\Delta k = \frac{3\omega}{c} (n_1 - n_3) \quad (5.2 - 6)$$





可得

$$\frac{dE(3\omega, z)}{dz} = \frac{3}{2} \frac{i\omega\mu_0\varepsilon_0 c}{n_3} \chi_{eff}^{(3)} E_0^3 e^{i\Delta kz} \quad (5.2 - 7)$$

在小信号近似情况下, 可得三次谐波光电场为

$$E(3\omega, z) = \frac{3}{2} \frac{i\omega\mu_0\varepsilon_0 c}{n_3} \chi_{eff}^{(3)} E_0^3 e^{i\frac{\Delta kz}{2}} \frac{\sin \frac{\Delta kz}{2}}{\frac{\Delta k}{2}} \quad (5.2 - 8)$$

三次谐波强度为

$$I_3(l) = \frac{(3\omega)^2}{16\varepsilon_0^2 c^4 n_1^3 n_3} |\chi_{eff}^{(3)}|^2 I_1^3(0) l^2 \frac{\sin^2 \frac{\Delta kl}{2}}{\left(\frac{\Delta kl}{2}\right)^2} \quad (5.2 - 9)$$

可见, 如果 $\Delta k \neq 0$ , 则  $E(3\omega, z)$  以正弦形式振荡。可见, 仅当满足相位匹配时 ( $\Delta k = 0$ ), 能够获得最大的三次谐波输出。





定义**相干长度**:

$$L_c = \pi / |\Delta k|$$

相应于相干长度  $L_c$  的介质长度，感应极化强度的相位和辐射的三次谐波光场的相位相差  $\pi$ 。

相干长度的物理意义：三次谐波产生长度第一次达到其最大值的路程长度，典型值为  $1 \sim 100 \mu\text{m}$ 。





## 5.3 四波混频

简并四波混频DFWM结构如图5.3 - 3 所示, 非线性介质是透明、无色散的一类克尔介质, 三阶非线性极化率是  $\chi^{(3)}$ 。

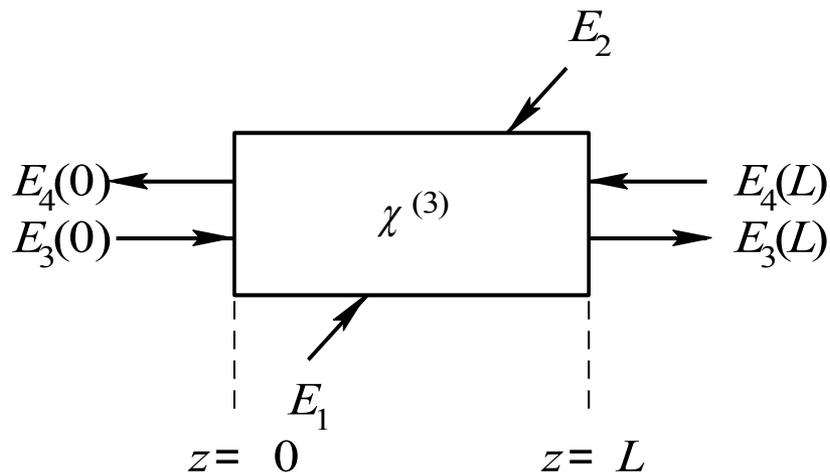


图5.3 - 3 简并四波混频结构示意图

在介质中相互作用的四个平面光波电场为

$$E_l(r, t) = E_l(r) e^{-(\omega t - k_l \cdot r)} + c.c. \quad l = 1, 2, 3, 4 \quad (5.3 - 3)$$





其中,  $E_1$ 、 $E_2$ 是彼此反向传播的泵浦光,  $E_3$ 、 $E_4$ 是彼此反向传播的信号光和散射光。一般情况下, 信号光和泵浦光的传播方向有一个夹角, 它们的波矢满足

$$\vec{k}_1 + \vec{k}_2 = \vec{k}_3 + \vec{k}_4 = 0 \quad (5.3-4)$$

如果这四个光波为同向线偏振光, 则可以根据非线性极化强度的一般关系, 得到相应于某一分量的感应非线性极化强度, 例如:

$$P_4(r, t) = \varepsilon_0 \chi^{(3)} \{ 3[2|E_1(r)|^2 + 2|E_2(r)|^2 + 2|E_3(r)|^2 + |E_4(r)|^2]E_4(r) + 6E_1(r)E_2(r)E_3^*(r) \} e^{-i(\omega t - k_4 \cdot r)} + c.c. \quad (5.3-5)$$





在考虑到慢变化振幅近似的条件下，介质中光电场复振幅的变化规律满足(3.3 - 23)式耦合波方程, 即

$$\frac{dE_l(r)}{dr_l} = \frac{i\mu_0\omega^2}{2k_i} a(\omega) \cdot P'_{NL}(\omega, r) e^{-ik_l \cdot r} \quad (5.3 - 6)$$

其中  $r_l$  是沿波矢方向上的距离。将非线性极化强度表示式代入该式可以得到非线性介质中的四个耦合波方程。

### 1) 小信号理论

如果介质中的四个光电场满足  $|E_1(r)|^2$ 、 $|E_2(r)|^2 \gg |E_3(r)|^2$ 、 $|E_4(r)|^2$ , 就可以忽略泵浦抽空效应。在这种情况下, 只需考虑  $E_3(r)$  和  $E_4(r)$  所满足的方程即可。假设  $E_3(r)$  和  $E_4(r)$  沿着  $z$  轴彼此相反方向传播, 相应的耦合波方程为



$$\left. \begin{aligned} \frac{dE_3(z)}{dz} &= \frac{i\mu_0\omega^2}{2k_3} \varepsilon_0 \chi^{(3)} \{6[|E_1|^2 + |E_2|^2]E_3(z) + 6E_1E_2E_4^*(z)\} \\ \frac{dE_4(z)}{dz} &= -\frac{i\mu_0\omega^2}{2k_4} \varepsilon_0 \chi^{(3)} \{6[|E_1|^2 + |E_2|^2]E_4(z) + 6E_1E_2E_3^*(z)\} \end{aligned} \right\} \quad (5.3 - 8)$$

因为非共振情况下，三阶极化率是实数，所以右边第一项仅影响光电场的相位因子，对能量的变化没有贡献，故可以定义

$$\left. \begin{aligned} E_3(z) &= E'_3(z) e^{\frac{i3\mu_0\varepsilon_0\omega^2}{k_3} \chi^{(3)} (|E_1|^2 + |E_2|^2) z} \\ E_4(z) &= E'_4(z) e^{\frac{i3\mu_0\varepsilon_0\omega^2}{k_3} \chi^{(3)} (|E_1|^2 + |E_2|^2) z} \end{aligned} \right\} \quad (5.3 - 9)$$





并可以得到 $E'_3(z)$ 和 $E'_4(z)$ 满足的方程。为了方便起见，在下面求解 $E'_3(z)$ 和 $E'_4(z)$ 的过程中，我们略去右上角的撇号，将 $E'_3(z)$ 和 $E'_4(z)$ 满足的方程改写为

$$\left. \begin{aligned} \frac{dE_3^*}{dz} &= igE_4(z) \\ \frac{dE_4}{dz} &= igE_3^*(z) \end{aligned} \right\} \quad (5.3-10)$$

式中

$$g^* = -\frac{1}{k} 3\mu_0 \varepsilon_0 \omega^2 \chi^{(3)} E_1 E_2 \quad (5.3-11)$$

在这里已考虑到 $k_3=k_4=k$ 。假设边界条件为

$$\left. \begin{aligned} E_3(z=0) &= E_{30} \\ E_4(z=L) &= 0 \end{aligned} \right\} \quad (5.3-12)$$





可以解得

$$\left. \begin{aligned} E_3(z) &= \frac{\cos[|g|(z-L)]}{\cos(|g|L)} E_{30} \\ E_4(z) &= i \frac{g^*}{|g|} \frac{\sin[|g|(z-L)]}{\cos(|g|L)} E_{30}^* \end{aligned} \right\} (5.3 - 13)$$

在两个端面上的输出光电场为

$$\left. \begin{aligned} E_3(L) &= \frac{1}{\cos(|g|L)} E_{30} \\ E_4(0) &= -i \frac{g^*}{|g|} \tan(|g|L) E_{30}^* \end{aligned} \right\} (5.3 - 14)$$





由此可以得到如下结论：

(1) 在输入面( $z=0$ )上，通过非线性作用产生的反射光场  $E_4(0)$  正比于入射光场  $E_3^*$ 。因此，反射光  $E_4(z<0)$  是入射光  $E_3(z<0)$  的背向相位共轭光。

(2) 若定义相位共轭（功率）反射率为

$$R = \frac{|E_4(z=0)|^2}{|E_3(z=0)|^2} \quad (5.3 - 15)$$

则由(5.3 - 14)式得到

$$R = \tan^2(|g|L) \quad (5.3 - 16)$$

在 $|g|L$ 较小的情况下，随着 $|g|L$ 增大， $R$ 也增大。如果介质长度一定，则 $|g|$ 越大， $R$ 也越大。 $g$ 的大小反映了泵浦光对散射光耦合的强弱。



(3) 由(5.3-16)式可见, 当 $|g|L \approx \pi/2$ 时,  $R \rightarrow \infty$ , 相应于振荡情况。在这种情况下,  $E_3$ 和 $E_4$ 在介质中的功率分布如图5.3-4所示。当  $(3\pi/4) > |g|L > (\pi/4)$  时,  $R > 1$ 。此时, 可以产生放大的反射光, 在介质中 $E_3$ 和 $E_4$ 的功率分布如图5.3 - 5所示。

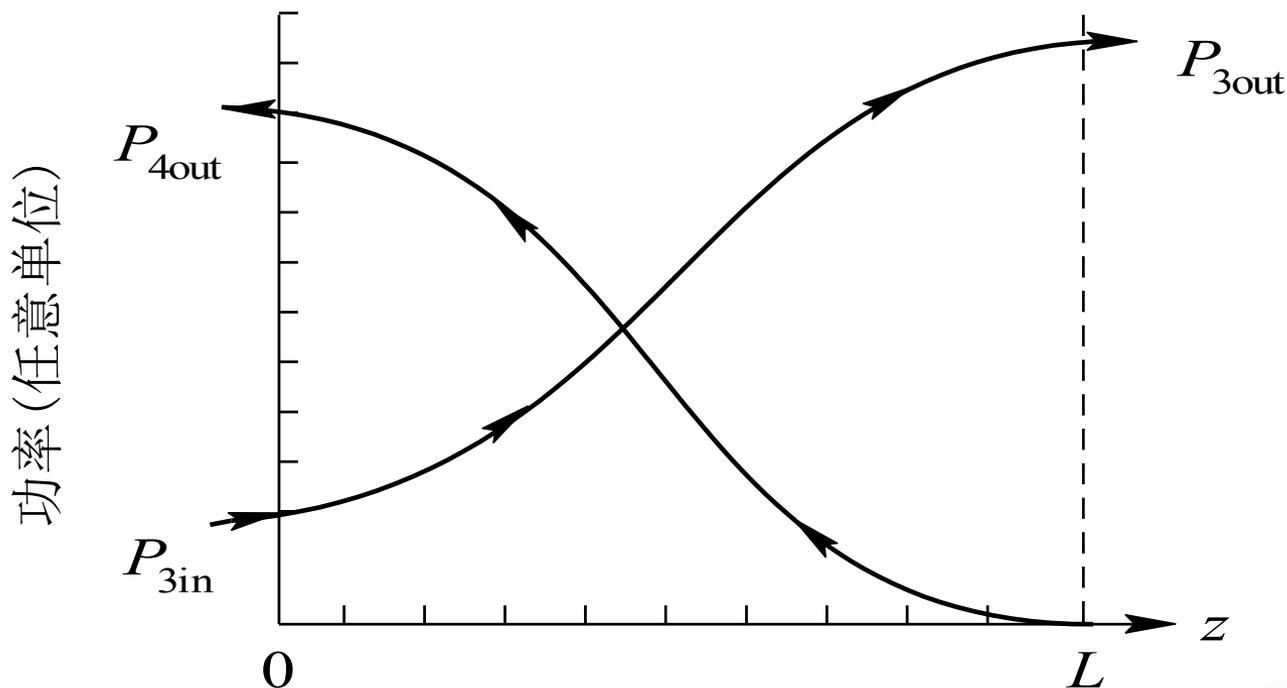


图5.3 - 5 DFWM的放大特性





## 5.4 双光子吸收

### 5.4.1 双光子吸收

#### 1. 双光子吸收现象

当用红宝石激光照射掺钕氟化钙晶体时，可以探测到相应于两倍红宝石激光频率跃迁的荧光，这种现象与介质同时吸收两个光子产生的效应有关。当频率为 $\omega_1$ 和 $\omega_2$ 的两束光通过非线性介质时，如果 $\omega_1+\omega_2$ 的接近介质的某一跃迁频率，就会发现两束光都衰减。这是因为介质同时从每一束光中各吸收一个光子，即同时吸收两个光子，这个现象称为**双光子吸收**。

双光子吸收和单光子吸收遵循不同的选择定则。





## 2. 双光子吸收的吸收系数

我们感兴趣的情况是 $\omega_1 + \omega_2$ 接近介质的某个跃迁频率 $\omega_0$ 。

描述双光子吸收方程为

$$\frac{dI_1}{dz} = -\omega_1 \gamma I_1 I_2$$

$$\frac{dI_2}{dz} = -\omega_2 \gamma I_1 I_2$$

其中 $I_1$ 和 $I_2$ 分别是频率为 $\omega_1$ 和 $\omega_2$ 的光束光强。双光子吸收系数 $\gamma$ 为

$$\gamma = \frac{8\pi^3 N}{\epsilon_1^{1/2} \epsilon_2^{1/2} c^2} |M_{fi}|^2 g(\hbar\Delta\omega)(\rho_i - \rho_f)$$





其中  $N$  为单位体积内的分子（原子）数， $M_{if}$  为双光子跃迁偶极距， $g$  为线性函数， $\rho$  为密度矩阵。

双光子吸收属于三阶非线性过程，双光子吸收系数  $\gamma$  与三阶非线性极化率  $\chi^{(3)}$  的虚部有关，

$$\gamma = \frac{8\pi^2}{\epsilon_1^{1/2} \epsilon_2^{1/2} c^2} \text{Im} \chi^{(3)}$$

当  $\omega_1 = \omega_2$  时，描述双光子吸收方程为

$$\frac{dI_1}{dz} = -\omega_1 \gamma I_1^2$$

其解为

$$I_1 = I_{10} / (1 + I_{10} \omega_1 \gamma z)$$

在弱吸收情况下，可简化成

$$I_1 = I_{10} (1 - I_{10} \omega_1 \gamma z)$$

