

# 非线性光学五十年<sup>1)</sup>

沈元壤<sup>†</sup>

(加州大学伯克利分校物理系 美国 伯克利 CA 94720)

**摘要** 文章简要回顾了非线性光学的诞生以及早期的发展,包括二次谐波,激光和频和差频现象,受激拉曼散射,以及激光的一些自作用行为等,介绍了非线性光学的一些重要研究成果和应用,包括非线性光谱学,位相共轭和自适应光学,相干非线性光学以及高次谐波等,最后对非线性光学当前和未来研究热点作了总结和展望。

**关键词** 非线性光学,非线性光谱学

## 50 years of nonlinear optics

SHEN Y. Ron<sup>†</sup>

(Department of Physics, University of California, Berkeley CA 94720, USA)

**Abstract** This article presents a brief introduction to the birth and early investigations of nonlinear optics, such as second harmonic generation, sum and difference frequency generation, stimulated Raman scattering, and self-action of light etc. Several important research achievements and applications of nonlinear optics are presented as well, including nonlinear optical spectroscopy, phase conjugation and adaptive optics, coherent nonlinear optics, and high-order harmonic generation. In the end, current and future research topics in nonlinear optics are summarized.

**Keywords** nonlinear optics, nonlinear optical spectroscopy

2011 年是非线性光学诞生 50 周年,世界各地都对此进行庆祝. 这里我简要回顾非线性光学的发展历史,介绍一些当前研究现状、热点,以及今后可能进一步研究的问题。

### 1 激光和非线性光学诞生

1958 年, Schawlow 和 Townes 指出激光可以在红外和可见光频段实现<sup>[1]</sup>. 在这篇文章发表之后,很多实验室立即开始竞争,去实现这一理想. 1960 年 5 月, Maiman 首先发现了红宝石激光器<sup>[2]</sup>(见图 1).

激光的发明,引导出很多新的学科,对我们今天的科学技术以及日常生活都产生了重大影响. 其中最重要的学科之一就是非线性光学,它对半个世纪以来科技的发展起了十分重要的作用. 激光的光场或电场可以很强. 激光与物质的非线性相互作用,可以从极化偶极矩的表达式  $\vec{p}(\vec{E}) = \vec{\alpha} \cdot \vec{E} + \vec{\alpha}^{(2)} : \vec{E}\vec{E} + \vec{\alpha}^{(3)} : \vec{E}\vec{E}\vec{E} + \dots$  中看出. 早年,微波和射频方面的研究已经证明,当电场很大的时候,会产生非线性现

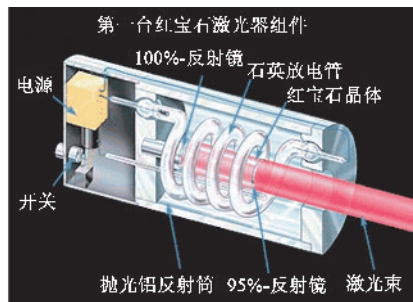


图 1 红宝石激光器的结构图

象,这是因为电场与物质相互作用时,如果电场很小,表达式中的非线性项可以忽略,产生的偶极子实际上与电场成正比(即线性效应),而当电场很大时,非线性项不能再被忽略,因而可以产生二次倍频、混频等现象,这在微波和射频的实验中得到证实. 我们

2011-12-13 收到

<sup>†</sup> Email: yanggz@aphy. iphy. ac. cn

1) 本文是王长涛和陶兴根据沈元壤先生 2011 年 9 月在中国科学院光电技术研究所访问时的学术报告“Celebrating 50 Years of Nonlinear Optics”整理成文,又经过杨国桢详细修正完成. 章节题目和部分文字根据报告内容添加

可以预测,当光电场达到近  $1\text{kV}/\text{cm}$  时,在光波波段也会产生类似的非线性现象。

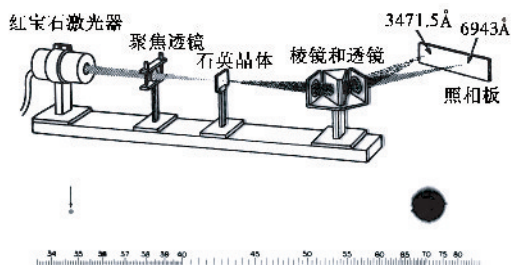


图2 红宝石激光器通过石英晶体和棱镜分光,发现二阶非线性光学现象<sup>[3]</sup>

红宝石激光器出现后,人们立即想到非线性光学现象可能被观察到.1961年, Franken 等用红宝石激光照射石英晶体,然后用棱镜光谱仪去分析透射的光.发现在光谱上除了基频信号外,还有一个很弱的二倍频的斑点,首次证实了二倍频的产生(见图2).当文章送给 *Physical Review Letters* 杂志发表时,杂志的印刷人员却以为光谱中的倍频斑点是个污点而将它抹去,因此抹掉了文章中二倍频产生的唯一证据,成为物理学上的一段趣事。

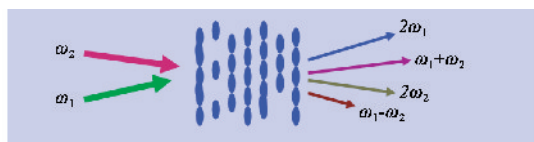


图3 非线性光学混频的示意图

哈佛大学的 Bloembergen 等人获悉 Franken 等的实验结果后,立即对一些基本的非线性光学问题作出了严格的理论分析,从而奠定了非线性光学的理论基础<sup>[4]</sup>. 该文章探讨和分析了很多可能的非线性光学行为(见图3),其中不少行为即使在今天仍是实验室中广泛研究发展的课题.例如,文章中提出准相位匹配(quasi phase matching)的想法,利用材料超晶格的周期结构来满足相位匹配的条件,从而得到很高的频率转换效率.近年来不少实验室包括南京大学等都在从事这个工作.共振腔内位相匹配(phase-matched generation in resonant cavity)也是文章中提出另一可以提高频率转换效率的方法.文章中还提到可以利用差频技术产生太赫兹电磁波(THz generation by difference-frequency generation),现在仍是如何产生短脉冲太赫兹波的重要科研方向.文章也预测可以利用上转换(up-conversion)现象来探测很弱的红外信号,现在大家都在继续发展这一技术.所以,大家可以看到,这篇文章是非常重要的. Bloembergen 也因此奠定了他在非线性

光学领域中的宗师身份,并于1980年因为他对非线性光谱学的贡献获得诺贝尔物理学奖。

## 2 最初发现的非线性光学现象(early discovered nonlinear optical effects)

### 2.1 二次谐波(second harmonic generation)、激光和频、差频(sum and difference frequency generation)、光学参量(optical parametric generation)

如果有了很强的光场,很容易看到非线性光学现象.在提高脉冲激光的峰值光场或强度方面,早年发展了一个所谓的调Q激光技术(Q-switching).其原理是,当激光被泵浦时,把激光的共振腔关掉(低Q值),让泵浦源持续不断地把能量注入并存储在激光介质(laser medium)中,然后在短时间内把共振腔打开(高Q值),使储存在介质里的能量转换成光能,出现在一个很短的激光脉冲里,这叫巨脉冲(giant pulse),也叫调Q脉冲(Q-switched pulse)激光.巨脉冲的光场就非常强.因此,一些简单的非线性光学现象都很容易被看到,例如二次谐波(second harmonic generation)、和频(sum frequency generation)等.如图4(a)所示,当频率为  $\omega_1, \omega_2$  的光同时进入一介质时,会在介质中产出  $(\omega_1 + \omega_2)$  频率的极化偶极矩,它的辐射就是和频的输出.如果要转换效率高,光的输入和输出一定要满足光的动量守恒(momentum conservation),也就是我们说的位相匹配条件(phase matching,  $\vec{k}_1 + \vec{k}_2 = \vec{k}$ ).

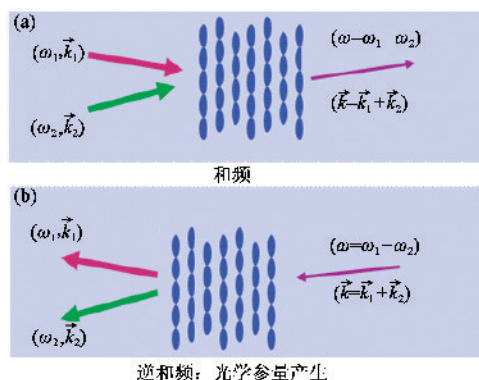


图4 (a)和频和(b)参量产生的示意图

在物理科学中,我们都知道,一个物理过程,往往会有相应的反过程.如果你首先想到并实现某一反过程现象,而这个现象很重要的话,你就会得到大奖.这里,我们可以想到和频的反过程,把图4(a)中的箭头翻转过来,就得到图4(b).可以看到进入介质的是  $(\omega_1 + \omega_2)$  频率的光,输出的是频率  $\omega_1, \omega_2$  的

两束光,这一般称为参量产生(parametric generation)过程,输出的频率是由满足相位匹配条件来决定的.改变介质的温度或取向可以改变相位匹配,因而可以得到不同的输出频率  $\omega_1$  和  $\omega_2$ ,作成频率可调光源(tunable source).光参量产生器是现代光学里一个非常重要的相干性光源.但发现这现象也是很早,继红宝石激光出现后就被实现了.所以,在那个时候非线性光学的科研是很有引诱力的.假如你有一台红宝石激光器,往往只要找一个光学介质(medium),插到光路里去,就会发现新的现象.下面我举几个例子.

### 2.2 受激拉曼散射(stimulated Raman scattering)

一个例子是受激拉曼散射(stimulated Raman scattering).当年,洛杉矶休斯研究实验室(Hughes Research Laboratory)一个小组研究用克尔盒(Kerr cell)来做激光的 Q 开关,他们把克尔盒放到光腔里面,用电压来驱动克尔盒的开或关,从而得到输出的激光巨脉冲(giant pulse).当时克尔盒中充的是硝基苯(Nitrobenzene)液体.他们在分析巨脉冲的光谱时,发现除了红宝石激光谱线之外,还有两条相当强的谱线<sup>[5,6]</sup>(见图 5).从它们的波长来看,很快就猜到来自硝基苯中的拉曼散射.两条线(766nm, 851.5nm)分别来自一次和二次拉曼散射.通常情况下拉曼散射是很弱的,问题是这些拉曼谱线怎么会这么强,且具有方向性. Hellwarth 很快在理论上证明了它们是受激拉曼散射<sup>[7]</sup>.现在,受激拉曼散射可以用来产生不同频率的相干性光源,也为深入研究强光与物质相互作用的规律提供了手段.

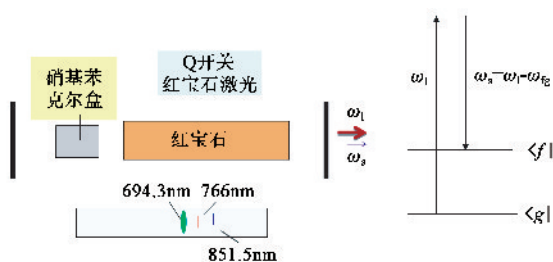


图 5 受激拉曼散射的实验和原理示意图

### 2.3 光自制行为(self-action of light)、自捕获(self-trapping)、自聚焦效应(self-focusing)、自相位调制(self-phase modulation)

另外一个例子是自聚焦现象.当年,罗彻斯特大学光学研究所(Institute of Optics, University of Rochester)的 M. Hercher 把一块玻璃放到红宝石激光的光路中,发现很强的光束,会损伤玻璃.在玻璃中形成一连串的细微空穴,连成一条直线(见图 6)<sup>[8]</sup>.

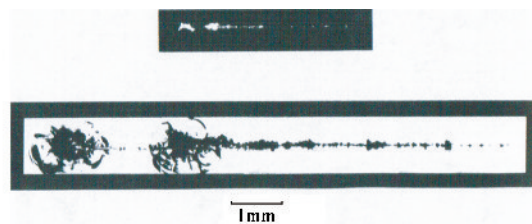


图 6 玻璃中激光自聚焦行为的实验照片<sup>[8]</sup>

这个现象很奇怪,怎么破坏的轨迹(damage track)会形成一条直线. Townes 在访问该研究所时,听到了这个实验结果,就想到可能是因为光的自捕获(self-trapping)<sup>[9]</sup>.其原理是物质的折射系数是随光的强度改变的.如果光引导出来的折射系数跟光强成正比,当一束光进入介质时,光束的中间部分较强,周边较弱,因此光进入介质后,刚开始它的波前是平的,但是因为光引导出的折射系数与光强成正比,轴心部分的光走得慢,周边的光走得快,因此波前就会起变化,越往里走变化越大.我们知道,光线传输方向是垂直波前的,所以假如把光路画出来的话,很明显看到光会自己聚焦(self-focusing)(见图 7).光越强,聚焦越近;强度弱,聚焦就远.可是,我们也知道光的口径有限,它因此一定有衍射.如果衍射与自聚焦效应正好抵消,那么光束口径会保持不变.这一情况叫做光的自捕获(self-trapped),就是光把自己束缚住了.这是 Townes 想到的,其实在 1962 年, Askaryan 已先提出了同样的理论<sup>[10]</sup>.后来,用红宝石激光射入液体中做实验的时候,相机拍下光束在液体中传输的图像果真看到一条光度极强的细光束线,正如预测那样.但是如果仔细考虑,就会发现这应该是一个不稳的现象,只要光的能量稍微有一点改变,比如说由于光的散射或吸收,衍射和自聚焦之间的平衡马上就不会存在.所以实际上用自捕获来解释上述的实验观察是不对的.

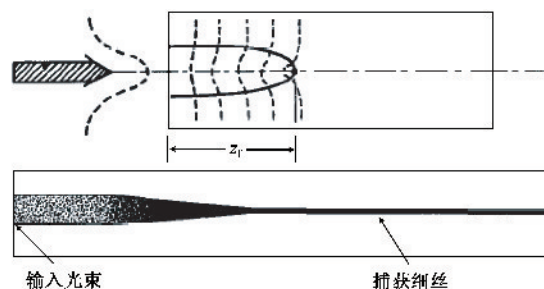


图 7 光自聚焦和自捕获行为的原理图

其实观察到的图像是来自于光脉冲的自聚焦(self-focusing).红宝石激光器产生的巨脉冲,脉宽约  $10^{-8}$  s,脉冲波的光强随着时间在变,因此自聚焦焦点的位置也随着时间在变.但是如果照相时间远

比  $10^{-8}$  s 长的话,那么图象上显出的只是一条在轴上移动的焦点连结成的亮光线,这一个移动焦点 (moving focus) 的解释,后来得到实验证明,用快速照相机去观察,可以看出焦点真在移动.近年来,科研工作者用脉宽为  $10^{-13}$  s 的激光脉冲来观察自聚焦,发现自聚焦可以在空气中出现(见图 8),而且亮线可以达一公里以上.



图 8 空气中出现的飞秒激光的自聚焦现象(照片来自中国科学院物理研究所张杰实验室.图中建筑物是中国科学院物理研究所的 D 楼)

在应用方面,现在激光科技上常用到的 Z-扫描和克尔锁模(Kerr mode-locking)都是依靠自聚焦原理.自聚焦和自捕获都属于激光的自制行为(self-action),其他还有自陡化(self-steepening)、自相位调制(self-phase modulation)等自制行为,一般都是难控制的,因为它们都是自发产生的.如果可以控制的话,就可以拿来应用,如果控制不了,则会造成破坏.比如说,如果自聚焦的焦点在固体里,就会把固体打坏.这情形在大激光装置中必须避免,否则极贵重的激光固体材料,有一次自聚焦现象发生就报销了.

自相位调制(self-phase modulation)也是一个很重要的光自制现象.它也是由于材料的折射率会随光强改变而导致的,如果折射率  $n$  和光强  $I$  的关系是  $n = n_0 + n_2 I$ ,则当脉冲激光经过物质后,透射光场和入射光场之间的关系可以写为  $E_{out} = E_{in} e^{i\phi + i\Delta\phi}$ ,其中  $\Delta\phi(t) = (2\pi\nu d/c)n_2 I(t)$  是由于折射率随光强的变化而产生的相位变化, $\nu$  是频率, $d$  是物质长度.因为  $\Delta\nu(t) = d\phi/2\pi dt$ ,当光脉冲很强又很短时, $\Delta\nu$  可能从零变到几百甚至几千波数( $\text{cm}^{-1}$ ),因此透射光的光谱变得很宽,如果变频的光在物质中还有四波混频过程,则透射光的光谱会更宽,如图 9 所示.一个 5fs 的脉冲,原始频宽只有  $\sim 10^3 \text{cm}^{-1}$ ,经过自相位调制后,频宽变得超过  $2 \times 10^4 \text{cm}^{-1}$ ,频谱比整个可见光范围更宽<sup>[11]</sup>.

以上谈的是一些早期的非线性光学科研,就如

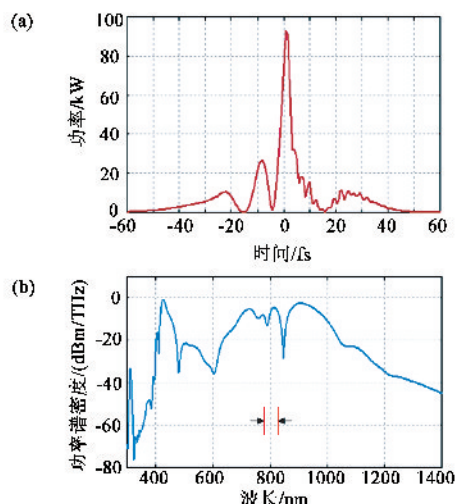


图 9 入射激光及自相位调制后的透射光谱

前面所说,只要你有一个激光器,把样品插进激光束中,往往就可以看到新的光学现象.所以说,如果你能赶上新领域发展的时机,那是你的好运气(Lucky if you can ride the wave of a new field).这就是说,科研的成功固然要看你的能力和用功程度,但有的时候也要靠运气.

#### 2.4 其他早期发展的非线性光学课题

还有一些早年发展出的,而现在常被用到的非线性光学现象.在这里我简单提一下而不再一一详细叙述了.光受激散射(stimulated light scattering):它是受激拉曼辐射的一般化,也就是说过程中物质的激发态,不一定是振动激发,而可以是其他激发元如声子等.参量荧光(parametric fluorescence):现在是研究量子纠缠(quantum entanglement)常用的光源,也是最早牵涉到量子光学的课题.非线性光学的量子描述(quantum description of nonlinear optics):Glauber 在 1964 年提出量子光学基础理论(Glauber 因此获得 2006 年的诺贝尔物理奖)后,即引发了非线性光学量子行为的科研,至今不衰.双光子吸收(two-photon absorption):这一非线性光学过程是现在精密光谱测量常用的手段,也是目前生物学界常用的双光子激发的荧光显微镜(图 10)的基础.光击穿(optical breakdown):光如何在各种形态的物质中导致物质破坏是一个很重要的问题,至今科研仍继续不断.激光引导的惯性核聚变(laser inertial fusion):这是一个大家都知道的,但是还没有实现的大课题,而它的设想,也是 1960 年代就已经提出了.其他早年即已发现的非线性光学现象还有四波混频(four-wave mixing)、光学克尔效应(optical Kerr effect)、饱和吸收(saturation in

absorption)、光孤子(optical soliton)等. 到 1980 年左右,非线性光学已经对科技的各个领域产生了非常大的影响. 我们现在回头去看,有的现象比较复杂,有的比较简单. 一般来说,往往越简单,越有用. 这在科研领域通常都是这样的.

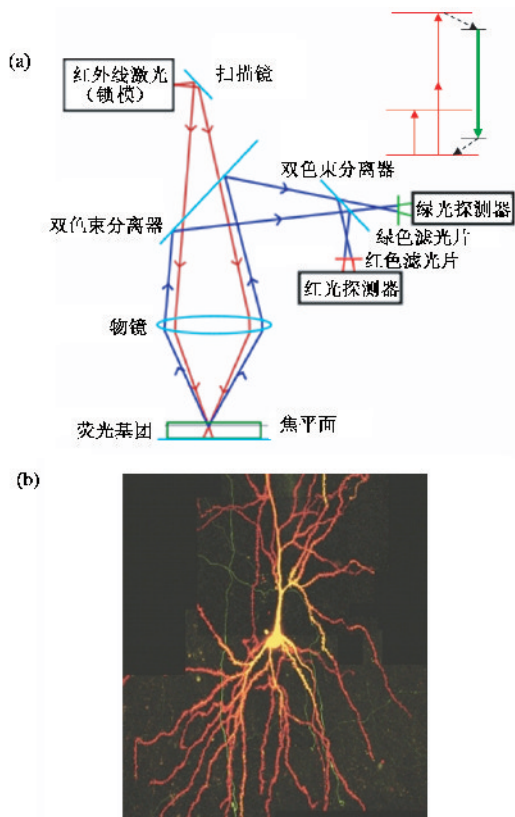


图 10 (a)利用双光子激发荧光现象设置的共焦显微镜(confocal microscopy);(b)为用这一装置取得的神经网络图象

这里顺便一提,科技界有人会把已知现象或过程重新起名,似乎又开了一个新领域,例如,自捕获(self-trapping)后来又称空间孤子(spatial soliton),受激光散射(stimulated light scattering),有人称它为二波混频(two-wave mixing). 双共振光谱学(double resonance spectroscopy),现在被称为二维光谱学(two-dimensional spectroscopy). 远红外光谱学(far-IR spectroscopy)现在变成了太赫兹光谱学(THz spectroscopy)等.

### 3 其他一些引人注意的早期即出现的非线性光学领域

非线性光学涵盖的范围极为广泛,下面只能选择性地对某些有趣、有影响的领域作一描述.

#### 3.1 非线性光谱学(nonlinear optical spectroscopy)

在非线性光学里面,最重要的一个领域就是激

光光谱学(laser spectroscopy),也叫非线性光谱学(nonlinear optical spectroscopy). Bloembergen 和 Schawlow 就是因为他们在这方面的贡献,获得 1980 年的诺贝尔物理奖. 我们知道,在物质中,如果进入物质的激光能激发共振(resonance)的话,连带产生的非线性光学现象就会有共振增强(resonance enhancement)效应. 所以利用频率可调的激光注入物质,可以从非线性光学信号与频率的变化上得到物质的非线性光谱,用来探测和了解物质. 在 70 和 80 年代,根据不同的非线性光学现象,科学家发展出了很多不同的非线性光谱技术或方法(nonlinear optical spectroscopy technique or method). 除了 Bloembergen 和 Schawlow 之外,还有好几位诺贝尔奖获得者,如 Lamb, Ramsey, Hall, Hansch 和 Cohen-Tannouji 等,在这方面都有很大贡献. 激光光谱学,现在在生物、物理、化学、地理等领域都有广泛的应用. 我们很容易看到,非线性光谱学是在频率可调激光出现后才得到快速发展的. 在非线性光学的发展过程里,新的激光技术的出现往往是关键. 一个新型激光出现就会带来新的非线性光学现象和光谱技术. 所以激光技术实际上是非线性光学的驱动力. 非线性光谱学的发展导致了许多自然学科都发生了革命性的变化. 其根本在于激光用作光谱的光源有很多极为特殊而有用的特点:它的高方向性,发散角可以只有  $0.01^\circ$ ,一般实验室的激光强度就可以达到  $10^{24} \text{ W/m}^2$ ,最小脉宽(minimum pulse-width)可以小于  $\sim 5 \times 10^{-15} \text{ sec}$  ( $1.5 \mu\text{m}$  脉冲长度),甚至小于  $10^{-16} \text{ sec}$  ( $300 \text{ nm}$  脉冲长度),可见激光的频率线宽可以小于  $1 \text{ Hz}$ . 频率连续可调性可以从远红外直到软 X 射线频段可调. 这些诱人的特性是激光光谱学之所以如此成功的原因.

激光光谱技术有很多类,例如混频光谱术(wave mixing spectroscopy),超快光谱术(ultrafast spectroscopy),精密光谱术(precision spectroscopy),相干瞬态光谱术(coherent transient spectroscopy),多维共振光谱术(multi-resonance spectroscopy),极端灵敏光谱术(ultra sensitive spectroscopy)等,都是极为重要和非常有用的,在此无法一一叙述,只借极端灵敏光谱术为例,指出它们的重要性. 用可调激光可以选择性的探测到单原子或分子,方法是首先由激光将要探测的原子(或分子)选择激发到某一激发态,然后测它发射出来的荧光,或者是用另一束激光将激发原子电离而测到离子(见图 11),在适当的条件下,两者都可以用来探测到该

单原子. 单个或少数原子(或分子)探测的技术, 有很多非常重要的应用. 例如用来探测核物理中稀有原子或粒子, 以及气体化学反应过程中少量的产物或中间产物. 在考古领域里, 利用传统方法考察古物年代的话, 往往需要相当大的一块古物, 但很难得到, 如果用激光光谱来做, 需要的量可以非常小. 此外, 荧光用来探测追踪单分子, 是目前分子及细胞生物科研上常用的手段. Roger Tsien (钱学森侄子) 即因为发现绿色荧光蛋白质 (green fluorescence protein), 用在激光产生荧光的手段上, 来有效地探测生物系统, 而获得 2008 年的诺贝尔化学奖.

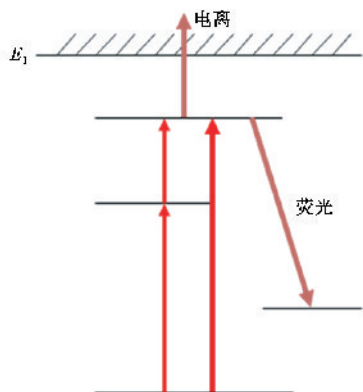


图 11 单原子探测方法的示意图

### 3.2 激光冷却原子分子 (laser cooling of atoms and molecules)

激光冷却原子分子 (laser cooling of atoms and molecules) 的课题<sup>[12,13]</sup>, 大家一定都听到了很多, 在这里就不多谈了. 当年 Weiman, Cornell 和 Ketterle 利用激光冷却, 再加蒸发冷却, 把原子的温度降低到  $\sim 100\text{nk}$ , 从而看到了玻色-爱因斯坦凝聚 (Bose-Einstein condensation), 在 1995 年获诺贝尔物理学奖. 后来科研者让冷却的玻色子和玻色子结合成费米子, 而得到费米凝聚 (Fermi condensation), 开创了原子物理的新领域. 即使在冷原子分子物理方面, 也有很多极有意思的问题可以去探讨, 比如说大家都知道一般化学反应都是在温度相当高的环境下进行的. 但是如果温度降到几乎是零度的时候, 原子或分子的速度会变得非常慢, 那时的化学反应经由原子或分子碰撞又是怎么产生的. 这是一个非常基础的科研问题.

多体物理 (many-body physics) 是物理中的重要难题, 特别是在凝聚态物理中. 玻色子和费米子凝聚后是一个多体作用的系统, 类似一般凝聚态, 但是粒子间的相互作用远比一般凝聚态物质简单, 因此可以用来很清楚地去探讨多体系统的基础问题, 更好地

去验证凝聚态物理中长期以来发展出的多体理论.

### 3.3 相位共轭和自适应光学 (phase conjugation & adaptive optics)

同于全息照相原理, 简并四波混频可以实现实时全息. 在图 12 中, 波 1 代表信号波, 在物质中与波 3 结合, 产生干涉条纹, 使得输入的波 2 发生衍射, 衍射的光在波 1 的反方向输出. 它的相位会与输入的波 1 相位正好相反 (符号相反), 这个现象称为相位共轭 (phase conjugation). 因此, 如果波 1 先经过一层干扰的物质, 它的相位会有畸变. 但是如果由它产生的相位共轭波反向传输, 也经过同一层干扰物质, 就会让畸变的相位得到完全的修正.

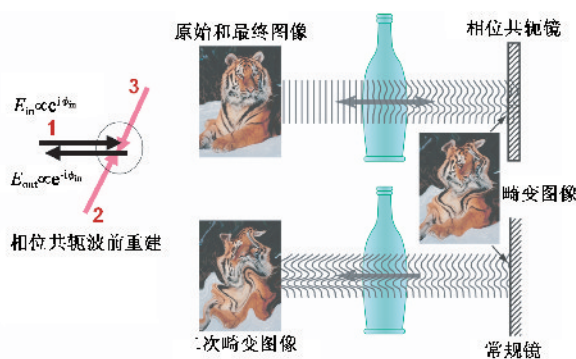


图 12 相位共轭原理示意图以及对成像的矫正

图 12 显示, 来自老虎图像的一束光, 经过玻璃瓶后, 相位不规则改变, 导致成像畸变. 如果这一光束, 经普通反射镜反射, 再经过玻璃瓶, 相位进一步受到干扰, 成像一定变得更加模糊. 但是如果反射光来自相位共轭反射镜, 则再经过玻璃瓶, 相位的畸变可以被补偿回来, 得到很好的成像.

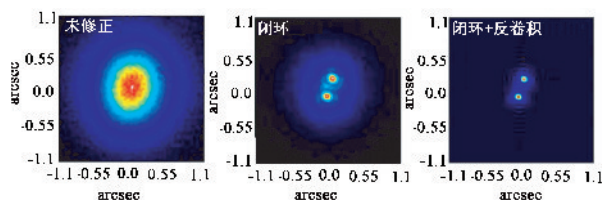


图 13 左图为未经波前畸变补偿的成像; 中图为经过波前畸变补偿后的成像; 右图为对仪器所造成的波前畸变进行补偿后的成像

相位共轭不一定需要四波混频才能做到, 利用光束分区控制 (将光束分为很多细束, 分别控制它们的相位) 也能做到. 根据相位共轭原理, 采用后者方法, 现在在天文望远镜上, 已发展成一个非常重要的自适应光学 (adaptive optics) 技术. 天空中的星像, 受到地球上空的云层干扰, 波前被扰动, 因此变得很模糊. 如果望远镜有自适应光学装置, 那么它的分辨率可以提高 100 倍. 图 13 是一组双星的像, 未经相位共轭补偿时, 看到的只是一个大亮点, 经过相位共

轭补偿后,双星的图象就变得非常清晰了.

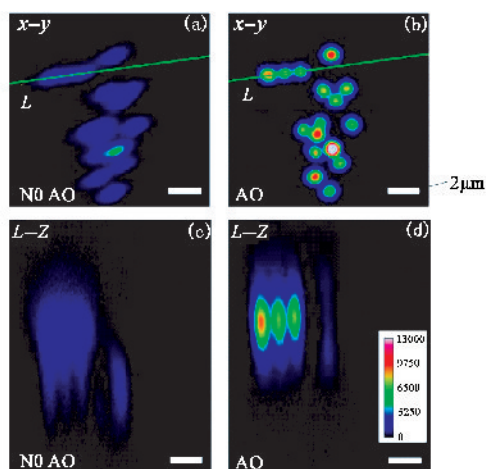


图 14 波前畸变补偿技术在显微成像上的应用 (a),(b)图在  $x-y$  方向的分辨率提高结果;(c),(d)图在深度方向的分辨率提高结果

自适应光学也可以用在显微镜上,如图 14 所示.颗粒在不均匀的物质中,显微镜的成像在横向及纵向都很模糊,但是经过相位共轭补偿,就可以看到清晰的像<sup>[14]</sup>.这在研究生物的神经系统上特别有用,因为神经系统是由一层层神经网络叠成,要用光来知道哪一层在起作用,必须在成像上能把各层分开.

## 4 目前引人注意的一些非线性光学领域

### 4.1 用于动态过程研究的超快光谱技术 (ultrafast spectroscopy for dynamic studies)

动态过程的超快光谱技术 (ultrafast spectroscopy for dynamics)大家也许都比较熟悉.其原理与闪光照相术 (flash photography) 相似.一次闪光照一个相,顺时间连接起来,就可以看到物体的变动,如果一秒钟内呈现几十张像,就可以连成电影,这是电影的起源.原理是早年 E. Muybridge 提出的, Egerton 后来发扬光大.有一个小故事,当年在加州有一个参议员,叫斯坦福,他喜欢跟他的有钱的朋友去看赛马,有一天在看赛马时他偶然想起:“马是怎么跑的?是前脚下去后脚提起来,然后后脚下去前脚提起来,也就是总是有一只脚在地上,还是说跑的时候四只脚都可能会离开地?”他的一位有钱的朋友说:“它一定总有一只脚在地上,不会是四脚腾空的”.但斯坦福相信:“中间一定有时间四只脚都离地的”.他们争论后打赌 \$ 25000,看谁对谁错.斯坦福知道 Muybridge 是闪光照相术的大师,就请他来

帮忙用照相去证明到底是否马的四脚都可能离地, Muybridge 的照片如图 15 所示.我们可以看到在第 2 幅和第 3 幅图中,马的四只脚都离开地了,因此斯坦福赢了这场赌博.美金 \$ 25000 元在当时是一大笔钱,斯坦福拿它买了一块在帕洛·阿尔托 (Palo Alto) 很大的荒地.后来他的儿子死了,他就把这块地捐出来,以儿子的名字成立了斯坦福大学,这就是斯坦福大学的起源.

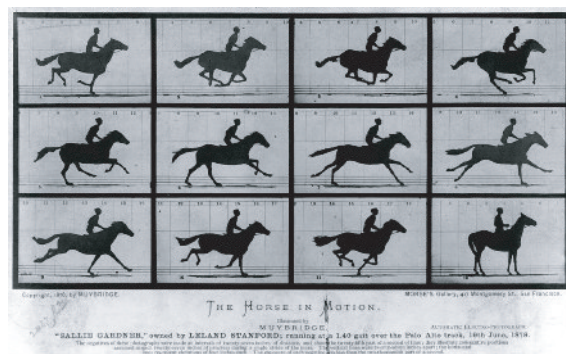


图 15 运动中的马 (from Wikimedia)

现在超快光谱术通常采用的是脉冲激光泵/测 (pump/probe) 的手段,光源一般用的是皮秒或飞秒的脉冲激光.首先在零时刻,泵浦的激光脉冲激发了物质,然后探测的脉冲激光,在不同时间,像照相一样可以去探讨物质被激发后的弛豫动态,图 16 显示的是用超快光谱术来探测晶体熔化过程的原理和结果<sup>[15]</sup>.用可见飞秒激光脉冲光激发一个晶体,然后用短脉冲 X 光去探测,就可以看到来自被激发晶体的衍射.当晶体吸收的泵光能量开始使晶体溶解时,它的衍射强度就开始下降,这就告诉你晶体溶解的过程及时间.

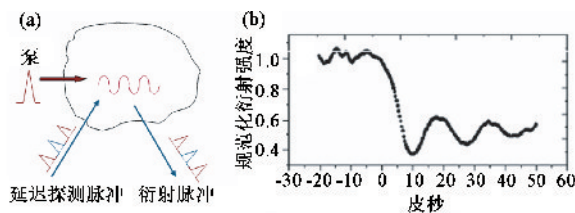


图 16 利用超快光谱测量晶体的熔化的动力学过程的原理图和结果

### 4.2 相干非线性光学 (coherent nonlinear optics)

相干非线性光学 (coherent nonlinear optics) 也是一个比较前沿的领域.相干性来自光波的相位,激光有很清楚的相位,因此相干性强.在某些非线性光激发物质的过程中有显著的影响.

假设有一个两能级系统,可以用频率  $\omega$  的 3 个光子束激发,也可以用频率  $3\omega$  的单光子来激发(见图 17).如果两者同时存在,则总的跃迁几率应该是

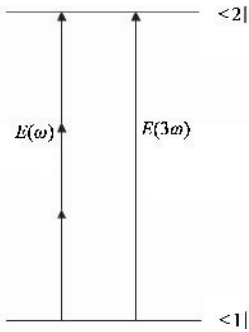


图 17 两能级系统激发示意图

$$W_{12} \propto |AE^3(\omega) + BE(3\omega)|^2 = ||AE^3(\omega) + BE(3\omega)e^{i\Delta\phi}|^2$$

其中  $\Delta\phi$  是因为  $E(\omega)$  和  $E(3\omega)$  有相位差而得来的。从公式中可以发现,如果我们控制  $\Delta\phi$ ,就可以控制跃迁几率。当  $\Delta\phi$  为  $0, 2\pi, 4\pi$  时,跃迁几率最大,若  $\Delta\phi$  为  $\pi, 3\pi, 5\pi$ ,则跃迁几率最小。这类利用控制相位来控制最终结果的问题,一般称为相干调控 (coherent control)。人们希望能由相干调控来调控物理或化学过程,譬如增加某一化学反应的效率,提高化合物生产等。

电磁感应透明 (electromagnetically induced transparency, EIT)<sup>[16]</sup> 是目前非线性光学里的一个热门课题。它的原理其实和当年 Fano 在原子物理中提出的所谓 Fano 共振是相似的<sup>[17]</sup>。Fano 共振出现在当一个宽带强跃迁与一个窄带弱跃迁重叠时 (见图 18),它们之间会产生相位干涉,在适当情况下,弱跃迁频率附近的吸收会变得很小。图 18 中举的是一个石墨烯 (目前最热门的材料) 的例子<sup>[18]</sup>。光谱中的宽带来自电子跃迁,窄带来自光声子的激发,两者间的相位差可以由外加电闸 (gating) 来改变,当相位差近  $180^\circ$  时,如图 18 所示,在弱跃迁频率附近,原来该有吸收处,现变得几乎透明。

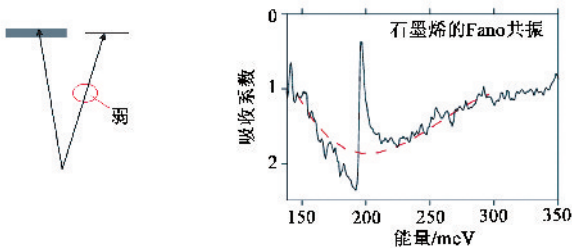


图 18 Fano 共振原理图以及石墨烯的吸收谱线

EIT 与 Fano 共振有什么关系呢? 图 19 描述的是 EIT 发生在一个三能级系统里,能级  $|1\rangle$  至能级  $|3\rangle$  是宽带强跃迁,能级  $|1\rangle$  至能级  $|2\rangle$  的跃迁非常弱,如果能级  $|2\rangle$  与能级  $|3\rangle$  之间有一共振强光将它们耦合,那么从三能级系统与强光场合在一起组成的

综合系统 (即所谓 dressed system) 来看,则综合系统的有效能级如图 19 的左下方图所示,与图 18 中 Fano 共振的能级图相似。因此用光去探测得到的吸收光谱,也与 Fano 共振的光谱相似。因为这里强跃迁与弱跃迁的相位相反,所以弱跃迁该吸收处,反而变得几乎透明,这就是强光诱导出的电磁感应透明 (EIT)<sup>[19]</sup>。

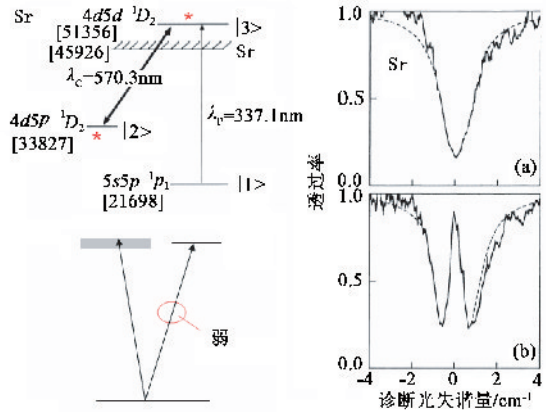


图 19 EIT 现象中跃迁能级示意图及透射增强

有效三能级系统中的相干非线性光学现象,除了 EIT 外,还有不少。例如 EIT 发生在原子气体里时,它的光谱中感应透明的谱线可以很窄。因此在谱线附近的折射率随频率变化 ( $\partial n / \partial \omega$ ) 可以很大。因为光的群速度与  $\partial n / \partial \omega$  的关系是  $v_g = [ \frac{n}{c} + \frac{\omega}{c} \frac{\partial n}{\partial \omega} ]^{-1}$ , 所以会变得很慢,在某些情况下,  $v_g$  会比自行车的速度还慢。其他,还有绝热粒子分布转换 (adiabatic population transfer),能把粒子分布从基态全部转换到激发态,相干布居捕获 (coherent population trapping),指的是把光激发能以相干方式储存在两能级中,需要的时候可以将它变为光脉冲释放出来,无粒子数反转的激光 (laser without inversion) 等现象。这些都是非常有意思的问题。这里顺便一提,EIT 是斯坦福的 Harris 在 1990 年提出来的<sup>[16]</sup>。可是他没有注意到早在 1969 年和 1970 年,其他人 (包括 Hansch 和 Cohen-Tannouji) 发现的一些现象,都是和 EIT 相像的。

### 4.3 单光子非线性光学 (nonlinear optical effects observed at single photon level)

一般来说,我们也许会认为单光子的电场一定很弱,不足以激发任何非线性光学现象。但是如果考虑一个可见光子束缚在  $1\mu\text{m}^3$  的空间,那么在这狭小的有限空间里,单光子相应的电场达到  $\sim 1\text{keV}/\text{cm}$ ,足以激发某些非线性光学现象。

这里考虑一个光子与一个原子在一微腔中的相



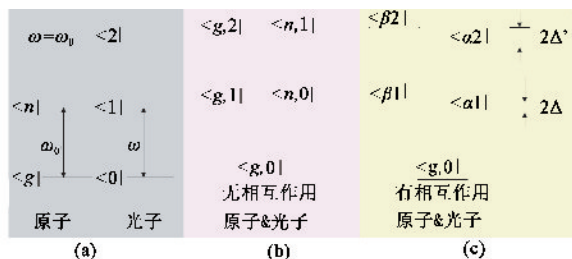


图 20 限域的单光子和原子的能级示意图

相互作用<sup>[20]</sup>. 假设光子的频率与原子的基态  $|g\rangle$  和激发态  $|n\rangle$  之间的跃迁频率相同, 如图 20(a) 所示,  $\omega = \omega_0$ . 如果光子和原子没有相互作用, 那么整个系统的能级可以用  $\langle g, 0 |, \langle g, 1 |, \langle n, 0 |$  等来描述. 因为  $\omega = \omega_0$ , 所以最低的激发态  $\langle g, 1 |$  和  $\langle n, 0 |$  是简并的, 次低的激发态  $\langle g, 2 |$  和  $\langle n, 1 |$  也是简并的 (见图 20(b)), 其中  $\langle g, 2 |$  表示原子在  $\langle g |$  态, 光子有两个. 如果原子和光子有相互作用, 则  $\langle n, 0 |$  和  $\langle g, 1 |$  会混和而分裂成两个不简并的能级  $\langle \alpha 1 |$  及  $\langle \beta 1 |$ , 如图 20(c) 所示. 因此出现两个频率不同的跃迁,  $|g, 0\rangle \rightarrow \langle \alpha 1 |$  及  $|g, 0\rangle \rightarrow \langle \beta 1 |$ . 因为在微腔中, 光场很强, 所以  $\langle \alpha 1 |$  与  $\langle \beta 1 |$  之间的能差相当大, 上述的两个不同的跃迁频率很容易观察到, 如图 21 的光谱所示, 可以看到两条相邻的跃迁谱线.

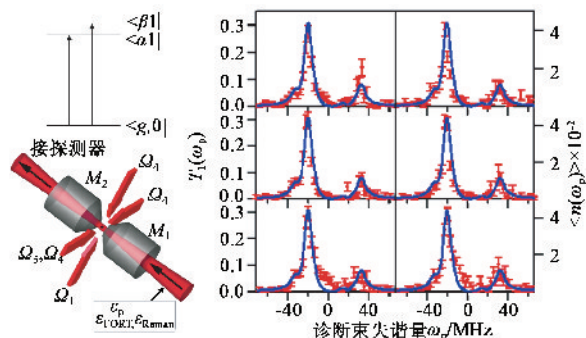


图 21 单个光子和原子能级示意图, 实验装置以及观察到的光学术斯塔克(Stark)分裂

#### 4.4 激光锁模与光梳

激光腔内锁模(mode locking)能让一个光脉冲在腔内放大, 而每来回一次, 就释放出一部分能量, 因此形成一连串周期输出的短脉冲. 用掺钛蓝宝石(Ti:Sapphire)激光锁模, 可以得到连续的、间隔约  $10^{-8}$  s、脉宽仅  $\sim 5 \times 10^{-15}$  s 的短脉冲, 这些脉冲之间都有相干性, 并且载波(carrier)与包络(envelope)之间的相位也几乎完全固定, 如图 22 所示. 连续短脉冲的光谱来自它们的傅里叶变换, 是由一系列几百万条极狭窄的谱线组成, 线宽可以近 1 Hz, 邻近两线的间隔约为 100 MHz, 谱的覆盖宽度达  $\sim 5 \times 10^{14}$  Hz ( $\sim 20000 \text{ cm}^{-1}$  或  $\sim 2.5 \text{ eV}$ ), 还可以经由介质中混频

过程增宽, 这样一个光源称为光梳. 在原子、分子光谱精密测量上, 开创了前所未有的新领域, 为基础物理的探讨提供了崭新的手段, Hall 和 Hansch 因此获得了 2006 年的诺贝尔物理学奖.

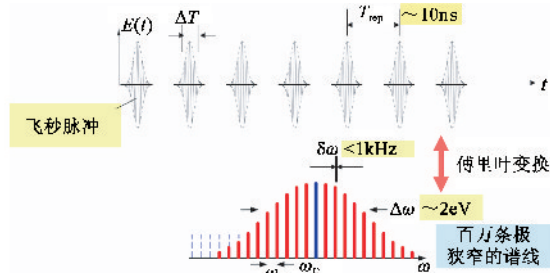


图 22 周期性的激光脉冲及傅里叶变换后的频率梳

#### 4.5 强场激光物理 (high-field laser physics) 及强非线性效应

在上述的连续脉冲中取出单个脉冲, 将它放大, 可能得到单个脉冲, 能量达 0.1 J, 脉冲宽度为  $5 \times 10^{-15}$  s, 峰值功率为  $10^{13}$  W, 聚焦后能超过  $10^{20} \text{ W/cm}^2$ . 而且这一单脉冲的光场随时间的变化是可以精确描述的. 这样脉冲的出现, 开创了一个新领域, 称做强场物理, 研究脉冲强光场在介质中引出的问题. 例如我们把这一单脉冲聚焦到  $10 \mu\text{m}^2$  大小区域, 光的功率密度能够达到  $10^{19} \text{ W/cm}^2$ , 相应的场强达  $3 \times 10^{11} \text{ V/cm}$ . 这样高的电场, 如果用来加速电子, 不考虑相对论效应的话, 在光的半周期内就会把电子加速到超过光速. 因此在这种情形下, 光与物质的相互作用, 必须用相对论动力学 (relativistic dynamics) 来解释. 强场物理中研究的问题包括光与等离子体的相互作用、X 光与电子束的产生、短脉冲强磁场的产生、激光粒子加速 (laser particle accelerator) 等. 后者如果可以有效控制, 可能取代现在的电子加速器用于同步辐射, 成本可降低 100 倍. 上海光机所徐至展实验室在这方面近年来做出了国际领先的出色工作.

#### 4.6 强非线性光学效应 (strong nonlinear optical effects)

强非线性光学效应 (strong nonlinear optical effects) 指的是当光与物质间的作用不能再微扰理论来描述, 这相当于其他物理领域里的强耦合 (strong coupling) 的情形, 都是物理中最难的问题. 可是在非线性光学里, 有很多强耦合问题, 例如, 红外多光子激发和分子分解 (infrared multiphoton excitation and dissociation of molecules), 一个分子可以吸收几十个到上百个红外光子, 然后分解, 以及多光子电离 (multiphoton ionization) 等, 都可以用

相当简单的物理图像来把它们讲清楚。

下面我们用阿秒脉冲及高次谐波的产生作一个例子。

用前述的极短的单脉冲激光,可以在原子分子气体中产生一个更短的软 X 光频段的单脉冲,使得超快光谱术在时间分辨上提高到 100 阿秒(1 阿秒为  $10^{-18}$  sec)量级. 这里解释一下这一个有趣的强非线性光学现象<sup>[21]</sup>,如图 23 所示. 在光的 0 到 1/4 周期,正电场随时间增加,它的强度足够使原子的势能改变,一边高一边低. 当势能低到某一值时,原子中在基态的电子可以经隧道效应电离出来,这时电场仍是正,所以电离出的电子会被继续加速. 直到电场变成负,促使电子减速,然后电子会被负电场反向加速,最后撞向电离留下的原子核,从而在极短的时间内减速. 将加速得来的能量,以辐射方式释放出来,这就是阿秒软 X 光脉冲的产生原理. 实验中输入的是红外光,输出的是软 X 光,这应该是一个强耦合的非线性光学现象. 可是,我们看到用一个简单的物理图就可以了解. 在实验中,因为输入的脉冲光场是完全知道的,所以电子电离的时间、电离后的轨迹和速度等都可以精确控制,如果利用这电子来做衍射成像,观察它随时间的改变,可以得到物质在阿秒量级的结构动态变化. 这也是一个很有意思的新领域.

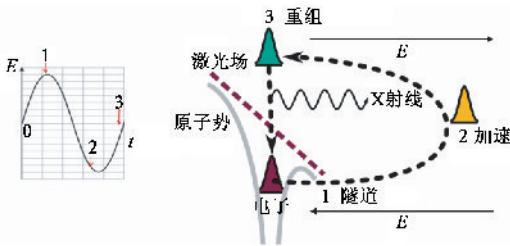


图 23 阿秒 X 射线产生的原理示意图

与产生阿秒脉冲有关的较早发现的是产生高次谐波的非线性光学. 我们知道激光产生二次谐波(second harmonic generation)和三次谐波(third harmonic generation)现象现在是很容易看到的. 但是要产生几十或几百个谐波,从微扰理论来看,几乎是不可能的. 可是在以气体为介质的实验中,却已经看到了(见图 24)<sup>[22]</sup>,这当然应该是一个超强的非线性现象.

这样高次的非线性现象似乎是很难了解的. 可是很幸运,这又是一个可以用物理图像很容易了解的现象. 我们考虑一个较长的强光脉冲,如图 25 左下方所示. 如果光场的每一个周期都激发原子电离而产生一个阿秒脉冲,那么可以得到一序列周期性的阿秒脉冲,与图 22 中的脉冲序列相似. 不同的是

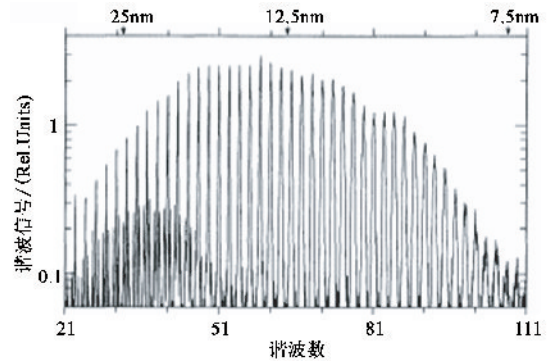


图 24 高阶谐波信号

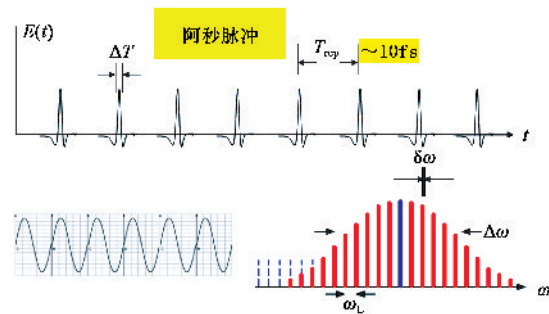


图 25 高阶谐波产生的原理图

现在谈的是阿秒脉冲,而脉冲间隔只有几个飞秒. 它们由傅里叶变换得到的光谱,也是像光梳一般(见图 25),只是谱线间的距离相当于输入光的频率,也就是说,每一条频线都是输入光的谐波. 光谱的宽度(图 25 中的  $\Delta\omega$ )是阿秒脉冲宽的倒数. 如果把阿秒脉宽控制得很短,频宽  $\Delta\omega$  就很宽,可以包含有几百条谱线,相当几百次谐波出现. 最高的一些谐波可以延伸到软 X 射线. 最近,科罗拉多的叶军小组利用共振腔去产生连续的阿秒脉冲,得到软 X 射线频段的光梳,每一条谱线的宽度可以狭窄到 0.85Hz. 如果用来做精确光谱(precision spectroscopy)测量,分辨率可以达到  $10^{-16}$  以上的水平,比原来精确光谱的测量高了一个数量级.

#### 4.7 高能密度物质(matter at high energy density (HED))

现在世界上不少发达国家都在建自由电子激光或者高能激光器,主要是希望能够得到高能量飞秒 X 射线脉冲(high-energy femtosecond X-ray pulses)或极高能量激光脉冲. 斯坦福的 Linac Coherent Light Source (LCLS)已能输出波长 0.15—1.5nm,脉宽 80fs,能量 2mJ/pulse 的脉冲硬 X 射线. 在美国利弗莫尔(Livermore)的 National Ignition Facility 是目前世界上最大的激光装置,它产生 192 条 20ns 宽的激光脉冲,同时聚在一个目标上,可以达到 1—2MJ/pulse. 现在已经开始运转,一天打一次,在 2016 年的时候,

期望可以一天打 700 次. 这些光源当然都是贵得不得了. 它们可以用来做什么科研呢? 自由电子激光的应用, 大家也许已听得很多, 这里不多讲了. 大能量的脉冲激光, 主要是希望用它来实现惯性核聚变(inertial fusion). 其实这样的激光打在物质上, 新的物理现象会出现. 现在有个新的研究领域叫高能密度物理(high energy density physics). 如果能用内爆方式(implosion)来把物质压缩到很高密度状态, 其原子间的距离接近或小于原子核的德布罗意波长或玻尔半径, 那么所有我们现在了解的关于原子与原子间的相互作用行为如化学键等都不再成立, 需要建立新的理论和图像去描述. 这个新的科研领域就是高能密度物理, 是一个全新的极有意义和相当令人振奋的基础科研领域, 问题在于这种大装置不是一般科研人员都可以用到的.

## 5 发展中的前沿非线性光学研究课题

当前非线性光学中的热点课题(hot topics), 如阿秒电子动力学、强场物理(high-field physics)、高能密度物理、光梳及精密光谱学等都已经提过了. 现在有了 X 光激光, 在 X 光频段的非线性光学也将成为一个新领域, 但是这些课题都是需要经费充足、实力很强的实验室才能承担的. 一般的小实验室能做什么前沿的线性光学研究呢? 冷原子和分子中的非线性光学现象是一个能发展的领域. 发展新的激光光学技术是很重要的. 用激光来探讨光与物质的相互作用, 相位有一定的重要性, 测量相位可以得到更多信息. 用非线性光学手段去表征新型材料(例如纳米结构、Meta 材料(Metamaterials)、生物材料、复合材料等), 可以帮助了解这些材料. 通过控制光的相位来调制某些非线性光学现象应该是很有趣

的. 光梳是一个非常优质的光源, 但是现在的应用还局限在原子、分子光谱上, 考虑如何把光梳应用到凝聚态物理上, 是对我们的一个挑战. 此外, 不寻常的非线性光学效应(exotic nonlinear optical effects), 例如非线性磁光效应(nonlinear magneto-optical effects)应用到自旋电子学(spintronics)、激光操纵物质(如相干控制、激光致相变(phase transition))等, 也都是很有意思的问题. 看来非线性光学的发展前景仍是很美好的.

## 参考文献

- [1] Schawlow A L, Townes C H. *Phys. Rev.*, 1958, 112:1940
- [2] Maiman T H. *Nature*, 1960, 187:493
- [3] Franken P A, Hill A E, Peters C W *et al.* *Phys. Rev. Lett.*, 1961, 7:118
- [4] Armstrong J A, Bloembergen N, Ducuing J *et al.* *Phys. Rev.*, 1962, 127:1918
- [5] Woodbury E J, Ng W K. *Proc. IRE*, 1962, 50:2367
- [6] Eckhardt G *et al.* *Phys. Rev. Lett.*, 1962, 9:455
- [7] Hellwarth R W. *Phys. Rev.*, 1963, 130:1850
- [8] Hercher M. J. *Opt. Soc. Am.*, 1964, 54:563
- [9] Chiao R Y, Townes C H, Stoicheff B P. *Phys. Rev. Lett.*, 1964, 12:592
- [10] Askaryan G A. *JETP*, 1962, 15:1088
- [11] Bellini M, Hansch T W. *Opt. Lett.*, 2000, 25:1049
- [12] Hansch T W, Schawlow A L. *Opt. Commun.*, 1975, 13:68
- [13] Wineland D, Dehmelt H. *Bull. Am. Phys. Soc.*, 1975, 20:637
- [14] Ji N, Milkie D E, Betzig E. *Nature Methods*, 2010, 7:141
- [15] Lindenberg A M *et al.* *Phys. Rev. Lett.*, 2000, 84:111
- [16] Harris S E, Field J E, Imamoglu A. *Phys. Rev. Lett.*, 1990, 64:1107
- [17] Fano U. *Phys. Rev.*, 1961, 124:1866
- [18] Tang T T *et al.* *Nature Technology*, 2009, 5:312
- [19] Boller K J, Imamoglu A, Harris S E. *Phys. Rev. Lett.*, 1991, 66:2593
- [20] Boca A *et al.* *Phys. Rev. Lett.*, 2004, 93:233603
- [21] Corkum P. *Phys. Rev. Lett.*, 1993, 71:1994
- [22] Macklin J J *et al.* *Phys. Rev. Lett.*, 1993, 70:766