各向同性介质的三阶非线性极化统一理论*

杨国霞　李昊杰　吕博昆　贾倩文　刘大禾　石锦卫　弓文平†
(应用光学北京市重点实验室,多尺度自旋物理教育部重点实验室,北京师范大学物理学系,北京)

摘要　探讨了入射至各向同性介质的不同频率的多光束;推导了三阶非线性极化矢量形式的表达式,并利用它解释了多个已知且独立的非线性光学现象,验证了该表达式的普适性和正确性. 结果表明,三阶非线性极化矢量形式的表达式可为各向同性介质中的三阶非线性光学效应提供统一描述;将其拓展至六角晶系材料,能对各种复杂问题提供简单的处理方式. 这对于系统地理解各向同性介质和六角晶系材料中的三阶非线性光学效应具有重要意义,有望促进非线性光学在频率转换、偏振态检测和量子信息等领域中的应用.

关键词　非线性光学;三阶非线性极化;各向同性介质;三次谐波;非线性折射率;简并四波混频
中图分类号　O437　　**DOI:** 10.12202/j.0476-0301.2024004

0　引言

在经典通信和量子通信中,为了实现超快光开关和光学信息处理,需要将多种光功能集成到单个紧凑的芯片中,非线性光学效应在此过程中起着关键作用[1−2]. 随着微纳光学的发展,等离激元纳米结构、超构材料和超构表面等的非线性光学性质及其应用也正在被深入挖掘[3−5].

非线性光学效应只有在强光下才体现出来,阶数越高其往往越弱,所以二阶和三阶最为典型. 通常来说,三阶效应相较二阶效应,其存在于更广泛的物质系统中,因为当物质系统具有中心反演对称性时,二阶极化率为零. 值得注意的是,各向同性手性介质,例如手性分子组成的液体,是中心对称破缺的,其中仍具有部分二阶光学效应[1]. 三阶极化率不受中心反演对称破缺的限制. 典型的三阶非线性光学效应包括三次谐波产生、克尔效应和四波混频,它们具有广泛的应用,例如生物成像[6]、分子学研究[7]、光学相位共轭[8]、光开关和频率梳产生[9].

各向同性介质的三阶极化率张量具有高度对称性,在该介质中的三阶非线性效应具有特殊的表现. 例如:单一手性的圆偏振光入射时无法产生三次谐波[10−11]——这种现象可以从角动量守恒的角度来解释[12];椭圆偏振光入射时,非线性折射率会导致偏振椭圆的长轴随传播距离旋转[1, 13];利用简并四波混频能产生矢量相位共轭波[1, 14]. 此外,手性非线性光以特殊角度入射到部分六角晶系的材料时,也有类似的现象[15]. 然而,这些现象在文献中各自独立,缺少统一的理论描述并刻画其本质特性.

1　基本理论

对称性分析结果表明,各向同性介质的三阶极化率张量元中,共有 21 个非零张量元,且只有 3 个张量元独立[1]. 分别为

$$\chi_{1122}=\chi_{2211}=\chi_{2233}=\chi_{3322}=\chi_{3311}=\chi_{1133},\tag{1}$$

$$\chi_{1212}=\chi_{2121}=\chi_{2323}=\chi_{3232}=\chi_{3131}=\chi_{1313},\tag{2}$$

$$\chi_{1221}=\chi_{2112}=\chi_{2332}=\chi_{3223}=\chi_{3113}=\chi_{1331},\tag{3}$$

$$\chi_{1111}=\chi_{2222}=\chi_{3333}=\chi_{1122}+\chi_{1212}+\chi_{1221},\tag{4}$$

式中的右下角标数字 1、2、3 分别代表笛卡儿坐标 x、y、z.

根据式(1)~(4),各向同性介质的三阶极化率张量可以以更紧凑的形式表示为[1]

$$\chi_{ijkl}=\chi_{1122}\delta_{ij}\delta_{kl}+\chi_{1212}\delta_{ik}\delta_{jl}+\chi_{1221}\delta_{il}\delta_{jk}.\tag{5}$$

三阶非线性极化与电场的一般关系式为[1]

$$P_i(\omega_o+\omega_n+\omega_m)=\varepsilon_0 D'\sum_{jkl}\chi_{ijkl}(\omega_o+\omega_n+\omega_m;\ \omega_o,\omega_n,\omega_m)E_j(\omega_o)E_k(\omega_n)E_l(\omega_m),\tag{6}$$

式中:简并因子 D' 表示 ω_o、ω_n、ω_m 3 个输入场频率不同排列的数目;光场振幅 E 的下角标 j、k、l 表示偏振

* 国家自然科学基金资助项目(12174031, 91950108);北京师范大学校级教学改革资助项目(21-03-14)
† 通信作者:弓文平(1976—),女,博士,高级工程师. 研究方向:非线性光学. E-mail: wpgong@bnu.edu.cn
收稿日期:2024-01-08

方向, 其后的圆括号内表示相应的频率.

为了建立统一理论, 对各向同性介质中三阶非线性极化的矢量表达式[16]进行推导. 式(6)中对光场振幅的记法: 用 E_j、F_k、G_l表示频率分别为 ω_{E}、ω_{F}、ω_{G}, 且偏振方向分别为 j、k、l的光场振幅, 而略去光场振幅后圆括号内的频率信息. 则频率 $\omega_{\mathrm{P}}=\omega_{\mathrm{E}}+\omega_{\mathrm{F}}+\omega_{\mathrm{G}}$的三阶极化为

$$P_i(\omega_{\mathrm{P}})=\varepsilon_0 D\sum_{jkl}\chi_{ijkl}(\omega_{\mathrm{P}};\omega_{\mathrm{E}},\omega_{\mathrm{F}},\omega_{\mathrm{G}})E_jF_kG_l, \tag{7}$$

式(7)中的简并因子 D表示 ω_{E}、ω_{F}、ω_{G}3 个输入场频率不同排列的数目.

将式(5)代入式(7), 利用克罗内克尔符号的定义可得

$$P_i(\omega_{\mathrm{P}})=\varepsilon_0 D\left(\chi_{1122}E_i\sum_{kl}\delta_{kl}F_kG_l+\chi_{1212}F_i\sum_{jl}\delta_{jl}E_jG_l+\chi_{1221}G_i\sum_{jk}\delta_{jk}E_jF_k\right), \tag{8}$$

式(8)可等价为

$$P_i(\omega_{\mathrm{P}})=\varepsilon_0 D(\chi_{1122}E_i(\boldsymbol{F}\cdot\boldsymbol{G})+\chi_{1212}F_i(\boldsymbol{G}\cdot\boldsymbol{E})+\chi_{1221}G_i(\boldsymbol{E}\cdot\boldsymbol{F})), \tag{9}$$

进而得到各向同性介质三阶极化矢量形式的表达式

$$\boldsymbol{P}(\omega_{\mathrm{P}})=\varepsilon_0 D(\chi_{1122}\boldsymbol{E}(\boldsymbol{F}\cdot\boldsymbol{G})+\chi_{1212}\boldsymbol{F}(\boldsymbol{G}\cdot\boldsymbol{E})+\chi_{1221}\boldsymbol{G}(\boldsymbol{E}\cdot\boldsymbol{F})), \tag{10}$$

式中: $\boldsymbol{E}$、$\boldsymbol{F}$、$\boldsymbol{G}$表示频率分别为 ω_{E}、ω_{F}、ω_{G}的光场振幅矢量; 运算符号“$\cdot$”表示点乘; 极化场 $\boldsymbol{P}$的频率 $\omega_{\mathrm{P}}=\omega_{\mathrm{E}}+\omega_{\mathrm{F}}+\omega_{\mathrm{G}}$.

2　典型三阶非线性光学效应的统一理论体系

任意频率组合的光入射到各向同性介质, 包括单光束、频率相同的多光束和频率不同的多光束, 所产生的三阶极化都可以利用式(10)进行描述. 其中, 只需将参与相互作用的 3 个光场复振幅分别代入式(10)中的 $\boldsymbol{E}$、$\boldsymbol{F}$、$\boldsymbol{G}$即可.

2.1　三次谐波　三次谐波是最简单的三阶效应, 它对应的量子过程是 3 个相同频率的光子湮灭并伴随一个频率增至 3 倍的光子产生. 各向同性介质中的三次谐波产生具有以下特点: 出射光的偏振状态与入射光的完全相同; 如果入射光为单一手性的圆偏振光, 则不可能产生三次谐波[10–11].

利用式(10)描述三次谐波的产生, 此时输入场只有 1 个, 参与三次谐波产生的光场复振幅都为 $\boldsymbol{E}$, 简并因子 $D=1$. 利用式(10)和(4), 三阶极化为

$$\boldsymbol{P}(3\omega)=\varepsilon_0\chi_{1111}(\boldsymbol{E}\cdot\boldsymbol{E})\boldsymbol{E}, \tag{11}$$

式中 $\chi_{1111}=\chi_{1111}(3\omega;\omega,\omega,\omega)$. 由式(11)可知, 三阶极化 $\boldsymbol{P}(3\omega)$与输入场 $\boldsymbol{E}$只相差一个系数, 所以三次谐波的偏振状态与入射光完全相同. 此外, 单一手性的圆偏振光激发时, 关注式(11)中的($\boldsymbol{E}\cdot\boldsymbol{E}$)项, 左旋和右旋圆偏振光的琼斯矢量分别为

$$\boldsymbol{\sigma}^+=\frac{1}{\sqrt{2}}\begin{pmatrix}1\\ i\end{pmatrix},\quad \boldsymbol{\sigma}^-=\frac{1}{\sqrt{2}}\begin{pmatrix}1\\ -i\end{pmatrix}. \tag{12}$$

容易得到

$$\boldsymbol{\sigma}^\pm\cdot\boldsymbol{\sigma}^\pm=0,\quad \boldsymbol{\sigma}^\pm\cdot\boldsymbol{\sigma}^\mp=1, \tag{13}$$

因此, 只有单一手性的圆偏振光入射时, 三阶极化 $\boldsymbol{P}(3\omega)$必定为 0, 也就不可能有三次谐波产生. 这个结论与文献 [10–11] 的报道一致, 证明了式(10)的适用性, 证明过程比文献的更加简洁.

2.2　非线性折射率　与三阶非线性折射率相关的非线性电极化不涉及频率的变化, 所对应 3 个输入场的频率分别为 ω、ω、$-\omega$. 考虑自相互作用的情况, 参与相互作用的光场复振幅分别为 $\boldsymbol{E}$、$\boldsymbol{E}$、$\boldsymbol{E}^*$, 简并因子 $D=3$, 利用式(10)可得三阶极化

$$\boldsymbol{P}(\omega)=3\varepsilon_0(2\chi_{1122}(\boldsymbol{E}\cdot\boldsymbol{E}^*)\boldsymbol{E}+\chi_{1221}(\boldsymbol{E}\cdot\boldsymbol{E})\boldsymbol{E}^*), \tag{14}$$

式(14)中利用了内禀置换对称性

$$\chi_{1122}(\omega;\omega,\omega,-\omega)=\chi_{1212}(\omega;\omega,\omega,-\omega).$$

文献 [1] 和 [13] 均从极化率出发得到了式(14), 并基于此研究了各向同性介质中的克尔效应, 发现椭圆偏振光入射时, 椭圆长轴的方向随传播距离旋转.

进一步将式(14)拓展到交叉相互作用, 当泵浦波为 $\boldsymbol{E}$, 探测波为 $\boldsymbol{F}$, 并考虑强波 $\boldsymbol{E}$对于同频率弱波 $\boldsymbol{F}$的折射率的影响, 参与相互作用的光场复振幅分别为 $\boldsymbol{E}$、$\boldsymbol{F}$、$\boldsymbol{E}^*$. 因为 $\boldsymbol{E}$和 $\boldsymbol{F}$在物理上可区分, 所以 ω、ω、$-\omega$实际上有 6 种不同的排列, 简并因子 $D=6$. 相应的三阶极化为

$$\boldsymbol{P}(\omega)=6\varepsilon_0(\chi_{1122}(\boldsymbol{F}\cdot\boldsymbol{E}^*)\boldsymbol{E}+(\boldsymbol{E}^*\cdot\boldsymbol{E})\boldsymbol{F}+\chi_{1221}(\boldsymbol{E}\cdot\boldsymbol{F})\boldsymbol{E}^*). \tag{15}$$

由式(14)和(15)可知, 交叉耦合效应的非线性折射率系数是对应自作用效应的 2 倍, 即弱波滞后效应[1, 17]. 故此, 式(14)和(15)证明了式(10)对于光学克尔效应的各种形式都是适用的, 并且以统一的方式得到了不同情况下的结果.

2.3 简并四波混频 复振幅彼此互为复共轭的 2 个波互为相位共轭波. 标量近似时, 复共轭要求包括振幅和波矢. 如果 2 个波的偏振单位矢量也满足该复共轭要求, 则这 2 个波彼此互称矢量相位共轭波. 实现相位共轭的方法之一是简并四波混频, 该方法中, 包括 2 束对向入射非线性介质的泵浦波$\boldsymbol{B}$、$\boldsymbol{F}$和一束沿z轴方向传播的信号波$\boldsymbol{S}$, 从而产生沿$-z$轴方向传播的$\boldsymbol{S}$的相位共轭波[1]. 如果进一步要求相位共轭波具有矢量共轭的性质, 则对非线性介质的极化率或泵浦波的偏振状态有一定的要求. 例如, 在各向同性介质中, 一种方法是选择$\chi_{1122}=0$的非线性介质[18–20], 另一种方法是使用偏振旋转方向相反的圆偏振光泵浦[14, 21].

将式(10)应用于简并四波混频过程, 参与相互作用的光场复振幅分别为$\boldsymbol{B}$、$\boldsymbol{F}$、$\boldsymbol{S}^*$, 得到非线性极化为

$$\boldsymbol{P}(\omega)=6\varepsilon_0(\chi_{1122}(\boldsymbol{B}(\boldsymbol{F}\cdot\boldsymbol{S}^*)+\boldsymbol{F}(\boldsymbol{S}^*\cdot\boldsymbol{B}))+\chi_{1221}\boldsymbol{S}^*(\boldsymbol{B}\cdot\boldsymbol{F})). \tag{16}$$

在简并四波混频产生相位共轭的过程中, 泵浦波$\boldsymbol{B}$和$\boldsymbol{F}$的传播方向近似沿着$\pm z$轴, 即只考虑它们沿x和y方向的偏振分量. 由此可得

$$P_x=6\varepsilon_0((\chi_{1111}B_xF_x+\chi_{1221}B_yF_y)S_x^*+\chi_{1122}(B_xF_y+B_yF_x)S_y^*), \tag{17}$$

$$P_y=6\varepsilon_0((\chi_{1111}B_yF_y+\chi_{1221}B_xF_x)S_y^*+\chi_{1122}(B_yF_x+B_xF_y)S_x^*), \tag{18}$$

写成矩阵形式

$$\begin{pmatrix}P_x\\P_y\end{pmatrix}=6\varepsilon_0\boldsymbol{A}\begin{pmatrix}S_x^*\\S_y^*\end{pmatrix},$$

$$A=\begin{pmatrix}\chi_{1111}B_xF_x+\chi_{1221}B_yF_y & \chi_{1122}(B_xF_y+B_yF_x)\\ \chi_{1122}(B_yF_x+B_xF_y) & \chi_{1111}B_yF_y+\chi_{1221}B_xF_x\end{pmatrix}. \tag{19}$$

根据式(19)可分析出前述产生矢量相位共轭的理论要求[1], 即要使式(19)中系数矩阵的非对角元为零, 需要选择$\chi_{1122}=0$的非线性介质或使用偏振旋转方向相反的圆偏振光泵浦. 与文献 [1] 中的相关研究相比, 利用本文的三阶极化式(10)更简单、直接, 因为文献 [1] 中需要从 54 个三阶极化项中挑选出能对相位共轭波的产生做出贡献的 4 项极化, 而式(10)已经将参与相互作用的 3 个光场复振幅做出区分, 避免了进行繁冗的展开和提取.

3 拓展应用

三阶极化表达式(10)适用于各向同性介质, 类似地, 其推导方法也能应用于其他对称性晶体. 对于六角晶系的D_6、C_{6v}、D_{6h}、D_{3h}这 4 个点群, 它们的入射场不涉及z坐标的三阶极化率张量元需满足关系:

$$\chi_{1122}=\chi_{2211}, \tag{20}$$

$$\chi_{1212}=\chi_{2121}, \tag{21}$$

$$\chi_{1221}=\chi_{2112}, \tag{22}$$

$$\chi_{1111}=\chi_{2222}=\chi_{1122}+\chi_{1212}+\chi_{1221}. \tag{23}$$

式(20)~(23)与关系式(1)~(4)完全相同. 所以, 当入射光沿晶体主轴方向传播, 即入射场偏振为垂直于主轴的二维矢量时, 相应的三阶极化表达式与各向同性介质中的结果式(10)完全相同. 故此, 在属于点群D_6、C_{6v}、D_{6h}和D_{3h}的晶体中也有单一手性的圆偏振光沿主轴方向入射晶体时, 不能产生三次谐波. 文献 [15] 正是利用了这一性质, 在属于D_{3h}点群的单层 MoS_2 中, 实现了手性光入射的三次谐波全光调制.

类似地, 根据式(10)还可以分析 2 束圆偏振光垂直入射该类晶体时, 四波混频产生对入射光手性组合的依赖. 文献 [22] 根据相关原理在单层 MoS_2 中构建了全光手性逻辑门.

对于六角晶系的其他 3 个点群C_6、C_{3h}和C_{6h}, 虽然独立的张量元数目增加了[1], 但仍然可以通过推导, 得到三阶极化表达式为

$$\boldsymbol{P}=\varepsilon_0D\big(\chi_{1122}\boldsymbol{E}(\boldsymbol{F}\cdot\boldsymbol{G})+\chi_{1212}\boldsymbol{F}(\boldsymbol{E}\cdot\boldsymbol{G})+\chi_{1221}\boldsymbol{G}(\boldsymbol{E}\cdot\boldsymbol{F})+\chi_{1121}\boldsymbol{E}((\boldsymbol{G}\times\boldsymbol{F})\cdot\hat{z})+\chi_{1211}\boldsymbol{F}((\boldsymbol{G}\times\boldsymbol{E})\cdot\hat{z})+\chi_{2111}(\boldsymbol{E}\cdot\boldsymbol{F})\boldsymbol{T}\boldsymbol{G}\big), \tag{24}$$

式中$\boldsymbol{T}$是一个常数矩阵, 且有

$$\boldsymbol{T}=\begin{pmatrix}0&-1\\1&0\end{pmatrix}. \tag{25}$$

式(24)中有 3 项与式(10)完全相同, 而增加的 3 项中涉及了叉乘. 对于左旋和右旋圆偏振光的琼斯矢量, 除了有点乘关系, 如式(13)外, 还有叉乘关系

$$\boldsymbol{\sigma}^{\pm}\times\boldsymbol{\sigma}^{\pm}=0, \boldsymbol{\sigma}^{\pm}\times\boldsymbol{\sigma}^{\mp}=\mp\mathrm{i}\hat{z}. \tag{26}$$

所以, 根据式(13)、(26)及式(10)、(24)可以得出如下结论: 对于六角晶系的所有晶体, 当单一手性的圆偏振光沿主轴方向入射晶体时, 均不能产生三次谐波. 这些结果再次证明, 以式(10)为基础的统一理论不仅对各向同性材料适用, 通过同样的推导思路, 也可以用于描述六角晶系材料.

光的偏振信息在生物医药研究[23]、全光调制[24]、光子存储和偏振复用计算[25]等领域具有重要作用, 式(10)和(24)的矢量形式被用于研究偏振信息时非常方便. 以此为基础进行相关分析, 还有望获得更多的光学性质.

4 结束语

在各向同性介质中推导了矢量形式的三阶极化表达式，它可适用于各向同性介质中的各种三阶非线性光学效应，并且以更加简单和直接的方式得到了一致的结论，从而可将各向同性介质中的各种三阶效应都统一在一个理论体系中．同时，基于对称性分析所给出的极化率张量元关系，用矢量形式表达非线性极化的方法，能够洞见丰富的物理规律．例如，该方法可拓展至六角晶系材料中，以描述特殊角度入射时所产生的三阶非线性光学效应．本研究提出的理论和分析，可适用于传统块状材料（例如熔融石英）和二维材料（例如单层过渡金属二硫化物）．由于仅对晶体的对称性有要求，相应的结论在超构材料和超构表面中仍然成立，这可为非线性光学的发展提供理论指导．建立各向同性介质的三阶非线性极化统一理论，对于系统地理解各向同性介质和六角晶系介质中的三阶非线性光学效应具有重要意义，可为相关领域的应用提供理论支持，并希望能促进非线性光学在频率转换、偏振态检测、量子光源产生等领域的应用；对促进非线性光学的发展和未来的研究奠定坚实的理论基础．

5 参考文献

[1] BOYD R W. Nonlinear optics [M]. 4th ed. London: Academic Press, 2020: 20

[2] 沈元壤. 非线性光学原理 [M]. 顾世杰，译. 北京：科学出版社，1987

[3] KAURANEN M, ZAYATS A V. Nonlinear plasmonics[J]. Nature Photonics, 2012, 6: 737

[4] LAPINE M, SHADRIVOV I V, KIVSHAR Y S. Colloquium: nonlinear metamaterials[J]. Reviews of Modern Physics, 2014, 86(3): 1093

[5] 邓俊鸿，李贵新. 非线性光学超构表面 [J]. 物理学报，2017, 66(14): 200

[6] DÉBARRE D, SUPATTO W, PENA A M, et al. Imaging lipid bodies in cells and tissues using third-harmonic generation microscopy[J]. Nature Methods, 2006, 3: 47

[7] INGRAM P, JERRARD H G. Measurement of relaxation times of macromolecules by the Kerr effect[J]. Nature, 1962, 196: 57

[8] YARIV A, PEPPER D M. Amplified reflection, phase conjugation, and oscillation in degenerate four-wave mixing[J]. Optics Letters, 1977, 1(1): 16

[9] SEFLER G A, KITAYAMA K I. Frequency comb generation by four-wave mixing and the role of fiber dispersion[J]. Journal of Lightwave Technology, 1998, 16(9): 1596

[10] BUTCHER P N, COTTER D. The elements of nonlinear optics[M]. Cambridge: Cambridge University Press, 1990

[11] BEY P P, GIULIANI J F, RABIN H. Linear and circular polarized laser radiation in optical third harmonic generation[J]. Physics Letters A, 1968, 26(3): 128

[12] BEY P P, RABIN H. Coupled-wave solution of harmonic generation in an optically active medium[J]. Physical Review, 1967, 162(3): 794

[13] MAKER P D, TERHUNE R W, SAVAGE C M. Intensity-dependent changes in the refractive index of liquids[J]. Physical Review Letters, 1964, 12(18): 507

[14] ZEL'DOVICH B Y, SHKUNOV V V. Spatial-polarization wavefront reversal in four-photon interaction[J]. Soviet Journal of Quantum Electronics, 1979, 9(3): 379

[15] ZHANG Y, BAI X Y, ARIAS MUÑOZ J, et al. Coherent modulation of chiral nonlinear optics with crystal symmetry[J]. Light: Science & Applications, 2022, 11: 216

[16] 杨国霞，弓文平，刘大禾，等. 各向同性介质的三阶极化率张量元分析 [J]. 大学物理，2022, 41(12): 22

[17] CHIAO R Y, KELLEY P L, GARMIRE E. Stimulated four-photon interaction and its influence on stimulated rayleigh-wing scattering[J]. Physical Review Letters, 1966, 17(22): 1158

[18] GRYNBERG G. Polarization characteristics of a two-photon phase conjugate mirror[J]. Optics Communications, 1984, 48(6): 432

[19] KAURANEN M, GAUTHIER D J, MALCUIT M S, et al. Polarization properties of optical phase conjugation by two-photon resonant degenerate four-wave mixing[J]. Physical Review A, 1989, 40(4): 1908

[20] MALCUIT M S, GAUTHIER D J, BOYD R W. Vector phase conjugation by two-photon-resonant degenerate four-wave mixing[J]. Optics Letters, 1988, 13(8): 663

[21] MARTIN G, LAM L K, HELLWARTH R W. Generation of a time-reversed replica of a nonuniformly polarized image-bearing optical beam[J]. Optics Letters, 1980, 5(5): 185

[22] ZHANG Y, WANG Y D, DAI Y Y, et al. Chirality logic gates[J]. Science Advances, 2022, 8(49): eabq8246

[23] OHNOUTEK L, KIM J Y, LU J, et al. Third-harmonic Mie scattering from semiconductor nanohelices[J]. Nature Photonics, 2022, 16: 126

[24] KLIMMER S, GHAEBI O, GAN Z Y, et al. All-optical polarization and amplitude modulation of second-harmonic generation in atomically thin semiconductors[J]. Nature Photonics, 2021, 15: 837

[25] LEE J S, FARMAKIDIS N, WRIGHT C D, et al. Polarization-selective reconfigurability in hybridized-active-dielectric nanowires[J]. Science Advances, 2022, 8(24): eabn9459

Universal theory of third-order nonlinear polarization in isotropic media

YANG Guoxia LI Haojie LÜ Bokun JIA Qianwen LIU Dahe SHI Jinwei GONG Wenping

(Applied Optics Beijing Area Major Laboratory, Key Laboratory of Multiscale Spin Physics of Ministry of Education, Department of Physics, Beijing Normal University, Beijing, China)

Abstract Vector expression of third-order nonlinear polarization in isotropic media is derived, which is suitable for multiple beams incidence with different frequencies. This expression is applied to elucidate multiple well-known and distinct nonlinear optical phenomena, thereby validating its universality and accuracy. This offers a unified description of third-order nonlinear optical effects in isotropic media. By extending its application to hexagonal materials, this expression offers straightforward solutions to a variety of complex cases. This study is crucial for a systematic understanding of third-order nonlinear optical effects in both isotropic media and hexagonal materials, with the potential to enhance application of nonlinear optics in fields such as frequency conversion, polarization detection, and quantum information.

Keywords nonlinear optics; third-order nonlinear polarization; isotropic media; third-harmonic; nonlinear refractive index; degenerate four-wave mixing

【责任编辑: 陆有忠】