

文章编号: 0253-2239(2001)05-0538-03

手性介质中椭圆偏振光诱导非线性旋光的表征*

辛 丽 李俊庆 张学如 李淳飞

(哈尔滨工业大学应用物理系, 哈尔滨 150001)

摘要: 给出了方便实用的计算非线性旋光角 $\Delta\theta$ 的公式, 在理论上分析了非线性旋光角随椭圆特征参量改变的变化规律, 给出了数值模拟的结果, 并针对具体手性材料与入射光强估算了非线性旋光角的量级。

关键词: 手性介质; 非线性旋光; 椭圆偏振光

中图分类号: O437 文献标识码: A

1 引 言

近年来手性介质以其特有的结构特性引起人们的关注, 寻找和合成性能良好的手性材料, 以及对手性介质的光学非线性进行理论表征与实验研究已成为光学领域的一个研究热点^[1,2]。国际上对手性介质的非线性光学性质研究是从 80 年代开始的, 在理论表征、机制分析和实验研究方面都取得了一定的进展^[3,4], 莫斯科大学近年来开展了这方面的理论研究工作。哈尔滨工业大学物理系非线性光学研究室从 1996 年就开始研究光的非线性偏振现象, 与长春应用化学研究所和莫斯科大学等单位合作研究, 取得了一些新的研究成果^[5-7]。

激光诱导的非线性相移与非线性吸收是很多非线性光学器件设计的依据, 实际上也能通过这种方法实现对光的偏振态的控制, 当强光通过手性介质时可产生非线性旋光现象^[8,9]。强光作用于手性介质中左、右圆偏振光不同的非线性相移是产生非线性旋光的主要原因。另外通过非线性旋光角的测量, 可提供一种测量材料的非线性极化率矩阵元的方法^[10]。本文给出了一个计算非线性旋光角的公式, 并分析了非线性旋光角与其它物理参量的关系。

2 光强诱导非线性旋光的理论

一束椭圆偏振光在各向同性手性介质中传播时可以分解为左旋和右旋圆偏振光两部分, 即:

$$E = E_+ \sigma_+ + E_- \sigma_- ,$$

σ_+ 、 σ_- 为圆偏振单位矢量, E_+ 、 E_- 为左右圆偏振光

的振幅。由于左右圆偏振光是以不同的相速度传播的, 对应左右圆偏振光介质的非线性折射率分别为 n_+ 、 n_- , 则折射率之差为^[11]

$$\Delta n = n_+ - n_- = \frac{2\pi B}{n_0} (|E_+|^2 - |E_-|^2), \quad (1)$$

其中 n_0 是弱场情况下的折射率, $B = 6\chi_{1212} \cdot \chi_{1212}$ 为三阶极化率的矩阵元。强光诱导的三阶效应会产生折射率的非线性变化:

$$n = n_0 + \Delta n(I), \quad (2)$$

其中 $\Delta n(I)$ 是折射率的非线性变化项, 是产生非线性旋光的主要原因。手性介质中折射率的变化必将引起旋光效应的改变, 旋光率可写成一般的形式:

$$\rho = \rho_0 + \Delta\rho(I), \quad (3)$$

其中 ρ_0 是弱场情况下的旋光率, $\Delta\rho(I)$ 是与光强有关的非线性旋光率, 相应的旋光角也可表示成

$$\theta = \theta_0 + \Delta\theta(I), \quad (4)$$

其中 θ_0 是弱场情况下的旋光角, $\Delta\theta(I)$ 是与光强有关的非线性旋光角。

入射的椭圆偏振光经厚度为 h 的手性介质后由折射率变化引起的相位差的改变为 $(2\pi/\lambda)\Delta n h$, 则出射的椭圆偏振光为

$$\begin{aligned} E(z) = & E_+ \sigma_+ + E_- \sigma_- = \\ & A_+ \exp(jn_+ \omega h/c) \sigma_+ + \\ & A_- \exp(jn_- \omega h/c) \sigma_- = \\ & [|E_+| \exp(j\Delta n \omega h/2c) \sigma_+ + \\ & |E_-| \exp(-j\Delta n \omega h/2c) \sigma_-] \times \\ & \exp[j(n_- + 1/2\Delta n) \omega h/c]. \end{aligned}$$

椭圆偏振光主轴非线性旋转的角度为

$$\Delta\theta = \frac{1}{2} \Delta n \frac{\omega}{z} h,$$

* 哈尔滨工业大学校内基金资助项目。

收稿日期: 1999-11-30; 收到修改稿日期: 2000-03-13

由(4)式可得,

$$\Delta\theta = \frac{\pi B\omega}{n_0 c} (|E_-|^2 - |E_+|^2)h. \quad (5)$$

线偏振光入射时, $|E_-|^2 = |E_+|^2, \Delta n = 0$; 即仅当椭圆偏振光入射时, 有 $\Delta n \neq 0$ 存在; 圆偏振光入射时 Δn 最大。即考虑强光诱导的三阶效应的情况下, 当入射光为椭圆偏振光时, 出射的椭圆偏振光的主轴将旋转 $\Delta\theta$ 角, 旋转的方向由 Δn 的正负决定。

3 用椭圆的特征参量来表征非线性旋光角

由(5)式可看出, 通过测量 $\Delta\theta$ 可得到 Δn 的数值。但如果已知椭圆偏振态的特征量, 无法用上述公式直接计算出 Δn 的数值, 所以比较有意义的工作是将折射率改变公式用椭圆的特征量来表示。

椭圆偏振光的参量中, 以 A 表示振幅, δ 表示绝对相位角, 即 $t = 0$ 时刻电矢量的初始位置与椭圆主轴间的夹角, θ 表示方位角, 即椭圆主轴与 x 轴正方向间的夹角, ϵ 表示椭率角。

任意的椭圆偏振光可以分解为左右圆偏振光之和, 左右圆偏振光可以用椭圆的特征参量表示如下:

$$\begin{bmatrix} E_+ \\ E_- \end{bmatrix} = \frac{1}{\sqrt{2}} A \exp(j\delta) \begin{bmatrix} \cos\epsilon - \exp(j\theta)\sin\epsilon \\ \cos\epsilon + \exp(-j\theta)\sin\epsilon \end{bmatrix}. \quad (6)$$

适当选取坐标系使得初始时刻椭圆长轴与笛卡尔坐标系中 x 轴重合, 则 $\theta = 0$, 上式简化为

$$\begin{bmatrix} E_+ \\ E_- \end{bmatrix} = \frac{1}{\sqrt{2}} A \exp(j\delta) \begin{bmatrix} \cos\epsilon - \sin\epsilon \\ \cos\epsilon + \sin\epsilon \end{bmatrix}, \quad (7)$$

$$|E_-|^2 - |E_+|^2 = A^2 \exp(2j\delta) \sin 2\epsilon, \quad (8)$$

则

$$\Delta n = \frac{2\pi B}{n_0} (|E_-|^2 - |E_+|^2) = \frac{2\pi B}{n_0} A^2 \exp(2j\delta) \sin 2\epsilon, \quad (9)$$

$$\Delta\theta = \frac{1}{2} \Delta n \frac{\omega}{c} h = \frac{\pi B\omega A^2}{n_0 c} \exp(2j\delta) \sin(2\epsilon) h. \quad (10)$$

一种材料确定之后, n_0, B 就确定了。非线性旋光角只与人射光的频率 ω 和椭圆的特征参量有关。在 CGS 单位制中光强与场之间的关系为:

$$I = \frac{nc}{2\pi} |E|^2,$$

对于椭圆偏振光振幅的平方可表示成振幅沿两个垂直方向的振动分量的平方和, 即

$$|E|^2 = A^2 = E_x^2 + E_y^2.$$

光强 I 的取值范围一般在 $(0 \sim 10) \times 10^6 \text{ W/cm}^2$ 左右, 振幅平方的取值范围为: $0 \sim 1.8 \times 10^9 \text{ V}^2/\text{cm}^2$ 。设

$$C' = \frac{\pi B\omega}{n_0 c} \exp(2j\delta),$$

则(10)式可简化成:

$$\Delta\theta = C' A^2 \sin(2\epsilon).$$

图 1 给出了 $\Delta\theta$ 与光强 I 及椭率角 ϵ 的关系曲线。

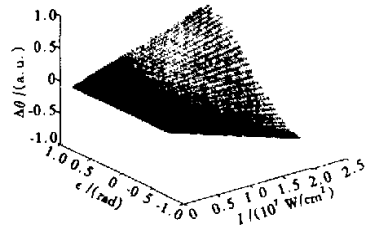


Fig. 1 Nonlinear rotating angle versus ellipticity angle and intensity of incidence light

通过分析可以得到如下结论:

已知椭圆的特征参量可用(9)式直接计算出 Δn , (9) 式方便实用; Δn 和 $\Delta\theta$ 的数量级主要由 $\chi^{(3)}$ 及光强的量级决定, 而且是单调函数, 二次曲面上没有极值点; $\epsilon = \pm \pi/4$, 分别对应左旋和右旋圆偏振光, 此时只有单一的圆偏振态存在, Δn 最大; $\epsilon = 0$ 时, $\Delta n = 0$, 则 $\Delta\theta = 0$, 说明线偏振光入射时, 非线性旋光角为零; $\Delta\theta$ 正比与 A^2 , 比例系数呈正弦变化。

图 2 给出了非线性旋光角与振幅的关系曲线, 从曲线 a 到曲线 d 椭率角依次减小。从曲线中可以看出在振幅一定的情况下, 椭率角越大, 非线性旋光角越大, 非线性旋光角随光强的变化率越大。

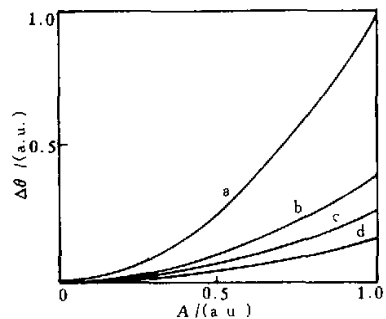


Fig. 2 Curve of nonlinear rotating angle versus amplitude of incident light

下面计算具体材料的非线性旋光角。由于大的共轭 π 键的作用, 手性分子表现出较大的三阶非线性

性和较强的旋光性。因此选取手性介质聚乙烯撑噻唛烯(P-thienylenevinylene)的参数来计算非线性旋光角。参数选取如下^[8]: $\chi^{(3)} = 3.2 \times 10^{-11}$ esu, $B = 10^{-12}$ esu, $n_0 = 1.45$ 。入射的椭圆偏振光的 $\omega_0 = 5 \times 10^{15}$ rad/s, $c = 3 \times 10^{10}$ cm/s, $z = 1$ mm, 光强量级一般为 $I = 10 \times 10^6$ W/cm², 根据光强与场强之间的关系, 椭圆偏振光的振幅在 CGS 单位制为: $E = 43420.7$ V/cm, 绝对相位 $\delta = 0$, 椭率角 $\epsilon = 8\pi/9$, 经计算, 折射率的改变 $\Delta n = 0.904 \times 10^{-7}$ cm⁻²/W, 非线性旋光角 $\Delta\theta = 0.043^\circ/\text{mm}$ 。

常用的测量椭圆偏光旋光角的方法有: 光外差法, 直接测量法, 反射方法等。其中光外差方法测量精度可达到 $(10^6)^\circ$ 。另外由上面的讨论也可以看出: 通过测量 $\Delta\theta$ 的大小可计算出 B , 从而得到介质的 χ_{1212} 、 χ_{1221} , 可见这也是一种测量三阶光学非线性极化率矩阵元的方法, 且该方法的精度高、误差小。

结论 经过推导, 给出了用椭圆的特征参量来表示的既实用又方便的计算非线性旋光角的公式:

$$\Delta\theta = \frac{\pi B \omega A^2}{n_0 c} \exp(2j\delta) \sin(2\epsilon) h.$$

分析了随椭圆特征参量的改变非线性旋光角的变化规律。通过对非线性旋光角的估算, 可知一般材料的非线性旋光角的量级在 $0.043^\circ/\text{mm}$ 左右。

参 考 文 献

[1] Maki J J, Persoons A. Surface second-harmonic generation

from chiral materials. *Phys. Rev. (B)*, 1995, **51**(3): 1425~1434

- [2] Mallow T P, Wang T M, Byers J D *et al.*. Circular dichroism spectroscopy at interface second harmonic generation study. *J. Phys. Chem.*, 1993, **97**(7):1383~1388
- [3] Verbist T, Kauranen M, Persoons A. Optical activity of anisotropic achiral surfaces. *J. Opt. Soc. Am. (B)*, 1998, **15**(1):451~457
- [4] Nelson D F, Ivanov A L. Alternative explanation of specular optical activity. *Opt. Lett.*, 1998, **23**(2):86~88
- [5] 李俊庆, 李淳飞, 辛 丽 等. 非导电型各向同性手性介质中非线性旋光的宏观理论. *物理学报*, 1999, **48**(6): 1052~1059
- [6] 李俊庆, 辛 丽, 张学如 等. 基于螺旋单电子模型的手性分子的三阶非线性极化率. *光子学报*, 1998, **27**(10): 901~905
- [7] 李俊庆, 李淳飞, 辛 丽 等. 手性介质中的自诱导非线性旋光. *光学学报*, 2000, **20**(6):762~768
- [8] Mitsui T, Sakurai K. Precise measurement of the reflection index and optical rotatory power of a suspension by a delayed optical heterodyne technique. *Appl. Opt.*, 1996, **35**(13):2253~2258
- [9] Ashitaka H, Yokoh Y, Shimizu R *et al.*. Chiral optical nonlinearity of helicenes. *Nonlinear Optics*, 1993, **4**(4): 281~297
- [10] Chien Chou, Yeuchuen Huang, Ming Chang. Precise optical activity measurement of quartz plate by using a true phase-sensitive technique. *Appl. Opt.*, 1997, **36**(16): 3604~3609
- [11] Boyd Robert. *Nonlinear Optics*. San Diego: Academic Press Limited, 1992. 169~170

Expresses of Nonlinear Optical Activity Induced by The Elliptical Polarized Light in Chiral Media

Xin Li Li Junqing Zhang Xueru Li Chunfei

(Department of Applied Physics, Harbin Institute of Technology, Harbin 150001)

(Received 30 November 1999; revised 13 March 2000)

Abstract: The refractive index of many materials depends upon the intensity of the light propagating through it. The optical activity will be varied due to the changed refractive index. The practical formulation of Δn is given. The characteristic about the nonlinear optical activity vs. elliptically character parameter is analyzed. The nonlinear rotation angle of chiral medium (P-thienylenevinylene) under normal optical field is calculated.

Key words: chiral media; nonlinear optical activity; elliptically polarized light