

非导电型各向同性手性介质中 非线性旋光的宏观理论

李俊庆 李淳飞 辛 丽 刘树田

(哈尔滨工业大学物理系, 哈尔滨 150001)

塔·米·伊丽依诺娃 尼·伊·科罗迪耶夫

(国立莫斯科大学物理系及国际激光中心, 莫斯科 119899)

(1998 年 11 月 2 日收到)

采用经典电磁场理论描述非导电型各向同性手性介质, 研究了圆偏振抽运光作用下线偏振信号光的非线性旋光现象, 给出了非线性旋光角的解析表达式. 用该公式计算的结果与实验结果一致.

PACC: 4265; 7820E

1 引 言

自然科学中最吸引人的问题之一, 就是如何解释生命系统的“建筑材料”——有机分子存在着的左右两种非对称形式, 即所谓的手性(手征)现象^[1]. 左右两种分子组成的系统, 不具有对称中心或对称平面, 只可以通过镜像反演才能叠合.

旋光性是手性介质基本的物理性质. 用常规旋光方法, 诸如圆二色性(CD)和旋光色散(ORD)方法, 可以得到手性分子结构的一些信息, 但这些信息时常被溶剂极化产生的庞杂的“背景”淹没, 如何排除干扰获取有益的信息无疑是需要解决的关键问题^[2,3]. 激光与介质作用产生的非线性光学效应是探测手性分子结构的有效方法, 因此近几年来人们开始研究非线性旋光的方法. Petralli-Mallow 等人首先发现在手性分子表面产生二次谐波的效率与入射激光偏振态有关^[4]. Maki 等人在不同材料界面上进行了二次谐波实验^[5], 建立了一套基于螺旋单电子模型的二阶非线性旋光理论^[6], 并发展了一种灵敏的手性表面探测技术^[7]. 迄今涉及手性介质三阶光学非线性的报道不多. Il'inova 等人曾经研究过包括三阶非线性的光波与手性介质的相互作用^[8], 而 Unsbo 等人研究了手性介质的四波混频理论^[9], Ashitaka 等人测量过罗环分子组成的手性介质的光学非线性系数^[10]. 莫斯科大学物理系 Koroteev 教授领导的研究小组提出了一系列新的非线性旋光表征方法, 诸如基于手性介质中光整流和光伏打效应的表征方法^[11]、BioCARS 非线性旋光光谱方法^[12].

本文采用经典电磁场理论对非导电型各向同性手性介质进行了宏观描述, 在远离共振的条件下, 通过分析抽运光作用下同频率与同方向的信号光的传输过程, 研究了手性介

质的非线性旋光现象. 导出了非线性旋光角的表达式, 用此公式计算的结果与 Ashitaka 等人的实验结果一致.

2 手性介质中抽运光和信号光的非线性波方程

在非磁性的连续介质中, 由 Maxwell 方程组可以导出非线性波方程

$$\nabla \times \nabla \times \mathbf{E} + \frac{1}{c^2}(\ddot{\mathbf{D}}^L + 4\pi\dot{\mathbf{J}}^L) = -\frac{1}{c^2}(\ddot{\mathbf{D}}^{NL} + 4\pi\dot{\mathbf{J}}^{NL}), \quad (1)$$

其中 $\mathbf{E}$ 是介质中总的光频电场, $\mathbf{D}$ 是电位移, $\mathbf{J}$ 是介质中的电流密度, 这里已将它们分为线性和非线性两部分. 对非导电型介质, $\mathbf{J}^L = \mathbf{J}^{NL} = \mathbf{0}$, 只须考虑电位移部分.

在各向同性的手性介质中, 频率为 ω 的电位移的线性部分 $\mathbf{D}^L$ 可用线性介电常数 $\epsilon^{(1)}(\omega) = 1 + 4\pi\chi^{(1)}(\omega)$ 与一阶空间色散的手性回旋常数 $\gamma(\omega)$ 表示, 则有

$$\mathbf{D}^L(\omega) = \epsilon^{(1)}(\omega)\mathbf{E} + i\gamma(\omega)[\mathbf{n} \times \mathbf{E}] = \hat{\epsilon}_L(\omega, \mathbf{k})\mathbf{E}, \quad (2)$$

这里矢量 $\mathbf{n} = \mathbf{k}/k_0$, 其中 $k_0 = \omega/c$. 上式分量形式还可以通过 Kronecker δ 函数 δ_{ij} 及 Levi-Civita 反对称单位张量 ϵ_{ijk} 来描述:

$$D_i^L(\omega) = (1 + 4\pi\chi^{(1)}(\omega))\delta_{ij}E_j + i\gamma(\omega)\epsilon_{ijk}k_jE_k/k_0, \quad (3)$$

这里下脚标 i, j, k 代表 x, y, z . 上式隐含对重复下脚标的求和.

只考虑二次、三次极化, 电位移的非线性部分表为

$$\mathbf{D}^{NL}(\omega_c) = 4\pi(\mathbf{P}^{(2)}(\omega_c) + \mathbf{P}^{(3)}(\omega_c)) = 4\pi\mathbf{P}^{NL}(\omega_c), \quad (4)$$

其中 $\mathbf{P}^{(2)}(\omega_c) = i\chi^{(2)}(\omega_c)[\mathbf{E} \times \mathbf{E}_0]$, 它描述直流内电场 $\mathbf{E}_0$ 产生的电光效应(EOE).

设总光场包括抽运场和信号场, 分别为 $\mathbf{E}^P = \mathbf{E}_p \exp(-i\omega_p t) + \text{c. c.}$ 和 $\mathbf{E}^S = \mathbf{E}_s \exp(-i\omega_s t) + \text{c. c.}$, 则频率 $\omega_p, \omega_s, 2\omega_p - \omega_s, 2\omega_s - \omega_p$ 处介质的非线性响应分别与 $\mathbf{E}_p\mathbf{E}_p\mathbf{E}_p^*$ 和 $\mathbf{E}_p\mathbf{E}_s\mathbf{E}_s^*$, $\mathbf{E}_s\mathbf{E}_s\mathbf{E}_s^*$ 和 $\mathbf{E}_s\mathbf{E}_p\mathbf{E}_p^*$, $\mathbf{E}_p\mathbf{E}_p\mathbf{E}_s^*$, $\mathbf{E}_s\mathbf{E}_s\mathbf{E}_p^*$ 有关. 因信号场很弱, 可以忽略 $\mathbf{E}_s\mathbf{E}_s\mathbf{E}_p^*$, $\mathbf{E}_s\mathbf{E}_p\mathbf{E}_s^*$ 及 $\mathbf{E}_s\mathbf{E}_s\mathbf{E}_s^*$ 项. 进一步假定频率是简并的, 即 $\omega_p = \omega_s = \omega$, 可以由(1)式分别得到抽运光场和信号光场的非线性波方程

$$\nabla \times \nabla \times \mathbf{E}_p - \frac{\omega_p^2}{c^2}\hat{\epsilon}_L(\omega_p, \mathbf{k}_p)\mathbf{E}_p = 4\pi\frac{\omega_p^2}{c^2}\mathbf{P}_p^{NL}(\mathbf{E}_p, \mathbf{E}_s, \mathbf{E}_0), \quad (5)$$

$$\nabla \times \nabla \times \mathbf{E}_s - \frac{\omega_s^2}{c^2}\hat{\epsilon}_L(\omega_s, \mathbf{k}_s)\mathbf{E}_s = 4\pi\frac{\omega_s^2}{c^2}\mathbf{P}_s^{NL}(\mathbf{E}_p, \mathbf{E}_s, \mathbf{E}_0). \quad (6)$$

其中 $\mathbf{P}_p^{NL}(\mathbf{E}_p, \mathbf{E}_s, \mathbf{E}_0)$ 和 $\mathbf{P}_s^{NL}(\mathbf{E}_p, \mathbf{E}_s, \mathbf{E}_0)$ 分别为

$$\begin{aligned} \mathbf{P}_p^{NL}(\mathbf{E}_p, \mathbf{E}_s, \mathbf{E}_0) = & i\chi^{(2)}(\omega_p)[\mathbf{E}_p \times \mathbf{E}_0] + (\chi_1^p + \chi_2^p)\mathbf{E}_p(\mathbf{E}_p \cdot \mathbf{E}_p^*) + \chi_3^p\mathbf{E}_p^*(\mathbf{E}_p \cdot \mathbf{E}_p) \\ & + (\chi_1^p + \chi_2^p)\mathbf{E}_p(\mathbf{E}_p \cdot \mathbf{E}_s^*) + \chi_3^p\mathbf{E}_s^*(\mathbf{E}_p \cdot \mathbf{E}_p), \end{aligned} \quad (7)$$

$$\begin{aligned} \mathbf{P}_s^{NL}(\mathbf{E}_p, \mathbf{E}_s, \mathbf{E}_0) = & i\chi^{(2)}(\omega_s)[\mathbf{E}_s \times \mathbf{E}_0] + \chi_1^s\mathbf{E}_s(\mathbf{E}_p \cdot \mathbf{E}_p^*) + \chi_2^s\mathbf{E}_p(\mathbf{E}_s \cdot \mathbf{E}_p^*) \\ & + \chi_3^s\mathbf{E}_p^*(\mathbf{E}_p \cdot \mathbf{E}_s) + (\chi_1^s + \chi_2^s)\mathbf{E}_p(\mathbf{E}_p \cdot \mathbf{E}_s^*) + \chi_3^s\mathbf{E}_s^*(\mathbf{E}_p \cdot \mathbf{E}_p). \end{aligned} \quad (8)$$

这里 $\chi_i^{p,s}(i=1,2,3)$ 表示三阶极化率, 对各向同性的手性介质有

$$\begin{aligned}\chi_1^{p,s} &= D\chi_{1122}^{(3)}(\omega; \omega, \omega, -\omega), \chi_2^{p,s} = D\chi_{1212}^{(3)}(\omega; \omega, \omega, -\omega), \\ \chi_3^{p,s} &= D\chi_{1221}^{(3)}(\omega; \omega, \omega, -\omega),\end{aligned}\quad (9)$$

其中 D 为简并因子.

至于手性介质中的直流内电场 $\mathbf{E}_0$ 所对应的电位移 $\mathbf{D}_0$ 可以写为

$$\mathbf{D}_0 = \epsilon^{(1)}(0) \mathbf{E}_0 + i4\pi\chi^{(2)}(0)[\mathbf{E} \times \mathbf{E}^*] + 4\pi\chi^{(3)}(0)\mathbf{E}\mathbf{E}^*\mathbf{E}_0. \quad (10)$$

这里第二项描述光整流(OR)效应, 由二阶非线性极化率 $\chi^{(2)}(0) = \chi^{(2)}(0; \omega, -\omega)$ 表征; 第三项描述光整流场的饱和现象, 对应的三阶极化率 $\chi^{(3)}(0) = \chi^{(3)}(0; \omega, -\omega, 0)$. 当满足 $4\pi\chi^{(3)}(0)(\mathbf{E} \cdot \mathbf{E}^*) \ll \epsilon^{(1)}(0)$ 时, 可以忽略光整流场的饱和项, 由零频场的 Maxwell 方程组可以解得直流内电场 $\mathbf{E}_0$ 的表达式^[8]

$$\mathbf{E}_0 = -i \frac{4\pi\chi^{(2)}(0)}{\epsilon^{(1)}(0)} (\mathbf{E} \times \mathbf{E}^*). \quad (11)$$

3 手性介质中光波的正则表达式

若将单色电磁波写成

$$\mathbf{E} = \mathbf{A} \exp(-i\omega t + i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}), \quad (12)$$

线性波方程为

$$\mathbf{k} \times (\mathbf{k} \times \mathbf{A}) + \frac{\omega^2}{c^2} \hat{\epsilon}(\omega, \mathbf{k}) \mathbf{A} = 0, \quad (13)$$

设光波沿 Z 轴传播, 由(13)式的分量形式可得到对应的本征方程

$$\begin{vmatrix} -k^2 + k_0^2 n_0^2 & -i\gamma & 0 \\ i\gamma & -k^2 + k_0^2 n_0^2 & 0 \\ 0 & 0 & -k^2 + k^2 n_0^2 \end{vmatrix} = 0, \quad (14)$$

考虑到含空间色散的项为小量, 推导中取一级近似, 得到本征值为

$$k_{\pm} = k_0 n_0 \left(1 \mp \frac{\gamma}{2k_0^2 n_0^2} \right), \quad (15)$$

对应的本征矢为

$$\mathbf{e}_{\pm} = \frac{\mathbf{e}_x \mp i\mathbf{e}_y}{\sqrt{2}}, \quad (16)$$

这里 $\mathbf{e}_x, \mathbf{e}_y$ 分别表示与光传播方向正交的两个单位矢量. 由此可见, 非导电型手性介质中存在的正则波为左、右圆偏振波, 分别对应于“+”、“-”两种符号. 左、右圆偏振波分别具有不同的传播因子 $k_{\pm}$, 因而具有不同的相速度 $v_{\pm}$ 与折射率 $n_{\pm}$. 抽运光和信号光场各包含左、右圆偏振分量的表达式为

$$\mathbf{E}_p = E_+^p \mathbf{e}_+ \exp(ik_+^p z - i\omega_p t) + E_-^p \mathbf{e}_- \exp(ik_-^p z - i\omega_p t) + \text{c.c.}, \quad (17)$$

$$\mathbf{E}_s = E_+^s \mathbf{e}_+ \exp(ik_+^s z - i\omega_s t) + E_-^s \mathbf{e}_- \exp(ik_-^s z - i\omega_s t) + \text{c.c.} \quad (18)$$

4 手性介质中光波的非线性传输与非线性旋光

非线性波方程(1)经慢变振幅近似可导出左、右圆偏振光场的非线性行波方程

$$\frac{\partial \mathbf{E}_{\pm}(\mathbf{z}, t)}{\partial \mathbf{z}} + \frac{1}{v_g} \frac{\partial \mathbf{E}_{\pm}(\mathbf{z}, t)}{\partial t} = i \gamma_p(\mathbf{e}_{\mp} \cdot \mathbf{P}^{\text{NL}}(\mathbf{z}, t)) \exp(-i(k_{\pm} \mathbf{z} - \omega_{\pm} t)), \quad (19)$$

其中 $v_g = (dk/d\omega)^{-1}$ 代表群速度, 系数 $\gamma_p = \frac{2\pi\omega}{cn_0(\omega)}$.

假设抽运光与信号光同向, 为了导出介质对信号光的非线性极化强度, 将(11)式代入(8)式, 得到

$$\begin{aligned} \mathbf{P}_s^{\text{NL}}(\mathbf{z}, t) = & \chi_1 \mathbf{E}_s(\mathbf{E}_p \cdot \mathbf{E}_p^*) + (\chi_3 - \chi_0) \mathbf{E}_p^*(\mathbf{E}_s \cdot \mathbf{E}_p) + (\chi_1 + \chi_2) \mathbf{E}_p(\mathbf{E}_p \cdot \mathbf{E}_s^*) \\ & + (\chi_0 + \chi_2) \mathbf{E}_p(\mathbf{E}_s \cdot \mathbf{E}_p^*) + \chi_3 \mathbf{E}_s^*(\mathbf{E}_p \cdot \mathbf{E}_p), \end{aligned} \quad (20)$$

其中

$$\chi_0 = \frac{4\pi\chi^{(2)}(\omega)\chi^{(2)}(0)}{\epsilon^{(1)}(0)}. \quad (21)$$

仅讨论远离共振的情况. 此时 $\chi_0, \chi_1, \chi_2, \chi_3$ 为实量. 将波的复振幅表为 $\mathbf{E}_{\pm}^s(\mathbf{z}, t) = \hat{\mathbf{E}}_{\pm}^s(\mathbf{z}, t) \exp(i\Phi_{\pm}^s(\mathbf{z}, t))$ 形式, 代入方程(19), 考虑左、右圆偏光对应的本征矢的正交性质, 而得到分别在左、右圆偏振光抽运下信号光的模与位相的传输方程如下:

a) 对左圆偏振抽运光 $\mathbf{E}_p = \mathbf{E}_+^p \mathbf{e}_+ \exp(ik_+^p \mathbf{z} - i\omega_p t) + \text{c. c.}$, 信号光的左圆偏振成分满足

$$\frac{\partial \hat{\mathbf{E}}_+^s(\mathbf{z}, t)}{\partial \mathbf{z}} + \frac{1}{v_g} \frac{\partial \hat{\mathbf{E}}_+^s(\mathbf{z}, t)}{\partial t} = -\gamma_p(\chi_1 + \chi_2) \hat{\mathbf{E}}_+^s \hat{\mathbf{E}}_+^p \hat{\mathbf{E}}_+^p \sin(2(\Phi_+^p - \Phi_+^s)), \quad (22a)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial \Phi_+^s(\mathbf{z}, t)}{\partial \mathbf{z}} + \frac{1}{v_g} \frac{\partial \Phi_+^s(\mathbf{z}, t)}{\partial t} = & \gamma_p[(\chi_0 + \chi_1 + \chi_2) \hat{\mathbf{E}}_+^p \hat{\mathbf{E}}_+^p + (\chi_1 + \chi_2) \hat{\mathbf{E}}_+^p \\ & \cdot \hat{\mathbf{E}}_+^p \cos(2(\Phi_+^p - \Phi_+^s))]. \end{aligned} \quad (22b)$$

同理, 信号光的右圆偏振成分满足

$$\frac{\partial \hat{\mathbf{E}}_-^s(\mathbf{z}, t)}{\partial \mathbf{z}} + \frac{1}{v_g} \frac{\partial \hat{\mathbf{E}}_-^s(\mathbf{z}, t)}{\partial t} = 0, \quad (23a)$$

$$\frac{\partial \Phi_-^s(\mathbf{z}, t)}{\partial \mathbf{z}} + \frac{1}{v_g} \frac{\partial \Phi_-^s(\mathbf{z}, t)}{\partial t} = \gamma_p(-\chi_0 + \chi_1 + \chi_3) \hat{\mathbf{E}}_+^p \hat{\mathbf{E}}_+^p. \quad (23b)$$

b) 对左圆偏振抽运光 $\mathbf{E}_p = \mathbf{E}_-^p \mathbf{e}_- \exp(ik_-^p \mathbf{z} - i\omega_p t) + \text{c. c.}$, 信号光的左圆偏振成分满足

$$\frac{\partial \hat{\mathbf{E}}_+^s(\mathbf{z}, t)}{\partial \mathbf{z}} + \frac{1}{v_g} \frac{\partial \hat{\mathbf{E}}_+^s(\mathbf{z}, t)}{\partial t} = 0, \quad (24a)$$

$$\frac{\partial \Phi_+^s(\mathbf{z}, t)}{\partial \mathbf{z}} + \frac{1}{v_g} \frac{\partial \Phi_+^s(\mathbf{z}, t)}{\partial t} = \gamma_p(-\chi_0 + \chi_1 + \chi_3) \hat{\mathbf{E}}_-^p \hat{\mathbf{E}}_-^p. \quad (25b)$$

同理, 信号光的右圆偏振成分满足

$$\frac{\partial \hat{E}_-^s(z, t)}{\partial z} + \frac{1}{v_g} \frac{\partial \hat{E}_-^s(z, t)}{\partial t} = -\gamma_p(\chi_1 + \chi_2) \hat{E}_-^p \hat{E}_-^p \sin(2(\Phi_-^p - \Phi_-^s)), \quad (26a)$$

$$\frac{\partial \Phi_-^s(z, t)}{\partial z} + \frac{1}{v_g} \frac{\partial \Phi_-^s(z, t)}{\partial t} = \gamma_p[(\chi_0 + \chi_1 + \chi_2) \hat{E}_-^p \hat{E}_-^p + (\chi_1 + \chi_2) \hat{E}_-^p \hat{E}_-^p \cos(2(\Phi_-^p - \Phi_-^s))]. \quad (26b)$$

选择抽运光与信号光的位相差 $\Phi_+^p - \Phi_+^s = n\pi$, 或选择 $\Phi_+^p - \Phi_+^s = (n+1/2)\pi$ ($n=0, \pm 1, \pm 2, \dots$), 利用 $\Delta\Phi = \Phi_+^s - \Phi_-^s$, 则得到如下信号光场模的简约形式

$$\frac{\partial \hat{E}_\pm^s(z, t)}{\partial z} + \frac{1}{v_g} \frac{\partial \hat{E}_\pm^s(z, t)}{\partial t} = 0. \quad (27)$$

信号光左右成分间的位相差满足不同的微分方程. 对情况 a), 若 $\Phi_+^p - \Phi_+^s = n\pi$ ($n=0, \pm 1, \pm 2, \dots$), 有

$$\frac{\partial \Delta\Phi^s(z, t)}{\partial z} + \frac{1}{v_g} \frac{\partial \Delta\Phi^s(z, t)}{\partial t} = \gamma_p(2\chi_0 + \chi_1 + 2\chi_2 - \chi_3) \hat{E}_+^p \hat{E}_+^p. \quad (28)$$

同理, 若 $\Phi_+^p - \Phi_+^s = (n+1/2)\pi$ ($n=0, \pm 1, \pm 2, \dots$), 有

$$\frac{\partial \Delta\Phi^s(z, t)}{\partial z} + \frac{1}{v_g} \frac{\partial \Delta\Phi^s(z, t)}{\partial t} = \gamma_p(2\chi_0 - \chi_1 - \chi_3) \hat{E}_+^p \hat{E}_+^p. \quad (29)$$

对情况 b), 若 $\Phi_+^p - \Phi_+^s = n\pi$ ($n=0, \pm 1, \pm 2, \dots$), 有

$$\frac{\partial \Delta\Phi^s(z, t)}{\partial z} + \frac{1}{v_g} \frac{\partial \Delta\Phi^s(z, t)}{\partial t} = -\gamma_p(2\chi_0 + \chi_1 + 2\chi_2 - \chi_3) \hat{E}_-^p \hat{E}_-^p. \quad (30)$$

同理, 若 $\Phi_+^p - \Phi_+^s = (n+1/2)\pi$ ($n=0, \pm 1, \pm 2, \dots$), 有

$$\frac{\partial \Delta\Phi^s(z, t)}{\partial z} + \frac{1}{v_g} \frac{\partial \Delta\Phi^s(z, t)}{\partial t} = -\gamma_p(2\chi_0 - \chi_1 - \chi_3) \hat{E}_-^p \hat{E}_-^p. \quad (31)$$

引入“本地时间” $\tau = t - \zeta/v_g$, 考虑到 $I_\pm^p = \hat{E}_\pm^p \hat{E}_\pm^p$, 由(27)式得到以新变量 τ, ζ 表达的简约形式为

$$\frac{\partial I_\pm^s(\zeta, \tau)}{\partial \zeta} = 0. \quad (32)$$

很容易解得 $I_\pm^s = I_{\pm 0}^s = \text{const.}$ 这表明在光传输过程中左右两种偏振成分的幅度不发生变化.

因为信号光较弱, 不必考虑抽运的抽空效应, 可认为抽运光的强度恒定, 由方程(28)–(31)得到左、右圆偏光间的位相差的变化规律. 对情况 a), 若 $\Phi_+^p - \Phi_+^s = n\pi$ ($n=0, \pm 1, \pm 2, \dots$), 有

$$\Delta\Phi^s(\zeta, \tau) - \Delta\Phi^s(0, \tau) = \gamma_p(2\chi_0 + \chi_1 + 2\chi_2 - \chi_3) \zeta I_{+0}^p = \gamma_p \chi_{\text{eff}} \zeta I_{+0}^p. \quad (33)$$

同理, 若 $\Phi_+^p - \Phi_+^s = (n+1/2)\pi$ ($n=0, \pm 1, \pm 2, \dots$), 有

$$\Delta\Phi^s(\zeta, \tau) - \Delta\Phi^s(0, \tau) = \gamma_p(2\chi_0 - \chi_1 - \chi_3) \zeta I_{+0}^p = \gamma_p \chi_{\text{eff}} \zeta I_{+0}^p. \quad (34)$$

对于情况 b), 若 $\Phi_+^p - \Phi_+^s = n\pi$ ($n=0, \pm 1, \pm 2, \dots$), 有

$$\Delta\Phi^s(\zeta, \tau) - \Delta\Phi^s(0, \tau) = -\gamma_p(2\chi_0 + \chi_1 + 2\chi_2 - \chi_3) \zeta I_{-0}^p = -\gamma_p \chi_{\text{eff}} \zeta I_{-0}^p. \quad (35)$$

同理, 若 $\Phi_+^p - \Phi_+^s = (n+1/2)\pi$ ($n=0, \pm 1, \pm 2, \dots$), 有

$$\Delta\Phi^s(\zeta, \tau) - \Delta\Phi^s(0, \tau) = -\gamma_p(2\chi_0 - \chi_1 - \chi_3)\zeta I_0^p = -\gamma_p\chi_{\text{eff}}\zeta I_0^p. \quad (36)$$

由(33)–(36)式表示的位相差来看,在非导电型的手性介质中,左、右圆偏振抽运光不会使信号光的强度变化,而只是使信号光在传播一定距离后所产生的左右两个圆偏振成分间的位相差上再增加了一个由介质非线性引起的位相差.这实际是使信号光的偏振面在正常旋光角的基础上产生一个与抽运强度有关的附加量,此即非线性旋光现象.

假定信号光沿 X 轴偏振,沿 Z 轴方向从介质边界 $z=0$ 处入射,其光场为

$$\mathbf{E}_S^0 = E_0^s \mathbf{e}_x \exp(-i\omega_s t) + \text{c. c.} \quad (37)$$

考虑无反射边界条件,对一般介质,电场的横向分量应连续(这对于手性介质,这是一个值得商榷的问题,详见参考文献[13,14]),同时用(37)式和(18)式,得到边界处手性介质中的场振幅为

$$\mathbf{E}_{+0}^s = \mathbf{E}_{-0}^s = \frac{\mathbf{E}_0^s}{\sqrt{2}}. \quad (38)$$

经过厚度为 z 为手性介质之后信号场变为

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_s &= E_{+0}^s \mathbf{e}_+ \exp(ik_+^s z - i\omega_s t + i\Phi_+^s) + E_{-0}^s \mathbf{e}_- \exp(ik_-^s z - i\omega_s t + i\Phi_-^s) + \text{c. c.} \\ &= E_0^s \exp\left(ik_0 n_0 z + i\frac{\Phi_+^s + \Phi_-^s}{2} - i\omega_s t\right) \left[e_x \cos\left(\frac{\gamma z}{2k_0 n_0} + \frac{\Phi_+^s - \Phi_-^s}{2}\right) \right. \\ &\quad \left. + e_y \sin\left(\frac{\gamma z}{2k_0 n_0} + \frac{\Phi_+^s - \Phi_-^s}{2}\right) \right] + \text{c. c.} \\ &= E_0^s \exp(ik_0 n_0 z + i\overline{\Phi_0^s} - i\omega_s t) [e_x \cos \theta + e_y \sin \theta] + \text{c. c.} \end{aligned} \quad (39)$$

这里有

$$\frac{\gamma}{2k_0 n_0} z + \frac{\Phi_+^s - \Phi_-^s}{2} = \theta, \quad (40)$$

$$\frac{\Phi_+^s + \Phi_-^s}{2} = \overline{\Phi_0^s}. \quad (41)$$

可见偏振面比原偏振方向即 X 轴方向旋转了 θ 角.此外,旋光角又可表示 $\theta = \theta_0 + \Delta\theta$, 这里 $\Delta\theta = (\Phi_+^s - \Phi_-^s)/2 = \Delta\Phi^s/2$ 为非线性旋光附加角; $\theta_0 = \frac{\gamma z}{2k_0 n_0} = \rho_0 z$ 为不考虑非线性位相差 $\Delta\Phi^s$ 时的线性旋光角,它与传输距离成正比,其比例系数 ρ_0 即为通常的介质旋光率,并且旋光率与介质的回旋系数 γ 有关, γ 的符号决定手性介质对光偏振面是左旋的还是右旋的.

根据(33)–(36)式可将旋光角写为

$$\theta = \theta_0 + \Delta\theta = \theta_0 + \alpha I_0^p, \quad (42)$$

这里 $\alpha = \pm \gamma_p \chi_{\text{eff}} z$, χ_{eff} 为有效非线性系数,它是系数 $\chi_0, \chi_1, \chi_2, \chi_3$ 的组合.由(42)式可见,非线性旋光附加角 $\Delta\theta$ 与抽运光强度成正比;左圆偏振抽运光和右圆偏振抽运光的旋光附加角符号不同,换句话说,使线性旋光角增大或减小;在左、右圆偏振抽运光强度相同的情况下,非线性附加角大小相同、符号相反.这与文献[10]中发现的实验结果相符.

采用文献[10]列出的螺环型手性材料的实验数据:样品长度为 10 mm,样品折射率为

1.5, 抽运光与信号光波长为 425 nm , 抽运光强度为 10 MW/cm^2 , 测得的非线性旋光附加角为 $2\text{—}3$ 度, 用 (42) 式计算, 得到有效非线性系数 χ_{eff} 正好在其测量的范围 $10^{-12}\text{—}10^{-11}\text{ esu}$ 之内.

5 结 论

在非导电型手性介质中, 线偏振信号光将分解为左旋和右旋偏振光, 传输一定距离后其间产生一定的相位差, 相当于光的偏振面发生旋转, 从而形成旋光现象. 在圆偏振抽运光作用下, 旋光角度将有一个非线性的变化量, 它依赖于抽运光强. 对于左圆偏振抽运光和右圆偏振抽运光, 非线性附加角的符号不同.

基于以上非线性旋光现象, 可以设计一种全光型开关, 其原理如下: 在无抽运光情况下, 线偏振弱光透过样品后再通过一个检偏器, 调整检偏器的检偏方向使之与信号光的偏振方向垂直, 这时光开关处于关闭状态; 当有抽运光时, 信号光的偏振面发生旋转而透过检偏器, 这时开关处于开启状态, 从而实现二值逻辑开关. 还可以通过选择不同圆偏振的抽运光, 实现 $-1, 0, +1$ 三态的多值逻辑全光开关.

- [1] В. А. Кизель, *Современные Проблемы Физики: Физические Причины Диссимметрии Живых Систем* (Москва, Наука, 1985), 118.
- [2] S. F. Mason, *Molecular Optical Activity and the Chiral Discriminations* (Cambridge, Cambridge University Press, 1982), 238.
- [3] L. D. Barron, *Molecular Light Scattering and Optical Activity* (Cambridge, Cambridge University Press, 1982), 408.
- [4] T. Petralli-Mallow, T. M. Wong, J. D. Byers, H. I. Yee, J. M. Hicks, *J. Phys. Chem.*, **97**(1993), 1383.
- [5] J. J. Maki, T. Verbiest, M. Kauranen, S. Van Elshocht, A. Persoons, *J. Chem. Phys.*, **105**(1996), 767.
- [6] J. J. Maki, A. Persoons, *J. Chem. Phys.*, **104**(1996), 9340.
- [7] J. J. Maki, M. Kauranen, A. Persoons, *Phys. Rev.*, **B51**(1995), 1425.
- [8] Т. М. П'инова, N. I. Koroteev, N. O. Urakova, *Laser Physics*, **6**(1996), 1018.
- [9] P. Unsbo, C. Flytzanis, *J. Opt. Soc. Am.*, **B14**(1997), 560.
- [10] H. Ashitaka, Y. Yokoh, R. Shimizu, T. Yokozawa, K. Morita, T. Suehiro, M. Ube, *Nonlinear Optics*, **4**(1993), 281.
- [11] N. I. Koroteev, *Proc. SPIE*, **2796**(1996), 227.
- [12] N. I. Koroteev, *Biospectroscopy*, **1**(1995), 341.
- [13] N. I. Koroteev, S. N. Volkov, V. A. Makarov, *Opt. Commun.*, **138**(1997), 113.
- [14] А. А. Голубков, В. А. Макаров, *Успехи Физических Наук*, **165**(1995), 339.

MACROSCOPIC THEORY OF NONLINEAR OPTICAL ACTIVITY IN A NONCONDUCTIVE ISOTROPIC CHIRAL MEDIUM

LI JUN-QING LI CHUN-FEI XIN LI LIU SHU-TIAN

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

T. M. IL'INOVA N. I. KOROTEEV

(*Faculty of Physics and International Laser Center, Moscow State University, Moscow 119899*)

(Received 2 November 1998)

ABSTRACT

A nonconductive isotropic chiral medium is described by using classical electromagnetic theory. The phenomenon of nonlinear optical activity of a linearly polarized signal light under the action of a circularly polarized pump light is investigated. The expressions of nonlinear optical rotational angle are given. The calculated results using the expressions are in accordance to the experimental results.

PACC: 4265; 7820E