

ТЕПЛОВОЙ МЕХАНИЗМ НЕЛИНЕЙНОЙ ОПТИЧЕСКОЙ АКТИВНОСТИ

Д. В. Власов

Вопросы нелинейной оптической активности неоднократно обсуждались в литературе /1,2,3/. Подробный расчет /2/ указывает на реальную возможность использования этого эффекта как для получения данных о строении молекул, так и для непосредственного применения в нелинейной оптике.

Общий метод расчета /2/ с использованием возмущенной функции распределения, квадратичной по полю, и формулы из теории флуктуаций Смолуховского для $(\Delta N)^2$ не охватывает теплового механизма нелинейной оптической активности, обусловленной поглощением лазерного света, хотя в экспериментальных условиях эта зависимость может оказаться весьма существенной.

Пользуясь линейной зависимостью угла поворота плоскости поляризации линейно поляризованного света от числа оптически активных молекул /4/ в единице объема и считая, что усредненный угол поворота плоскости поляризации одной молекулой $\langle \theta \rangle$ слабо зависит от температуры и давления, можно представить изотропное изменение угла вращения плоскости поляризации под действием света в виде

$$\Delta \theta_{is} = \langle \theta \rangle \left\{ \Delta N^T + \Delta N^P \right\}, \quad (1)$$

где $\Delta \theta_{is}$ - изотропное изменение угла поворота плоскости поляризации, $\langle \theta \rangle$ - усредненный угол поворота

плоскости поляризации одной молекулой, ΔN^T , ΔN^P - изменение числа частиц в единице объема, определяемое изменением соответственно T и P под действием лазерного излучения. Учитывая, что изменение давления P определяется электрострикционным давлением световой волны /5/, находим для $\Delta\theta_{1s}^P$:

$$\Delta\theta_{1s}^P = \theta_0 \frac{\beta_T}{8\pi} (n_L^2 - 1) \left(\frac{n_L^2 + 2}{3} \right)^2 |E_L|^L \sim 10^{-12} \theta_0 J_L, \quad (2)$$

где $\Delta\theta_{1s}^P$ - нелинейная оптическая активность, обусловленная электрострикционным механизмом; $\beta_T = -(1/V)(\partial V/\partial P)_T$ - изотермическая сжимаемость; E_L - амплитуда лазерного импульса; J_L - интенсивность лазерного излучения (вт/см²); n_L - показатель преломления на частоте лазерного света; θ_0 - угол поворота плоскости поляризации света в отсутствие лазерного импульса. Таким образом, метод расчета /2/ учитывает только стрикционный эффект. Выражение (1) позволяет найти $\Delta\theta_{1s}^T$, определяемое изменением температуры среды при прохождении лазерного импульса

Для чистых жидкостей и газов

$$\Delta\theta_{1s}^T = \theta_0 \delta \Delta T, \quad (3)$$

где $\delta = -(1/V)(\partial V/\partial T)_P$ - температурный коэффициент объемного расширения; ΔT - изменение температуры, определяемое решением уравнения теплопроводности с учетом конкретной геометрии опыта и тепловой дефокусировки.

Для оптически активных кристаллов

$$\Delta\theta^T = \frac{d[\alpha]}{dT} l \Delta T, \quad (4)$$

где $d[\alpha]/dT$ - зависимость удельного вращения от температуры, l - длина области нелинейного взаимодействия в оптически активном образце.

Стационарный режим: $\tau_L \gg \tau_T = \frac{\rho c a^2}{\alpha}$, где τ_L - длительность светового импульса; τ_T - характерное время

установления температуры; ρ - плотность; C - удельная теплоемкость; a - линейный размер; α - коэффициент теплопроводности. Из формул (3) и (4) можно получить выражения, описывающие пространственную модуляцию светового луча, аналогичную /3/.

Нестационарный режим: $\tau_L \ll \tau_T$; в этом случае

$$\Delta T = \frac{k_\omega c' n}{\rho C} \int_{-\infty}^t |E_L(\tau)|^2 d\tau, \quad (5)$$

где c' - скорость света.

Из формул (2), (3) и (5) следует, что в зависимости от параметров лазерного импульса, коэффициента поглощения и геометрии опыта может доминировать как стрикционный, так и тепловой механизм, поскольку $\Delta\theta_{1S}^P \sim |E_L|^2$, в то время как

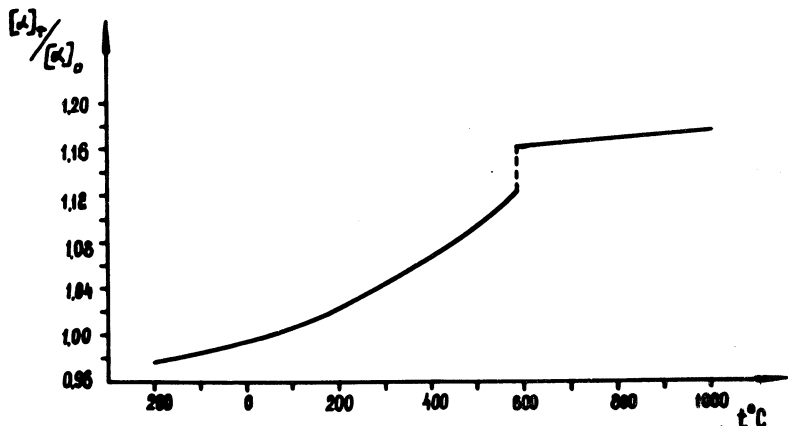
$$\Delta\theta_{1S}^T \sim k_\omega \int_{-\infty}^t |E_L(\tau)|^2 d\tau.$$

Самовоздействие света вследствие нелинейной оптической активности приводит к временной модуляции поляризации импульса. Пропуская такой импульс через анализатор, можно получить амплитудную модуляцию, минимумы которой соответствуют $\Delta\theta^T = 180^\circ n$, где n - целое число.

Оценки из (5) для образца кристаллического кварца /6,7/ длиной $l = 10$ см (свет проходит вдоль оптической оси) дают $\Delta\theta^T \approx 0,32\Delta T$ для рубинового ОКГ ($\lambda = 0,6943$ мк) и $\Delta\theta^T = 0,6\Delta T$ для второй гармоники неодимового ОКГ ($\lambda = 0,503$ мк). Использование окрашенного кристаллического кварца*) с

*) При облучении γ -квантами или бомбардировке частицами кристаллический кварц приобретает темно-коричневую окраску. Длительное облучение ультрафиолетом (ртутная лампа) окрашенного кварца приводит к увеличению прозрачности образца. Это позволяет готовить образцы кристаллического кварца с нужным коэффициентом поглощения.

варьируемым коэффициентом поглощения света k_{ω} позволяет получить практически неограниченное изменение температуры вследствие поглощения лазерного света. При $\Delta T = 500^{\circ}\text{C}$ получим (рис. 1) приближенно из (4) $\Delta\theta^T = 160^{\circ}$ для $\lambda = 0,6943$ мк и $\Delta\theta^T = 300^{\circ}$ для $\lambda = 0,503$ мк.



Р и с. 1. Зависимость удельного вращения $[\alpha]$ от температуры ($[\alpha]_0 = [\alpha]_{T=20^{\circ}\text{C}}$) без учета теплового удлинения образца. Максимальное изменение угла поворота плоскости поляризации при нагревании определяется разностью $(T_{\text{кр}} - T_0)$, т.е. областью изменения $[\alpha]_T / [\alpha]_0$.

При переходе кварца из α - в β -модификацию //7/ ($T = 573^{\circ}\text{C}$) $d[\alpha]/dT$ претерпевает скачок (рис. 1) и практически обращается в ноль в β -модификации ($T > 573^{\circ}\text{C}$).

Таким образом

$$\Delta\theta^T = \begin{cases} 1 \cdot \frac{d[\alpha]}{dT} (T - T_0) & \text{при } T < 573^{\circ}\text{C} \\ 0 & \text{при } T > 573^{\circ}\text{C}, \end{cases}$$

где T_0 - начальная температура образца.

Максимальное изменение угла $\Delta\theta^T$ определяется разностью начальной температуры T_0 и температуры точки $\alpha \rightarrow \beta$ перехода и при дальнейшем нагревании практически не меняется. Варьируя T_0 , можно управлять модуляцией импульса. Для рассмотренного образца кварца на второй гармонике неодимового ОКГ при $T_0 = 20^\circ\text{C}$ $\Delta\theta_{\text{max}}^T = 330^\circ$; для $T_0 = 275^\circ\text{C}$, $\Delta\theta_{\text{max}}^T = 180^\circ$, т.е. вырезается одиночный импульс, а для $\Delta\theta_{\text{max}}^T = 90^\circ$ ($T = 425^\circ\text{C}$) произойдет обрезание (или растяжение) переднего фронта импульса.

Наиболее перспективным, в смысле модуляции световых импульсов на тепловом механизме нелинейной оптической активности, представляется использование жидких оптически активных кристаллов. Удельное вращение /8/ в этом случае может достигать значений $\sim 10^5$ град/мм и сильно зависит от температуры (в некоторых кристаллах при изменении температуры удельное вращение меняет знак). Однако отсутствие систематических экспериментальных данных не позволяет провести количественной оценки.

Необходимо отметить также, что как в работах /1,2,3/, так и в данной работе не рассматривается временной характер установления нелинейной оптической активности при различных механизмах, хотя эта зависимость может оказаться весьма существенной для модуляции и других применений этого эффекта.

Автор глубоко благодарен И. Л. Фабелинскому и В. С. Старунову за ряд ценных обсуждений.

Поступила в редакцию
5 июля 1971 г.

Л и т е р а т у р а

1. С. А. Ахманов, В. И. Жариков. Письма в ЖЭТФ, 8, 644 (1967).
2. S. Kielish. J. Opto-electronics, 1, 75 (1969).

3. С. И. Рыжакова, И. В. Томов. Вестник МГУ, 2, 218 (1971).
4. Волькенштейн. Молекулярная оптика. Москва, 1951 г.
5. В. С. Старунов, И. Л. Фабелинский. УФН, 98, 441 (1969).
6. R. Bünnagel, H. Nahne. Zeits. für Instrumentkunde, 75, 389 (1967); S. Shandrasekhar. Proc. Ind. Acad. Sci., 35, 103 (1952).
7. R. B. Sosman. Silica. New-York, 1927.
8. И. Г. Чистяков. Жидкие кристаллы. Москва, 1966 г.