

## НЕЛИНЕЙНАЯ ОПТИЧЕСКАЯ АКТИВНОСТЬ В КРИСТАЛЛАХ

С.А. Ахманов, Б.В. Жданов, Н.И. Желудев,  
А.И. Ковригин, В.И. Кузнецов

В работе впервые исследован эффект НОА (зависимость угла поворота плоскости поляризации от интенсивности света) в кристаллах, обусловленный электронной нелинейностью. Измерения проведены в кристалле  $\text{LiIO}_3$ . Электронная НОА выделена на фоне тепловых эффектов и составляет  $(1 \pm 0,6) \cdot 10^{-11}$  град·см·Вт $^{-1}$

1. Предметом настоящей статьи является изложение результатов экспериментальной работы, в которой впервые была исследована нелинейная оптическая активность – НОА (зависимость угла поворота плоскости поляризации от интенсивности света) в кристаллах, обусловленная "быстрой" электронной нелинейностью.

В кристалле иодата лития электронная НОА выделена на фоне более медленных тепловых эффектов; измерена константа нелинейного вращения на  $\lambda = 0,532$  мкм, которая оказалась равной  $(1 \pm 0,6) \times 10^{-11}$  град·см·Вт $^{-1}$

Измерение дисперсии НОА может стать на наш взгляд новым эффективным методом нелинейной поляризационной спектроскопии конденсированных сред, дающим уникальную информацию о комбинированных эффектах ангармоничности и пространственной дисперсии.

2. Эффект нелинейной оптической активности был предсказан в [1]; феноменологическое его описание базируется на учете членов третьего порядка по напряженности светового поля в выражении для поляризации. Для среды с пространственной дисперсией, с точностью до членов третьего порядка по полю имеем:

$$P_i = \chi_{ij}^{(1)} E_j - \chi_{ijk}^{(2)} E_j E_k + \chi_{ijkl}^{(3)} E_j E_k E_l + \gamma_{ijk}^{(1)} \frac{\partial E_j}{\partial x_k} + \gamma_{ijkl}^{(2)} E_j \frac{\partial E_k}{\partial x_l} + \gamma_{ijklm}^{(3)} E_j E_k \frac{\partial E_l}{\partial x_m} \quad (1)$$

члены с  $\gamma^{(1)}$ ,  $\gamma^{(2)}$ ,  $\gamma^{(3)}$  соответствуют, очевидно, членам с  $\chi^{(1)}$ ,  $\chi^{(2)}$ ,  $\chi^{(3)}$ .

Нелинейная оптическая активность связана с нелинейной восприимчивостью  $\gamma^{(3)}$ ; для гиротропного кубического кристалла, пользуясь стандартными обозначениями, можно записать наглядную формулу

$$D = \epsilon_0 E - if^L(\omega) [kE] + if^{NL} |E|^2 [kE],$$

где

$$f^L(\omega) = \text{Re} \{ \gamma^{(1)}(\omega) \}, \quad f^{NL}(\omega) = \text{Re} \{ \gamma^{(3)}(\omega) \}. \quad (2)$$

Здесь член приводящий к НОА имеет ту же структуру, что и член, обуславливающий линейную активность (ЛОА).

Детальный анализ тензора  $\gamma^{(3)}$  содержится в [2]. Углы линейного и нелинейного вращения можно записать в виде

$$\phi^L = \frac{k^2 l}{2n_0} f^L(\omega), \quad \phi^{NL} = \frac{k^2 l}{2n_0} f^{NL}(\omega) |E|^2. \quad (3)$$

3. Вклад в НОА вносят в общем случае те же физические механизмы, что и в самовоздействие, описываемое кубической нелинейной восприимчивостью  $\chi^{(3)}$ ; в связи с этим НОА можно назвать поляризационным самовоздействием, простейшим проявлением которого является нагрев среды лазерным лучом. Этот механизм исследовался в [3]; получаемая при этом информация аналогична таковой, получаемой из температурных измерений ЛОА<sup>1)</sup>. Грубую оценку величины  $\gamma^{(3)}$  (а сле-

<sup>1)</sup>Интересное проявление теплового эффекта в зависимости фарадеевского вращения от интенсивности лазерного света продемонстрировано впервые в работе [4].

довательно и  $f^{NL}$ ) обусловленной электронной нелинейностью, можно дать из следующих простых соображений. Вдали от полос поглощения величина  $\chi^{(3)} \sim \chi^{(3)} a$ , где  $a$  — характерный размер решетки<sup>1)</sup>. Для типовых нелинейных кристаллов в видимой области следует ожидать  $\chi^{(3)} \approx 10^{-20} + 10^{-22}$  CGSE. Подстановка этого значения в (3) дает для интенсивности  $I = 10^8$  Вт/см<sup>2</sup> и  $l = 1$  см,  $\phi^{NL} \approx 3 \cdot 10^{-5} \div 3 \cdot 10^{-7}$  рад.

Таким образом выделение истинной электронной НОА на фоне тепловых эффектов, паразитных сигналов, обусловленных частотной нестабильностью и дисперсией ЛОА, представляет собой достаточно трудную задачу<sup>2)</sup>. Для ее решения нами был разработан двухканальный импульсный поляриметр, позволяющий зафиксировать изменение угла поворота плоскости поляризации в течение одного лазерного импульса  $\Delta\phi = 5 \cdot 10^{-5}$  рад ( $\tau = 10^{-8}$  сек).

В качестве исследуемой среды нами был выбран кристалл  $\text{LiIO}_3$ , обладающий относительно высокой восприимчивостью  $\chi^{(3)} = 3 \cdot 10^{-12}$  CGSE.

4. Эффект НОА исследовался в кристалле  $\text{LiIO}_3$  длиной 62 мм на частоте второй гармоники ( $\lambda = 0,532$  мкм) одночастотного Nd:YAG лазера. Схема установки приведена на рис. 1.

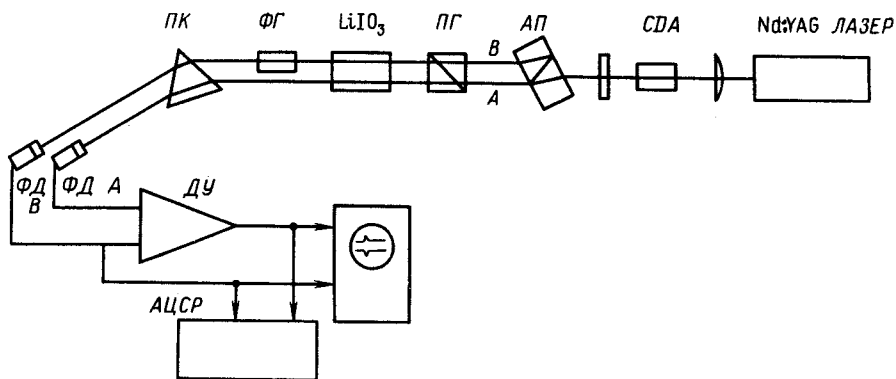


Рис. 1. Блок-схема экспериментальной установки

Излучение лазера преобразовывалось во вторую гармонику в кристалле CDA; длительность импульса гармоники  $\tau = 10$  нсек; максимальная энергия  $W_2 = 10$  мдж. Излучение гармоники расщеплялось на делительной пластинке (ДП) на два параллельных луча A и B с отношением

1) Такое соответствие фактически используется для грубой оценки констант линейной гирации. Естественно, что этого соображения еще недостаточно для аргументации оценок нелинейных констант; вместе с тем следует указать на косвенно подтверждающие эту оценку работы [5 — 7], в которых определялась восприимчивость  $\chi^{(2)}$ , описывающая квадрупольную генерацию второй оптической гармоники.

2) На наш взгляд, неполное исключение перечисленных эффектов повлияло на точность результатов, описанных в [8].

интенсивностей  $I_A/I_B = 30$ . После призмы Глана (ПГ), выполняющей роль поляризатора, лучи  $A$  и  $B$  проходили через кристалл  $\text{LiIO}_3$  вдоль оптической оси, а затем через поляризационный анализатор, в качестве которого использовалась призма Коттона (ПК). В канал  $A$ , кроме того, был введен фарадеевский гиратор (ФГ), предназначенный для компенсации разности линейного поворота плоскостей поляризации лучей  $A$  и  $B$  в кристалле, обусловленной различием оптических длин в образце по путям лучей  $A$  и  $B$ . В электрическую часть системы регистрации входили дифференциальный усилитель (ДУ), двухлучевой осциллограф и двухканальная импульсная аналого-цифровая система регистрации (АЦСР) с цифropечатающим устройством. В качестве фотоприемников использовались кремниевые фотодиоды (ФД). Эффект нелинейного вращения наблюдался по изменению отношения интенсивностей света в каналах  $A$  и  $B$  при увеличении мощности распространяющегося в кристалле излучения. Чувствительность установки при наблюдении НОА по этой методике характеризует величина паразитных сигналов, связанных с ЛОА, которые не превышали  $8 \cdot 10^{-5}$  рад.

5. Характерный вид сигналов, возникающих на выходе поляриметра, (максимальная интенсивность луча достигала  $I = 300 \text{ Мвт/см}^2$ ) дан на рис. 2. Первые импульсы обусловлены электронной НОА; эффекту сопутствовал эффект деполяризации лазерного излучения (его можно отделить от сигнала НОА, изменяя положение рабочей точки поляриметра), накапливающийся в каждой новой лазерной вспышке и связанный, по-видимому, с неоднородным прогревом кристалла лазерным излучением. При уменьшении интенсивности деполяризация уменьшается с характерным временем  $\tau_2 = 1$  сек, что свидетельствует о ее тепловой природе. Вклад теплового вращения в течение одного импульса в наших экспериментах не превышает 10% от наблюдаемого эффекта НОА и противоположен ему по знаку.

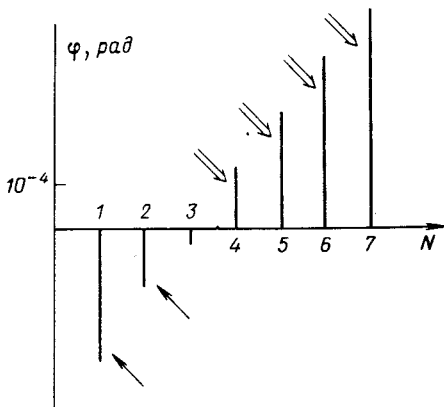


Рис. 2. Сигналы на выходе двухканального импульсного поляриметра при последовательных запусках Nd:YAG лазера ( $\rightarrow$  сигналы НОА,  $\Rightarrow$  изменение знака сигнала, связанное с оптически наведенной деполяризацией в кристалле)

Экспериментально определенное значение константы оптического вращения составляет  $(1 \pm 0,6) \cdot 10^{-11}$  град  $\cdot$  см  $\cdot$  Вт $^{-1}$ , а эффективное значение компоненты тензора  $\gamma^{(3)}$  (луч распространялся вдоль оптической оси)

$$\gamma^{(3)} = (6 \pm 4) \cdot 10^{-21} \text{ CGSE}.$$

6. Хотя в кристалле  $\text{LiIO}_3$  эффект НОА относительно мал и его измерение достаточно сложно, можно рассчитывать на получение значительно больших эффектов. Достаточно сказать, что вблизи биекситонных резонансов в кристаллах восприимчивость  $\chi^{(3)} \approx 10^{-8}$  CGSE (см. [9]).

Большой интерес представляет изучение НОА в жидких кристаллах; использование перестраиваемых лазеров позволит развить НОА как новый метод нелинейной поляризационной спектроскопии, дающий информацию одновременно об ангармоничности и пространственной дисперсии.

Наконец, с точки зрения спектроскопии кристаллов значительный интерес представляет соотношение НОА и эффекта квадратичной электрогирации. В настоящее время такое сравнение провести не удастся, поскольку измерение НОА и квадратичной электрогирации сделаны были на разных кристаллах [10].

Московский  
государственный университет  
им. М.В.Ломоносова

Поступила в редакцию  
24 января 1979 г.

## Литература

- [1] С.А.Ахманов, В.И.Жариков. Письма в ЖЭТФ, **6**, 644, 1967.
- [2] Б.В.Бокуть, Н.С.Казак, А.Н.Сердюков. Нелинейная оптическая активность. Препринт ИФ АН БССР, Минск, 1971.
- [3] Д.В.Власов, В.П.Зайцев. Письма в ЖЭТФ, **14**, 171, 1971.
- [4] В.С.Запасский, П.П.Феофилов. Тезисы докладов IX Всесоюзной конференции по когерентной и нелинейной оптике. М., 1978, стр.154.
- [5] С.А.Ахманов, Р.В.Хохлов. Проблемы нелинейной оптики. М., 1964, стр. 74.
- [6] S.G. Dinev, S.M. Saltiel, K.V. Stamenov, K.A. Stankov, V.G. Tunkin. Opt. Comm., **24**, 225, 1978.
- [7] D.S. Bethune, R.W. Smith, Y.R. Shen. University of California. Preprint 1977.
- [8] В.В.Борщ, М.П.Лисица, П.Е.Мозоль, И.В.Фешенгази. Квантовая электроника, **5**, 672, 1978.
- [9] A. Mariani, J.L. Oudar, E. Batifol, D. Chemla. Phys. Rev. Lett., 1979 (in press).
- [10] О.Г.Влох, Т.А.Кружельницкая. Кристаллография, **15**, 587, 1970.