

ОПТИКА И СПЕКТРОСКОПИЯ

УДК 535.3

ОПТИЧЕСКАЯ КРОСС-МОДУЛЯЦИЯ В НЕМАТИЧЕСКИХ ЖИДКОКРИСТАЛЛИЧЕСКИХ ПЛЕНКАХ: ПРИМЕНЕНИЕ К ИЗМЕРЕНИЮ ДИСПЕРСИИ $\chi^{(3)}$ В КРЫЛЕ РЭЛЕЕВСКОЙ ЛИНИИ

Ф. Н. Гаджиев, Н. И. Коротеев, Г. А. Пайтян

(кафедра общей физики и волновых процессов)

С помощью измерения переложения амплитудной модуляции с одного лазерного пучка на другой в планарно ориентированной смеси нематических жидких кристаллов определена дисперсия кубической нелинейности $\chi^{(3)}$ в крыле рэлеевской линии с разрешением в единицы герц.

1. В последние годы интенсивно изучаются нелинейные оптические явления в нематических жидких кристаллах (НЖК) [1—4].

Однако до настоящего времени не уделялось достаточного внимания разработке методов нелинейной спектроскопии рассеяния света в крыле рэлеевской линии (РКРЛ) НЖК, способных дать детальную информацию о механизмах нелинейности. В настоящей работе мы ставили перед собой задачу разработки именно такого метода, который можно назвать активной спектроскопией рассеяния света в крыле рэлеевской линии (АС РКРЛ) [5] — аналогом хорошо разработанного сейчас метода активной спектроскопии комбинационного рассеяния (АСКР). Поскольку реальные лазерные источники даже в случае одночастотной генерации имеют ширину линии, существенно превышающую спектральную ширину рэлеевского пика в конденсированных средах, то для проведения измерений внутри рэлеевской линии по схеме АС РКРЛ излучение накачки следует подвергнуть амплитудной или фазовой модуляции [6]: образующиеся боковые компоненты в спектре сдвинуты от соответствующих компонент исходного (шумового) лазерного поля на частоту модуляции и жестко привязаны к ним по фазе. При этом следует наблюдать переложение модуляции луча накачки на немодулированный слабый пробный пучок, пересекающийся с лучом накачки в исследуемой среде, т. е. регистрировать оптическую кросс-модуляцию как функцию частоты модуляции.

В нелинейной спектроскопии ранее был выполнен ряд работ с применением фазово- или амплитудно-модулированных лазерных пучков [7—9]. Во всех этих работах, однако, исследовались атомные системы, частоты переходов в которых находились в резонансе с частотой несущей лазерной частоты и (или) с частотой модуляции. В наших экспериментах подобная техника впервые применяется для исследования нелинейного оптического отклика прозрачных конденсированных сред — тонких пленок НЖК. Спектральное разрешение АС РКРЛ определяется способом модуляции поля накачки и может достигать единиц и долей герц.

2. Источниками новых спектральных компонент в зондирующем излучении со «сдвинутыми» на частоту модуляции накачки частотами являются соответствующие спектральные компоненты кубической нелинейной поляризации $P_i^{(3)}(\omega^\pm)$, порождаемые в исследуемой среде полями модулированной накачки (с центральной ω_L и боковыми $\omega_L^\pm =$

$=\omega_L \pm \Omega$ частотами, где Ω — частота модуляции) и исходной немодулированной пробной волны (частота ω):

$$P_i^{(3)}(\omega^\pm) \sim \chi_{ijkl}^{(3)}(\Omega) E_j(\omega) E_k(\omega_L) E_l^*(\omega_L^\mp). \quad (1)$$

Здесь $\omega^\pm = \omega + (\omega_L - \omega_L^\mp) \equiv \omega \pm \Omega$; $\chi_{ijkl}^{(3)}$ — тензор кубической оптической восприимчивости исследуемой среды (в данном случае — НЖК), который в интересующем нас спектральном интервале является функцией только частоты модуляции Ω . По повторяющимся декартовым индексам в случае (1) и всюду далее предполагается суммирование от 1 до 3.

Появление боковых частот модуляции в пробном поле удобно вести по схеме оптического гетеродинамирования, смешивая на фотокатоде волну, порождаемую (1), с частью невозмущенной пробной волны (опорной волной) и выделяя радиотехническими методами переменную составляющую фототока на частоте модуляции.

Интересующая нас переменная составляющая фототока приемника имеет следующий вид:

$$I_\Omega \sim \overline{[E_j^*(\omega) E_k^*(\omega_L) E_l(\omega_L) E_r(\omega) i\eta_r \chi_{ijkl}^{(3)}(\Omega) (m^+ + m^-) + \text{к. с.}]}. \quad (2)$$

Здесь черта сверху означает усреднение по оптической частоте и по ансамблю случайных реализаций шумовых полей, комплексная величина η_r характеризует амплитуду, поляризацию и фазу опорной волны, m^\pm — «глубина» модуляции поля накачки: $m^\pm = E(\omega_L^\pm)/E(\omega_L)$.

Отсюда ясно, что, изменяя фазовые соотношения между волнами накачки и пробной, состояния поляризации этих волн и опорной волны, экспериментатор получает возможность изучать различные комбинации действительной и мнимой частей различных тензорных компонент кубической оптической восприимчивости.

В настоящей статье мы будем иметь дело с двумя основными типами оптической нелинейности НЖК [3], которые условно могут быть названы керровской и тепловой нелинейностями.

Компоненты тензора керровской оптической нелинейной восприимчивости планарно ориентированного НЖК имеют вид

$$\chi_{zzxx}^{(3)K}(\Omega) = \frac{\gamma_1 \bar{\chi}_1^{(3)K}}{-i\Omega + \gamma_1}; \quad \chi_{zyzy}^{(3)K}(\Omega) = \frac{\gamma_2 \bar{\chi}_2^{(3)K}}{-i\Omega + \gamma_2}, \quad (3)$$

где $\bar{\chi}_{1,2}^{(3)K} = (\epsilon_{zz} - \epsilon_{xx})^2 / (64\pi^2 \eta \gamma_{1,2})$, $\gamma_{1,2} = K_{11,22} q^2 / \eta$; ось x совпадает с нормалью к пленке, z — с направлением директора НЖК; η — эффективная вязкость; K_{11} , K_{22} — константы упругости Франка; $q = |k_L - k_L^\pm|$ — волновое число бегущей решетки, образованной светоиндуцированными изменениями направления директора НЖК.

Аналогичные выражения для ненулевых компонент тепловой нелинейности имеют вид

$$\chi_{ijij}^{(3)T}(\Omega) = \frac{\bar{\chi}^T}{-i\Omega + \delta} \frac{\partial \epsilon_{ii}}{\partial T} \beta_{jj}, \quad (4)$$

где $i, j = x, y, z$; β_{zz} , β_{xx} — коэффициенты поглощения света, поляризованного вдоль и поперек директора соответственно; $\delta = \kappa_\perp q^2$, коэффициент $(\partial \epsilon / \partial T)$ учитывает температурную «брутто»-зависимость ϵ , κ_\perp — коэффициент температуропроводности в поперечном по отношению к директору направлении $\bar{\chi}^T = c / (32\pi^2 \rho c_p)$. В том случае, когда исполь-

зуются сфокусированные световые пучки, основной вклад в уширение рэлеевских пиков вносит неопределенность волновых векторов взаимодействующих волн из-за дифракционной расходимости:

$$q_D = 2k_L \sin \theta_D \approx 2k_L \theta_D \approx 8n/D \quad (5)$$

(где n — показатель преломления, θ_D — угол дифракционной расходимости, D — диаметр сфокусированного гауссовского пучка на уровне e^{-2}), а также из-за конечности длины образца L :

$$q_{гр} = \pi/L. \quad (6)$$

В условиях наших опытов с учетом стандартных параметров НЖК ($D \approx 50$ мкм, $L \approx 50$ мкм, $\lambda = 488$ нм, $n = 1,7$, $K_{22} = 2 \cdot 10^{-6}$ дин, $\eta = 25 \cdot 10^{-2}$ г·см⁻¹·с⁻¹, $\kappa_{\perp} = 2 \cdot 10^{-4}$ см²·с⁻¹, в соответствии с (5), (6) $q_{гр} = 0,6 \cdot 10^3$, $q_D \approx 2,7 \cdot 10^3$ см⁻¹) полуширины соответствующих пиков в $\chi^{(3)}$, определяемые геометрией и дифракцией, даются величинами

$$\gamma_{1,2}/2\pi \approx 20 \text{ Гц}; \quad \delta/2\pi \approx 200 \text{ Гц}.$$

Таким образом, ожидаемая ширина «теплового» пика при прочих равных условиях должна быть существенно больше ширины «керровского».

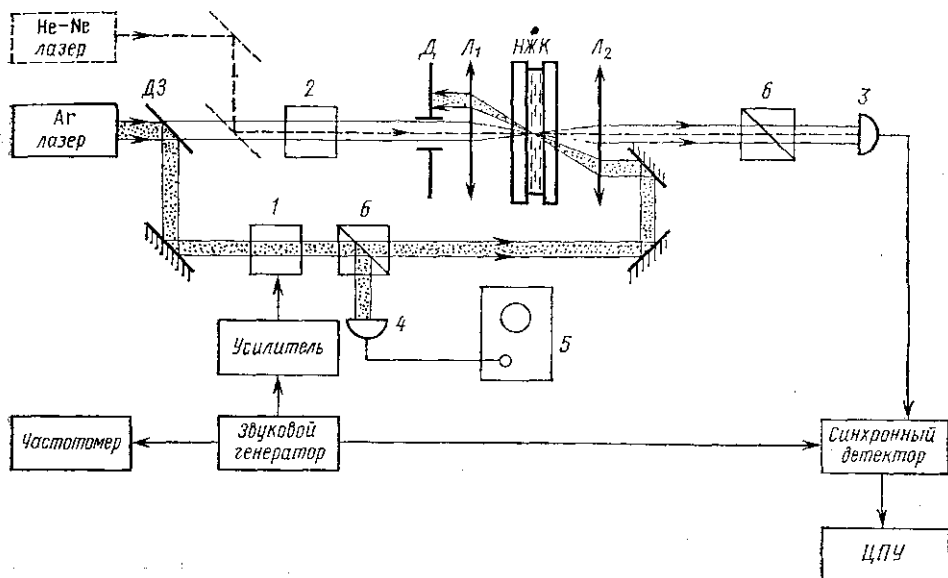


Рис. 1. Схема спектрометра, основанного на принципе активной спектроскопии рассеяния в крыле рэлеевской линии НЖК в модуляционном варианте: 1 — электрооптический модулятор МЛ-3; 2 — двойной ромб Френеля; 3 — фотоэлемент ФД-28; 4 — фотоэлемент ФД-24; 5 — осциллограф; 6 — поляризатор (призма Глана); ДЗ — делительное зеркало; L_1 , L_2 — линзы; Д — диафрагма; ЦПУ — цифровое печатающее устройство. Пучок накачки показан серым; в качестве пробного могли использоваться как часть излучения основного аргонового лазера, так и излучение He—Ne лазера (показано штриховой линией)

3. Блок-схема спектрометра, использованного в наших экспериментах по АС РКРЛ в жидкокристаллических пленках, представлена на рис. 1. Линейно-поляризованное излучение одномодового аргонового лазера непрерывного действия ($\lambda = 488$ нм) делилось диэлектрическим

зеркалом в отношении 20:1. Более мощная отраженная часть излучения (накачка) модулировалась электрооптическим модулятором света МЛ-3. Сканирование частоты велось в диапазоне 6 Гц — 40 кГц.

Накачка и пробная волна фокусировались в кювету с НЖК-линзами L_2 и L_1 (диаметры фокального пятна накачки $D_L=50$ мкм и пробного излучения $D=20$ мкм по уровню e^{-2}). Луч, прошедший сквозь образец, анализировался поляризационной призмой и фокусировался на фотодиод. Модулированная компонента пробного излучения выделялась синхронным детектором, настраиваемым на частоту модуляции; результаты выводились на цифropечатающее устройство.

В качестве объекта исследований нами был выбран планарно ориентированный образец НЖК № 654, представляющий собой смесь ряда веществ с параметрами $n_o=1,51$, $n_e=1,71$. Температурный интервал мезофазы $9^\circ\text{C} \leq t \leq 60^\circ\text{C}$. НЖК содержался в кювете толщиной 50 мкм, изготовленной из стекол толщиной 4 мм с тефлоновой прокладкой, при комнатной температуре. Ориентирование директора НЖК в плоскости входных окон осуществлялось их натиранием.

В экспериментах интенсивность волны накачки поддерживалась ниже порога самовоздействия.

4. В опытах мы наблюдали сильный эффект оптической кросс-модуляции в планарно ориентированных образцах НЖК. При небольших частотах модуляции он легко наблюдался визуально.

Эксперименты по измерению частотной зависимости $\chi^{(3)}(\Omega)$ проводились при различных комбинациях поляризаций взаимодействующих волн, перечисленных в табл. 1. Столбцы (а) и (б) этой таблицы

Таблица 1

Компоненты тензоров кубической оптической нелинейности НЖК (тепловой и ориентационной), проявляющиеся в дисперсии сигнала оптической кросс-модуляции в различных поляризационных конфигурациях (компоненты тензора

$\chi_{ijkl}^{(3)}$ представлены своими индексами $ijkl$)

Направление пропускания поляризационного анализатора ¹⁾	(а) вдоль z	(б) вдоль y	(в) вдоль y	(г) вдоль y	(д) вдоль z	
Состояние поляризации волны накачки E_L^2	линейная, 45° к оси z	линейная, 45° к оси z	линейная, 45° к оси z	линейная, 2° к оси z	эллиптическая, с большой осью вдоль z	
Диспергирующая компонента нелинейности	тепловой	zzzz zzyy	zzzz ³⁾ zzyy ³⁾	zzzz ³⁾ xxzz ³⁾ zzxx ⁴⁾ xxxx ³⁾ zzyy ⁴⁾ xxyy ⁴⁾	zzzz ³⁾ xxzz ³⁾ zzxx ³⁾ xxxx ³⁾ zzyy ⁴⁾ xxyy ⁴⁾	zzzz, xxzz zzxx, xxxx zzyy ⁴⁾ xxyy ⁴⁾ yyzz ³⁾ yuxx ³⁾ , yuyy ³⁾
	ориентационной	yzyz ³⁾ yzzy ³⁾	yzyz yzzy	yzyz yzzy	yzyz yzzy	yzyz ³⁾ yzzy ³⁾ , xzxz ⁵⁾ xzzx ⁵⁾ zxzx ⁵⁾ zxzx ⁵⁾

1) Оси y , z лежат в плоскости пленки НЖК, z — вдоль директора НЖК; случаи (а), (б), (в) — нормальное падение лазерных пучков на пленку НЖК, (г), (д) — наклонное падение.

2) Пробная волна E во всех случаях линейно поляризована вдоль z .

3) Регистрация затруднена вследствие выбора направления пропускания поляризационного анализатора. Опорным полем является компонента пробного излучения: вдоль направления пропускания анализатора.

4) Вклад мал вследствие малости y -компоненты поля волны накачки.

5) Регистрация ориентационных компонент происходит с гетеродинированием фазовой модуляции.

соответствуют нормальному падению волн на НЖК, а остальные — наклонному падению под углом $\theta \approx 33^\circ$. Экспериментально измеренные кривые дисперсии I_Ω сигналов оптической кросс-модуляции, полученные в различных поляризационных конфигурациях (столбцы (а)–(д) табл. 1), нанесены точками на рис. 2 (а–д соответственно).

Опорная волна, сдвинутая по фазе на $\pi/2$ относительно пробной и ортогонально к ней поляризованная, которая использовалась в сериях экспериментов (б)–(г), получалась простым поворотом поляризационного анализатора на пропускание y -поляризованного излучения (пробная волна обладала небольшой эллиптичностью).

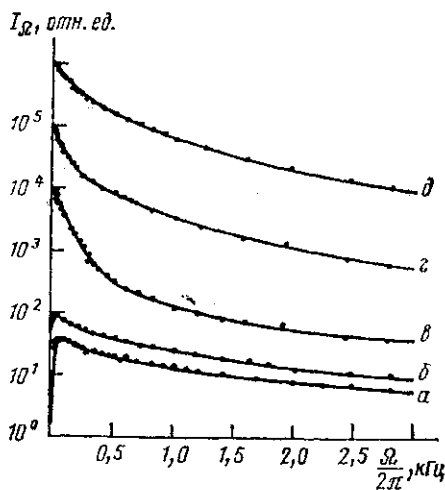


Рис. 2. Дисперсионные кривые сигнала оптической кросс-модуляции в нематическом жидком кристалле. Условия наблюдения при снятии кривых а–д соответствуют столбцам (а)–(д) табл. 1. Точки — эксперимент, сплошные линии — расчет

Как видно из (2) и табл. 1, в конфигурациях (б)–(г) следует ожидать зависимости I_Ω , отражающей дисперсию действительных составляющих керровской и тепловой нелинейностей:

$$I_\Omega = A \frac{\gamma \Omega}{\Omega^2 + \gamma^2} + B \frac{\delta \Omega}{\Omega^2 + \delta^2}. \quad (7)$$

Напротив, в конфигурации (а) предсказывается проявление мнимых составляющих этих нелинейностей:

$$I_\Omega = A' \frac{\gamma^2}{\Omega^2 + \gamma^2} + B' \frac{\delta^2}{\Omega^2 + \delta^2}. \quad (8)$$

Наконец, в конфигурации (д) должна проявиться зависимость «смешанного» вида:

$$I_\Omega = A'' \frac{\gamma \Omega}{\Omega^2 + \gamma^2} + B'' \frac{\delta(\Omega + \delta)}{\Omega^2 + \delta^2}. \quad (9)$$

Именно такие дисперсионные кривые наблюдаются экспериментально. Кривые а–д, приведенные на рис. 2, рассчитаны по формулам (7)–(9) путем подгонки экспериментальных данных при варьировании величин A/B , δ и γ . Параметры представленных на рис. 2 расчетных кривых приведены в табл. 2.

Используя значения $\gamma_{20} = 2\gamma_2$ и $\delta_{20} = 2\delta$, из табл. 2 и типичное значение $\eta_1 = 50$ сП, из выражений (3), (4) можно оценить

$$K_{22} \approx 4 \cdot 10^{-6} \text{ дин}; \quad \kappa_{\perp} \approx 3 \cdot 10^{-4} \text{ см}^2 \cdot \text{с}^{-1}.$$

Полагая $\eta \approx \eta_1$, $K_{11} \approx K_{22}$, можно оценить пиковые значения ненулевых компонент кубической восприимчивости керровского типа по формуле (3):

$$\bar{\chi}_{zzzz}^{(3)K} \approx 4 \cdot 10^{-4} \text{ см}^3/\text{эрг}.$$

Параметры суперпозиции лоренцевых кривых, описывающих экспериментальные данные по низкочастотной дисперсии сигнала оптической кросс-модуляции в НЖК

Поляризации взаимодействующих волн, соответствующих табл. 1	а	б	в	г	д
Форма пика на нулевой частоте	$A\text{Im}\chi^{(3)}K + B\text{Im}\chi^{(3)}T$	$A\text{Re}\chi^{(3)}K + B\text{Re}\chi^{(3)}T$	$A\text{Re}\chi^{(3)}K + B\text{Re}\chi^{(3)}T$	$A\text{Re}\chi^{(3)}K + B\text{Re}\chi^{(3)}T$	$A\text{Im}\chi^{(3)}K + B\text{Im}\chi^{(3)}T$
А/В, соотношение вкладов керровской и тепловой нелинейности	3,75	3,0	9,3	20	4,88
$\gamma_0/2\pi$, полуширина контура керровской нелинейности, Гц	80	80	70	70	40
$\delta_0/2\pi$, полуширина контура тепловой нелинейности, Гц	600	600	650	650	650

5. Таким образом, в настоящей работе впервые зарегистрирован сильный эффект оптической кросс-модуляции в тонких пленках планарно ориентированного нематического жидкого кристалла. Установлено, что величина эффекта является функцией частоты модуляции и отражает низкочастотную дисперсию нелинейной оптической восприимчивости третьего порядка в крыле линии рэлеевского рассеяния света.

Можно полагать, что АС РКРЛ может применяться при исследовании других сред с аномально большими нелинейностями инерционного типа (например, кристаллов с фоторефрактивной нелинейностью).

Авторы признательны С. А. Ахманову, С. М. Аракеляну за обсуждение результатов.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- [1] Аракелян С. М., Чилингарян Ю. С. Нелинейная оптика жидких кристаллов. М., 1984. [2] Hegman R. M., Seginko R. J. // Phys. Rev. 1979. A19, N 4. P. 1757. [3] Зельдович Б. Я., Табириян Н. В. // Письма в ЖЭТФ. 1979. 30. С. 510; Зельдович Б. Я., Пилипецкий Н. Ф., Сухов А. В., Табириян Н. В. // Письма в ЖЭТФ. 1980. 31. С. 287. [4] Гаджиев Ф. Н., Коротеев Н. И., Пайтян Г. А. // VII Всесоюз. Вавиловская конф. по нелинейной оптике. Новосибирск, 1981. С. 23. [5] Бадалян Н. Н., Коротеев Н. И., Сьбева М. Л. // Опт. и спектр. 1983. 54. С. 312. [6] Бахрамов С. А., Тартаковский Г. Х., Хабибуллаев П. К. Нелинейные резонансные процессы и преобразование частоты в газах. Ташкент, 1981. [7] Им Тхек-де, Подавалова О. П., Попов А. К., Тартаковский Г. Х. // Письма в ЖЭТФ. 1975. 21. С. 427. [8] Rai R. K., Bloch D., Snyder J. J., Gammi G., Ducloy M. // Phys. Rev. Lett. 1980. 44. P. 1251. [9] Mlynek J., Lange W., Herde H., Burggraf H. // Phys. Rev. 1981. A24. P. 1099; Lange W., Mlynek J. // Phys. Rev. Lett. 1978. 40. P. 1373.

Поступила в редакцию
10.09.86