

ОПТИЧЕСКИ ИНДУЦИРОВАННАЯ НЕЦЕНТРОСИММЕТРИЧНОСТЬ И РЕШЕТКИ КВАДРАТИЧНОЙ НЕЛИНЕЙНОЙ ВОСПРИИМЧИВОСТИ В НЕМАТИКЕ

А. В. Сухов, Р. В. Тимашев

Экспериментально обнаружено увеличение эффективности генерации второй гармоники (ГВГ) в нематике 5СВ более чем в 300 раз при возбуждении в нем пространственно-периодической B -деформации излучением свободной генерации рубинового лазера. Варьированием пространственного периода деформации удастся реализовать синхронную ГВГ для взаимодействия $00 \rightarrow 0$. Явление объясняется локальным снятием центра инверсии, аналогичным флекс-эффекту.

Ориентационные деформации нематиков S - или B -типа приводят к локальной нецентросимметричности среды (см. ¹). Одним из известных проявлений такой нецентросимметричности является возникновение в среде спонтанной поляризации $\mathbf{P}_d = e_1 \mathbf{n}(\operatorname{div} \mathbf{n}) + e_3 (\operatorname{rot} \mathbf{n} \times \mathbf{n})$ — так называемый флекс-эффект. Однако естественно ожидать, что флекс-эффекту будут сопутствовать и другие (в том числе нелинейные) эффекты, определяемые нечетными моментами угловой функции распределения молекулярных диполей. В частности, возможно появление в среде дипольной квадратичной нелинейной восприимчивости $\chi_{ikl}^{(2)}$, на что впервые указывалось в работе ². Прямое экспериментальное наблюдение такой дипольной $\chi^{(2)}$ в случае пространственно-периодической (т.н. решеточной) оптически индуцированной B -деформации директора \mathbf{n} и составляло цель настоящей работы.

Рассмотрим гомеотропный образец нематика со слабой решеточной B -деформацией в плоскости xz (рис. 1) $\theta(z) = A(z)\cos qz$, — в котором распространяется вдоль невозмущенного направления $\mathbf{n}^0 \equiv \mathbf{e}_z$ мощная волна накачки E_N (в реальной экспериментальной ситуации — наносекундный импульс неодимового лазера с энергией, недостаточной, чтобы вызвать пороговую переориентацию директора, но с большой мощностью). Квадратичную восприимчивость среды, обусловленную B -деформацией, можно достаточно просто описать в рамках следующей модели.

Представим молекулу ЖК в виде цилиндра, ориентированного осью вдоль локального направления \mathbf{n} (см. врезку на рис. 1), имеющего боковой полярный "отросток" с дипольным

моментом μ , ориентированным нормально к \mathbf{n} и квадратичной гиперполяризуемостью $\beta^{(2)}$ (одномерный ангармонический осциллятор в направлении μ). Такое представление очень близко к реальной структуре многих мезогенных молекул. Продольный дипольный момент μ_{\parallel} , а также $\beta_{\parallel}^{(2)}$ в рассмотрение не принимаем, т.к. из симметричных соображений антипараллельная упаковка в направлении z не нарушена. Индуцированная нецентросимметричность соответствует модификации исходно изотропной функции распределения молекулярных диполей по азимутальному углу $f(\varphi)$. Последнюю считаем нормированной на концентрацию молекул N . Тогда спонтанная поляризация среды и квадратичная нелинейная поляризация описывается следующими выражениями:

$$P_d^i = \delta_{ix} \mu \langle \cos \varphi f(\varphi) \rangle; \quad P_2^i = \delta_{ix} R_w R_w R_{2w} E_N^2 \beta \langle \cos^3 \varphi f(\varphi) \rangle. \quad (1)$$

Угловыми скобками обозначено усреднение по φ , R_w — фактор локального поля на частоте w (точнее — в геометрии рис. 1 — главное значение тензора локального поля $R_{w\perp}$). Выражения (1) позволяют связать P_2^x с P_d^x , используя феноменологическое выражение для P_d и линейную связь первого и третьего моментов функции $f(\varphi)$. Последние можно в рамках термодинамической теории возмущений аппроксимировать следующим выражением (см. ³)

$$f(\varphi) \approx \frac{1}{2\pi} \left(1 - \frac{U(\varphi)}{k_B T}\right); \quad U = h\mu \cos \varphi \Rightarrow \langle \cos \varphi f(\varphi) \rangle = 2 \langle \cos^3 \varphi f(\varphi) \rangle. \quad (2)$$

Здесь введена эффективная "потенциальная энергия" U взаимодействия полярного радикала с неким ориентирующим "молекулярным полем" $\mathbf{h} = h\mathbf{e}_x \sim (\mathbf{n} \times \text{rot } \mathbf{n})$. Природа последнего достаточно сложна (скорее всего стерического характера) и здесь рассматриваться не будет. Тогда для B -деформации

$$P_2^x = \frac{R_{2w} R_w^2 E_N^2 \beta}{2\mu} P_d^x = \frac{R_{2w} R_w^2 E_N^2 \beta e_3}{2\mu} (\text{rot } \mathbf{n} \times \mathbf{n})_x \approx \frac{R_{2w} R_w^2 E_N^2 \beta e_3 A(z) q}{2\mu} \sin qz$$

$$\chi_{xxx}^{(2)} = - \frac{R_w^2 R_{2w} \beta e_3 q A(z)}{2\mu} \sin qz. \quad (3)$$

Здесь мы пренебрегли при дифференцировании производной медленной амплитуды $A(z)$; $R_{2w} = R_{2w\perp}$ — компоненты тензора локального поля для волны второй гармоники (ВГ) \mathbf{E}_r . Следует отметить, что линейная связь $\chi_{xxx}^{(2)}$ с P_d не может рассматриваться как причинная. Именно, статические поля, связанные с P_d (~ 150 В/см по работе ²) слишком слабы, чтобы индуцировать $\chi^{(2)}$ путем поляризации молекулярных орбиталей (что имеет место в полях ~ 10 кВ/см, см. ⁴). Поэтому флексоэлектричество и дипольную $\chi^{(2)}$ следует рассматривать как *сопутствующие* явления, имеющие общую причину — анизотропию $f(\varphi)$, индуцированную продольным изгибом директора. Пространственная эволюция волны \mathbf{E}_r описывается следующим уравнением:

$$\frac{\partial E_r}{\partial z} = b A(z) E_N^2 \{ \exp(2ik_N + iq - ik_r)z + \exp(2ik_N - iq - ik_r)z \};$$

$$b = \frac{\pi^2 R_{2w} R_w^2 e_3 q \beta}{4\lambda_N \mu n_{1r}}. \quad (4)$$

Здесь λ_N — длина волны E_N в вакууме, n_{1r} — показатель преломления o -поляризованной ВГ.

В силу нормальной дисперсии среды $k_r > 2k_N$ в геометрии рис. 1, поэтому второй член в правой части (4) не может дать синхронной ВГ и в дальнейшем опущен. Требуемая решетчатая B -деформация возбуждалась нами при нестационарном вынужденном ориентационном рассеянии o -волны E_R (импульс свободной генерации рубинового лазера в эксперименте) в e -поляризованную волну E_s (см. ⁵), причем $q = q(\alpha)$ определяется обычным уравнением Френеля для n_e, n_o ⁶. Варьируя α , можно добиться выполнения условия $q(\alpha_0) = k_r - 2k_N$. ГВГ такого типа в среде с пространственно-периодической $\chi^{(2)}$ обсуждалось в ⁷.

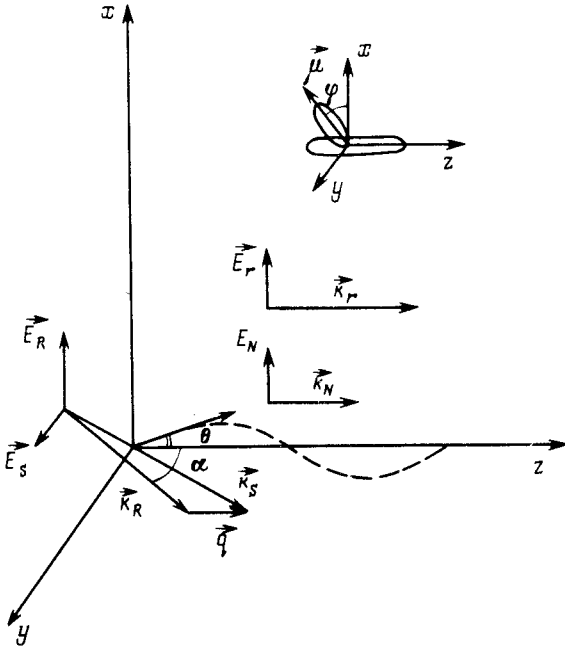


Рис. 1

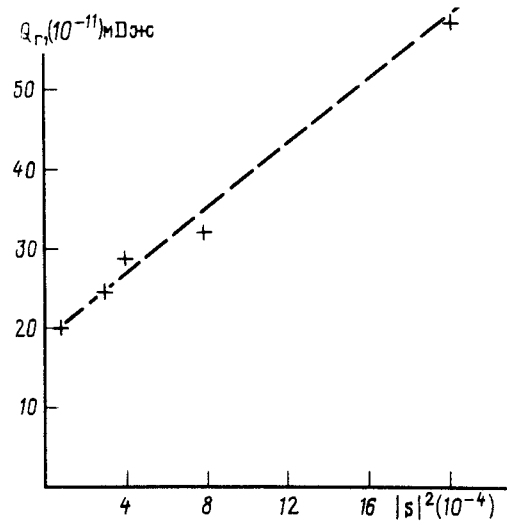


Рис. 3

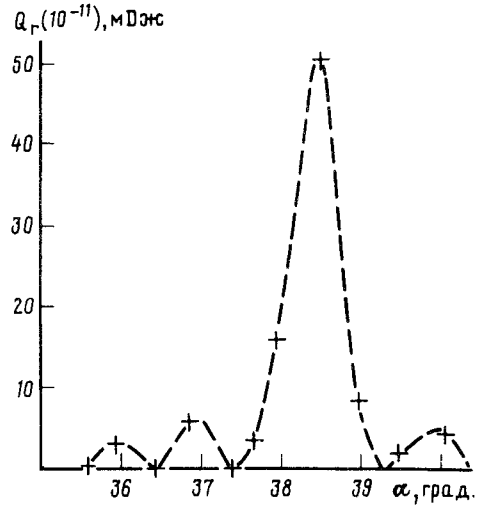
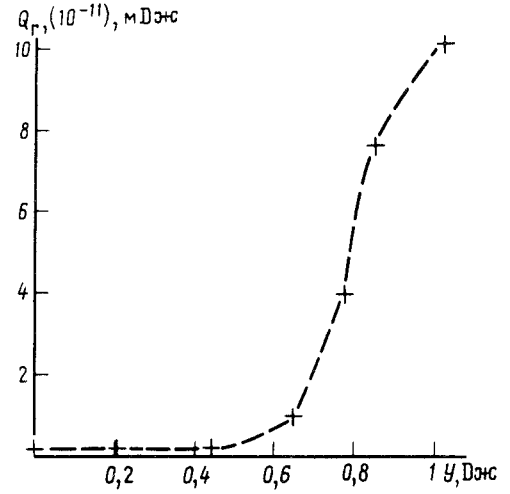


Рис. 2

Процесс нестационарного ориентационного ВР (см. ⁴) описывается следующим уравнением для параметра $S(z, t) = E_s(z, t)/E_L(t)$

$$\frac{\partial s}{\partial z} = is, \quad \frac{\partial \sigma}{\partial y} = gs, \quad \text{где } \sigma = \frac{\pi \epsilon_o}{\lambda_R (n_e n_o)^{1/2}} A; \quad g = \frac{\epsilon_a^2 \sin \alpha \epsilon_{\perp}}{16 \pi \epsilon_{\parallel} \eta (n_o n_e)^{1/2} \lambda_R}. \quad (5)$$

Здесь $\epsilon_a = \epsilon_{\parallel} - \epsilon_{\perp}$ — анизотропия диэлектрической проницаемости, λ_R — длина волны рубинового лазера, показатели преломления n_o , $n_e(\alpha)$ относятся к этой длине волны, η — ориентационная вязкость; $y = \int_0^t |E_R|^2 dt'$ — энергетическая экспозиция импульса E_R моменту t . В частном случае $\alpha = \alpha_0$ (синхронная ГВГ) из (4), (5) следует легко проверяемая экспериментально зависимость $E_r(z=L)$ от $s(L)$ (L — толщина образца):

$$\frac{\partial E_r}{\partial z} = ibA(z)E_N^2 = iv|E_N|^2 \frac{\partial s}{\partial z}; \quad v = \frac{\lambda_R(n_e n_o)^{1/2}}{\pi \epsilon_a} b \Rightarrow |E_r(L)|^2 = v^2 |E_N|^4 |s(L)|^2. \quad (6)$$

Экспериментально увеличение эффективности ГВГ в присутствии решеточной B -деформации и синхронная ГВГ $00 \rightarrow 0$ наблюдались нами в гомеотропном образце 5 СВ толщиной 70 мкм в геометрии рис. 1. Ориентационная решетка индуцировалась o -поляризованным импульсом свободной генерации рубинового лазера с энергией $\sim 0,5$ Дж и диаметром пучка в образце $FWHM_p = 1,5$ мм. ГВГ возбуждалась слабофокусированным пучком неодимового лазера с энергией ~ 10 мДж и диаметром пучка в образце $FWHM_p \approx 0,5$ мм. Угловая расходимость волны E_N составляла $\approx 0,3^\circ$. В процессе эксперимента контролировались следующие параметры: энергия импульсов E_N , E_r (чувствительность системы регистрации по ВГ составляла ~ 50 фотонов/импульс), временные огибающие импульсов E_R и E_s , а также экспозиция $y(t)$, поляризация волны E_r (при помощи призмы Глана).

Качественно результаты эксперимента сводятся к следующему. Поляризация сигнала ВГ совпадала с поляризацией E_N (o -волна). Для слабого (вероятно, квадрупольного) сигнала ВГ в отсутствие волны E_R наблюдалась нормальная квадратичная зависимость от энергии Q_N и мейкеровские осцилляции, что свидетельствует об объемном характере ВГ. В присутствии импульса E_R сигнал ВГ резко (более чем в 50 раз) увеличивался с ростом y при фиксированном E_N и α (см. рис. 2а). С целью проверки "решеточного" характера $\chi^{(2)}$ были проведены измерения зависимости энергии ВГ Q_r от α при фиксированных Q_N и y (см. рис. 2б). При угле падения волны E_R $\alpha_B = 38,5^\circ$, что соответствует $\alpha = \alpha_c = 25,16^\circ$, Q_r увеличивается более чем в 10 раз (ширина пика 1°), что свидетельствует о синхронной ГВГ. Отметим, что расчетное значение α_0 составляет $\alpha_0 = 25,40^\circ$, что совпадает с экспериментом в пределах угловой расходимости волны E_N . Для сравнения с вышеприведенной моделью были проведены измерения зависимости Q_r от $|s|^2$ при $\alpha = \alpha_c$. Результаты, приведенные на рис. 3, показывают хорошую линейную зависимость Q_r от $|s|^2$, причем коэффициент последней оказывается примерно в 10 раз больше оценки, приведенной из соотношения (6), что вполне удовлетворительно в пределах точности оценки. Отметим также, что абсолютные значения коэффициента преобразования в ВГ достигали $R = Q_r/Q_N \approx 5 \cdot 10^{-12}$.

Авторы благодарны Б.Я. Зельдовичу и С.Г. Одулову за полезные обсуждения.

Литература

1. Де Жен П. Физика жидких кристаллов. М.: Мир, 1977, с. 400.
2. Аракелян С.М. и др. ФТТ, 1984, 26, 1326.
3. Келих С. Молекулярная нелинейная оптика. М.: Наука, 1981, с. 277.
4. Барник М.И. и др. ЖЭТФ, 1981, 81, 1763.
5. Галстян Т.В. и др. ЖЭТФ, 1987, 93, 1737.
6. Зельдович Б.Я. и др. ДАН СССР, 1983, 273, 1116.
7. Баранова Н.Б., Зельдович Б.Я. ДАН СССР, 1982, 263, 325.