

ГЕНЕРАЦИЯ ВТОРОЙ ГАРМОНИКИ В ЖИДКИХ КРИСТАЛЛАХ; СИММЕТРИЯ МОЛЕКУЛ И МАКРОСКОПИЧЕСКАЯ НЕЛИНЕЙНОСТЬ

*С.М.Аракелян, Г.Л.Григорян, С.Ц.Нерсисян,
М.А.Ншанян, Ю.С.Чилингарян*

Экспериментально зарегистрирована генерация второй гармоники в нематическом жидком кристалле как при синхронном, так и при несинхронном взаимодействиях, впервые измерены величины компонент тензора нелинейной восприимчивости.

1. В предлагаемой работе уверенно зарегистрирована генерация второй гармоники (ГВГ) в ориентированных образцах нематического жидкого кристалла (НЖК) МББА. Впервые экспериментально получены величины различных компонент тензора нелинейной восприимчивости. Измерялась как несинхронная, так и синхронная ГВГ и выявлена наиболее оптимальная толщина слоя НЖК при ГВГ. Полное объяснение полученных данных для разных типов взаимодействий возможно с привлечением новых предположений о симметрии и макроскопических свойствах НЖК.

2. ГВГ получена в гомогенных ячейках НЖК МББА (марки ХЧ) толщиной порядка 10 мкм для несинхронного взаимодействия и несколько десятков микрон — для синхронного, ориентация в которых производилась натиранием стеклянных подложек в поле одномодового лазера на YAIG: Nd^{3+} с модуляцией добротности ($\lambda = 1,06$ мкм) с плотностью мощности излучения в ячейке порядка нескольких ГВт/см². Система регистрации на основе ФЭУ обеспечивала порог чувствительности при ГВГ ($\lambda = 0,53$ мкм) на уровне нескольких фотоэлектронов. Для синхронной ГВГ был возможен 90-градусный температурный синхронизм (точность стабилизации температуры в термостате была не хуже 0,1°C).

Угловая и спектральная ширина регистрируемого сигнала от ячейки с НЖК (за вычетом фона) была характерной для ГВГ. В эксперименте рассматривался случай коллинеарной ГВГ, компоненты тензора $\chi_{ijk}^{(2)}$, измеряемые при этом представлены в графах II и III таблицы для разных типов взаимодействий (графа I). В графе IV приведены экспериментальные величины компонент $\chi_{ijk}^{(2)}$ для НЖК МББА, нормированные на значение для $\chi_{333}^{(2)}$. Там же показаны когерентные длины взаимодействий при несинхронной ГВГ для комнатной температуры (графа V). Абсолютное значение для МББА получено из измерений относительно ГВГ в кварце и составляет величину $\chi_{333}^{(2)} = 2 \cdot 10^{-10}$ CGSE. На рис. а и б приведены результаты для синхронной ГВГ (возможность синхронного взаимодействия, как по углу, так и по температуре для МББА, отмечена знаком "+" в графе VI).

В неориентированном образце НЖК МББА и в его изотропной фазе мощность сигнала при ГВГ, $P_{2\omega}$, существенно падала и находилась на пределе возможностей экспериментальной установки. В твердой фазе НЖК величина $P_{2\omega}$ была сравнима со значением при синхронной генерации в нематической фазе, однако специальных исследований для этого случая не проводилось.

3. Как следует из вышеизложенного, регистрация ГВГ в НЖК МББА в наших экспериментах не вызывала сомнений. Величина регистрируемого сигнала существенно зависела от степени ориентации молекул НЖК в ячейке. Лучшей эффективности при этом следует ожидать при ориентации молекул НЖК внешним постоянным магнитным полем. В неориентированном НЖК также возможна заметная ГВГ, если области самопроизвольной ориентации молекул сравнимы с длиной волны. Это необходимо учитывать при нелинейных взаимодействиях высокого порядка в НЖК, когда важную роль могут играть каскадные процессы. Наличие синхронной генерации говорит об объемной ГВГ. При увеличении толщины слоя НЖК (или при повышении температуры), когда степень однородной ориентации молекул ухудшается (влияние статистики среды), значение $P_{2\omega}$ уменьшается, что также объясняет сравнительно небольшое превышение для $P_{2\omega}$ при синхронной ГВГ по сравнению с несинхронной, и приводит к наличию оптимальной толщины ячейки с НЖК (в нашем случае $l \sim 18$ мкм). Небольшая эффективность ГВГ в наших экспериментах ($\chi_{333}^{(2)} = 2 \cdot 10^{-10}$ CGSE) скорее связана не с общими свойствами НЖК, а с тем, что фактически до сих пор изучались "случайные" НЖК и целенаправленного поиска наиболее эффективных в нелинейной оптике жидких кристаллов не велось. Такими материалами должны быть

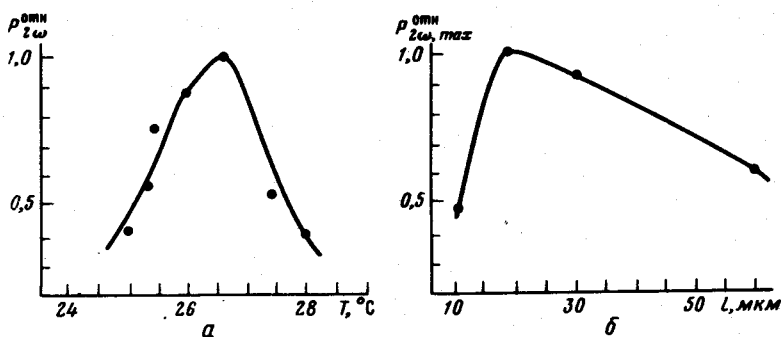
I	II		III	IV	V	VI		VII	VIII		
	Компоненты для взаимодействия вдоль оси x	$\chi_{ijk}^{(2)}$	Компоненты для взаимодействия вдоль оси y " + " - для $\phi = \pi/2$ " - " - для $\phi = 3/2\pi$	Экспериментальн. результаты для $\chi_{ijk}^{(2)}$ норм $\chi_{333}^{(2)}$	$l_{кор} = \frac{\pi}{\Delta k}$ мкм	возможность синхронизма	по углу	по температуре	Ненулевые компоненты $\chi_{ijk}^{(2)}$ в классе симметрии "m"	для взаимодействия вдоль оси x	для взаимодействия вдоль оси y " + " - для $\phi = \pi/2$ " - " - для $\phi = 3/2\pi$
$ee - e$	(333)	(333)	(333)	1	0,9	-	-	(333)	(333)	(333)	(333)
$ee - o$	(233)	(133)	(133)	0	1,6	+	+	0	(133)	(133)	(133)
$oo - e$	(322)	(311)	(311)	0,05	0,5	-	-	(322)	(311)	(311)	(311)
$oo - o$	(222)	(111)	(111)	0	2,5	-	-	0	(111)	(111)	(111)
$oe - e$	$\frac{(322) + (333)}{2} - (332)$	$\frac{(311) + (333)}{2} \pm (331)$	$\frac{(311) + (333)}{2}$	0	0,6	-	-	$\frac{(322)}{2} + \frac{(333)}{2}$	$\frac{(311) + (333)}{2} \pm (331)$	$\frac{(311) + (333)}{2}$	$\frac{(311) + (333)}{2} \pm (331)$
$oe - o$	$(223) - \frac{(222)}{2} - \frac{(233)}{2}$	$(111) + \frac{(133)}{2} \pm (131)$	$\frac{(111)}{2} + \frac{(133)}{2} \pm (131)$	0,22	7,5	+	+	(223)	$\frac{(111) + (133)}{2} \pm (131)$	$\frac{(111) + (133)}{2} \pm (131)$	$\frac{(111) + (133)}{2} \pm (131)$

$$\text{Здесь } \chi_{i/jk}^{(2)} = \chi_{ikj}^{(2)}$$

жидкие кристаллы с сопряженными химическими связями, молекулы которых обладают возбужденным состоянием с внутримолекулярным переносом заряда (ср. с [1]).

ГВГ в данном эксперименте возможна и за счет квадрупольного электрического взаимодействия на нелинейности более высокого порядка ($\hat{P}_i^{NL} \chi_{ijkl}^{(3)} E_j \nabla_k E_l$), однако, такие эффекты должны быть слабы в НЖК (в кристалле кальцита, например, в этом случае эффективная восприимчивость оценивается в эксперименте величиной $10^{-18} \pm 10^{-17}$ CGSE [2]).

Таким образом, ГВГ непосредственно должна быть связана с симметрией молекул НЖК, многим из которых можно приписать класс симметрии "m" [3 - 5] (отсутствие центра инверсии у молекул и их оптическая двуосность). Следует отметить, что эксперименты по измерению параметра порядка в ориентированных НЖК мало чувствительны к двуосности молекул [6]. Значения компонент $\chi_{ijk}^{(2)}$ для этого класса приведены в графах VII - VIII таблицы. При этом длинным осям молекул НЖК соответствует ось z, а ось y перпендикулярна плоскости симметрии и считается, что в планарно ориентированных ячейках НЖК плоскости молекул перпендикулярны поверхностям подложек [4].



Кривая температурного синхронизма при ГВГ для ячейки толщиной $l = 18$ мкм (рис. а) и зависимость в максимуме синхронизма мощности $P_{2\omega, max}^{отн}$ от толщины ячейки (рис. б) для взаимодействия $oe - o$ в НЖК МББА.

Полное объяснение экспериментальных результатов по ГВГ (см. таблицу, последние две строки) возможна при дополнительных предположениях. В частности, для взаимодействия вдоль x (см. II графу) необходимо считать что нарушается правило симметрии Клейнмана [7] для компонент $\chi_{ijk}^{(2)}$, при этом $\chi_{332}^{(2)} \neq 0$, что не соответствует классу симметрии "m".

Возможно и другое объяснение, дающее хорошее совпадение (с точностью несколько процентов) с полученным в эксперименте нулевым значением эффективной восприимчивости для взаимодействия $oe - e$, но требующее привлечения существенно новых для НЖК предположений. Речь идет о новом электро-магнитооптическом эффекте (высокочастотном) за счет действия полярного вектора $[EH]$ световой волны (ср. с [8]). Такие эффекты можно отделить от других ориентационных взаимодействий в НЖК только для экспериментов, где проявляется полярность взаимодействия). В этом случае в эксперименте измеряются компоненты, подчеркнутые в таблице. Не имея возможности остановиться здесь на обсуждении этого предположения (см. также [9]) заметим только, что взаимодействие магнитного поля световой волны со средой физически реализуемо: например, хорошо известно, что магнитная проницаемость ферромагнетиков на оптических частотах не столь уж мала — порядка магнитной проницаемости парамагнетиков в статических магнитных полях [10]. В этом плане важное значение имеет представление магнитного состояния НЖК как аналога ферромагнитной анизотропии [9].

Выражаем благодарность С.А.Ахманову за поддержку настоящей работы и Б.Я.Зельдовичу за полезное обсуждение.

Ереванский
государственный университет

Поступила в редакцию
21 июня 1978 г.

Литература

- [1] Л.Г.Коренева, В.Ф.Золин, Б.Л.Давыдов. Молекулярные кристаллы в нелинейной оптике. М., изд. Наука, 1975.
- [2] R. W. Terhune, P. D. Maker, C. M. Savage. Phys. Rev. Lett., 8, 404, 1962.
- [3] R. Williams. Phys. Rev. Lett., 21, 342, 1968; J. Chem. Phys., 50, 1324, 1969.
- [4] H. Kimura. J. Of the Phys. Soc. of Japan, 30, 1273, 1971.
- [5] R. Alben, J. R. McColl, S. Shin. Solid State Comm., 11, 1081, 1972.
- [6] J. Jen, N. A. Clark. P.S. Pershan. E.B. Priestly. J. Of Chem. Phys., 66, 4635, 1977.
- [7] С.А.Ахманов, Р.В.Хохлов. Проблемы нелинейной оптики, М., ВИНТИ, 1964.
- [8] Н.Б.Баранова, Ю.В.Богданов, Б.Я.Зельдович. УФН, 123, 349, 1977.
- [9] M. Morita, S. Imamura. K. Yatabe J. Phys. Soc. Jap., 34, 1710, 1974.
- [10] Г.С.Кринчик. Физика магнитных явлений. М., изд. МГУ, 1976.