

## Высокоэффективная генерация разностных частот нематическим жидким кристаллом

С.И.Трашкеев, В.М.Клементьев, Г.А.Поздняков

*Впервые экспериментально получена высокоэффективная генерация на разностных частотах при взаимодействии излучения оптического диапазона с нематическим жидким кристаллом. Источником исходного излучения служил аргоновый лазер непрерывного действия, излучающий на нескольких линиях с суммарной мощностью 0.08–1.5 Вт. Максимальная эффективность преобразования составляла  $\sim 1\%$ , коэффициент квадратичной восприимчивости был равен  $\sim 2 \times 10^{-6}$  м/В. Рассматриваемый механизм квадратичной нелинейности и преобразования частоты является приближением, границы применимости которого требуют уточнения. Наблюдаемое нелинейное преобразование излучения имеет особенности, отличающие его от генерации разностных частот в твердых кристаллах.*

**Ключевые слова:** генерация разностных частот, ориентационная нелинейность, жидкий кристалл.

Нелинейная оптика жидких кристаллов (ЖК) как одно из направлений оптики нелинейных явлений сложилось относительно недавно (конец 1970-х – начало 1980-х годов). Подробную историю- и библиографию по этому вопросу можно найти в обзорной работе [1]. В этой и других ранних публикациях содержится анализ физического механизма, приводящего к специфическим нелинейным оптическим явлениям в ЖК. В отличие от твердых кристаллических сред, в жидких кристаллах оптическая ось, направление которой совпадает с направлением длинных осей молекул, не «закреплена» жестко и может изменяться во времени и в пространстве в зависимости от величины и направления электрических полей, включая световые. Чтобы выделить эти явления, при которых коэффициенты диэлектрической проницаемости можно было бы считать для монохроматических полей постоянными, был введен термин «ориентационная оптическая нелинейность ЖК». Такую нелинейность сейчас принято называть кубической, или, точнее, нелинейностью нечетного порядка. В первых работах сразу же была отмечена аналогия (хотя и неполная) между исследуемыми светоиндуцированными явлениями в ЖК и переориентацией Фредерикса в статических электрических полях [2]. Одновременно была изучена ориентационная самофокусировка ограниченных пучков, возникающая за счет наведенных градиентов показателя преломления (нелинейная линза) в области взаимодействия. Угловая расходимость, на два порядка превышающая исходную, и поперечное распределение интенсивности пучка света после прохождения самонаведенной в нематическом жидком кристалле (НЖК) линзы исследовались в работе [3], где впервые наблюдалось это явление. Отметим, что все ориентационные фредериксовские процессы, связанные с нелинейностью нечетного порядка, достаточно медленные, их характерные времена составляют 0.1–1 с [1, 3].

Явления, относящиеся к квадратичной нелинейности ЖК, или нелинейности четного порядка, оказались сложнее, особенно в случае НЖК. В невозмущенном состоянии (оптическая ось – директор – имеет одно направление во всем объеме) многие ЖК, в том числе и нематические, обладают центральной симметрией, и существование нелинейности четного порядка запрещено. Однако, как предполагалось ранее [4], в результате нарушения однонаправленности директора вследствие светоиндуцированной переориентации Фредерикса или другого воздействия центральная симметрия может нарушиться и направление оптической оси ЖК станет изменяться в пространстве и во времени. Таким образом, если деформированное состояние имеет нескомпенсированный макроскопический дипольный момент (в НЖК поляризуемость среды возникает вследствие флексоэлектрического эффекта), появляется возможность генерации разностных и суммарных частот.

Рассмотренный ориентационный механизм нелинейного формирования излучения не позволяет разделить влияние четных и нечетных степеней разложения индукции в ряд Тейлора в зависимости от напряженности электрического поля волны. Фактически приходится иметь дело с нелинейностью общего характера. Следует отметить также, что классические кристаллографические представления для твердого тела не всегда применимы к ЖК. Здесь правомочна гидродинамическая модель анизотропной (неньютоновской) жидкости Эриксона–Лесли [2]. Выполнение условия фазового синхронизма как условия когерентного накопления формируемого излучения в нелинейной оптике твердых кристаллов сводится к нахождению оптимальных геометрических параметров, которые зависят от кристаллографических и спектрально-дисперсионных характеристик вещества. В жидкокристаллической среде направление оптической оси зависит от электрических полей распространяющихся в среде волн, соответственно условие синхронизма в ЖК должно приводить к более сложным закономерностям, чем геометрические соотношения, хорошо известные в нелинейной оптике твердых кристаллов. Исследование данного вопроса в настоящей работе не проводится.

Генерации гармоник электромагнитного излучения, вызванной квадратичной нелинейностью ЖК, было по-

С.И.Трашкеев, В.М.Клементьев. Институт лазерной физики СО РАН, Россия, 630090 Новосибирск, просп. Акад. Лаврентьева, 13/3; e-mail: sitrskv@mail.ru

Г.А.Поздняков. Институт теоретической и прикладной механики им. С.А.Христиановича СО РАН, Россия, 630090 Новосибирск, ул. Институтская, 4/1; e-mail: georg@itam.nsc.ru

Поступила в редакцию 13 августа 2007 г., после доработки – 9 января 2008 г.

священо относительно небольшое количество работ, основная часть которых пришлась на конец 1970-х и 1980-е годы. Подробная библиография по этой тематике содержится в [5]. Полученные эффективности генерации вторых гармоник жидкими кристаллами оказывались сравнимыми с эффективностью их генерации твердыми кристаллами (восприимчивость  $\chi \sim 10^{-13}$  м/В). В теоретической работе [4] исследовался ориентационный механизм возникновения квадратичной нелинейности. В рамках принятых в [4] допущений были получены восприимчивости НЖК, которые существенно отличались от экспериментальных значений [6, 7]. Расхождение объяснялось отсутствием надежных данных для некоторых материальных констант НЖК в области световых частот.

В теоретической работе [8] рассмотрен вопрос о генерации разностной частоты жидкими кристаллами с целью получения излучения субмиллиметрового (терагерцового) диапазона. Анализ приведенных в [8] уравнений, основанных на ориентационном принципе нарушения симметрии НЖК, проводился численными методами. Выполненные параллельно исследования генерации кратных гармоник показали, что приближения, принятые в [4], имеют весьма ограниченный характер и приведенные там же оценки практически нельзя использовать. Одним из результатов, полученных в работе [8], был вывод о возможности генерации разностных частот с высокой эффективностью, превышающей аналогичную величину для известных кристаллов.

В настоящей работе приведены предварительные результаты экспериментов, основной целью которых являлось подтверждение возможности высокоэффективной генерации разностных частот нематическим жидким кристаллом. Схема эксперимента представлена на рис.1. В качестве источника излучения использовался аргоновый лазер 1 непрерывного действия. Направление поляризации лазерного излучения горизонтальное. Лазер работал в режиме генерации нескольких линий излучения, наиболее интенсивные из которых приведены в табл.1, где также указаны длины волн, соответствующие разностным частотам. Суммарная мощность излучения лазера регулировалась в пределах 0.08–1.5 Вт изменением разрядного тока. Инфракрасное излучение дуги, горящей в лазерной трубке, отсекалось с помощью водяного фильтра 2. Излучение лазера модулировалось (с частотой порядка или менее 1 Гц, которая выбиралась в соответствии с характерным временем светоиндуцированной переориентации Фредерикса) вращающимся прерывателем – полудиском 3. Линзой 4 с фокусным расстоянием 150 мм излучение лазера фокусировалось в объеме образца ЖК, заполняющего кювету 5.

Исследуемая смесь (НЖК 1289) находилась в кювете, образованной стеклянной пластиной, через которую об-

Табл.1. Длины волн, соответствующие разностям частот линий спектра излучения аргонового лазера.

$\lambda_i$ (мкм)	$\lambda_j$ (мкм)				
	0.5145	0.5017	0.4965	0.4880	0.4765
0.5145	$\infty$	-20.1660	-14.1916	<b>-9.4746</b>	-6.4516
0.5017	20.1660	$\infty$	-47.9027	-17.8708	<b>-9.4865</b>
0.4965	14.1916	47.9027	$\infty$	-28.5049	<b>-11.8291</b>
0.4880	<b>9.4746</b>	17.8708	28.5049	$\infty$	-20.2202
0.4765	<b>6.4516</b>	<b>9.4865</b>	<b>11.8291</b>	20.2202	$\infty$

Примечание. Подчеркнуты длины волн разностных частот, попадающие в регистрируемый спектральный интервал. Жирным шрифтом выделены длины волн, соответствующие разностным частотам наиболее интенсивных линий аргонового лазера.

лучался образец ЖК, и пластиной из ZnSe, прозрачной для ИК излучения. Размер зазора между пластинами определялся толщиной прокладок (100 мкм). Для создания начальной гомеотропной ориентации директора НЖК (нормальной к стенкам ячейки) пластины перед сборкой кюветы обрабатывались хромоланом. После сборки кювета капиллярным способом заполнялась жидким кристаллом, находящимся в изотропном состоянии. Однородность исходной (невозмущенной) ориентации директора контролировалась поляризационным микроскопом до и после эксперимента. Образец ориентировался поверхностями по нормали к лучу лазера. На расстоянии 30–40 мм от образца, в области, где лазерное излучение достаточно расфокусировано, помещалось германиевое окно 6, просветленное в области 10 мкм, либо устанавливались узкополосные дисперсионные фильтры (использовался набор из 20 фильтров с полосами пропускания в диапазоне длин волн 5–15 мкм) для приближенного определения спектральных характеристик генерируемого излучения 8. Интенсивность излучения измерялась с помощью калиброванного приемника 9 (фоторезистор ФСГ-22-3А) с усилителем переменного тока, нижняя граничная частота пропускания которого составляла 0.1 Гц. Сигнал регистрировался цифровым осциллографом 10.

От использования усилителя постоянного тока в данной схеме авторы отказались, поскольку в процессе измерений фильтр 6 нагревался лазерным излучением и увеличивающееся тепловое излучение от фильтра приводило к медленному росту регистрируемого сигнала. Приемник располагался на поворотно-подъемном механизме 7, позволявшем исследовать индикатрису выходящего из образца излучения. Интегральная мощность лазерного и генерируемого (превышающего 5 мВт) излучений измерялась измерителем мощности ИМО-2. Стабильность мощности лазерного излучения контролировалась с помощью фотодиода 11. Образец находился в жидкокристаллической фазе, о чем свидетельствовала харак-

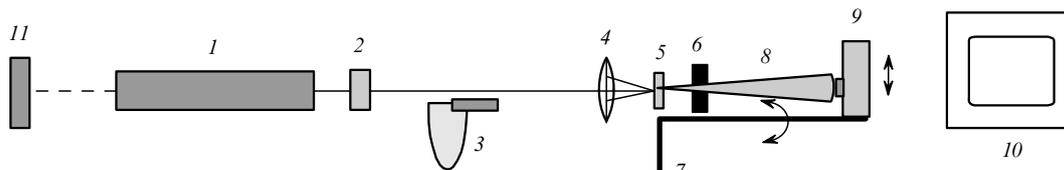


Рис.1. Схема установки:

1 – аргоновый лазер; 2 – кювета с водой; 3 – прерыватель; 4 – фокусирующая линза ( $f = 150$  мм); 5 – кювета с образцом НЖК; 6 – германиевое окно или ИК фильтры; 7 – поворотно-подъемный механизм; 8 – генерируемое излучение; 9 – приемник; 10 – регистрирующее устройство (усилитель, осциллограф); 11 – измеритель мощности лазерного излучения.

терная абберационная картина рассеяния отраженного лазерного излучения, возникшего вследствие ориентационной самофокусировки. В случае исчезновения самофокусировки из-за перехода ЖК в изотропную фазу эксперимент прекращался. Наблюдавшееся поперечное распределение интенсивности отраженного излучения эквивалентно полученному в [9] и свидетельствует о нарушении однородной (исходной) ориентации оптической оси ЖК.

На рис.2 приведен характерный сигнал с приемника в зависимости от времени при частоте модуляции излучения лазера 0.4 Гц и выходной мощности лазера 300 мВт. Минимумы и максимумы кривой соответствуют моментам (не более 3 мс) открывания и закрывания прерывателя. В отличие от случая генерации разностных частот в твердых кристаллах, эта кривая имеет области медленного нарастания и затухания во времени. Убрав кювету с водой и установив приемник на оптической оси лазера, мы проконтролировали частотную характеристику измерительного тракта. Таким образом было зарегистрировано ИК излучение от разряда в трубке лазера, модулированное прерывателем. Сигнал имел резкие фронты с длительностью, определяемой временем перекрытия лазерного пучка. Участок нарастания сигнала на рис.2 (~1 с) объясняется медленными процессами светоиндуцированной переориентации Фредерикса [1, 3, 9], приводящей к нарушению центральной симметрии ЖК и появлению нелинейной линзы. Наличие излучения после перекрытия лазерного пучка пока не имеет однозначного объяснения и требует дальнейших исследований. Возможно, оно свидетельствует о существовании в среде какого-то долгоживущего возбужденного состояния. Это предположение основано на данных работы [10], где показана возможность существования дискретных квазистационарных состояний ориентации директора НЖК в переменных (с частотой до 5 МГц) электрических полях сложной конфигурации.

На рис.3 приведена картина углового распределения интенсивности генерируемого излучения. Индикатриса излучения представляет собой эллиптическое кольцо, геометрические параметры которого зависят от мощности лазерного излучения. При суммарной мощности падающего излучения  $P_{\Sigma} = 0.3$  Вт угловые размеры индикатрисы составляют 17–20° по горизонтали и 9–10° по вертикали. Угловая полуширина кольца индикатрисы излучения равна 1–1.5°. Положение оси эллиптического конуса смещено в горизонтальном (вдоль направления

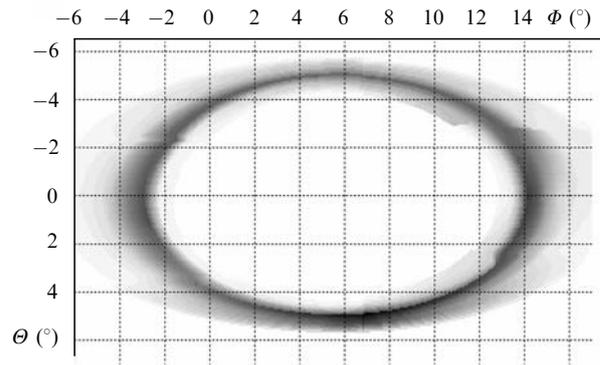


Рис.3. Угловое распределение интенсивности генерируемого излучения в координатах  $\Phi, \Theta$ .

поляризации лазерного пучка) относительно оси лазерного излучения направлении примерно на 6°. Точка пересечения оси лазерного пучка с плоскостью рисунка (начало координат на рис.3) приблизительно совпадает с левым фокусом эллипса. Интенсивность излучения вдоль периметра эллипса не постоянна (изменяется примерно в 1.5 раза) и максимальна в его нижней части. Такая форма индикатрисы генерируемого излучения не может быть обусловлена тепловым излучением или люминесценцией. Объяснение полученного углового распределения излучения образца НЖК, как и вопросы, связанные с фазовым синхронизмом, авторы выводят за рамки настоящей публикации. На форму распределения излучения в дальней зоне оказывают влияние по крайней мере два фактора: наличие нелинейной линзы и дифракция длинноволнового излучения на поперечной апертуре зоны взаимодействия в фокальной перетяжке (~50 мкм) исходного излучения.

Для получения предварительных данных о спектральных характеристиках генерируемого излучения вместо германиевого окна перед приемником 9 (см. рис.1) устанавливались дисперсионные фильтры. На рис.4 представлен спектр регистрируемого излучения. Максимумы интенсивности имеют сравнимые значения, хотя интенсивности исходных линий излучения различаются на порядки и более. Это свидетельствует о возможности параметрического усиления при формировании излучения на разностных частотах.

На рис.5 представлена зависимость интегральной (по телесному углу излучения вперед и в измеряемом частот-

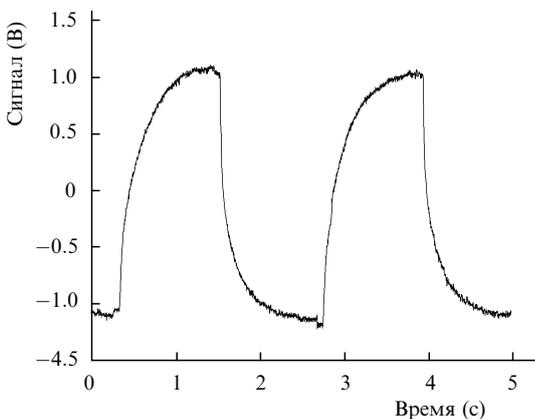


Рис.2. Временная зависимость мощности генерируемого излучения при выходной мощности лазера 300 мВт.

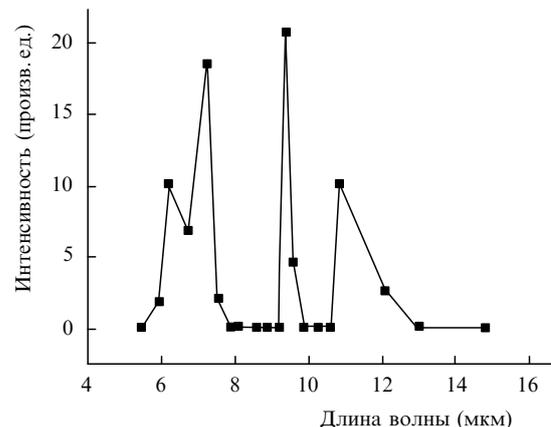


Рис.4. Спектр генерируемого излучения.

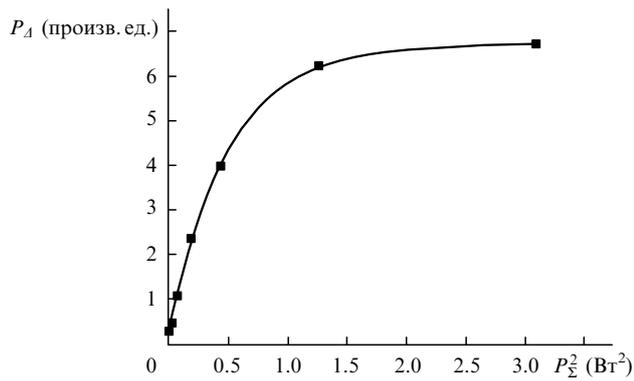


Рис.5. Зависимость мощности  $P_A$  генерируемого излучения от квадрата суммарной мощности  $P_\Sigma^2$  падающего излучения. Точки – экспериментальные данные, кривая – интерполяционная зависимость вида  $P_A = P_0[1 - \alpha \exp(-P_\Sigma^2/p_w^2)]$ .

ном интервале) мощности  $P_A$  генерируемого излучения от квадрата суммарной мощности  $P_\Sigma^2$  падающего излучения. Приведенная зависимость имеет насыщение и при  $P_\Sigma > 150$  мВт с погрешностью  $\sim 5\%$  описывается экспоненциальной зависимостью (кривая на рис.5). В области мощностей вблизи начала координат измерения затруднены из-за малого отношения сигнал/шум. Соответственно в условиях данного эксперимента определить наличие порога возникновения излучения на разностной частоте не удается. Если порог существует, то  $P_{th}$  не превышает 80 мВт, что по порядку величины не противоречит данным работ [3, 9], в которых исследовались пороговые характеристики светоиндуцированного перехода Фредерикса и возникновение нелинейной линзы. При мощности накачки более 150 мВт зависимость на рис.5 описывается соотношением вида

$$P_A = P_0 \left[ 1 - \alpha \exp \left( - \frac{P_\Sigma^2}{p_w^2} \right) \right].$$

Из-за наличия шумовой составляющей величина  $\alpha$  не определяется точно, а остальные параметры принимают следующие значения:  $P_0 \approx 10$  мВт,  $p_w^2 \approx 0.5$  Вт<sup>2</sup>. Если принять  $\alpha \sim 1$  (с погрешностью 10%–20%), что соответствует беспороговому процессу формирования излучения, то по линейному участку кривой в области малых мощностей (рис.5) можно оценить квадратичную восприимчивость:  $\chi^{(2)} \approx 2 \times 10^{-6}$  м/В. Это значение на 5–6 порядков больше максимально зарегистрированной для органического кристалла NPP (N-(4-нитрофенил)-L-пролин) квадратичной восприимчивости  $\chi^{(2)} \sim 10^{-12}$  м/В

[11]. Максимальная эффективность преобразования излучения «вперед» (в направлении падающего пучка)  $\eta = P_A/P_\Sigma$  достигается при мощности исходного излучения  $P_\Sigma \approx p_w \approx 0.7$  Вт и составляет  $\sim 0.7\%$ .

Насыщение мощности излучения на разностных частотах объясняется, скорее всего, тем, что при больших интенсивностях исходного излучения в процессе преобразования изменяется условие синхронизма, начинают играть существенную роль старшие (выше кубических) члены разложения индукции в ряд Тейлора по степеням напряженности электрических полей волн в жидкокристаллической среде или вступают в действие конкурирующие процессы.

В экспериментах наблюдалось нелинейное преобразование излучения в НЖК, сопровождаемое высокоэффективной генерацией излучения на разностной частоте. Этот процесс более сложен, чем проявление квадратичной нелинейности в твердых кристаллах. Квадратичное преобразование частоты рассматривается как приближение, границы применимости которого требуют уточнения. Оценка коэффициента эффективной нелинейности при учете только квадратичного механизма дает значение, намного превышающее аналогичную величину для твердых кристаллов. Данный результат получен впервые и имеет ряд особенностей, отличающих его от результатов исследования генерации разностных частот в твердых кристаллах. Все это приводит к необходимости тщательного анализа реально действующего механизма наблюдаемого преобразования.

1. Зельдович Б.Я., Табириян Н.В. *УФН*, **147** (4), 633 (1985).
2. Блинов Л.М. *Электро- и магнитооптика жидких кристаллов* (М.: Наука, 1978).
3. Золотко А.С., Китаева В.Ф., Кроо Н., Соболев Н.Н., Чиллаг Л. *Письма в ЖЭТФ*, **32** (2), 170 (1980).
4. Ou-Yang Zhong-can, Xie Yu-zhang. *Phys. Rev. A*, **32** (2), 1189 (1985).
5. Аракелян С.М., Чилингарян Ю.С. *Нелинейная оптика жидких кристаллов* (М.: Наука, 1984).
6. Аракелян С.М., Григорян Г.Л., Нерсиян С.Ц., Чилингарян Ю.С. *ЖЭТФ*, **80** (5), 1883 (1981).
7. Штыков Н.М., Блинов Л.М., Дорожкин А.М., Барник М.И. *Письма в ЖЭТФ*, **35** (4) 142 (1982).
8. Trashkeyev S.I., Grachev G.N., Klementyev V.M., Statsenko P.A. *Modern Problems of Laser Physics. Techn. Digest* (Novosibirsk, Institute of Laser Physics SB RAS, 2004, p. 296).
9. Kitaeva V.F., Sobolev N.N., Zolot'ko A.S., Csillag L., Kroo N. *Mol. Cryst. Liq. Cryst.*, **91**, 137 (1983).
10. Trashkeev S.I., Klement'ev V.M., Statsenko P.A. *Liq. Cryst.*, **33** (4), 417 (2006).
11. Шемл Д., Зисс Ж. *Нелинейные оптические свойства органических молекул и кристаллов. Т.1.* (М.: Мир, 1989).