

玻璃与液晶非线性光学界面 反射特性的研究*

张合义 郭 平 何雪华

北京大学物理系

1988 年 11 月 26 日收到

本文系统地研究了由玻璃与液晶构成的非线性光学界面。用一台调 Q 的红宝石激光器研究了由玻璃与处于各向同性液相的液晶所构成的非线性界面。在不同入射角时非线性界面由内部全反射跃变到部分透射的阈值光强与 Kaplan 的平面波理论计算结果相一致。在 $T - T_c = 2.5^\circ\text{C}$ 条件下测量了时间分辨的非线性界面的反射率。观察到了反射率的滞后迴线。非线性界面的这种反射率的滞后迴线可以归之于液晶分子退取向的弛豫过程。用 Ar^+ 激光器研究了玻璃与向列相液晶所构成的非线性光学界面，观察到了由相变而产生的内部全反射到部分透射状态的跃变。

一、引 言

由线性光学介质与非线性光学介质构成的界面称为非线性光学界面。界面上的非线性光学效应引起这种非线性光学界面反射率随光强而改变。由于这种非线性光学界面是一种无腔的器件，有可能发展成为非常快速的开关与逻辑元件，所以引起人们很大的兴趣^[1-3]。另外由于它可以构成一个限幅的反射器件，所以在激光防护方面得到重要的应用。对它反射特性的研究是十分有意义的课题。最早提出非线性光学界面的是 Kaplan^[4]，他给出了平面波入射到非线性界面上反射特性的解析理论。他预言这种非线性界面的反射具有光学双稳特性。他的理论引起人们很大兴趣。不少科学家分别用实验和计算机数值模拟的方法对非线性界面的反射特性进行了很多工作。美国具尔实验室 Smith^[5] 首次报道了他们用玻璃与 CS_2 构成的非线性光学界面反射特性的实验研究。后来他们又用人造克尔介质为非线性光学材料与 LiF 晶体之间构成非线性光学界面，进行了较系统的研究^[6]。稍晚些时候 Khoo 研究了液晶与玻璃之间的非线性光学界面的反射特性^[3]。但他用一种化学介质先涂在玻璃表面上使液晶分子垂直于表面排列，在向列相进行实验。我们对于液晶与玻璃构成的非线性光学界面进行了较为系统的研究，即研究了各向同性液相的液晶与玻璃构成的非线性光学界面的反射特性，也研究了向列相液晶与玻璃构成的非线性光学界面的反射特性。

* 国家自然科学基金资助的课题

二、理论背景

由线性光学介质与非线性光学介质构成的非线性光学界面如图 1 所示。线性光学介

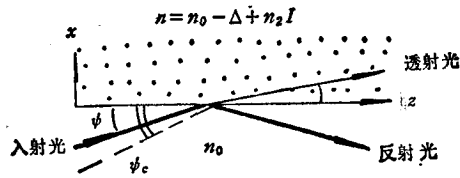


图 1 非线性光学界面示意图

质折射率为 n_0 ，非线性光学介质折射率

$$n = n'_0 - n_2 I,$$

取 $n'_0 = n_0 - \Delta$ ， Δ 为一小的正数值， n_2 为光克尔系数，则

$$n = n_0 - \Delta + n_2 I. \quad (1)$$

光强很小时，忽略 $n_2 I$ 项，由线性介质入射时入射角大于临界角 θ_c 时会发生内部全反射

(TIR)。但这时透入介质 II 中的消逝场 E 会通过 $n_2 I$ 的非线性光学效应而增大 n ，从而减小 I ，II 介质的折射率差，而这个过程又会使透入介质 II 的消逝场增强，这样形成一个正反馈的过程。当光强达到阈值 I_0 时，界面会发生由内部全反射到部分透射的跃变。基于这样的考虑 Kaplan 给出了一个关于非线性光学界面的解析理论。他假设 (1) 入射波与反射波都是无限宽的平面波。(2) 介质 II 中的透射波也是无限平面波，或是随离开界面的距离 x 单调地衰减的消逝波。(3) 介质 II 的非线性光学效应可以由 $n = n'_0 + n_2 I$ 表示。

Kaplan 的平面波理论可简述如下：

如临界入射角 θ_c 的余角为 ψ_c ， $\psi_c = \sqrt{\frac{2\Delta}{n_0}}$ ，掠入射角 $\psi < \psi_c$ 时，一般情况下界面会发生内部全反射，当光强达到阈值光强 I_0 时，界面发生由内部全反射到部分透射状态的跃变， I_0 由下式决定：

$$\frac{n_2 I_0}{\Delta} = \begin{cases} \frac{1}{2} [1 - (\psi/\psi_c)^2] & \text{当 } \frac{1}{\sqrt{2}} \leq \psi/\psi_c < 1; \\ \frac{1}{8} (\psi_c/\psi)^2 & \text{当 } 0 < \psi/\psi_c < \frac{1}{\sqrt{2}}. \end{cases} \quad (2)$$

当光强 I 大于某一定值 I_{TIR} 时，平面波理论预期介质 II 中有透射波的解，其 I_{TIR} 的值为

$$n_2 I_{\text{TIR}} / \Delta = \frac{1}{4} [1 - (\psi/\psi_c)^2].$$

当 $I > I_{\text{TIR}}$ 时，非线性界面的振幅反射率 r ，透射波与界面的夹角 ψ_1 以及入射光强 I 之间的关系由下式给出：

$$\frac{n_2 I}{\Delta} = \frac{1}{(1+r)^2} \left[1 - \frac{4r}{(1+r)^2} \left(\frac{\psi}{\psi_c} \right)^2 \right], \quad (3)$$

$$\frac{n_2 I}{\Delta} = \frac{(\psi + \psi_1)^2 (\psi_c^2 + \psi_c^2 - \psi^2)}{4\psi^2 \psi_c^2}. \quad (4)$$

图 2 为当 $\psi/\psi_c = 1/\sqrt{2}$ 时 Kaplan 理论得出的

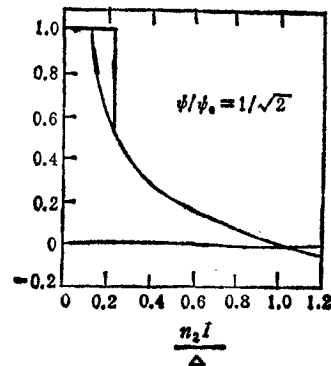


图 2 当 $\psi/\psi_c = 1/\sqrt{2}$ 时 Kaplan 理论得出的 $r - n_2 I / \Delta$ 光学曲线

线,这是一个光学迴线。Kaplan 认为是光学双稳迴线。

有人对 Kaplan 的理论提出异议,因为在正克尔介质中无限平面波不是稳定解,而是分成一系列的自聚焦沟道^[7]。但我们认为对于入射波与反射波而言,无限平面波还是一个可用近似,所以它对于阈值光强 I_0 应该是可用的。这理论是非线性光学界面研究的重要文献。

三、实验工作与结果

我们分别研究了处于各向同性液相的液晶与玻璃以及向列相液晶与玻璃所构成的非线性光学界面。液相液晶的液晶池如图 3 所示。玻璃尺寸为 $48 \times 18 \times 10 \text{ mm}^3$, 为 BaF_2 玻璃。对于 $\lambda = 6943 \text{ \AA}$, BaF_2 玻璃与 MBBA 液晶的折射率差 $\Delta n = 0.0015$, 这样 $\phi_c = 2.5^\circ$ 。两片玻璃之间夹有厚度为 $300 \mu\text{m}$ 的液晶层,用聚脂薄膜垫片做两片玻璃间的垫圈。液晶池置于控温器中,控温精度为 $\pm 0.05^\circ\text{C}$ 。采用 MBBA 液晶是由于这种液晶的各种参数都比较全,便

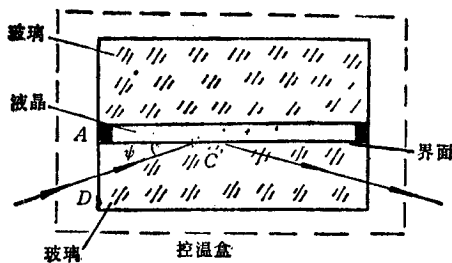


图 3 液晶样品池结构

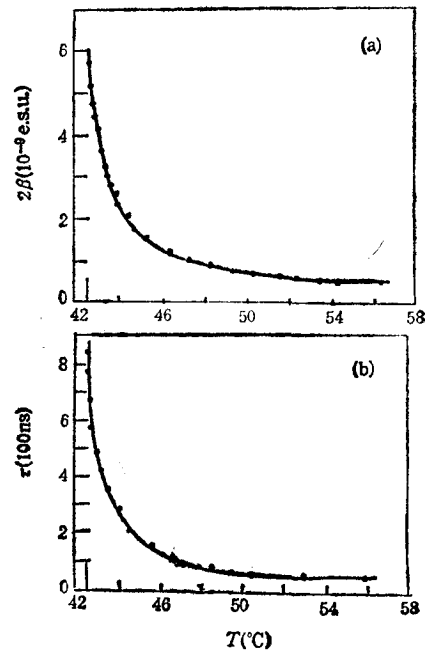


图 4

(a) 为 MBBA 非线性折射率 2β 随温度变化曲线;
(b) 为 MBBA 分子弛豫时间 τ 随温度变化曲线

于同理论进行比较。图 4(a), (b) 为 MBBA 非线性折射率 2β 与弛豫时间 τ 分别随温度变化的曲线^[8]。

实验装置示于图 5。所用光源为调 Q 红宝石激光器,其脉冲宽度 $\Delta T = 16-30 \text{ ns}$ 范围内可调。激光能量用 RJ-7200 能量计标定。光电二极管 D_1 与 D_2 分别用于测量入射光与反射光。透镜 L 用于将光束聚焦在非线性界面上,光斑直径为 $300 \mu\text{m}$,在界面上是以 $300 \mu\text{m}$ 宽的长条形光斑入射的。

1. 非时间分辨的测量结果如图 6 所示,图 6(a)(b)(c) 分别表示

$$\phi/\phi_c = 1, \phi/\phi_c = 0.866, \phi/\phi_c = 0.707$$

三种入射角情况下非线性光学界面的反射率 R 随入射光强 I 的变化曲线。实验条件为温度高于相变温度 2.5°C , 即 $T - T_c = 2.5^\circ\text{C}$ 。由图 6(c) 求出对 $\phi/\phi_c = 0.707$, $I_0 =$

$6 \times 10^7 \text{W/cm}^2$. 由图 4(a) 求出 $T - T_c = 2.5^\circ\text{C}$ MBBA 液晶的非线性光学系数 $2\beta^{[8]}$, 换算成光克尔系数

$$n_2 = 7.2 \times 10^{-6} (\text{MW/cm}^2)^{-1}.$$

利用平面波理论的 (2) 式求出

$$I_0 = 5.2 \times 10^7 \text{W/cm}^2.$$

说明平面波理论与实验值符合得很好.

2. 时间分辨的反射特性

测量时间分辨的非线性界面反射特性所用的实验装置与图 5 类似. 主要的区别是必须采用快响应的光电二极管两只, 分别测量入射波波形与反射波的波形. 所用光电二极管上升时间

$$\tau_{\text{上升}} \approx 100 \text{ps},$$

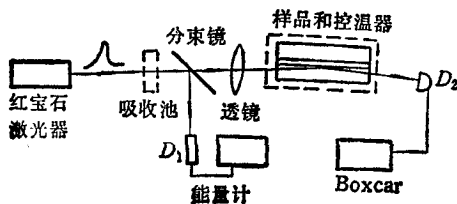


图 5 非时间分辨测量的实验装置

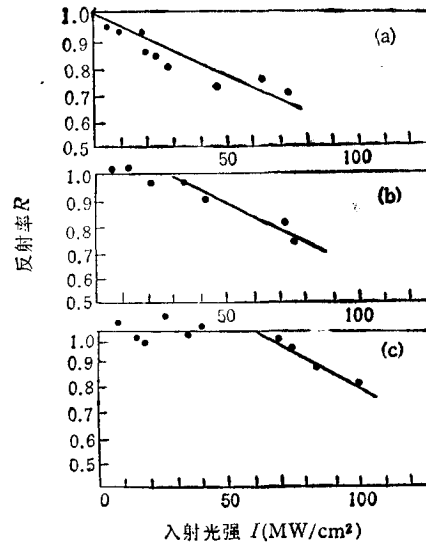


图 6

(a) 为 $\phi/\phi_c = 1$ 非时间分辨测量所得到的反射率随光强变化曲线; (b) 为 $\phi/\phi_c = 0.866$ 非时间分辨测量所得到的反射率随光强变化曲线; (c) 为 $\phi/\phi_c = 0.707$ 非时间分辨测量所得到的反射率随光强变化曲线

采用 50Ω 的输入阻抗, 观察波形所用示波器为 TR7904, 带宽为 500MHz. 记录波形时采用存贮示波器 TR7633. 测量时分束板把入射光分出一束反射光射到光电二极管 D_1 上, 用以观测入射波形, 透过分束玻璃片的激光束经透镜聚焦在非线性光学界面上. 先在小的光功率下观察, 这时反射率 $R = 1$, 则反射波形与入射波形应完全重合. 在探测非线性界面的反射光束的光电二极管 D_2 前, 加一片衰减片, 调整衰减片使小功率时二波形完全重合.

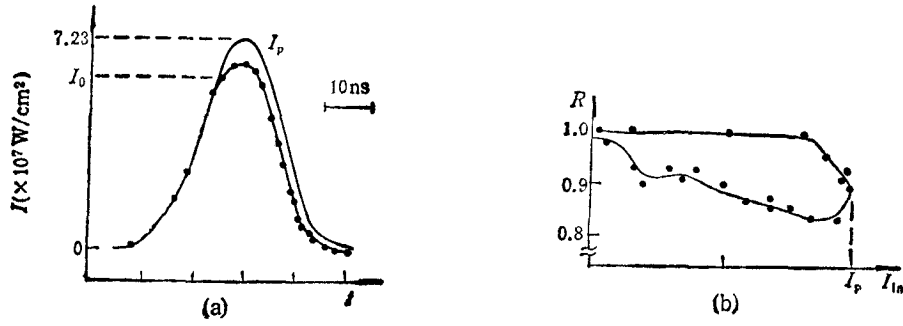
时间分辨的反射特性如图 7 所示. 入射峰值光强 $I_p = 1.13I_0$. 由图 7(a) 可以看出, 当 $I > I_0$ 时, R 即小于 1. 这里定出的对 $\phi/\phi_c = 0.707$ 时的光强

$$I_0 = 6.4 \times 10^7 \text{W/cm}^2.$$

这与非时间分辨测量结果一致. 设入射光脉冲为一高斯型的 $I(t) = I_p^{-1} \exp[-(t-t_0)^2/\Delta T^2]$, 这是峰值为 I_p , 以 t_0 时刻为中心, 脉宽为 $2\Delta T$ 的光脉冲. 我们实验中

$$2\Delta T = 20 \text{ns}, I_p = 1.13I_0.$$

对 $t < t_0$, 即波的前一半, 用图 6(c) 即 $\phi/\phi_c = 0.707$ 条件下对应不同 I 的反射率 R , 加以对照, 即对每一 t 值的光强 $I(t)$ 由图 6(c) 找出 R , 再求出 $I(t)R$, 发现与图 7(a) 基本一致. 但对入射光波光强下降的部分, R 总是小于 1. 图 7(b) 以入射光强为横坐标, 以反射率 R 为纵坐标, 示出反射光学迴线. Smith 等人对玻璃 CS_2 非线性界面的研究中得到了类似的结果. 他们认为这不是光学双稳迴线, 而是 CS_2 介质暂态破坏的一种弛豫的反应. Gibbs 在他的光学双稳文献^[9]中也认为这不是光学双稳迴线.



(a) 时间分辨测量得到的反射波形

(b) 由时间分辨测得的反射波形得出的光学滞线

图 7

根据以上所述, 在光强上升阶段即 $t \leq t_0$ 时液晶的折射率为

$$n = n_0 + n_2 I(t) = n_0 + n_2 I_0 e^{-[(t-t_0)/\Delta T]^2}. \quad (5)$$

相应的界面反射光强为

$$I_{rs} = R(I) I_0 e^{-[(t-t_0)/\Delta T]^2} \quad \text{当 } t \leq t_0. \quad (6)$$

这里 $R(I)$ 表示对入射光强 I 时界面的反射率, 由图 6 可以求出.

在光强下降的一段即 $t > t_0$ 时, 液晶分子有一个退取向的弛豫过程. 其结果是 t 时刻的折射率不仅与 t 时刻的光强有关, 而且与 t 时刻以前的光强也有关, 所以液晶的折射率为 (t 时刻的)

$$\begin{aligned} n &= n_0 + \frac{n_2}{\tau} \int_{t''}^t I(t') e^{-(t-t')/\tau} dt' \\ &= n_0 + \frac{n_2}{\tau} \int_{t''}^t I_0 e^{-[(t'-t_0)/\Delta T]^2} e^{-(t-t')/\tau} dt' = n_0 + n_2 I(t) \quad \text{当 } t > t_0. \end{aligned} \quad (7)$$

$$I'(t) = \frac{b}{\tau} \int_{t''}^t I_0 e^{-[(t'-t_0)/\Delta T]^2} e^{-(t-t')/\tau} dt' \quad \text{当 } t > t_0. \quad (8)$$

这时非线性界面的反射光强为

$$I'_{rs}(t) = R(I) I'(t). \quad (9)$$

$I'(t)$ 为在 $t > t_0$ 时的一个等效光强, τ 为液晶分子退取向弛豫时间. $R(I')$ 与 (6) 式中的 $R(I)$ 相同, 均由非时间分辨的反射率测定. b 为常数. 我们必须保证 (6) 式与 (9) 式的两条曲线在 $t = t_0$ 处的值相等, 所以常数 b 由这个条件决定. 发现由 (6) 式与 (9) 式计算所得的曲线 (取 $\tau = 200 \text{ ns}$, $\Delta T = 20 \text{ ns}$) 与由实验测出的波形基本一致. 这说明图 7(a) 中的光学滞线, 即反射率滞后是由于液晶分子在光场上升时刻在强光场作用下取向而使折射率增大. 当光强开始减弱时分子有退取向弛豫过程. 这使折射率的减小比光强下降有一个滞后, 造成非线性界面反射的滞后.

3. 向列相液晶与玻璃非线性光学界面的反射特性.

向列相的液晶具有很大的非线性光学效应. 可以用一般 Ar^+ 激光器研究向列相液晶与玻璃间的非线性光学界面的反射特性. 液晶池如图 8 所示. 液晶分子是沿表面排列的, 这是利用单向地摩擦玻璃表面后充入液晶来实现的. 与 Khoo 等人不同, 他们是在玻璃与液晶之间涂一层介质使液晶分子垂直表面排列, 这样就不单纯是玻璃与液晶之间

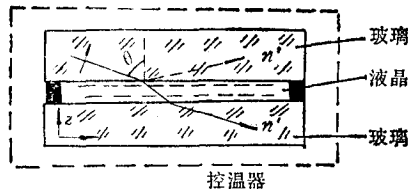


图8 向列相液晶样品池结构

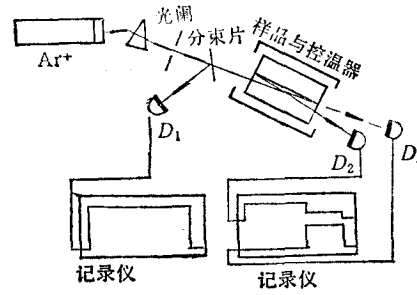


图9 向列相液晶非线性界面实验装置

的非线性界面,而是加入了一层介质。我们选用玻璃时 $\lambda = 5145 \text{ \AA}$, $n = 1.606$, 液晶层厚度 $d = 300 \mu\text{m}$ 。

实验条件 $T_c - T = 2^\circ\text{C}$, 即比相变温度低 2°C , 这时 MBBA 液晶如一单轴晶体, 主折射率 $n_e = 1.72$, $n_o = 1.56$ 。入射光电矢量在法线与光轴(即液晶的方向矢)的平面内,是 e 光,其折射率为

$$n_e(\phi) = n_o n_e [n_o^2 \sin^2 \phi + n_e^2 \cos^2 \phi]^{-1/2} \quad (10)$$

ϕ 为液晶内光波法线与液晶方向矢之间夹角。全反射时液晶中 $\phi_c = 0$ 。由此定出

$$\theta_c = 76.3^\circ$$

我们用 $\theta = 81.5^\circ$, 即 $\theta > \theta_c$, 发生内部全反射。

实验装置如图9所示。用 Ar^+ 激光器的 $\lambda = 5145 \text{ \AA}$ 与 4880 \AA 进行实验。以 $\lambda = 5145 \text{ \AA}$ 入射时,当入射光功率 P_{in} 小于 180 mW 时,只观察到反射光,透射光强为零。我们分别用 $P_{in} = 65 \text{ mW}$, 180 mW , 207 mW 进行了实验。以 $\lambda = 4880 \text{ \AA}$, 入射光功率 $P_{in} = 83 \text{ mW}$ 与 180 mW 进行了实验,其结果如表1所示。

表 1

| 波长 (\AA) | 入射光功率 $P_{in}(\text{mW})$ | 初始反射 $P_{R1}(\text{mW})$ | 终末反射 $P_{R2}(\text{mW})$ | 透射光功率 $P_T(\text{mW})$ | 损失功率 $P_A(\text{mW})$ |
|------------------------|------------------------------|-----------------------------|-----------------------------|---------------------------|--------------------------|
| 5145 | 65 | 26 | 26 | 0 | 39 |
| 4880 | 83 | 22 | 22 | 0 | 61 |
| 5145 | 180 | 40 | 13 | 108 | 59 |
| 4880 | 180 | 37 | 12 | 97 | 71 |
| 5145 | 209 | 55 | 15 | 125 | 69 |

首先以 $\lambda = 5145 \text{ \AA}$, 入射光功率 $P_{in} = 180 \text{ mW}$ 的实验为例说明发生光在非线性界面上发生透射跃变的机理。当入射光照在非线性界面上时,透射的光功率为零, $P_T = 0$ 。而反射光功率 $P_{R1} = 40 \text{ mW}$ 。光照射 3 min 后突然发生非线性界面的透射跃变。这时反射光功率下降为 $P_{R2} = 13 \text{ mW}$, 透射光功率跃升为 $P_T = 108 \text{ mW}$, $P_{in} = 180 \text{ mW}$ 相当于在非线性界面上光强为 700 W/cm^2 。其机理可分析如下:

1) 光场可以使液晶分子重新取向。当光的偏振方向不是与液晶方向矢严格垂直时,光场驱动液晶分子重新取向并没有阈值。但在玻璃界面上以及其附近的分子由于受到界

面与分子之间的相互作用,要改变表面层分子的取向光强要有一个阈值. Khoo^[3] 给出其阈值为 $I \geq 4000 \text{ W/cm}^2$. 而我们的光强为 700 W/cm^2 , 这个光强不足以使靠近玻璃表面的分子层重新取向. 我们曾使液晶温度取 18°C , 即 $T_c - T = 22^\circ\text{C}$, 用同样光强入射, 未观察到透射光跃变. 将光功率增大 1 倍, 即 1400 W/cm^2 , 仍未观察到透射光跃变. 光照射 3min 后才发生透射光跃变, 这比分子重新取向所需要的时间长得多.

2) 对 $P_{in} = 180 \text{ mW}$ 测得初始时 $P_{R1} = 40 \text{ mW}$, 则有 140 mW 的光被液晶分子散射与吸收. 这样吸热后液晶电向列相发生相变到各向同性液相. 处于液相的液晶其折射率 $n = 1.604$, 几乎与玻璃的折射率 1.606 相等, 所以非线性界面就转变为部分透射的状态.

以下再对图 10 中实验结果进一步分析. 当光入射初始时, $P_{in} = 180 \text{ mW}$, $P_T = 0$, $P_{R1} = 40 \text{ mW}$. 当用一个纸屏观察反射光点时, 发现在光点周围有很强的散射光, 3min 后转变为部分透射状态, 这时反射光点周围的散射光强减弱很多. 这时 $P_T = 108 \text{ mW}$, 而 $P_{R2} = 13 \text{ mW}$, 即反射光强由 $P_{R1} = 40 \text{ mW}$ 降到 $P_{R2} = 13 \text{ mW}$, 而透射光功率由 $P_T = 0$ 跃升为 $P_T = 108 \text{ mW}$. 透射光功率增长 108 mW , 反射光功率下降 27 mW , 即透射光功率增长幅度几乎是反射光功率下降幅度的 4 倍. 从物理上解释是初始时液晶处于向列相, 向列相液晶对光的散射很强, 因为处于向列相液晶的畴涨落, 造成对光的散射. 特别是在相变点附近, 这种涨落更为严重, 造成对光更强的散射. 当液晶处于向列相时, 非线性界面没有透射光, 散射光强损失加上液晶对光的吸收共损失 140 mW 的光功率. 一旦相变而达到各向同性液相时, 光散射极大地减弱, 所以透射光功率增长到 108 mW , 而反射光只下降 27 mW . 当入射光功率 $P_{in} = 209 \text{ mW}$ 时, 到达透射状态所需要的时间缩短到 30 s . 由表 1 还可以看出对于 $\lambda = 4880 \text{ \AA}$ 光的散射损失比 $\lambda = 5145 \text{ \AA}$ 更大. 因为一般散射光强度正比于波长倒数的四次方.

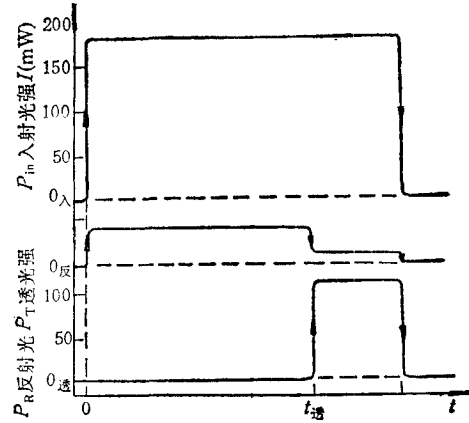


图 10 向列相液晶与玻璃非线性

四、结 论

我们对各向同性液相液晶、向列相液晶分别与玻璃组成的非线性界面的反射特性进行了研究.

1. 各向同性液晶与玻璃构成的非线性界面由内部全反射转变到部分透射状态的阈值(由时间分辨的实验测量所得)与 Kaplan 无限平面波的理论是符合的.

2. 由时间分辨的研究中测得的阈值与非时间分辨所得结果是一致的. 由时间分辨的研究得到一个反射的滞后迴线. 分析的结果表明反射迴线主要是由液晶的分子退取向的弛豫时间决定的.

3. 对向列相液晶与玻璃构成的非线性光学界面也观察到了由内部全反射到部分透射的跃变过程。这个跃变过程的阈值远小于光致分子重新取向导致由全反射到部分透射跃变所需要的光强。分析表明这一过程主要是光热致相变的过程导致折射率跃变所决定的。

作者感谢电子工业部第 11 研究所韩季之同志的支持。感谢连桂君同志的热情帮助。感谢中国科学院上海植物生理研究所杨善元同志为我们制备了红宝石调 Q 用的叶绿素 D。

- [1] P. W. Smith, W. J. Tomlinson *et al.*, *IEEE J. Quantum Electronics*, **QE-17** (1981), 340.
- [2] D. Marcuse, *Appl. Opt.*, **19**(1980), 3130.
- [3] I. C. Khoo *Appl. Phys. Lett.*, **40**(1982), 645.
- [4] A. E. Kaplan, *J. E. T. P. Lett.*, **24**(1976), 114.
- [5] P. W. Smith, J. P. Hermann *et al.*, *Appl. Phys. Lett.*, **35**(1979), 846.
- [6] P. W. Smith *et al.*, *IEEE J. Quantum Electronics*, **QE-20** (1984), 30.
- [7] N. N. Rozanov, *Opt. Spectroscopy (USSR)*, **47**(1979), 335.
- [8] Y. R. Shen, *Nonlinear optical study of pretransitional behaviour in liquid crystalline materials*, Proceedings of the international school of physics Enrico Fermi Course LXIV, P. 210—216. *Nonlinear Spectroscopy*, North-Holland Pub. Copm. (1975).

THE REFLECTION BEHAVIORS OF NONLINEAR OPTICAL INTERFACE BETWEEN GLASS AND LIQUID CRYSTAL

ZHANG HE-YI GUO PING HE XUE-HUA

Department of Physics, Peking University

(Received 26 November 1988)

ABSTRACT

The reflection behaviours of nonlinear optical interface between glass and liquid crystal were studied systematically. The reflection behaviours of such interface with isotropic liquid phase was studied by using a Q-switched ruby laser. The threshold intensity of transition from TIR (total internal reflection) to partial transmission for different incident angle were measured at $T - T_c = 2.5^\circ\text{C}$. It agrees with the plane wave theory of Kaplan. The time resolved reflection of nonlinear interface was also measured and hysteresis loop of reflectivity was observed. The hysteresis loop of reflectivity can be attributed to the deorientation relaxation processes of liquid crystal molecules. The nonlinear optical interface between glass and nematic liquid crystal was also studied using an Ar⁺ laser. The transition from TIR to partial transmission was observed at the intensity 700 W/cm^2 . This transition can be attributed to thermal induced phase transition from nematic mesophase to isotropic liquid phase.