

液晶的四波混频及其弛豫效应*

初桂荫 朱化南 俞祖和 张治国 邱元武 姬国枢 叶佩弦 沈元壤¹⁾

(中国科学院物理研究所)

周 赫 田

(北京大学物理系)

简并四波混频^[1,2], 作为一种重要的非线性光学效应, 近一、两年来受到广泛的注意. 已先后在 CS_2 ^[3], Na 蒸气^[4], 红宝石^[5]以及有机染料中观察到混频输出.

四波混频就一般意义说来, 可分为简并的和非简并的. 如图1所示, 1, 2, 3 三束光频率相同时视为简并的. 三光束同时作用于介质, 产生光束4, 频率与其它三束相同. 当1, 3 两束光频率相同(等于 ω'), 但不同于光束2 的频率(等于 ω), 则视为非简并的. 产生的光束4 的频率与光束2 相同, 但不同于光束1 和3. 一般说来, 1, 3 两光束的交角 $2\theta'$ 是任意的. 但光束1, 2 之间存在一个最佳匹配角. 对于简并情形, 这个最佳匹配角是 180° , 亦即光束2 与光束1 必须共线, 且沿相反方向传播. 如果1, 2 两光束不共线而形成一交角, 则要求包含光束1, 2 的平面垂直于包含光束1, 3 的平面. 对于非简并情形, 当1, 2, 3 三光束共面时, 如果 θ' 很小, 则要求 $\theta/\theta' = \omega'/\omega = \lambda/\lambda'$ (λ 和 λ' 分别为 ω 和 ω' 对应的波长). 可以证明, 允许失配的最大角度范围为 $\Delta\theta \approx \lambda/4l\theta'$, 其中 l 为四波混频作用区长度.

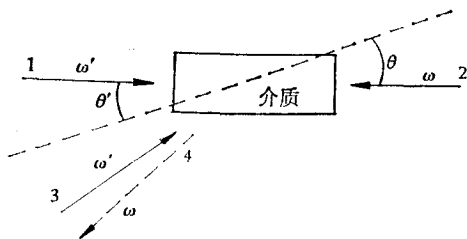


图1

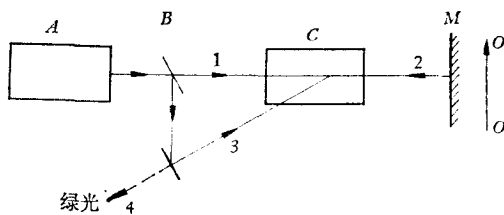


图2

A——YAG 倍频激光器; B——半反半透模; C——液晶盒
M——全反镜

我们分别对液晶 MBBA 和对甲氧基、丁基氧化偶氮苯(简称氧化偶氮苯)进行了简并和非简并四波混频效应的观测²⁾. 简并四波混频基本实验装置如图2所示. YAG 倍频激光波长为 $5320 \text{ \AA}$, 脉宽 14 ns , 能量 5.8 mJ , 在作用区的光斑面积约 1 mm^2 , 1, 3 两光束的交角约为 0.08 rad . 对液晶盒进行了控温, 温度起伏小于 0.01°C . 对于两种液晶在清亮点(分别为 42°C 与 70°C)之上的各向同性相都观察到较强的简并四波混频讯号——耀眼的

* 1979年2月14日收到.

1) Physics Department, University of California, Berkeley, CA 94720, USA.

2) 样品均由北京化工厂试剂研究所提供, 在此表示感谢.

绿色光斑。1, 2 两光束交角对输出讯号有敏感的影响。当反射镜 M 调节到 1, 2 两光束共线时, 输出最强。如使 M 绕垂直于纸面的轴旋转(即保持 1, 2, 3 三光束共面), 则只要作微小的旋转, 输出光斑便迅速变弱而消失, 在消失过程中光斑位置基本不移动。明显表现出匹配角的影响。然而, 如使 M 绕纸面上的 OO' 轴作微小的旋转, 亦即使 1, 2 两光束形成一交角但又保持 1, 2 两光束形成的平面与 1, 3 两光束形成的平面垂直, 则光斑并不迅速减弱或消失, 只是光斑位置在垂直于纸面方向上下移动。只当旋转的角度足够大时 ($>2.5^\circ$), 光斑才消失, 这显然是由于 1, 2, 3 三光束交叠的作用区显著变小引起的。简并四波混频输出的效率(光束 4 与光束 3 光强之比)初步估测为 $\sim 1 \times 10^{-3}$ 。

非简并四波混频基本实验装置如图 3 所示。YAG 倍频激光器性能同上。闪光灯泵浦染料激光输出中心波长约 $5800 \text{ \AA}$, 脉宽约 $0.5 \mu\text{s}$, 能量约 2 mJ 。偏振方向与 YAG 倍频激光相同。对 YAG 倍频激光脉冲和染料激光脉冲进行了同步。对于两种液晶, 在清亮点之上都观察到较强的非简并四波混频讯号——频率与染料激光相同的耀眼的橙色光斑。同时观测到匹配角的严重影响。要观察到混频输出, 1, 3 两光束必须偏离共线形成一恰当的角度。当染料激光器经使用干涉滤光片进行带宽压缩后, 混频输出光斑更集中、更亮, 对 1, 3 两光束的交角更敏感。非简并四波混频的效率初步估测为 $\sim 2 \times 10^{-4}$ 。

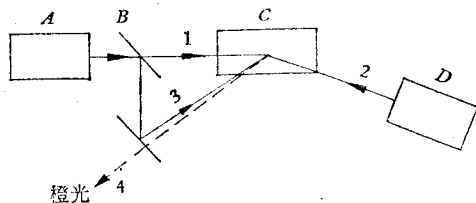


图 3

A, B, C 同图 2; D——闪光灯泵浦染料激光器

四波混频来源于 1, 2, 3 三光束对介质的联合作用所产生的三阶非线性极化。正是这个极化波的辐射导致第 4 束光的产生。我们认为, 对于液晶的各向同性相, 这个极化波的产生, 是与分子在光场作用下的转向联系在一起的。就是说, 1, 3 两光束的电场 E_1 和 E_3 (在同一方向线偏振) 联合对液晶作用的结果, 主要是使液晶分子转向而产生一定程度的有序化 (比例于 $E_1 E_3$)。不过, 这时并没有产生频率为 ω 的极化。只有当同时存在光束 2 的作用时, 液晶才产生频率为 ω 的极化 (极化强度比例于有序化程度及光束 2 的电场 E_2 , 亦即比例于 $E_1 E_3 E_2$), 其中, 分子转向的阶段是一种慢过程, 存在时间的积累, 也存在弛豫过程 (即当 1, 2 两光束撤掉后, 分子排列由有序到无序要经历一段时间)。但是, 由于 E_2 同时存在而产生的频率为 ω 的极化, 则是一种快过程, 是一种瞬时效应。

基于这种分析, 可以断言, 液晶的四波混频应该存在有趣而明显的弛豫效应。即: 如果原来 1, 2, 3 三光束同时存在, 当然会有光束 4 产生。此后, 若同时撤掉 1, 2, 3 三光束, 则由于导致第 4 束光的极化不复存在, 所以第 4 束光也就消失。但由于液晶中仍存在着前一时刻由 1, 3 两光束所产生的有序化, 因此在该有序化弛豫时间内若重新加上光束 2, 则尽管此时光束 1 和 3 已不存在, 但仍会产生极化, 并导致光束 4 的重现。当然, 由于光束 2, 3 联合作用产生的有序化, 在光束 1 的作用下也可产生导致光束 4 的极化。因此,

当 1, 2, 3 三光束撤掉后, 在有序化弛豫时间之内, 重新加上光束 1 也能导至光束 4 的重现。

我们用图 3 的装置观察了上述弛豫效应。不过, 现在要在 YAG 倍频激光脉冲(即 1, 3 两光束)与染料激光脉冲(即光束 2)之间加上可变延时装置, 使它们到达作用区的时间有一可调节的相对延时。

对于两种液晶, 我们都观测到四波混频存在上述明显的弛豫效应。

1. 当 YAG 倍频激光脉冲重叠在染料激光脉冲之上, 或超前于染料激光脉冲(对于氧化偶氮苯可超前几个微秒至十几个微秒)均可观察到混频输出光束 4。但当前者落后于后者, 则根本没有光束 4 产生。这说明关于激光与液晶分子作用过程的设想是对的。

2. 我们对各种情况下光束 4 在示波器上的脉冲波形进行了拍照, 并与染料激光的脉冲波形作了比较。当倍频激光脉冲超前于染料激光脉冲时, 光束 4 的波形与染料激光波形大致相似, 只是前沿上升较快。如图 4 所示。如果认为液晶分子有序化的弛豫过程服从指数律, 而且弛豫时间比染料激光脉冲宽得多, 以致在这个宽度的时间范围内分子有序程度的变化不大, 则输出波形的这种规律是不难理解的。

3. 当倍频激光脉冲叠加在染料激光脉冲的前沿上面时, 混频输出的波形如图 5 所示。可以看出, 在倍频激光脉冲到达之前, 尽管存在染料激光的作用, 也没有混频输出。

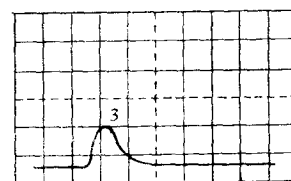
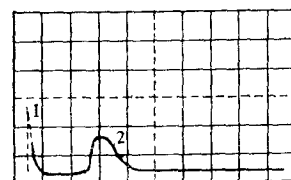


图 4

1——YAG 倍频激光脉冲波形;
2——染料激光脉冲波形;
3——四波混频信号光脉冲波形

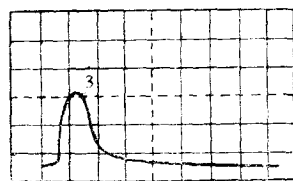
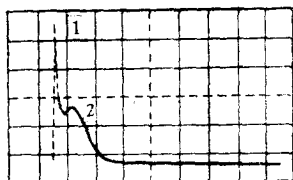


图 5

符号说明同图 4

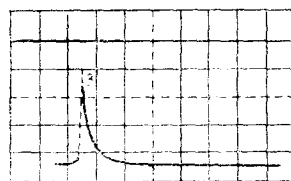
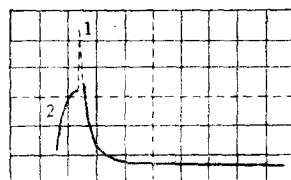


图 6

符号说明同图 4

4. 当 YAG 倍频激光脉冲叠加在染料激光脉冲的后沿上面时, 混频输出波形如图 6 所示, 与染料激光脉冲相比是很窄的。

以上观测说明液晶四波混频确实存在弛豫效应, 并且由于其弛豫过程与分子转向的弛豫过程相对应, 因而可用以直接测量液晶分子转向的弛豫时间和研究液晶相变前的行

为. 这个工作正在进行.

参 考 文 献

- [1] R. M. Hellwarth, *J. O. S. A.*, **67** (1977), 1.
- [2] A. Yariv, D. M. Papper, *Opt. Lett.*, **1** (1977), 16.
- [3] D. M. Bloom, G. C. Bjorklund, *Appl. Phys. Lett.*, **31** (1977), 592.
- [4] D. M. Bloom, P. F. Liao, N. P. Economou, *Opt. Lett.*, **2** (1978), 58.
- [5] P. F. Liao, D. M. Bloom, *Opt. Lett.*, **3** (1978), 4.

THE FOUR-WAVE MIXING IN LIQUID CRYSTALS AND ITS RELAXATION EFFECT

CHU GUI-YIN ZHU HUA-NAN YU ZHU-HE

ZHANG ZHI-GUO QIU YUAN-WU JI GUO-SHU

YE PEI-XUAN SHEN YUAN-RANG*

(*Institute of Physica, Academia Sinica*)

ZHOU HE-TIAN

(*Department of Physics, Peking University*)

* Physics Department, University of California, Berkeley, CA94720, USA.