АБЕРРАЦИОННАЯ КАРТИНА ПРИ САМОВОЗДЕЙСТВИИ ТЕМ₀₁ МОДЫ СВЕТОВОГО ИЗЛУЧЕНИЯ В НЕМАТИЧЕСКИХ ЖИДКИХ КРИСТАЛЛАХ

И. А. Будаговский¹, А. С. Золотько¹, А. А. Кузнецов¹, М. П. Смаев^{1,2}, С. А. Швецов^{1,3}, А. Ю. Бобровский³, Н. И. Бойко³, В. П. Шибаев³

Исследованы свойства аберрационной картины, возникающей при самовоздействии моды светового излучения TEM_{01} в жидкокристаллических системах. Установлено, что интерференция световых лучей, соответствующих двум пикам интенсивности и нелинейного набега фазы, приводит к формированию в зоне Фраунгофера системы полос с угловым периодом, определяемым расстоянием между пиками. Эти полосы заполняют всю аберрационную картину (систему концентрических колец) или только ее часть, в зависимости от вида профиля светоиндуцированного набега фазы. Показаны возможности использования свойств аберрационной картины в TEM_{01} моде для исследования светоиндуцированной переориентации директора нематических жидких кристаллов.

Ключевые слова: аберрационная картина, нематические жидкие кристаллы, жидкокристаллические полимеры, самофокусировка, самодефокусировка, самовоздействие света, оптическая нелинейность.

Введение. При прохождении гауссова светового пучка через среды с кубичной нелинейностью наблюдается формирование аберрационной картины в виде системы концентрических колец. Такая картина возникает при самофокусировке [1] и самодефокусировке [2] света в случае достаточно большого нелинейного фазового набега в средах с

 $^{^1}$ ФИАН, 119991 Россия, Москва, Ленинский пр-т, 53; e-mail: budagovskyia@mail.ru.

² РХТУ им. Д.И. Менделеева, 125047 Россия, Москва, Миусская пл., 9.

 $^{^3}$ МГУ им. М. В. Ломоносова, 11999 1 Россия, Москва, Ленинские горы, 1.

тепловой нелинейностью. Ярко выраженные эффекты аберрационной самофокусировки и самодефокусировки наблюдаются в низкомолекулярных нематических жидких кристаллах (НЖК) [3–7] и нематических жидкокристаллических полимерах (НЖКП) [8, 9] благодаря их большой оптической анизотропии $\Delta n \sim 0.2$. Поскольку число аберрационных колец простым образом связано с нелинейным набегом фазы, то эффект аберрационного самовоздействия может быть использован для измерения ориентационных нелинейностей. Например, в [7] было показано, что с его помощью можно измерять ориентационную нелинейность даже в присутствии сильных тепловых эффектов. В [10] обсуждалось применение аберрационного самовоздействия для измерения скоростей потоков. Наблюдение динамики развития аберрационной картины позволяет определять материальные параметры НЖК [11] и регистрировать малые изменения частоты световой волны [12]. В [13] при двукратном (прямом и обратном) прохождении гауссова пучка через НЖК наблюдалась генерация в аберрационной картине катастрофы гиперболическая омбилика. Аналогичный оптический эффект возникал и при однократном прохождении гауссова пучка через НЖК с фоторефрактивной нелинейностью [14].

К настоящему времени исследования аберрационного самовоздействия ограничивались аксиально симметричной модой TEM₀₀. В [15] при исследовании взаимодействия света с НЖКП в аберрационной картине, наряду с системой концентрических колец, была зарегистрирована система интерференционных полос. Однако этот эффект не был подробно изучен. В настоящей работе экспериментально исследовано взаимодействие моды светового излучения TEM₀₁ с низкомолекулярными и полимерными нематическими жидкокристаллическими системами.

Эксперимент.

<u>Образцы.</u> В качестве экспериментальных образцов использовали несколько типов легированных красителем НЖК и НЖКП: (1) НЖК ЖКМ-1277 с добавкой азокрасителя КД-1 (0.05% по весу), толщиной 100 мкм, гомеотропной ориентации; (2) НЖК ЖКМ-1277 с полимерной добавкой РСАВО-3А (0.2% по весу), толщиной 100 мкм, планарной ориентации и (3) фракционированный полиакрилатный полимер РАА (степень полимеризации 22) с боковыми фрагментами, с добавкой 0.05% КД-1, толщиной 50 мкм, планарной ориентации.

В зависимости от угла падения света на образец с КД-1, в нем проявляются и положительная, и отрицательная нелинейности [16], что позволяет в рамках одного образца рассмотреть оба типа нелинейности. Для образца с добавкой полимера PCABO характерна только отрицательная нелинейность, но величина возможного нелинейного набега фазы значительно выше, чем для образца с КД-1. Наконец, последний образец уникален тем, что он обладает нематической фазой при температуре ниже 123 °C, а при комнатной температуре переходит в стеклообразное состояние. Это позволяет записывать индуцированные в нематической фазе деформации директора посредством простого охлаждения, и далее изучать их методами микроскопии.



Рис. 1: (a) Схема экспериментальной установки (вид сверху): ДРФ – двойной ромб Френеля, НФ – нейтральный фильтр, П – поляризатор. (б) Распределение интенсивности и нормализованный профиль в вертикальном сечении для пучка TEM₀₁, полученные с помощью CMOS-камеры.

<u>Экспериментальная установка.</u> Излучение (532 нм) твердотельного лазера проходило через двойной ромб Френеля и фокусировалось на ячейке с НЖК (или НЖКП) посредством линзы с фокусным расстоянием 38 мм (рис. 1(а)). Аберрационная картина наблюдалась на экране в дальней зоне. Ячейка могла вращаться вокруг вертикальной оси. Поляризация излучения, падающего на ячейку, и директор НЖК были ориентированы в горизонтальной плоскости.

Для формирования пучка, аналогичного моде TEM_{01} , после двойного ромба дополнительно устанавливали *S*-пластину, которая трансформировала линейнополяризованный гауссов пучок в тангенциально-поляризованный. После горизонтально ориентированного поляризатора распределение интенсивности пучка соответствовало моде TEM_{01} (рис. 1(б)).

Нагрев ячейки с жидкокристаллическим полимером (образец 3) осуществляли посредством прозрачного ITO-нагревателя. Результаты и обсуждение.

<u>Образец 1 (ЖКМ-1277+КД-1)</u>. В гомеотропно ориентированном образце с примесью КД-1 проявляется знакопеременная нелинейность.



Рис. 2: Аберрационные картины в дальней зоне, наблюдаемые при освещении (а, в) гауссовым световым пучком и (б, г) пучком TEM_{01} в случае (а, б) положительной ($\alpha = 35^{\circ}$) и (в, г) отрицательной нелинейности в образце 1 (1277+КД1). Мощность пучка $P = (a) \ 0.5$; (b) 1; (b) 7.5; (г) 13 мВт. Вертикальный угловой размер картин $\theta_v = (a) \ 0.5$; (b) 0.74; (в) 0.18; (г) 0.25 рад.

При угле падения света $\alpha = 35^{\circ}$, превышающем критический (угол $\alpha_{\rm crit} \approx 32^{\circ}$), т.е. угол, при котором изменяется знак нелинейности, проявляется значительная положительная ориентационная нелинейность при мощностях света в доли мВт. Самовоздействие гауссова пучка мощностью P = 0.5 мВт приводит к развитой системе концентрических колец (рис. 2(a)). Изменение показателя преломления δn , оцененное по числу аберрационных колец N = 8 с помощью соотношения $\delta n = \lambda N/L$ [9] (λ – длина световой волны, L – толщина образца), составляет $\delta n \approx 0.04$. Аберрационная картина при освещении пучком TEM₀₁ значительно сложнее (рис. 2(б)). Она представляет собой наложение картин, формируемых при светоиндуцированной деформации директора под действием верхней и нижней частей светового пучка. В центре картины наблюдается дополнительная модуляция интенсивности в виде горизонтальных полос. Шаг полос составил 0.034 рад.

При угле падения $\alpha = 30^{\circ}$ (меньше критического) наблюдается отрицательная нелинейность. Расходимость аберрационной картины в этом случае меньше из-за малого резерва угла поворота директора. Аберрационная картина при освещении гауссовым пучком (рис. 2(в)) проявляется при мощностях света порядка нескольких мВт, при этом значительный вклад вносит тепловая нелинейность. Освещение пучком TEM₀₁ приводит, как и в случае положительной нелинейности, к аберрационной картине, центр которой промодулирован горизонтальными полосами (рис. 2(г)). Расстояние между горизонтальными полосами совпадает с шагом полос для случая положительной нелинейности (0.034 рад).

Отметим, что в случае отрицательной ориентационной нелинейности в гомеотропном НЖК возможный угол поворота директора и соответствующий набег фазы малы, а при используемых мощностях света проявляется значительный вклад тепловой положительной нелинейности, нивелирующий ориентационный. Поэтому формирование картины при отрицательной нелинейности НЖК (самодефокусировка) удобнее исследовать в планарном образце с полимерной добавкой РСАВО.



Рис. 3: Аберрационные картины в дальней зоне, наблюдаемые при освещении пучком TEM_{01} в образце 2 (1277+PCABO) при разных положениях ячейки относительно фокуса линзы: (a, б) в фокусе, (в) на расстоянии 2 мм от фокуса. Мощность пучка P =(a) 10; (б) 2.5; (в) 13 мВт. Вертикальный угловой размер картин $\theta_v =$ (a) 1.4; (б) 0.25; (в) 0.63 рад.

<u>Образец 2 (ЖКМ-1277+РСАВО).</u> В данном образце проявляется только отрицательная нелинейность. Воздействие наклонно ($\alpha = 30^{\circ}$) падающего пучка TEM₀₁ мощностью P = 10 мВт также формирует характерную картину с горизонтальными полосами в центральной части (рис. 3(а)), расстояние между которыми ~0.07 рад. При уменьшении мощности шаг полос несколько уменьшается, и составляет 0.06 рад для P = 5 мВт и 0.05 рад для P = 2.5 мВт (рис. 3(б)). Схожее поведение наблюдается и при развитии картины во времени после включения излучения: шаг полос увеличивался по мере развития картины.

При увеличении размера пучка, что достигалось смещением ячейки из фокуса линзы на 2 мм, шаг полос уменьшался до 0.01 рад (рис. 3(в)).

Как видно из свойств аберрационной картины, воздействие пучка TEM₀₁ приводит к формированию достаточно сложной интерференционной картины, обусловленной наложением двух компонент пучка, формирующих две близкорасположенные области деформации директора.

<u>Образец 3 (РАА + 0.05%КД-1)</u>. Как и для предыдущего образца, для нематического жидкокристаллического полимера с примесью КД-1 наблюдается только отрицательная нелинейность. При самовоздействии пучка TEM_{01} формируется аналогичная аберрационная картина, промодулированная горизонтальными полосами с шагом 3 мм (при расстоянии до экрана R = 40 см). После охлаждения образца до комнатной температуры картина несколько увеличивается, что обусловлено ростом δn всей полимерной матрицы (рис. 4(а)). Микрофотография записанной фазовой структуры в скрещенных поляризаторах (рис. 4(б)) позволяет восстановить профиль набега фазы (рис. 4(в)) и на его основе (рис. 4(г)) провести численное моделирование аберрационной картины (рис. 4(д)). Расчет интеграла Кирхгофа дает расстояние между полосами равное 2.9 мм.

Рассмотрим формирование аберрационной картины при освещении нелинейной среды модой TEM_{01} . Два пика интенсивности I(z) в световом пучке (рис. 5(a)) приводят к переориентации директора и возникновению нелинейного набега фазы S(z). В результате происходит деформация волнового фронта. На рис. 5 показан профиль волнового фронта, соответствующий случаю самодефокусировки.

Проанализируем картину, образуемую правым пиком волнового фронта. Луч 1 (рис. 5) с максимальным отклонением $\theta_m = (2\pi/\lambda)(\partial |S|/\partial z)_{\text{max}}$ соответствует внешнему кольцу аберрационной картины. Для любого значения отклонения $\theta < \theta_m$ существуют два луча 2 и 3, интерференция которых, обусловленная разностью хода, и приводит к кольцевой структуре [1]. Аберрационная картина, связанная с одним пиком волнового фронта, образуется в случае гауссова пучка (моды TEM₀₀) (см. рис. 2(a)). Для моды TEM₀₁ дополнительно возникает интерференция с отклоненными лучами, обусловленными вторым пиком (рис. 5(б), лучи 1', 2', 3'). Разность фаз между лучами, отклоненными на одинаковый угол (например, 1 и 1' на рис. 5(б), пропорциональная длине отрезка A'E), связана с расстоянием между пиками *d* и углом отклонения луча θ

$$S_1 = (2\pi/\lambda)d\sin\theta. \tag{1}$$

Интерференция лучей от разных пиков приводит к системе полос, наблюдаемых со всеми исследованными образцами. Угловое расстояние $\delta\theta$ между полосами, как следует из (1)

$$\delta\theta = \lambda/d. \tag{2}$$



Рис. 4: (a) Аберрационная картина в дальней зоне после охлаждения образца 3 (PAA+KД-1); (б) микрофотография записанной фазовой структуры; (в) профили фазы, восстановленные по горизонтальному (синяя кривая) и вертикальному (красная кривая) сечениям записанной фазовой структуры; (г, е) смоделированные профили фазы, используемые для расчета интеграла Кирхгофа; (д) рассчитанная аберрационная картина.



Рис. 5: (a) Профиль интенсивности пучка в вертикальном сечении; (б) профиль фазового набега в случае локального приближения повторяет профиль интенсивности; (в) профиль фазового набега при заметном влиянии поперечных упругих сил.

Для картины на рис. 4(б) расстояние между пиками d = 72 мкм, откуда получаем $\delta\theta = 7.4 \cdot 10^{-3}$ или шаг полос $D = \delta\theta \cdot R = 3$ мм при расстоянии до экрана R = 40 см. Как видно, расстояние между пиками достаточно точно определяет шаг полос, что позволяет по расстоянию между полосами оценивать масштаб индуцируемой на кристалл картины.

Формула (1) справедлива для двух симметричных пиков. В рассматриваемом случае моды TEM_{01} это, строго говоря, не имеет места по двум причинам. Во-первых, для этой моды профили пиков интенсивности не являются симметричными. Во вторых, к искажению пиков приводит нелокальность нелинейнооптического отклика, характерная для жидких кристаллов (рис. 5(в)). Асимметрия пиков может приводить к тому, что интерференционные полосы заполняют только часть аберрационной картины, а также к тому, что величина, определенная из эксперимента по формуле (2), будет иметь значение, несколько отличное от расстояния между максимума интенсивности пучка.



Рис. 6: (а) Микрофотография фазовой структуры, сформированной узким (w = 7 мкм) пучком TEM_{01} . (б) Аберрационная картина в дальней зоне после охлаждения НЖКП; угловое расстояние между полосами $\delta\theta = 0.05$.

Асимметрия пиков в распределении фазы особенно заметна для узких пучков, значительно меньших толщины кристалла. В этом случае поперечные упругие силы сглаживают профиль деформации директора, и провал интенсивности в центре пучка почти не разрешается в профиле фазы (рис. 6(а)). Лучи, проходящие через "долину" в центре деформированного участка НЖКП, имеют малый наклон, поэтому полосы проявляются только в центральной части аберрационной картины (рис. 6(б)).

Заключение. Аберрационное самовоздействие пучка TEM₀₁ в НЖК с различными типами нелинейности приводит к формированию специфической интерференционной картины, промодулированной горизонтальными полосами. Шаг и расположение полос на картине позволяют установить особенности деформации поля директора, контролировать размер облучаемой области и оценить степень нелокальности нелинейного отклика.

Работа поддержана Российским Фондом Фундаментальных Исследований (проекты № 18-02-00986-а и № 19-03-00337-а), а также Российским Научным Фондом (проект № 19-13-00029; синтез и характеризация полимеров; А.Б.; Н.Б.; В.Ш.)

ЛИТЕРАТУРА

- F. W. Dabby, T. K. Gustafson, J. R. Whinnery, Y. Kohanzadeh, and P.L. Kelley, Appl. Phys. Lett. 16, 362 (1970).
- [2] S. A. Akhmanov, D. P. Krindach, A. V. Migulin, A. P. Sukhorukov, and R. V. Khokhlov, EEE J. Quant Electronics QE-4, 568 (1968).

- [3] А. С. Золотько, В. Ф. Китаева, Н. Кроо, Н. Н. Соболев, Л. Чиллаг, Письма в ЖЭТФ 32, 170 (1980).
- [4] S. D. Durbin, S. M. Arakelian, Y. R. Shen, Opt. Lett. 6, 411 (1981).
- [5] E. Santamato and Y. R. Shen, Opt. Lett. 9, 564 (1984).
- [6] A. S. Zolot'ko, I. A. Budagovsky, V. N. Ochkin, et al., Mol. Cryst. Liq. Cryst. 488, 265 (2008).
- [7] I. A. Budagovsky, A. S. Zolot'ko, V. F. Kitaeva, M. P. Smayev, Mol. Cryst. Liq. Cryst. 453, 71 (2006).
- [8] I. A. Budagovsky, V. N. Ochkin, S. A. Shvetsov, et al., Phys. Rev. E 95, 052705 (2017).
- [9] I. Budagovsky, A. Kuznetsov, S. Shvetsov, et al., J. Mol. Liq. 276, 275 (2019).
- [10] N. V. Tabiryan, S. R. Nersisyan, M. Warenghem, Phys. Rev. Lett. 77, 3355 (1996); J. Appl. Phys. 83, 1 (1998).
- [11] А. С. Золотько, В. Ф. Китаева, В. А. Куюмчян и др., Письма в ЖЭТФ 36, 66 (1982).
- [12] G. Cipparrone, D. Duca, C. Umeton, and N. V. Tabiryan, Phys. Rev. Lett. 71, 3955 (1993).
- [13] N. V. Tabiryan, B. Ya. Zel'dovich, M. Kreuzer, T. Vogeler, and T. Tschudi, J. Opt. Soc. Am. B 13, 1426 (1996).
- [14] И. А. Будаговский, А. С. Золотько, М. П. Смаев, М. И. Барник, ЖЭТФ 138, 150 (2010).
- [15] I. Budagovsky, A. Kuznetsov, S. Shvetsov, et al., Polymers 12, 356 (2020).
- [16] М. И. Барник, А. С. Золотько, В. Г. Румянцев, Д. Б. Терсков, Кристаллография 40, 746 (1995).
 - Поступила в редакцию 11 января 2020 г.
 - После доработки 25 марта 2020 г.

Принята к публикации 26 марта 2020 г.