

**ИССЛЕДОВАНИЕ ФОТОТОКА
В ЖИДКОКРИСТАЛЛИЧЕСКИХ ЯЧЕЙКАХ,
ОБНАРУЖИВАЮЩИХ ФОТОРЕФРАКТИВНЫЙ ЭФФЕКТ**

И. А. Будаговский¹, А. С. Золотко², А. Н. Лобанов, М. П. Смаев,
А. М. Цховребов, А. С. Аверюшкин, М. И. Барник³

Экспериментально исследованы фототоки в жидкокристаллических ячейках различного строения. Результаты подтверждают фоторефрактивный механизм самовоздействия светового пучка в нематических жидкокристаллах, заключающийся в уменьшении под действием света плотности поверхностных зарядов, экранирующих внешнее электрическое поле. Даные, полученные при фотоэлектрических и оптических измерениях, свидетельствуют о том, что фоторефрактивный эффект проявляется в ячейках с различными ориентантами, а также в отсутствие ориентанта. В планарной ячейке, ориентированной натертым полиимиидом, определяющую роль играет граница раздела между жидким кристаллом и полиимиидом, нанесенным на анод.

Ключевые слова: НЖКК, фоторефрактивный эффект, фототок.

Введение. Ориентационные оптические эффекты в нематических жидкокристаллах (НЖКК) в присутствии постоянного электрического поля исследовались достаточно интенсивно [1–7]. Однако эти исследования были ограничены случаем взаимодействия НЖКК с двумя или более плоскими волнами, а основное внимание уделялось их энергообмену. Рассматривались различные механизмы такого взаимодействия.

В [8, 9] впервые исследовалось самовоздействие светового пучка в НЖКК в присутствии постоянного поля. Было обнаружено, что в дальней зоне дифракции возникает

¹ E-mail: V-BRZ@mail.ru

² E-mail: zolotko@lebedev.ru

³ Институт кристаллографии им. А. В. Шубникова РАН.

характерная аберрационная картина, принципиально отличающаяся от картины “обычного” самовоздействия света в НЖК (системы концентрических колец [10–12]) формой, наличием ярко выраженной асимметрии, а также независимостью её размера от поляризации излучения. Свойства аберрационной картины позволили предположить, что данное явление связано с поверхностным фоторефрактивным эффектом – изменением показателя преломления вследствие поворота директора в поле электрических зарядов, перераспределемых светом вблизи границ НЖК (свет снимает экранировку объёма НЖК поверхностными зарядами). Асимметрия картины свидетельствует о том, что снятие экранировки на границах жидкокристаллического слоя происходит с различной эффективностью [8]; направление вытянутости указывает на то, что снятие экранировки более эффективно на аноде [13]. В [14] была построена теория самовоздействия светового пучка при поверхностном фоторефрактивном эффекте. Результаты расчётов соответствовали экспериментам [8, 9].

Данная работа ставит целью непосредственное подтверждение снятия экранировки поверхностными зарядами с помощью измерений фототока через ячейку и выявление фоточувствительных компонентов жидкокристаллической ячейки, обуславливающих фоторефрактивный эффект.

Экспериментальные образцы и условия эксперимента. В качестве исследуемых образцов мы использовали три планарно ориентированные ячейки с нематической матрицей ЖКМ-1277 толщиной 50 мкм: (1) стандартная ячейка с ориентантом из натёртого на обеих подложках полиимида; (2) асимметричная ячейка, в которой ориентант нанесён только с одной стороны; (3) ячейка без ориентанта. Площадь ячеек составляла $\sim 2 \text{ см}^2$. На стеклянные подложки ячеек были нанесены электроды из ITO. Кроме того, исследовался толстый ($\sim 0.5 \text{ мкм}$) слой полиимида (в несколько раз толще использованного в ячейках 1 и 2), нанесённый на стеклянную подложку с электродом ITO. В качестве второго электрода на полиимид напылялся тонкий слой алюминия.

Основная часть исследований выполнялась с использованием светодиода ($\lambda_{\max} = 460 \text{ нм}$). Ячейки освещались широким пучком, плотность мощности при этом составляла $\sim 100 \text{ мВт/см}^2$. Также было проведено измерение в узком (сфокусированном линзой с фокусным расстоянием 16 см) световом пучке ($\lambda = 473 \text{ нм}$) твердотельного лазера LCS-DTL-364 (Laser Export). Это измерение соответствовало условиям экспериментов в [8, 9].

Измерения тока или напряжения проводились с помощью комбинированного прибора Щ300, данные с которого записывались на персональном компьютере. Схемы под-

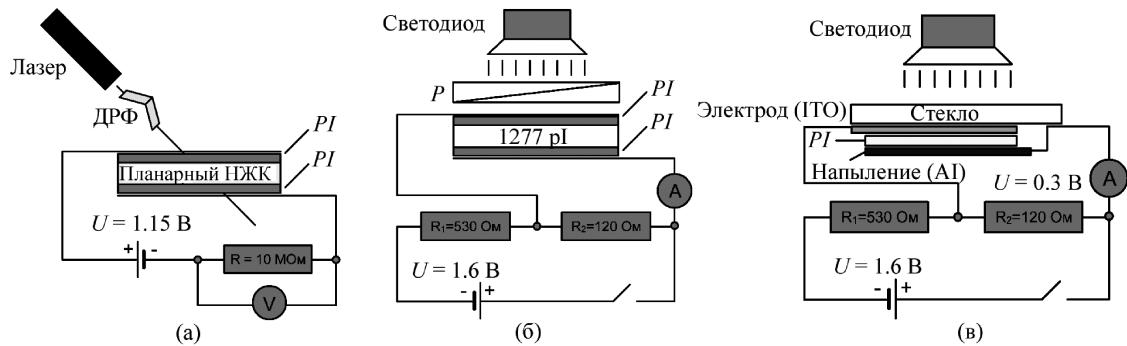


Рис. 1: Схемы экспериментов по измерению фототока: (а) при облучении ячейки 1 узким лазерным пучком, (б) в ячейках 1 – 3 при облучении светодиодом, (в) в слое полииамида. ДРФ – двойной ромб Френеля, PI – полииамид, P – поляризатор.

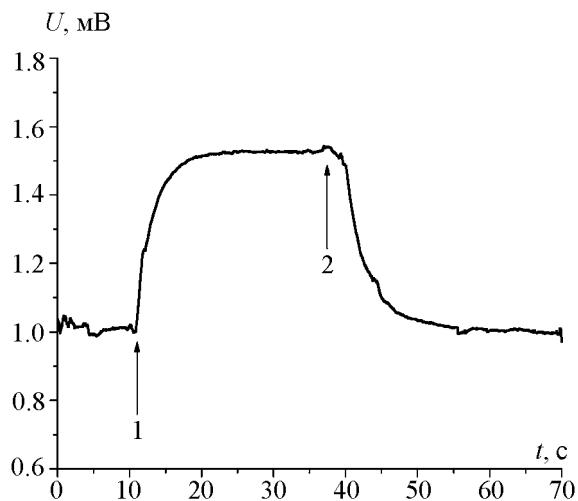


Рис. 2: Зависимость напряжения на сопротивлении R от времени при освещении ячейки 1 наклонно падающим ($\alpha = 40^\circ$) лазерным пучком ($P = 5 \text{ мВт}, \lambda = 473 \text{ нм}$, ширина пучка $\sim 100 \text{ мкм}$). Внешнее постоянное напряжение $U = +1.15$. 1 – начало освещения, 2 – прекращение освещения.

ключения измерителя представлены на рис. 1. Напряжение на ячейке условно считалось положительным, если полярность соответствовала данным схемам. В качестве источника питания использовались батареи постоянного тока 1.6 В или генератор МЕТЕХ MXG-9802A. При размыкании схемы остаточный заряд на ячейке разряжался через шунтирующее сопротивление R (рис. 1(б), (в)).

Регистрация фототока при облучении ячейки узким световым пучком. Для увеличения чувствительности измерений фотоотклика при освещении ячейки лазерным пучком измерялось напряжение на сопротивлении $R = 10$ МОм (рис. 1(а)). Чтобы избежать влияния поворота директора на проводимость НЖК, мы подавали достаточно низкое постоянное напряжение $U = +1.15$ В, при котором аберрационная картина ещё не начинает развиваться (и, следовательно, директор не поворачивается). Освещение начиналось через ~ 10 мин после подачи на ячейку напряжения. После начала освещения на сопротивлении R возникало напряжение $U_\Phi \approx 0.5$ мВ со временем установления $\tau_{\text{уст}} \approx 3$ с (рис. 2). После прекращения освещения напряжение исчезало примерно за такое же время. Возникновение напряжения подтверждает предложенный ранее механизм переориентации директора, связанный с перераспределением зарядов под действием света. Поскольку время формирования аберрационной картины (более 10 с [8, 9]) значительно больше, чем время установления стационарного значения напряжения, мы можем заключить, что оно ограничивается вязкоупругими свойствами ячейки.

Заряд $Q_{\text{фот}}$, обусловленный фототоком и протекающий через НЖК во время переходного процесса, можно грубо оценить с помощью формулы $Q_{\text{фот}} \sim U_\Phi \tau_{\text{уст}} / 2R \approx 0.75 \cdot 10^{-10}$ Кл. Для оценки экранирующего заряда в облучаемой области с характерным размером $w \sim 100$ мкм воспользуемся формулой плоского конденсатора $Q_{\text{Экр}} = \epsilon_0 w^2 U / L \approx 2 \cdot 10^{-14}$ Кл. Таким образом, $Q_{\text{фот}} \gg Q_{\text{Экр}}$ и наблюдаемый фототок задомо достаточен, чтобы обеспечить снятие экранировки.

Фототок в ячейках с НЖК при облучении светодиодом. Чтобы увеличить чувствительность измерений, в основной части экспериментов в качестве источника света использовался светодиод, освещавший всю поверхность ячеек. При этом мощность облучения была на порядок больше, чем в случае лазерного пучка. Преимуществом этого источника является также возможность работать при более низком постоянном напряжении (0.3 В), что является принципиально важным в случае ячейки без ориентанта. Отсутствие поворота директора при этом напряжении (как постоянном, так и переменном с частотой 3 кГц) было отдельно проверено с помощью регистрации интенсивности в скрещенных поляризаторах.

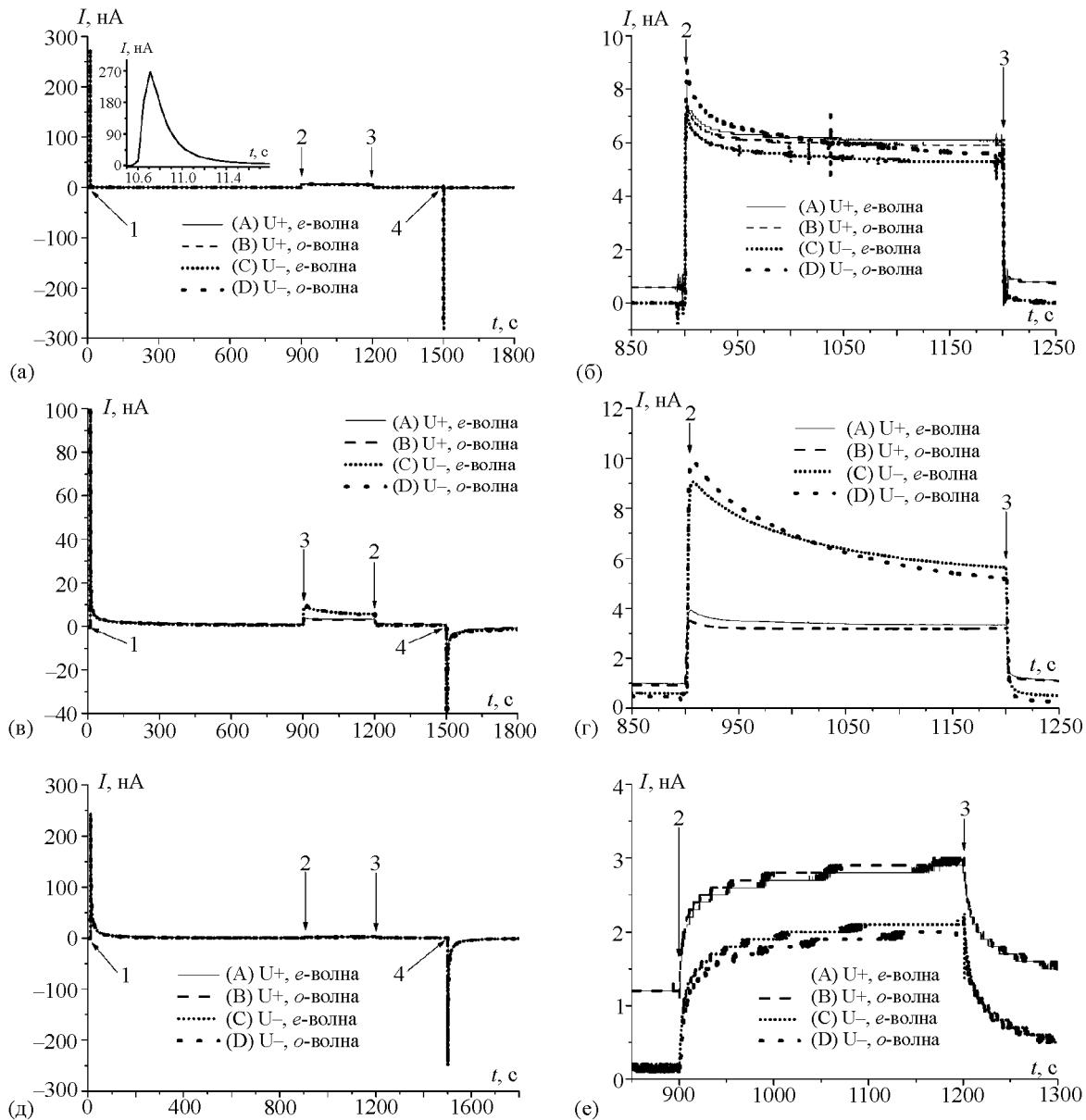


Рис. 3: Временные зависимости тока, протекающего через ячейки с ЖКМ-1277, для различных полярностей напряжения и поляризаций света. (А), (Б) – положительная полярность; (С), (Д) – отрицательная полярность; (А), (С) – e -волна; (Б), (Д) – σ -волна. Стрелками отмечены моменты включения и выключения напряжения и света: 1 – включение напряжения $0.3 B$, 2 – начало освещения, 3 – прекращение освещения, 4 – выключение напряжения. (а), (б) – симметричная ячейка (ориентант на обеих подложках); (в), (г) – асимметричная (ориентант на одной подложке) ячейка (для этой ячейки положительная полярность означает, что ориентирующая подложка являлась катодом); (д), (е) – ячейка без ориентанта. При отрицательной полярности все зависимости инвертированы.

Общий вид динамики тока через симметричную ячейку 1 показан на рис. 3(а). При включении напряжения наблюдается быстрое (< 0.1 с) возрастание тока до 270 нА, за которым следует более медленная ($\tau_{\text{dark}} \approx 1$ с) релаксация до величины порядка 1 нА (вставка на рис. 3(а)). Выключение напряжения приводит к аналогичному процессу – быстрому изменению тока до -280 нА и последующей, более медленной, релаксации. Наблюдаемая динамика связана с формированием приповерхностных слоёв экранирующих зарядов.

На этом же рисунке видна динамика фототока, которая в большем масштабе представлена на рис. 3(б). При освещении ячейки происходит быстрый (< 0.1 с) рост тока до значения ~ 8 нА. Далее, фототок уменьшается (с характерным временем релаксации $\tau_R \approx 20$ с) и достигает стационарного значения 6 нА. Прекращение освещения приводит к быстрому (< 0.1 с) уменьшению тока до начального (до облучения) значения.

Как видно из рис. 3(б), величины изменений и динамика фототока одинаковы для разных полярностей приложенного к ячейке напряжения. Кроме того, фототок одинаков для *e*- и *o*-волн. Последнее обстоятельство соответствует независимости снятия экранировки в поверхностном фоторефрактивном эффекте (и размеров aberrационной картины) от поляризации света.

Динамика тока через асимметричную ячейку 2 показана на рис. 3(в). Для этой ячейки фототок также не зависел от поляризации, но, в отличие от ячейки 1, зависел от полярности напряжения. Если подложка с ориентантом являлась анодом, то стационарный фототок соответствовал величине, наблюдавшейся для симметричной ячейки (6 нА). При изменении полярности (подложка с ориентантом являлась катодом) наблюдавшийся фототок был меньше (около 3 нА, рис. 3(г)). Кроме того, для асимметричной ячейки времена установления стационарного значения тока при включении напряжения (≈ 10 с) и при освещении (≈ 100 с) были значительно больше, чем для симметричной.

Эксперимент с асимметричной ячейкой показывает, что фотоотклик значительно сильнее в случае, когда электрод с ориентантом является анодом. Это соответствует сделанному в [13] выводу о том, что на аноде экранировка снимается более эффективно.

Изменение темнового тока для симметричной ячейки 3 (без ориентанта) при включении напряжения схоже с предыдущими случаями, однако время релаксации больше ($\tau_{\text{dark}} \approx 50$ с, рис. 3(д)). Динамика фототока качественно отличается от предыдущих случаев. Фототок после начала освещения монотонно возрастает до стационарного значения (2 нА), а не проходит через максимум, как для ячеек 1 и 2 (рис. 3(е)). Стационарная величина фототока значительно меньше, чем в ячейке 1, а также в ячейке 2 в

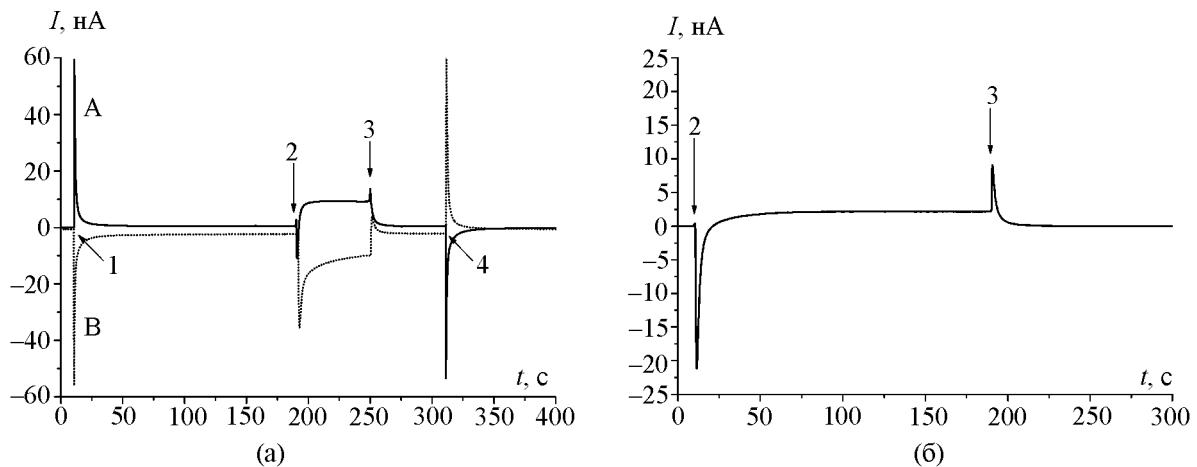


Рис. 4: Временная зависимость тока, протекающего через слой полиимида: (а) для различных полярностей внешнего напряжения (алюминиевый электрод является (А) анодом или (В) катодом) и (б) без внешнего напряжения. Стрелками отмечены моменты включения и выключения напряжения и света: 1 – включение напряжения 0.3 В, 2 – начало освещения, 3 – прекращение освещения, 4 – выключение напряжения.

случае, когда покрытый ориентантом электрод является анодом (6 нА). Она сравнима с фототоком в ячейке 2, когда анодом является непокрытый ориентантом электрод (3 нА).

В три раза меньшее значение стационарного фототока в ячейке 3 по сравнению с ячейкой 1 говорит о том, что основной вклад в фоточувствительность дают поверхности, граничащие с ориентантом. Сравнение фототоков при разной полярности в асимметричной ячейке однозначно показывает, что фоточувствительность ячейки обусловлена действием света на слои, прилегающие к аноду.

Фототок в слое полиимида. Для выяснения фоточувствительности материала ориентанта мы провели измерения со слоем полиимида, заключенным между электродами из ИТО и алюминия (рис. 1(в)). Как и для ячеек с НЖК, при включении и выключении напряжения наблюдаются резкие скачки тока (рис. 4(а)). Стационарное значение темнового тока ≈ 1 нА. При освещении образца появляется фототок, имеющий сложную временную зависимость. Его стационарное значение 10 нА устанавливается за время ≈ 10 с. Фототок, по-видимому, связан с генерацией носителей заряда в полиимиде при его освещении.

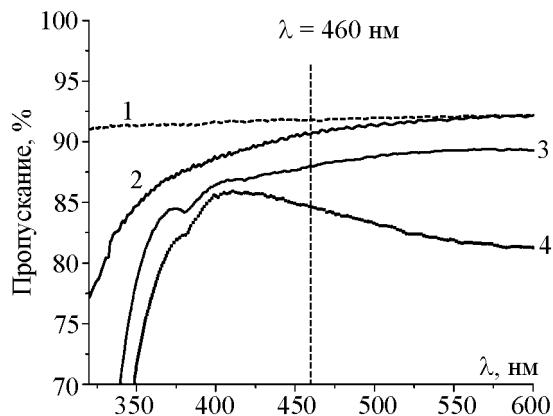


Рис. 5: Спектры пропускания (1) кварцевой подложки, (2) слоя полиимида на кварцевой подложке, (3) стеклянной подложки, (4) слоя ITO на стеклянной подложке.

Мы также исследовали фототок в отсутствие внешнего постоянного напряжения (рис. 4(б)). В этом случае наблюдается скачок тока, соответствующий движению положительных зарядов от ITO электрода к алюминиевому. В дальнейшем, за время около 10 с, фототок меняет направление и достигает стационарного значения на уровне 2 нА. При прекращении освещения происходит обратный скачок тока. Эти скачки близки по амплитуде и длительности к наблюдаемым в эксперименте с внешним полем (рис. 4(а)). Наличие фототока в отсутствие напряжения связано, по-видимому, с фотовольтаическим эффектом на границах ITO-полиимида и алюминий-полиимида. Соответствующие переходные процессы проявляются, очевидно, и в присутствии внешнего напряжения, что обуславливает сложный характер динамики при включении освещения (рис. 4(а)).

Оценка влияния нагрева жидкокристаллической ячейки. Возможной причиной изменения проводимости ячейки может быть локальное повышение температуры при поглощении света. Поглощение в НЖКК незначительно и, кроме того, объёмные эффекты не играют существенной роли. Чтобы проверить, не является ли разогрев полимера и ITO причиной изменения проводимости ячеек, мы провели отдельные оптические измерения и оценили величину нагрева освещаемой области. Были измерены спектры пропускания слоя полиимида (на кварцевой подложке), кварцевой подложки, слоя ITO на стеклянной подложке и стеклянной подложки (рис. 5). Из рисунка видно, что поглощение полиимида увеличивается с уменьшением длины световой волны, а поглощение ITO уменьшается. При этом поглощение в ITO существенно больше, чем в полиме-

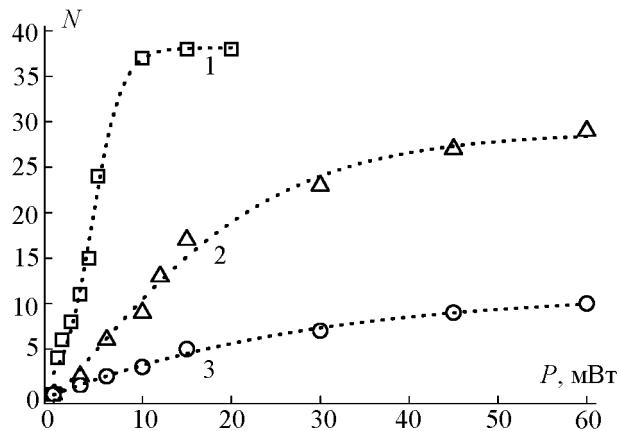


Рис. 6: Зависимость числа аберрационных колец N от мощности P нормально падающего на кристалл (планарно ориентированная ячейка ЖКМ-1277 толщиной 100 мкм) светового пучка при наличии внешнего постоянного поля $U = 3$ В: $\lambda = (1) 458, (2) 488, (3) 515$ нм.

ре. Отсюда следует, что нагрев ячейки световым пучком должен возрастать с увеличением λ .

С другой стороны, эксперименты [8, 9] показывают, что с возрастанием λ эффективность самовоздействия уменьшается. Это иллюстрируется рис. 6, на котором представлены зависимости числа аберрационных колец при нормальном падении светового пучка от его мощности при различных длинах волн.

Следовательно, нагрев сам по себе не может быть ответственным за снятие экранировки и возникновение фототока.

Этот вывод подтверждается также расчетом величины нагрева и его сопоставлением с экспериментально полученной зависимостью фототока от температуры ячейки. Расчет проведен в предположении, что выделение тепла происходило однородно в бесконечно тонком цилиндрическом слое ИТО с радиусом R_h . Слой был окружен однородной средой с теплопроводностью стекла λ_g . Решение стационарного уравнения теплопроводности дает для температуры T_c в центре слоя следующее выражение: $T_c = P_a / \pi R_h \lambda_g$, где P_a — поглощаемая в ИТО мощность светового пучка. Полагая $P_a = 0.1$ мВт, $R_h = 50$ мкм и $\lambda_g = 1$ Вт/м·с·К, получаем $T_c = 0.7$ К. Так как теплопроводность полиимида и НЖК меньше, чем λ_g , то рассмотренная модель несколько занижает T_c , но не более, чем в два раза. Таким образом, нагрев полиимида в нашем эксперименте

составляет ~ 1 К. Измерения (проведенные при напряжении 2.8 В) показали, что для пятикратного увеличения тока (которое наблюдается при освещении ячейки, рис. 2(б)) необходимо было бы увеличить температуру ячейки на 6 градусов.

Обсуждение результатов. Оптические эксперименты [8, 9] с чистой нематической матрицей и фотоэлектрические измерения настоящей работы свидетельствуют, что снятие экранировки внешнего электрического поля световым пучком является асимметричным и происходит преимущественно на аноде. Расчеты [14] также показывают, что aberrационная картина хорошо описывается в предположении снятия экранировки только на аноде. Зависимость снятия экранировки от полярности однозначно указывает на наличие барьеров, формирующихся на границах раздела различных компонент ячейки (НЖК-полимер и полимер-ITO). Однако из вышеперечисленных данных нельзя сделать вывод о том, на какой именно границе раздела снимается экранировка. Рассмотрим этот вопрос, опираясь на результаты исследований НЖК, легированных красителем метиловый красный [8, 14]. В этих работах было установлено, что для ячеек с красителем aberrационная картина обладает значительно меньшей степенью асимметрии в сравнении с чистой матрицей, и по виду сходна с обычной кольцевой картиной. Это означает, что снятие экранировки происходит на обоих электродах, что было подтверждено расчетами [14]. Влияние красителя может проявляться только на границе раздела НЖК-полимер (и связано, по-видимому, с его осаждением на поверхности полимера [15, 16]). Поэтому естественно предположить, что решающую роль в формировании aberrационной картины играет снятие экранировки на поверхности НЖК-полимер. Этот процесс может быть связан с фотогенерацией дырок в полиимиде.

Сравним наши результаты с полученными в работах [4–6]. В этих работах наблюдалась энергообмен плоских волн и переориентация директора под действием широкого светового пучка (плотность мощности света $\sim 10^{-4} - 10^{-1}$ Вт/см²) в прозрачных НЖК планарной ориентации (достигаемой с помощью полимерного слоя PVA (поливиниловый спирт)), находящихся под воздействием постоянного поля. Эти явления были объяснены поверхностным фоторефрактивным эффектом. На основании результатов фотоэлектрических исследований, проведенных с ячейками различного состава и слоем PVA, был сделан вывод о том, что единственным фоточувствительным элементом является граница раздела НЖК-PVA (со стороны анода). Фоточувствительность остальных компонент ячейки (включая сам слой PVA) не наблюдалась.

В заключение отметим, что характерная асимметричная aberrационная картина (с не зависящей от поляризации формой) наблюдалась нами и для гомеотропных образ-

цов, ориентация которых достигалась с помощью хромалана [8, 9] или без ориентанта с помощью натирания стеклянных подложек крокусом. Эти результаты (а также фоточувствительность границы раздела НЖК-ITO (в ячейке 3)), свидетельствуют об общности поверхностного фоторефрактивного эффекта, проявляющегося в ячейках самого разного состава.

Работа поддержана РФФИ (проекты 08-02-01382 и 09-02-12216), грантом Президента РФ МК-699.2009.2, программой поддержки молодых учёных Президиума РАН (И.А.Б. и М.П.С.) и Фондом содействия отечественной науке (М.П.С.).

ЛИТЕРАТУРА

- [1] Е. В. Руденко, А. В. Сухов, ЖЭТФ **105**, 1621 (1994).
- [2] I. C. Khoo, H. Li, and Y. Liang, Opt. Lett. **19**, 1723 (1994).
- [3] V. Boichuk, S. Kucheev, J. Parka, et al., J. Appl. Phys. **90**, 5963 (2001).
- [4] P. Pagliushi and G. Cipparone, Appl. Phys. Lett. **80**, 168 (2002).
- [5] P. Pagliushi and G. Cipparone, J. Appl. Phys. **92**, 4863 (2002).
- [6] P. Pagliushi and G. Cipparrone, J. Appl. Phys. **93**, 9116 (2003).
- [7] M. Kaczmarek, A. Dyadyusha, S. Slussarenko, and I. C. Khoo, J. Appl. Phys. **96**, 2616 (2004).
- [8] И. А. Будаговский, А. С. Золотко, В. Ф. Китаева и др., Краткие сообщения по физике ФИАН, N 3, 24 (2006).
- [9] A. S. Zolot'ko, I. A. Budagovsky, V. F. Kitaeva, et al., Mol. Cryst. Liq. Cryst. **454**, 407 (2006).
- [10] А. С. Золотко, В. Ф. Китаева, Н. Кроо и др., Письма в ЖЭТФ **32**, 170 (1980).
- [11] S. D. Durbin, S. M. Arakelian, and Y. R. Shen, Phys. Rev. Lett. **47**, 1411 (1981).
- [12] V. F. Kitaeva, A. S. Zolot'ko, and M. I. Barnik, Mol. Mater. **12**, 271 (2000).
- [13] I. A. Budagovsky, V. N. Ochkin, M. P. Smayev, et al., Proc. SPIE **6729**, 67293E (2007).
- [14] И. А. Будаговский, А. С. Золотко, М. П. Смаев и др., Препринт ФИАН N 17 (М., 2009).
- [15] M. I. Barnik, V. F. Kitaeva, and A. S. Zolot'ko, Mol. Cryst. Liq. Cryst. **391**, 111 (2003).
- [16] E. Ouskova, Yu. Reznikov, and S. V. Shiyanovskii, Phys. Rev. E **64**, 051709 (2001).

Поступила в редакцию 26 ноября 2009 г.