

УДК 572.783

ОПТИЧЕСКАЯ БИСТАБИЛЬНОСТЬ ПОЛЯ ДИРЕКТОРА НЕМАТИЧЕСКОГО ЖИДКОГО КРИСТАЛЛА, ЛЕГИРОВАННОГО ДЕНДРИМЕРАМИ

Э. А. Бабаян, И. А. Будаговский, А. С. Золотько, М. П. Смаев,
С. А. Швецов, Н. И. Бойко¹, М. И. Барник²

Установлено, что карбосилановые дендримеры второй генерации со статистически распределенными терминальными алифатическими и азобензольными фрагментами индуцируют в нематических жидких кристаллах (НЖК) отрицательную ориентационную нелинейность (директор НЖК поворачивается перпендикулярно световому полю, уменьшая показатель преломления необыкновенной волны). Светоиндуцированный переход Фредерикса в планарно ориентированном НЖК является ориентационным фазовым переходом первого рода, характеризующимся широкой областью бистабильности.

Ключевые слова: жидкие кристаллы, светоиндуцированная ориентация, фазовые переходы, оптическая бистабильность.

1. *Введение.* В [1] было теоретически показано, что светоиндуцированный переход Фредерикса в прозрачном гомеотропно ориентированном НЖК под действием необыкновенной световой волны может быть ориентационным фазовым переходом первого рода. Однако необходимым условием для этого является очень большая анизотропия оптических и упругих свойств; к настоящему времени такой чисто оптический ориентационный переход первого рода в прозрачных НЖК не наблюдался. В [2–7] были теоретически исследованы и экспериментально реализованы светоиндуцированные ориентационные переходы в НЖК в присутствии внешних магнитных и электрических полей. В настоящем кратком сообщении исследовано взаимодействие света с НЖК, легированными карбосилановыми дендримерами второй генерации со статистически распределенными терминальными алифатическими и азобензольными фрагментами, и

¹ Московский государственный университет им. М.В. Ломоносова, химический факультет.

² Институт кристаллографии им. А.В. Шубникова РАН.

установлено, что светоиндуцированный переход Фредерикса в планарно ориентированном образце является фазовым переходом первого рода.

2. *Экспериментальные образцы и условия эксперимента.* Исследования проводились с гомеотропно и планарно ориентированными образцами жидкокристаллической матрицы ЖКМ-1277, легированной дендримерами второй генерации (0.15% по весу). Матрица ЖКМ-1277 является смесью цианобифенилов и сложных эфиров и обладает нематической фазой в широком интервале температур от -20 до 60 °С. Дендримеры содержали 8 алифатических децильных и 8 мезогенных пропоксиязобензольных терминальных групп (рис. 1). Синтез и свойства дендримеров описаны в [8]. Толщина жидкокристаллических ячеек составляла $L = 100$ мкм.

Световой пучок твердотельного лазера LCS-DTL-364 (Laser Export) с длиной волны $\lambda = 473$ нм фокусировался в жидкокристаллическую ячейку линзой с фокусным расстоянием $f = 18$ см. Поляризация светового пучка была горизонтальна; плоскость жидкокристаллических слоев – вертикальна. Угол α падения света на кристалл мог изменяться вращением кюветы с НЖК вокруг вертикальной оси; при этом невозмущенный директор \mathbf{n}_0 планарно ориентированного образца располагался в горизонтальной плоскости. Для описанной выше геометрии эксперимента и в гомеотропной, и в планарной ячейках возбуждалась необыкновенная световая волна.

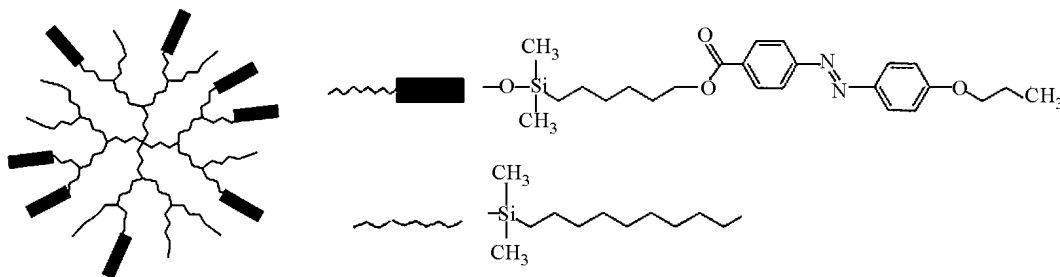


Рис. 1: Схематическое изображение дендримера второй генерации со статистическим распределением децильных и азобензольных концевых групп.

Светоиндуцированная переориентация директора сопровождается эффектом самовоздействия светового пучка: на экране, помещенном за кристаллом, наблюдается система абберационных колец. Число колец N пропорционально величине светоиндуцированного изменения показателя преломления Δn , которое однозначно связано с углом поворота директора [9]. Характер трансформации абберационной картины при быстрым сдвиге жидкокристаллической ячейки перпендикулярно световому пучку позволяет определить знак Δn [10].

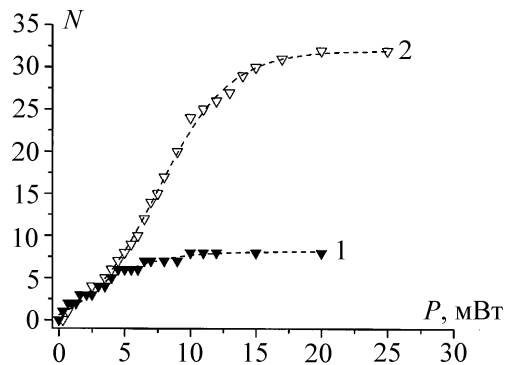


Рис. 2: Экспериментальная зависимость числа N абберационных колец самодефокусировки в поперечном сечении светового пучка ($\alpha = 50^\circ$, $\lambda = 473$ нм), прошедшего через (1) гомеотропную и (2) планарную ячейки ЖКМ-1277 с примесью 0.15% дендримеров второй генерации.

3. *Экспериментальные результаты.* При наклонном падении светового пучка на гомеотропную и планарную жидкокристаллические ячейки наблюдалась его абберационная самодефокусировка. Характерное время установления стационарной абберационной картины (десятки секунд) указывает на ориентационную природу самовоздействия (показатель преломления необыкновенной волны уменьшается из-за светоиндуцированного поворота директора перпендикулярно световому полю). Зависимости числа колец N от мощности светового пучка P для $\alpha = 50^\circ$ представлены на рис. 2. Из рис. 2 видно, что в области насыщения число абберационных колец для планарной ячейки $N = 32$ значительно больше, чем для гомеотропной $N = 8$. Такое соотношение как раз характерно для отрицательной нелинейности [11].

При нормальном падении светового пучка на планарную ячейку наблюдался гистерезис поля директора. Соответствующая зависимость числа абберационных колец самодефокусировки N от P представлена на рис. 3. При увеличении мощности вплоть до значения $P = P_{th1} = 37$ мВт абберационная картина не наблюдалась. При $P = P_{th1}$ скачком возникла абберационная картина с числом колец $N_1 = 35$; в дальнейшем, при увеличении P до 40 мВт, число колец возрастало до 36. При уменьшении мощности до значения $P_{th2} = 22$ мВт $< P_{th1}$ величина N монотонно уменьшалась до $N_2 = 19$. При $P < P_{th2}$ абберационная картина схлопывалась.

Таким образом, светоиндуцированный переход Фредерикса в планарной жидкокристаллической ячейке является фазовым переходом первого рода. В достаточно широком интервале значений мощности светового пучка $P_{th2} < P < P_{th1}$ существу-

ет бистабильность поля директора. Относительная ширина области бистабильности $\Delta = (P_{\text{th1}} - P_{\text{th2}})/P_{\text{th1}} = 0.4$ на порядок превышает соответствующую величину для оптических переходов первого рода (не связанных с поперечной неоднородностью поля директора) в присутствии дополнительных полей [2–5].

4. *Обсуждение экспериментальных результатов.* Ориентирующее воздействие светового поля \mathbf{E} на поглощающие свет жидкокристаллические системы определяется эффективной оптической анизотропией $\Delta\epsilon_{\text{eff}}$ (параметром, зависящим от межмолекулярного взаимодействия и пространственной корреляции молекул [12, 13]), входящей в выражение для плотности вращающего момента

$$\vec{\Gamma}_{\text{opt}} = \frac{\Delta\epsilon_{\text{eff}}}{4\pi} (\mathbf{nE})[\mathbf{n} \times \mathbf{E}], \quad (1)$$

где \mathbf{n} – директор НЖК. Соотношение (1) аналогично известному выражению для плотности вращающего момента, действующего на прозрачный НЖК, в которое входит обычная оптическая анизотропия $\Delta\epsilon$. Если $\Delta\epsilon_{\text{eff}} = \text{const}$, то бистабильность директора отсутствует (подобно тому, как она отсутствует в случае обычного перехода Фредерикса в низкочастотных полях). Однако для дендримеров (как и для других конформационно активных азосоединений [12]) $\Delta\epsilon_{\text{eff}}$ зависит от угла ψ между \mathbf{E} и \mathbf{n} . Так, для дендримеров первой генерации эффективная оптическая анизотропия $\Delta\epsilon_{\text{eff}} > 0$ при $\psi = 0$ и уменьшается до отрицательных значений при возрастании ψ [14]. Для дендримеров второй генерации, изучаемых в настоящей работе, $\Delta\epsilon_{\text{eff}} < 0$ независимо от угла ψ . Естественно предположить, что уменьшение $\Delta\epsilon_{\text{eff}}$ (возрастание $|\Delta\epsilon_{\text{eff}}|$) при увеличении ψ сохраняется и для дендримеров второй генерации. Тогда возникновение бистабильности можно представить себе следующим образом. При увеличении мощности светового пучка при $P = P_{\text{th1}}$ происходит переход Фредерикса – невозмущенное поле директора $\mathbf{n} = \mathbf{n}_0$ становится неустойчивым и угол ψ начинает возрастать. За счет положительной обратной связи, обусловленной зависимостью $\Delta\epsilon_{\text{eff}}(\psi)$, стационарное значение ψ достаточно велико. При уменьшении P величина $|\Delta\epsilon_{\text{eff}}|$, соответствующая деформированному полю директора, больше чем $|\Delta\epsilon_{\text{eff}}(\psi = 0)|$. Поэтому деформация директора сохраняется в некотором интервале значений мощности $P_{\text{th2}} < P < P_{\text{th1}}$.

Для количественного описания бистабильности поля директора исходим из уравнения для переориентации директора НЖК в планарно ориентированной ячейке [7]. В декартовой системе координат, ось X которой параллельна невозмущенному директору \mathbf{n}_0 , а ось Y перпендикулярна жидкокристаллическому слою, это уравнение имеет вид

$$\frac{\partial\psi}{\partial\tau} = \frac{\partial^2\psi}{\partial\eta^2} + \delta \sin\psi \cos\psi, \quad (2)$$

где ψ – угол поворота директора в плоскости XY относительно оси X, $\tau = t/\tau_0$ – безразмерное время, $\eta = \pi y/L$ – безразмерная координата, $\tau_0 = \gamma_1 L^2/\pi^2 K$, $\gamma_1 = \alpha_2 - \alpha_3$ – коэффициент вращательной вязкости, α_2 и α_3 – коэффициенты Лесли, K – упругая постоянная, $\delta = \Delta\epsilon_{\text{eff}}|A|^2 L^2/8\pi K$ – безразмерная плотность мощности световой волны, $|A|^2$ – усреднённый по времени квадрат амплитуды светового поля. Аппроксимируем зависимость эффективной диэлектрической анизотропии от угла ψ простым выражением

$$\Delta\epsilon_{\text{eff}} = -\Delta\epsilon_{\text{eff}}^{(1)} - \Delta\epsilon_{\text{eff}}^{(2)} \sin^2 \psi, \quad (3)$$

где $\Delta\epsilon_{\text{eff}}^{(1)}$ и $\Delta\epsilon_{\text{eff}}^{(2)}$ – положительные параметры. В соответствии с граничными условиями для планарной ориентации директора НЖК положим

$$\psi(\tau, \eta) = \psi_m(\tau) \sin \eta, \quad (4)$$

где $\psi_m(\tau)$ – максимальный угол поворота директора, достигаемый при $y = L/2$. Подставляя (3) и (4) в (2), домножая полученное соотношение на $\sin \eta$ и интегрируя по объёму НЖК, получаем

$$\frac{\partial \psi_m}{\partial \tau} = -\psi_m + \delta_p \left[J_1(2\psi_m) + \frac{m}{2} (J_1(2\psi_m) - \frac{1}{2} J_1(4\psi_m)) \right], \quad (5)$$

где $m = \Delta\epsilon_{\text{eff}}^{(2)}/\Delta\epsilon_{\text{eff}}^{(1)}$.

При любом значении параметра m уравнение (5) имеет тривиальное стационарное решение $\psi_m = 0$, устойчивое при $\delta_p < 1$ и неустойчивое при $\delta_p > 1$. Устойчивые и неустойчивые нетривиальные решения показаны на рис. 4 сплошными и штриховыми линиями. Как видно из рис. 4, при $m > 0.8$ возникает оптическая бистабильность поля директора. Экспериментальному значению ширины области бистабильности $\Delta = 0.4$ соответствует значение $m = 3.6$.

Число абберационных колец равно [9]

$$N = \Delta S_{\text{NL}}/2\pi, \quad (6)$$

где

$$\Delta S_{\text{NL}} = \frac{kL}{\pi} \int_0^\pi |\Delta n(\eta)| d\eta \quad (7)$$

– нелинейный набег фазы, $|\Delta n(\eta)|$ – модуль светоиндуцированного изменения показателя преломления. Используя известную формулу для показателя преломления необыкновенной волны

$$n_e(\psi) = \frac{\sqrt{\epsilon_\perp \epsilon_\parallel}}{\sqrt{\epsilon_\perp \cos^2 \psi + \epsilon_\parallel \sin^2 \psi}} \quad (8)$$

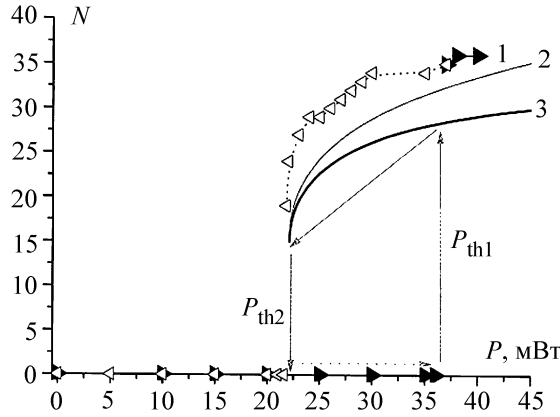


Рис. 3: (1) Экспериментальные зависимости числа абберационных колец самодефокусировки N в поперечном сечении светового пучка, прошедшего через планарно ориентированную ячейку ЖКМ-1277 с примесью 0.15% дендримеров второй генерации, от мощности светового пучка P , полученные при увеличении (\blacktriangleright) и уменьшении (\triangleleft) P . Кривые (2, 3): теоретические зависимости, построенные согласно формулам (13) (2) и (11) (3).

и учитывая малость величины $\delta n = \frac{\epsilon_{\parallel}^{1/2} \Delta \epsilon}{2\epsilon_{\perp}}$, находим

$$\Delta n = \delta n \sin^2 \psi. \tag{9}$$

Из (6)–(9) получаем выражение для числа абберационных колец

$$N = \frac{N_0}{\pi} \int_0^{\pi} \sin^2 \psi d\eta, \tag{10}$$

где $N_0 = \delta n L / \lambda$.

Подставляя (4) в (10), находим

$$N = \frac{N_0}{2} (1 - J_0(2\psi_m)). \tag{11}$$

Зависимость $N(P)$, рассчитанная согласно (11) и (5) для $m = 3.6$, показана на рис. 3 жирной линией. При расчете мы полагали, что значение $\delta_p = 1$ соответствует $P_{th1} = 37$ мВт. Характер рассчитанной зависимости $N(P)$ хорошо соответствует экспериментальным данным, однако рассчитанное число колец при $P = P_{th1} = 37$ мВт оказалось на 20% меньше экспериментального.

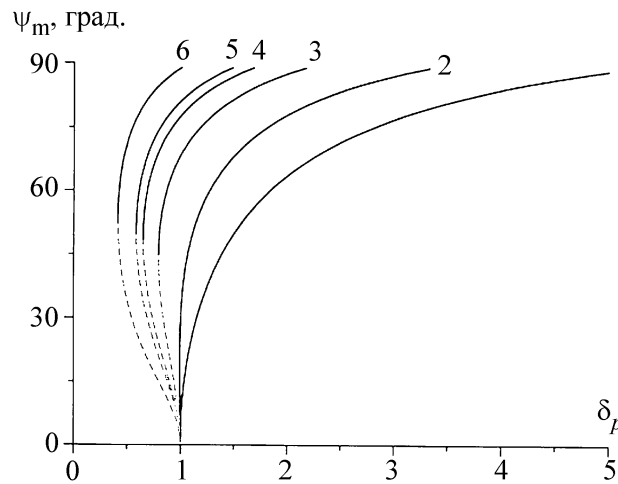


Рис. 4: Рассчитанные зависимости угла ψ_m поворота директора в середине ($y = L/2$) планарной жидкокристаллической ячейки от нормированной плотности мощности световой волны δ_p при различных значениях параметра m : (1) 0, (2) 0.8, (3) 2, (4) 3, (5) 3.6, (6) 6. Сплошные участки кривых соответствуют устойчивым состояниям, штриховые участки – неустойчивым.

Несколько заниженное число абберационных колец, возможно, связано с тем, что проведенное выше рассмотрение целиком базировалось на гармонической аппроксимации (4) поля директора. В то же время, при больших (близких к $\pi/2$) значениях угла ψ_m поле деформации директора отличается от гармонического. Для оценки влияния этого эффекта воспользуемся точным уравнением для поля директора при больших ψ_m [15]:

$$\frac{2}{\pi}\eta = F_1(\psi)/F_1(\psi_m), \tag{12}$$

где $F_1(\psi) = \int_0^\psi \frac{dx}{\sqrt{\cos 2x - \cos 2\psi_m}}$. В этом случае, как следует из [10],

$$N = \frac{N_0}{F_1(\psi_m)} \int_0^{\psi_m} \frac{\sin^2 \psi d\psi}{\sqrt{\cos 2\psi - \cos 2\psi_m}}. \tag{13}$$

Зависимость $N(P)$, рассчитанная с использованием (13), представлена на рис. 3 тонкой линией. Она дает лучшее согласие с экспериментом, чем (11). Подчеркнем, однако, что использование (13) вместо (11) не является строго обоснованным, т.к. расчет стационарных амплитуд с использованием (5) основан на гармонической зависимости (4).

5. *Заключение.* Итак, в настоящей работе экспериментально наблюдался светоиндуцированный ориентационный переход первого рода в нематическом жидком кристалле, легированном дендримерами. Переход сопровождается бистабильностью поля директора в достаточно широкой области мощностей светового пучка. Предложена простая модель этого эффекта.

Авторы благодарны А.Ю. Бобровскому, В.Н. Очкину и В.П. Шibaеву за полезные обсуждения. Работа поддержана РФФИ (проекты 08-02-01382, 08-03-00481 и 09-02-12216), грантом Президента РФ МК-699.2009.2 (М.П.С.), программой поддержки молодых учёных Президиума РАН (И.А.Б. и М.П.С.), ФЦП “Научные и научно-педагогические кадры инновационной России”, Г.К. № 02.740.11.0447.

Л И Т Е Р А Т У Р А

- [1] Hiar Liew Ong, Phys. Rev. A **28**, 2393 (1983).
- [2] A. J. Karn, S. M. Arakelian, Y. R. Shen, and H. L. Ong, Phys. Rev. Lett. **57**, 448 (1986).
- [3] Shu-Hsia Chen, J. J. Wu, Appl. Phys. Lett. **52**, 1998 (1988).
- [4] J. J. Wu, Gan-Sing Ong, and Shu-Hsia Chen, Appl. Phys. Lett. **53**, 1999 (1989).
- [5] J. J. Wu and Shu-Hsia Chen, J. Appl. Phys. **66**, 1065 (1989).
- [6] А. С. Золотько, М. П. Смаев, В. Ф. Китаева, М. И. Барник, Краткие сообщения по физике ФИАН, № 3, 7 (2004).
- [7] А. С. Золотько, М. П. Смаев, В. Ф. Китаева, М. И. Барник, Квантовая электроника **34**, 1151 (2004).
- [8] А. И. Лысачков, Н. И. Бойко, Е. А. Ребров и др., Известия Академии наук. Серия химическая, № 12, 2325 (2007).
- [9] А. С. Золотько, В. Ф. Китаева, Н. Н. Соболев, А. П. Сухоруков, ЖЭТФ **81**, 933 (1981).
- [10] V. F. Kitaeva, A. S. Zolot'ko, and M. I. Barnik, Mol. Materials **12**, 271 (2000).
- [11] A. S. Zolot'ko, A. S. Averyushkin, V. F. Kitaeva, et al., Mol. Cryst. Liq. Cryst. **451**, 41 (2006).
- [12] И. А. Будаговский, А. С. Золотько, В. Н. Очкин и др., ЖЭТФ **133**, 204 (2008).
- [13] А. С. Золотько, Письма в ЖЭТФ **68**, 410 (1998).

- [14] I. A. Budagovsky, V. N. Ochkin, M. P. Smayev, A. S. Zolot'ko, et al., *Liq. Cryst.* **36**, 101 (2009).
- [15] S. I. Ben-Abraham, *Phys. Rev. A* **14**, 1251 (1976).

Поступила в редакцию 4 декабря 2009 г.