

УДК 532.783;535.21

САМОВОЗДЕЙСТВИЕ СВЕТОВОГО ПУЧКА В НЕМАТИЧЕСКИХ ЖИДКИХ КРИСТАЛЛАХ В ПОСТОЯННОМ ЭЛЕКТРИЧЕСКОМ ПОЛЕ

И. А. Будаговский, А. С. Золотько, В. Ф. Китаева,
В. Н. Очкин, М. П. Смаев, М. И. Барник¹

Экспериментально исследовано абберационное самовоздействие светового пучка в жидких кристаллах (чистой (нелегированной) нематической матрице и образцах, легированных аминокислотами и красителями), находящихся под воздействием внешнего электрического поля. Установлено, что вид и динамика развития абберационной картины зависят от состава жидкого кристалла и условий эксперимента, но практически не зависят от поляризации света. При этом, в отличие от самовоздействия света в отсутствие постоянного электрического поля, абберационная картина может иметь сложную, асимметричную структуру. Наблюдавшееся самовоздействие можно объяснить поверхностным фоторефрактивным эффектом.

Светоиндуцированная переориентация директора нематических жидких кристаллов (НЖК) приводит к абберационному самовоздействию светового пучка [1 – 3]. В прозрачных НЖК высокая эффективность этого самовоздействия определяется “гигантской” ориентационной нелинейностью непоглощающих НЖК, на 9 порядков превышающей керровскую нелинейность жидкостей [4]. Добавление небольшого количества ($\sim 0.1\%$) поглощающих примесей может ещё на 2 порядка увеличить ориентационную нелинейность НЖК и даже изменить её знак [5].

¹Институт кристаллографии им. А.В. Шубникова РАН.

Воздействие внешних низкочастотных переменных полей влияет на самовоздействие света в НЖК, подавляя или усиливая его в зависимости от знака диэлектрической анизотропии и геометрии эксперимента [6, 7].

При этом абберационная картина представляет собой систему концентрических колец, которая может быть вытянута в направлении, перпендикулярном направлению поляризации падающего излучения (степень вытянутости не превышает 40%) [8]. Поскольку распределения интенсивности и поляризации света в абберационной картине несут в себе информацию о деформированном поле директора, то самовоздействие света является чрезвычайно удобным и информативным инструментом исследования в нелинейной оптике жидких кристаллов [9 – 11].

Значительный интерес представляет изучение светоиндуцированных ориентационных эффектов в НЖК, помещенных в постоянное электрическое поле [12 – 16]. Эти эффекты фоторефрактивного типа связаны с тем, что комбинированное воздействие внешнего постоянного электрического поля и световой волны может создавать пространственно неоднородное распределение электрических зарядов внутри ячейки НЖК (при этом сами заряды или изначально присутствуют в нематической матрице или возникают при возбуждении поглощающих примесей). Соответствующая ориентационная нелинейность может значительно превышать “гигантскую” ориентационную нелинейность.

До сих пор взаимодействие света с НЖК в постоянном поле изучалось только для широких световых пучков (поперечный размер пучка значительно больше толщины кристалла), в основном с помощью многоволнового взаимодействия. В настоящей работе сообщается о наблюдении и исследовании в таких НЖК эффективного самовоздействия узкого светового пучка.

1. Экспериментальные образцы и условия эксперимента. Исследовались чистая (без каких-либо специальных примесей) нематическая смесь ЖКМ-1277, а также эта нематическая матрица с малым содержанием различных добавок – аминокислот и красителей.

Нематическая матрица ЖКМ-1277 является смесью бифенилов и сложных эфиров. Она имеет положительную анизотропию диэлектрической проницаемости ($\Delta\epsilon = 12.1$ на частоте 1 кГц при $t = 20^\circ \text{C}$); показатели преломления необыкновенной и обыкновенной волн равны, соответственно, 1.71 и 1.52 ($\lambda = 589 \text{ нм}$, $t = 20^\circ \text{C}$).

Легирование производилось аминокислотами (аспарагин (Асп) и тирозин (Тир)), которые могут изменять концентрацию ионов в растворе [17]. В качестве красителей

были выбраны метиловый красный (МК), присутствие которого влияет на электропроводность [18], и родамин 6Ж (Р6Ж), для которого, согласно [12], характерна фотопроводимость.

Эксперименты проводились с шестью планарно ориентированными образцами (1) ЖКМ-1277 толщиной $L = 50$ мкм; ЖКМ-1277+0.2% (по весу) (2) Асп и (3) Тир толщиной $L =$ (2) 50 и (3) 100 мкм; (4) ЖКМ-1277+0.1% МК толщиной $L = 100$ мкм; и (5) ЖКМ-1277+0.05% Р6Ж толщиной $L = 100$ мкм. Исследовался также гомеотропно ориентированный ЖКМ-1277+0.05% Р6Ж толщиной $L = 100$ мкм (образец 6). Планарная ориентация образцов достигалась натиранием полиимидного покрытия стеклянных подложек жидкокристаллических ячеек. Гомеотропная ориентация достигалась с помощью ориентанта стеарилхлорид хрома. Постоянное электрическое поле прикладывалось к электродам (ИТО) на стеклянных подложках ячеек.

Схема экспериментальной установки аналогична использованной в работе [19]. Излучение твердотельного лазера LASOS-GL ($\lambda = 532$ нм), аргонового лазера LASOS ($\lambda = 515$ нм) или аргон-криптонового лазера ILM-120 ($\lambda = 647, 515, 488$ нм) фокусировалось линзой ($f = 14$ см, размер перетяжки лазерного пучка порядка ~ 100 мкм) на НЖК. Для изменения поляризации падающего луча использовался двойной ромб Френеля. Плоскость кюветы была вертикальна, директор n НЖК был ориентирован в горизонтальной плоскости. Угол α падения световой волны на кристалл изменялся при вращении кюветы вокруг вертикальной оси (будем считать угол α положительным, если поворот кристалла осуществлялся против часовой стрелки, и отрицательным в противоположном случае). В указанной геометрии в НЖК возбуждается необыкновенная волна при горизонтальной поляризации света. За кристаллом помещался экран, на котором наблюдались изменения, происходящие со световым пучком при его взаимодействии с НЖК. Знак самовоздействия определяется путём анализа трансформации картины при поперечном сдвиге образца относительно светового пучка [11]. Полярность приложенного постоянного напряжения будем условно считать положительной, если входная (для светового пучка) поверхность ячейки являлась анодом.

2. Экспериментальные результаты.

2.1. Чистая нематическая матрица ЖКМ-1277. При нормальном падении на НЖК горизонтально поляризованного светового пучка (мощностью $P = 1 - 10$ мВт) абберационная картина в отсутствие постоянного поля не наблюдается. При приложении постоянного поля ($U \sim 2$ В) развивается кольцевая абберационная картина самодиффузии пучка за время порядка ~ 1 мин. Затем картина медленно схлопывается за

время ~ 10 мин. Время релаксации кольцевой картины при выключении светового или электрического полей составляет 1 – 2 минуты. Кольцевая структура не является вполне симметричной относительно проведенной через ее центр вертикальной линии – одна из половинок несколько вытянута вдоль горизонтали.

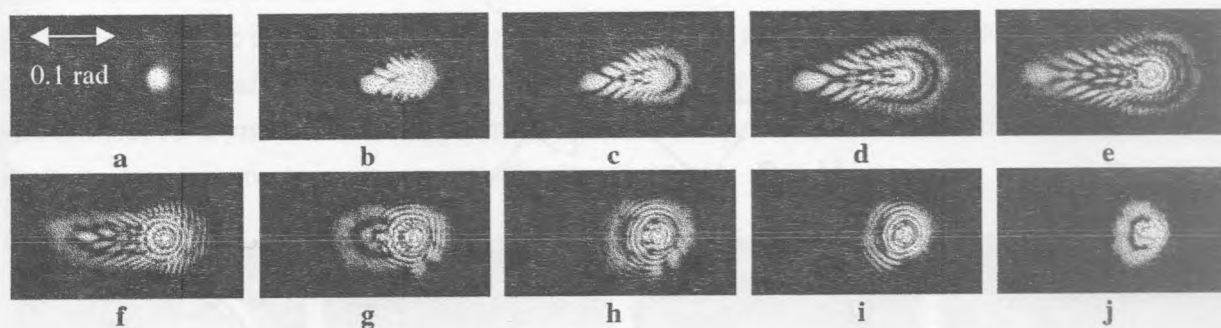


Рис. 1. Динамика развития абберационной картины в световом пучке, прошедшем через образец 1 (НЖК ЖКМ-1277) при одновременном воздействии постоянного и светового полей ($L = 50$ мкм, $U = +2$ В, $\alpha = +40^\circ$, $\lambda = 515$ нм, $P = 5$ мВт). Временные интервалы между фотографиями $\sim 5 - 10$ сек.

При наклонном падении наблюдаемое самовоздействие светового пучка значительно сложнее. Динамика ее развития показана на рис. 1. При приложении постоянного поля за время порядка нескольких секунд формируется “лепесток”, вытянутый вдоль горизонтали (рис. 1b). Центр его широкой части совпадает с центром пучка до приложения напряжения. Затем лепесток увеличивается в размерах и, наряду с ним, развивается вторая структура (рис. 1c – 1e) в виде колец, вытянутых в сторону “лепестка”. Знак самовоздействия второй структуры соответствует самодефокусировке. Далее, лепесток сам трансформируется в кольцевую структуру (рис. 1f – 1g), ее центр смещается к центру второй структуры (рис. 1h – 1i), и обе системы колец сливаются (рис. 1j).

Направление вытянутости картины самовоздействия (т.е., направление от центра второй (кольцевой) системы к центру лепестка) при наклонном падении зависит от направления поворота кристалла (знака угла α) и полярности приложенного напряжения. При $\alpha > 0$ и $U > 0$ картина вытянута влево (рис. 2).

Скорость развития и размер абберационной картины зависят от мощности пучка P и напряжения U . При малых напряжениях ($U \sim 1$ В) картина становится асимметричной (как на рис. 1b) и в дальнейшем не изменяется. С увеличением мощности пучка вплоть до $P = 10$ мВт наблюдается увеличение размеров стационарной асимметричной картины, при дальнейшем увеличении P изменений не наблюдается. При $U \sim 2$ В увеличение

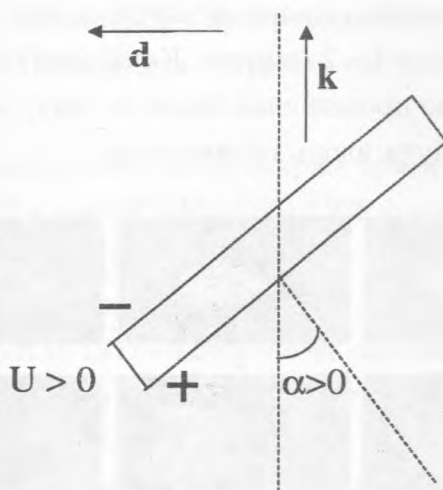


Рис. 2. Схема, иллюстрирующая отклонения пучка (вид сверху): \mathbf{k} – волновой вектор падающего на НЖК светового пучка, α – угол падения светового пучка на НЖК, U – постоянное напряжение, приложенное к НЖК, \mathbf{d} – вектор, указывающий направление вытянутости абберрационной картины. Изменение знака α или U приводит к изменению направления вектора \mathbf{d} .

мощности более 8 мВт приводит к быстрой (~ 10 сек) трансформации асимметричной картины в кольцевую. Поляризация абберрационной картины во всех описанных случаях была горизонтальной, т.е. совпадала с линейной поляризацией падающего излучения.

Эффективность самовоздействия светового пучка увеличивается с уменьшением длины волны излучения. Так, при $U = 2$ В и $P = 4$ мВт для красной линии $\lambda = 647$ нм абберрационная картина не наблюдается, для зелёной линии $\lambda = 515$ нм её горизонтальная расходимость составляла 0.3 рад, а для $\lambda = 488$ нм она была равна 0.6 рад.

Была исследована зависимость самовоздействия света от направления линейной поляризации падающего светового пучка. Оказалось, что поворот плоскости поляризации падающего светового пучка от горизонтального направления не влияет на вид, поляризацию (горизонтальную) и процесс формирования абберрационной картины, а только изменяет ее яркость и приводит к появлению яркого пятна вертикальной поляризации в точке, соответствующей положению светового пучка в начальный момент облучения. Интенсивность абберрационной картины максимальна при горизонтальной поляризации падающего излучения (е-волна) и обращается в нуль для вертикальной поляризации (о-волна). Интенсивность пятна вертикальной поляризации имеет обратную поляризационную зависимость. В случае падения на НЖК о-волны абберрационная картина не

видна, но ее легко можно визуализировать в любой момент времени небольшим (на $\sim 5^\circ$) поворотом плоскости поляризации падающего излучения.

Подчеркнем, что ярко выраженная асимметрия абберационной картины самовоздействия света и независимость ее вида от поляризации падающего излучения связаны с воздействием постоянного поля. При ориентационном самовоздействии световых пучков в прозрачных и поглощающих кристаллах в отсутствие такого поля абберационная картина представляет собой систему колец, причем, в рассматриваемой геометрии, ее расходимость и число колец монотонно падают при повороте плоскости поляризации от горизонтального к вертикальному направлению.

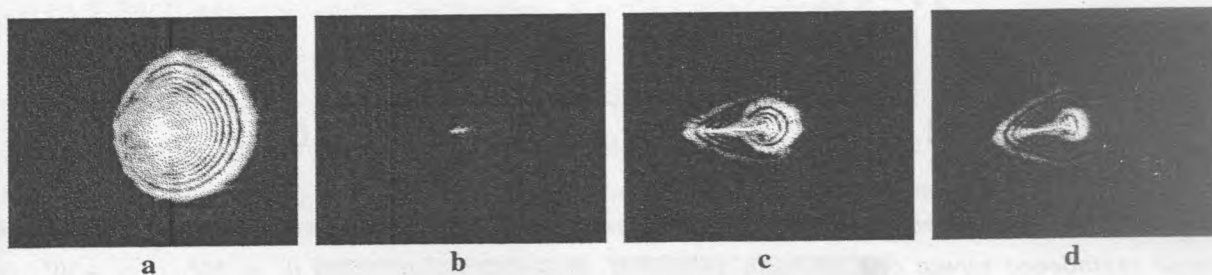


Рис. 3. Абберационные картины для образца 3 (ЖКМ-1277+0.2% Asp), развившиеся через 1 мин после приложения постоянного поля при (a, b) нормальном и (c, d) наклонном ($\alpha = +40^\circ$) падении на НЖК (a, c) e- и (b, d,) o-волн ($P = 5 \text{ мВт}$, $\lambda = 515 \text{ нм}$, $U = +2 \text{ В}$).

2.2. Нематические матрицы ЖКМ-1277, легированные аминокислотами. Для самовоздействия света в этих кристаллах не было замечено существенных отличий от случая чистой матрицы. Например, рис. 3. иллюстрирует независимость вида абберационной картины от поляризации падающего излучения.

Для образца 3 были проведены исследования зависимости горизонтального размера стационарной абберационной картины от P и U . Было установлено, что для каждого α одинаковый размер картины можно получить при различных комбинациях P и U , как это видно из рис. 4, на котором представлены изолинии горизонтальной расходимости картины. Из рис. 4 следует, что нелинейно оптический отклик НЖК в постоянном поле увеличивается при переходе от нормального к наклонному падению светового пучка, а также быстро возрастает с увеличением U .

2.3. Нематическая матрица ЖКМ-1277, легированная красителем "метилловый красный". Особенностью образца 4 явилось то, что как при нормальном, так и при наклонном падении светового пучка на НЖК в постоянном поле наблюдалась только кольцевая структура. Однако, как и в вышеописанных случаях, она развивалась

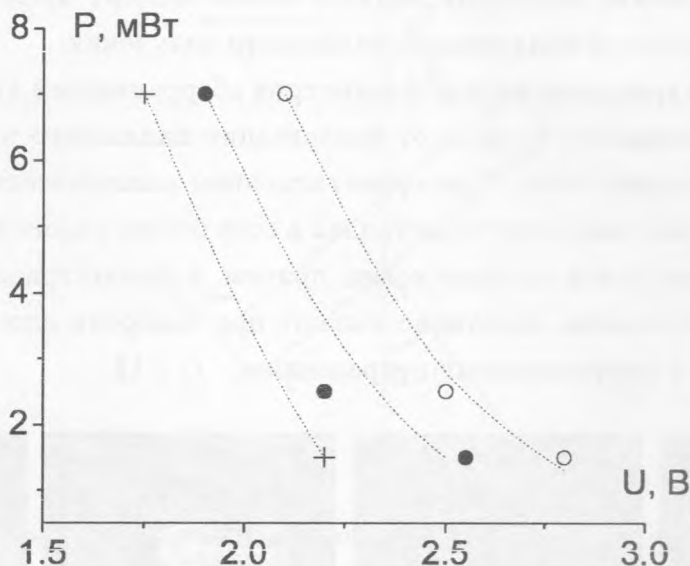


Рис. 4. Изолинии горизонтального углового размера θ_h абберационной картины самовоздействия светового пучка для образца 4 (ЖКМ-1277+0.2% Тир): (+) $\theta_h = 35^\circ$, $\alpha = +50^\circ$; (●) $\theta_h = 18^\circ$, $\alpha = +50^\circ$; (○) $\theta_h = 35^\circ$, $\alpha = 0^\circ$.

независимо от поляризации света. Так, при $U = +2\text{ В}$ и $\alpha = 40^\circ$ для горизонтально поляризованного пучка (е-волна) мощностью $P = 3\text{ мВт}$ за время порядка 1 минуты происходит рост числа колец самодефокусировки N от 3 до 12, а для вертикально поляризованного – от 0 до 9 колец. При этом начальные три кольца дефокусировки в поле е-волны возникают еще до начала воздействия постоянного поля, характерное время их формирования составляло $\sim 10\text{ с}$. Появление этих колец естественно связать с ориентационной нелинейностью НЖК, обусловленной изменением межмолекулярных сил при поглощении света молекулами “метилового красного”.

2.4. Нематическая матрица ЖКМ-1277, легированная красителем родамин 6G (планарная ориентация). Абберационная картина для образца 5 (ЖКМ-1277+0.05% Р6Ж) качественно схожа с картиной для чистой матрицы, но при наклонном падении света имеет несколько другой вид (рис. 5). Кроме того, для получения развитой картины требовалось большее напряжение ($U = 4\text{ В}$) по сравнению с чистой матрицей ($U = 2\text{ В}$). Однако, абберационная картина наблюдалась даже при очень малых мощностях излучения. Так, всего лишь при $P = 0.02\text{ мВт}$ наблюдалось 6 колец абберационной самофокусировки ($U = 6\text{ В}$, $\alpha = 0^\circ$).

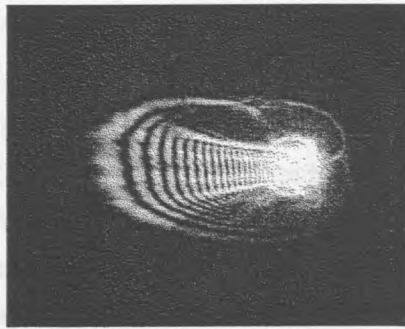


Рис. 5. Абберрационная картина для образца 5 (планарно ориентированный НЖК ЖКМ-1277 + 0.05% R6G) при $\alpha = +40^\circ$, $P = 5 \text{ мВт}$, $\lambda = 515 \text{ нм}$ и $U = +4 \text{ В}$.

2.5. Нематическая матрица ЖКМ-1277, легированная красителем родамин 6G (гомеотропная ориентация). При нормальном падении на образец 6 абберрационная картина не наблюдается, постоянное поле не вносит видимых изменений.

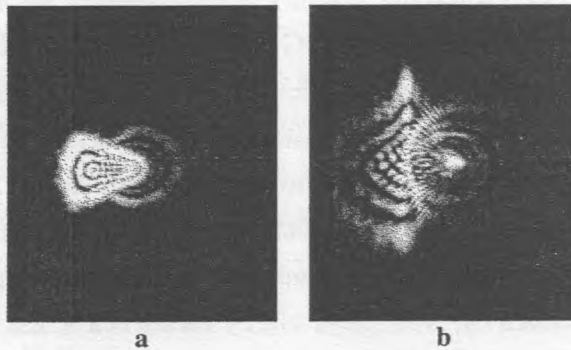


Рис. 6. Абберрационные картины для образца 6 (гомеотропно-ориентированной НЖК ЖКМ-1277+0.05% R6G): (a) $P = 1 \text{ мВт}$ и (b) $P = 5 \text{ мВт}$ ($\alpha = +40^\circ$, $U = +3 \text{ В}$, $\lambda = 515 \text{ нм}$). Напряжение прикладывалось через 2 мин. после начала освещения.

При наклонном ($\alpha = 40^\circ$) падении на НЖК светового пучка (e-волна) сначала, за время $\sim 10 \text{ сек}$, устанавливается картина ориентационной абберрационной самофокусировки ($N = 1$ при $P = 1 \text{ мВт}$ и $N = 5$ при $P = 5 \text{ мВт}$), которая затем схлопывается за время $\sim 2 \text{ мин}$. Последующее приложение постоянного поля приводит к асимметричной картине (рис. 6a и 6b). При $P = 1 \text{ мВт}$ вращение поляризации пучка (после схлопывания начального ориентационного кольца) не влияет на развитие картины. При $P = 5 \text{ мВт}$ картина в o-волне качественно схожа с картиной в e-волне, однако ее размер

несколько меньше и поворот плоскости поляризации приводит к некоторому увеличению картины за время порядка нескольких секунд.

Обсуждение результатов. Возникновение абберационной картины связано с переориентацией директора, что подтверждается характерными временами ее установления и релаксации. Малая мощность излучения, при которой возникает абберационная картина, и независимость абберационной картины от поляризации исключают ориентационные явления, связанные с воздействием света на индуцированные диполи [1 – 2] или с изменением межмолекулярных сил [3]. Можно предположить, что рассматриваемый ориентационный эффект относится к эффектам фоторефрактивного типа – переориентация директора происходит под действием постоянных электрических полей, создаваемых электрическими зарядами, формирование которых обусловлено воздействием светового поля.

В условиях наших экспериментов возникновение в объеме кристалла ионов под действием света [12] не должно играть решающей роли в светоиндуцированной переориентации директора, так как сильный эффект наблюдается не только в НЖК, легированных поглощающими красителями (Р6G и МК), но и в прозрачной нематической матрице. Кроме того, эффективность генерации объёмного заряда должна зависеть от поляризации излучения (вследствие дихроизма поглощения). В то же время, как уже отмечалось, абберационная картина слабо зависит от поляризации. Отметим также, что сама по себе генерация ионов должна была бы привести к дополнительной экранировке внешнего поля, что в планарных НЖК привело бы к самофокусировке светового пучка. Поэтому остается предположить, что роль света сводится к изменению концентрации ионов, локализованных под воздействием постоянного внешнего электрического поля вблизи границы раздела нематик – полимерное покрытие и экранирующих это поле. Для подтверждения наличия экранировки был проведен дополнительный эксперимент по определению порога перехода Фредерикса в постоянном и переменном полях. Оказалось, что для чистой матрицы порог перехода в постоянном поле в 4 раза больше, чем в переменном (3.2 В и 0.8 В, соответственно).

Асимметрию абберационной картины при наклонном падении можно объяснить, по видимому, различием поверхностной плотности зарядов при воздействии света вблизи анода и катода. При этом распределение результирующего постоянного поля в объеме НЖК (и, соответственно, поле директора) будет не симметрично относительно оси светового пучка. Такое объяснение подтверждается изменением направления отклонения пучка при смене полярности напряжения и при изменении направления поворота кри-

сталла. Возникновение асимметрии абберационной картины и для планарного и для гомеотропного образцов свидетельствует о том, что эффект асимметрии характерен для весьма разнообразных ориентантов.

Уменьшение эффективности самовоздействия с увеличением длины световой волны можно объяснить, если предположить, что изменение поверхностной плотности заряда происходит, например, за счет фотоиндуцированной инжекции носителей заряда из ориентанта в слой нематика. Отсутствие заметных изменений в абберационной картине при легировании нематической матрицы аминокислотами связано с тем, что малое количество добавки, которое удалось растворить, не изменило значительно концентрации зарядов в кристалле. Отсутствие значительной асимметрии в случае легирования красителем метиловый красный требует дальнейшего изучения.

Заключение. Одновременное воздействие на нематические жидкие кристаллы светового пучка и постоянного электрического поля может приводить к возникновению сложной асимметричной абберационной картины, которая наблюдается и в планарном, и в гомеотропном образцах. Величина оптической нелинейности НЖК при этом на 2-3 порядка превышает обыкновенную "гигантскую" оптическую нелинейность. Абберационная картина и её поведение качественно отличается для НЖК различного состава, но во всех случаях картина практически не зависит от поляризации светового пучка. Направление вытянутости асимметричной абберационной картины зависит от поляризации напряжения и знака угла падения световой волны. Наблюдаемое явление связано, по-видимому, с поверхностным фоторефрактивным эффектом, т.е. с изменением концентрации зарядов на границах раздела НЖК и ориентирующих поверхностей.

Авторы благодарны И.Н. Бакулину за полезные обсуждения и А.В. Шакуну за помощь в проведении экспериментов. Один из авторов (М.П. С.) благодарен за поддержку Благотворительному общественному фонду содействия отечественной науке. Работа была поддержана Российским фондом фундаментальных исследований (гранты 04-02-17354 и 05-02-17418) и программой президиума РАН "Поддержка молодых учёных".

ЛИТЕРАТУРА

- [1] Золотько А. С., Китаева В. Ф., Кроо Н. и др. Письма в ЖЭТФ, **32**, 170 (1980).
- [2] Золотько А. С., Китаева В. Ф., Соболев Н. Н., Сухоруков А. П. ЖЭТФ, **81**, 933 (1981).

- [3] Durbin S. D., Arakelian S. M., and Shen Y. R. *Opt. Lett.*, **6**, 411 (1981).
- [4] Зельдович Б. Я., Пилипецкий И. Ф., Сухов А. В., Табирян Н. В. Письма в ЖЭТФ, **31**, 287 (1980).
- [5] Janossy I. and Lloyd A. D. *Mol. Cryst. Liq. Cryst.*, **202**, 77 (1991).
- [6] Csillag L., Eber N., Janossy I., et al. *Mol. Cryst. Liq. Cryst.*, **89**, 282 (1982).
- [7] Barnik M. I., Kharchenko S. A., Kitaeva V. F., and Zolot'ko A. S. *Mol. Cryst. Liq. Cryst.*, **375**, 363 (2002).
- [8] Золотько А. С., Китаева В. Ф., Кроо Н. и др. ЖЭТФ, **83**, 1368 (1982).
- [9] Золотько А. С., Китаева В. Ф., Куюмчян В. А. и др. Письма в ЖЭТФ, **36**, 66 (1982).
- [10] Kitaeva V. F. and Zolot'ko A. S. *Laser Research in the USSR*, **10**, no. 4, 275 (1989).
- [11] Kitaeva V. F., Zolot'ko A. S., and Barnik M. I. *Mol. Materials*, **12**, 271 (2000).
- [12] Руденко Е. В., Сухов А. В. ЖЭТФ, **105**, 1621 (1994).
- [13] Khoо I. C., Li H., and Liang Y. *Opt. Lett.*, **19**, 1723 (1994).
- [14] Pagliusi P. and Ciprarrone G. *J. Appl. Phys.*, **93**, 9116 (2003).
- [15] Voichuk V., Kucheev S., Parka J., et al. *J. Appl. Phys.*, **90**, 5963 (2001).
- [16] Kaszmarek M., Dyadyusha A., Slussarenko S., Khoо I. C. *J. Appl. Phys.*, **96**, 2616 (2004).
- [17] Неницеску К. Д. *Органическая химия*, т. 2, с. 374, Издательство иностранной литературы, Москва (1963).
- [18] Ouskova E., Reznikov Yu., Snorok B., and Tereshchenko A. *Mol. Cryst. Liq. Cryst.*, **375**, 97 (2002).
- [19] Будаговский И. А., Золотько А. С., Китаева В. Ф., Смаев М. П. Краткие сообщения по физике ФИАН, N 10, 26 (2004).

Поступила в редакцию 31 августа 2005 г.