

РОССИЙСКАЯ АКАДЕМИЯ НАУК

**ФИЗИЧЕСКИЙ  
ИНСТИТУТ**



*имени  
П.Н.Лебедева*

**Ф И А Н**

ПРЕПРИНТ

**10**

М.И. БАРНИК, И.А. БУДАГОВСКИЙ, В.А.ЕНИКЕЕВА,  
А.С.ЗОЛОТЬКО, В.Ф. КИТАЕВА, И.А. ОЖЕРЕДОВ,  
В.А. МАКАРОВ, А.П. ШКУРИНОВ

**ОРИЕНТАЦИОННОЕ ВОЗДЕЙСТВИЕ  
ФЕМТОСЕКУНДНЫХ СВЕТОВЫХ ИМПУЛЬСОВ  
НА НЕМАТИЧЕСКИЕ ЖИДКИЕ КРИСТАЛЛЫ**

**Москва 2003**

# ОРИЕНТАЦИОННОЕ ВОЗДЕЙСТВИЕ ФЕМТОСЕКУНДНЫХ СВЕТОВЫХ ИМПУЛЬСОВ НА НЕМАТИЧЕСКИЕ ЖИДКИЕ КРИСТАЛЛЫ

М.И.Барник<sup>1</sup>, И.А.Будаговский<sup>2</sup>, В.А.Еникеева<sup>3</sup>, А.С.Золотко<sup>2</sup>, В.Ф.Китаева<sup>2</sup>,  
И.А.Ожередов<sup>3</sup>, В.А.Макаров<sup>3</sup>, А.П.Шкуринов<sup>3</sup>

<sup>1</sup>Институт кристаллографии им. А.В. Шубникова РАН, 117333, Москва, Ленинский пр., 59

<sup>2</sup>Физический институт им. П.Н. Лебедева РАН, 119991, Москва, Ленинский пр., 53

<sup>3</sup>Физический факультет и Международный учебно-научный лазерный центр МГУ  
им.М.В.Ломоносова, 119992, Москва, ГСП-2, Воробьевы горы, МГУ

Проведено прямое экспериментальное сравнение ориентационного взаимодействия последовательности фемтосекундных лазерных импульсов и непрерывного светового излучения с нематическими жидкими кристаллами (НЖК).

Установлено, что для прозрачной нематической матрицы E63 при одинаковых значениях средней плотности мощности фемтосекундного излучения и плотности мощности непрерывного излучения нелинейный ориентационный отклик одинаков. Для нематической матрицы “смесь А” и матрицы E63, легированной антрахиноновым красителем, воздействие последовательности фемтосекундных импульсов оказалось менее эффективным, чем воздействие непрерывного излучения.

Проведен теоретический анализ переориентации директора НЖК под действием фемтосекундных импульсов. Показано, что инерция директора не влияет на стационарную амплитуду угла поворота директора, что согласуется с экспериментальными результатами для прозрачной нематической матрицы E63. Различные эффективности ориентационного воздействия импульсного и непрерывного светового излучения на другие исследованные образцы НЖК объясняются изменением межмолекулярного взаимодействия при двухфотонном поглощении импульсного излучения.

Direct experimental comparison of the interactions of the train of femtosecond pulses and cw light radiation with nematic liquid crystals (NLCs) has been performed.

For transparent nematic E63 matrix, the nonlinear orientational responses are established to be equal provided that the average energy flux of the femtosecond pulses coincides with the energy flux of cw radiation. For nematic matrix “mixture A” and E63 matrix doped with an anthraquinone dye, the influence of the train of femtosecond pulses proved to be less effective than that of cw radiation.

The NLC director reorientation under femtosecond pulses has been analyzed theoretically. It is shown that the director inertia bears no effect on the steady-state amplitude of the director reorientation angle, which agrees with the experimental results for transparent nematic E63 matrix. The difference in the efficiency of orientational effects of pulsed and cw light radiation on the other NLC samples studied is explained by the change of the intermolecular interaction at the two-photon absorption of pulsed radiation.

## 1. ВВЕДЕНИЕ

Жидкие кристаллы (ЖК) характеризуются чрезвычайно большой восприимчивостью к воздействию внешних световых полей. Так, под действием слабо сфокусированных пучков (диаметр перетяжки  $w \approx 50$  мкм) непрерывных лазеров эффективная (на десятки градусов) переориентация директора (единичного вектора, характеризующего направление преимущественной ориентации молекул ЖК) в толстых (толщина  $L \approx 100$  мкм) прозрачных нематических жидких кристаллах (НЖК) достигается при значениях мощности пучка  $P \approx 50$  мВт, т.е. при плотности мощности  $S \approx 10^2 - 10^3$  Вт/см<sup>2</sup> [1]. Ориентационная оптическая нелинейность НЖК на девять порядков превышает керровскую нелинейность обычных жидкостей [2]. Ориентирующее влияние непрерывного излучения на прозрачные НЖК сводится к прямому воздействию электрического поля  $E$  световой волны на индуцированные им молекулярные диполи. В поглощающих НЖК (например, содержащих молекулы красителей) проявляется также принципиально иной механизм светоиндуцированной переориентации директора, обусловленный изменением характера межмолекулярного взаимодействия при поглощении частью молекул световых квантов [3-6].

Сейчас хорошо известно, что светоиндуцированная переориентация директора НЖК происходит и в поле импульсного излучения. Так, в [7] под действием импульсов длительностью  $\tau_p = 4$  мс, следующих с частотой повторения  $f = 77$  Гц (плотность мощности в импульсе  $S_p = 300$  Вт/см<sup>2</sup>), наблюдались все характерные черты перехода Фредерикса в НЖК. Аналогичный результат наблюдался в [7] и в поле наносекундных импульсов с  $\tau_p = 12$  нс ( $f = 12.5$  Гц). В этой работе был также проведен теоретический анализ воздействия на директор НЖК последовательности световых импульсов; при этом, однако, инерция директора не учитывалась. В [8] наносекундный лазерный импульс ( $\tau_p = 6$  нс,  $S_p \sim 10^8$  Вт/см<sup>2</sup>) вызывал развивавшуюся без задержки переориентацию директора НЖК; результаты были объяснены с помощью теории Эриксона-Лесли при учете только прямого ориентирующего воздействия светового поля.

В то же время, в экспериментах выяснилось, что при воздействии на НЖК световых импульсов с большой плотностью мощности  $S$  характер светоиндуцированных ориентационных эффектов может существенно усложняться, а эффективность светоиндуцированной переориентации значительно возрастать. Например, в [9], при значениях плотности мощности лазерного импульса, сравнимых с использованными в [8] ( $\tau_p = 20$  нс,  $S_p \sim 10^8$  Вт/см<sup>2</sup>), наблюдалось формирование абберационной картины с числом колец  $N = 5$ , что соответствовало нелинейному набегу фазы  $S_{NL} = 10\pi$ , на два порядка превышающему величину  $S_{NL} = 0.3$ , зарегистрированную в [8].

Большой нелинейный набег фазы ( $S_{NL} \sim 20 \pi$ ) в поле наносекундных импульсов ( $S_p \sim 10^9 \text{ Вт/см}^2$ ,  $\tau_p = 6 - 9 \text{ нс}$ ,  $f = 2 - 10 \text{ Гц}$ ) наблюдался и в [10], причем эффект был пороговым по импульсной мощности излучения и частоте повторения импульсов, но не по средней мощности. Переориентация директора под действием пикосекундных импульсов [11, 12] происходила с задержкой. Например, в [11] ( $\tau_p = 80 \text{ пс}$ ,  $S_p \sim 10^9 \text{ Вт/см}^2$ ) переориентация директора развивалась в течение времени  $\sim 10 \text{ нс}$ , а время релаксации составляло  $\sim 10 \text{ мс}$ . Такая значительная инерционность переориентации директора свидетельствовала о том, что она не связана с прямым ориентирующим воздействием светового поля. Результаты, полученные для пикосекундных импульсов, объяснялись воздействием на директор ЖК светоиндуцированных напряжений, изменений плотности, и гидродинамических течений.

Особый интерес представляет исследование ориентационного взаимодействия ЖК с фемтосекундными импульсами, поскольку их длительность находится в одном диапазоне с характерным временем инерции директора, которое простым образом связано с до сих пор не измеренным фундаментальным параметром ЖК - моментом инерции для директора [8, 12, 13]. Далее, ориентационные эффекты обязательно необходимо учитывать при использовании фемтосекундных импульсов для исследования электронных нелинейностей [14], т.к. даже небольшая переориентация директора ЖК сильно влияет на выполнение условий синхронизма. Кроме того, в сильных полях фемтосекундных импульсов можно ожидать проявления ориентационных эффектов, связанных с многофотонным поглощением.

Ориентационное взаимодействие с ЖК фемтосекундных импульсов ранее наблюдалось в [15, 16]. В [15] светоиндуцированная переориентация директора в поле последовательности импульсов использовалась для создания спиральной структуры, обеспечивающей синхронную генерацию третьей гармоники. Первое количественное исследование светоиндуцированной переориентации приведено в кратком сообщении [16]. В этой работе было установлено, что взаимодействие последовательности фемтосекундных импульсов с прозрачной нематической матрицей имеет ориентационный характер, причем величина нелинейного отклика на фемтосекундное излучение близка к величине отклика на непрерывное излучение (при равенстве средней плотности мощности непрерывного и импульсного излучений).

В настоящей работе проводится подробное исследование ориентационного взаимодействия ряда ЖК - как чистых нематических матриц, так и матрицы, легированной красителем - с фемтосекундным лазерным излучением.

## 2. ТЕОРЕТИЧЕСКОЕ РАССМОТРЕНИЕ ОРИЕНТАЦИОННОГО ВЗАИМОДЕЙСТВИЯ НЖК С ФЕМТОСЕКУНДНЫМИ ИМПУЛЬСАМИ

Рассмотрим светоиндуцированную переориентацию директора прозрачного НЖК в поле фемтосекундных лазерных импульсов, учитывая влияние инерции директора. Исходим из уравнения движения директора НЖК  $\mathbf{n}$  [13]

$$\rho_1 \frac{d}{dt} \left[ \mathbf{n} \times \frac{d\mathbf{n}}{dt} \right] = [\mathbf{n} \times \mathbf{h}] - \Gamma_v, \quad (1)$$

где  $\mathbf{h}$  - молекулярное поле,  $\Gamma_v$  - момент трения,  $\rho_1$  - момент инерции для директора. В одноконстантном приближении в пренебрежении обратным потоком

$$\mathbf{h} = K\Delta\mathbf{n} + \Delta\varepsilon\mathbf{E}(\mathbf{nE}), \quad (2)$$

$$\Gamma_v = \gamma_1 \left[ \mathbf{n} \times \frac{d\mathbf{n}}{dt} \right], \quad (3)$$

где  $\gamma_1$  - коэффициент трения директора,  $K$  - упругая постоянная Франка,  $\mathbf{E}$  - внешнее электрическое поле (поле световой волны),  $\Delta\varepsilon$  - анизотропия диэлектрической проницаемости (на световой частоте).

Рассмотрим случай гомеотропно ориентированного НЖК (невозмущенный директор перпендикулярен стенкам кристалла), на который наклонно падает линейно поляризованный световой импульс (рис. 1). Выразим компоненты директора через угол  $\psi(y, t)$  его поворота относительно оси  $Y$

$$n_x = \sin \psi, \quad n_y = \cos \psi, \quad (4)$$

а электрическое поле световой волны - через медленно меняющуюся комплексную амплитуду  $A(y, t)$

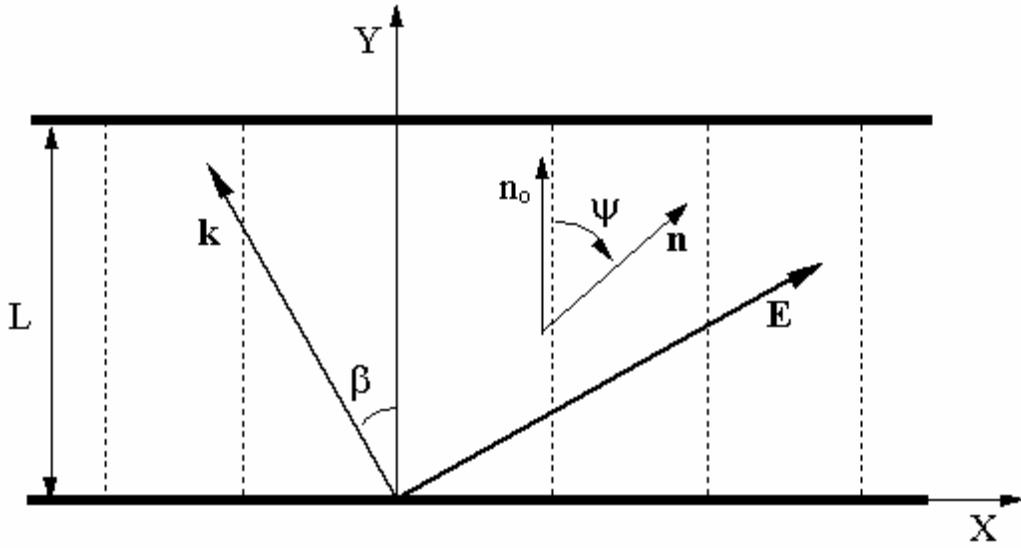


Рис.1. Геометрия светоиндуцированной переориентации директора в гомеотропно ориентированном НЖК:  $\mathbf{E}$  и  $\mathbf{k}$  - электрическое поле и волновой вектор световой волны,  $\mathbf{n}_0$  - невозмущенный директор,  $\mathbf{n}$  - директор, повернутый световым полем,  $L$  - толщина кристалла.

$$\mathbf{E} = \frac{\mathbf{e}A \exp(i\mathbf{k}\mathbf{r} - \omega t) + \text{к.с.}}{2}, \quad (5)$$

где  $\mathbf{k}$ ,  $\omega$ , и  $\mathbf{e}(\cos\beta, \sin\beta)$  - волновой вектор, частота и единичный вектор поляризации световой волны, соответственно. Подставляя (2) - (5) в (1) и вводя безразмерные координату  $\eta = \pi y / L$  и время  $\tau = t / \tau_0$  ( $\tau_0 = \gamma_1 L^2 / \pi^2 K$  - характерное время релаксации деформации поля директора) получаем дифференциальное уравнение в частных производных

$$\mu \psi_{\tau\tau} + \psi_{\tau} = \psi_{\eta\eta} + \delta \sin(\psi + \beta) \cos(\psi + \beta), \quad (6)$$

где  $\mu = \tau_1 / \tau_0$ ,  $\delta(\eta, \tau) = \frac{\Delta\epsilon |A|^2 L^2}{8\pi K \pi^2}$ ,  $\tau_1 = \rho_1 / \gamma_1$ .

Приведем оценки характерных времен, входящих в уравнение (6). Для времени  $\tau_0$ , характеризующего релаксацию деформации поля директора, при типичных значениях материальных параметров  $\gamma_1 \sim 0.1 - 1 \text{ Г/см} \cdot \text{с}$  и  $K \sim 10^{-6} - 10^{-7} \text{ дин}$  [13] и толщине кристалла  $L = 100 \text{ мкм}$  получаем  $\tau_0 = \gamma_1 L^2 / \pi^2 K \sim 1 - 100 \text{ с}$ . Для оценки времени инерции директора  $\tau_1 = \rho_1 / \gamma_1$  (времени, в течение которого устанавливается скорость вращения директора) необходимо знать момент инерции  $\rho_1$ . Однако, насколько нам известно,  $\rho_1$  до сих пор не измерен и в литературе нет единой точки зрения о величине этого параметра: например, в [8] приведено значение  $\rho_1 \sim 10^{-12} \text{ Г/см}$ , в [12] -

$\rho_I \sim 10^{-15}$  Г/см. Первое значение соответствует моменту инерции группы молекул с характерной корреляционной длиной  $l_c \sim 100$  Å, второе значение - моменту инерции отдельной молекулы. Соответствующие оценки дают  $\tau_I \sim 1-10$  пс и  $\tau_I \sim 1-10$  фс. Отметим также, что в условиях нашего эксперимента время воздействия фемтосекундного импульса  $\tau_{\text{eff}} = \tau_p + \frac{Ln}{c \cos \beta}$

( $n$  - показатель преломления НЖК) на НЖК может в несколько раз превышать длительность импульса  $\tau_p$ . Для  $\tau_p = 100$  фс,  $L = 100$  мкм,  $n = 1.5$  и  $\beta = 20^\circ$  (значения, характерные для описываемого ниже эксперимента) величина  $\tau_{\text{eff}} = 630$  фс. Приведенные оценки показывают, следовательно, что длительность фемтосекундных импульсов и время их непосредственного воздействия на НЖК попадают в диапазон возможных значений времени инерции директора в условиях проведенного эксперимента.

Ограничиваясь низшей пространственной гармоникой  $\psi(\eta) = \psi_m \sin \eta$  угла поворота директора сведем (6) к обыкновенному дифференциальному уравнению

$$\mu \ddot{\psi}_m + \dot{\psi}_m = -\psi_m + F(\psi_m, \tau) \quad (7)$$

где

$$F(\psi_m, \tau) + \frac{1}{\pi} (g_s(\psi_m, \tau) \cos 2\beta + g_c(\psi_m, \tau) \sin 2\beta), \quad (8)$$

$$g_s(\psi_m, \tau) = \int_0^\pi \delta(\eta, \tau) \sin(2\psi_m \sin \eta) \sin \eta d\eta, \quad (9)$$

$$g_c(\psi_m, \tau) = \int_0^\pi \delta(\eta, \tau) \cos(2\psi_m \sin \eta) \sin \eta d\eta. \quad (10)$$

В частном случае непрерывного излучения ( $\delta = \delta_0 = \text{const.}$ ) уравнение (7) упрощается

$$\mu \ddot{\psi}_m + \dot{\psi}_m = -\psi_m + \delta_0 [J_1(2\psi_m) \cos 2\beta + E_1(2\psi_m) \sin 2\beta] \quad (11)$$

( $J_1(2\psi_m)$  и  $E_1(2\psi_m)$  - функции Бесселя и Вебера, соответственно). Уравнение (11) можно решить методом возмущений. Полагая

$$\psi_m(\tau) = \psi_{m0} + \delta\psi_m(\tau), \quad (12)$$

где  $\psi_{m0} = \text{const}$  и  $\delta\psi_m(\tau) \ll \psi_{m0}$ , находим

$$\mu\delta\ddot{\psi}_m + \delta\dot{\psi}_m = -\psi_{m0} + F(\psi_{m0}, \tau). \quad (13)$$

Решение (13) с начальными условиями

$$\delta\psi_m(0) = \delta\psi_{m0}, \quad (14)$$

$$\delta\dot{\psi}_m(0) = \delta\dot{\psi}_{m0}, \quad (15)$$

имеет вид

$$\begin{aligned} \delta\psi_m(\tau) = & \delta\psi_{m0} + \mu\delta\dot{\psi}_{m0}(1 - e^{-\tau/\mu}) + \mu\psi_{m0}(1 - e^{-\tau/\mu}) - \psi_{m0}\tau + \\ & + \int_0^\tau F(\psi_{m0}, \tau')d\tau' - e^{-\tau/\mu} \int_0^\tau e^{\tau'/\mu} F(\psi_{m0}, \tau')d\tau', \end{aligned} \quad (16)$$

причем

$$\delta\dot{\psi}_m(\tau) = -\psi_{m0}(1 - e^{-\tau/\mu}) + \delta\dot{\psi}_{m0}e^{-\tau/\mu} + \frac{1}{\mu}e^{-\tau/\mu} \int_0^\tau e^{\tau'/\mu} F(\psi_{m0}, \tau')d\tau'. \quad (17)$$

Найдем теперь углы поворота директора, устанавливающиеся в непрерывном и импульсном световых полях.

В случае непрерывного излучения угол поворота директора  $\psi_{m0}$  после начала облучения увеличивается и асимптотически стремится к некоторому стационарному значению  $\psi_{m0}^S(\delta_0)$ , определяемому соотношением

$$\psi_{m0}^S = \delta_0[J_1(2\psi_m) \cos 2\beta + E_1(2\psi_m) \sin 2\beta], \quad (18)$$

непосредственно следующим из (11).

В случае воздействия на НЖК последовательности световых импульсов, стационарная амплитуда  $\psi_{m0}^S$ , строго говоря, не существует. Однако если движение директора является периодическим (к началу каждого последующего импульса директор возвращается к одной и той же ориентации), то, учитывая малость изменения угла поворота директора  $\delta\psi_m(\tau)$  при таком движении, можно определить стационарную амплитуду поворота директора как любое из периодически повторяющихся значений угла поворота директора. В дальнейшем, для определенности, в качестве  $\psi_{m0}^S$  выберем угол поворота директора непосредственно перед началом каждого последующего светового импульса.

Пусть временной интервал между импульсами равен  $T_0$  (безразмерное значение  $T = T_0 / \tau_0$ ), а момент времени  $\tau = 0$  соответствует началу светового импульса (при этом полагаем  $\delta\psi_m(0) = 0$  и  $\delta\dot{\psi}_m(0) = \delta\dot{\psi}_{m0}$ ). Условия периодичности функции  $\delta\psi_m(\tau)$

$$\delta\psi_m(0) = \delta\psi_m(T) = 0, \quad (19)$$

$$\delta\dot{\psi}_m(0) = \delta\dot{\psi}_m(T) = \delta\dot{\psi}_{m0}, \quad (20)$$



согласно (16) и (17) имеют вид

$$-\psi_m^S \tau + \int_0^T F(\psi_m^S, \tau') d\tau' + \mu(\delta\psi_{m0} + \psi_m^S)(1 - e^{-T/\mu}) - e^{-T/\mu} \int_0^T e^{\tau'/\mu} F(\psi_{m0}, \tau') d\tau' = 0 \quad (21)$$

$$\delta\psi_{m0} e^{-\tau/\mu} - \psi_m^S (1 - e^{-\tau/\mu}) + \frac{1}{\mu} e^{-\tau/\mu} \int_0^T e^{\tau'/\mu} F(\psi_{m0}, \tau') d\tau' = \delta\psi_{m0}, \quad (22)$$

где  $\psi_m^S$  - стационарная амплитуда. Исключая из (21) и (22) величину  $\delta\psi_{m0}$  приходим к уравнению для стационарной амплитуды в импульсном поле

$$-\psi_m^S T + \int_0^T F(\psi_m^S, \tau') d\tau' = 0. \quad (23)$$

Предположим для простоты (и это соответствует условиям наших измерений), что временной интервал между импульсами  $T$  превышает время воздействия импульса на НЖК  $\tau_{\text{eff}}$ . Тогда, для светового импульса произвольной формы (характеризуемой функцией  $p$ )

$$\delta(\tau, \eta) = p\left(\tau - \frac{Ln}{c\tau_0 \cos\beta}\right) \quad (24)$$

из (23) непосредственно следует

$$\psi_m^S = \bar{\delta} [J_1(2\psi_m) \cos 2\beta + E_1(2\psi_m) \sin 2\beta], \quad (25)$$

где  $\bar{\delta} = \bar{p} = \frac{E}{T}$  - средняя плотность мощности импульсного излучения,

$E = \int_0^{\tau_p} p(\tau') d\tau'$  безразмерная энергия импульса.

Из уравнений (18) и (25) следует, что стационарная амплитуда в поле световых импульсов определяется только средней плотностью мощности светового излучения  $\bar{\delta}$  и совпадает со стационарной амплитудой в поле непрерывного излучения с плотностью мощности  $\delta_0 = \bar{\delta}$ . Таким образом, инерция директора не влияет на стационарную амплитуду.

Заметим, однако, что динамика переориентации существенно зависит от инерции директора: при  $\tau_p \leq \tau_1$  отклик директора задержан во времени относительно светового импульса. Для иллюстрации рассмотрим воздействие на НЖК светового импульса при  $\tau_{\text{eff}} \ll \tau_1$ . Решение (13) с начальными условиями

$$\delta\psi_m(0) = 0, \quad (26)$$

$$\delta\dot{\psi}_m(0) = 0 \quad (27)$$

имеет вид

$$\begin{aligned} \delta\psi_m(\tau) = & \mu\psi_{m0}(1 - e^{-\tau/\mu}) - \psi_{m0}\tau + \int_0^\tau F(\psi_{m0}, \tau')d\tau' \\ & - e^{-\tau/\mu} \int_0^\tau e^{\tau'/\mu} F(\psi_{m0}, \tau')d\tau'. \end{aligned} \quad (28)$$

При  $\tau > \tau_{\text{eff}}/\tau_0$ , учитывая неравенство  $\tau_{\text{eff}} \ll \tau_1$ , можно, с точностью до членов  $\sim \mu$ , представить решение в виде

$$\delta\psi_m(\tau) = -\psi_{m0}\tau + (1 - e^{-\tau/\mu}) \int_0^\tau F(\psi_{m0}, \tau')d\tau'. \quad (29)$$

Сравнивая это выражение с решением уравнения (13) в безинерционном случае ( $\tau_1 = 0$ )

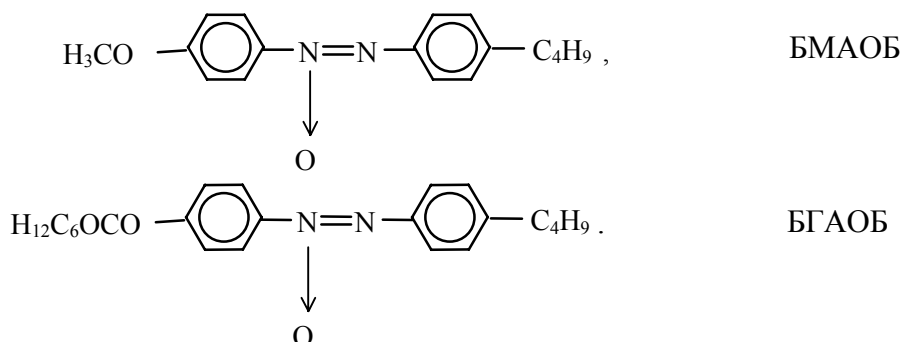
$$\delta\psi_m(\tau) = -\psi_{m0}\tau + \int_0^\tau F(\psi_{m0}, \tau')d\tau'. \quad (30)$$

мы видим, что при учете инерции директора его поворот, обусловленный импульсным воздействием светового поля, развивается в течение временного интервала  $\Delta\tau \sim \frac{1}{\mu}$ , в отличие от безинерционного случая, когда светоиндуцированный поворот происходит только во время действия импульса.

### 3. УСЛОВИЯ И МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТА

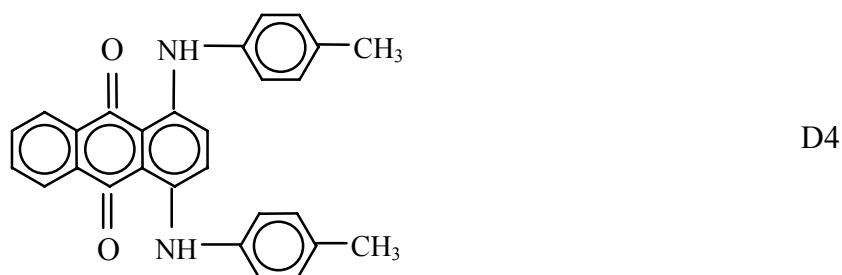
#### 3.1. Образцы НЖК.

Исследования проводились с гомеотропно ориентированными образцами нематических матриц E63, “смесь А” и матрицы E63, легированной 0.15% (по весу) антрахинонового красителя D4. Матрица E63 представляет собой смесь бифенилов и фенилциклогексанов [17]. “Смесь А” состоит из двух азоксисоединений [18]:



Для матрицы E63 показатели преломления необыкновенной и обыкновенной волн равны  $n_e = \sqrt{\epsilon_{\parallel}} = 1.744$  и  $n_o = \sqrt{\epsilon_{\perp}} = 1.517$  (589 нм,  $t = 20^{\circ}\text{C}$ ); для “смеси А” -  $n_e = \sqrt{\epsilon_{\parallel}} = 1.784$  и  $n_o = \sqrt{\epsilon_{\perp}} = 1.540$  (589 нм,  $t = 25^{\circ}\text{C}$ ).

Структурная формула антрахинонового красителя имеет вид



Максимум поглощения этого красителя соответствует длине волны  $\lambda_{\text{max}} \approx 650$  нм. Присутствие этого красителя в нематической матрице может вызывать переориентацию директора, обусловленную возбуждением ее молекул [19]. Эта переориентация противоположна по направлению переориентации, обусловленной воздействием света на индуцированные диполи.

Стекла жидкокристаллических ячеек были покрыты с внутренней стороны прозрачным проводящим слоем  $\text{SnO}_2$ , что позволяло прикладывать к кристаллу электрическое поле. Гомеотропная ориентация образцов достигалась с помощью ориентанта стеарилхлорид хрома. Толщина всех исследовавшихся образцов составляла 100 мкм.

### 3.2. Экспериментальная установка.

Схема экспериментальной установки показана на рис. 2.

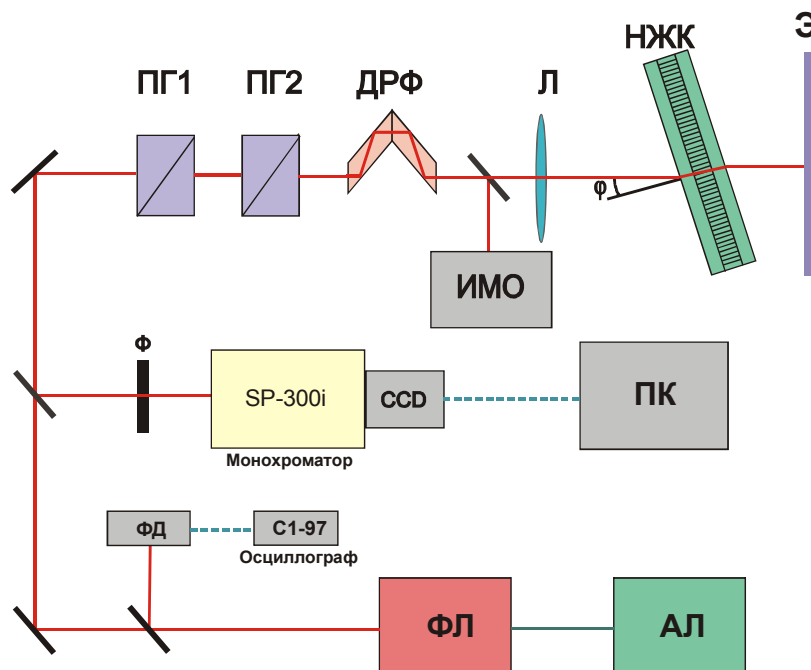


Рис.2. Схема экспериментальной установки: АЛ - аргоновый лазер Innova 310; ФЛ - фемтосекундный лазер на кристалле  $Ti^{3+}:Al_2O_3$ ; ПГ1, ПГ2 - поляризационные призмы Глана-Тейлора; ДРФ - двойной ромб Френеля; Л - линза; НЖК - нематический жидкий кристалл; Э – экран; ФД - лавинный фотодиод; Ф - фильтр; CCD - цифровая камера; ПК - персональный компьютер; ИМО - измеритель мощности.

Источником фемтосекундных лазерных импульсов был перестраиваемый твердотельный лазер ФЛ (TiSSA 100-AVESTA) на кристалле сапфира, легированного ионами титана ( $Ti^{3+}:Al_2O_3$ ). Его накачка осуществлялась всеми линиями генерации  $Ag^+$ -лазера (АЛ) Innova 310 (Coherent Inc.) мощностью 4 Вт. Параметры лазерного излучения: длина волны  $\lambda = 767 - 780$  нм, максимальная средняя мощность генерации  $P = 250$  мВт. Лазер мог излучать непрерывное излучение или последовательность импульсов длительностью 100 фс с частотой следования 100 МГц и шириной спектра импульса 11 нм.

В экспериментальной схеме предусмотрены элементы для измерения и контроля энергетических и спектральных характеристик излучения. Для регистрации спектра излучения использовался монохроматор SP-300i и цифровая камера CCD (VersArray 2048B, Roper Scientific Inc.) с компьютером ПК. Для контроля режимов работы лазера использовался лавинный фотодиод ФД, подключенный к быстрому осциллографу С1-97. Для выделения линейной поляризации и плавного изменения энергии излучения применялась

комбинация двух призм Глана-Тейлора (ПГ1 и ПГ2). Направление линейной поляризации излучения могло изменяться при помощи двойного ромба Френеля (ДРФ). В схеме предусмотрена возможность изменения и контроля угла падения  $\alpha$  лазерного излучения на образец.

Мощность излучения определялась с помощью измерителя мощности ИМО (FIELDMASTER, Coherent Inc.). Линза Л ( $f = 20$  см) фокусировала излучение на образец НЖК. Диаметр перетяжки составлял 100 мкм. Изменения, происходящие со световым пучком, прошедшим через образец НЖК, наблюдались на экране Э, установленном за образцом на расстоянии 260 мм перпендикулярно пучку.

### 3.3. Методика эксперимента.

Исследование светоиндуцированной переориентации директора осуществлялось с помощью эффекта самовоздействия светового пучка [20, 21]. Поясним это подробнее. Световой пучок, проходя через кристалл, вызывает неоднородную по своему сечению переориентацию директора, приводящую к изменению показателя преломления; другими словами, в кристалле происходит формирование нелинейной линзы. Последняя вызывает ответное воздействие среды на световой пучок. Если линза положительна (это соответствует увеличению показателя преломления при повороте директора к световому полю), то самовоздействие проявляется в виде самофокусировки; если линза отрицательна (показатель преломления уменьшается из-за поворота директора от светового поля) то имеет место дефокусировка. При достаточно большом изменении показателя преломления расходимость пучка в дальней зоне дифракции резко возрастает, а в его поперечном сечении формируется система колец (абберационная картина), число которых  $N$  простым образом связано с нелинейным набегом фазы  $S_{NL}$ :

$$N = \frac{S_{NL}}{2\pi}. \quad (31)$$

Знак светоиндуцированного изменения показателя преломления (т.е. направление поворота директора) можно определить по характеру изменения абберационной картины при небольшом (порядка величины перетяжки) и быстром сдвиге кристалла поперек светового пучка [22]. Например, при сдвиге кристалла вверх увеличение интенсивности верхней части абберационной картины и уменьшение интенсивности нижней части соответствует самофокусировке; обратное соотношение между изменениями интенсивности соответствует дефокусировке (этот эффект перераспределения интенсивности в абберационной картине в какой-то степени аналогичен отклонению светового луча, первоначально проходившего через центр обычной линзы, при ее смещении вверх: для положительной (фокусирующей) линзы луч отклоняется вверх, а для отрицательной - вниз).

Установим связь угла переориентации директора с числом абберационных колец самофокусировки. В декартовой системе координат XY, показанной на рис. 1,

$$S_{NL} = \frac{2\pi}{\lambda \cos \beta} \int_0^L \Delta n(y) dy, \quad (32)$$

где  $\Delta n(y)$ - светоиндуцированное изменение показателя преломления необыкновенной волны, равное

$$\Delta n(y) = \frac{\sqrt{\varepsilon_{\perp} \varepsilon_{\parallel}}}{\sqrt{\varepsilon_{\perp} \sin^2(\beta + \psi) + \varepsilon_{\parallel} \cos^2(\beta + \psi)}} - \frac{\sqrt{\varepsilon_{\perp} \varepsilon_{\parallel}}}{\sqrt{\varepsilon_{\perp} \sin^2 \beta + \varepsilon_{\parallel} \cos^2 \beta}}, \quad (33)$$

где  $\beta$  - угол преломления световой волны, связанный с углом падения  $\alpha$  законом Снеллиуса, а  $\psi$  - угол светоиндуцированного поворота директора. Аппроксимируя зависимость (33) более простой функцией

$$\Delta n(y) = (\sqrt{\varepsilon_{\parallel}} - \sqrt{\varepsilon_{\perp}})(\sin^2(\beta + \psi) - \sin^2 \beta) \quad (34)$$

и ограничиваясь низшей пространственной гармоникой угла поворота директора

$$\psi(y) = \psi_m \sin(\pi y / L) \quad (35)$$

получаем

$$N = \frac{\delta n L}{2\lambda \cos \beta} [(1 - J_0(2\psi_m)) \cos 2\beta - E_0(2\psi_m) \sin 2\beta], \quad (36)$$

где  $\delta n(y) = (\sqrt{\varepsilon_{\parallel}} - \sqrt{\varepsilon_{\perp}})$ ,  $J_0(2\psi_m)$  - функция Бесселя нулевого порядка, а  $E_0(2\psi_m)$  - функция Вебера нулевого порядка.

Таким образом, наблюдение абберационной картины ориентационного самовоздействия светового пучка позволяет исследовать направление и величину переориентации директора.

#### 4. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

При падении на НЖК горизонтально поляризованного фемтосекундного излучения (такое излучение возбуждает в НЖК е-волну, т.е. волну, поляризованную в плоскости падения) под некоторым углом  $\alpha$ , на экране наблюдается интерференционная картина, которая имеет динамический

характер. В течение времени  $t \sim 1$  с (в общем случае это время зависит от мощности падающего излучения) наблюдается неизменная структура пучка, затем пучок, прошедший через НЖК, уширяется, и в его поперечном сечении возникает абберрационная картина, состоящая из четких концентрических чередующихся темных и светлых колец. Через некоторое время после начала освещения  $T_{\text{est}} \sim 5 - 10$  с, зависящее также от мощности падающего излучения, устанавливается стационарное число колец  $N$ . Это число зависит от мощности светового пучка, направления распространения световой волны и толщины кристалла.

При резком уменьшении мощности светового пучка примерно в 5 раз абберрационная картина «стягивается» к центру за время релаксации  $T_{\text{рел}} \sim 5$  с. При быстром увеличении мощности до первоначального значения картина восстанавливалась за время большее, чем  $T_{\text{рел}}$ . Этот результат свидетельствует об ориентационной природе светоиндуцированного показателя преломления. Если бы самовоздействие светового пучка носило тепловой характер (т.е. показатель преломления НЖК изменялся бы из-за нагрева кристалла), то времена установления и релаксации и установления абберрационной картины не превышали бы  $10^{-2}$  с [23].

Для подтверждения ориентационной природы эффекта была экспериментально исследована зависимость числа колец абберрационной картины от напряжения приложенного к образцу НЖК переменного электрического поля. Наблюдаемая картина полностью исчезает при достаточно большом напряжении приложенного поля ( $U \sim 10$  В).

Для определения знака самовоздействия образец НЖК быстро сдвигался в вертикальном направлении поперек светового пучка на расстояние порядка величины перетяжки. При этом наблюдалось увеличение интенсивности в верхней части абберрационной картины, и уменьшение интенсивности в ее нижней части, что соответствует самофокусировке излучения (характерный вид наблюдаемой картины для гомеотропно ориентированной матрицы Е63 представлен на рис. 3). Восстановление первоначальной симметричной формы абберрационной картины происходило через время порядка нескольких секунд, что также подтверждает ориентационный механизм нелинейности.

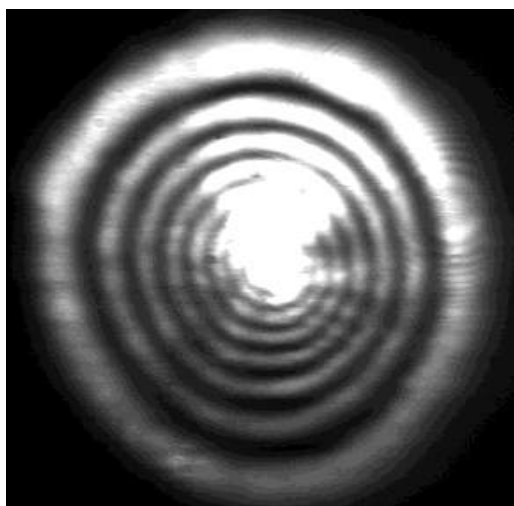


Рис.3. Характерный вид абберационной картины, полученной при небольшом (порядка величины перетяжки) и быстром сдвиге образца нематической матрицы E63 вверх поперек светового пучка (случай самофокусировки).

Для сравнения воздействия последовательности фемтосекундных лазерных импульсов и непрерывного излучения на образцы НЖК была исследована зависимость числа колец абберационной картины от мощности падающего излучения в импульсном и непрерывном режимах работы лазера. Средняя мощность падающего излучения изменялась в диапазоне от 0 до 250 мВт.

Экспериментальные зависимости числа абберационных колец  $N$  от мощности фемтосекундного и непрерывного излучений для гомеотропно ориентированных нематической матрицы E63, матрицы E63, легированной красителем D4, и “смеси А” представлены, соответственно, на рис. 4, 5 и 6.

Углы поворота директора, рассчитанные для этих образцов с помощью соотношения (6), представлены на рис. 7 - 9.



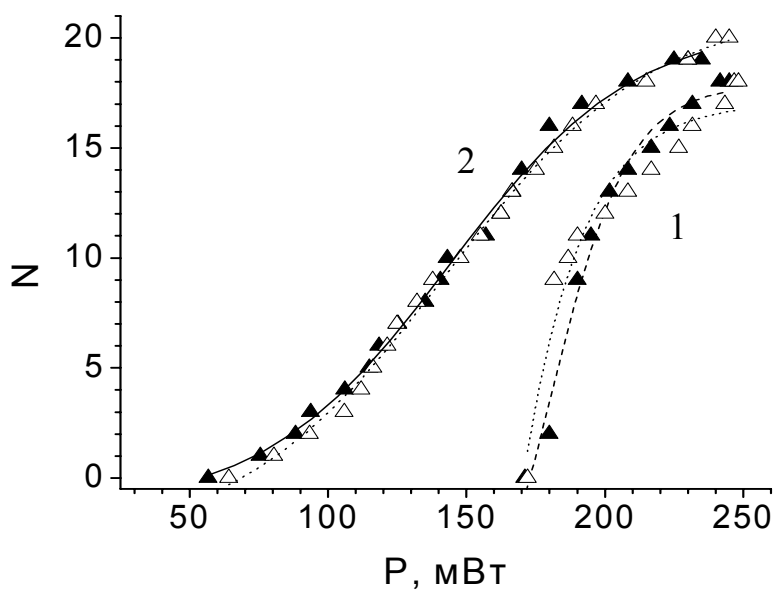


Рис.4. Экспериментальные зависимости числа абберационных колец  $N$  от мощности светового пучка ( $\lambda = 773$  нм;  $\blacktriangle$  - непрерывное излучение,  $\triangle$  - фемтосекундные импульсы) для нематической матрицы E63: 1 - нормальное падение, 2 - наклонное падение под углом  $\alpha = 15^\circ$

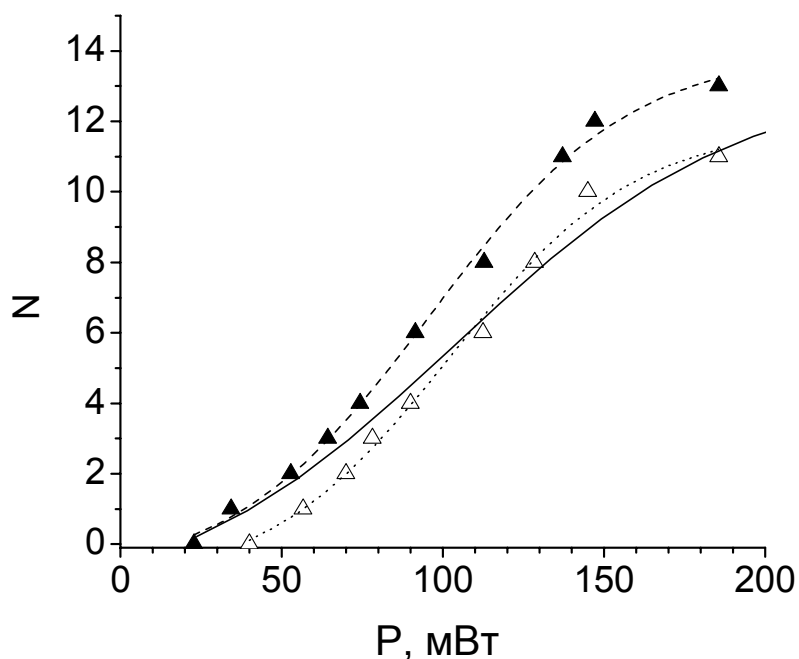


Рис.5. Экспериментальные зависимости числа абберационных колец  $N$  от мощности светового пучка ( $\lambda = 773$  нм;  $\blacktriangle$  - непрерывное излучение,  $\triangle$  - фемтосекундные импульсы) для НЖК E63+0.15% D4 при наклонном падении под углом  $\alpha = 25^\circ$ . Сплошная линия - расчет с учетом двухфотонного поглощения при  $\kappa = -0.23$ .

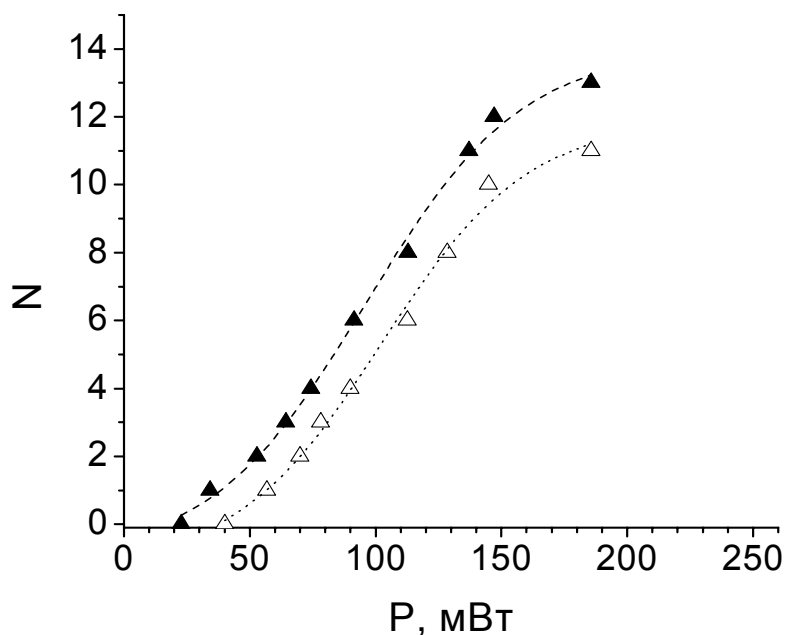


Рис.6. Экспериментальные зависимости числа абберационных колец  $N$  от мощности светового пучка ( $\lambda = 773$  нм;  $\blacktriangle$  - непрерывное излучение,  $\triangle$  - фемтосекундные импульсы) для нематической матрицы “смесь А”: при наклонном падении под углом  $\alpha = 25^\circ$ .

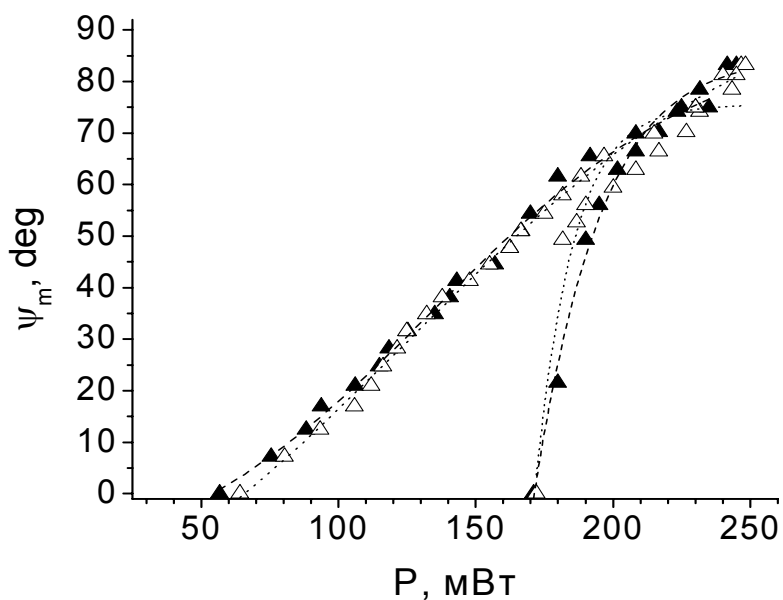


Рис.7. Рассчитанные значения углов светоиндуцированного поворота директора  $\psi_m$  в зависимости от мощности светового пучка ( $\lambda = 773$  нм;  $\blacktriangle$  - непрерывное излучение,  $\triangle$  - фемтосекундные импульсы) для нематической матрицы E63: 1 - нормальное падение, 2 - наклонное падение под углом  $\alpha = 15^\circ$ .

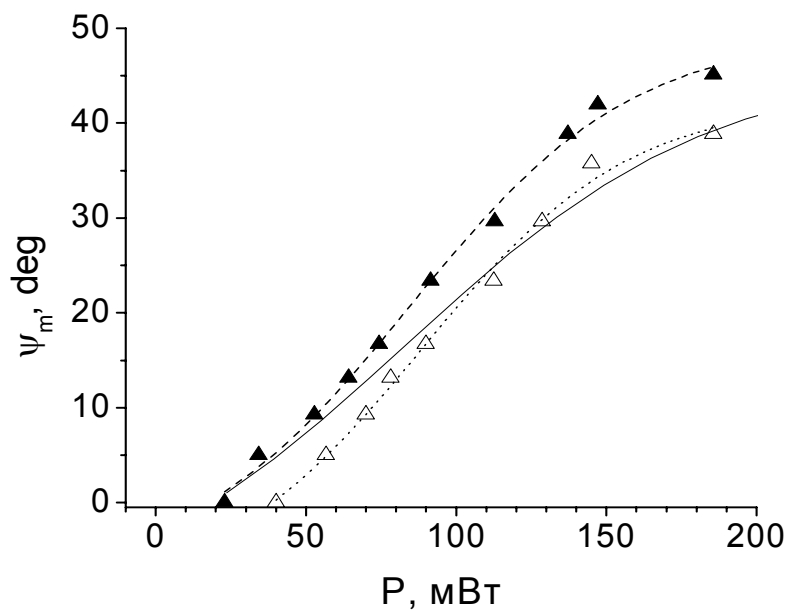


Рис.8. Рассчитанные значения углов светоиндуцированного поворота директора  $\psi_m$  в зависимости от мощности светового пучка ( $\lambda = 773$  нм;  $\blacktriangle$  - непрерывное излучение,  $\triangle$  - фемтосекундные импульсы) для НЖК E63+0.15% D4 при наклонном падении под углом  $\alpha = 25^\circ$ . Сплошная линия - результат теоретического расчета при  $\kappa = -0.23$ .

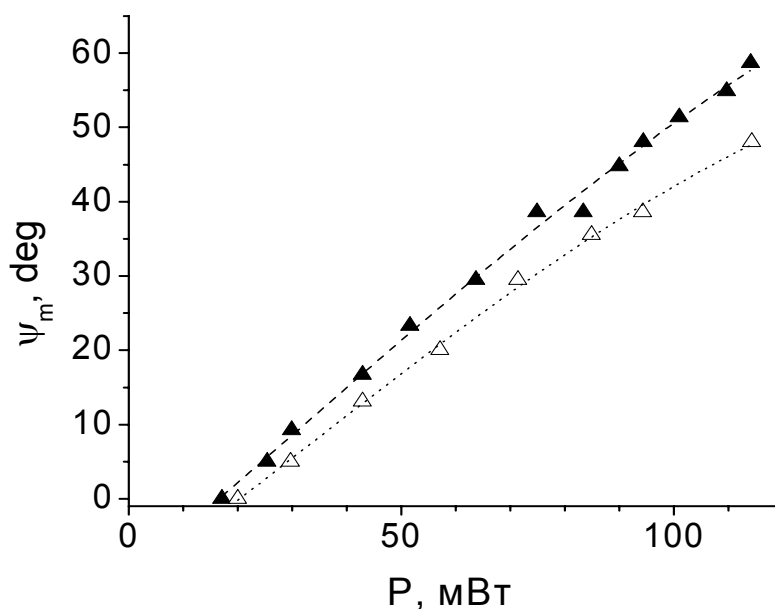


Рис.9. Рассчитанные значения углов светоиндуцированного поворота директора  $\psi_m$  в зависимости от мощности светового пучка ( $\lambda = 773$  нм;  $\blacktriangle$  - непрерывное излучение,  $\triangle$  - фемтосекундные импульсы) для нематической матрицы "смесь А" при наклонном падении под углом  $\alpha = 25^\circ$ .

## 5. ОБСУЖДЕНИЕ ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫХ РЕЗУЛЬТАТОВ

### *5.1. Взаимодействие света с гомеотропно ориентированной нематической матрицей E63.*

Для чистой матрицы E63 результаты расчета стационарной амплитуды соответствуют экспериментальным: при одинаковых значениях средней плотности мощности фемтосекундного излучения и плотности мощности непрерывного излучения наблюдалось практически совпадающее число абберационных колец в широком диапазоне изменения углов поворота директора (рис. 4 и 7).

Одинаковая эффективность воздействия на НЖК непрерывного и фемтосекундного излучений указывает также на отсутствие при облучении НЖК фемтосекундным излучением значительного влияния фотоупругих напряжений, течения и нагрева.

### *5.2. Взаимодействие света с гомеотропно ориентированной нематической матрицей E63, легированной антрахиноновым красителем D4.*

Для матрицы E63, легированной 0.15% антрахинонового красителя D4, в указанных выше условиях число абберационных колец и угол поворота директора в поле фемтосекундных импульсов были меньше, чем в поле непрерывного излучения (рис. 5 и 8). Обсудим причины этого различия.

Оно могло бы быть обусловлено ослаблением излучения в процессе его распространения в НЖК из-за двухфотонного поглощения. Однако поглощенная при этом мощность света должна была бы вызвать заметные тепловые эффекты (переход НЖК в изотропную фазу или изменение показателей преломления, обусловленное нагревом и характеризующееся короткими ( $< 0.1$  с) временами установления и релаксации). Однако в нашем эксперименте подобные эффекты не наблюдались.

Возможным объяснением наблюдаемого различия в воздействии фемтосекундных импульсов и непрерывного излучения на НЖК E63+0.15% D4 является возникновение дополнительного вращающего момента, связанного с изменением межмолекулярных сил при двухфотонном поглощении фемтосекундного излучения. Этот момент, противоположный по направлению моменту, обусловленному индуцированными диполями, приводит к уменьшению угла поворота директора и числа абберационных колец. Возможность существования возбужденных состояний молекул красителя D4 подтверждается результатами работ [19, 22], в которых наблюдалась отрицательная (перпендикулярно световому полю) переориентация директора при однофотонном поглощении света в зеленой и красной областях видимого диапазона.

Оценим величину сечения двухфотонного поглощения молекулы красителя D4, необходимую для заметного проявления этого эффекта. Для простоты, считаем, что поперечными (по отношению к длинным осям молекул нематической матрицы и красителя) флуктуационными и индуцированными дипольными моментами можно пренебречь. В этом случае, согласно [6], действующий на директор вращающий момент межмолекулярных сил, отнесенный к единице объема, равен

$$\Gamma_{\text{abs}} = c_d \zeta \int \frac{d\mathbf{l}^{(d)}}{4\pi} \sigma(\mathbf{l}^{(d)}) (\mathbf{n}\mathbf{l}^{(d)}) [\mathbf{n} \times \mathbf{l}^{(d)}], \quad (37)$$

где  $c_d$  - концентрация молекул красителя,  $\mathbf{l}^{(d)}$  - единичный вектор, параллельный оси молекулы красителя, а  $\sigma(\mathbf{l}^{(d)})$  - сечение поглощения света молекулой красителя с ориентацией  $\mathbf{l}^{(d)}$ ,  $\zeta$  - константа, зависящая от молекулярных параметров, парной корреляционной функции и частоты светового поля. Полное сечение поглощения света примем в виде

$$\sigma(\mathbf{l}^{(d)}) = \sigma^{(1)} (\mathbf{e}\mathbf{l}^{(d)})^2 + \sigma^{(2)} F (\mathbf{e}\mathbf{l}^{(d)})^4, \quad (38)$$

где  $F = \frac{S}{\hbar\omega}$  - плотность потока фотонов,  $S$  - плотность мощности световой волны (величина вектора Пойтинга), константы  $\sigma^{(1)}$  и  $\sigma^{(2)}$  относятся, соответственно, к одноквантовым и двухквантовым процессам. Подставляя (38) в (37) получаем

$$\Gamma_{\text{abs}} = \frac{\Delta\varepsilon_{\text{eff}}^{(1)} |\mathbf{A}|^2}{8\pi} (\mathbf{n}\mathbf{e}) [\mathbf{n} \times \mathbf{e}] + \frac{\Delta\varepsilon_{\text{eff}}^{(2)} |\mathbf{A}|^2}{8\pi} (\mathbf{n}\mathbf{e}) [\mathbf{n} \times \mathbf{e}], \quad (39)$$

где  $\Delta\varepsilon_{\text{eff}}^{(1)} = \frac{2}{15} c_d \zeta \sigma^{(1)}$  - рассчитанная в [6] эффективная оптическая анизотропия, описывающая вклад однофотонных процессов во вращающий момент, а  $\Delta\varepsilon_{\text{eff}}^{(2)} = \frac{4}{35} c_d \zeta \sigma^{(2)} F$  - аналогичное значение для двухфотонного поглощения.

Согласно [19], для смеси красителя D4 (0.5% по весу) и нематической матрицы E63 дихроизм поглощения (на длине волны  $\lambda \sim 650$  нм)  $\Delta\alpha \sim 100$  см<sup>-1</sup>, а отношение  $\eta = |\Delta\varepsilon_{\text{eff}}^{(1)} / \Delta\varepsilon| \sim 40$ . Константу  $\sigma^{(1)}$  по порядку величины можно оценить с помощью соотношения  $\sigma^{(1)} \sim \Delta\alpha / c_d$ , где  $c_d$  - концентрация молекул красителя. В свою очередь,  $c_d$  можно найти с помощью соотношения  $c_d = c_{\text{md}} N_A \rho_m / M_d$ , где  $c_{\text{md}}$  - весовая концентрация,  $\rho_m$  - плотность нематической матрицы,  $N_A$  - число Авогадро ( $N_A = 6.02 \cdot 10^{23}$  моль<sup>-1</sup>).

Молекулярная масса красителя D4 составляет  $M_d = 396$  г/моль. Полагая  $\rho_m = 1$  г/см<sup>3</sup> и  $c_{md} = 0.005$  находим  $c_d = 0.7 \cdot 10^{19}$  см<sup>-3</sup> и  $\sigma^{(1)} \sim 1.4 \cdot 10^{-17}$  см<sup>2</sup>. Для матрицы E63  $n_e = 1.744$ ,  $\Delta n = 0.2272$  (589 нм,  $t = 20^\circ\text{C}$ ). Следовательно,  $\Delta\epsilon = 0.74$  и  $|\zeta| \sim 15\eta\Delta\epsilon/2c_d\sigma^{(1)} \sim 2.22$  см. Плотность мощности можно оценить как

$S \sim \frac{4P}{\pi w^2} Q$ , где  $P$  - средняя мощность пучка,  $Q = 1/f\tau_p$  - скважность импульсов.

Для  $f = 100$  МГц,  $\tau_p = 100$  фс величина  $Q = 10^5$ . Далее, при  $P = 200$  мВт,  $n = 1.5$  и  $w = 100$  мкм получаем  $S = 0.25 \cdot 10^9$  Вт/см<sup>2</sup> =  $0.25 \cdot 10^{16}$  эрг/см<sup>2</sup>·сек. Плотность

потока фотонов  $F = \frac{S}{\hbar\omega} \sim 10^{27}$  см<sup>-2</sup>сек<sup>-1</sup> ( $\hbar = 1.05 \cdot 10^{-27}$  эрг·сек,

$\omega = 2.4 \cdot 10^{15}$  сек<sup>-1</sup> ( $\lambda = 770$  нм)).

Светоиндуцированный вращающий момент, обусловленный двухфотонным поглощением, становится сравнимым с вращающим моментом светового поля, действующим на индуцированные диполи, если  $|\Delta\epsilon_{\text{eff}}^{(2)}| \sim \Delta\epsilon$ ,

т.е.  $\frac{4}{35} c_d |\xi| \sigma^{(2)} F \sim \Delta\epsilon$ . Отсюда находим соответствующее значение константы

$\sigma^{(2)} \sim \frac{35\Delta\epsilon}{4c_d\zeta F}$ . В нашем эксперименте весовая концентрация красителя

$c_{dm} = 0.15\%$ , поэтому  $c_d = 0.2 \cdot 10^{19}$  см<sup>-3</sup> и  $\sigma^{(2)} \sim 3.2 \cdot 10^{-45}$  см<sup>4</sup>сек.

Более строгую оценку величины  $\sigma^{(2)}$  можно получить, обобщив на случай присутствия двухфотонного поглощения уравнение (25) (однофотонным поглощением пренебрегаем). В этом случае полный момент, действующий на директор равен

$$\Gamma = \frac{\Delta\epsilon |\mathbf{A}|^2}{8\pi} (\mathbf{ne})[\mathbf{n} \times \mathbf{e}] + \frac{\Delta\epsilon_{\text{eff}}^{(2)} |\mathbf{A}|^2}{8\pi} (\mathbf{ne})[\mathbf{n} \times \mathbf{e}], \quad (40)$$

где  $\Delta\epsilon_{\text{eff}}^{(2)} = \frac{4}{35} c_d \zeta \sigma^{(2)} F = \frac{cnc_d\zeta\sigma^{(2)}}{70\pi\hbar\omega} |\mathbf{A}|^2 \equiv \gamma\Delta\epsilon |\mathbf{A}|^2$ , где  $\gamma = \frac{cnc_d\zeta\sigma^{(2)}}{70\pi\hbar\omega\Delta\epsilon}$ .

Первый член в правой части (40) описывает воздействие света на индуцированные диполи (эффект, ранее учтенный при рассмотрении взаимодействия света с прозрачными кристаллами), а второй член - воздействие изменения межмолекулярных сил при двухфотонном поглощении. Поскольку эти члены имеют одинаковую зависимость от векторов  $\mathbf{n}$  и  $\mathbf{e}$ , то для обобщения уравнения (25) на случай двухфотонного поглощения достаточно в выражении для усредненной по времени безразмерной плотности мощности

$$\bar{\delta} = \frac{\overline{\Delta\epsilon |\mathbf{A}|^2} L^2}{8\pi K \pi^2} \quad (41)$$

произвести замену

$$\Delta\varepsilon \rightarrow \Delta\varepsilon(1 + \gamma |\mathbf{A}|^2). \quad (42)$$

Для дальнейших выкладок необходимо знание среднего значения  $\overline{|\mathbf{A}|^4}$ . Предполагая для оценки прямоугольную форму импульсов ( $|\mathbf{A}|^2 = |\mathbf{A}_p|^2 = \text{const.}$  при  $0 < \tau < \tau_p$ ) получаем

$$\overline{|\mathbf{A}|^2} = \frac{|\mathbf{A}_p|^2 \tau_p}{T_p} = \frac{|\mathbf{A}_p|^2}{Q}, \quad (43)$$

$$\begin{aligned} \overline{|\mathbf{A}|^4} &= \frac{|\mathbf{A}_p|^4 \tau_p}{T_p} = \frac{|\mathbf{A}_p|^2 \tau_p}{T_p} |\mathbf{A}_p|^2 = \\ &= \overline{|\mathbf{A}|^2} |\mathbf{A}_p|^2 = (\overline{|\mathbf{A}|^2})^2 \frac{T_p}{\tau_p} = (\overline{|\mathbf{A}|^2})^2 Q, \end{aligned} \quad (44)$$

где  $T = \frac{1}{f}$  - временной интервал между импульсами,  $f$  - частота следования импульсов,  $Q = \frac{T}{\tau_p} = \frac{1}{f\tau_p}$  - скважность импульсов.

Производя теперь в (25) замену (42) получаем

$$\psi_m = (\bar{\delta} + \kappa(\bar{\delta})^2) [J_1(2\psi_m) \cos 2\beta + \mathbf{E}_1(2\psi_m) \sin 2\beta], \quad (45)$$

где  $\kappa = \frac{4 c_d \zeta \sigma^{(2)}}{35 \Delta\varepsilon} Q \bar{F}_{th}$ ,  $\bar{F}_{th} = \frac{ncK \pi^2}{\hbar\omega\Delta\varepsilon L^2}$  - пороговое (соответствующее порогу перехода Фредерикса  $\bar{\delta} = 1$ ) значение усредненной по времени плотности потока фотонов. Отсюда следует, что сечение двухфотонного поглощения можно оценить по формуле

$$\sigma^{(2)} \sim \frac{35 |\kappa| \Delta\varepsilon}{4c_d \zeta F_{th}}, \quad (46)$$

где  $F_{th} = Q \bar{F}_{th}$  - пороговая плотность фотонов в импульсе.

Как следует из (25) и (42), при учете двухфотонного поглощения воздействие импульсного поля со средней безразмерной плотностью мощности  $\bar{\delta}$  вызывает такой же поворот директора, как и непрерывное излучение с безразмерной плотностью мощности  $\bar{\delta}' = \bar{\delta} + \kappa \bar{\delta}^2$ . Поэтому, для построения теоретической зависимости  $\psi_m(\bar{\delta})$  для импульсного излучения достаточно в соответствующей зависимости  $\psi_m(\bar{\delta}')$  для непрерывного излучения сделать замену переменной

$$\bar{\delta} = \frac{-1 + \sqrt{1 + 4\kappa\bar{\delta}'}}{2\kappa}. \quad (47)$$

Поскольку число абберационных колец является однозначной функцией угла  $\psi_m$ , то вышесказанное применимо и к зависимостям числа абберационных колец.

На рис. 5 и 8 сплошной линией представлены теоретические зависимости числа абберационных колец  $N$  и угла поворота директора  $\psi_m$  от  $P$  для НЖК E63+0.15% D4. Значение подгоночного параметра было  $\kappa = -0.23$ . Из рисунков видно, что теоретические кривые качественно описывают эксперимент. Подставляя в (46) полученное значение  $\kappa$  и значение  $P_{th} = 175$  мВт получаем  $\sigma^{(2)} \sim 8.4 \cdot 10^{-46}$  см<sup>4</sup>сек. В настоящее время нам неизвестны работы, в которых бы сообщалось о результатах прямого определения константы  $\sigma^{(2)}$  для антрахинонового красителя D4. Типичные значения этой константы для органических молекул –  $10^{-47}$  -  $10^{-50}$  см<sup>4</sup>·с; она сильно зависит от длины волны. Например, для красителя AF-50 в матрице ПММА значение  $\sigma^{(2)} \sim 8 \cdot 10^{-48}$  см<sup>4</sup>сек [24], а для красителя BPAS  $\sigma^{(2)} \sim 5.7 \cdot 10^{-47}$  см<sup>4</sup>сек [25].

### 5.3. Взаимодействие света с гомеотропно ориентированной нематической “смесь А”.

В этом случае, как и для НЖК E63+0.15% D4, число абберационных колец в поле фемтосекундных импульсов и угол поворота директора в поле фемтосекундных импульсов были меньше, чем в поле непрерывного излучения (рис. 6 и 9). Соответственно, можно предположить, что и в этом случае возникает дополнительный вращающий момент, связанный с изменением межмолекулярных сил при двухфотонном поглощении фемтосекундного излучения.

Возможность существования возбужденных состояний молекул матрицы “смесь А”, обуславливающих отрицательную ориентационную нелинейность, подтверждается результатами дополнительного эксперимента, проведенного с непрерывным излучением аргонового лазера ИЛМ-120 на установке, описанной в [22]. При облучении кристалла светом с длинами волн  $\lambda = 476$  и  $488$  нм наблюдалась ориентационная дефокусировка, что свидетельствовало о повороте директора перпендикулярно световому полю.



## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В настоящей работе проведено прямое экспериментальное сравнение ориентационного взаимодействия последовательности фемтосекундных лазерных импульсов и непрерывного светового излучения с НЖК.

Установлено, что для прозрачной нематической матрицы E63 при одинаковых значениях средней плотности мощности фемтосекундного излучения и плотности мощности непрерывного излучения нелинейный ориентационный отклик одинаков. Для нематической матрицы “смесь А” и матрицы E63, легированной антрахиноновым красителем, воздействие последовательности фемтосекундных импульсов оказалось менее эффективным, чем воздействие непрерывного излучения.

Проведен теоретический анализ переориентации директора НЖК под действием фемтосекундных импульсов. Показано, что инерция директора не влияет на стационарную амплитуду угла поворота директора, что согласуется с экспериментальными результатами для прозрачной нематической матрицы E63. Различные эффективности ориентационного воздействия импульсного и непрерывного светового излучения на другие исследованные образцы НЖК объясняются изменением межмолекулярного взаимодействия при двухфотонном поглощении импульсного излучения.

Авторы благодарны В.Н.Очкину за стимулирующие обсуждения и постоянный интерес к работе. Работа выполнена при поддержке РФФИ (грант 02-02-16927) и Федеральной программы “Интеграция”, проект Б0049.

## ЛИТЕРАТУРА

1. А.С. Золотько, В.Ф. Китаева, Н.Кроо, Н.Н. Соболев, Л. Чиллаг, *Письма в ЖЭТФ* **32**, 170 (1980).
2. Б.Я. Зельдович, Н.Ф. Пилипецкий, А.В. Сухов, Н.В. Табирян, *Письма в ЖЭТФ* **31**, 287 (1980).
3. I. Janossy, A.D. Lloyd and B.S. Wherrett, *Mol. Cryst. Liq. Cryst.* **179**, 1 (1990).
4. I. Janossy, *Phys.Rev. E* **49**, 2957 (1994).
5. V.F. Kitaeva, A.S. Zolot'ko, and M.I. Barnik, *Mol. Materials* **12**, 271 (2000).
6. А.С. Золотько, *Письма в ЖЭТФ* **68**, 410 (1998); А.С. Золотько, О механизме светоиндуцированной ориентации молекул в поглощающих средах, Препринт ФИАН № 41, М., 1998.

7. С.М. Аракелян, О.В. Гарибян, А.С. Караян, Ю.С. Чилингарян, *Письма в ЖТФ* **8**, 1051 (1982).
8. H. Hsiung, L.P. Shi, and Y.R. Shen, *Phys. Rev. A* **30**, 1453 (1984).
9. I.C.Khoo, R.R.Michael, and P.Y.Yan, *IEEE J. Quantum Electron.* **QE-23**, 267 (1987).
10. S.V. Lukishova, *J. Nonlinear Opt. Phys. & Materials* **9**, 365, (2000).
11. I.C. Khoo, R.G. Lindquist, R.R. Michael, R.J. Mansfield, and P. LoPresti, *J. Appl. Phys.* **69**, 3853 (1991).
12. H.J. Eichler and R. Macdonald, *Phys.Rev.Lett.* **67**, 2666 (1991).
13. Л.М. Блинов, *Электро- и магнитооптика жидких кристаллов*, М., Наука, 1978.
14. V.A. Bushuev, V.I. Mantsyzov, I.A. Ozheredov, A.P. Shkurinov, N.I. Koroteev, *Proceedings SPIE* **3733**, 85 (1999).
15. D. Yelin, Y. Silberberg, Y. Barad, and J.S. Patel, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 3046 (1999).
16. A.A. Goncharov, V.F. Kitaeva, I.A. Ozheredov, A.P. Shkurinov, and A.S. Zolot'ko, *Proceedings SPIE* **4751**, 297 (2002).
17. A. Jakli, D.R. Kim, M.R. Kuzma, and A. Saupe, *Mol. Cryst. Liq. Cryst.* **198**, 331 (1991).
18. М.И. Барник, С.В. Беляев, М.Ф. Гребенкин, В.Г. Румянцев, В.А. Селиверстов, В.А. Цветков, Н.М. Штыков, *Кристаллография* **23**, 805 (1978).
19. D. Pararo, P. Maddalena, G. Abbate, E. Santanmato, and I. Janossy, *Mol. Cryst. Liq. Cryst.* **251**, 73 (1994).
20. А.С. Золотько, В.Ф. Китаева, Н.Н. Соболев, А.П. Сухоруков, *ЖЭТФ* **81**, 933 (1981).
21. А.С. Золотько, В.Ф. Китаева, В.А. Куюмчян, Н.Н. Соболев, А.П. Сухоруков, *Письма в ЖЭТФ* **36**, 66 (1982).
22. V.F.Kitaeva, A.S.Zolot'ko, and M.I.Barnik, *Mol. Materials* **12**, 271 (2000).
23. А.С. Золотько, В.Ф. Китаева и Д.Б. Терсков, *ЖЭТФ* **106**, 1722 (1994).
24. N. Mukherjee, A. Mukherjee, and B.A. Reinhardt, *Appl. Phys. Lett.* **70**, 1524 (1997).
25. G. Zhou, X. Wang, D. Wang, Z. Shao, and M. Yiang, *Appl. Optics* **41**, 1120 (2002).