

РОССИЙСКАЯ АКАДЕМИЯ НАУК

**ФИЗИЧЕСКИЙ
ИНСТИТУТ**



*имени
П. Н. Лебедева*

Ф И А Н

ПРЕПРИНТ

И.А. БУДАГОВСКИЙ, А.С. ЗОЛОТЬКО,
М.П. СМАЕВ, М.И. БАРНИК

20

**НЕЛИНЕЙНООПТИЧЕСКИЕ ЭФФЕКТЫ,
ИНДУЦИРОВАННЫЕ СТИЛЬБЕНОВЫМ
КРАСИТЕЛЕМ В НЕМАТИЧЕСКОМ
ЖИДКОМ КРИСТАЛЛЕ**

МОСКВА 2007

НЕЛИНЕЙНООПТИЧЕСКИЕ ЭФФЕКТЫ, ИНДУЦИРОВАННЫЕ СТИЛЬБЕНОВЫМ КРАСИТЕЛЕМ В НЕМАТИЧЕСКОМ ЖИДКОМ КРИСТАЛЛЕ

И.А. Будаговский¹, А.С. Золотко¹, М.П. Смаев¹, М.И. Барник²

¹Физический институт им. П.Н. Лебедева РАН, Москва, 119991, Ленинский пр. 53

²Институт кристаллографии им. А.В. Шубникова РАН, Москва, 117333, Ленинский пр. 59

Экспериментально исследовано взаимодействие светового пучка с нематическими жидкими кристаллами (НЖК), легированными стильбеновым красителем.

Для гомеотропно ориентированного образца наблюдалась кольцевая абберационная картина, характерная для самовоздействия световых пучков в НЖК. При достаточно длительном облучении (~ 10 мин) имел место эффект памяти—запоминаемая деформация поля директора, обусловленная светоиндуцированным изменением ориентирующих свойств поверхности.

При взаимодействии светового пучка с планарным образцом впервые наблюдалась абберационная картина, характеризующаяся сложным асимметричным распределением интенсивности, качественно отличная от системы концентрических колец. Изучение свойств картины позволило предположить, что она обусловлена объёмным фоторефрактивным эффектом.

Light interaction with nematic liquid crystals (NLCs) doped with stilbene dye has been studied experimentally.

For homeotropically aligned sample, a ring-shaped aberrational pattern was observed that is typical of light-beam self-action in NLCs. Under rather long irradiation, the memory effect was manifested—the memorized deformation of the director field caused by light-induced change in the alignment properties of the surface.

In the light-beam interaction with the planar aligned sample, an aberrational pattern characterized by a complex intensity distribution, qualitatively different from a system of concentric rings, was observed for the first time. The study of the pattern properties made it possible to assume that it is due to the bulk photorefractivity.

Введение

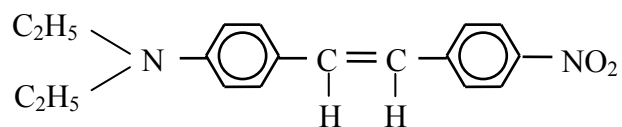
Хорошо известно, что малые примеси красителей могут существенно увеличивать ориентационную оптическую нелинейность нематической фазы жидких кристаллов и приводить к новым эффектам при взаимодействии света с жидкими кристаллами [1-8]. Так, азокрасители (поглощающие молекулы, содержащие связь $-N=N-$) увеличивают ориентационную нелинейность нематических жидких кристаллов (НЖК) на 2 порядка, приводят к ее знакопеременности [2-4] и обуславливают целый ряд явлений и приложений, таких как эффект памяти [8], бистабильность поля директора [9], возможность хранения, обработки и распознавания изображений [10, 11]. При этом во взаимодействии света с жидкими кристаллами важную роль играют фотоконформационные переходы (именно они, например, являются причиной знакопеременной нелинейности [3, 4]).

В данной работе мы исследуем взаимодействие света с НЖК с примесью красителя, относящегося к классу стильбеновых (т.е., красителей, содержащих связь $-HC=CH-$). Стильбеновый краситель ДЭАНС¹, использованный в настоящей работе, сходен по строению с азокрасителем ДЭАНАБ, свойства которого в качестве поглощающей примеси, индуцирующей оптическую нелинейность, были ранее хорошо изучены [4, 13].

Экспериментальные образцы и условия эксперимента

Исследования проводились с гомеотропно и планарно ориентированными образцами жидкокристаллического материала ЖКМ-1277, легированными стильбеновым красителем ДЭАНС (4-диэтиламино-4'-нитростильбен, 0.1% или 0.025% по весу), а также с планарно ориентированным образцом ЖКМ-13N, легированным ДЭАНС (0.1% по весу).

Структурная формула ДЭАНС имеет вид



¹ Для гомеотропно ориентированного образца НЖК с примесью ДЭАНС ранее наблюдалось существенное возрастание положительной нелинейности [12].

Жидкокристаллический материал ЖКМ-1277 (НИОПИК, Россия) является смесью бифенилов и сложных эфиров. Он обладает нематической фазой в диапазоне температур $-20^{\circ}\text{C} \div +60^{\circ}\text{C}$ и имеет положительную низкочастотную диэлектрическую анизотропию (при $t = 20^{\circ}\text{C}$ на частоте $f = 1$ кГц величина $\Delta\varepsilon = 12.1$). Показатели преломления необыкновенной ($n_{\parallel} = \sqrt{\varepsilon_{\parallel}}$) и обыкновенной ($n_{\perp} = \sqrt{\varepsilon_{\perp}}$) волн равны $n_{\parallel} = 1.71$ и $n_{\perp} = 1.52$ ($\lambda = 589$ нм). Жидкокристаллический материал ЖКМ-13N характеризуется отрицательной низкочастотной диэлектрической анизотропией ($\Delta\varepsilon = -4.1$).

Использовались ячейки толщиной $L = 100$ мкм. Планарная ориентация достигалась натиранием полиимидных слоев, нанесенных на стеклянные подложки, на которые были напылены электропроводящие слои из окиси индия и олова. Гомеотропная ориентация достигалась нанесением на подложки стеарилхлорида хрома.

Спектры поглощения жидкокристаллической смеси ЖКМ-1277 + 0.1% ДЭАНС представлены на рис. 1. Из рисунка видно, что поглощение максимально на длине волны $\lambda_{\text{max}} = 460$ нм и характеризуется весьма большим дихроизмом.

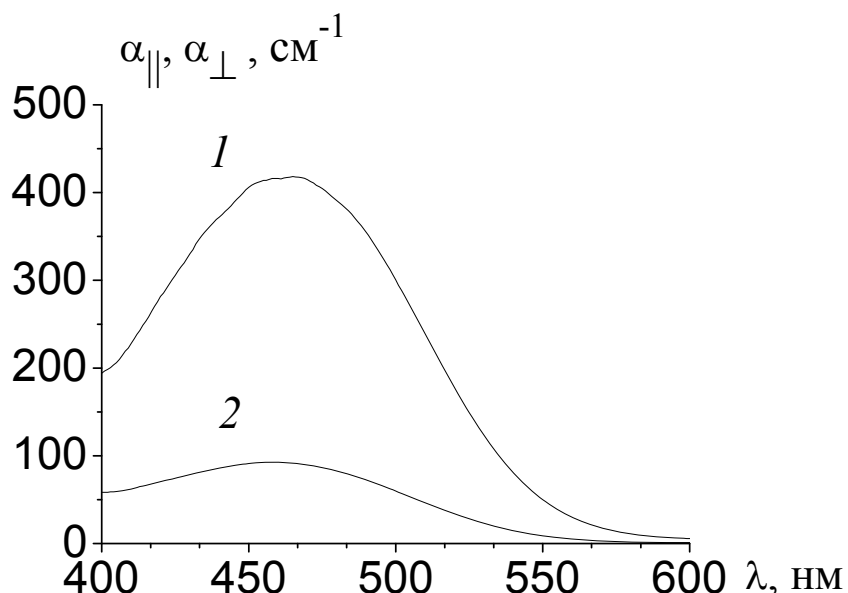


Рис. 1. Спектр поглощения необыкновенной (α_{\parallel} , 1) и обыкновенной (α_{\perp} , 2) световых волн в планарном НЖК ЖКМ-1277 + 0.1% ДЭАНС.

Схема экспериментальной установки приведена на рис. 2. В качестве источников излучения использовались аргоновый лазер ІЛА-120 ($\lambda = 458, 477, 488$ и 515 нм) или твердотельные лазеры LCS-DTL-364 (Laser Export Co. Ltd., $\lambda = 473$ нм) и Lasos GL (LASOS, 532 нм). Направление вектора линейной поляризации лазерного излучения могло изменяться с помощью двойного ромба Френеля (ДРФ). Излучение фокусировалось линзой ($f = 16$ или 18 см) в ячейку с кристаллом; прошедший световой пучок наблюдался на экране Э. Угол падения световой волны на кристалл α мог изменяться поворотом ячейки вокруг вертикальной оси (значения α считались положительными, если кристалл поворачивался против часовой стрелки). Невозмущенный директор НЖК располагался в горизонтальной плоскости (плоскости падения световой волны). К электродам жидкокристаллической ячейки могло прикладываться переменное (3 кГц) или постоянное напряжение. Полярность постоянного напряжения считалась положительной, если входная (относительно луча) подложка НЖК являлась анодом, а выходная - катодом.

Эксперименты проводились при комнатной температуре.

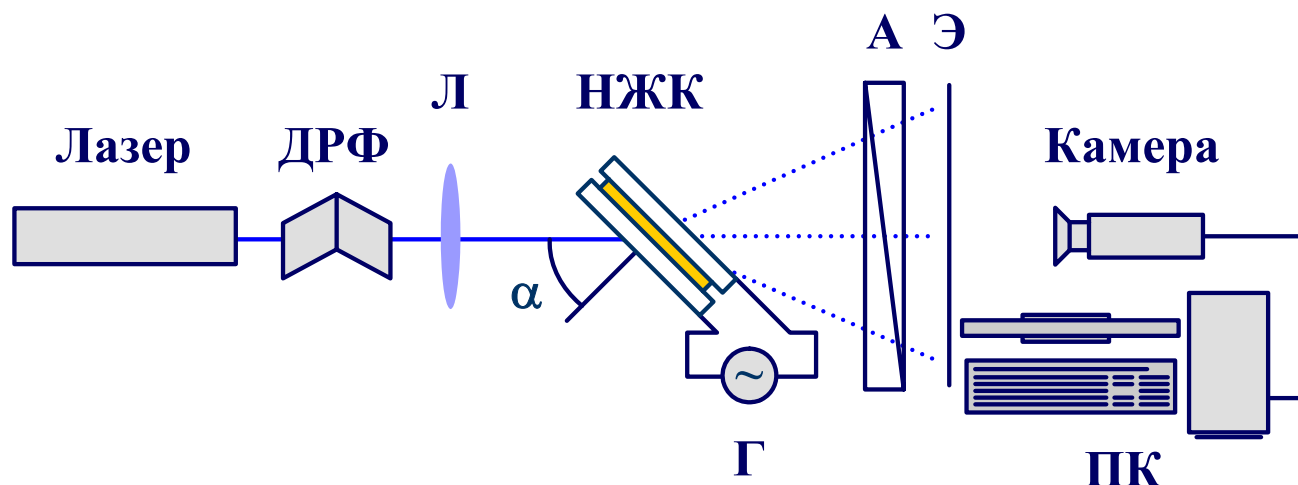


Рис. 2. Схема экспериментальной установки. ДРФ – двойной ромб Френеля, Л – линза, НЖК – ячейка с нематическим жидким кристаллом, Г – генератор напряжения, А - анализатор, Э – экран для наблюдения абберационного самовоздействия, ПК – компьютер.

Экспериментальные результаты

Взаимодействие света с гомеотропно ориентированными НЖК

В поперечном сечении светового пучка, прошедшего через НЖК, наблюдалась характерная абберационная картина самофокусировки. Времена её установления и релаксации соответствуют ориентационным процессам ($\tau \sim 10$ с) [14]. Число абберационных колец N в стационарной картине возрастает с увеличением мощности светового пучка P (рис. 3), причем при нормальном падении ($\alpha = 0^\circ$) зависимость $N(P)$ имеет пороговый характер. При достаточно больших P происходит насыщение числа абберационных колец. Приложение переменного низкочастотного поля подавляет картину, что подтверждает ориентационную природу нелинейности.

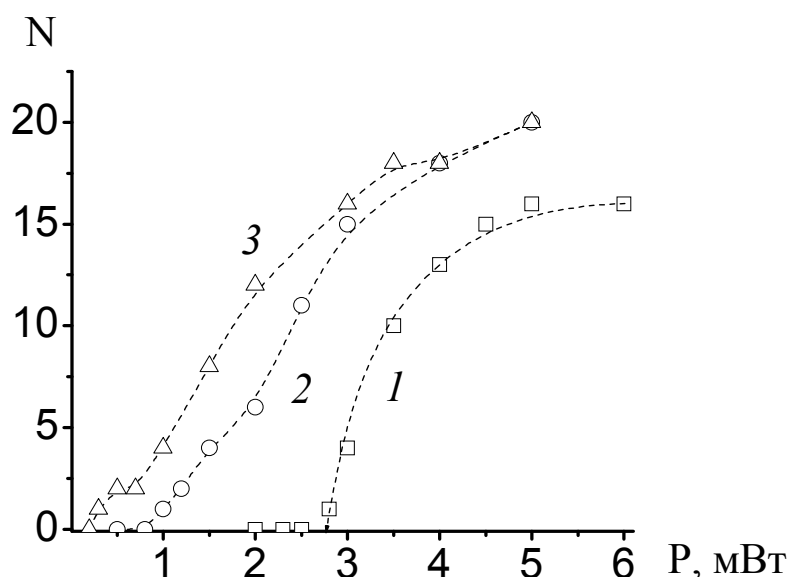


Рис. 3. Зависимости числа абберационных колец N самофокусировки в поперечном сечении светового пучка ($\lambda = 488$ нм), прошедшего через гомеотропно ориентированный НЖК ЖКМ-1277 + 0,1% ДЭАНС, от его мощности P при различных углах падения на образец: $\alpha = (1) 0^\circ, (2) 10^\circ, (3) 30^\circ$.

Величина порога перехода для легированной красителем матрицы $P_{th} = 2.8$ мВт оказывается много меньшей, чем для чистого ЖКМ-1277, для кото-

рого пороговая мощность перехода Фредерикса составляет $P_{th} = 110$ мВт ($\lambda = 488$ нм).

Зависимости $N(P)$ для $\lambda = 515$ и 473 нм имели такой же вид, как и в случае $\lambda = 488$ нм. При этом величина порога перехода Фредерикса слабо зависит от длины световой волны.

Для образца с меньшей концентрацией красителя (0.025% по весу) величина порога больше примерно в 4 раза.

Фактор усиления нелинейности (определенный как отношение порогов перехода Фредерикса в прозрачном и легированном НЖК) для $\lambda = 488$ нм составляет $\eta = 40$. Параметр η пропорционален концентрации поглощающих молекул, поэтому он является недостаточно информативным с точки зрения сравнения эффективности светоиндуцированной переориентации в жидкокристаллических системах различного состава. Удобнее характеризовать ориентационные нелинейнооптические свойства поглощающих НЖК отношением $\eta_\alpha = \eta / (\alpha_{\parallel} + 2\alpha_{\perp})$, не зависящим от концентрации красителя. Для системы ЖКМ-1277+ДЭАНС эта величина оказалась равной $\eta_\alpha = 0.1$ см.

Установившаяся через ~ 10 с абберационная картина не является стабильной. При длительном (порядка 1 часа) облучении кристалла она сильно трансформируется. Так, при наклонном падении света ($\alpha = 50^\circ$, $\lambda = 473$ и 515 нм) число колец N уменьшается до нуля за 60 мин, а затем вновь возрастает (рис. 4а, кривая I). При этом знак самовоздействия изменяется с положительного (самофокусировка) на отрицательный (самодефокусировка).

При блокировании пучка после $\sim 30 - 60$ минут освещения на время, достаточное для релаксации директора ($t_{rel} \leq 1$ мин), абберационная картина самодефокусировки видна сразу после возобновления облучения. Далее эта картина за время ~ 1 мин восстанавливается до наблюдаемой до перекрытия пучка. Подобное поведение указывает на возникновение запоминаемой (сохраняющейся после прекращения облучения) деформации поля директора (эффект памяти) [15].

Запоминаемая переориентация связана с поворотом директора на стенках ячейки. Число абберационных колец самодефокусировки, наблюдаемых сразу после возобновления облучения, пропорционально углу поворота. Для исследования временной зависимости этого угла был поставлен отдельный эксперимент. При облучении НЖК в течение 120 мин пучок блокировался на ~ 20 с через интервалы ~ 5 мин. Полученная при этом зависимость $N(t)$ представлена на рис. 4а (за-

висимость 2). Видно, что число абберационных колец самодефокусировки, обусловленное поверхностной переориентацией директора (наблюдаемое сразу после возобновления облучения НЖК), растёт с течением времени облучения. Для $\lambda = 473$ нм и угла падения световой волны $\alpha = 50^\circ$ число колец абберационной самодефокусировки, вызванной поверхностным поворотом директора, достигает $N = 8$, при этом переориентация директора на стенках НЖК становится заметной через $t = 25$ мин. Для $\lambda = 473$ нм и $\alpha = 20^\circ$ процесс развивается аналогичным образом (рис. 4б, кривая 1), однако поверхностная переориентация проявляется позже ($t = 40$ мин; рис. 4б, зависимость 2). Число колец абберационной самодефокусировки достигает значения $N = 3$.

Для $\lambda = 515$ нм и $\alpha = 20^\circ$ число запоминаемых абберационных колец достигает $N = 1$ за $t = 60$ мин и поверхностная переориентация директора становится заметной при $t \sim 50$ мин. Отсюда следует, что эффективность воздействия света резко падает при увеличении длины волны.

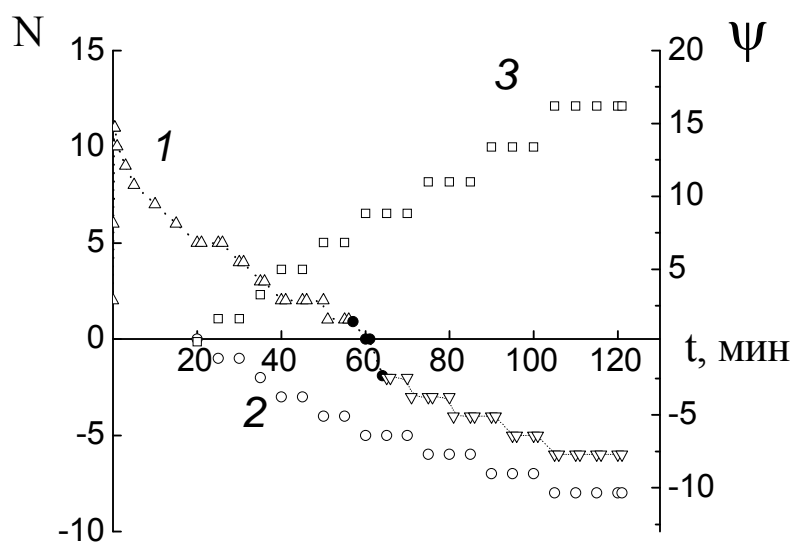
Учитывая, что число абберационных колец пропорционально нелинейному набегу фазы [16], можно рассчитать угол ψ поворота директора на стенках кристалла с помощью соотношения

$$N(\psi) = \frac{L}{\lambda \cos \beta} \left(\frac{n_{\perp} n_{\parallel}}{\sqrt{n_{\perp}^2 \sin^2 \beta + n_{\parallel}^2 \cos^2 \beta}} - \frac{n_{\perp} n_{\parallel}}{\sqrt{n_{\perp}^2 \sin^2 (\beta - \psi) + n_{\parallel}^2 \cos^2 (\beta - \psi)}} \right), \quad (1)$$

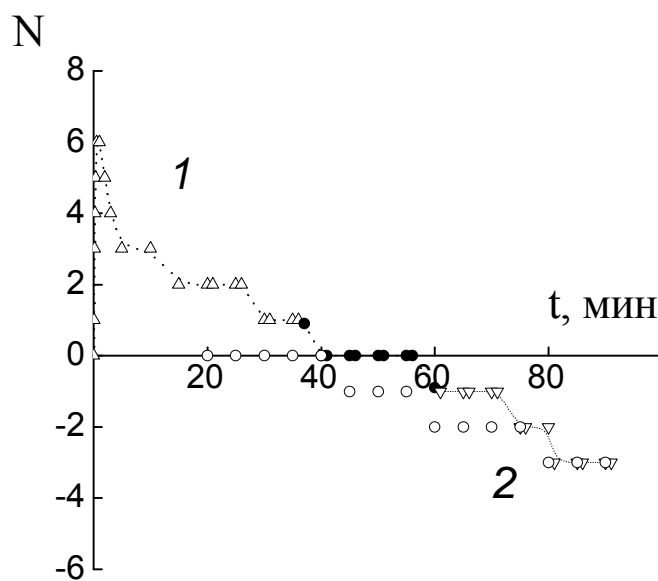
где β – угол преломления световой волны. Результаты расчета для $\alpha = 50^\circ$ представлены на рис. 4а (зависимость 3).

При меньшем ($\alpha = 20^\circ$) угле падения света рассчитанное максимально возможное число абберационных колец дефокусировки составляет $N_{\max} \sim 2$.

В случае нормального падения света также наблюдается уменьшение абберационной картины при длительном (порядка 10 минут) облучении (рис. 5); картина самодефокусировки при этом не возникает.



а



б

Рис. 4. Зависимость числа абберационных колец N самовоздействия светового пучка ($\lambda = 473$ нм, $P = 1$ мВт) от времени облучения t при наклонном ($\alpha =$ (а) 50° и (б) 20°) падении на гомеотропный образец ЖКМ–1277 + 0.1% ДЭАНС: 8 - самофокусировка пучка, X - самодефокусировка пучка, , - переходный процесс, – - число колец самодефокусировки, возникающих сразу после возобновления освещения образца световым пучком, блокированным на ~ 20 с, ∇ - рассчитан-

ный угол поворота директора ψ на стенках кюветы.

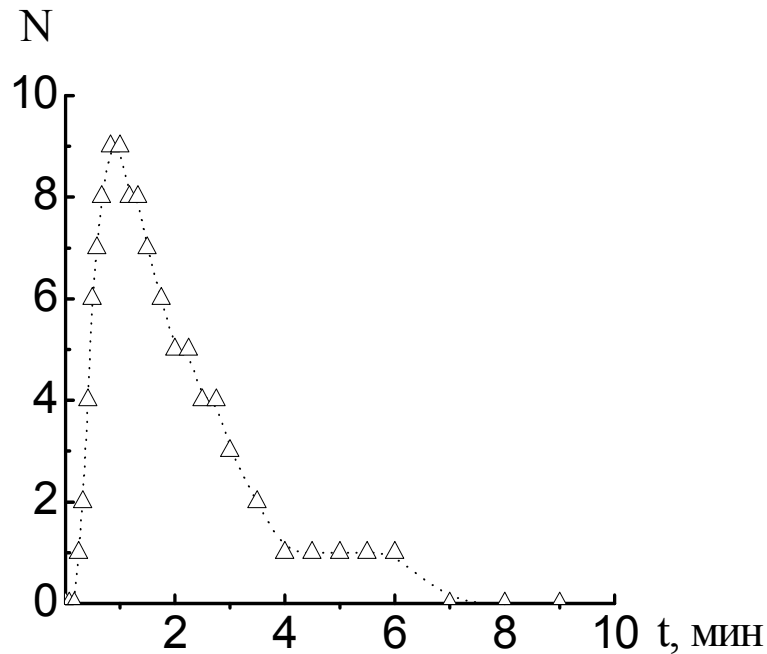


Рис. 5. Зависимость числа абберационных колец N самофокусировки светового пучка от времени облучения t при нормальном ($\alpha = 0^\circ$) падении ($\lambda = 515$ нм, $P = 3$ мВт). Гомеотропный ЖКМ–1277 + 0.1% ДЭАНС.

Отсутствие смены знака нелинейности при нормальном падении объясняется тем, что на периферии пучка (в невозмущенной светом области) показатель преломления уже имеет минимальное возможное значение $\sqrt{\varepsilon_{\perp}}$.

Временное уменьшение числа колец при $\alpha = 0^\circ$ нельзя объяснить поворотом директора на стенках кристалла перпендикулярно световому полю. Возможно, определенный вклад в схлопывание картины вносит фотодеструкция красителя. Этот же эффект, по-видимому, проявляется и при наклонном падении световой волны: развитие памяти (зависимости 2 на рис. 4а и 4б) происходит уже после существенного уменьшения числа абберационных колец (кривые 1 на рис. 4а и 4б).

Механизм поворота директора на стенках остается объектом дискуссии. В литературе запоминаемый поперхностный поворот директора связывают либо с адсорбцией и десорбцией молекул красителя на внутренние стенки кюветы [17], либо с изменением ориентации молекул параллельных \mathbf{E} в освещаемой области [18].

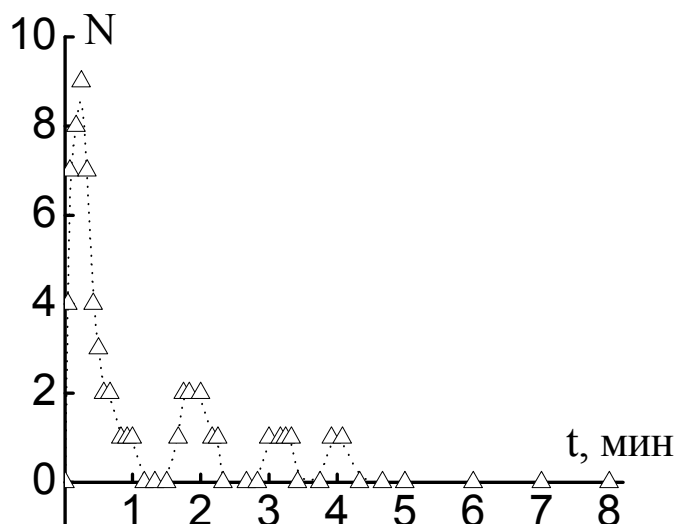


Рис. 6. Зависимость числа абберационных колец N от времени облучения t (гомеотропный ЖКМ–1277 + 0.1% ДЭАНС, $\lambda = 473$ нм, $\alpha = 2^\circ$, $P = 6$ мВт).

При облучении ($\lambda = 473$ нм) гомеотропно ориентированного образца вертикально поляризованным светом при углах падения света близких к $\alpha = 0^\circ$ на экране наблюдаются осцилляции числа колец абберационной картины (рис. 6). Осцилляции связаны с перекачкой энергии из o -волны в e -волну и обратно [19, 20]. Полученный результат означает, что сильное поглощение e -волны не препятствует развитию колебательных режимов.

Взаимодействие света с планарно ориентированными НЖК

Самовоздействие света в планарно ориентированных образцах принципиально отличается от эффекта, ранее наблюдавшегося в прозрачных и поглощающих НЖК, для которых абберационная картина представляла собой совокупность достаточно симметричных концентрических колец. Для НЖК с примесью ДЭАНС вид картины зависел от длины световой волны и геометрии взаимодействия и мог качественно отличаться от системы колец. Так, в спектральном интервале $\lambda = 458\text{—}515$ нм распределение интенсивности в поперечном сечении пучка, прошедшего через НЖК, имело вид системы вертикальных полос.

Перейдем к подробному изложению экспериментальных результатов.

Самовоздействие света с длиной волны $\lambda = 532$ нм в НЖК ЖКМ-1277 + 0.1% ДЭАНС

При нормальном падении необыкновенной волны сразу после начала облучения наблюдается быстро (за время < 0.1 с) формирующаяся абберационная картина самодефокусировки, обусловленная тепловой нелинейностью (при $P = 2$ мВт величина $N = 2$).

При наклонном падении света развивается ориентационная абберационная картина (время установления $\tau_{уст} \sim 7 \div 12$ с). Форма картины зависит от угла α падения света на кристалл (рис. 7). При больших углах ($|\alpha| \geq 60^\circ$) картина имеет обычную кольцевую структуру (рис. 7а) и соответствует самофокусировке пучка. При меньших углах падения ($35^\circ < |\alpha| < 60^\circ$) картина асимметрична (рис. 7б). Изменение знака α приводит к зеркальному отображению абберационной картины относительно вертикали, проходящей через ее центр. При углах $|\alpha| < 35^\circ$ ориентационная абберационная картина не развивается.

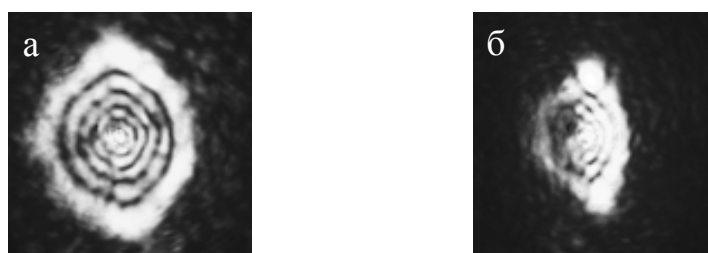


Рис. 7. Абберационные картины при облучении планарно ориентированного ЖКМ-1277 + 0.1% ДЭАНС ($\lambda = 532$ нм, $P = 2$ мВт): (а) $\alpha = -65^\circ$ и (б) $\alpha = -50^\circ$.

Подобная асимметрия не может быть связана с ориентационным или тепловым действием света и имеет схожий характер с асимметрией абберационной картины, наблюдаемой при одновременном воздействии светового и постоянного электрических полей [21, 22].

В нашем случае приложение внешнего постоянного поля также сильно влияет на вид абберационной картины. При изменении полярности поля изменяется “направление асимметрии” – направление от центра картины к ее более интенсивной части (рис. 8).

Приложение низкочастотного ($\nu = 3$ кГц) электрического поля подавляет асимметричную картину, при этом могут оставаться тепловые кольца.

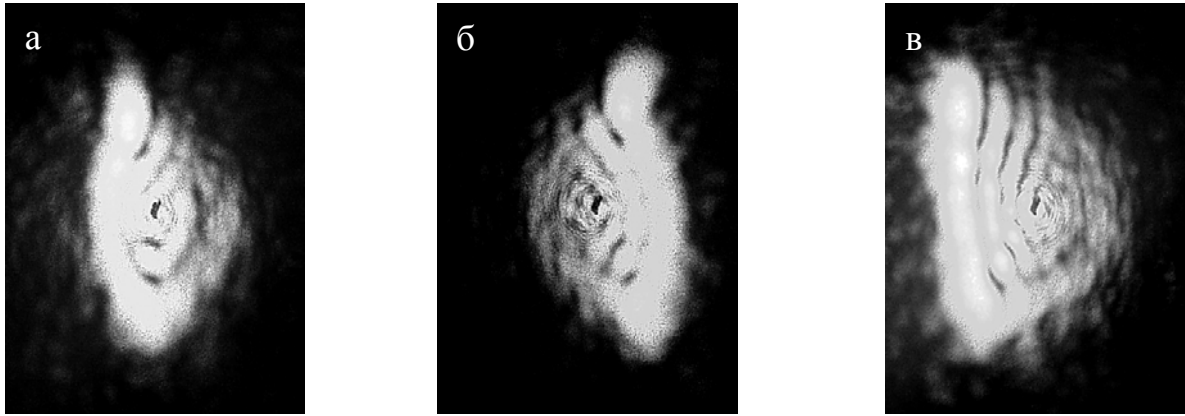


Рис. 8. Аберрационные картины при облучении планарно ориентированного ЖКМ-1277 + 0.1% ДЭАНС в зависимости от полярности прикладываемого постоянного напряжения ($\lambda = 532$ нм, $P = 2$ мВт, $\alpha = 50^\circ$): (а) $U = 0$, (б) $U = -1.5$ В, (в) $U = +1.5$ В

Самовоздействие света с длинами волн $\lambda = 458\text{--}515$ нм в НЖК ЖКМ-1277+0.1% ДЭАНС

Результаты для излучения на длинах волн $\lambda = 458, 473, 488$ и 515 нм качественно совпадают между собой и отличаются от результатов, полученных для $\lambda = 532$ нм. Приведем их подробное описание для $\lambda = 473$ нм.

При любых углах падения светового пучка на кристалл развивается сложная аберрационная картина. Она представляет собой систему вертикальных полос. Времена ее формирования и релаксации $\sim 10\text{--}50$ с. Форма картины зависит от мощности светового пучка P и угла α падения света на кристалл.

При нормальном падении и малой мощности $P < 1$ мВт картина не наблюдается. При больших значениях мощности сразу после начала облучения ($t < 0.1$ с) возникает кольцевая аберрационная картина (тепловая дефокусировка), которая в дальнейшем (за время ~ 10 с) изменяет свой вид. При $P = 1\text{--}2$ мВт в стационарной картине видна отчетливая “полоса” (рис. 9а, 9б), которая при увеличении мощности превращается в два пятна, дополняющих возникающую кольцевую структуру (рис. 9в, 9г). При сдвиге НЖК вверх подсвечивается верхняя часть полосы (верхнее пятно), что аналогично трансформации интенсивности в обычной кольцевой картине самофокусировки.

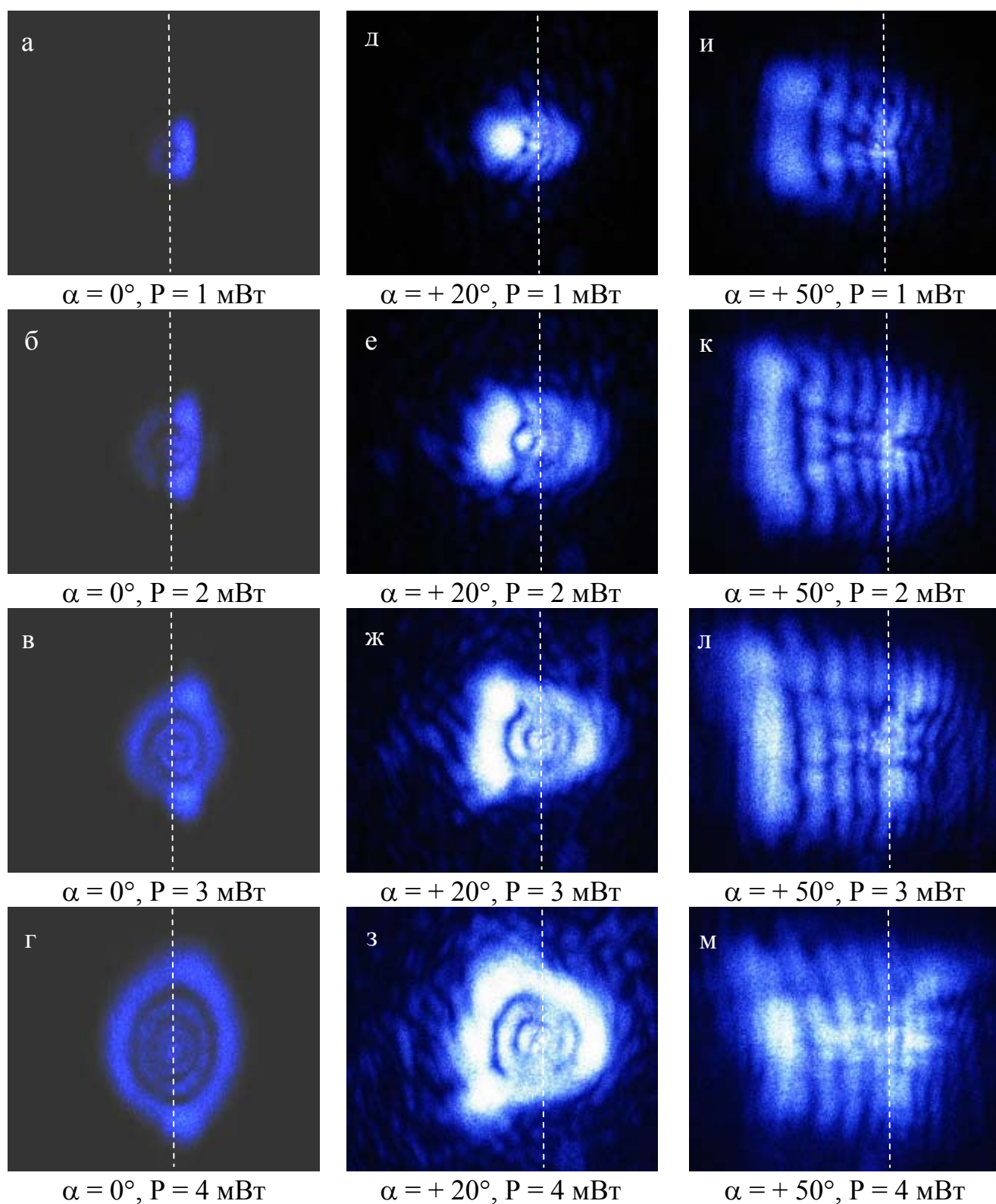


Рис. 9. Стационарные абберационные картины при различных значениях угла падения и мощности светового пучка ($\lambda = 473 \text{ нм}$) для планарно ориентированного образца ЖКМ-1277 + 0.1% ДЕАНС. Горизонтальный угловой размер каждого кадра 0.1 рад. Вертикальный пунктир показывает горизонтальное положение центра падающего пучка.

В случае наклонного падения света на кристалл при мощностях $1 \text{ мВт} < P < 4 \text{ мВт}$ наблюдается сложная, асимметричная относительно оси падающего пучка, картина со временем установления $\tau_{\text{уст}} \sim 5 \div 7 \text{ с}$ и временем релаксации $\tau_r \sim 7 \div 10 \text{ с}$, что соответствует, например, переориентации директора.

В случае мощности $P = 1 \text{ мВт}$, когда вклад тепла минимален, абберационная картина при $\alpha = 20^\circ$ (рис. 9д) представляет собой яркое пятно, смещенное влево относительно центра падающего пучка, и систему дуг с центрами кривизны, также смещенными влево. При угле падения $\alpha = 50^\circ$ (рис. 9и) картина имеет существенно большие размеры и состоит из системы вертикальных полос, в основном, расположенных слева от оси падающего пучка. Крайняя левая полоса имеет максимальные ширину и высоту. Полосы незначительно изогнуты, при этом центры кривизны располагаются справа от полос. Для рассматриваемого случая (положительное значение α) положение абберационной картины иллюстрируется рис. 10.

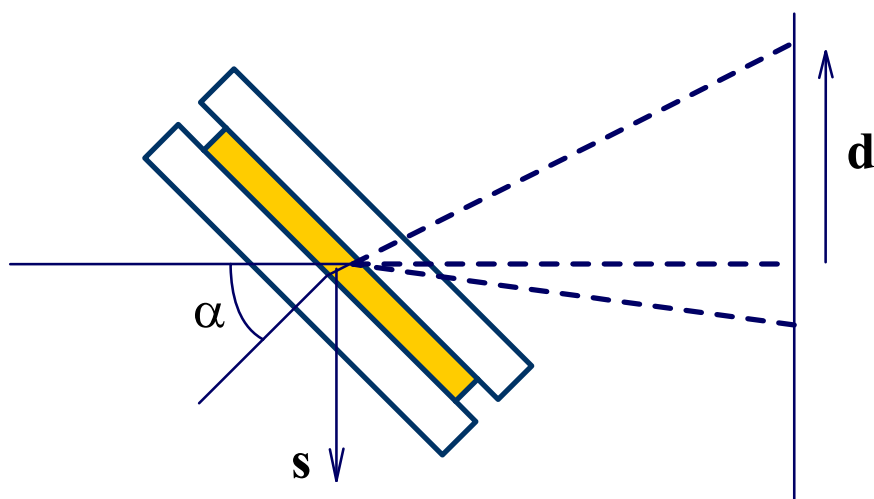


Рис. 10. Геометрия взаимодействия световой волны с НЖК: α - угол падения света на НЖК, \mathbf{d} - направление асимметрии стационарной картины. Для эксперимента со сдвигом НЖК относительно светового пучка (см. рис. 11) указан вектор \mathbf{s} , характеризующий направление сдвига кристалла.

С увеличением мощности пучка картина, наблюдаемая при $\alpha = 20^\circ$ (рис. 9е–9з) трансформируется в систему асимметричных колец, схожих с наблюдавшимися на длине волны $\lambda = 532 \text{ нм}$. Для большего угла падения $\alpha = 50^\circ$ (рис. 9к–9м) с увеличением мощности картина увеличивается в размерах и изменяется направление изгиба полос.

При сдвиге НЖК вид абберационной картины трансформировался сложным образом. Так, для картины, изображенной на рис. 11а при сдвиге НЖК вверх подсвечивается ее верхняя часть, а при сдвиге вниз - нижняя (это соответствует самофокусировке—максимуму показателя преломления в центре пучка). При горизонтальном сдвиге НЖК трансформация картины зависит от направления сдвига.

При сдвиге кристалла вправо относительно пучка (вдоль вектора \mathbf{s} , рис. 10) в левой части картины вертикальные полосы смещаются к центру, а в правой части проявляется дополнительная кольцевая система (рис. 11б). При сдвиге кристалла влево относительно пучка (против вектора \mathbf{s}) картина приобретает вид сектора кольцевой структуры (рис. 11в).

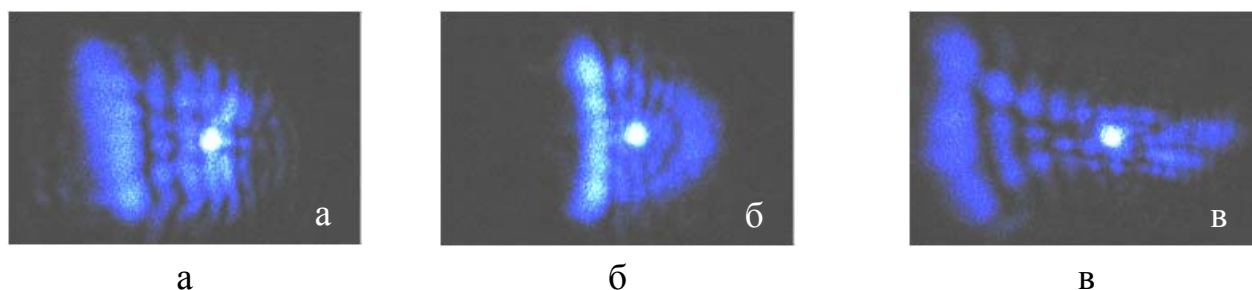


Рис. 11. Абберационные картины при наклонном ($\alpha = + 50^\circ$) падении светового пучка ($\lambda = 473$ нм, $P = 2$ мВт) на планарно ориентированный образец ЖКМ-1277 + 0.1% ДЕАНС: (а) стационарная картина, (б) картина при сдвиге НЖК вправо и (в) картина при сдвиге НЖК влево. Горизонтальный угловой размер каждого кадра 0.1 рад. Яркие пятна обусловлены обыкновенной волной, созданной небольшим поворотом плоскости поляризации светового пучка относительно плоскости падения. Их положение соответствует положению пучка до развития самовоздействия.

Как и в ранее рассмотренном случае $\lambda = 532$ нм, изменение знака α приводит к зеркальному отображению абберационной картины относительно вертикали, проходящей через ее центр (рис. 12).

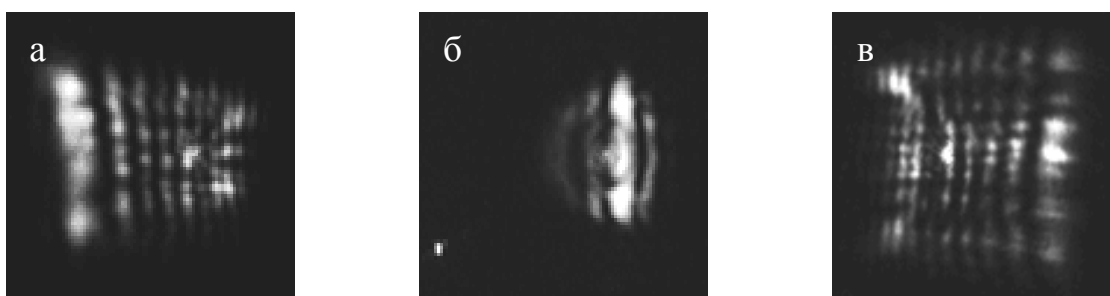


Рис. 12. Абберационные картины при различных углах падения светового пучка ($\lambda = 473$ нм, $P = 2$ мВт) на планарно ориентированный образец ЖКМ-1277+0.1% ДЕАНС: (а) $\alpha = + 50^\circ$, (б) $\alpha = 0^\circ$, (в) $\alpha = - 50^\circ$.

Внешнее постоянное поле также влияет на форму картины. При этом направление асимметрии (направление вектора \mathbf{d} , рис. 10) зависит от полярности поля, что иллюстрируется рисунком 13. В отсутствие внешнего поля картина вытянута влево относительно центрального пятна (рис. 13а). Положительное напряжение увеличивает расходимость левой части абберационной картины (рис. 13б). При приложении отрицательного напряжения картина изменяет направление асимметрии на противоположное (рис. 13в). Увеличение напряжения приводит к возрастанию расходимости правой части картины.

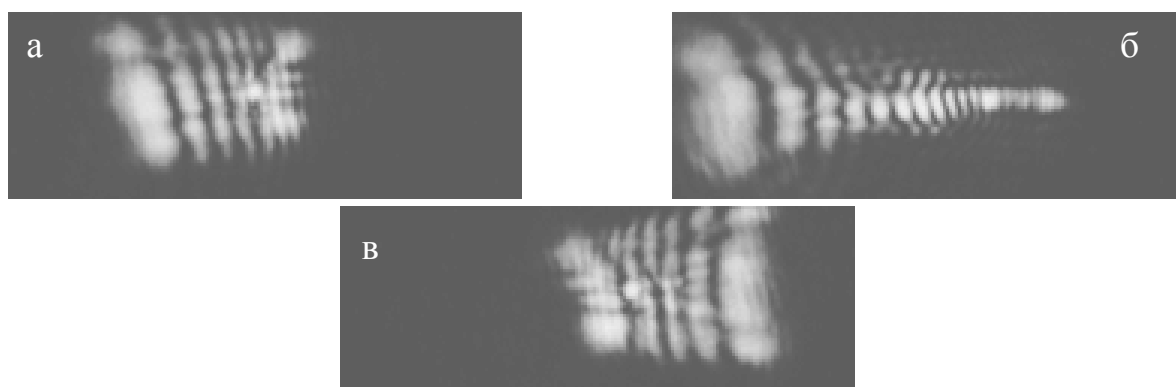


Рис. 13. Абберационные картины при наклонном ($\alpha = + 50^\circ$) падении светового пучка ($\lambda = 473$ нм, $P = 2$ мВт) на планарно ориентированный образец ЖКМ-1277 + 0.1% ДЕАНС в зависимости от полярности прикладываемого постоянного напряжения: (а) $U = 0$, (б) $U = + 1.5$ и (в) $U = - 1.5$ В.

Низкочастотное поле ($\nu = 3$ кГц), в случае наклонного падения света схлопывает абберационную картину. В случае нормального падения, поле сначала растягивает картину по горизонтали, а потом по вертикали (рис. 14).

Поворот плоскости поляризации от горизонтальной к вертикальной (т.е., от *e*-волны к *o*-волне) уменьшает размеры абберационной картины (рис. 15). Облучение новых мест в кристалле светом с повернутым направлением плоскости поляризации приводит к развитию (за время $\tau_{\phi} = 5 \div 7$ с) таких же картин, что и на рис. 15.

При этом, если облучить новое место кристалла *o*-волной в течение ~ 10 с, то при повороте плоскости поляризации (добавлении *e*-волны) полосатая структура возникает без задержки.

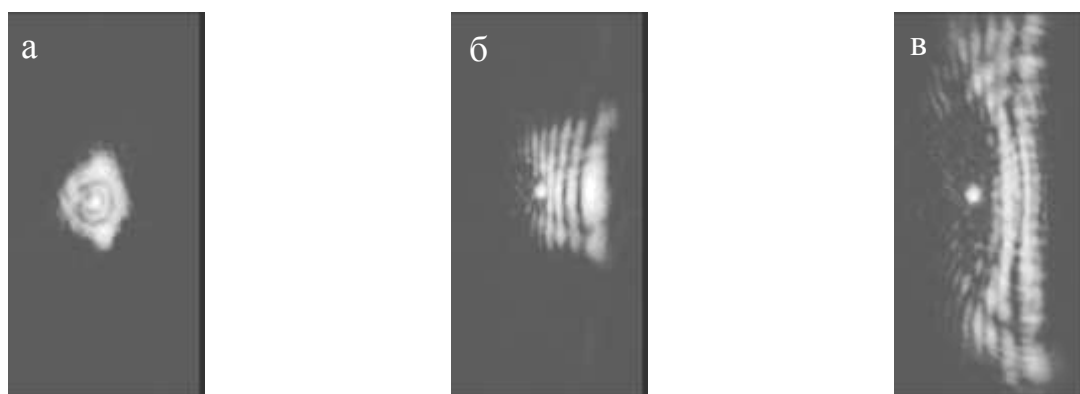


Рис. 14. Абберационные картины при нормальном падении светового пучка ($\lambda = 473$ нм, $P = 2$ мВт) на планарно ориентированный образец ЖКМ-1277 + 0.1% ДЕАНС в зависимости от величины прикладываемого переменного напряжения: (а) $U = 0$, (б) $U = 1$ В (через 60 с после приложения напряжения), (в) $U = 2$ В (через 120 с после приложения напряжения).

Наблюдавшаяся поляризационная зависимость означает, что неоднородное распределение показателя преломления *e*-волны, приводящее к полосатой дифракционной картине, формируется уже под воздействием *o*-волны. При повороте плоскости поляризации абберационная картина визуализируется и увеличивается.

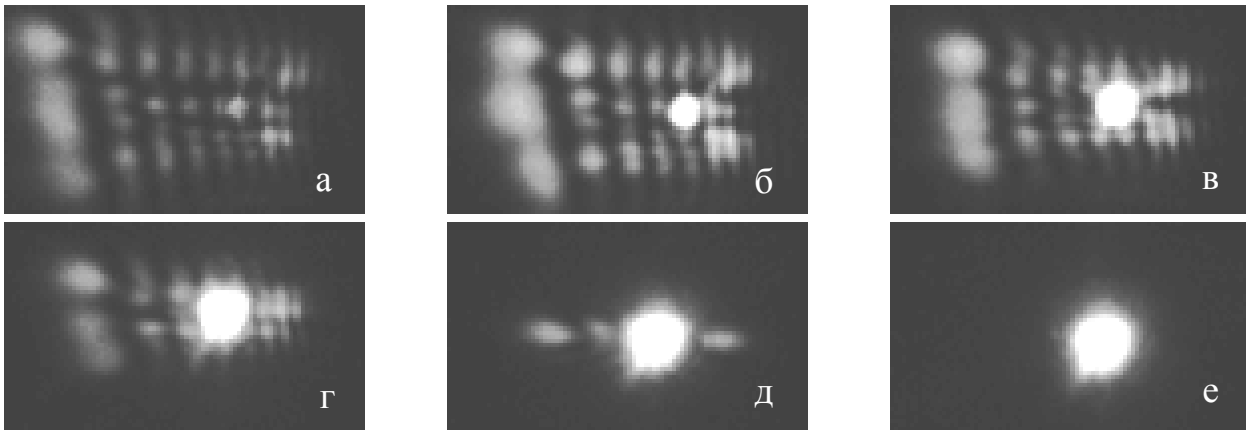


Рис. 15. Абберационные картины при наклонном ($\alpha = 50^\circ$) падении светового пучка ($\lambda = 473$ нм, $P = 2$ мВт) на планарно ориентированный образец ЖКМ-1277 + 0.1% ДЕАНС при различных углах φ поворота плоскости поляризации: (а) $\varphi = 0^\circ$, (б) $\varphi = 10^\circ$, (в) $\varphi = 30^\circ$, (г) $\varphi = 50^\circ$, (д) $\varphi = 70^\circ$ и (е) $\varphi = 90^\circ$. Значение $\varphi = 0^\circ$ соответствует необыкновенной волне, $\varphi = 90^\circ$ – обыкновенной. При других значениях φ в НЖК распространяется суперпозиция этих волн.

Как уже было отмечено выше, результаты для разных длин волн из спектрального диапазона 458–515 нм качественно совпадают. Однако имеются и небольшие различия. Так, в случае нормального падения света при $\lambda = 458$ нм возникали тепловые кольца, которые, так же как при $\lambda = 473$ нм с течением времени приобретали полосатую структуру. На линии $\lambda = 515$ нм при нормальном падении также возникали тепловые кольца, однако их форма со временем не изменялась и полосатая структура не возникала.

Самовоздействие света в НЖК ЖКМ-1277 + 0.025% ДЕАНС

При меньшей концентрации красителя эффект самовоздействия при $\lambda = 473$ нм был аналогичен наблюдавшемуся для концентрации 0.1% для больших длин волн. При больших углах падения света на кристалл ($\alpha \geq 60^\circ$) картина имела кольцевую структуру. При уменьшении угла падения ($\alpha \sim 40^\circ$) в центре картины выделялась вертикальная полоса, её знак соответствовал самофокусировке.

Самовоздействие света в НЖК ЖКМ-13N + 0.1% ДЕАНС

При наклонном падении света ($\alpha = 50^\circ$) для излучения с длиной волны $\lambda = 458$ нм при $P = 2$ мВт абберационная картина имела вид сильно вытянутого по вертикали кольца самофокусировки. Увеличение мощности ($P = 5$ мВт) превращало кольцо в вертикальную полосу. Приложение переменного низкочастотного поля ($U = 3$ В) схлопывало картину.

Для излучения с длиной волны $\lambda = 473$ нм (вблизи максимума поглощения) имела место конкуренция теплового самовоздействия (самодефокусировка) и ориентационного самовоздействия (самофокусировка). Анизотропия абберационной картины не наблюдалась.

Обсуждение экспериментальных результатов

Качественное отличие абберационных картин самовоздействия светового пучка в НЖК с примесью ДЭАНС от обычно наблюдаемой системы достаточно симметричных абберационных колец заставляет предположить, что в её формировании участвует механизм, отличный от нагрева и переориентации директора из-за воздействия светового поля на индуцированные диполи или из-за изменения дисперсионных межмолекулярных сил при поглощении света. Этот механизм, очевидно, должен характеризоваться особенно сильной нелокальностью нелинейнооптического отклика.

Недостаточность упомянутых выше эффектов для объяснения самовоздействия света подтверждается также следующими экспериментальными результатами. При $P = 1$ мВт при нормальном падении света на НЖК расходимость прошедшего пучка весьма мала. Учитывая, что в этой геометрии тепловая нелинейность максимальна, мы можем сделать вывод, что при данной мощности тепло не играет заметной роли в формировании абберационной картины. Величина угла светоиндуцированного поворота директора (и соответствующее изменение показателя преломления) сильно зависит от поляризации света; в случае падения на планарный НЖК o -волны поворот вообще должен отсутствовать. В нашем же случае мы видим развитую картину и при освещении кристалла светом с поляризацией близкой к o -волне.

Подобное поведение может быть следствием фоторефрактивного эффекта, т.е. поворота директора под действием электрического поля, созданного фотоиндуцированными зарядами. Этот эффект может быть, в принципе, поверхностным [23, 24] или объёмным [25, 26]. При объёмном эффекте генерация зарядов происходит в объёме НЖК. Её эффективность должна зависеть от поглощения,

а, значит, и от поляризации света. Последующее пространственное разделение зарядов разного знака (вследствие их неодинаковой подвижности или приложения внешнего напряжения) и создает электрическое поле, вызывающее переориентацию директора. При поверхностном фоторефрактивном эффекте свет изменяет концентрацию заряда, который локализуется вблизи поверхности кристалла при приложении внешнего постоянного поля. Эффективность поверхностного фоторефрактивного эффекта не зависит от поляризации излучения [21, 22].

В нашем эксперименте абберационная картина изменяет свой размер и форму при вращении плоскости поляризации. Поэтому мы предполагаем, что основную роль в формировании наблюдаемой картины играет объёмный фоторефрактивный эффект.

Рассмотрим формирование абберационной картины при реализации объёмного фоторефрактивного эффекта. Эффективность образования зарядов, очевидно, пропорциональна интенсивности света. В нашем случае, вследствие сильного затухания световой волны (коэффициент поглощения $\alpha_{\parallel} = 400 \text{ см}^{-1}$ для концентрации красителя 0.1%), образование зарядов наиболее эффективно вблизи входной (для светового пучка) стенки кристалла. Предположим, что большей подвижностью обладают положительные заряды. Тогда, распределения зарядов и соответствующее поле директора НЖК в области действия светового пучка можно представить в виде, изображенном на рис. 16.

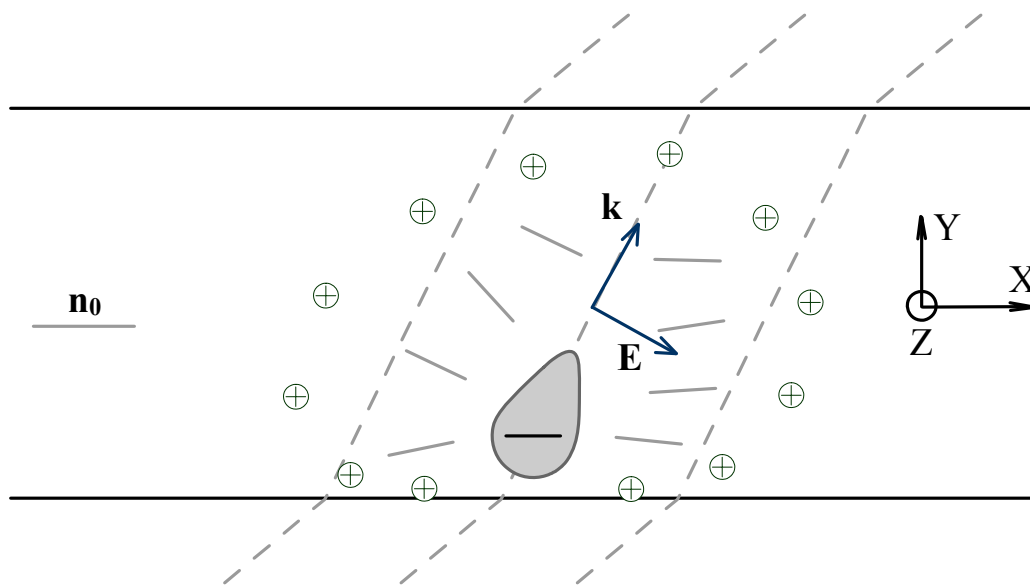


Рис. 16. Распределение фотоиндуцированных зарядов и соответствующее поле директора при облучении планарного НЖК световым пучком. \mathbf{E} и \mathbf{k} – электрическое поле и волновой вектор световой волны.

Созданное разделившимися зарядами электрическое поле приведет к асимметричному (относительно оси пучка) повороту директора и соответствующему изменению профиля показателя преломления. Слева от оси пучка директор будет преимущественно разворачиваться вдоль направления вектора \mathbf{E} световой волны, что увеличит показатель преломления (рис. 17). Справа от оси пучка – разворот директора будет происходить в противоположном направлении, при этом показатель преломления уменьшится. Соответствующая деформация волнового фронта также представлена на рис. 17. Подобная асимметричная деформация волнового фронта приведёт к асимметричному искажению абберрационной картины, наблюдаемой в дальней зоне дифракции. Вертикальный профиль волнового фронта останется, очевидно, симметричным (как и вертикальное распределение интенсивности абберрационной картины).

Согласно данной схеме, можно ожидать отклонения наиболее интенсивного (центрального) луча падающего пучка (точка 1) влево, что соответствует эксперименту (рис. 11а). При смещении пучка в точку 2 (сдвиг кристалла вправо) зондирующий пучок будет проходить через более плоскую часть волнового фронта и следует ожидать уменьшение горизонтальной расходимости картины (рис. 12б). При смещении в противоположную сторону (точка 3) горизонтальная расходимость будет максимальна.

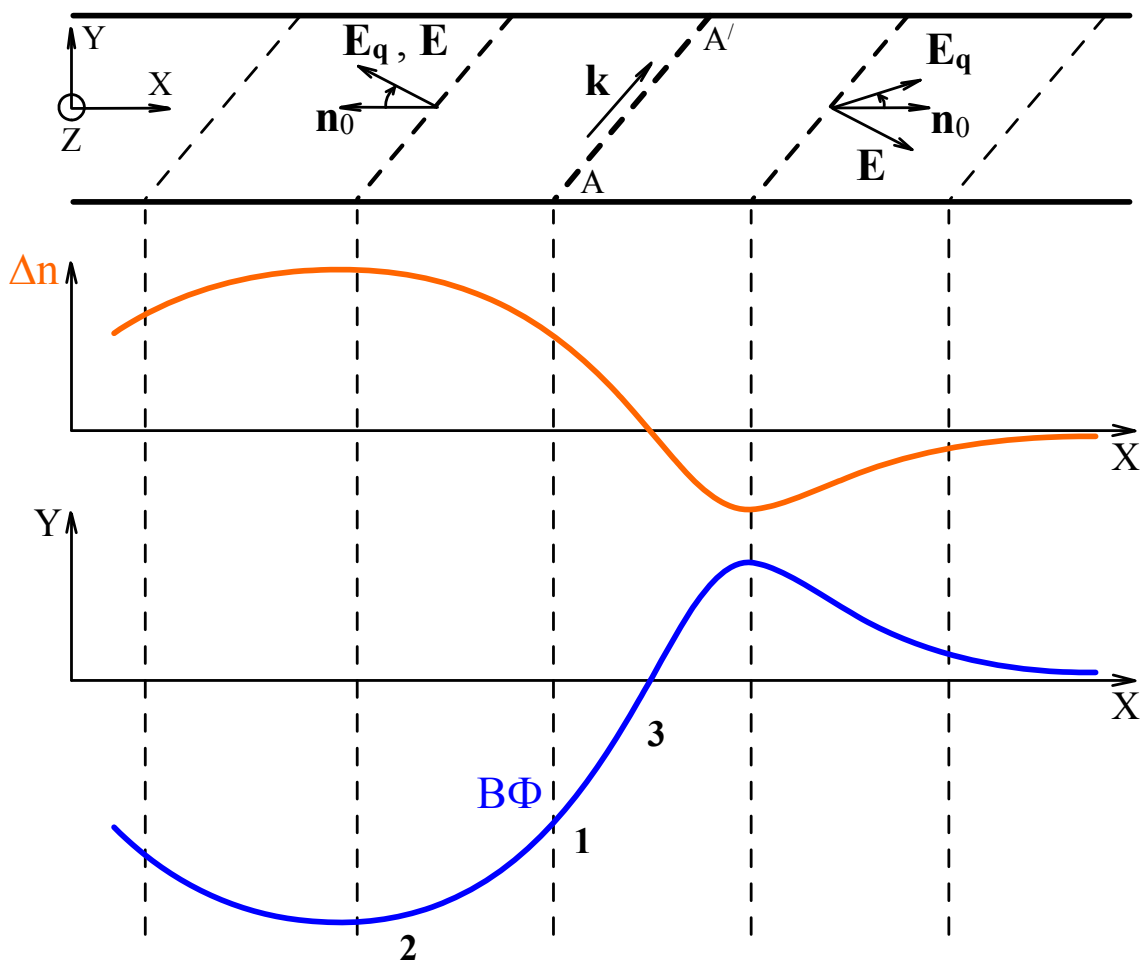


Рис. 17. Трансформация профиля показателя преломления (n) и профиля волнового фронта (ВФ) в горизонтальном сечении кристалла. 1 – начальное положение оси пучка, 2 – положение оси зондирующего пучка при сдвиге кристалла вправо, 3 – положение оси зондирующего пучка при сдвиге кристалла влево.

Трансформацию абберационной картины при приложении постоянного поля (рис. 13) также можно объяснить объёмным фоторефрактивным эффектом. Действительно, приложение напряжения, в зависимости от полярности, должно приводить к смещению области малоподвижных зарядов к передней или задней поверхности кристалла. В первом случае это приведёт к увеличению градиента показателя преломления вдоль горизонтали и вытягиванию абберационной картины. При противоположной полярности увеличение напряжения должно приводить к смещению области зарядов к задней стенке кристалла. Для абберационной картины в данном случае должен наблюдаться плавный переход в “зеркальное отображение” относительно вертикали. Экспериментальные данные согласуются с данной схемой – картина увеличивается при одной (положительной) полярности и зеркально симметрична первоначальной при другой (отрицатель-

ной) полярности (при $U = - 1.5$ В). Такое поведение согласуется с нашим предположением о меньшей подвижности отрицательных зарядов.

Заключение

Экспериментально исследовано взаимодействие светового пучка с нематическими жидкими кристаллами (НЖК), легированными стильбеновым красителем.

Самовоздействие света в гомеотропном образце имеет ориентационный характер, при этом проявляются основные черты светоиндуцированного перехода Фредерикса. В поле обыкновенной световой волны при малых углах падения возникали осцилляции расходимости и поляризации светового пучка. Величина (положительной) ориентационной нелинейности превышает соответствующее значение для чистой матрицы примерно в 40 раз (при концентрации красителя 0.1%). При достаточно длительном облучении (~ 10 мин) наблюдался эффект памяти—запоминаемая деформация поля директора, обусловленная светоиндуцированным изменением ориентирующих свойств поверхности.

При взаимодействии светового пучка с планарным образцом впервые наблюдалась абберационная картина, характеризующаяся сложным асимметричным распределением интенсивности, качественно отличная от системы концентрических колец. При малых мощностях (≤ 2 мВт) и наклонном падении светового пучка картина представляла собой систему вертикальных полос.

Изменение направления поворота НЖК (знака угла падения) приводило к симметричному отображению абберационной картины. Постоянное напряжение, в зависимости от полярности, либо увеличивало асимметрию, либо приводило к отображению картины. Форма и размер картины зависели от поляризации света, при этом деформация поля директора имела место даже в поле обыкновенной волны. Изучение свойств картины позволило предположить, что её возникновение обусловлено объёмным фоторефрактивным эффектом.

Авторы благодарны Б.А. Уманскому за полезные обсуждения и Н.И. Люханову за помощь в проведении эксперимента.

Работа была поддержана Российским фондом фундаментальных исследований (проект № 05-02-17418) и программой поддержки молодых учёных Президиума РАН (И.А. Будаговский и М.П. Смаев).

Литература

1. I. Janossy, L. Csillag, and A.D. Lloyd, *Phys. Rev. A*, **44**(12), 8410 (1991).
2. М.И. Барник, А.С. Золот'ко, В.Г. Румянцев, Д.Б. Терсков, *Кристаллография*, **40**(4), 746 (1995).
3. I. Janossy and L. Szabados, *Phys. Rev. E*, **58**(4), 4598 (1999).
4. V.F. Kitaeva, A.S. Zolot'ko, and M.I. Barnik, *Mol. Materials*, **12**, 271 (2000).
5. I. Janossy, *Phys. Rev. E*, **49**(4) 2957 (1994).
6. L. Marrucci and D. Paparo, *Phys. Rev. E*, **56**(2) 1765 (1997).
7. А.С. Золот'ко, *Письма в ЖЭТФ*, **68**(5) 410 (1998).
8. S.T. Sun, W.M. Gibbons, and P.J. Shannon, *Liq. Cryst.*, **12**, 869 (1992).
9. D.B. Terskov, A.S. Zolot'ko, M.I. Barnik, and V.G. Rummyantsev, *Mol. Materials*, **6**, 151 (1996).
10. I.C. Khoo, M.Y. Shih, M.V. Wood, P.H. Chen, *Synth. Met.*, **115**, 145 (2000).
11. I. C. Khoo, M. V. Wood, M. Y. Shih, and P. H. Chen, *Opt. Exp.*, **4**(11) (1999).
12. С.А. Харченко, Исследование светоиндуцированной переориентации директора в нематических жидких кристаллах, легированных красителями, методом абберационной самофокусировки, Выпускная квалификационная работа на степень бакалавра, МФТИ, (1998).
13. M.I. Barnik, S.A. Kharchenko, V.F. Kitaeva, A.S. Zolot'ko, *Mol. Cryst. Liq. Cryst.*, **375**, 363 (2002).
14. А.С. Золот'ко, В.Ф. Китаева, Д.Б. Терсков, *ЖЭТФ*, **6**(12), 1722 (1994).
15. M.I. Barnik, V.F. Kitaeva, A.S. Zolot'ko, *Mol. Cryst. Liq. Cryst.*, **391**, 111 (2003).
16. В.Ф. Китаева, А.С. Золот'ко, Светоиндуцированный эффект Фредерикса: препринт № 38, Москва, ФИАН (1989).
17. E. Ouskova, D. Fedorenko, Yu. Reznikov, S.V. Shiyanovskii, L. Su, J.L. West, O.V. Kuksenok, O. Francescagneli, F. Simoni, *Phys. Rev. E*, **63**, 021701 (2001).
18. I. Janossy, A. Vajda, T. Paksi, and T. Kosa, *Mol. Cryst. Liq. Cryst.*, **359**, 477 (2001).
19. А.С. Золот'ко, В.Ф. Китаева, Н. Кроо, Н.Н. Соколев, А.П. Сухоруков, В.А. Трошкин, Л. Чиллаг, *ЖЭТФ*, **87**(3), 859 (1984).
20. A.S. Zolot'ko, V.F. Kitaeva, N.N. Sobolev, V.Yu. Fedorovich, A.P. Sukhorukov, N. Kroo, and L. Csillag, *Liq. Cryst.*, **15**, 787 (1993).
21. И.А. Будаговский, А.С. Золот'ко, В.Ф. Китаева, В.Н. Очкин, М.П. Смаев, М.И. Барник, *Краткие сообщения по физике ФИАН*, № 3, 24 (2006).

22. A.S. Zolot'ko, I.A. Budagovsky, V.F. Kitaeva, V.N. Ochkin, A.V. Shakun, M.P. Smayev, and M.I. Barnik, *Mol. Cryst. Liq. Cryst.*, **454**, 415 (2006).
23. P. Pagliusi and G. Cipparrone, *Appl. Phys. Lett.*, **80**, 168 (2002).
24. V. Boichuk, S. Kucheev, J. Parka, V. Reshetnyak, Y. Reznikov, I. Shiyanskaya, K.D. Singer, S. Slussarenko, *J. Appl. Phys.*, **90**, 5963 (2001).
25. Е.В. Руденко, А.В. Сухов, *ЖЭТФ*, **105**, 1621 (1994).
26. G.P. Wiederrecht, B.A. Yoon, M.R. Wasielewski, *Science*, **270**, 1794 (1995).