АКУСТИЧЕСКИЙ ЖУРНАЛ

Том XXXIII 1987 Вып. 3

УДК 534:532.783

# ИМПУЛЬСНОЕ ЛАЗЕРНОЕ ВОЗБУЖДЕНИЕ АКУСТИЧЕСКИХ ВОЛН В НЕМАТИЧЕСКИХ ЖИДКИХ КРИСТАЛЛАХ

*Садовский В. Н., Усова Н. А.*

В линейном приближении получены зависимости плотности, температуры, скорости гидродинамического течения и ориентации директора нематического жидкого кристалла от времени при импульсном тепловом воздействии интерференционного поля двух плоских световых волн. Обсуждаются оптические характеристики возникающей пространственной периодической модуляции параметров кристалла.

К настоящему времени тепловой механизм оптической (лазерной) генерации звука в изотропной жидкости широко изучен как экспериментально, так и теоретически [1, 2]. Основные закономерности этого процесса хорошо описываются линейной теорией в тех случаях, когда интенсивность поглощаемого света невелика, так что скорость расширения нагреваемой области мала по сравнению со скоростью звука в среде.

Ограничиваясь именно этим случаем, при описании упругих волн в жидком кристалле (ЖК) воспользуемся линеаризованными уравнениями континуальной теории Эриксена — Лесли для малых отклонений давления: $\delta p=p-p_0=(\partial p/\partial T)_\rho\delta T+(\partial p/\partial\rho)_T\delta\rho$, плотности $\delta\rho=\rho-\rho_0$, температуры $\delta T=T-T_0$, внутренней энергии $\delta U=U-U_0=(\partial U/\partial T)_\rho\delta T+(\partial U/\partial\rho)_T\delta\rho$, скорости гидродинамического течения $v$ и директора $\delta\mathbf{n}=\mathbf{n}-\mathbf{n}^0$ от равновесных значений, приведенными в работе [3], придерживаясь принятых там обозначений. Учитывая сжимаемость ЖК, добавим к диссипативной части тензора напряжений дополнительные члены $(\alpha_1 d_{kk}+\alpha_2 n_k^0 n_m^0 d_{km})\delta_{ij}+$ $+\alpha_3 n_i^0 n_j^0 d_{kk}$.

В случае коротких световых импульсов, таких что $\tau_{имп}\ll\tau_s=h/v_s$ (где $v_s$ — скорость звука, $h$ — характерный пространственный масштаб источника тепла), нагрев вещества происходит при постоянной плотности, т. е. $\delta\rho=0$ [4]. Кроме того, при $\tau_{имп}\ll\rho_0 c_v h^2/K=\tau_T$, где $\tau_T$ — характерное время теплопроводности, $K$ — коэффициент теплопроводности, $c_v$ — удельная теплоемкость при постоянном объеме и при $\rho_0 c_v\partial(\delta T)/\partial t\gg K\delta T_{,j,j}$, за время $\tau_{имп}$ в результате поглощения энергии импульса устанавливается неоднородное распределение температуры в образце в соответствии с видом источника $Q$: $\rho_0 c_v\partial(\delta T)/\partial T=Q(\mathbf{r}, t)$. При этом, если время $\tau_{имп}$ короче всех характерных времен системы, то детали временной структуры импульса оказываются несущественными на временах, больших $\tau_{имп}$. В случае источника тепла, заданного интерференционным полем двух световых импульсов

$$Q=Q_0\delta(t-t_0)(\exp(i\mathbf{qr})+\text{к.с.}),\qquad(1)$$

в среде образуется тепловая решетка с волновым вектором $\mathbf{q}$ и шагом $h=2\pi/q$. На второй стадии, имеющей характерное время $\tau_s\sim\omega_s^{-1}$, происходит выравнивание давлений за счет упругих волн. Если характерный размер $h\gg K(\rho_0 c_v v_s)^{-1}$, что соответствует условию $\tau_s\ll\tau_T$, влиянием теплопроводности на процесс генерации звука на этой стадии можно пренебречь, так что выравнивание температуры произойдет на третьей стадии с характерным временем $\tau_T$.

Сделаем оценки для нематического ЖК (НЖК). Для $\rho_0\sim10^3$ кг/м$^3$, $K\sim0{,}1$ Вт/(м·К), $c_v\sim10^3$ Дж/(кг·К), $v_s\sim10^3$ м/с получим $K(\rho_0 c_v v_s)^{-1}\sim$ $\sim10^{-10}$ м. В случае интерференционного поля, образованного световыми пучками с длиной волны 0,5 мкм, условие $\tau_s\ll\tau_T$ хорошо выполняется для любых углов схождения. Затухание звука за счет вязкости также мало на расстояниях порядка длины волны (так как $\tau_v\equiv\rho_0 h^2\mu^{-1}\sim\tau_T\gg\tau_s$) и может быть учтено методом последовательных приближений, как и обычно в изотропной жидкости. Рассматривая поведение директора на временах $\tau \ll \lambda_1 h^2/k_{11} = \tau_\phi$, можно пренебречь силами упругости Франка, так как $\lambda_1 \partial(\delta n_i)/\partial t \gg k_{11}\delta n_{i,\,j,\,j}$. Для типичных значений вязкости и констант упругости жидкого кристалла $\lambda \sim \mu \sim 5\cdot 10^{-3}$ Па·с и $K_{11} \sim 4\cdot 10^{-12}$ Н получаем $\tau_\phi \sim 10^2 \tau_\tau \gg \tau_s$. Таким образом, на временах $\sim\tau_s$ ориентация директора полностью определяется полем скоростей акустических волн, возникших в жидком кристалле в результате его нагрева, и лишь спустя время $\tau_\phi$ становится существенным действие упругих сил Франка, стремящихся вернуть директор к невозмущенному состоянию. Проведенный анализ показывает, что в системе существует иерархия временных масштабов $\tau_{\text{имп}} \ll \tau_s \ll \tau_v \ll \tau_\tau \ll \tau_\phi$ и, следовательно, имеется набор малых параметров, представляющих собой отношение характерных времен. Наличие малых параметров позволяет получить компактные приближенные решения уравнений гидродинамики ЖК.

Вследствие специального вида источника тепла (1) $\{\mathbf{v}(\mathbf{r}, t), \delta\mathbf{n}(\mathbf{r}, t), \delta\rho(\mathbf{r}, t), \delta T(\mathbf{r}, t)\} = \{\mathbf{v}(t), \delta\mathbf{n}(t), \delta\rho(t), \delta T(t)\}\exp(i\mathbf{qr}) + \text{к.с.}$ Отметим, что проекции уравнений для скорости гидродинамического течения и директора на направление, ортогональное плоскости $(\mathbf{n}^0, \mathbf{q})$, оказываются независимыми от остальных уравнений и не содержат источников. Поэтому без ограничения общности можно считать $\mathbf{v}$ и $\delta\mathbf{n}$ лежащими в плоскости $(\mathbf{n}^0, \mathbf{q})$. Скорость гидродинамического течения удобно разложить на продольную $v_l = (\mathbf{vq})/q$ и поперечную $v_t$ (вдоль $\mathbf{n}^0 - (\mathbf{n}^0\mathbf{q})\mathbf{q}/q^2$) компоненты, а учет условия для директора $|\mathbf{n}| = 1$ оставляет лишь одну независимую компоненту $\delta\mathbf{n}$. Таким образом, после преобразования Лапласа для нулевых начальных условий уравнения гидродинамики НЖК примут вид

$$s\widetilde{\delta\rho} - iq_l\rho_0\tilde{v}_l = 0, \tag{2}$$

$$(\eta_1 q^2 + \rho_0 s)\,\tilde{v}_l + \eta_2 q^2\tilde{v}_t + i\xi_1 qs\widetilde{\delta n} - iq\left(\frac{\partial p}{\partial T}\right)_\rho \widetilde{\delta T} - iq\left(\frac{\partial p}{\partial \rho}\right)_\tau \widetilde{\delta\rho} = 0, \tag{3}$$

$$\eta_3 q^2\tilde{v}_l + (s\rho_0 + \eta_4 q^2)\,\tilde{v}_t + isq\xi_2\widetilde{\delta n} = 0, \tag{4}$$

$$(s\rho_0 c_v + K_1 q^2 + K_2(\mathbf{n}^0\mathbf{q})^2)\,\widetilde{\delta T} + s\left(\frac{\partial U}{\partial \rho}\right)_\tau \rho_0\widetilde{\delta\rho} - ip_0(q_i\tilde{v}_i) = Q_0\exp(-st_0), \tag{5}$$

$$(s - Lq^2)\,\delta n - iq(L_1\tilde{v}_l - L_2\tilde{v}_t) = 0, \tag{6}$$

где

$$\eta_1 = \mu_4 + \alpha_1 + (\mu_3 + \mu_6 + \alpha_2 + \alpha_3)\cos^2\gamma + \mu_1\cos^4\gamma,$$

$$\eta_2 = (2\mu_1\cos^2\gamma + \mu_3 + \mu_2 + \mu_5 + \mu_6 + 2\alpha_2)\sin 2\gamma/4,$$

$$\eta_3 = -(\mu_1\cos^2\gamma + \mu_6 + \alpha_3)\sin 2\gamma/2, \qquad \eta_4 = (\mu_4 + (\mu_5 - \mu_6)\cos^2\gamma + {}$$
$$+ (2\mu_1\cos^2\gamma + \mu_3 + \mu_6)\sin^2\gamma/2,$$

$$\xi_1 = (\mu_2 + \mu_3)\sin 2\gamma/2; \qquad \xi_2 = (\mu_2\cos^2\gamma - \mu_3\sin^2\gamma),$$

$$L_1 = \lambda_2\sin(2\gamma)/2\lambda_1, \qquad L_2 = (\lambda_2\cos(2\gamma)/2\lambda_1 - 1)/2,$$

$L = (k_{33}\cos^2\gamma + k_{11}\sin^2\gamma + \chi_a H^2)/\lambda_1$, $\gamma$ — угол между векторами $\mathbf{q}$ и $\mathbf{n}^0$.

Решения системы уравнений (2)—(6) являются аналитическими функциями $s$ за исключением изолированных точек $s_k$, в которых детерминант этой системы равен нулю. Нули детерминанта оказываются простыми и соответствуют тем нормальным модам НЖК, для которых $\mathbf{v}$ и $\delta\mathbf{n}$ лежат в плоскости $\mathbf{n}^0$, $\mathbf{q}$. Главные члены в разложении $s_k$ по отношениям характерных времен имеют вид $s_{1,2} = \pm iqv_s + \Delta$, $s_3 = (L_2\xi_2 - \eta_4)q^2/\rho_0$, $s_4 = -Kq^2/(\rho_0 c_p)$, $s_5 = Lq^2\eta_4/(\eta_4 - L_2\xi_2)$, где $K = K_1 + K_2\cos^2\gamma$, $v_s$ — адиабатическая скорость звука, $c_p$ — теплоемкость при постоянном объеме, $\Delta = (L_2\xi_2 + L_1\xi_1 - \eta_1)q^2/2\rho_0$ — чисто действительная поправка к корням $s_{1,2} = \pm iqv_s$, соответствующим двум продольным звуковым волнам, распространяющимся в направлениях $\pm\mathbf{q}$, и описывающая их затухание. Корни $s_3 \div s_5$ — чисто действительные и соответствуют вязкой сдвиговой, тепловой и ориентационной модам соответственно. Поправки к этим корням, вычисленные в следующем приближении, оказываются также чисто действительными и поэтому опущены.

Вследствие условий устойчивости особые точки решений системы $s_k$, являющиеся простыми полюсами, расположены в левой полуплоскости, поэтому расчет зависимости $\mathbf{v}$ и $\delta\mathbf{n}$ от времени с помощью преобразования Лапласа сводится к вычислению вычетов в точках $s_k$. Для нулевых начальных условий получаем

$$\delta\rho = \frac{Q_0\chi}{c_p}\{\cos(\Omega(t-t_0))\exp[-\Delta(t-t_0)] - \exp[s_4(t-t_0)]\}\exp(i\mathbf{qr}) + \text{к. с.},$$

$$\delta T = \frac{Q_0}{\rho_0 c_p}\left\{\frac{c_p-c_v}{c_v}\cos(\Omega(t-t_0))\exp[-\Delta(t-t_0)] + \right.$$

$$\left. + \exp[s_4(t-t_0)]\right\}\exp(i\mathbf{qr}) + \text{к. с.},$$

$$v_l = \frac{Q_0\chi}{\rho_0 c_p} v_s i \sin(\Omega(t-t_0))\exp[-\Delta(t-t_0)]\exp(i\mathbf{qr}) + \text{к. с.}, \tag{7}$$

$$v_t = \frac{Q_0\chi q^2}{\rho_0{}^2 c_p} v_s \frac{\eta_3 - L_1\xi_2}{\Omega}\{\cos(\Omega(t-t_0))\exp[-\Delta(t-t_0)] +$$

$$+ \exp[s_3(t-t_0)]\}\exp(i\mathbf{qr}) + \text{к. с.},$$

$$\delta n = \frac{Q_0\chi}{\rho_0 c_p}\frac{\lambda_2}{\lambda_1}\frac{\sin 2\gamma}{2}\{\cos(\Omega(t-t_0))\exp[-\Delta(t-t_0)] -$$

$$-(1-A_1)\exp[s_3(t-t_0)] - A_1\exp[s_5(t-t_0)]s_5/s_4\}\exp(i\mathbf{qr}) + \text{к. с.},$$

где $A_1 = (\eta_4 - \eta_3 L_2/L_1)/(\eta_4 - L_2\xi_2) \sim 1$, $\Omega = qv_s$, $\chi$ — изотермическая сжимаемость. В формулах (7) выписаны лишь главные члены в разложениях по отношениям характерных времен, однако в выражении для $\delta n$ сохранен член $s_5/s_4 \sim \tau_т/\tau_ф \sim 10^{-2}$, который становится существенным на временах $\tau_ф$, когда затухнут все остальные вклады. Отметим, что в остальных формулах поправочные члены имеют порядок $10^{-5}$–$10^{-6}$.

Существенным отличием от случая изотропной жидкости является зависимость времен релаксации от ориентации волнового вектора решетки $\mathbf{q}$ по отношению к директору, которая описывается углом $\gamma$. Для более длинных импульсов, сравнимых с каким-либо характерным временем $\tau \sim s_k{}^{-1}$, такая зависимость проявится и в амплитудах. Отметим, что выражения для $\delta\rho$, $\delta T$ и т. д. в случае импульса произвольной длительности и произвольного пространственного распределения получаются из выражений (7) путем замены $Q$ на $\tilde{Q}(t_0)$ (мгновенную пространственную фурье-амплитуду импульса в момент времени $t_0$) и интегрирования по $t_0$ (от $-\infty$ до $t$) и волновому вектору $\mathbf{q}$. Другое отличие состоит в том, что возникает малое поперечное течение $v_t \sim 10^{-3} v_l$. В случае, когда волновой вектор решетки не ортогонален и не параллелен директору, возникает переориентация директора течениями. Амплитуда переориентации пропорциональна отношению $\lambda_2/\lambda_1$. Это же отношение задает асимптотический угол ориентации директора потоком при Пуазейлевском течении [3].

Рассмотрим оптическое проявление пространственной периодической модуляции параметров НЖК на примере дифракции пробной волны. Дифракционную эффективность слабой решетки в приближении заданной амплитуды зондирующей волны для случая синхронизма в слабопоглощающей среде можно оценить по формуле

$$\frac{I_s(d)}{I_p(0)} = \left(\frac{e_i{}^p \delta\varepsilon_{ij} e_j{}^s}{2\varepsilon_s} k_s d\right)^2, \tag{8}$$

где $k_s$ и $\varepsilon_s$ — волновой вектор и диэлектрическая проницаемость для рассеянной волны, $\delta\varepsilon_{ij}$ — амплитуда решетки тензора диэлектрической проницаемости, $\mathbf{e}^p$, $\mathbf{e}^s$ — векторы поляризации пробной и рассеянной в первый порядок волн, $d$ — толщина ячейки. Тензор диэлектрической проницаемости НЖК имеет вид

$$\varepsilon_{ij}=\varepsilon_{\perp}\delta_{ij}+\varepsilon_{a}n_{i}n_{j}, \tag{9}$$

где $\varepsilon_{\perp}$ — диэлектрическая проницаемость для обыкновенной волны, а $\varepsilon_{a}$ — анизотропия диэлектрической проницаемости. Изменение диэлектрической проницаемости (показателя преломления) НЖК происходит в основном за счет зависимости параметра ориентационного порядка $S$ от температуры, поворота оптической оси при переориентации директора и от изменения плотности. Сохраняя в разложении $\varepsilon_{ij}$ лишь линейные члены по параметру порядка $S$, плотности $\rho$ и повороту директора $\delta\mathbf{n}$, из формулы (9) получим

$$\delta\varepsilon_{ij}=\left(\frac{\varepsilon_{\perp}-\varepsilon_{0}}{S}\delta_{ij}+\frac{\varepsilon_{0}}{S}n_{i}n_{j}\right)\frac{\partial S}{\partial T}\delta T+\left(\frac{\varepsilon_{\perp}-1}{\rho}\delta_{ij}+\frac{\varepsilon_{a}}{\rho}n_{i}n_{j}\right)\delta\rho+$$
$$+\varepsilon_{a}(n_{i}\delta n_{j}+n_{j}\delta n_{i}), \tag{10}$$

где $\varepsilon_{0}$ — предельное значение диэлектрической проницаемости $S\to 0$, т. е. в изотропной жидкости. Для широкого класса НЖК $(\varepsilon_{\perp}-\varepsilon_{0})/S$ и $\varepsilon_{a}/S$ можно считать слабо зависящими от температуры и (10) удовлетворительно описывает эффекты, связанные с ориентационным порядком. Более строгий подход, учитывающий нетривиальные эффекты локального поля, можно найти, например, в работе [5]. Используя полученные решения уравнений гидродинамики (7), рассмотрим разложение (10) на разных стадиях. На первой стадии $\delta\varepsilon_{ij}$ осциллирует с частотой $\Omega$, причем осцилляции затухают с постоянной времени $\tau\sim\Delta^{-1}$. Относительный вклад $\delta T$, $\delta\rho$ и $\delta\mathbf{n}$ на этой стадии определяется соотношением $(1/S)(\partial S/\partial T)\times\times(c_p-c_v)/\chi c_v:1:(\lambda_2/\lambda_1)\sin 2\gamma$. Оценка показывает, что $(\partial S/\partial T)(c_p-c_v)/$ $/\chi c_v S\sim 2$, для ПАА при $T=399$ К ($\chi=0{,}84\cdot 10^{-3}$ К$^{-1}$; $c_p/c_v=1{,}22$; $S\sim 0{,}56$; $\partial S/\partial T\sim 3{,}8\cdot 10^{-3}$ К$^{-1}$), а при $T=408$ К та же величина $\sim 30$ ($\chi=3{,}92\cdot$ $\cdot 10^{-3}$ К$^{-1}$; $c_p/c_v=3{,}8$; $S\sim 0{,}4$; $\partial S/\partial T\sim 4\cdot 10^{-2}$ К$^{-1}$) [3, 6]. Таким образом, основной вклад в модуляцию $\delta\varepsilon_{ij}$ дает величина $\delta T$ в отличие от случая изотропной жидкости, в которой зависимость показателя преломления от температуры при постоянной плотности крайне незначительна. Вклад переориентации по порядку величины совпадает с вкладом от $\delta\rho$ и зависит от угла $\gamma$, исчезая при $\gamma=0$ и $\gamma=\pi/2$. На стадии выравнивания температуры ($t\sim s_4^{-1}$) вклад $\delta T$ в $\delta\varepsilon_{ij}$ при $T=399$ К возрастает в $c_v/(c_p-c_v)\sim$ $\sim 4{,}5$ раза, а вблизи фазового перехода — уменьшается в три раза, так как $c_v/(c_p-c_v)\sim 0{,}36$. Вклад $\delta\mathbf{n}$ приобретает фактор $A_1$, сложным образом зависящий от угла $\gamma$ и коэффициентов вязкости. Отметим, что вклад в $\delta\mathbf{n}$, имеющий промежуточное между $\Delta^{-1}$ и $s_4^{-1}$ характерное время $\tau\sim s_3^{-1}$ и соответствующий сильно затухающей сдвиговой моде, можно будет выделить лишь путем тщательного исследования динамики $\delta\varepsilon_{ij}$ при различных геометриях эксперимента. Наконец, на временах $t\sim s_5^{-1}$ вклад $\delta T$ в $\delta\varepsilon_{ij}$ практически исчезает и остается лишь вклад от $\delta\mathbf{n}$, уменьшившийся в $s_4/s_5\sim 10^2$ раз.

Анализ выражения (8) показывает, что поляризационные свойства описанных выше решеток диэлектрической проницаемости существенно различаются. Вследствие того что вектор поляризации обыкновенной волны ортогонален директору $(\mathbf{n}\mathbf{e}^{o})=0$, обыкновенная волна может рассеиваться на ориентационной решетке лишь в необыкновенную. Для решеток, сохраняющих направление оптической оси, к которым относятся тепловые решетки и решетки модуляции плотности $o-e$, рассеяние возможно лишь на большие углы, когда $(\mathbf{e}^{o}\mathbf{e}^{e})$ может заметно отличаться от нуля. Эти геометрические соображения, а также зависимость тепловых нелинейностей от направления распространения волн [7] и анализ конкретных условий синхронизма для толстых решеток позволяют отделить различные вклады в $\delta\varepsilon_{ij}$.

Конкурирующим эффектом при возбуждении ориентационной решетки является прямое воздействие электрического поля $\mathbf{E}$ световых волн [8]. Для коротких световых импульсов ($\tau\ll\tau_{\Phi}$) имеем

$$\delta n_{i}=\frac{\varepsilon_{a}}{16\pi\lambda_{1}}e^{-\delta t}\int[E_{i}(\mathbf{n}^{0}\mathbf{E}^{*})+\mathbf{E}_{i}^{*}(\mathbf{n}^{0}\mathbf{E})-2n_{i}^{0}(\mathbf{E}\mathbf{n}^{0})^{2}]\,dt. \tag{11}$$

Оценка показывает, что в этом случае $\delta\varepsilon \simeq \varepsilon_a^2 W/2\lambda_1 c \sim 0{,}7\cdot 10^{-2}\, W$, где $c$ — скорость света, $W$ [Дж/см$^2$] — поток энергии падающего излучения. В сравнении с решеткой, вызванной течением $\delta\varepsilon_{теч} \sim (\lambda_2/\lambda_1)(\varepsilon_a \chi Q_0/\rho_0 c_p) \sim$ $\sim 4\cdot 10^{-4}\, Q_0$ [Дж/см$^3$], при коэффициенте поглощения $\alpha \sim 10\%$ для ячейки толщиной 100 мкм, решетка, связанная с прямым воздействием световых волн, оказывается того же порядка. Однако из выражения (11) следует, что эта решетка не может быть записана двумя обыкновенными волнами, а направление отклонения директора определяется векторами поляризации записывающих волн. Таким образом, выбор геометрии возбуждения и исследование поляризационных свойств рассеяния позволяют разделить оба эффекта.

Авторы благодарны Зельдовичу Б. Я. за ценные критические замечания.

## ЛИТЕРАТУРА

1. *Лямшев Л. М., Седов Л. В.* Оптическая генерация звука в жидкости. Тепловой механизм (Обзор) // Акуст. журн. 1981. Т. 27. № 1. С: 5—29.
2. *Божков А. Л., Бункин Ф. В.* Генерация звука в жидкости при поглощении в ней лазерного излучения с модулированной интенсивностью // Квантовая электроника. 1975. Т. 2. № 8. С. 1763—1776.
3. *Чандрасекар С.* Жидкие кристаллы. М.: Мир. 1980. 344 с.
4. *Ивакин Е. В., Рубанов А. С., Степанов Б. И.* Интерференционно-оптическое возбуждение акустических колебаний в поглощающих средах // Письма в ЖТФ. 1976. Т. 2. № 10. С. 466—469.
5. *Аверьянов Е. М., Шабанов В. Ф.* Оптическая анизотропия нематических жидких кристаллов: Препринт ИФСО-61Ф. Красноярск, 1977.
6. *Капустин А. П.* Экспериментальные исследования жидких кристаллов. М.: Наука, 1984. 368 с.
7. *Некрасов Г. Л., Серак С. В.* Температурная зависимость показателя преломления необыкновенной волны в нематических жидких кристаллах при разных углах падения светового пучка // Письма в ЖТФ. 1981. Т. 7. № 22. С. 1347—1351.
8. *Зельдович Б. Я., Табирян Н. В.* Ориентационная оптическая нелинейность мезофазы жидких кристаллов. 1. Нематики: Препринт № 63. М.: ФИАН, 1980.

Институт электроники
Академии наук БССР

Поступила в редакцию
11.III.1986