

ФОТОИНДУЦИРОВАННАЯ ЭЛЕКТРОПРОВОДНОСТЬ И ФОТОРЕФРАКЦИЯ В НЕМАТИКЕ

Е.В.Руденко, А.В.Сухов

*Институт проблем механики РАН
117526 Москва, Россия*

Поступила в редакцию 22 декабря 1993 г.

Предсказан теоретически и реализован экспериментально новый механизм оптической нелинейности нематиков, основанный на переориентации их оси полем пространственно-неоднородного заряда фотоиндуцированных носителей. Указанный механизм на три порядка сильнее прямого ориентационного.

Общеизвестно, что жидкие кристаллы, и в первую очередь нематики, достаточно легко переориентируются относительно слабыми ($I \div 100 \text{ СГС}_E$) электрическими полями [1], в том числе и оптическими [2], причем в последнем случае переориентация приводит к весьма сильной ориентационной оптической кубичной нелинейности среды.

В то же время, столь же хорошо известно, что оптическое излучение в среде, в которой имеет место фотоиндуцированная проводимость (ФП) с более или менее локальной зависимостью концентрации фотоиндуцированных носителей от интенсивности (например, фоторефрактивные кристаллы – ФРК), может порождать пространственно-неоднородные поля пространственного заряда [3], напряженность которых существенно превосходит таковую самой оптической волны.

Естественно, возникает вопрос: а нельзя ли такого же рода поля возбуждать излучением в жидком кристалле (нематике), и с их помощью записывать в среде ориентационные решетки показателя преломления? Исследованию этого вопроса посвящена настоящая работа.

Итак, основной момент в сформулированном вопросе, подлежащий выяснению, состоит в том, возможна ли в нематике ФП с достаточно локальной зависимостью концентрации носителей от интенсивности и достаточной самой указанной концентрацией, чтобы дебаевский радиус экранирования носителей был существенно меньше характерного размера неоднородности интенсивности (реально – порядка нескольких микрон).

Сведения по фотоиндуцированным изменениям электропроводности нематиков достаточно скудны [4, 5], поэтому мы решили обратить внимание на следующую возможность. Как известно (см. [6]), многие лазерные красители в полярных растворителях (каковым является использованный нами нематик 5СВ) подвержены обратимой гетеролитической диссоциации. Основные механизмы этого явления состоят в существенно различной кислотности основного и возбужденного состояний молекулы красителя, позволяющей осуществить либо протолитические реакции, либо комплексообразование с молекулами растворителя, сопровождающееся гетеролитической диссоциацией комплекса после его перехода в основное состояние. Кинетика этих явлений достаточно сложна и мало исследована, поэтому мы предприняли в рамках данной работы лишь эмпирическую попытку наблюдения ФП.

Именно, нами выяснено, что при освещении слабых (порядка 10^{-4} м/л) растворов родамина 6G (R6G) в нематике 5CB весьма маломощными ($10 \div 100$ мВт/см²) пучками аргонового лазера (длина волны $\lambda = 0,4880$ мкм) проводимость раствора увеличивается обратимым образом более чем в 10 раз и достигает $\sigma = 1,5 \cdot 10^3 \text{ с}^{-1} = 1,5 \cdot 10^{-9} (\text{Ом}\cdot\text{см})^{-1}$. Детальное исследование механизма наблюдаемой ФП выходит за рамки данной работы, поэтому отметим здесь лишь две следующие особенности явления. Во-первых, зависимость σ от интенсивности излучения I имеют вид $(\sigma - \sigma_d) \propto I^{1/2}$, где индекс d относится к темновой проводимости смеси. Во-вторых, зависимость проводимости от концентрации раствора не имеет перколяционного предела при низких концентрациях R6G, что свидетельствует о дрейфовом ионном, а не, скажем, обменном характере проводимости.

Из вышеприведенных значений σ легко оценить концентрацию носителей n^{\pm} и дебаевский радиус экранирования r_d . Действительно, $\sigma \simeq \mu^{\pm} e n^{\pm} = D^{\pm} e^2 n^{\pm} / k_b T$. Здесь e – элементарный положительный заряд, μ и D – соответственно подвижности и коэффициенты диффузии образующихся положительных и отрицательных ионов, $k_b T$ – температура в энергетических единицах. D для образующихся ионов оцениваем сверху как коэффициент самодиффузии нематика (слабой анизотропией последнего в этой работе пренебрегаем): $D \simeq 3 \cdot 10^{-6} \text{ см}^2/\text{с}$, таким образом получая оценку снизу $n^{\pm} \geq 4 \cdot 10^{13} \text{ см}^{-3}$ и оценку сверху $r_d = (4\pi e^2 n^{\pm} / k_b T \epsilon)^{-1/2} \leq 6 \cdot 10^{-5} \text{ см}$. Здесь ϵ – статическая диэлектрическая проницаемость нематика. Таким образом, видно, что концентрация носителей вполне достаточна для записи решеток пространственного периода ≥ 6 мкм ($q r_d \ll 1$, q – волновое число решетки). Перейдем к расчету ожидаемого поля пространственного заряда при освещении образца интерференционной картиной двух волн $I = I_0(I + m \sin(qx))$, см. рис.1. уравнения баланса ионов имеют вид

$$\partial n^{\pm} / \partial t + \gamma n^{+} n^{-} + D^{\pm} \Delta n^{\pm} + \mu^{\pm} (\mathbf{E} \cdot \vec{\nabla}) n^{\pm} = \alpha I(\mathbf{r}). \quad (1)$$

Здесь надо отметить следующее. Во-первых, мы предполагаем, в соответствии с [6], что образуются по мономолекулярному механизму пары однозарядных ионов. Во-вторых, существенным является вопрос, что понимать под рекомбинацией носителей. С точки зрения образования пространственного заряда, рекомбинацией является любой процесс, лишаящий ион подвижности (а не обязательно заряда). Таковой могла бы являться для легких ионов сольватация молекулами нематика (линейная рекомбинация). Однако речь идет о тяжелых ионах R6G, на подвижность которых сольватация молекулами 5CB особого влияния оказывать не должна, поэтому мы полагаем единственным существенным процессом, исключаяющим ионы из образования пространственного заряда, их истинную квадратичную рекомбинацию. Константа последней легко оценивается в диффузионном приближении, $\gamma = D^{\pm} e^2 / k_b T \epsilon$. Тогда отношение членов в левой части (1), описывающих рекомбинацию и диффузионно-дрейфовый снос носителей, по порядку величины составляет $(q r_d)^{-2} \gg 1$, и можно пренебречь последними, что автоматически означает вышеупомянутую локальность связи интенсивности с концентрацией носителей:

$$\partial n^{\pm} / \partial t + \gamma n^{+} n^{-} = \alpha I(\mathbf{r}). \quad (2)$$

Выражение для плотности тока в образце имеет вид

$$\mathbf{j}/e = D^{+} \vec{\nabla} n^{+} - D^{-} \vec{\nabla} n^{-} + \mathbf{E}(\mu^{+} n^{+} + \mu^{-} n^{-} + \sigma_d/e). \quad (3)$$

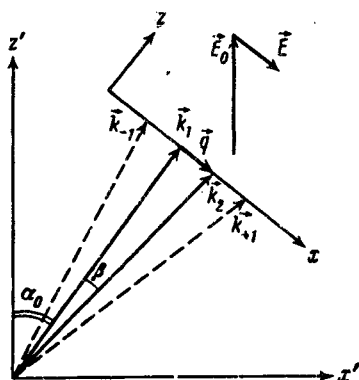


Рис.1

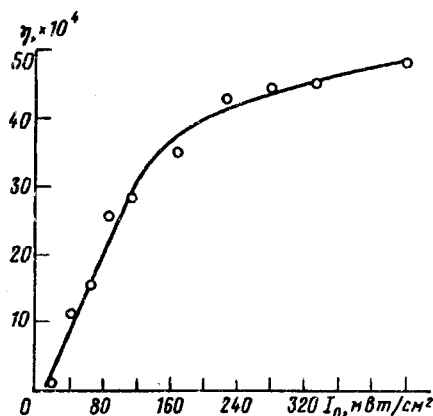


Рис.2

Рис.1. Экспериментальная геометрия наблюдения самодифракции

Рис.2. Зависимость дифракционной эффективности от суммарной интенсивности волн; $E_0 = 186$ В/см, $\beta = 1,4 \cdot 10^{-2}$ рад

Стационарное решение системы (2), (3) в приближении $qr_d \ll 1$ легко проводится методами теории возмущений, см., например, [3], причем в нулевом приближении, исходя из условий средней электронейтральности, $n^+ = n^- = (\alpha I(x)/\gamma)^{1/2}$; и для стационарного значения поля пространственного заряда имеем, полагая $j = 0$:

$$E = \frac{mk_b T}{e} q \nu \frac{\sigma - \sigma_d}{\sigma} \cos(qx), \quad (4)$$

$$\nu = (D^+ - D^-)/(D^+ + D^-); \quad \sigma - \sigma_d = (\mu^+ + \mu^-)(\alpha I_0/\gamma)^{1/2}.$$

Выражение (4) вполне аналогично так называемому диффузионному полю в ФРК [6] в случае электронно-дырочной ФП. Поскольку, в отличие от ФРК, переориентация нематика квадратично зависит от поля, для получения решетки переориентации с тем же q , что и у интерференционной картины, необходимо добавочно приложить к образцу внешнее однородное статическое поле, что и делалось экспериментально (см. рис.1). Расчеты амплитуды ориентационной решетки и дифракционной эффективности η для раман-наттовской самодифракции волн $E_{1,2}$ в $\pm I$ -й дифракционный максимум вполне традиционны, см. [1, 2], приведем лишь их результаты:

$$\eta = \left\{ \frac{\epsilon_a \epsilon_{a0} \sin \alpha_0 \cdot E_0}{I + \epsilon_{a0} E_0^2 / 2\pi K q^2} \frac{L}{\lambda n_e} \frac{mk_b T \nu \sigma - \sigma_d}{e K q} \frac{1}{\sigma} \right\}^2. \quad (5)$$

Здесь $\epsilon_{a,a0}$ - анизотропии диэлектрической проницаемости соответственно на световой и нулевой частотах, α_0 - угол преломления волн в кристалле (считаем $\beta \ll \alpha_0$, см. рис.1); L - толщина гомеотропного образца нематика (100 мкм), K - константа Франка (одноконстантное приближение); n_e - показатель преломления необыкновенной волны.

Проведенный эксперимент в точности соответствует геометрии рис.1. В гомеотропном образце смеси 5CB с R6G (0,75 ммоль/л) пересекались два нефокусированных одномодовых пучка аргонового лазера суммарной интенсивностью ≤ 200 мВт/см². Качественно результаты сводились к следующему.

Вышеописанная самодифракция наблюдалась только при наклонном падении e -волн на образец, что исключает любые механизмы образования решетки ϵ , кроме переориентации оси, и только в присутствии внешнего статического поля, прикладываемого к образцу при помощи прозрачных электродов на границах раздела нематик-стекло. Последнее свидетельствует о том, что переориентирующее пространственно-неоднородное поле также статическое. Были проведены исследования зависимостей $\eta(I_0)$ (при постоянном $m = 0,6$), $\eta(q^{-2})$ и $\eta(E_0^2)$. Первая, представленная на рис.2, линейна при малых I_0 и выходит на насыщение при $\sigma \gg \sigma_d$. Вторая, рис.3а, также линейна. Третья, рис.3б, линейна при малых напряжениях на ячейке и резко растет при приближении последнего к порогу перехода Фредерикса ($\epsilon_{a0} < 0$). Видно, что все три подтверждают выражение (5). Из абсолютной величины $\eta \simeq 0,2$ легко оценить $\nu \simeq 0,02$, то есть подвижности носителей разного знака в данной смеси практически равны. Поэтому потенциально можно ожидать при выборе оптимальной смеси увеличения нелинейности еще на один-два порядка.

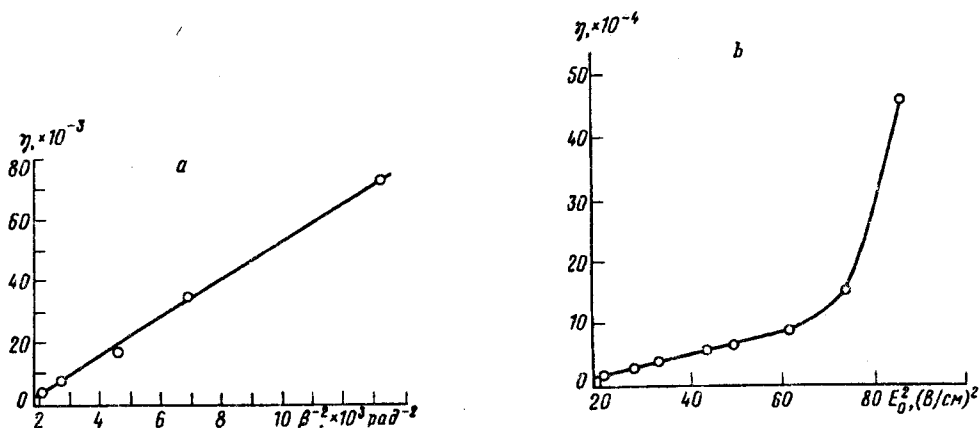


Рис.3. а - зависимость η от β^{-2} , $E_0 = 140$ В/см, $I_0 = 205$ мВт/см²; б - зависимость η от E_0^2 , $I_0 = 95$ мВт/см², $\beta = 1,4 \cdot 10^{-2}$ рад

Итак, есть все основания полагать, что обнаружен фоторефрактивный ориентационный механизм нелинейности нематиков, сравнимый по требуемым интенсивностям с таковыми твердых ФРК и превосходящий "прямую" ориентационную нелинейность нематиков [2] более чем на три порядка.

Авторы признательны М.В.Золотареву, А.В.Мамаеву, Ю.А.Резникову, В.В.Шкунову за полезные обсуждения.

Настоящая работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проект 93-02-16551).

1. Пде Жен, Физика жидких кристаллов, М.: Мир, 1976.
2. N.V.Tabiryap, A.V.Sukhov, and B.Ya.Zel'dovich, M.C.&L.C. 136, 1 (1986).
3. В.П.Белиничер, Б.И.Стурман, УФН 130, 415 (1980).
4. H.Kamei, Y.Katayama, and T.Osawa, Jap. J. Appl. Phys. 11, 1385 (1972).
5. S.Sato, Jap. J. Appl. Phys. 20, 1989 (1981).
6. Ред.Ф.П.Шефер, Лазеры на красителях, М.: Мир, 1976, с.63.