УДК 532.783

ВЫСОКОЧАСТОТНЫЕ ИЗМЕНЕНИЯ ОРИЕНТАЦИИ НЕМАТИЧЕСКИХ ЖИДКИХ КРИСТАЛЛОВ В СКРЕЩЕННЫХ ЭЛЕКТРИЧЕСКИХ ПОЛЯХ РАДИОЧАСТОТНОГО ДИАПАЗОНА

В. М. Клементьев, С. И. Трашкеев, П. А. Стаценко, Т. Д. Валинуров

Институт лазерной физики СО РАН, 630090 Новосибирск E-mail: root@lateh.nsk.ru

На основе численных расчетов и экспериментально исследована динамика ориентации директора нематического жидкого кристалла, находящегося в скрещенных электрических полях радиочастотного диапазона. Показано, что такая система является физическим объектом нелинейной динамики. В зависимости от параметров задачи наблюдались следующие режимы состояний директора: стационарные (аналог беспорогового перехода Фредерикса), периодические, квазипериодические (многомодовые) и стохастические типа странного аттрактора. В расчетах все состояния получены из решения детерминированной системы двух нелинейных дифференциальных уравнений первого порядка, зависящих от времени, в которых отсутствует электрогидродинамическая часть. Все виды полученных решений вплоть до стохастических наблюдались экспериментально.

Ключевые слова: жидкий кристалл, аттрактор, стохастика, эффект Фредерикса.

Введение. Электрооптические свойства жидких кристаллов (ЖК) к настоящему времени достаточно хорошо изучены и отражены в многочисленных публикациях и монографиях [1–4]. В прикладном плане жидкокристаллические среды нашли широкое применение в области отображения информации [2]. Основой такого использования является эффект переориентации директора ЖК (осредненное по тепловым флуктуациям направление длинных осей молекул ЖК), а вместе с ним и оптической оси кристалла под действием электрических полей низкого напряжения — эффект Фредерикса [1]. Временны́е характеристики фредериксовской переориентации, как правило, велики и составляют примерно $10\div100$ мс для нематических ЖК (НЖК). Такое низкое быстродействие, сопровождающее электрооптические изменения в НЖК, обусловлено высоким коэффициентом вращательной вязкости (0,01–0,1 Па · с) [3], характерным практически для всех жидких кристаллов. Поэтому считается, что переориентация директора определяется вязкостью и действующим значением переменного электрического поля независимо от его частоты. В соответствии с этим делается вывод о невозможности реализации в ЖК высокочастотных ориентационных процессов [5].

Цель настоящей работы — изучить поведение ориентации директора НЖК в электрических полях, состоящих из нескольких компонент с различными направлениями и частотами. Показано, что динамика происходящих при этом процессов намного сложнее, чем "простая" фредериксовская переориентация [1]. Движение директора начинает зависеть от амплитуд, частот и фаз приложенных напряжений и может представлять собой незатухающие многочастотные (квазипериодические) осциллирующие или вращательные изменения ориентации вплоть до стохастических режимов типа странного аттрактора. Динамика изучаемых процессов по своей природе не является следствием электрогидродинамической (ЭГД) неустойчивости [4], хотя наблюдаемые явления в ряде случаев сопрово-



Рис. 1. Геометрия взаимодействия директора НЖК с произвольно направленным электрическим полем

ждаются макроскопическими течениями жидкости. Теоретические выводы подтверждены данными предварительных экспериментов.

Впервые на возможность стохастизации ориентационного состояния НЖК при отсутствии ЭГД-эффекта указано в работе [6], в которой экспериментально изучалось взаимодействие НЖК с наклонно падающей световой волной обыкновенного типа. Позже в работе [7], где на основе численных расчетов исследовались детерминированные уравнения, была выявлена возможность реализации квазипериодических и многомодовых режимов в моделях, описывающих эксперимент [6]. Изучение этого явления было продолжено в [8].

Модель настоящей работы, несмотря на то, что она более адекватна случаю взаимодействия НЖК с переменными электрическими полями радиочастотного диапазона, можно рассматривать и как некоторое приближение для описания режимов генерации гармоник в световых когерентных полях. Точнее, модель является первой итерацией, не учитывающей самовоздействие проходящих волн и реализуемой при условии $|\Delta \mathbf{k}| \ll 1/d$, где $|\Delta \mathbf{k}|$ — максимальный разброс волновых векторов в среде; d — характерный размер изменения ориентации.

Уравнения движения. Для вывода динамических уравнений выберем геометрию взаимодействия (рис. 1) в декартовой системе координат $\boldsymbol{r} = (x, y, z)$. Введем обозначения: $\boldsymbol{E} = \boldsymbol{E}(t, \boldsymbol{r})$ — вещественный вектор электрического поля в кристалле; $\boldsymbol{n} = \boldsymbol{n}(t, \boldsymbol{r})$ — единичный вектор (директор); $\boldsymbol{\theta}$ и $\boldsymbol{\varphi}$ — соответственно полярный и азимутальный углы, связанные с \boldsymbol{n} соотношением

$$\boldsymbol{n} = (n_x, n_y, n_z) = (\sin\theta\cos\varphi, \sin\theta\sin\varphi, \cos\theta).$$

Для дальнейшего изложения удобно ввести дополнительные единичные векторы, ортогональные к n:

$$\boldsymbol{m} = (m_x, m_y, m_z) = \frac{\partial \boldsymbol{n}}{\partial \theta} = (\cos \theta \cos \varphi, \cos \theta \sin \varphi, -\sin \theta)$$
$$\boldsymbol{p} = (p_x, p_y, p_z) = \frac{1}{\sin \theta} \frac{\partial \boldsymbol{n}}{\partial \varphi} = (-\sin \varphi, \cos \varphi, 0),$$
$$(\boldsymbol{n}\boldsymbol{m}) = 0, \qquad (\boldsymbol{n}\boldsymbol{p}) = 0, \qquad (\boldsymbol{m}\boldsymbol{p}) = 0.$$

Плотность свободной энергии F для НЖК записывается в виде [1]

$$F = \frac{1}{2} \left[K_1 (\operatorname{div} \boldsymbol{n})^2 + K_2 (\boldsymbol{n} \operatorname{rot} \boldsymbol{n})^2 + K_3 (\boldsymbol{n} \times \operatorname{rot} \boldsymbol{n})^2 \right] - \frac{\varepsilon_a}{8\pi} (\boldsymbol{n} \boldsymbol{E})^2.$$
(1)

В функционале (1) K_1, K_2, K_3 — упругие константы Франка; $\varepsilon_a = \varepsilon_{||} - \varepsilon_{\perp}, \varepsilon_{||}, \varepsilon_{\perp}$ — параметры тензора диэлектрической проницаемости, который выражается через декартовы компоненты директора n_i в виде

$$\varepsilon_{ij} = \varepsilon_{\perp} \delta_{ij} + \varepsilon_a n_i n_j, \qquad i, j = x, y, z,$$
(2)

где δ_{ij} — символ Кронекера.

Для упрощения предположим, что в рассматриваемой области изменения частот электрического поля E значения материальных параметров K_i , ε_{\parallel} , ε_{\perp} являются постоянными.

В одномерном случае, когда все искомые величины зависят только от одной координаты z и от времени t, выражение (1) записывается следующим образом:

$$F = \frac{1}{2} \Big[f \Big(\frac{\partial \theta}{\partial z} \Big)^2 + g \Big(\frac{\partial \varphi}{\partial z} \Big)^2 - \frac{\varepsilon_a}{4\pi} (\boldsymbol{n} \boldsymbol{E})^2 \Big],$$

$$f = f(\theta) = K_1 \sin^2 \theta + K_3 \cos^2 \theta, \qquad g = g(\theta) = \sin^2 \theta (K_2 \sin^2 \theta + K_3 \cos^2 \theta).$$
 (3)

Вариация функционала (3) с учетом релаксационных членов дает систему двух нелинейных уравнений для θ и φ вида

$$\gamma \frac{\partial \theta}{\partial t} = f \frac{\partial^2 \theta}{\partial z^2} + \frac{1}{2} \Big[f_\theta \Big(\frac{\partial \theta}{\partial z} \Big)^2 + g_\theta \Big(\frac{\partial \varphi}{\partial z} \Big)^2 \Big] + \frac{\varepsilon_a}{4\pi} (\boldsymbol{n} \boldsymbol{E}) (\boldsymbol{m} \boldsymbol{E}),$$

$$\gamma \sin^2 \theta \frac{\partial \varphi}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} \Big(g \frac{\partial \varphi}{\partial z} \Big) + \frac{\varepsilon_a}{4\pi} \sin \theta (\boldsymbol{n} \boldsymbol{E}) (\boldsymbol{p} \boldsymbol{E}),$$
(4)

где $f_{\theta} = \partial f / \partial \theta$; $g_{\theta} = \partial g / \partial \theta$; γ — вязкий параметр НЖК. При выводе (4) не учитывались флексоэлектрические добавки и пренебрегалось возможностью возникновения гидродинамических потоков.

Материальные уравнения (4) необходимо дополнить граничными условиями в точках z = 0, L (L -толщина кристалла). Следуя [4], эти условия выбирались в виде

$$\left[K\frac{\partial\theta}{\partial z} \pm a_{\theta}\theta\right]_{z=0,L} = b_{\theta}, \qquad \left[K\frac{\partial\theta}{\partial z} \pm a_{\varphi}\varphi\right]_{z=0,L} = b_{\varphi}, \tag{5}$$

где знаки "±" относятся соответственно к z = 0 и z = L; K — осредненная константа Франка; параметры a_{θ} , a_{φ} , b_{θ} , b_{φ} в общем случае зависят от плотности поверхностной энергии связи директора с ограничивающими плоскостями, флексоэлектрических коэффициентов и электрических полей.

Для получения замкнутой системы к уравнениям (4) необходимо добавить уравнения Максвелла, определяющие связь электрических полей с ориентацией **n**. Пренебрегая проводимостью среды, для радиочастотного диапазона внутри образца запишем

$$\operatorname{div}\left(\hat{\varepsilon}\boldsymbol{E}\right) = 0, \quad \operatorname{rot}\boldsymbol{E} = 0. \tag{6}$$

Здесь $\hat{\varepsilon}$ — тензор диэлектрической проницаемости (2). В одномерном случае уравнения (6) с учетом (2) принимают вид

$$\frac{\partial}{\partial z} \left[\varepsilon_{\perp} E_z + \varepsilon_a n_z (\boldsymbol{n} \boldsymbol{E}) \right] = 0, \qquad \frac{\partial E_x}{\partial z} = \frac{\partial E_y}{\partial z} = 0.$$
(7)

Уравнения (7) интегрируются тривиально, и электрические поля внутри кристалла определяются однозначно через значения задаваемых полей. При добавлении соответствующих начальных условий на углы ориентации

$$\theta(0,z) = \theta_0(z), \qquad \varphi(0,z) = \varphi_0(z)$$

система уравнений (4) с граничными условиями (5) и решением, следующим из (7), становится замкнутой для описания взаимодействия НЖК с произвольно направленным переменным электрическим полем в одномерном случае. Если рассматривать достаточно сильные электрические поля, существенно превышающие пороговые для переориентации Фредерикса [1]:

$$|\boldsymbol{E}|^2 \gg E_{th}^2 = 4\pi^3 K / (L^2 \varepsilon_a)$$

(K -осредненная упругая константа Франка), то в ряде случаев граничными условиями и пространственными зависимостями можно пренебречь. Подробнее условия, позволяющие не учитывать координатные зависимости, будут обсуждаться ниже. После соответствующего упрощения уравнения (4), (7) становятся системой обыкновенных дифференциальных уравнений, зависящих только от времени:

$$\gamma \frac{d\theta}{dt} = \frac{\varepsilon_a}{4\pi} (\boldsymbol{n}\boldsymbol{E})(\boldsymbol{m}\boldsymbol{E}), \qquad \gamma \sin \theta \frac{d\varphi}{dt} = \frac{\varepsilon_a}{4\pi} (\boldsymbol{n}\boldsymbol{E})(\boldsymbol{p}\boldsymbol{E}),$$

$$E_z = \frac{\varepsilon_{||} E_z^{ex} - \varepsilon_a \cos \theta \sin \theta (E_x \cos \varphi + E_y \sin \varphi)}{\varepsilon_{\perp} + \varepsilon_a \cos^2 \theta}, \qquad E_x = E_x^{ex}, \qquad E_y = E_y^{ex}$$
(8)

 $(\theta = \theta(t), \varphi = \varphi(t)$ — угловые функции в центре образца (z = L/2)). Здесь предполагается начальная гомеотропная ориентация $\theta(0) = 0$, пространственная однородность электрического поля E = E(t); $E^{ex}(t)$ — значение задаваемого электрического поля в вакууме.

Электрическое поле, лежащее в одной плоскости. Аналитическое решение. В общем виде решить систему (8) и тем более (4) аналитически не представляется возможным, это будет сделано численно. Предварительно рассмотрим некоторые частные случаи, имеющие аналитическое решение.

Если вектор электрического поля E = E(t) лежит в одной плоскости, например (x, y), то в этом случае при $\theta \equiv \pi/2$, $\varphi = \varphi(t)$, $E = \{E_x(t), E_y(t), 0\}$ вместо системы (8) получаем одно уравнение для азимутального угла φ вида $(E_z \equiv 0)$

$$\gamma \frac{d\varphi}{dt} = \frac{\varepsilon_a}{4\pi} \left(E_x \cos\varphi + E_y \sin\varphi \right) (-E_x \sin\varphi + E_y \cos\varphi). \tag{9}$$

В случае гармонической зависимости $E(t) = A\{\sin(\omega t + \psi_x), \sin(\omega t + \psi_y), 0\}$, а именно вращающегося (циркулярного) поля $E_x = A\cos\omega t$, $E_y = \sin\omega t$ ($\psi_x = \pi/2$, $\psi_y = 0$), получаем

$$\frac{d\varphi}{dt} = -\frac{\varepsilon_a A^2}{8\pi\gamma} \sin\left[2(\varphi - \omega t)\right]. \tag{10}$$

Идентичное уравнение можно записать и для полярного угла θ , если рассмотреть случай переменного электрического поля, лежащего, например, в плоскости (x, z). Для этого необходимо принять $\theta = \theta(t), \varphi \equiv 0, \mathbf{E} = \{E_x(t), 0, E_z(t)\}$ и пренебречь возникающей из условия (7) добавкой, пропорциональной ε_a , к z-компоненте поля.

Уравнение (10) интегрируется аналитически. Предварительно сделаем замену $\alpha = 2(\varphi - \omega t)$ и перепишем (10) в виде

$$\frac{d\alpha}{d\tau} = -2(1+\delta\sin\alpha).$$

После этого получаем решение

$$\varphi(\tau) = \begin{cases} \tau - \arctan\left[\delta + \Omega \operatorname{tg} \Omega(\tau - C)\right], & \delta^2 < 1, \quad \Omega^2 = 1 - \delta^2, \\ \tau - \operatorname{arctg} \left[(\tau - 1 - C)/(\tau - C)\right], & \delta^2 = 1, \quad \Omega^2 = 0, \\ \tau - \operatorname{arctg} \left[\delta - \Omega \operatorname{th} \Omega(\tau - C)\right], & \delta^2 > 1, \quad \Omega^2 = \delta^2 - 1, \end{cases}$$
(11)

где введено безразмерное время $\tau = \omega t$; $\delta = \varepsilon_a A^2 / (8\pi \gamma \omega)$. В зависимости (11) следует отметить наличие линейного по времени слагаемого, приводящего к непрерывному в среднем вращению директора.

Для сравнения приведем решение уравнения (9) для случая поля E с постоянным в пространстве направлением: $E_x = A \sin \omega t$, $E_y = A \sin \omega t$ ($\psi_x = \psi_y = 0$). Из (9) следует

$$\frac{d\varphi}{dt} = \frac{\varepsilon_a A^2}{4\pi\gamma} \sin^2 \omega t \cos 2\varphi.$$
(12)

Уравнение (12) также легко интегрируется, и решение записывается в виде

$$\varphi = -(\pi/4) \pm \operatorname{arctg} \left\{ C \exp\left[\delta(2\tau - \sin 2\tau)\right] \right\},\tag{13}$$

где C — константа интегрирования; безразмерное время τ и параметр δ определяются аналогично предыдущему случаю. Зависимость (13) описывает беспороговую переориентацию Фредерикса в переменном электрическом поле.

Рассмотрим поведение отклонений директора от среднего стационарного состояния $\Delta \varphi = \varphi(t) - \varphi_{st}$ для обоих вариантов конфигурации полей в установившемся режиме $(\tau \to \infty)$ и при условии $\delta^2 \ll 1$ или $\omega \gg \varepsilon_a A^2/(8\pi\gamma)$. Для вращающегося поля из (11) получаем

$$\Delta \varphi \approx \frac{\varepsilon_a A^2}{8\pi \gamma \omega} \sin 2\omega t + \frac{1}{\omega} \left(\frac{\varepsilon_a A^2}{8\pi \gamma}\right)^2 t,\tag{14}$$

где, как видно, присутствуют осциллирующее и линейно растущее во времени слагаемые. Для второго случая из (13) следует

$$\Delta \varphi \approx \frac{\varepsilon_a A^2}{4\pi \gamma \omega} \exp\left(-\frac{\varepsilon_a A^2}{4\pi \gamma} t\right) \sin^2 \omega t.$$
(15)

Из асимптотик (14) и (15) видно, что амплитуда колебаний директора конечна во времени для случая циркулярного поля и экспоненциально стремится к нулю при $t \to \infty$ в поле с постоянным направлением. Незатухающее, осциллирующее поведение ориентации, как и непрерывное вращение директора с частотой, пропорциональной четвертой степени величины подаваемого напряжения, качественно отличает рассмотренный случай (14) от перехода Фредерикса (15).

Возможность непрерывного вращения директора была зафиксирована и изучена в работе [9], где исследовалось взаимодействие гомеотропно ориентированного НЖК с циркулярно поляризованной световой волной. С учетом оговоренных во введении приближений решение (14), рассмотренное в настоящей работе, во многом эквивалентно результатам, приведенным в [9].

На рис. 2 показана зависимость $\varphi(\tau)$ для обеих конфигураций полей и различных величин δ . Кривая 1 — переориентация в поле с постоянным направлением, кривая 4 получена из решения системы уравнений в частных производных (4) для центра образца $\varphi(\tau) \equiv \varphi(\tau, L/2)$. Тем самым учитывается пространственная зависимость, следующая из конечности упругих сил, действующих в НЖК. Граничные условия (5) выбирались для гомеотропной ориентации и имели вид

$$\theta \big|_{0,L} = 0, \qquad \frac{\partial \varphi}{\partial z} \Big|_{0,L} = 0.$$

Амплитуда поля превышала пороговое значение в два раза $(|\mathbf{E}| = 2E_{th})$. Как видно из сравнения кривых 3 и 4, отличие заключается только в небольшом изменении угла наклона к оси τ средних значений φ . На рис. 3 представлена рассчитанная функция пропускания $T(\tau)$ в скрещенных поляризаторах образца НЖК (без учета упругости, для образца 5CB толщиной L = 150 мкм) в режиме вращающегося поля при $\delta = 3$. Плавная огибающая $T(\tau)$, следующая из (11), вызвана вращением директора. Высокочастотная компонента, также следующая из (11), определяется осциллирующей добавкой.



Рис. 2. Зависимость азимутального угла ориентации директора НЖК 5CB от безразмерного времени τ для случая электрического поля, лежащего в плоскости (x, y): $1 - \psi_x - \psi_y = 0, \ \delta = 0.5; \ 2 - \psi_x - \psi_y = \pi/2, \ \delta = 0.3; \ 3 - \psi_x - \psi_y = \pi/2, \ \delta = 3; \ 4 - \psi_x - \psi_y = \pi/2, \ \delta = 3 -$ решение с учетом упругости среды



Рис. 3. Зависимость функции пропускания от безразмерного времени в режиме вращающегося поля при $\psi_x - \psi_z = \pi/2, \ \delta = 3$

В случае, когда циркулярное поле лежит в плоскости (x, z), решения для вариантов с учетом и без учета упругости НЖК различаются более существенно, чем в предыдущем примере. На рис. 4 приведены зависимости $\theta(\tau)$, полученные интегрированием системы обыкновенных дифференциальных уравнений (8) и решением системы уравнений в частных производных (4) для $\theta(\tau) \equiv \theta(\tau, L/2)$. Граничные условия для (4) ставились аналогично предыдущему случаю. При этом не учитывалось изменение *z*-компоненты поля, а амплитуда поля превосходила пороговую в 5,5 раза. Кривая 2 на рис. 4, построенная с учетом упругости среды, осциллирует с той же частотой и амплитудой, что и кривая 1, и в среднем выходит на стационарный уровень, определяемый величиной δ , упругими константами и толщиной кристалла *L*. Как показал численный анализ (что, впрочем, следует и из качественных соображений), установление в этом случае происходит всегда, даже при сколь угодно большом превышении амплитуды поля над пороговой.



Рис. 4. Зависимость полярного угла ориентации директора НЖК 5CB от безразмерного времени для случая циркулярного электрического поля ($\psi_x - \psi_z = \pi/2$, $\delta = 3$), лежащего в плоскости (x, z): 1 -без учета упругости; 2 -с учетом упругости

Вполне возможно, что на основе полученных результатов взаимодействия НЖК с вращающимся полем можно изготовить высокочастотный модулятор (переключатель) света, в качестве рабочей среды которого будут использоваться обычные "медленные" НЖК.

Вращение директора, следующее из решения (14), фиксировалось экспериментально. Образец НЖК с уменьшенной энергией связи на границах, помещенный в электрическое поле, ортогональное оси z (электродная система на каждой поверхности представляла собой конфигурацию в виде двух или нескольких параллельных прозрачных полос, ориентируемых при сборке образца перпендикулярно друг другу), просвечивался Не–Ne-лазером, а прошедшее излучение через анализатор принималось фотодиодом. Напряжение от одного генератора через систему сдвига фаз подавалось на электроды образца. При необходимости в це́пи, реализующие тангенциальное поле, для получения его повышенной амплитуды включались трансформаторы. В момент, когда разность фаз приложенных электрических полей приближалась к $\pi/2$, интенсивность прошедшего излучения начинала пульсировать. По периоду пульсаций вычислялся период вращения директора. Высокочастотная составляющая была заметна вплоть до $\nu \sim 1 \text{ M}\Gamma\mu$ ($\omega = 2\pi\nu$). Количественного соответствия в рамках простой модели (9) получить не удалось. В эксперименте надежно фиксировались возникновение пульсаций прошедшего излучения при сдвиге фаз, близком к $\pi/2$, между приложенными полями, резкое увеличение частоты вращения директора с ростом подаваемого напряжения и, соответственно, ее уменьшение с увеличением рабочей частоты ω . Этот результат качественно согласуется с зависимостями, следующими из (14). Измерения проводились в интервале частот $\nu = 10 \div 5 \cdot 10^6$ Гц с действующим напряжением до 50 B.

Динамика объемной ориентации НЖК. Численный расчет. Для нахождения решений системы (8) в общем случае использовался численный расчет. Значения электрических полей для начальной гомеотропной ориентации задавались в виде

$$E_x = E_{x0} \sin (2\pi\nu_x t + \psi_x), \qquad E_y = E_{y0} \sin (2\pi\nu_y t + \psi_y),$$

$$E_z = \frac{\varepsilon_{||} E_{z0} \sin (2\pi\nu_z t + \psi_z) - \varepsilon_a \sin \theta \cos \theta (E_x \cos \varphi + E_y \sin \varphi)}{\varepsilon_{\perp} + \varepsilon_a \cos^2 \theta}.$$
(16)

Номер рисунка	Тип НЖК	$a_x: a_y: a_z$	$\omega_x:\omega_y:\omega_z$	ψ_x,ψ_y,ψ_z	δ
5, 7	МББА	1:1:1	$2\pi(1,25:1:1)$	$0, \pi/2, 0$	-1,5
6, 10	5CB	1:1:1	1:1,1:1	$0, 0, \pi/2$	$0,\!65$
8, 9	5CB	1:1:1,5	$2\pi(1:1,1:1)$	$\pi/2, 0, 0$	30
11,a	МББА	1:1,1:1	$2\pi(1,25:1,1:1)$	$0, \pi/2, 0$	-5
11,б	МББА	1:1:1,06	$2\pi(1,2:1:1)$	$0, \pi/2, 0$	-2
11.6	МББА	1:1:1	$2\pi(1:1.1:1)$	$\pi/2, 0, 0$	-1.45

Таблица исходных параметров

В *z*-компоненте поля учтена анизотропная добавка, следующая из условия (7) уравнений Максвелла; $\omega_i = 2\pi\nu_i$. Для расчетов удобно переписать (8) в безразмерной форме

$$\frac{d\theta}{d\tau} = \delta(\boldsymbol{n}\boldsymbol{A})(\boldsymbol{m}\boldsymbol{A}), \qquad \sin\theta \frac{d\varphi}{d\tau} = \delta(\boldsymbol{n}\boldsymbol{A})(\boldsymbol{p}\boldsymbol{A}), \\ \theta(0) = \theta_0, \qquad \varphi(0) = \varphi_0,$$
(17)

где θ_0 и φ_0 — начальные условия. В качестве нормировочных величин выбраны среднеквадратичная амплитуда поля $A = (E_{x0}^2 + E_{y0}^2 + E_{z0}^2)^{1/2}$ и средняя частота $\nu_0 = (\nu_x + \nu_y + \nu_z)/3$. При этом

$$A_x = a_x \sin\left(2\pi N_x \tau + \psi_x\right), \qquad A_y = a_y \sin\left(2\pi N_y \tau + \psi_y\right),$$

$$A_z = \frac{\varepsilon_{\parallel} a_z \sin\left(2\pi N_z \tau + \psi_z\right) - \varepsilon_a \sin\theta \cos\theta (A_x \cos\varphi + A_y \sin\varphi)}{\varepsilon_{\perp} + \varepsilon_a \cos^2\theta},$$
(18)

где $a_x = E_{x0}/A$, $a_y = E_{y0}/A$, $a_z = E_{z0}/A$; $N_x = \nu_x/\nu_0$, $N_y = \nu_y/\nu_0$, $N_z = \nu_z/\nu_0$; ψ_x , ψ_y , ψ_z — фазовые добавки. Безразмерное время $\tau = \nu_0 t$, параметр $\delta = \varepsilon_a A^2/(4\pi\gamma\nu_0)$.

Характер решений системы уравнений (17) достаточно многообразен. В зависимости от параметров задачи наблюдаются следующие режимы: выход на стационарное решение (аналог беспорогового перехода Фредерикса), периодические, квазипериодические (многомодовые) и стохастические типа странного аттрактора. В качестве иллюстрации приведем несколько динамических режимов ориентации, наиболее ярко отражающих сложность рассчитанных зависимостей. Наряду с найденными функциями $\theta(\tau), \varphi(\tau)$ наглядную картину поведения решения во времени дает движение конца вектора n на единичной сфере или траектория движения, изображаемая на плоскости θ и φ — аналог фазового пространства. Исходные параметры, для которых выполнены расчеты и построены соответствующие кривые, представлены в таблице.

Ниже приведены решения системы (17) для двух типов НЖК: 5CB ($\varepsilon_a > 0$), МББА ($\varepsilon_a < 0$). Как видно из рисунков, поведение ориентации во времени представляет собой сложные квазипериодические и стохастические зависимости, аналогичные решениям типа странного аттрактора [10]. Директор в зависимости от исходных параметров может иметь несколько предельных состояний (предельных циклов [10]), вокруг которых совершает колебательное или вращательное движение, причем периодически или квазипериодически и переходит с одного цикла на другой (рис. 5). В приведенном примере с периодическим изменением состояния на значения углов ориентации накладывается высокочастотная состояния в другое. Средние значения соседних уровней по $\varphi(\tau)$ отличаются друг от друга на величину $\pm \pi$, причем знак скачка случаен. Максимальные значения $\theta(\tau)$ достигаются в вершинах треугольников и приблизительно равны $\pi/2$. Высокочастотная амплитуда функции $\theta(\tau)$ в отличие от $\varphi(\tau)$ менее заметна на фоне более плавных изменений.



Рис. 5. Зависимость полярного θ (кривая 1) и азимутального φ (кривая 2) углов ориентации директора от безразмерного времени



Рис. 6. Зависимость азимутального угла φ от безразмерного времени τ при различных начальных условиях: $1 - \theta_0 = 0,001, \varphi_0 = 0; 2 - \theta_0 = 0,1, \varphi_0 = 0; 3 - \theta_0 = 0,1, \varphi_0 = 0,1$

При таких режимах решения уравнений начинают зависеть от начальных условий. В качестве примера на рис. 6 показаны кривые $\varphi(\tau)$ (чтобы не загромождать рисунок, зависимости $\theta(\tau)$ не приведены), построенные при различных условиях в нулевой момент времени $\theta(0)$ и $\varphi(0)$. Как видно из рисунка, в момент времени, близкий к $\tau = 0$, ход кривых $\varphi(\tau)$ для различных начальных условий практически совпадает, но в некоторый момент времени система как бы "вспоминает" свое начальное состояние и резко меняет траекторию движения. Поведение функций $\theta(\tau)$ аналогично.

Частотный спектр в зависимости от безразмерной частоты $N = \nu/\nu_0$ (для определенности выбран фурье-образ $|F[\varphi(\tau)]|$) решений, близких к стохастическим, становится широкополосным, его пример приведен на рис. 7. Из рисунка видно, что в области разностной $\Delta N = N_x - N_z$ и суммарной $N_x + N_z$ частот наблюдаются отчетливые пики, причем амплитуда разностных гармоник примерно в 8–10 раз превышает амплитуду суммарных. При больших величинах δ временные зависимости $\theta(\tau)$ и $\varphi(\tau)$ усложняются и приобретают периодический характер (рис. 8). Фурье-спектр (рис. 9) становится менее изрезанным, и на нем появляются ярко выраженные эквидистантные гармоники, отстоящие друг от



Рис. 7. Фурье-спектр $|F[\varphi(\tau)]|$ в зависимости от безразмерной частоты



Рис. 8. Зависимость полярного (кривая 1) и азимутального (кривая 2) углов ориентации директора от безразмерного времени

друга на величину $2\Delta N$. Рассчитанные функции пропускания образца, находящегося в стохастическом режиме, внешне более хаотичные (рис. 10), чем исходные решения $\theta(\tau)$ и $\varphi(\tau)$. Это объясняется дополнительными нелинейными зависимостями в самой функции пропускания, так как в общем виде [11]

$$T(\tau) = T[\theta(\tau), \varphi(\tau)] = \cos^2 \chi - \sin 2\varphi \sin 2(\varphi - \chi) \sin^2(\Delta/2).$$

Для нашего случая разность набега фаз Δ вычисляется по формуле

$$\Delta = 2\pi \frac{L}{\lambda} \Big(\frac{n_{\perp} n_{\parallel}}{\sqrt{n_{\perp}^2 \cos^2 \theta + n_{\parallel}^2 \sin^2 \theta}} - n_{\perp} \Big),$$

где λ — длина волны нормально падающего диагностирующего излучения; $n_{||}$, n_{\perp} — главные значения показателей преломления для обыкновенной и необыкновенной волн соответственно; χ — угол между поляризатором и анализатором при выбранном направлении поляризатора вдоль оси x.



Рис. 9. Фурье-спектр $|F[\varphi(\tau)]|$ в зависимости от безразмерной частоты



Рис. 10. Фрагмент функции пропускания в зависимости от безразмерного времени

Траектории движения на плоскости в фазовом пространстве приведены на рис. 11. Как и сами функции $\theta(\tau)$ и $\varphi(\tau)$, приводимые кривые представляют собой весьма сложные фигуры.

Отметим, что представленные решения далеко не исчерпывают всех видов динамического поведения ориентации, получаемых из (17). Привести полный набор режимов в рамках одной статьи не представляется возможным, что объясняется прежде всего большим числом исходных параметров (в рассматриваемом случае с учетом нормировки их семь).

Предварительный анализ показал, что для получения недетерминированных решений необходимо прежде всего наличие объемной деформации ориентации НЖК или присутствие всех трех компонент поля $E_x \neq 0$, $E_y \neq 0$, $E_z \neq 0$. Этот вывод следует и из математического утверждения об отсутствии стохастических решений в системах, описываемых одним обыкновенным дифференциальным уравнением первого порядка с явной зависимостью от времени [10]. В случае отсутствия одной из компонент поля $E_i = 0$, i = x, y, z



Рис. 11. Тра
ектория движения на плоскости $(\theta(\tau),\varphi(\tau))$



Рис. 12. Зависимость функции пропускания T(t), полученная в эксперименте (реализован случай, по параметрам соответствующий рис. 6)

система (8) в установившемся режиме сводится к одному уравнению для угла отклонения директора, лежащего в плоскости изменения E. Кроме того, в радиочастотном диапазоне необходимо, чтобы электрические поля содержали компоненты, имеющие как минимум две различные частоты: $\omega_i \neq \omega_j = \omega_k$, $i, j, k = x, y, z, i \neq j \neq k$. Такое требование может нарушаться при воздействии на НЖК светового излучения в силу более сложной, чем условие (7), нелинейной связи обыкновенной и необыкновенной волн внутри кристалла [7]. Более подробное рассмотрение этого вопроса выходит за рамки настоящей работы.

Выполненные эксперименты в радиочастотном диапазоне подтверждают теоретические выводы о существовании детерминированных и стохастических режимов в ориентации директора НЖК. В отличие от экспериментов с одночастотным электрическим полем, лежащим в одной плоскости, использовались два независимых генератора, и электродная схема образца позволяла создавать поля в трех ортогональных направлениях. В экспериментах диагностирующее излучение фокусировалось в образец и затем проецировалось на удаленный матовый экран. В момент возникновения неустойчивости в световом пятне образовывалась область с переменной во времени освещенностью или несколько областей, которые начинали пульсировать практически независимо друг от друга. При этом интегральная по поперечному сечению интенсивность всего пятна могла оставаться неизменной или слабо осциллировать во времени. Область пульсаций при визуальном наблюдении становилась равномерно освещенной и деполяризованной. Все внешние изменения зависели от положения точки, через которую проходило диагностирующее излучение, от времени и температуры.

Экспериментальная кривая пропускания T(t), приведенная на рис. 12, получена следующим образом (параметры образца 5CB толщиной 10 мкм и внешние поля соответствуют условиям рис. 6). На увеличенное световое пятно накладывалась диафрагма с небольшим отверстием, за которым помещался фотодиод (или фотоэлектронный умножитель), подключенный к регистрирующему устройству. Записанные кривые пропускания внешне напоминают стохастический режим и зависят от положения центра диафрагмы на пятне. Аналогичные явления наблюдались и в предыдущем более простом случае одночастотного, плосковращающегося поля.

Обсуждение результатов. Получить количественное согласование расчетных и экспериментальных данных на основе анализа одной функции пропускания не удалось.

Основная причина различий заключается в пренебрежении пространственной зависимостью электрических полей, возможностью возникновения гидродинамических потоков (вследствие появления низкочастотных составляющих в динамике ориентации) и флексоэлектрических эффектов. Отметим, что учет пространственной зависимости ориентации n, выполненный на основе численного интегрирования системы уравнений в частных производных (4), (7), привел к еще большему усложнению и разнообразию получаемых решений.

Дискретный вариант частного случая уравнений (17), (18) после надлежащей замены переменных переходит в последовательность, которая изучалась в работе [12]. Уравнения, приводящие к такой последовательности, приближенно описывают систему трех нелинейных взаимосвязанных осцилляторов, при этом построенные сечения Пуанкаре представляют собой отображения абстрактного тора в четырехмерном фазовом пространстве $(\dot{\theta}, \dot{\varphi}, \theta, \varphi)$ на двумерную плоскость. В [12] на основе численных расчетов доказано наличие решений в виде хаотического аттрактора, а построенные траектории движения по своей сложности схожи с аналогичными сечениями, полученными в настоящей работе.

Специфика аттракторного поведения решений, а также бо́льшая чувствительность дискретного варианта уравнений к начальным условиям и входным параметрам (например, в [12] амплитуда и фазовые добавки в (18) выбирались случайным образом) не позволили провести точное количественное сравнение результатов работы [12] с аналогичными расчетами настоящей работы.

В заключение отметим, что причиной достаточно подробного изучения описанной модели послужили исследования в области генерации гармоник, возникающих при взаимодействии полимерных сред с когерентным излучением. Данная тематика по отношению к жидким кристаллам изучалась экспериментально [13, 14] и теоретически [15]. В указанных работах отмечался существенный разброс в экспериментальных данных, приводимых различными авторами. В [15] генерация второй гармоники НЖК рассматривалась как следствие континуальных уравнений Эриксена — Лесли и уравнений Максвелла. Возникающее при этом нарушение центральной симметрии объяснялось эффектом светоиндуцированной деформации структуры кристалла. Решение, полученное в [15], было результатом линейного приближения и не отражало в полной мере весь возникающий при таком взаимодействии процесс. Попытка авторов настоящей работы численно исследовать нелинейные режимы взаимодействия многоволнового излучения с НЖК привела к неожиданному результату. При анализе причин, приводящих, как казалось, к нефизическим решениям, был сделан вывод, что источником этого эффекта являются свойства НЖК-среды, которые описываются материальными уравнениями. В соответствии с этим была выбрана упрощенная математическая модель (изменены уравнения Максвелла), которая тем не менее близка к модели взаимодействия НЖК с переменными электрическими полями радиочастотного диапазона.

Выводы. В результате проведенных исследований фактически выявлен физический объект нелинейной динамики — НЖК в многокомпонентном переменном электрическом поле. Для его описания использована диссипативная система обыкновенных дифференциальных уравнений, являющаяся еще одним примером в ряду известных детерминированных уравнений, приводящих к хаотическим колебаниям [10]. В соответствии с этим возможность стохастизации ориентационного состояния НЖК необходимо учитывать при рассмотрении взаимодействия жидкокристаллических сред с многокомпонентными и многочастотными электрическими полями.

Авторы выражают благодарность Г. Н. Грачеву за поддержку в проведении экспериментов и работы в целом, а также сотрудникам Физического института им. П. Н. Лебедева РАН В. Ф. Китаевой и А. С. Золотько за полезные обсуждения и дополнения.

ЛИТЕРАТУРА

- 1. Блинов Л. М. Электро- и магнитооптика жидких кристаллов. М.: Наука, 1978.
- 2. Iam-Choon Khoo. Liquid crystals. N. Y.: Wiley-Intersci. Publ., 1995.
- 3. Беляев В. В. Вязкость нематических жидких кристаллов. М.: Физматлит, 2002.
- 4. Пикин С. А. Структурные превращения в жидких кристаллах. М.: Наука, 1981.
- Tabiryan N. V., Sukhov A. V., Zel'dovich B. Y. The orientational optical nonlinearity of liquid crystals // Mol. Cryst. Liq. Cryst. 1986. V. 136. P. 1–139.
- Золотько А. С., Китаева В. Ф., Кроо Н. и др. Незатухающие осцилляции директора НЖК в поле световой волны обыкновенного типа // Журн. эксперим. и теорет. физики. 1984. Т. 87. С. 859–864.
- Преображенский Н. Г., Трашкеев С. И. Многомодовый режим колебаний директора нематического жидкого кристалла в световом поле наклонной о-волны // Оптика и спектроскопия. 1987. Т. 62. С. 1404–1407.
- 8. Zolot'ko A. S., Kitaeva V. F., Sobolev N. N., et al. Polarization dynamics of an ordinary light wave interacting with a nematic liquid crystal // Liquid Crystal. 1993. V. 15, N 6. P. 787–797.
- Vella A., Piccirilo B., Santamoto E. Coupled-mode approach to the nonlinear dynamics induced by an elliptically polarized laser field in liquid crystals at normal incidence // Phys. Rev. E. 2002. V. 65. P. 1–7.
- 10. Мун Ф. Хаотические колебания. М.: Мир, 1990.
- 11. Борн М., Вольф Э. Основы оптики. М.: Наука, 1970.
- Grebogy C., Ott E., Yorke J. A. Attractors on an N-Torus: Quasiperiodicity versus chaos // Physica. 1985. V. 15D. P. 354–373.
- Barnik M. I., Blinov L. M., Dorozhkin A. M., et al. Optical 2ND harmonic-generation in various liquid-crystalline phases // Mol. Cryst. Liq. Cryst. 1983. V. 98. P. 1–12.
- 14. **Аракелян С. М., Чилингарян Ю. С.** Нелинейная оптика жидких кристаллов. М.: Наука, 1984.
- Ou-Yang Zhong-can, Xie Yu-zhang. Theory of second-harmonic generation in nematic liquid crystals // Phys. Rev. 1985. V. 32, N 2. P. 1189–1200.

Поступила в редакцию 19/III 2004 г., в окончательном варианте — 26/IV 2004 г.