

Анизотропия диффузии света в нематике

В. Л. Кузьмин¹⁾

С.-Петербургский государственный университет, 194021 С.-Петербург, Россия

Поступила в редакцию 9 июля 2013 г.

Для одноконстантной модели нематического жидкого кристалла установлено в явном виде соотношение, связывающее длину экстинкции и длину магнитной когерентности. Выполнены расчеты обратного рассеяния и рассеяния вперед в рамках метода Монте-Карло. Показано, что при изменении внешнего магнитного поля на порядок транспортная длина практически не изменяется. Это приводит к слабой зависимости многократного рассеяния от внешнего поля. Слабая анизотропия транспортной длины является причиной заметного ослабления анизотропии диффузии света по сравнению с анизотропией длины экстинкции. Показано, что анизотропия рассеяния зависит от канала рассеяния и ее описания в терминах тензора диффузии света недостаточно.

DOI: 10.7868/S0370274X13160042

Перенос излучения в режиме многократного рассеяния в жидких кристаллах (ЖК) отличается от случая изотропных сред двумя принципиальными чертами: во-первых, анизотропией оптических параметров среды и, во-вторых, дальнедействием ориентационных флуктуаций диэлектрической проницаемости (см. [1]).

В работах [2, 3] были установлены основные особенности распространения света в нематиках. В рамках диффузионного подхода было развито описание переноса излучения в терминах тензора диффузии света. Это привело к определению составляющих транспортной длины излучения, переносимого вдоль и поперек направления директора.

В работах [4, 5] путем измерения интенсивности обратно рассеянного и прошедшего света в зависимости от расстояния между источником и приемником были экспериментально определены коэффициенты диффузии света и составляющие транспортной длины. В результате оказалось, что в диффузионном режиме, когда перенос излучения описывается в терминах транспортной длины, анизотропия диффузии света слаба. Аналогичные результаты были получены в [6–8] на основе анализа угловой анизотропии конуса обратного когерентного рассеяния. Однако при теоретическом анализе дальнедействие коррелирующей диэлектрической проницаемости не учитывалось. Авторы ограничивались приближением точечных рассеивателей.

Дальнедействующий характер фазовой функции, принимающей в нулевом внешнем поле голдстоуновский вид, затрудняет аналитическое рассмотрение

и приводит к необходимости численного моделирования. В настоящей работе мы выполнили численное моделирование методом Монте-Карло для геометрии, копирующей геометрию реального эксперимента [5]. Оказалось, что анизотропия рассеяния различна в разных каналах. Таким образом, описания анизотропии в терминах тензора диффузии с двумя составляющими транспортной длины вдоль и поперек вектора директора недостаточно. Дополнительная трудность моделирования многократного рассеяния в ЖК по сравнению с изотропными средами состоит в переходах между модами в каждом акте рассеяния. Это вызывает резкое возрастание числа учитываемых каналов рассеяния. Последнее требует разработки процедуры стохастического выбора каналов. Такая процедура была предложена ранее [9] и использовалась [10] при численном моделировании когерентного обратного рассеяния в нематике. В [10] был установлен факт слабой зависимости когерентного обратного рассеяния от внешнего поля. Мы подтвердили полученный ранее результат, касающийся слабой зависимости от магнитного поля.

Оптическая теорема. Аномальное рассеяние света в НЖК определяется ориентационными флуктуациями тензора диэлектрической проницаемости

$$\delta\epsilon(\mathbf{r}) = \epsilon_a (\mathbf{n} \otimes \delta\mathbf{n}(\mathbf{r}) + \delta\mathbf{n}(\mathbf{r}) \otimes \mathbf{n}), \quad (1)$$

где $\epsilon_a = \epsilon_{\parallel} - \epsilon_{\perp}$, ϵ_{\parallel} и ϵ_{\perp} – компоненты диэлектрической проницаемости параллельно и перпендикулярно вектору директора \mathbf{n} , а $\delta\mathbf{n}(\mathbf{r})$ – флуктуация директора [11].

Поле в нематике описывается в терминах двух мод обыкновенной и необыкновенной волны с векторами поляризации $\mathbf{e}^{(o)}$ и $\mathbf{e}^{(e)}$ и показателями прелом-

¹⁾e-mail: kuzmin_vl@mail.ru

ления $n^{(o)}$ и $n^{(e)}$. Фурье-образ парного коррелятора флуктуаций диэлектрической проницаемости определяет индикатрису однократного рассеяния в канале $(m) \rightarrow (l)$:

$$G_{lm}(\mathbf{k}_f, \mathbf{k}_i) = \int d\mathbf{r} e^{i(\mathbf{k}_i - \mathbf{k}_f)\mathbf{r}} \times \left\langle \mathbf{e}_f^{(l)} \delta\boldsymbol{\varepsilon}(\mathbf{0}) \mathbf{e}_i^{(m)} (\mathbf{e}_f^{(l)} \delta\boldsymbol{\varepsilon}(\mathbf{r}) \mathbf{e}_i^{(m)})^* \right\rangle. \quad (2)$$

Здесь \mathbf{k}_i и \mathbf{k}_f – волновые вектора входящей и выходящей волны, угловые скобки означают статистическое усреднение, тензор четвертого ранга $\delta\boldsymbol{\varepsilon}(\mathbf{0}) \otimes \delta\boldsymbol{\varepsilon}(\mathbf{r})$ свернут с векторами поляризации входящей ($\mathbf{e}_i^{(m)}$) и выходящей ($\mathbf{e}_f^{(l)}$) волн.

В рамках одноконстантной модели ЖК для упругих модулей Франка, $K_{ii} = K$, $j = 1-3$, функция $G_{lm}(\mathbf{k}_f, \mathbf{k}_i)$ может быть представлена в виде [12]:

$$G_{lm}(\mathbf{k}_f, \mathbf{k}_i) = (\varepsilon_a^2 k_B T / k_0^2 K) \phi(\mathbf{k}_f - \mathbf{k}_i) \left((\mathbf{n}_f^{(l)})^2 + (\mathbf{n}_i^{(m)})^2 + 2(\mathbf{n}_f^{(l)})(\mathbf{n}_i^{(m)}) (\mathbf{e}_f^{(l)} \mathbf{e}_i^{(m)}) - 4(\mathbf{n}_f^{(l)})^2 (\mathbf{n}_i^{(m)})^2 \right), \quad (3)$$

где $\phi(\mathbf{q})$ – фазовая функция Орнштейна–Цернике:

$$\phi(\mathbf{q}) = k_0^2 (q^2 + \xi^{-2})^{-1}. \quad (4)$$

Здесь k_B – постоянная Больцмана, T – температура, $k_0 = 2\pi/\lambda$, λ – длина волны, $\xi = (K/\chi_a)^{1/2} H^{-1}$ – длина магнитной когерентности, χ_a – коэффициент магнитной анизотропии, H – внешнее магнитное поле.

В ЖК потери света на поглощение пренебрежимо малы по сравнению с упругим рассеянием и длина экстинкции совпадает с длиной рассеяния обыкновенной или необыкновенной моды. Оптическая теорема в борновском приближении (см. [13]):

$$l_j^{-1}(\mathbf{s}_i) = \frac{k_0^4}{(4\pi)^2} \sum_{l=o,e} \int d\Omega_f \frac{n^{(l)}(\mathbf{s}_f)}{n^{(j)}(\mathbf{s}_i)} G_{jl}(\mathbf{k}_f, \mathbf{k}_i), \quad (5)$$

связывает длину рассеяния $l_j(\mathbf{s}_i) = l_j(\theta_0)$ обыкновенной ($j = o$) или необыкновенной ($j = e$) волны с фурье-образом коррелятора флуктуаций диэлектрической проницаемости. Здесь единичные вектора $\mathbf{s}_i = \mathbf{k}_i/k_i$ и $\mathbf{s}_f = \mathbf{k}_f/k_f$ описывают направления входящей и выходящей волн, θ_0 – угол между направлением падающей волны и директором. Интегрирование проводится по направлениям рассеянной волны.

В общем случае необыкновенная волна не удовлетворяет условию поперечности. Однако в реальных ЖК эффект непоперечности оказывается мал.

Таким образом, в задачах многократного рассеяния непоперечностью можно пренебречь.

Дальнодействующий характер флуктуаций директора при $H \rightarrow 0$ приводит к сингулярному поведению рассеяния вперед в канале $(e) \rightarrow (e)$. В каналах $(o) \rightarrow (e)$ и $(e) \rightarrow (o)$ особенности нет, т.к. $q = |\mathbf{k}_i - \mathbf{k}_f|$ не обращается в нуль в силу различия показателей преломления обыкновенного и необыкновенного лучей. Канал $(o) \rightarrow (o)$ полностью запрещен в силу правил отбора де Жена [11]. Подставляя (3) и (4) в оптическую теорему, с учетом допущения о поперечности в пределе малого внешнего поля ($\xi/\lambda \gg 1$) мы получаем простое соотношение, связывающее длину рассеяния необыкновенной волны и длину магнитной когерентности ξ :

$$l_e^{-1}(\theta_0) = l_0^{-1} \sin^2 2\theta_0 \ln(2k_0\xi) \times \frac{[\cos^2 \theta_0 + (\varepsilon_{\parallel}/\varepsilon_{\perp}) \sin^2 \theta_0]^2}{[\cos^2 \theta_0 + (\varepsilon_{\parallel}/\varepsilon_{\perp})^{-2} \sin^2 \theta_0]^{1/2}} + l_1^{-1}(\theta_0), \quad (6)$$

где параметр длины $l_0 = 8\pi\varepsilon_{\perp} K (\varepsilon_a^2 k_0^2 k_B T)^{-1}$ зависит от параметров ЖК. При значениях параметров ЖК 5СВ [6], $\varepsilon_{\parallel} = 3$, $\varepsilon_a = 0.8$, $T = 300$ К, $K = 6 \cdot 10^{-7}$ дин и $k_0 \approx 12.88$ мкм $^{-1}$, имеем $l_0 = 1190$ мкм.

Первое слагаемое в (6) содержит логарифмическую особенность при $\xi \rightarrow \infty$ в канале $(e) \rightarrow (e)$ при $H = 0$. Второе слагаемое в правой части (6), $l_1^{-1}(\theta_0)$, описывает вклад в коэффициент рассеяния перекрестного канала $(e) \rightarrow (o)$ в (5), а также вклад несингулярной широкоугольной части индикатрисы в канале $(e) \rightarrow (e)$. Эти вклады конечны в пределе исчезающе малого поля и обнаруживают гладкую угловую зависимость [13]. Для выбранных параметров ранее получено [8] $l_e(0) \approx 700$ мкм, $l_e(\pi/2) \approx 225$ мкм. Длину рассеяния обыкновенной волны также достаточно рассчитать при нулевом магнитном поле. В согласии с [8] $l_o(0) = 675$ мкм и $l_o(\pi/2) = 275$ мкм. Мы использовали эти значения параметров в численных расчетах. Расчеты были выполнены для двух различных значений длины магнитной когерентности: $\xi = 4.2$ и 21 мкм. Для реального ЖК, исследованного в [6], это соответствует диапазону магнитного поля от 0.5 до 0.1 Т.

В диффузионном режиме характерным пространственным параметром является транспортная длина. Приведем ее определение для необыкновенного луча:

$$l_{tr}^{-1}(\mathbf{s}_i) = (4\pi)^{-2} k_0^4 n_{(e)}^{-1}(\mathbf{s}_i) \sum_{p=o,e} \int d\Omega_f n_{(p)}(\mathbf{s}_f) \times (1 - \cos \theta_{sc}) G_{ep}(\mathbf{k}_f, \mathbf{k}_i). \quad (7)$$

Видно, что множитель $1 - \cos \theta_{sc}$ компенсирует инфракрасную сингулярность индикатрисы $G_{ee}(\mathbf{k}_f, \mathbf{k}_i)$ при $H = 0$ в канале $(e) \rightarrow (e)$. Другие каналы особенностей вообще не содержат. Это означает, что в главном порядке по параметру $\lambda/\xi \ll 1$ транспортная длина не зависит от магнитного поля. Последнее позволяет использовать оценку $l_{tr} \sim l_0$. Эта оценка согласуется с экспериментальной оценкой транспортной длины, полученной в [6].

Результаты моделирования. В работе [5] анизотропия многократного рассеяния в ЖК исследовалась путем измерения интенсивности рассеяния света в зависимости от расстояния между источником и приемником вдоль направлений сдвига параллельно и перпендикулярно директору. Образец имел форму цилиндра толщиной L с радиусом основания, значительно превосходящим другие пространственные параметры, включая длину экстинкции. Декартова система координат была выбрана так, что ось z проходила по оси цилиндра перпендикулярно основанию $z = 0$, а ось x была направлена вдоль директора. Свет в виде тонкого пучка с площадью сечения порядка 1 мм^2 падал нормально в центре на поверхность образца ($z = 0$). Рассеянный свет наблюдался в оптоволоконном детекторе, сдвинутом на расстояние D либо вдоль оси x (параллельно директору), либо вдоль оси y (перпендикулярно директору). Рассматривалось как обратное рассеяние, так и рассеяние вперед после прохождения слоя толщиной L .

Мы выполнили для такой геометрии расчеты интенсивности рассеянного назад или прошедшего вперед излучения методом Монте-Карло.

На рис. 1–3 представлены результаты расчета интенсивности рассеянного излучения в зависимости от расстояния D между падающим лучом и детектором, перемещаемым либо вдоль оси x , либо вдоль оси y . Падающий свет поляризован вдоль директора, т.е. представляет собой необыкновенную волну. Рассеяние происходит в двух каналах: $(e) \rightarrow (e)$ и $(e) \rightarrow (o)$. Таким образом, на рисунках отложены четыре интенсивности: $I_{\parallel}^{(ee)}$, $I_{\parallel}^{(eo)}$, $I_{\perp}^{(ee)}$ и $I_{\perp}^{(eo)}$, где $I_{\parallel\perp}^{(lm)} = I_{\parallel\perp}^{(lm)}(D)$ – интенсивность излучения, рассеянного в канале $(l) \rightarrow (m)$ на расстоянии D от источника вдоль или поперек директора.

На рис. 1 представлены графики для обратно рассеянного излучения. Согласно представлениям диффузионной теории (см., например, [14]) в неограниченной изотропной среде интенсивность рассеянного излучения на расстоянии D от точечного источника убывает по закону $I \sim \exp(-D/L_{diff})$, где $L_{diff} = \sqrt{l_a l_{tr}/3}$ – длина диффузионного затухания,

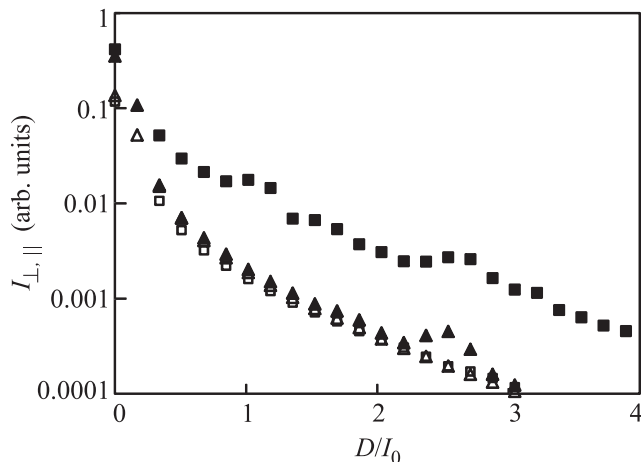


Рис. 1. Интенсивность рассеянного назад света в зависимости от расстояния D между падающим лучом и детектором. Сдвиг детектора вдоль оси x : черные квадраты – канал $(e) \rightarrow (e)$, белые квадраты – канал $(e) \rightarrow (o)$. Сдвиг вдоль оси y : черные треугольники – в канал $(e) \rightarrow (e)$, белые треугольники – канал $(e) \rightarrow (o)$. Длина магнитной когерентности $\xi = 4.2 \text{ мкм}$, толщина слоя $L = 1 \text{ мм}$

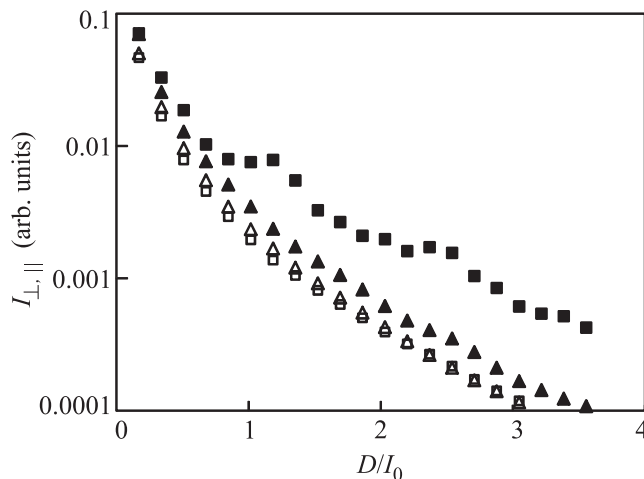


Рис. 2. Интенсивность прошедшего света в зависимости от расстояния. Обозначения те же, что на рис. 1. Длина магнитной когерентности $\xi = 4.2 \text{ мкм}$, толщина слоя $L = 1 \text{ мм}$

l_a – длина адсорбции. В анизотропной среде затухание зависит от направления переноса излучения: $L_{diff} \rightarrow L_{\parallel, \perp} = \sqrt{l_a l_{\parallel, \perp}/3}$, где l_{\parallel} и l_{\perp} представляют собой транспортную длину вдоль и поперек директора.

Видно, что наклоны L_{\parallel}^{-1} и L_{\perp}^{-1} полученных кривых различны для областей больших и малых расстояний. На малых расстояниях ($D < l_0$), на которых диффузионный режим еще не реализуется и опре-

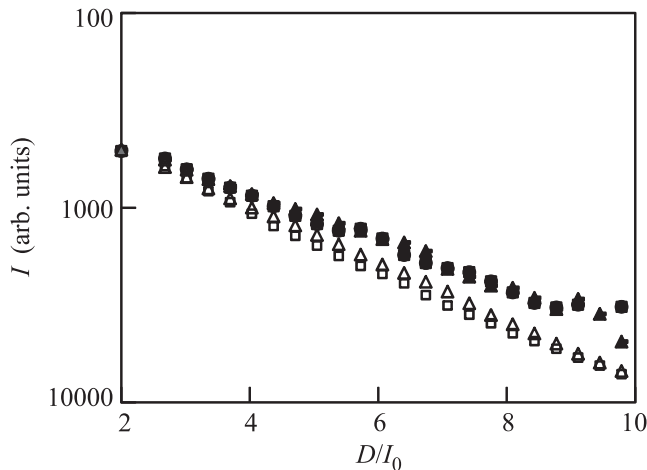


Рис. 3. Интенсивность прошедшего света в зависимости от расстояния до центра. Обозначения те же, что на рис. 1. Длина магнитной когерентности $\xi = 4.2$ мкм, толщина слоя $L = 3$ мм

деляющим масштабom являются длины экстинкции, мы получаем из приведенных графиков соотношение $L_{\parallel}/L_{\perp} \approx 2.85$. Оно близко к отношению длин экстинкции, $l_p(0)/l_p(\pi/2) \approx 2.45$. На больших расстояниях из наклонов кривых с учетом справедливости диффузионного описания получаем $L_{\parallel}/L_{\perp} \approx 1.14$. С учетом корневой зависимости наклонов $L_{\parallel, \perp}^{-1}$ от составляющих транспортной длины это дает соотношение $l_{\parallel}/l_{\perp} \approx 1.3$, значительно меньшее приведенного отношения длин экстинкции. Это свидетельствует о меньшей анизотропии транспортных длин по сравнению с длинами экстинкции. Приведенная оценка находится в качественном согласии с результатом работы [7], $l_{\parallel}/l_{\perp} \approx 1.17 \pm 0.05$, полученным путем анализа данных измерения конуса обратного когерентного рассеяния с использованием соотношений модели точечных рассеивателей. Анизотропия в канале $(e) \rightarrow (o)$, а также в канале $(o) \rightarrow (o)$, не представленном на рисунке, практически отсутствует. Таким образом, описания зависимости затухания рассеяния в терминах двух транспортных длин недостаточно.

В реальных слабо поглощающих средах линейный размер системы L значительно меньше длины адсорбции l_a . В этом случае параметр l_a следует заменить на величину порядка размера системы, зависящую от геометрии образца. В рассматриваемой геометрии в качестве этого параметра естественно использовать толщину цилиндрического образца.

Мы выполнили расчеты для двух толщин, $L_1 = 1.015$ мм и $L_2 = 3.385$ мм, по порядку в одну и три транспортные длины. Эти значения меньше толщины образца в эксперименте, что и обуславливает

высокую скорость убывания интенсивности с расстоянием по сравнению с экспериментальными данными. Мы обнаружили, что вид зависимости интенсивности рассеяния от расстояния между источником и приемником качественно изменяется с изменением толщины образца.

Для тонкого слоя (рис. 2) порядка транспортной длины картина для прошедшего слой излучения практически повторяет картину обратного рассеяния. Затухание в направлении директора в канале $(e) \rightarrow (e)$ происходит значительно медленнее, чем в направлении перпендикулярно директору. В перекрестном канале анизотропии не наблюдается.

Для толстого слоя, представленного на рис. 3, картина резко изменяется вплоть до изменения знака анизотропии в перекрестном канале, $a = (I_{\perp}^{(lm)} - I_{\parallel}^{(lm)}) / (I_{\perp}^{(lm)} + I_{\parallel}^{(lm)})$. Наклоны приведенных графиков, начиная с расстояний $D \sim l_0$, в обоих каналах практически одинаковы.

Для приведенных рисунков длина магнитной когерентности $\xi = 4.2$ мкм, как в экспериментальной работе [6]. Мы также выполнили расчеты для в пять раз меньшего внешнего поля с длиной магнитной когерентности $\xi = 21$ мкм и обнаружили весьма слабую зависимость от внешнего поля. Только в области расстояний, меньших транспортной длины, в канале $(e) \rightarrow (e)$ наблюдается уменьшение рассеяния до десяти процентов при уменьшении длины магнитной когерентности от 21 до 4.2 мкм. На расстояниях, больших транспортной длины, кривые для этих двух значений ξ практически неразличимы.

Заключение. Итак, нами выполнено моделирование методом Монте-Карло многократно рассеянного прошедшего и обратно рассеянного излучения с учетом крупномасштабного характера ориентационных флуктуаций и анизотропии длины рассеяния. Показано, что анизотропия рассеяния слабо зависит от величины ориентирующего магнитного поля. Обнаружено, что картины анизотропии в различных каналах для рассеянного обратно и вперед света различны. В канале $(e) \rightarrow (e)$ в обратном рассеянии меньшие значения длин экстинкции в направлении, перпендикулярном директору, приводят к более быстрому затуханию в этом направлении. В прошедшем излучении это справедливо для тонких слоев, когда масштаб продолжает оставаться длина экстинкции. При прохождении толстых слоев анизотропия рассеянного излучения относительно направления уменьшается и даже меняет знак в перекрестных каналах. Определяющим пространственным масштабом становится транспортная длина, ориентационная зависимость которой может отличаться от ани-

зотропии длин экстинкции. Для количественного согласования с экспериментальными данными по анизотропии рассеяния требуется выход за рамки одноконстантной модели.

Мы нашли, что изменение длины магнитной когерентности на порядок весьма слабо влияет на вид исследованных зависимостей интенсивности рассеяния от расстояния как для обратного рассеяния, так и для рассеяния вперед. Причина этого эффекта состоит в том, что в диффузионном режиме масштабным параметром становится транспортная длина, не содержащая сингулярной особенности по полю.

В настоящей работе преломление света на границе образца не учитывалось. Разработанная методика позволяет включить в процедуру моделирования Монте-Карло френелевские поправки.

Автор благодарен А.Ю. Валькову за критические замечания. Работа частично поддержана грантом РФФИ # 13-02-01255.

-
1. B. A. van Tiggelen and H. Stark, *Rev. Mod. Phys.* **72**, 1017 (2000).
 2. H. Stark and T. C. Lubensky, *Phys. Rev. E* **55**, 514 (1997).

3. B. A. van Tiggelen, A. Heiderich, and R. Maynard, *Mol. Cryst. Liq. Cryst.* **293**, 205 (1997).
4. M. H. Kao, K. A. Jester, A. G. Yodh, and P. J. Collings, *Phys. Rev. Lett.* **77**, 2233 (1996).
5. H. Stark, M. H. Kao, K. A. Jester et al., *J. Opt. Soc. Am. A* **14**, 156 (1997).
6. R. Sapienza, S. Mujumdar, C. Cheung et al., *Phys. Rev. Lett.* **92**, 033903 (2004).
7. R. Sapienza, D. S. Wiersma, and D. Delande, *Mol. Cryst. Liq. Cryst.* **429**, 193 (2005).
8. E. V. Aksenova, V. L. Kuzmin, and V. P. Romanov, *JETPh* **108**, 516 (2009).
9. A. Heiderich, R. Maynard, and B. van Tiggelen, *J. Phys. II France Rev. Mod.* **7**, 765 (1997).
10. V. L. Kuzmin and A. Yu. Valkov, *Opt. Lett.* **37**, 656 (2012).
11. P. G. de Gennes and J. Prost, *The Physics of Liquid Crystals*, Clarendon Press, Oxford, 1993.
12. В. Л. Кузьмин, А. Ю. Вальков, *Оптика и спектроскопия* **111**, 497 (2011) [V. L. Kuz'min and A. Yu. Val'kov, *Optics and Spectroscopy* **111**, 465 (2011)].
13. А. Ю. Вальков, В. П. Романов, А. Н. Шалагинов, *УФН* **164**, 149 (1994) [A. Yu. Val'kov, V. P. Romanov, and A. N. Shalaginov, *Phys. Usp.* **37**, 139 (1994)].
14. T. H. Pham, O. Coquoz, J. B. Fishkin et al., *Rev. of Sci. Instruments* **71**, 2500 (2000).