

Теоретическое описание флуктуаций в свободно подвешенных смектических-А пленках с учетом пространственной неоднородности их упругих характеристик

© Л.В. Миранцев

Институт проблем машиноведения Российской академии наук,
199178 Санкт-Петербург, Россия

E-mail: miran@microm.ipme.ru

(Поступила в Редакцию 27 ноября 1998 г.

В окончательной редакции 25 февраля 1999 г.)

Теоретически исследованы флуктуации смещения смектических слоев и корреляции между ними в свободно подвешенных смектических-А пленках, образованных жидкокристаллическими (ЖК) соединениями с объемными фазовыми переходами смектик-А-изотропная жидкость (SmA-I) и SmA-нематик (SmA-N). При этом были учтены зависимости модулей поперечного изгиба K и растяжения (сжатия) B смектических слоев от расстояния до свободных поверхностей пленок. Результаты расчетов сравнились с результатами, полученными в рамках модели Holyst'a для пространственно однородных свободно подвешенных смектических-А пленок. Установлено, что ниже температуры исчезновения смектического порядка в объеме ЖК учет профилей упругих модулей K и B не дает существенных расхождений с этой моделью. Однако при температурах, значительно превышающих температуры фазовых переходов SmA-I и SmA-N, такой учет приводит к заметным отклонениям от предсказаний модели Holyst'a.

Уникальным свойством смектических жидких кристаллов (СЖК) является их способность образовывать свободно подвешенные пленки. Площадь таких пленок, которые можно рассматривать как стопки смектических слоев с двумя свободными поверхностями, может достигать $\sim 1 \text{ cm}^2$ [1], а толщина варьируется от нескольких сотен слоев до двух и даже одного смектического слоя [2,3]. В тонких свободно подвешенных пленках эффекты, связанные с конечным размером системы, комбинируют с поверхностными эффектами. Такая комбинация приводит к появлению в этих пленках явлений, не наблюдаемых в объемной фазе жидких кристаллов (ЖК). Во-первых, в свободно подвешенных пленках температуры фазовых переходов могут существенно отличаться от температур аналогичных переходов в объеме ЖК [4–10], причем в достаточно тонких пленках переходы первого рода становятся непрерывными (второго рода). Во-вторых, в свободно подвешенных пленках некоторых ЖК могут существовать смектические фазы, вообще не наблюдаемые в толстых образцах тех же соединений [11–13]. Наконец, сравнительно недавно было обнаружено, что свободно подвешенные смектические-А (SmA) пленки некоторых ЖК соединений не разрываются при нагревании выше температуры исчезновения смектического порядка в объеме ЖК, а претерпевают серию скачкообразных послойных уменьшений своей толщины [14–18]. Благодаря таким скачкам толщина свободно подвешенных пленок может последовательно уменьшаться от нескольких десятков до двух смектических слоев, причем температура существования двуслойных пленок может на $\sim 10\text{--}20 \text{ K}$ превышать температуру фазового перехода SmA-изотропная фаза (SmA-I) или SmA-нематик (SmA-N) в толстых образцах этих же мезогенов. По этой причине, а также из-за того, что,

варьируя толщину пленок, мы можем изучать кроссовер от поведения трехмерных физических систем к поведению двумерных систем, в течение последних 15–20 лет свободно подвешенные смектические пленки являются объектами интенсивного экспериментального [1–28] и теоретического [29–39] исследований.

Наиболее полную информацию о структуре свободно подвешенных смектических пленок можно получить с помощью экспериментов по малоугловому рассеянию рентгеновских лучей, которые дают сведения как о их равновесных характеристиках (число смектических слоев, толщина слоя, тип упаковки молекул в слое) [11–13,22–24], так и о флуктуациях в пленках [18,24–28]. При этом из результатов измерения коэффициента зеркального отражения пленки можно получить профиль флуктуаций смещения смектических слоев, а измерение коэффициента диффузного отражения позволяет исследовать корреляции между смещениями различных слоев пленки [26–28]. Следует, однако, отметить, что для получения этих сведений из результатов измерения интенсивности отраженного от пленки рентгеновского излучения необходимо иметь теоретическую модель, адекватно описывающую тепловые флуктуации смещения смектических слоев в свободно подвешенной пленке. Простая дискретная модель для описания таких флуктуаций в свободно подвешенной смектической-А пленке, учитывающая не только сжатие и поперечный сдвиг смектических слоев, но и поверхностное натяжение пленки, была предложена Holyst'ом [31,32]. Затем в работах [33,34] был разработан более удобный для описания экспериментальных данных континуальный вариант этой теории. С его помощью удастся довольно хорошо описать результаты измерений коэффициентов зеркального и диффузного отражений рентгеновских лучей для

свободно подвешенных пленок некоторых ЖК соединений [26,27]. В модели Holyst'a свободно подвешенная смектическая-А пленка предполагается пространственно однородной и характеризуется только четырьмя физическими параметрами: числом смектических слоев N , коэффициентом поверхностного натяжения γ , а также упругими модулями поперечного изгиба K и растяжения (сжатия) B смектических слоев. При этом последние две величины считаются одинаковыми для всех слоев пленки независимо от их положения и приравниваются соответствующим упругим модулям в объеме смектической-А фазы. Это предположение является физически оправданным только для свободно подвешенных пленок, исследуемых при температурах значительно более низких, чем температура фазовых переходов SmA-N или SmA-I в объеме ЖК. Поскольку в этом случае SmA-структура является достаточно хорошо установившейся во всем объеме пленки, то ориентационное и трансляционное упорядочения молекул во внутренних и поверхностных слоях пленки мало отличаются друг от друга. Если предположить, что в свободно подвешенных пленках, так же как и в толстых ЖК образцах, модуль поперечного изгиба K пропорционален квадрату параметра ориентационного порядка s , а модуль растяжения (сжатия) смектических слоев B пропорционален квадрату параметра трансляционного порядка τ [40,41], то эти модули тоже должны быть практически одинаковыми для всех слоев пленки.

Однако как уже отмечалось выше, свободно подвешенные смектические пленки некоторых ЖК могут существовать и при температурах, значительно превышающих температуры исчезновения смектического порядка в объеме мезогенов. Согласно микроскопической модели [35,36,39], довольно хорошо описывающей поведение свободно подвешенных пленок при их нагревании выше точек фазовых переходов SmA-N и SmA-I, в этом случае как ориентационное, так и трансляционное упорядочения во внутренних слоях пленки могут быть существенно ниже, чем вблизи свободных ограничивающих поверхностей. Этот теоретический результат был подтвержден экспериментально [18] при измерении коэффициентов зеркального отражения рентгеновских лучей для смектических-А пленок различной толщины выше точки фазового перехода SmA-N в объеме ЖК. Следовательно, в таких пленках модули поперечного изгиба и растяжения (сжатия) смектических слоев должны уменьшаться с расстоянием до свободной поверхности и достигать минимальных значений в центре пленки. Поскольку существование такого профиля упругих модулей совершенно не учитывается как в модели Holyst'a [31,32], так и в ее континуальных модификациях [33,34], то они должны давать неверные значения флуктуаций смещения смектических слоев и корреляций между этими флуктуациями. Следует также отметить, что если в работах [26,27], посвященных рентгеноструктурному анализу смектических-А пленок при температурах существенно более низких, чем температура исчезнове-

ния смектического порядка в объеме ЖК, результаты эксперимента удалось очень хорошо воспроизвести с помощью модели [34], то при аналогичном исследовании свободно подвешенных пленок в окрестности температуры фазового перехода SmA-N [18] были выявлены серьезные расхождения между результатами этой модели и экспериментальными данными.

В настоящей работе приводится простое обобщение дискретной модели Holyst'a [31,32], учитывающее зависимости модулей поперечного изгиба K и растяжения (сжатия) B смектических слоев от расстояния до ограничивающих поверхностей пленки. Эти зависимости определяются с помощью микроскопической модели [35,36,39] для свободно подвешенных смектических-А пленок. Рассчитаны профили флуктуаций смещения смектических слоев и корреляция между этими флуктуациями для свободно подвешенных пленок, образованных ЖК соединениями с объемными фазовыми переходами SmA-I и SmA-N. В обоих случаях расчеты проводились как при температурах значительно более низких, чем температуры соответствующих фазовых переходов, так и при температурах предельно высоких для существования свободно подвешенных пленок заданной толщины. Результаты расчетов сравниваются с результатами, полученными в рамках модели Holyst'a. Показано, что ниже температуры исчезновения смектического порядка в объеме ЖК учет профилей упругих модулей K и B не дает существенных расхождений с этой моделью. Однако при температурах, значительно превышающих температуры фазовых переходов SmA-I и SmA-N, такой учет приводит к значительным отклонениям от предсказаний модели Holyst'a.

1. Дискретная модель для описания флуктуаций смещения слоев в свободно подвешенной смектической-А пленке

Рассмотрим свободно подвешенную смектическую-А пленку, состоящую из N дискретных слоев. Обозначим через $u_n(x, y)$ флуктуационные смещения смектических слоев от их равновесных положений $z_n = (n - 1)d$ вдоль оси z , перпендикулярной плоскости слоев. Здесь d — толщина смектического слоя, а n — его номер. Такому смещению слоев пленки соответствует избыточная свободная энергия F , состоящая из поверхностного F_S и объемного F_B вкладов. Согласно модели Holyst'a [31,32], поверхностная энергия F_S , связанная с увеличением площади двух свободных поверхностей пленки, определяется следующим выражением:

$$F_S = \frac{1}{2} \gamma \int [|\nabla_{\perp} u_1(\mathbf{R})|^2 + |\nabla_{\perp} u_N(\mathbf{R})|^2] d\mathbf{R}, \quad (1)$$

где γ — коэффициент поверхностного натяжения свободной поверхности смектической-А пленки, \mathbf{R} — радиус-вектор в плоскости смектических слоев ($R^2 = x^2 + y^2$),

∇_{\perp} — проекция оператора ∇ на плоскость (x, y) . Что касается объемного вклада F_B в энергию деформации пленки F , то он состоит из двух частей: энергии $F_B^{(1)}$ деформации поперечного изгиба директора \mathbf{n} в смектических слоях пленки и энергии $F_B^{(2)}$ растяжения (сжатия) смектических слоев. Если обозначить через K_n модуль поперечного изгиба в n -м слое пленки, то по аналогии с выражением для плотности энергии деформации поперечного изгиба в объемной смектической-А фазе [40,41] энергия $F_B^{(1)}$ в рамках используемой дискретной модели может быть записана в виде

$$F_B^{(1)} = \frac{1}{2} \sum_{n=1}^N K_n d \int [\Delta_{\perp} u_n(\mathbf{R})]^2 d\mathbf{R}, \quad (2)$$

где Δ_{\perp} — двумерный оператор Лапласа в плоскости (x, y) . Также по аналогии с выражением для энергии деформации растяжения (сжатия) смектических слоев в объеме смектической-А фазы [40,41] энергия $F_B^{(2)}$ определяется следующим образом:

$$F_B^{(2)} = \frac{1}{2} \sum_{n=1}^{N-1} \left(\frac{B_n + B_{n+1}}{2d} \right) \int [u_{n+1}(\mathbf{R}) - u_n(\mathbf{R})]^2 d\mathbf{R}. \quad (3)$$

Здесь B_n — модуль растяжения (сжатия) n -го слоя в свободно подвешенной смектической-А пленке. Складывая F_S , $F_B^{(1)}$ и $F_B^{(2)}$, получаем полную избыточную энергию F пленки, связанную с флуктуациями смещения ее слоев

$$F = \frac{1}{2} \int \left\{ \sum_{n=1}^{N-1} \left(\frac{B_n + B_{n+1}}{2d} \right) [u_{n+1}(\mathbf{R}) - u_n(\mathbf{R})]^2 + \sum_{n=1}^N K_n d [\Delta_{\perp} u_n(\mathbf{R})]^2 + \gamma |\nabla_{\perp} u_1(\mathbf{R})|^2 + \gamma |\nabla_{\perp} u_N(\mathbf{R})|^2 \right\} d\mathbf{R}. \quad (4)$$

Следует отметить, что в случае пространственно однородной свободно подвешенной смектической-А пленки, когда модули поперечного изгиба K_n и растяжения (сжатия) B_n всех ее слоев одинаковы и равны K и B соответственно, выражение (4) для избыточной энергии пленки F полностью совпадает с аналогичным выражением в модели Нолыста [31,32].

С помощью непрерывного преобразования Фурье

$$u_n(\mathbf{R}) = (2\pi)^{-2} \int u_n(\mathbf{q}_{\perp}) \exp(i\mathbf{q}_{\perp} \mathbf{R}) d\mathbf{q}_{\perp} \quad (5)$$

можно получить простое, компактное выражение для избыточной свободной энергии F

$$F = \frac{1}{2} \sum_{k,n=1}^N \int u_k(\mathbf{q}_{\perp}) M_{kn} u_n(-\mathbf{q}_{\perp}) d\mathbf{q}_{\perp}, \quad (6)$$

где M_{kn} — элементы симметричной матрицы ленточного вида. У такой матрицы ненулевыми являются только диагональные и первые, стоящие рядом элементы, которые

определяются следующими формулами:

$$M_{11} = M_{NN} = \gamma q_{\perp}^2 + K_1 d q_{\perp}^4 + (B_1 + B_2)/2d = b_1 = b_N, \quad (7)$$

$$M_{nn} = K_n d q_{\perp}^4 + (B_{n-1} + 2B_n + B_{n+1})/2d = b_n, \\ n = 2, N-1, \quad (8)$$

$$M_{n+1n} = M_{nn+1} = -(B_n + B_{n+1})/2d = c_n, \\ n = 1, N-1. \quad (9)$$

Зная элементы M_{kn} прямой матрицы, можно определить элементы $(M^{-1})_{kn}$ матрицы обратной ей и с их помощью вычислить средние флуктуации смещения слоев пленки $\sigma_n = \langle u_n^2(0) \rangle^{1/2}$ и корреляции $g_{k,n}(\mathbf{R}) = \langle u_k(\mathbf{R}) u_n(0) \rangle / (\sigma_k \sigma_n)$ между ними. Согласно [31,32],

$$\sigma_n^2 = \langle u_n^2(0) \rangle = \frac{k_B T}{(2\pi)^2} \int (M^{-1})_{nn} d\mathbf{q}_{\perp}, \quad (10)$$

$$\langle u_k(\mathbf{R}) u_n(0) \rangle = \frac{k_B T}{(2\pi)^2} \int (M^{-1})_{kn} \exp(i\mathbf{q}_{\perp} \mathbf{R}) d\mathbf{q}_{\perp}, \quad (11)$$

где k_B — постоянная Больцмана, а T — абсолютная температура системы. В правых частях соотношений (10) и (11) нижний предел интегрирования определяется поперечными размерами пленки L , а верхний предел — диаметром молекул a ($2\pi/L \leq |q_{\perp}| \leq 2\pi/a$). Это связано с тем, что в пленке нельзя возбудить поперечные моды с длиной волны, меньшей диаметра молекулы с большей ее поперечных размеров. Если поперечные размеры свободно подвешенной пленки являются макроскопическими ($L \sim 1$ см), то нижние пределы интегрирования в (10) и (11) можно положить равными нулю.

Как уже отмечалось в введении, модуль поперечного изгиба K в объеме ЖК пропорционален квадрату параметра ориентационного порядка $s = \langle \frac{3}{2} \cos^2 \vartheta - \frac{1}{2} \rangle$ [40,41], где ϑ — полярный угол между длинной осью молекул ЖК и директором \mathbf{n} , $\langle \dots \rangle$ означает усреднение по всем молекулам в малом, но макроскопическом объеме, а модуль B растяжения (сжатия) смектических слоев в объеме СЖК пропорционален квадрату параметра трансляционного порядка $\tau = \langle \cos(2\pi z/d) \rangle$. Если допустить, что в свободно подвешенных пленках во всем температурном интервале их существования, включая температуры, превышающие точки фазовых переходов SmA-N или SmA-I в объеме ЖК, имеют место те же соотношения между упругими модулями и параметрами ориентационного и трансляционного порядков, что и в объеме мезофаз, то эти соотношения дают возможность найти фигурирующие в уравнениях (7)–(9) упругие модули K_n и B_n для смектических слоев в свободно подвешенной смектической-А пленке с помощью микроскопической модели, предложенной в [35,36,39]. Модель позволяет определить значения параметров порядка $s_n(T)$ и $\tau_n(T)$ для каждого слоя пленки произвольной толщины при любой температуре T из области ее существования.

Кроме того, в случае очень толстых пленок ($N \rightarrow \infty$) она дает значения этих параметров в центре пленки, полностью совпадающие с результатами хорошо известной теории Мак-Миллана [42] для объемной смектической-А фазы. Если нам известны значения упругих модулей K и B в объеме смектической-А фазы при некоторой температуре T_0 ($K(T_0) \equiv K_0$, $B(T_0) \equiv B_0$), более низкой, чем температура фазового перехода SmA-I или SmA-N, то с помощью модели [35,36,39] мы можем найти значения параметров порядка $s(T_0) \equiv s_0$ и $\tau(T_0) \equiv \tau_0$ при этой температуре, а затем с помощью соотношений

$$K_n(T) = K_0(s_n(T)/s_0)^2, \quad (12)$$

$$B_n(T) = B_0(\tau_n(T)/\tau_0)^2 \quad (13)$$

определить значения упругих модулей K_n и B_n для всех слоев пленки заданной толщины при любой температуре T из области ее существования.

2. Результаты численных расчетов и их обсуждение

Численные расчеты флуктуаций смещения смектических слоев σ_n и корреляций $g_{k,n}(R)$ проводились для двух свободно подвешенных смектических-А пленок, состоящих из $N = 24$ слоев. При этом предполагалось, что одна из них создана из ЖК, демонстрирующего сильный переход первого рода из изотропной фазы в смектическую-А фазу. В модели Мак-Миллана [42] для объемной смектической-А фазы, а также в модели [35,36,39] для свободно подвешенных смектических-А пленок такому случаю соответствует значение модельного параметра $\alpha = 2 \exp[-(\pi r_0/d)^2] \geq 0.98$. Здесь r_0 — характерный радиус взаимодействия для модельного парного потенциала межмолекулярного взаимодействия, используемого в теории Мак-Миллана. В наших расчетах использовалось значение $\alpha = 1.05$. Вторая свободно подвешенная смектическая-А пленка считалась созданной из ЖК со слабым фазовым переходом первого рода SmA-N. Этому случаю соответствует значение модельного параметра $\alpha \leq 0.98$. Наши расчеты проводились при $\alpha = 0.871$. Такой выбор значений модельных параметров объясняется тем, что в работах [18,26–28] флуктуации смещения смектических слоев и корреляция между ними исследовались с помощью малоуглового рассеяния рентгеновских лучей именно на таких свободно подвешенных пленках. В [26,27] объектами исследования были свободно подвешенные смектические-А пленки, образованные мезогеном FPP (4-heptyl-2-[4-(2-perfluorhexylethyl)phenyl]pyrimidin), демонстрирующим сильный фазовый переход первого рода SmA-I, а в [18,28] исследовались свободно подвешенные пленки, образованные ЖК 7AB (4,4'-diheptylazobenzene) с фазовым переходом второго рода (или слабым переходом первого рода) SmA-N. В обоих случаях флуктуация смещения слоев свободно

подвешенной смектической-А пленки и корреляции между ними рассчитывались при двух температурах, первая из которых $T_1^{(1,2)}$ была значительно ниже температуры фазового перехода SmA-I (SmA-N) в объеме ЖК, а вторая $T_2^{(1,2)}$ — чуть ниже предельной температуры существования свободно подвешенной пленки заданной толщины. Для первой пленки $T_1^{(1)} = 0.205(V_0/k_B)$, а $T_2^{(1)} = 0.2298(V_0/k_B)$. Здесь V_0 — константа межмолекулярного взаимодействия в теории Мак-Миллана [42]. Согласно этой теории, при $\alpha = 1.05$ температура фазового перехода SmA-I в объеме ЖК равна $T_{AI} = 0.2249(V_0/k_B)$. С другой стороны, согласно модели [35,36,39] для свободно подвешенных смектических-А пленок, при $\alpha = 1.05$ предельная температура существования свободно подвешенной пленки с 24 слоями равна $T_c^{(1)}(N = 24) = 0.2299(V_0/k_B)$. Выше этой температуры пленка либо разрывается, либо претерпевает скачкообразное уменьшение своей толщины на целое число смектических слоев. Для второй пленки ($\alpha = 0.871$) первая температура бралась равной $T_1^{(2)} = 0.204(V_0/k_B)$ (согласно [42], при $\alpha = 0.871$ температура перехода SmA-N в объеме ЖК равна $T_{AN} = 0.2091(V_0/k_B)$), а вторая $T_2^{(2)} = 0.21035(V_0/k_B)$ (согласно модели [35,36,39], при $\alpha = 0.871$ предельная температура существования пленки равна $T_c^{(2)}(N = 24) = 0.21036(V_0/k_B)$). Величина константы межмолекулярного взаимодействия V_0 для первой пленки выбиралась таким образом, чтобы абсолютная температура T_{AI} фазового перехода SmA-I в объеме ЖК совпадала с экспериментально найденной температурой (396 К [26,27]) этого перехода в ЖК FPP. Точно так же величина константы V_0 для второй пленки выбиралась так, чтобы обеспечить совпадение абсолютной температуры T_{AN} фазового перехода SmA-N в объеме ЖК с экспериментально найденной температурой (326 К [18,28]) этого перехода в ЖК 7AB. Ориентирующее действие свободной поверхности пленок на молекулы ЖК считалось достаточно сильным. Отношение константы взаимодействия W , которая в модели [35,36,39] определяет силу эффективного внешнего поля, иммитирующего это действие, к константе межмолекулярного взаимодействия V_0 считалось равным 1.6. Согласно этой модели, при таком сильном ориентирующем действии свободной поверхности на молекулы ЖК достижение предельно высокой температуры существования свободно подвешенной смектической-А пленки приводит не к ее разрыву, а к скачкообразному уменьшению толщины на целое число слоев. Именно такой эффект наблюдался в экспериментах [18,28] на ЖК 7AB. Что касается ЖК FPP, исследованного в [26,27], то он относится к мезогенам, молекулы которых имеют частично фторированные алкильные хвосты. Согласно [14,16], пленки таких ЖК также не рвутся при нагревании, а демонстрируют скачкообразное уменьшение толщины. Величина модуля поперечного изгиба K_0 для объемной фазы ЖК при температуре более низкой, чем T_{AI} или T_{AN}

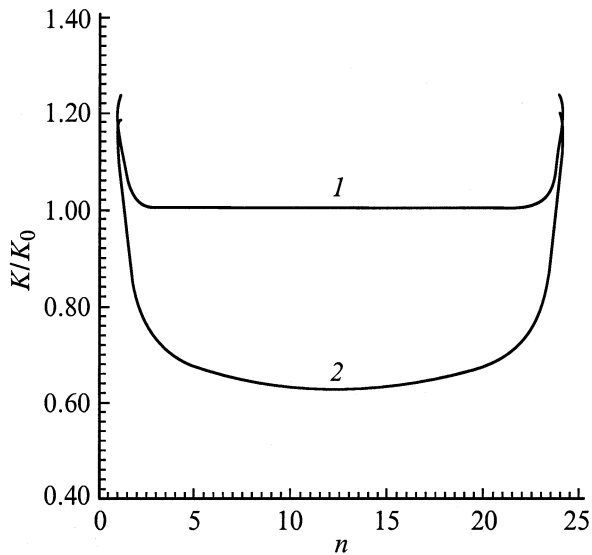


Рис. 1. Профили модуля поперечного изгиба K в первой свободно подвешенной смектической-А пленке ниже температуры фазового перехода SmA-I и при предельно высокой температуре ее существования. $N = 24$; $\alpha = 1.05$; $W/V_0 = 1.6$. 1 — $T = T_1^{(1)} = 0.205(V_0/k_B)$; 2 — $T = T_2^{(1)} = 0.2298(V_0/k_B)$.

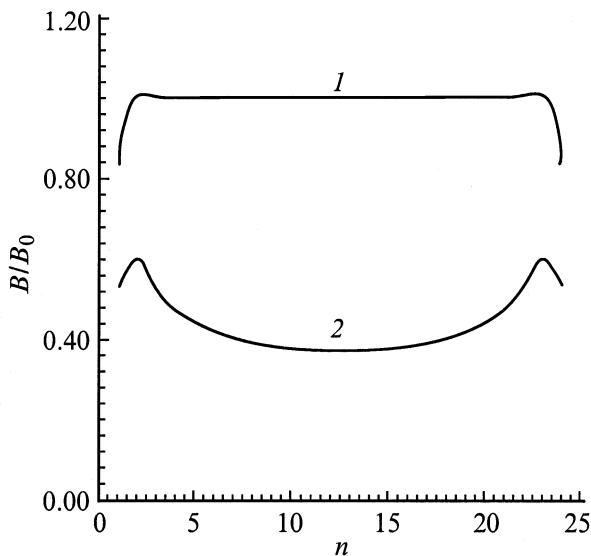


Рис. 2. Профили модуля растяжения (сжатия) смектических слоев B в первой свободно подвешенной пленке при тех условиях, что и на рис. 1. 1 — $T = T_1^{(1)} = 0.205(V_0/k_B)$; 2 — $T = T_2^{(1)} = 0.2298(V_0/k_B)$.

(для ЖК с фазовым переходом SmA-I эта температура считалась совпадающей с $T_1^{(1)}$, а для ЖК с переходом SmA-N — с $T_1^{(2)}$), в обоих случаях предполагалась равной $K_0 = 10^{-6}$ дин (типичная величина для большинства ЖК [40,41]). Что касается значений модуля растяжения (сжатия) смектических слоев B_0 , которые для простоты также считались определенными при температурах $T_1^{(1)}$

и $T_1^{(2)}$, то для первого ЖК использовалась величина, найденная в [26,27] ($B_0 = 7.5 \cdot 10^9$ дин/см²), а для второго — найденная в [28] ($B_0 = 10^8$ дин/см²). Величины коэффициента поверхностного натяжения γ для свободной поверхности пленок также были взяты из работ [26–28] и считались равными $\gamma = 13$ дин/см и $\gamma = 25$ дин/см для первой и второй пленок соответственно. Толщина смектических слоев в пленке d считалась не зависящей от температуры и равной длине молекулы $l = 30$ Å, а диаметр молекулы a считался равным 4 Å (типичные размеры для молекул ЖК [40,41]).

Прежде всего с помощью модели [35,36,39] были вычислены профили упругих модулей K и B для обеих свободно подвешенных пленок. Эти профили для первой из них изображены на рис. 1 и 2 соответственно. Из этих рисунков видно (кривые 1), что ниже температуры фазового перехода SmA-I ($T = T_1^{(1)}$) оба упругих модуля одинаковы для всех слоев пленки (исключение составляют только первый и последний поверхностные слои). В этом случае свободно подвешенная смектическая-А пленка действительно является пространственно однородной (или почти однородной) и модель Holyst'a [31,32] должна давать результаты, мало отличающиеся от наших. Однако вблизи предельной температуры существования свободно подвешенной пленки заданной толщины ($T = T_2^{(1)}$) пленка уже не является пространственно однородной (кривые 2) и упругие модули K и B в ее центре значительно меньше, чем вблизи свободной поверхности. Именно в этом случае различие между результатами модели Holyst'a [31,32] и нашими результатами должно быть существенным. Следует отметить, что не приведенные здесь профили упругих модулей K и B для второй свободно подвешенной пленки аналогичны профилям, изображенным на рис. 1 и 2.

Полученные профили упругих модулей K и B были затем использованы при расчете профилей флуктуаций смещения смектических слоев σ_n для двух свободно подвешенных пленок. Результаты этих расчетов приведены на рис. 3 и 4 соответственно. На этих же рисунках штриховыми линиями показаны профили флуктуаций смещения σ_n , полученные с помощью модели Holyst'a [31,32]. Как и следовало ожидать, при $T = T_1^{(1)}$ для первой пленки и при $T = T_1^{(2)}$ для второй пленки наши результаты почти не отличаются от результатов этой модели (на рис. 4 профиль σ_n , полученный при $T = T_1^{(2)}$ с помощью модели [31,32], не показан, так как полностью совпадает с профилем, рассчитанным с учетом пространственной неоднородности пленки). Однако вблизи предельных температур существования обеих свободно подвешенных пленок ($T = T_2^{(1,2)}$) учет зависимости величин упругих модулей K и B от расстояния до свободной поверхности пленок приводит к существенному отклонению от предсказаний модели Holyst'a [31,32]. Так, для первой свободно подвешенной пленки (рис. 3) разность между величинами σ_n , рассчитанными при $T = T_1^{(1)}$ и $T = T_2^{(1)}$ с учетом профилей

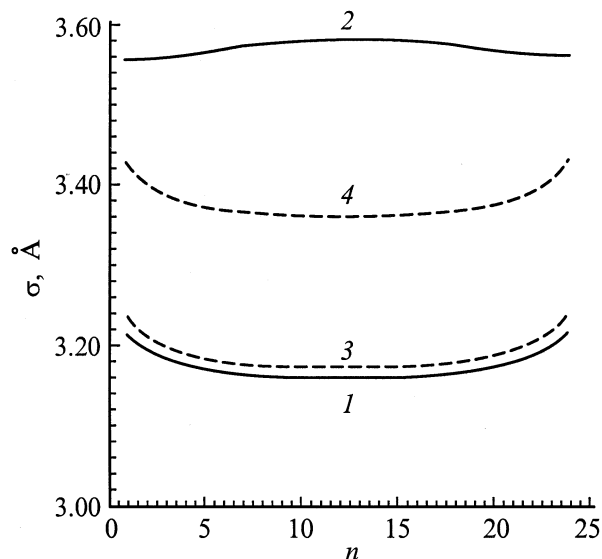


Рис. 3. Профили флуктуаций смещения смектических слоев в первой свободно подвешенной смектической-А пленке, рассчитанные как с учетом профилей модулей упругости K и B (кривые 1 и 2), так и в рамках модели Holyst'a [31,32] (кривые 3 и 4). $K_0 = 10^{-6}$ dyn; $B_0 = 7.5 \cdot 10^9$ dyn/cm²; $\gamma = 13$ dyn/cm. Остальные параметры те же, что и на рис. 1, 2. 1 — $T = T_1^{(1)} = 0.205(V_0/k_B)$; 2 — $T = T_2^{(1)} = 0.2298(V_0/k_B)$; 3 — результаты модели Holyst'a при $T = T_1^{(1)}$; 4 — результаты этой же модели при $T = T_2^{(1)}$.

модулей K и B , изображенных на рис. 1 и 2 соответственно, примерно в 2 раза превосходит аналогичную разность при расчете величин σ_n с помощью этой модели. Кроме того, согласно [31,32], повышение температуры пленки приводит лишь к увеличению абсолютной величины σ_n и не меняет формул профиля флуктуаций смещения смектических слоев (величина σ_n максимальна у поверхности и минимальна в центре пленки (кривые 3 и 4 на рис. 3)). Наши же расчеты, учитывающие изменения профилей K и B с изменением температуры, показывают, что нагревание пленки до предельно высокой температуры ее существования $T_2^{(1)}$ не только увеличивает абсолютную величину σ_n , но и меняет форму профиля флуктуаций смещения смектических слоев (величина σ_n в центре пленки становится больше, чем вблизи свободных поверхностей (кривые 1 и 2 на рис. 3)). Что касается второй свободно подвешенной пленки, то здесь вблизи предельной температуры ее существования ($T = T_2^{(2)}$) различия между нашими результатами и результатами модели Holyst'a еще больше. Как и в предыдущем случае, эта модель предсказывает весьма незначительное изменение профиля флуктуаций смещения смектических слоев σ_n при увеличении температуры пленки (кривая 3 на рис. 4). Наши же расчеты дают совершенно другой результат (кривая 2 на рис. 4). Во-первых, при $T = T_2^{(2)}$ абсолютная величина флуктуаций смещения σ_n в центре пленки оказывается примерно на 30% больше, чем

при $T = T_1^{(2)}$. Во-вторых, первоначально достаточно "плоский" профиль флуктуаций смещения при $T = T_2^{(2)}$ становится "куполообразным". Следует отметить, что именно такое существенное изменение профиля флуктуаций с ростом температуры было получено в экспериментах [18,28] по малоугловому рассеянию рентгеновских лучей на свободно подвешенных пленках, образованных ЖК 7AB (аналогичные эксперименты [26,27] на пленках, образованных ЖК FPP, проводились только при одной температуре, значительно более низкой, чем температура фазового перехода SmA-I). Таким образом, наши результаты гораздо лучше согласуются с экспериментальными данными [18,28], чем результаты модели [31,32].

Нами были также рассчитаны корреляции $g_{k,n}(R)$ между флуктуациями смещения различных слоев в свободно подвешенных смектических-А пленках. Результаты этих расчетов для корреляций между флуктуациями смещения первого ($k = 1$) и остальных ($n = 1, 24$) слоев в первой и второй пленках (при $\mathbf{R} = 0$) приведены на рис. 5 и 6 соответственно. В обоих случаях ниже температуры исчезновения смектического порядка в объеме ЖК ($T = T_1^{(1,2)}$) полученные результаты (кривые 1 на рис. 5 и 6) практически полностью совпадают с результатами модели Holyst'a [31,32] (штриховые кривые на этих рисунках). Обе модели предсказывают для первой пленки довольно незначительное ослабление корреляций между флуктуациями смещения слоев с ростом расстояния между ними и существенное уменьшение

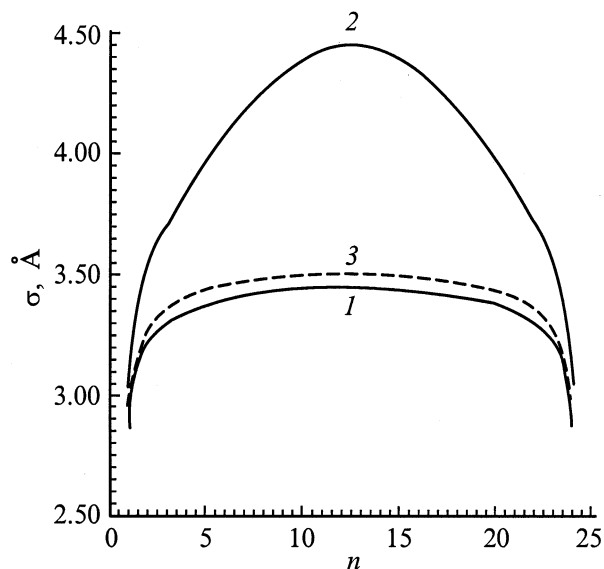


Рис. 4. Профили флуктуаций смещения смектических слоев во второй свободно подвешенной смектической-А пленке ($N = 24$; $\alpha = 0.871$; $W/V_0 = 1.6$; $K_0 = 10^{-6}$ dyn; $B_0 = 10^8$ dyn/cm²; $\gamma = 25$ dyn/cm). Кривые 1 и 2 — результаты наших расчетов при $T = T_1^{(2)} = 0.204(V_0/k_B)$ и $T = T_2^{(2)} = 0.21035(V_0/k_B)$ соответственно. Кривая 3 — результаты модели Holyst'a при $T = T_2^{(2)}$.

корреляции $g_{1,n}(0)$ с ростом номера n для второй пленки. Так, согласно рис. 5, в первой свободно подвешенной пленке корреляция $g_{1,24}(0)$ между флуктуациями смещения первого и последнего слоев лишь на 10% меньше корреляция $g_{1,2}(0)$ между флуктуациями смещения первого и второго слоев. Можно сказать, что все слои этой пленки флуктуируют в унисон. Во второй свободно подвешенной пленке (кривая 1 на рис. 6) корреляция между флуктуациями смещения первого и последнего слоев почти в 2 раза меньше аналогичной корреляции для двух соседних (первого и второго) слоев. Другими словами, флуктуации смещения двух достаточно удаленных друг от друга слоев этой пленки слабо связаны между собой. Такое различие в поведении рассматриваемых пленок связано с тем, что модули растяжения (сжатия) смектических слоев в первой из них почти на 2 порядка больше, чем во второй. Благодаря большей жесткости слоев первой пленки флуктуационное смещение одного из них передается по эстафете другим слоям лучше, чем это имеет место во второй пленке.

При предельно высоких температурах существования обеих свободно подвешенных пленок ($T = T_2^{(1,2)}$) полученные нами значения корреляций $g_{1,n}(0)$ между флуктуациями смещения их слоев (кривые 2 на рис. 5 и 6) заметно отличаются от результатов модели [31,32]. Согласно этой модели, увеличение температуры пленок практически не сказывается на величине этих корреляций (зависимости корреляций $g_{1,n}(0)$ от номера n при $T = T_2^{(1,2)}$ описываются на рис. 5 и 6 теми же штриховыми линиями, что и при $T = T_1^{(1,2)}$). Наши же

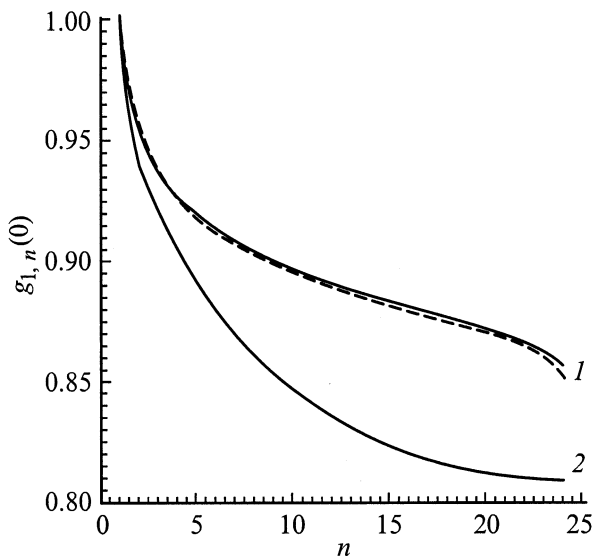


Рис. 5. Корреляции $g_{1,n}(0)$ между флуктуациями смещения первого и остальных ($n = 1, 24$) смектических слоев первой свободно подвешенной пленки. Параметры N , α , W/V_0 , K_0 , B_0 и γ те же, что и на рис. 3. Кривые 1 и 2 — результаты наших расчетов при $T = T_1^{(1)} = 0.205(V_0/k_B)$ и $T = T_2^{(1)} = 0.2298(V_0/k_B)$ соответственно. Штриховая кривая — результат модели Holyst'a.

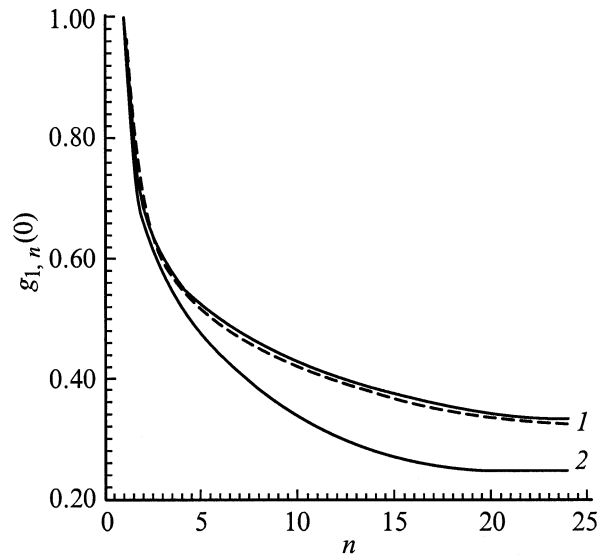


Рис. 6. Те же корреляции, что и на рис. 5, но для второй свободно подвешенной смектической-A пленки. Параметры N , α , W/V_0 , K_0 , B_0 и γ те же, что и на рис. 4. Кривые 1 и 2 — результаты наших расчетов при $T = T_1^{(2)} = 0.204(V_0/k_B)$ и $T = T_2^{(2)} = 0.21035(V_0/k_B)$ соответственно. Штриховая кривая — результаты модели Holyst'a.

расчеты показывают, что рост температуры пленок почти не меняет величину корреляции между флуктуациями смещения лишь соседних (первого и второго) смектических слоев. Для достаточно удаленных друг от друга слоев свободно подвешенных пленок рост температуры приводит к ослаблению корреляций между их флуктуациями смещения. При этом больше всех уменьшаются корреляции для наиболее удаленных друг от друга первого и последнего слоев пленки. Так, для первой пленки (рис. 5) величина корреляции $g_{1,24}(0)$ при $T = T_2^{(1)}$ примерно на 6% меньше, чем при начальной температуре $T = T_1^{(1)}$, а для второй пленки (рис. 6) величина $g_{1,24}(0)$ с ростом температуры от $T = T_1^{(2)}$ до $T = T_2^{(2)}$ уменьшается почти на 34% от первоначального значения. Такое уменьшение корреляций $g_{1,24}(0)$ обусловлено существенным уменьшением модулей упругости K и B в центральной части пленок при их нагревании до предельно высоких температур существования $T = T_2^{(1,2)}$ (рис. 1 и 2), которое совершенно не учитывается в модели Holyst'a [31,32]. Поскольку флуктуационное смещение смектических слоев вблизи одной из свободных поверхностей пленки передается слоям вблизи другой ее свободной поверхности через центральные слои, то уменьшение жесткости последних должно приводить к ослаблению корреляций между флуктуациями смещения двух поверхностных слоев.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (грант № 98-03-32448).

Список литературы

- [1] P. Pieranski, L. Beliard, J.P. Tournellec, X. Leoncini, C. Furtlehner, H. Dumoulin, E. Riou, B. Jouvin, J.P. Fenerol, Ph. Palaric, J. Heuving, B. Cartier, I. Kraus. *Physica* **A194**, 1–4, 364 (1993).
- [2] C. Rosenblatt, R. Pindak, N.A. Clark, R.B. Meyer. *Phys. Rev. Lett.* **42**, 1220 (1979).
- [3] M. Veum, C.C. Huang, C.F. Chou, V. Surendranath. *Phys. Rev.* **E56**, 2, 2298 (1997).
- [4] C. Rosenblatt, N.M. Amer. *Appl. Phys. Lett.* **36**, 6, 432 (1980).
- [5] S. Heinekamp, R.A. Pelcovits, E. Fontes, E.Y. Chen, R. Pindak, R.B. Meyer. *Phys. Rev. Lett.* **52**, 12, 1017 (1984).
- [6] R. Pindak, D.J. Bishop, W.O. Sprenger. *Phys. Rev. Lett.* **44**, 22, 1461 (1980).
- [7] J.C. Tarczon, K. Miyano. *Phys. Rev. Lett.* **46**, 2, 119 (1981).
- [8] D.J. Bishop, W.O. Sprenger, R. Pindak, M.E. Neubert. *Phys. Rev. Lett.* **49**, 25, 1861 (1982).
- [9] C. Bahr, D. Fliegner. *Phys. Rev.* **A46**, 7657 (1992).
- [10] I. Kraus, P. Pieranski, E. Demikhov, H. Stegemeyer, J. Goodby. *Phys. Rev.* **E48**, 3, 1916 (1993).
- [11] J. Collet, P.S. Pershan, E.B. Sirota, L.B. Sorensen. *Phys. Rev. Lett.* **52**, 5, 356 (1984).
- [12] E.B. Sirota, P.S. Pershan, L.B. Sorensen, J. Collet. *Phys. Rev. Lett.* **55**, 19, 2039 (1985).
- [13] E.B. Sirota, P.S. Pershan, L.B. Sorensen, J. Collet. *Phys. Rev.* **A36**, 6, 2890 (1987).
- [14] T. Stoebe, P. Mach, C.C. Huang. *Phys. Rev. Lett.* **73**, 10, 1384 (1994).
- [15] E.I. Demikhov, V.K. Dolganov, K.P. Meletov. *Phys. Rev.* **E52**, 2, R1285 (1995).
- [16] V.K. Dolganov, E.I. Demikhov, R. Fouret, C. Gors. *Phys. Lett.* **A220**, 242 (1996).
- [17] P. Johnson, P. Mach, E.D. Wedell, F. Lintgen, M. Neubert, C.C. Huang. *Phys. Rev.* **E55**, 4, 4386 (1997).
- [18] E.A.L. Mol, G.C.L. Wong, J.M. Petit, F. Rieutord, W.H. de Jeu. *Physica* **B248**, 191 (1998).
- [19] C.Y. Young, R. Pindak, N.A. Clark, R.B. Meyer. *Phys. Rev. Lett.* **40**, 12, 773 (1978).
- [20] R. Geer, C.C. Huang, R. Pindak, J.W. Goodby. *Phys. Rev. Lett.* **63**, 5, 540 (1989).
- [21] P. Mach, S. Grantz, D.A. Debe, T. Stoebe, C.C. Huang. *J. Physique II* **5**, 2, 217 (1995).
- [22] J.D. Brock, R.J. Birgeneau, J.D. Litster, A. Aharony. *Contemp. Phys.* **30**, 5, 321 (1989).
- [23] S. Amador, P.S. Pershan, H. Stragier, B.D. Swanson, D.J. Tweet, L.B. Sorensen, E.B. Sirota, G.E. Ice, A. Habenschuss. *Phys. Rev.* **A39**, 5, 2703 (1989).
- [24] E.B. Sirota, P.S. Pershan, S. Amador, L.B. Sorensen. *Phys. Rev.* **A35**, 5, 2283 (1987).
- [25] P. Lambooy, S. Gierlotka, W.H. de Jeu. *Eur. Phys. Lett.* **12**, 4, 341 (1990).
- [26] J.D. Shindler, E.A.L. Mol, A. Shalaginov, W.H. de Jeu. *Phys. Rev. Lett.* **74**, 5, 722 (1995).
- [27] J.D. Shindler, E.A.L. Mol, A. Shalaginov, W.H. de Jeu. *Phys. Rev.* **E54**, 1, 536 (1996).
- [28] E.A.L. Mol, G.C.L. Wong, J.M. Petit, F. Rieutord, W.H. de Jeu. *Phys. Rev. Lett.* **78**, 3157 (1997).
- [29] C. Rosenblatt, D. Ronis. *Phys. Rev.* **A23**, 1, 305 (1981).
- [30] J.V. Selinger, D.R. Nelson. *Phys. Rev. Lett.* **61**, 4, 416 (1988).
- [31] R. Holyst, D.J. Tweet. *Phys. Rev. Lett.* **65**, 17, 2153 (1990).
- [32] R. Holyst. *Phys. Rev.* **A44**, 6, 3692 (1991).
- [33] A. Poniewerski, R. Holyst. *Phys. Rev.* **B47**, 15, 9840 (1993).
- [34] A.N. Shalaginov, V.P. Romanov. *Phys. Rev.* **E48**, 2, 1073 (1993).
- [35] L.V. Mirantsev. *Phys. Lett.* **A205**, 412 (1995).
- [36] L.V. Mirantsev. *Liq. Cryst.* **20**, 4, 417 (1996).
- [37] T. Krancj, S. Zumer. *J. Chem. Phys.* **105**, 12, 5242 (1996).
- [38] Y. Martinez-Raton, A.M. Somoza, L. Mederos, D.E. Sullivan. *Phys. Rev.* **E55**, 3, 2030 (1997).
- [39] L.V. Mirantsev. *Phys. Rev.* **E55**, 4, 4816 (1997).
- [40] П. Де Жен. *Физика жидких кристаллов*. Мир, М. (1977). 400 с.
- [41] С. Чандрасекар. *Жидкие кристаллы*. Мир, М. (1980). 344 с.
- [42] W.L. McMillan. *Phys. Rev.* **A4**, 3, 1238 (1971).