Рассеяние рентгеновских лучей на свободно подвешенных смектических-А пленках

© Л.В. Миранцев

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

E-mail: miran@microm.ipme.ru

(Поступила в Редакцию 7 декабря 1999 г.
В окончательной редакции 11 февраля 2000 г.)

Работа посвящена теоретическому исследованию зеркального отражения и диффузного рассеяния рентгеновских лучей на свободно подвешенной смектической-А пленке с учетом ее пространственной неоднородности и отклонения ориентационного и позиционного упорядочений в смектических слоях от идеального. Результаты расчетов сравниваются с данными экспериментов по малоугловому рассеянию рентгеновских лучей на свободно подвешенных пленках жидких кристаллов 7 AB. Отмечается согласие между теорией и экспериментом.

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

Жидкие кристаллы (ЖК) являются органическими соединениями, которые в большинстве случаев состоят из молекул, имеющих удлиненную форму [1,2]. Простейшей ЖК-фазой является нематический ЖК (НЖК), который отличается от обыкновенной изотропной жидкости наличием дальнего ориентационного порядка, когда длинные оси его молекул направлены преимущественно вдоль некоторого направления **n**, называемого директором. В более упорядоченных смектических фазах (СЖК) помимо дальнего ориентационного порядка имеет место периодичность в некотором направлении, т. е. позиционный порядок. В наиболее простой из смектических фаз, так называемой смектической-А (Sm A) фазе, молекулы образуют эквидистантные слои, перпендикулярные направлению директора **n**. При этом в плоскости самих слоев отсутствует какое-либо упорядочение в расположении центров масс молекул. Слоистая структура СЖК позволяет создавать из них свободно подвешенные пленки, которые не могут быть образованы изотропными жидкостями и НЖК. Площадь таких пленок может достигать $\sim \mathrm{cm}^2$ [3], а толщина варьируется от нескольких сотен слоев до двух и даже одного смектического слоя [4,5]. Это делает свободно подвешенные смектические пленки идеальными объектами для изучения кроссовера от поведения трехмерных физических систем к поведению двумерных систем и является причиной того, что в последние 10–20 лет они привлекают пристальное внимание как экспериментаторов [3–21], так и теоретиков [22–30].

Наиболее полную информацию о структуре свободно подвешенных смектических пленок можно получить с помощью экспериментов по малоугловому рассеянию рентгеновских лучей. Эти эксперименты позволяют определить толщину пленки, толщину содержащихся в ней смектических слоев [9,10], а также амплитуды тепловых флуктуаций в пленке и корреляции между ними [18–21]. Однако для получения этих сведений необходимо иметь теоретическую модель свободно подвешенной смектической пленки любой наперед заданной толщины, адекватно описывающую ее равновесные характеристики и тепловые флуктуации в ней. В работах [22,23] Holyst'ом была предложена простая дискретная модель для описания таких флуктуаций смещения смектических слоев в свободно подвешенной смектической-А пленке, учитывающая сжатие и поперечный изгиб смектических слоев, а также поверхностное натяжение пленки. Затем в [24,25] был разработан более удобный для описания экспериментальных данных континуальный вариант этой теории. Эта модель позволяет довольно легко рассчитать профиль флуктуаций смещения смектических слоев пленки, корреляции между ними, а также вычислить угловые зависимости коэффициентов зеркального отражения и диффузного рассеяния рентгеновских лучей. С ее помощью удается довольно хорошо описать результаты экспериментов по малоугловому рассеянию рентгеновских лучей на свободно подвешенных пленках некоторых ЖК соединений [18,19].

В модели Holyst'а свободно подвешенная смектическая-А пленка предполагается пространственно однородной и характеризуется числом смектических слоев N, коэффициентом поверхностного натяжения γ, а также упругими модулями поперечного изгиба K и растяжения (сжатия) B смектических слоев. Эти модули считаются одинаковыми для всех слоев пленки независимо от их положения и приравниваются соответствующим упругим модулям в объеме Sm A фазы. В работе [30] было показано, что это допущение является физически оправданным только для температур значительно более низких, чем температуры фазовых переходов Sm A $\to$ нематик (Sm A $\to$ N) или Sm A $\to$ изотропная фаза (Sm A $\to$ I) в объеме ЖК. Однако проведенные в последние годы эксперименты [13,15–17,21] показывают, что свободно подвешенные смектические-А пленки некоторых ЖК соединений могут существовать и при температурах, значительно превышающих температуры фазовых переходов Sm A $\to$ N или Sm A $\to$ I. Согласно модели [26,27,29], довольно хорошо описывающей поведение свободно подвешенных Sm A пленок при их нагревании выше температур исчезновения смектического порядка в объеме мезогенов, в этом случае внутренние слои пленки могут быть менее упорядоченными, чем слои вблизи ограничивающих свободных поверхностей. В таких пленках модули K и B должны уменьшаться с расстоянием до свободной поверхности и достигать минимальных значений в центре пленки. Поскольку пространственная неоднородность упругих характеристик смектических слоев совершенно не учитывается в модели [22,23] и ее континуальных модификациях [24,25], то в этом случае они должны давать неверные профили флуктуаций смещения смектических слоев и значения корреляций между ними.

Другим существенным недостатком модели Holyst'а является то, что Sm A структура в ней моделируется набором эквидистантных плоскостей, в которых располагаются центры масс ЖК-молекул, и совершенно не учитывается зависящее от температуры распределение центров масс молекул в пределах каждого слоя вдоль нормали к нему. Кроме того, все молекулы считаются ориентированными перпендикулярно плоскости смектических слоев, т. е. ориентационный порядок в пленке считается идеальным. Таким образом, в модели [22,23] совершенно не учитывается зависящий от температуры "внутренний беспорядок" в смектических слоях и отклонение одномерного позиционного упорядочения в пленке от идеального связывается только с гидродинамическими флуктуациями смещения смектических слоев от их равновесного положения. Вследствие этого коэффициенты зеркального отражения и диффузного рассеяния рентгеновских лучей на свободно подвешенных смектических-A пленках, вычисленные с помощью модели Holyst'а, оказываются почти не зависящими от температуры, что полностью противоречит результатам эксперимента [21]. Чтобы подогнать данные экспериментов по малоугловому рассеянию рентгеновских лучей на свободно подвешенных смектических-A пленках к результатам теории [22–25], в работах [18–21] средний квадрат полной амплитуды тепловых флуктуаций в пленке σ^2_{tot} считается состоящим из двух частей, а именно

$$\sigma^2_{\mathrm{tot}} = \sigma^2 + \sigma^2_{\mathrm{loc}}, \qquad (1)$$

где σ^2 — средний квадрат амплитуды флуктуаций смещения слоев, определяемый с помощью модели [22,23], или ее континуальной модификации [25], а σ^2_{loc} — средний квадрат амплитуды флуктуаций, описывающих локальный беспорядок в смектических слоях. Последняя величина вводится ad hoc, причем результаты по зеркальному отражению рентгеновских лучей при температурах, значительно превышающих точку фазового перехода Sm A $\to$ N в объеме ЖК, удается удовлетворительно описать, если допустить, что локальный беспорядок минимален вблизи свободных поверхностей пленки и максимален в ее центре. При этом, однако, упругие модули K и B считаются одинаковыми для всех слоев пленки. В [20,21] признается внутренняя противоречивость такого описания и отмечается необходимость усовершенствования модели Holyst'а для учета пространственной неоднородности свободно подвешенной смектической-A пленки, а также внутреннего беспорядка в ее слоях.

В работе [30] было предложено простое обобщение дискретной модели Holyst'а [22,23], позволяющее рассчитывать амплитуды флуктуаций смещения слоев свободно подвешенной смектической-A пленки, а также корреляции между ними, с учетом зависимостей упругих модулей K и B от расстояния до ограничивающих поверхностей пленки. В свою очередь эти зависимости определяются с помощью микроскопической модели свободно подвешенной смектической-A пленки [26,27,29], являющейся обобщением хорошо известной модели Мак Миллана [31] для Sm A фазы в объеме ЖК. Эта модель учитывает распределение центров масс молекул внутри смектических слоев вдоль нормали к ним, а также отклонение ориентационного упорядочения в системе от идеального. В настоящей работе приводятся результаты расчетов коэффициентов зеркального отражения и диффузного рассеяния рентгеновского излучения на свободно подвешенной смектической-A пленке во всем температурном интервале ее существования, выполненных с помощью моделей, разработанных в [26,27,29,30]. Результаты расчетов согласуются с данными экспериментов по малоугловому рассеянию рентгеновских лучей на свободно подвешенных смектических-A пленках ЖК 7 AB ($4,4'$-diheptylazoxybenzene) [20,21].

1. Зеркальное отражение и диффузное рассеяние рентгеновских лучей на свободно подвешенных смектических-A пленках

Интенсивность дифракции рентгеновских лучей на какой-либо системе пропорциональна Фурье-образу $S(\mathbf{Q})$ корреляционной функции плотности электронов в системе, который определяется уравнением [22,23]

$$S(\mathbf{Q}) = \int d\mathbf{r} \int \langle \hat{\rho}(\mathbf{r}) \hat{\rho}(\mathbf{r}') \rangle \exp\left[i\mathbf{Q}(\mathbf{r} - \mathbf{r}') \right] d\mathbf{r}', \qquad (2)$$

где $\hat{\rho}(\mathbf{r})$ — оператор плотности электронов в системе, $\mathbf{Q}$ — импульс отдачи при рассеянии рентгеновского излучения на этих электронах, а знак $\langle \ldots \rangle$ означает статистическое усреднение по тепловым флуктуациям в системе. В свою очередь оператор плотности электронов $\hat{\rho}(\mathbf{r})$ для N-слойной свободно подвешенной смектической-A пленки может быть записан в виде

$$\hat{\rho}(z) = \rho_0 \sum_{k=1}^{N} \int\limits_{-L/2\cos\vartheta}^{L/2\cos\vartheta} f_k(z - z', \vartheta) \times \Omega_k(z - z') \rho_e(z') dz' d\cos\vartheta. \qquad (3)$$

Здесь ρ_0 — плотность числа молекул в ЖК, $\rho_e(z')$ — проекция плотности электронов в молекуле на ось z, перпендикулярную плоскости пленки, $f_k(z-z',\vartheta)$ — одночастичная функция распределения молекул в k-м слое пленки, ϑ — полярный угол между осью z и длинной осью молекулы, L — длина молекулы, $\Omega_k(z-z')$ — ступенчатая функция, равная 1 при $z_k^{(1)} \leqslant (z-z') \leqslant z_k^{(2)}$ и 0 при значениях $z-z'$ вне этого интервала. В отсутствие флуктуаций смещения смектических слоев пленки координаты $z_k^{(1)}$ и $z_k^{(2)}$, определяющие положение нижней и верхней граничных плоскостей k-го слоя пленки, могут быть записаны как $(k-1/2)d$ и $(k+1/2)d$ соответственно, где d — толщина смектического слоя. Если же k-й слой смещается вдоль оси z от положения равновесия на величину $u_k(\mathbf{r}_\perp)$, то эти координаты становятся равными $(k-1/2)d+u_k(\mathbf{r}_\perp)$ и $(k+1/2)d+u_k(\mathbf{r}_\perp)$. Тогда уравнение (2) может быть записано в виде

$$S(\mathbf{Q}) = \rho_0^2 \int d\mathbf{r}_\perp \int \exp\left[i\mathbf{Q}_\perp(\mathbf{r}_\perp - \mathbf{r}'_\perp)\right] d\mathbf{r}'_\perp$$
$$\times \left\langle \sum_{k=1}^{N} \int\limits_{(k-1/2)d+u_k(\mathbf{r}_\perp)}^{(k+1/2)d+u_k(\mathbf{r}_\perp)} f_k(z-z'',\vartheta)\exp\left[iQ_z(z-z'')\right]\right.$$
$$\times d(z-z'')d\cos\vartheta \int\limits_{-L/2\cos\vartheta}^{L/2\cos\vartheta} \rho_e(z'')\exp(iQ_z z'')dz''$$
$$\times \sum_{n=1}^{N} \int\limits_{(n-1/2)d+u_n(\mathbf{r}'_\perp)}^{(n+1/2)d+u_n(\mathbf{r}'_\perp)} f_n(z'-z''',\vartheta')\exp\left[iQ_z(z'-z''')\right]$$
$$\left.\times d(z'-z''')d\cos\vartheta' \int\limits_{-L/2\cos\vartheta'}^{L/2\cos\vartheta'} \rho_e(z''')\exp(-iQ_z z''')dz'''\right\rangle. \tag{4}$$

Расчеты, проведенные в [22–25] и [30], показывают, что, как правило, амплитуды флуктуаций смещения слоев в свободно подвешенных смектических-А пленках $\sigma_k = \langle u_k(\mathbf{r}_\perp)^2\rangle^{1/2}$ много меньше толщины слоев d, а их профиль является достаточно гладким. В этом случае нетрудно показать, что уравнение (4) может быть приведено к следующему виду:

$$S(\mathbf{Q}) = \rho_0^2 \int d\mathbf{r}_\perp \int \exp\left[i\mathbf{Q}_\perp(\mathbf{r}_\perp - \mathbf{r}'_\perp)\right] d\mathbf{r}'_\perp$$
$$\times \sum_{k=1}^{N}\sum_{n=1}^{N}\left\langle \exp\left[iQ_z\left(u_k(\mathbf{r}_\perp)-u_n(\mathbf{r}'_\perp)\right)\right]\right\rangle \exp\left[iQ_z(k-n)d\right]$$
$$\times \int\limits_{-d/2}^{+d/2} \exp(iQ_z z_1)dz_1 \int\limits_0^1 f_k(z_1,\vartheta)S_{M1}(Q_z,\vartheta)d\cos\vartheta$$
$$\times \int\limits_{-d/2}^{+d/2} \exp(-iQ_z z_2)dz_2 \int\limits_0^1 f_n(z_2,\vartheta')S_{M2}(Q_z,\vartheta')d\cos\vartheta', \tag{5}$$

где

$$S_{M1}(Q_z,\vartheta) = \int\limits_{-L/2\cos\vartheta}^{L/2\cos\vartheta} \rho_e(z)\exp(iQ_z z)dz, \tag{6}$$

$$S_{M2}(Q_z,\vartheta) = \int\limits_{-L/2\cos\vartheta}^{L/2\cos\vartheta} \rho_e(z)\exp(-iQ_z z)dz. \tag{7}$$

Если также допустить, что плотность распределения электронов в молекуле симметрична относительно ее центра масс, а одночастичные функции распределения являются четными функциями координаты z, то

$$S(\mathbf{Q}) = 4\rho_0^2 \int d\mathbf{r}_\perp \int \exp\left[i\mathbf{Q}_\perp(\mathbf{r}_\perp - \mathbf{r}'_\perp)\right] d\mathbf{r}'_\perp$$
$$\times \sum_{k=1}^{N}\sum_{n=1}^{N}\left\langle \exp\left[iQ_z\left(u_k(\mathbf{r}_\perp)-u_n(\mathbf{r}'_\perp)\right)\right]\right\rangle$$
$$\times \cos\left[(k-n)dQ_z\right]\tau_k(Q_z)\tau_m(Q_z), \tag{8}$$

где

$$\tau_k(Q_z) = \int\limits_{-d/2}^{+d/2} \cos(Q_z z)dz \int\limits_0^1 f_k(z,\vartheta)S_M(Q_z,\vartheta)d\cos\vartheta, \tag{9}$$

$$S_M(Q_z,\vartheta) = \int\limits_0^{L/2\cos\vartheta} \rho_e(z)\cos(Q_z z)dz. \tag{10}$$

Наконец, если учесть, что

$$\int d\mathbf{r}_\perp \int d\mathbf{r}'_\perp \exp\left[i\mathbf{Q}_\perp(\mathbf{r}_\perp - \mathbf{r}'_\perp)\right]$$
$$\times \left\langle \exp\left[iQ_z\left(u_k(\mathbf{r}_\perp)-u_n(\mathbf{r}'_\perp)\right)\right]\right\rangle = S_0 \int d\mathbf{r}_\perp \exp(i\mathbf{Q}_\perp\mathbf{r}_\perp)$$
$$\times \exp\left[-(1/2)Q_z^2\left(\sigma_k^2+\sigma_n^2-2\langle u_k(\mathbf{r}_\perp)u_n(0)\rangle\right)\right], \tag{11}$$

где S_0 — площадь поверхности пленки, то выражение для $S(\mathbf{Q})$ может быть записано в следующей компактной форме:

$$S(\mathbf{Q}) = 4\rho_0^2 S_0 \sum_{k=1}^{N}\sum_{n=1}^{N} \int d\mathbf{r}_\perp \exp(iQ_\perp \mathbf{r}_\perp)\cos[(k-n)dQ_z]$$
$$\times \tau_k(Q_z)\tau_n(Q_z)F_{kn}(Q_z)C_{kn}(Q_z,\mathbf{r}_\perp), \tag{12}$$

где

$$F_{kn}(Q_z) = \exp\left[-(1/2)Q_z^2(\sigma_k^2+\sigma_n^2)\right], \tag{13}$$

$$C_{kn}(Q_z,\mathbf{r}_\perp) = \exp\left[Q_z^2\langle u_k(\mathbf{r}_\perp)u_n(0)\rangle\right]. \tag{14}$$

Формула (12) отличается от аналогичного выражения для $S(\mathbf{Q})$ в [23] лишь значениями коэффициентов $\tau_k(Q_z)$. В теории Holyst'а, предполагающей наличие идеального ориентационного и одномерного позиционного упорядочения в слоях свободно подвешенной смектической-А пленки, эти коэффициенты просто равны молекулярному формфактору (10) при $\vartheta = 0$. Выражения для одночастичных функций распределения в каждом слое пленки приведены в [26,27]. Что касается формфактора $S_M(Q_z, \vartheta)$, то его вид зависит от конкретной модели, описывающей распределение электронов в молекуле ЖК. Например, если, как в [18–21], допустить, что молекулы ЖК состоят из сердцевины с плотностью электронов $\rho_{\rm core}$ и двух одинаковых алкильных хвостов с плотностью $\rho_{\rm tail}$, то формфактор $S_M(Q_z, \vartheta)$ дается следующим выражением:

$$S_M(Q_z, \vartheta) = (\rho_{\rm core}/Q_z)\Big\{(\rho_{\rm tail}/\rho_{\rm core})\sin(Q_z L\cos\vartheta/2) - (\rho_{\rm tail}/\rho_{\rm core} - 1)\sin\big[Q_z(L/2 - d_{\rm tail})\cos\vartheta\big]\Big\}, \quad (15)$$

где $d_{\rm tail}$ — длина алкильного хвоста.

Уравнение (12) описывает как зеркальное отражение рентгеновских лучей от свободно подвешенной сметической-А пленки, когда $\mathbf{Q}_\perp = 0$, так и диффузное рассеяние на ней, когда $\mathbf{Q}_\perp \neq 0$. Однако в целях дальнейшего упрощения этого выражения полезно рассматривать эти два частных случая отдельно. Рассмотрим сперва зеркальное отражение. Легко показать, что в этом случае множитель $C_{kn}(Q_k, \mathbf{r}_\perp)$ в (12) можно с хорошей точностью просто приравнять единице. Действительно, при рассеянии рентгеновских лучей на свободно подвешенных пленках с поперечными размерами ~ 1 cm (такие пленки изучаются в реальных экспериментах [18–21]) доминирующий вклад в интенсивность рассеянного излучения вносят значения этого множителя с показателем экспоненты в (14) много меньше 0.1. Тогда для зеркального отражения рентгеновских лучей можно записать

$$S(Q_z) \approx 4\rho_0^2 S_0^2 \sum_{k=1}^{N}\sum_{n=1}^{N} \cos\big[(k-n)dQ_z\big]\tau_k(Q_z)\tau_n(Q_z)F_{kn}(Q_z). \quad (16)$$

Теперь рассмотрим диффузное рассеяние рентгеновских лучей ($\mathbf{Q}_\perp \neq 0$). В этом случае можно разложить множитель $C_{kn}(Q_z, \mathbf{r}_\perp)$ в (12) в ряд по степеням $Q_z^2\langle u_k(\mathbf{r}_\perp)u_n(0)\rangle$ и ограничиться первыми двумя членами разложения. Поскольку для пленок с макроскопическими поперечными размерами

$$\int \exp(i\mathbf{Q}_\perp \mathbf{r}_\perp)d\mathbf{r}_\perp = 0,$$

если $\mathbf{Q}_\perp \neq 0$, то вклад в интенсивность диффузного рассеяния вносит только второй член разложения и

$$S(Q_z, \mathbf{Q}_\perp) \approx 4\rho_0^2 S_0 \sum_{k=1}^{N}\sum_{n=1}^{N} \cos\big[(k-n)dQ_z\big]\tau_k(Q_z)\tau_n(Q_z) \times F_{kn}(Q_z)Q_z^2 \int \langle u_k(\mathbf{r}_\perp)u_n(0)\rangle \exp(i\mathbf{Q}_\perp \mathbf{r}_\perp)d\mathbf{r}_\perp. \quad (17)$$

Согласно [22,23], коррелятор $\langle u_k(\mathbf{r}_\perp)u_n(0)\rangle$ равен

$$\langle u_k(\mathbf{r}_\perp)u_n(0)\rangle = \frac{k_{\rm B}T}{(2\pi)^2}\int M_{kn}^{-1}(\mathbf{q}_\perp)\exp(-i\mathbf{q}_\perp \mathbf{r}_\perp)d\mathbf{q}_\perp, \quad (18)$$

где $M_{kn}^{-1}(\mathbf{q}_\perp)$ — элемент матрицы, обратной матрице $M_{kn}(\mathbf{q}_\perp)$, приведенной в [30], $k_{\rm B}$ — постоянная Больцмана, T — абсолютная температура системы. Подставляя (18) в (17) и учитывая, что

$$\frac{1}{(2\pi)^2}\int \exp[i(\mathbf{Q}_\perp - \mathbf{q}_\perp)\mathbf{r}_\perp)]d\mathbf{r}_\perp = \delta(\mathbf{Q}_\perp - \mathbf{q}_\perp), \quad (19)$$

где $\delta(\mathbf{x})$ — дельта-функция Дирака, получаем

$$S(Q_z, \mathbf{Q}_\perp) \approx 4\rho_0^2 S_0 k_{\rm B}T \sum_{k=1}^{N}\sum_{n=1}^{N} \cos\big[(k-n)dQ_z\big] \times \tau_k(Q_z)\tau_n(Q_z)F_{kn}(Q_z)Q_z^2 M_{kn}^{-1}(\mathbf{Q}_\perp). \quad (20)$$

Уравнения (16) и (20) позволяют рассчитать коэффициенты зеркального отражения и диффузного рассеяния рентгеновского излучения на N-слойной свободно подвешенной смектической-А пленке при любой температуре ее существования. При этом вся информация об ориентационном и позиционном упорядочениях молекул содержится в коэффициентах $\tau_k(Q_z)$, коэффициенты $F_{kn}(Q_n)$ определяют зависимость этих интенсивностей от амплитуд σ_k, σ_n флуктуаций смещения слоев слоев пленки, а матричные элементы $M_{kn}^{-1}(\mathbf{Q}_\perp)$ определяют зависимость интенсивности диффузного рассеяния от корреляций между этими флуктуациями. Следует также отметить,что и амплитуды флуктуаций σ_k, и матричные элементы $M_{kn}^{-1}(\mathbf{Q}_\perp)$ в конечном счете также определяются зависящими от температуры профилями параметров ориентационного и позиционного порядка в пленке [30]. Таким образом, полученные соотношения позволяют непротиворечивым образом рассчитать коэффициенты зеркального отражения и диффузного рассеяния рентгеновского излучения на свободно подвешенной смектической-А пленке с учетом ее пространственно неоднородной и зависящей от температуры структуры.

2. Результаты численных расчетов и их обсуждение

Численные расчеты коэффициентов зеркального отражения и диффузионного рассеяния рентгеновского излучения проводились для свободно подвешенной смектической-А пленки, состоящей из $N = 24$ слоев. При этом предполагалось, что она создана из ЖК со слабым фазовым переходом первого рода Sm A $\to$ N. Такие пленки исследовались в экспериментах по малоугловому рассеянию рентгеновских лучей [20,21]. Значения используемых в расчетах модельных параметров брались такими же, что и в нашей предыдущей работе [30]. В качестве молекулярного формфактора $S_M(Q_z, \vartheta)$ использовалось выражение (15), причем значения параметров

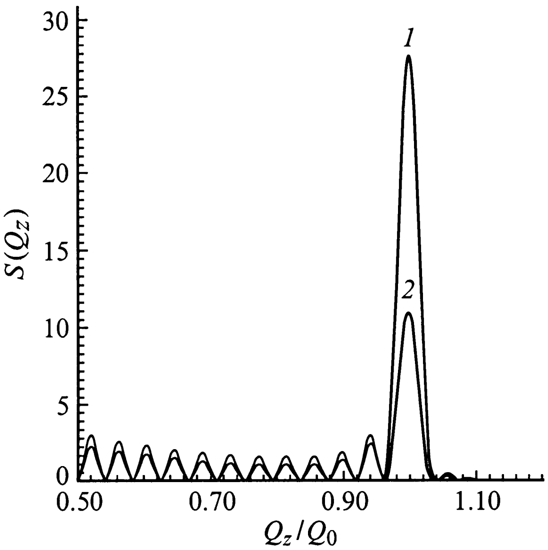

Рис. 1. Зависимость коэффициента зеркального отражения рентгеновского излучения (в произвольных единицах) от компоненты Q_z переданного импульса для 24-слойной свободно подвешенной смектической-А пленки. *1* — $T = T_1$; *2* — $T = T_2$.

$(\rho_{\text{tail}}/\rho_{\text{core}}) = 1/1.5$ и $d_{\text{tail}} = 0.23L$ брались такими же, что и в [20,21]. Расчеты проводились как при температурах значительно более низких, чем температура фазового перехода Sm A$\to$N в объеме ЖК, так и при температурах предельно высоких для существования свободно подвешенной смектической-А пленки заданной толщины.

На рис. 1 приведены рассчитанные по формуле (16) зависимости коэффициента зеркального отражения рентгеновского излучения от компоненты преданного импульса Q_z. Кривая *1* соответствует температуре $T = T_1$, более низкой, чем температура перехода Sm A$\to$N, а кривая *2* — результат расчета при температуре $T = T_2$, близкой к предельно высокой температуре существования пленки.

Значения этих температур приведены в [30]. Согласно модели [26,27,29], при выбранных значениях модельных параметров нагревание 24-слойной свободно подвешенной смектической-А пленки выше предельной температуры $T = T_2$ должно приводить к скачкообразному уменьшению ее толщины на целое число смектических слоев. Именно такой эффект наблюдался в экспериментах [20,21]. Обе кривые демонстрируют главные брэгговские пики при $Q_z = Q_0 = 2\pi/d$, определяемые интерференцией между рентгеновскими лучами, отраженными от всех слоев пленки, а также побочные максимумы, вклад в которые вносит интерференция между лучами, отраженными от двух поверхностных слоев [18–21]. Из рисунка видно, что увеличение температуры пленки мало влияет на интенсивность побочных максимумов, в то время как интенсивность брэгговского пика при $T = T_2$ примерно в 2.5 раза меньше, чем при $T = T_1$. Именно такое поведение коэффициента зеркального отражения наблюдалось в эксперименте по малоугловому рассеянию рентгеновских лучей на свободно подвешенных смектических-А пленках, образованных ЖК 7АВ [21]. Полученный результат имеет очень простую физическую интерпретацию. Модель [26,27,29] предсказывает довольно незначительное уменьшение ориентационного и позиционного порядков в поверхностных слоях пленки при ее нагревании. В то же время, согласно этой модели, вблизи предельной температуры существования пленки $T = T_2$ ориентационное и позиционное упорядочения

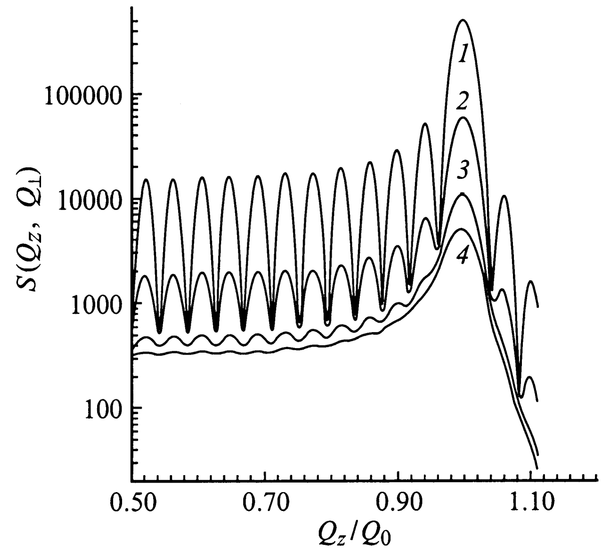

Рис. 2. Зависимости коэффициента диффузного расеяния рентгеновских лучей (в произвольных единицах) от Q_z для 24-слойной свободно подвешенной смектической-А пленки при различных значениях компоненты $Q_\perp$ переданного импульса. $T = T_1$. *1* — $Q_\perp/Q_1 = 0.001$; *2* — $Q_\perp/Q_1 = 0.003$; *3* — $Q_\perp/Q_1 = 0.007$; *4* — $Q_\perp/Q_1 = 0.01$.

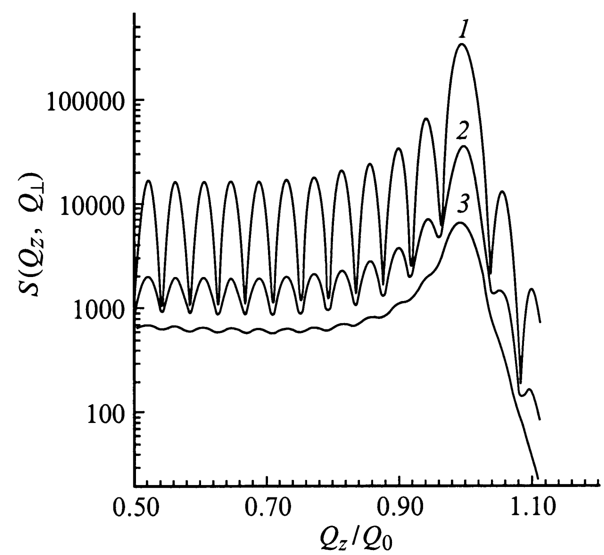

Рис. 3. Те же зависимости, что и на рис. 2 при $T = T_2$. *1* — $Q_\perp/Q_1 = 0.001$; *2* — $Q_\perp/Q_1 = 0.003$; *3* — $Q_\perp/Q_1 = 0.007$.

в ее внутренних слоях должны быть значительно ниже, чем при $T = T_1$. Но интерференция между рентгеновскими лучами, отраженными от внутренних слоев пленки, вносит вклад лишь в главный брэгговский максимум и совершенно не влияет на интенсивность побочных максимумов. Таким образом, экспериментально наблюдаемые значительное уменьшение главного брэгговского пика и довольно малое понижение побочных максимумов могут рассматриваться как факты, подтверждающие справедливость модели [26,27,29]. При этом в теории нет необходимости вводить какие-то величины ad hoc, что, как уже отмечалось выше, необходимо делать в теории Holyst'a [22,23] для описания результатов экспериментов [20,21].

Результаты расчетов коэффициента диффузного рассеяния рентгеновских лучей на 24-слойной свободно подвешенной смектической-A пленке при температурах $T = T_1$ и T_2 приведены на рис. 2 и 3 соответственно. На этих рисунках показаны зависимости коэффициентов диффузного рассеяния от компоненты импульса отдачи Q_z вдоль нормали к пленки при нескольких значениях компоненты импульса отдачи $Q_\perp$, параллельной плоскости пленки. Как и в случае зеркального отражения (рис. 1), эти зависимости демонстрируют главные брэгговские пики при $Q_z = Q_0 = 2\pi/d$, а также побочные максимумы, которые являются результатом интерференции рентгеновского излучения, рассеянного на поверхностных слоях пленки. Как уже отмечалось в [18–21], существование этих максимумов говорит о конформности флуктуаций смещения различных слоев пленки. Другими словами, смектические слои флуктуируют не независимо друг от друга, а в унисон. Кроме того, из этих рисунков следует, что с ростом компоненты переданного импульса $Q_\perp$ величина максимумов интенсивности диффузного рассеяния уменьшается, причем быстрее уменьшаются побочные максимумы. Наконец, при некотором значении $Q_\perp$ побочные максимумы полностью исчезают, в то время как брэгговский пик, хотя и значительно ослабленный, все еще остается. Это говорит о потере конформности флуктуаций смещения различных слоев пленки с ростом $Q_\perp$, т. е. с уменьшением длин волн ондуляционных мод смещения [18–21]. При этом более быстрый спад побочных максимумов говорит о том, что в первую очередь теряют конформность флуктуации наиболее далеко отстоящих друг от друга поверхностных слоев пленки. Эти результаты полностью согласуются с результатами экспериментов [18–21] и могут быть описаны в рамках модели Holyst'a [22,23]. Однако рис. 2 и 3 демонстрируют одну существенную деталь поведения интенсивности диффузно рассеянного рентгеновского излучения, которая в принципе не может быть получена с помощью модели [22,23] и ее континуальных обобщений [24,25]. Из этих рисунков следует, что вблизи предельно высокой температуры существования свободно подвешенной смектической-A пленки $T = T_2$ флуктуации смещения ее слоев должны терять конформность с ростом $Q_\perp$ раньше, чем это имеет место при более низкой температуре $T = T_1$. Так, согласно рис. 2 ($T = T_1$), при $Q_\perp = 0.007 Q_1$, где $Q_1 = 2\pi/a$, $a \approx 4\,\text{Å}$ — диаметр молекул, побочные максимумы диффузного рассеяния, хотя и очень слабые, но все же существуют. В то же время из рис. 3 видно, что при $T = T_2$ побочные максимумы оказываются полностью подавленными при этом же значении $Q_\perp$. Это говорит о том, что флуктуации смещения поверхностных слоев пленки при предельно высоких температурах существования пленки становятся независимыми друг от друга при меньших значениях $Q_\perp$, т. е. для более длинноволновых ондуляционных мод смещения, чем при более низких температурах. Согласно уравнению (17), интенсивность диффузного рассеяния рентгеновских лучей на свободно подвешенной смектической-A пленке пропорциональна корреляции между флуктуациями смещения ее слоев. В [30] было показано, что рост температуры пленки приводит к ослаблению этих корреляций, причем сильнее всех уменьшаются корреляции для наиболее отдаленных друг от друга поверхностных слоев пленки. Такое уменьшение корреляций обусловлено значительным уменьшением модулей упругости K и B в центральной части пленки при ее нагревании, которое совершенно не учитывается в теории Holyst'a [22,23]. К сожалению, в [20,21] исследование диффузного рассеяния рентгеновского излучения на свободно подвешенных смектических-A пленках проводилось только при одной температуре ниже точки фазового перехода Sm A $\to$ N в объеме ЖК, и в настоящее время нет возможности сопоставить приведенный выше теоретический результат с экспериментом. В связи с этим экспериментальное исследование диффузного рассеяния рентгеновских лучей на свободно подвешенных ЖК пленках вблизи предельно высоких температур их существования представляется весьма интересным.

Список литературы

[1] П. Де Жен. Физика жидких кристаллов. Мир, М. (1977). 400 с.

[2] С. Чандрасекар. Жидкие кристаллы. Мир, М. (1980). 344 с.

[3] 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).

[4] C. Rosenblatt, R. Pindak, N.A. Clark, R.B. Meyer. Phys. Rev. Lett. **42**, 1220 (1979).

[5] M. Veum, C.C. Huang, C.F. Chou, V. Surendranath. Phys. Rev. **E56**, *2*, 2298 (1997).

[6] C.Y. Young, R. Pindak. N.A. Clark, R.B. Meyer. Phys. Rev. Lett. **40**, *12*, 773 (1978).

[7] C. Rosenblatt, N.M. Amer. Appl. Phys. Lett. **36**, *6*, 432 (1980).

[8] S. Heinekamp, R.A. Pelcovits, E. Fontes, E.Y. Chen, R. Pindak, R.B. Meyer. Phys. Rev. Lett. **52**, *12*, 1017 (1984).

[9] E.B. Sirota, P.S. Pershan, S. Amador, L.B. Sorensen. Phys. Rev. **A35**, *5*, 2283 (1987).

[10] P. Lambooy, S. Gierlotka, W.H. de Jeu. Europhys. Lett. **12**, *4*, 341 (1990).

[11] C. Bahr, D. Fliegner. Phys. Rev. **A46**, 7657 (1992).

[12] I. Kraus. P. Pieranski, E. Demikhov, H. Stegemeyer, J. Goodby. Phys. Rev. **E48**, *3*, 1916 (1993).
[13] T. Stoebe, P. Mach, C.C. Huang. Phys. Rev. Lett. **73**, *10*, 1384 (1994).
[14] P. Mach, S. Grantz, D.A. Debe, T. Stoebe, C.C. Huang. J. Phys. II (Fr.) **5**, *2*, 217 (1995).
[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] J.D. Shindler, E.A.L. Mol, A. Shalaginov, W.H. de Jeu. Phys. Rev. Lett. **74**, *5*, 722 (1995).
[19] J.D. Shindler, E.A.L. Mol, A. Shalaginov, W.H. de Jeu. Phys. Rev. **E54**, *1*, 536 (1996).
[20] E.A.L. Mol, G.C.L. Wong, J.M. Petit, F. Rieutord, W.H. de Jeu. Phys. Rev. Lett. **78**, 3157 (1997).
[21] E.A.L. Mol, G.C.L. Wong, J.M. Petit, F. Rieutord, W.H. de Jeu. Physica **B248**, 191 (1998).
[22] R. Holyst, D.J. Tweet. Phys. Rev. Lett. **65**, *17*, 2153 (1990).
[23] R. Holyst. Phys. Rev. **A44**, *6*, 3692 (1991).
[24] A. Poniewerski, R. Holyst. Phys. Rev. **B47**, *15*, 9840 (1993).
[25] A.N. Shalaginov, V.P. Romanov. Phys. Rev. **E48**, *2*, 1073 (1993).
[26] L.V. Mirantsev. Phys. Lett. **A205**, 412 (1995).
[27] L.V. Mirantsev. Liq. Cryst. **20**, *4*, 417 (1996).
[28] Y. Martinez-Raton, A.M. Somoza, L. Mederos, D.E. Sullivan. Phys. Rev. **E55**, *3*, 2030 (1997).
[29] L.V. Mirantsev. Phys. Rev. **E55**, *4*, 4816 (1997).
[30] Л.В. Миранцев. ФТТ **41**, *10*, 1882 (1999).
[31] W.L. McMillan. Phys. Rev. **A4**, **3**, 1238 (1971).