

УДК 534.535

НЕУСТОЙЧИВОСТЬ ТЕКСТУРЫ ГРАНЖАНА ХОЛЕСТЕРИЧЕСКОГО ЖИДКОГО КРИСТАЛЛА В УЛЬТРАЗВУКОВОМ ПОЛЕ

© 1997 г. И. Н. Гурова, О. А. Капустина

Акустический институт им. Н.Н. Андреева
117036 Москва, ул. Шверника, 4

Поступила в редакцию 14.03.96 г.

Исследовано поведение текстуры Гранжана холестерического жидкого кристалла (ХЖК) с шагом спирали P_0 меньше толщины ячейки d в ультразвуковом поле. Показано, что для немато-холестерических смесей пороговая сила звука и период модулированных структур на пороге неустойчивости в диапазоне 0.3–3.6 МГц от частоты ультразвука не зависит. Установлено, что возникновение вынужденного шага P , отличающегося от свободного P_0 и определяемого расстоянием между ориентирующими поверхностями (в клине или в плоской ячейке), влияет на вид деформации. Проанализированы теоретические модели, описывающие с позиции гидродинамики Лесли–Эриксона возникновение неустойчивости в ХЖК с шагом спирали меньше толщины слоя. Показано, что в рамках этого подхода не удается получить адекватное описание опытных данных даже с учетом существования в ячейке вынужденного шага P .

Воздействие ультразвука на структуру жидких кристаллов (ЖК) представляет интерес с точки зрения изучения возможности создания приборов ультразвуковой визуализации [1].

Разработаны термооптические дисплеи на холестерических жидких кристаллах (ХЖК), действие которых основано на зависимости шага спирали¹ от температуры, меняющейся при нагревании среды в ультразвуковом поле [3]. В работе [4] предложен принцип построения дисплея, использующий прямое воздействие ультразвука на ориентационное состояние планарного слоя ХЖК, который позволяет устранить ряд существенных недостатков, свойственных термооптическим дисплеям. Однако физические аспекты этой проблемы, в частности, механизм воздействия ультразвука, не связанного с тепловыми эффектами, на структуру ХЖК, пока мало изучены, что накладывает определенные ограничения на продолжение практических разработок.

В настоящее время наиболее важными достижениями в этой области являются экспериментальные установления фактов образования модулированных структур (доменов) в слоях ХЖК с планарной ориентацией молекул [5], а также “пузырьковых” доменов [6] и доменов типа “отпечатков пальцев” [7] при исходном гомеотропном

расположении молекул. В области теории созданы физические модели, основанные на представлениях традиционной гидродинамики Лесли–Эриксона [2], которые описывают механизм дестабилизации планарной структуры ХЖК под воздействием ультразвука для двух частных случаев: нерастянутый ХЖК-слой, когда шаг спирали является равновесным P_0 , и растянутый ХЖК-слой, где шаг спирали P больше равновесного [8]. Известно [9], что последняя ситуация может быть реализована в плоском образце ХЖК с парными дисклинациями², на которых меняется число холестерических слоев, и в образце с непараллельными границами вблизи линий Кано–Гранжана [2]. На рис. 1б приведено схематическое изображение ориентационного распределения в клинообразной ячейке с жесткими граничными условиями при планарной ориентации на границах, когда в образце формируется так называемая текстура Гранжана [9]. В такой ячейке неискаженная спиральная структура может существовать только в тех ее местах, где локальная толщина слоя $d = 0.5iP_0$, так как в этих ситуациях полувитки спирали укладываются на толщине слоя целое число раз. (Здесь $i = 1, 2, \dots$). На соседних участках спираль вынуждена деформироваться (при $d < 0.5iP_0$ она сжимается, а при $d > 0.5P_0$ – растягивается), но только до определенного предела ($\sim 0.25P_0$). Он достигается в точках $d_i = (i - 0.5)0.5P_0$, где шаг спирали скачком изменяется на половину периода. Здесь и возникает особая линия – разрыв

¹ ХЖК имеют слоистое строение, причем директор \mathbf{n} , характеризующий локальную ориентацию молекул, при переходе из одной холестерической плоскости в другую равномерно вращается с шагом P_0 . Ось симметрии \mathbf{h} расположена нормально к направлению предпочтительной ориентации молекул [2] (рис. 1а).

² Дисклинации – это дефекты жидкокристаллической структуры [10].

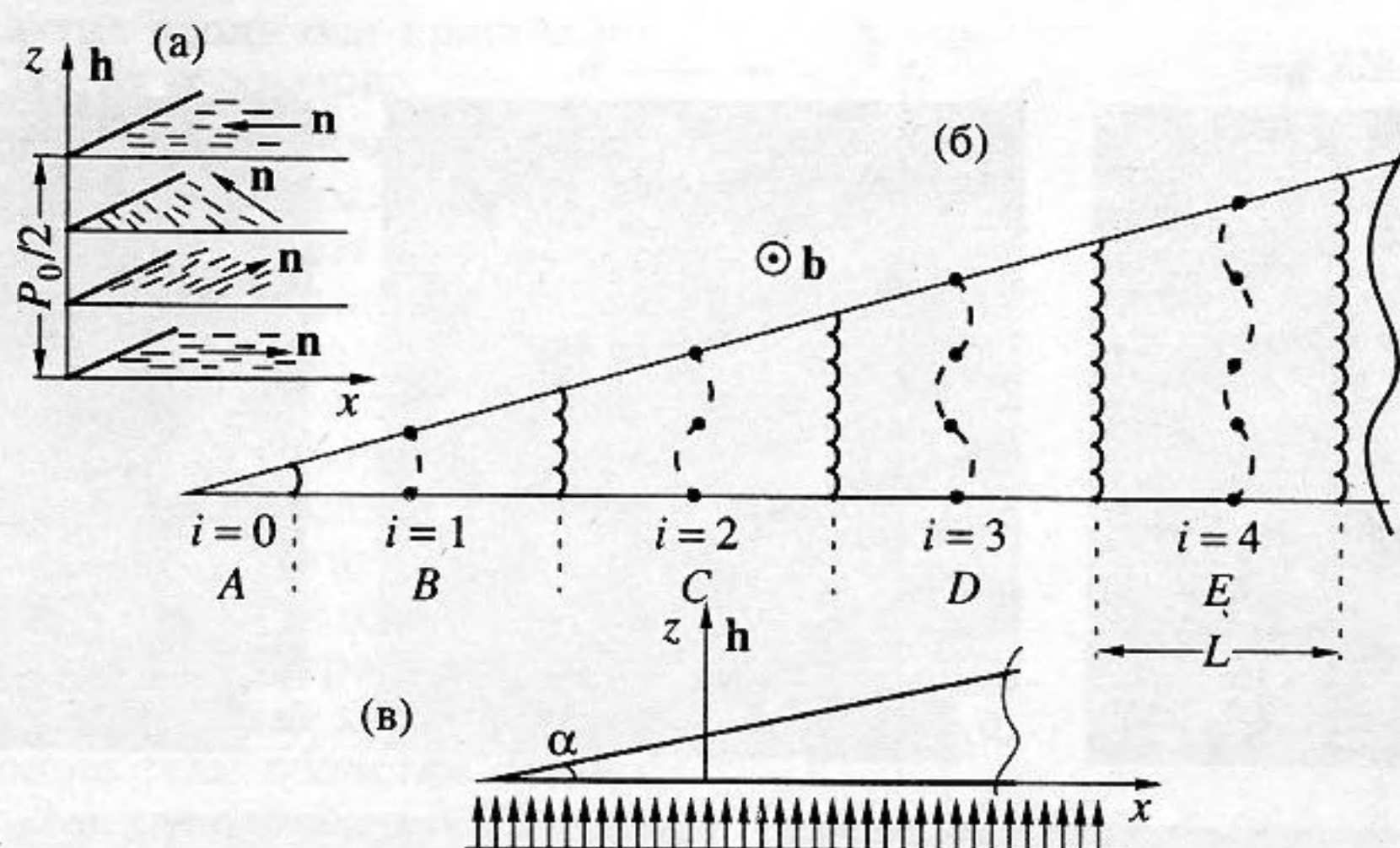


Рис. 1. К анализу воздействия ультразвука на текстуру Гранжана: расположение молекул в холестерической мезофазе (а); схематическое изображение ориентационного распределения в клинообразной ячейке с жесткими граничными условиями при планарной ориентации молекул на границах (б); геометрия задачи (в).

оптической непрерывности – линейная дисклинация Кано–Гранжана [9]. В каждой зоне Гранжана с номером i , заключенной между точками $d_i = 0.5(i - 0.5)P_0$ и $d_{i+1} = 0.5(i + 0.5)P_0$, шаг спирали оказывается равным $P_0 + (2d - iP_0)/i$. На участке с толщинами $d < 0.25P_0$ спиральная структура реализоваться не может и ХЖК находится в полностью раскрученном состоянии.

В настоящей работе приведены результаты экспериментальных исследований структурных превращений текстуры Гранжана в ультразвуковом поле. Полученные данные используются для анализа обоснованности гипотезы о механизме дестабилизации структуры, высказанной в работе [8]. Эта гипотеза состоит в следующем: в образце случайным образом возникают искажения холестерических слоев (из-за вращения молекул в плоскости слоя или их выхода из холестерической плоскости). Это приводит к образованию осциллирующих вихревых потоков. При взаимодействии этих потоков и связанных с ними поворотов молекул с исходным ультразвуковым полем возникают средние по времени вращающие моменты, которые усиливают начальное искажение структуры, при этом гармоника вида $\theta, \varphi \sim \exp(iq_x x + iq_y y) \sin p z$ получает наибольшее развитие. (Здесь q_x и q_y – волновые числа, описывающие вид модулированной структуры, $p = 2\pi/d$, θ – угол, характеризующий отклонение молекул от невозмущенной холестерической плоскости, φ – угол, описывающий изменение ориентации молекул в холестерической плоскости). Действие этих вращающих моментов на молекулы на пороге эффекта стабилизируют упругие моменты Франка [2]. При амплитуде колебательной скорости, превышающей пороговое значение, в ХЖК воз-

никает стационарное и периодическое вдоль слоя искажение холестерических слоев. Математическое описание этого механизма разработано для двумерного случая в геометрии, показанной на рис. 1в. Здесь ось h спиральной структуры ХЖК совпадает с направлением оси z , ультразвуковая волна распространяется в этом же направлении. Область частот, для которой проводился анализ, определяют следующие неравенства: $2\pi\eta/\rho d^2 \ll f \ll 2\pi c/d$. (Здесь η, ρ – вязкость и плотность ХЖК, c – скорость звука в ХЖК, f – частота ультразвука, $\eta = 0.5(\alpha_4 + 0.5\alpha_5)$, α_i – коэффициенты вязкости Лесли).

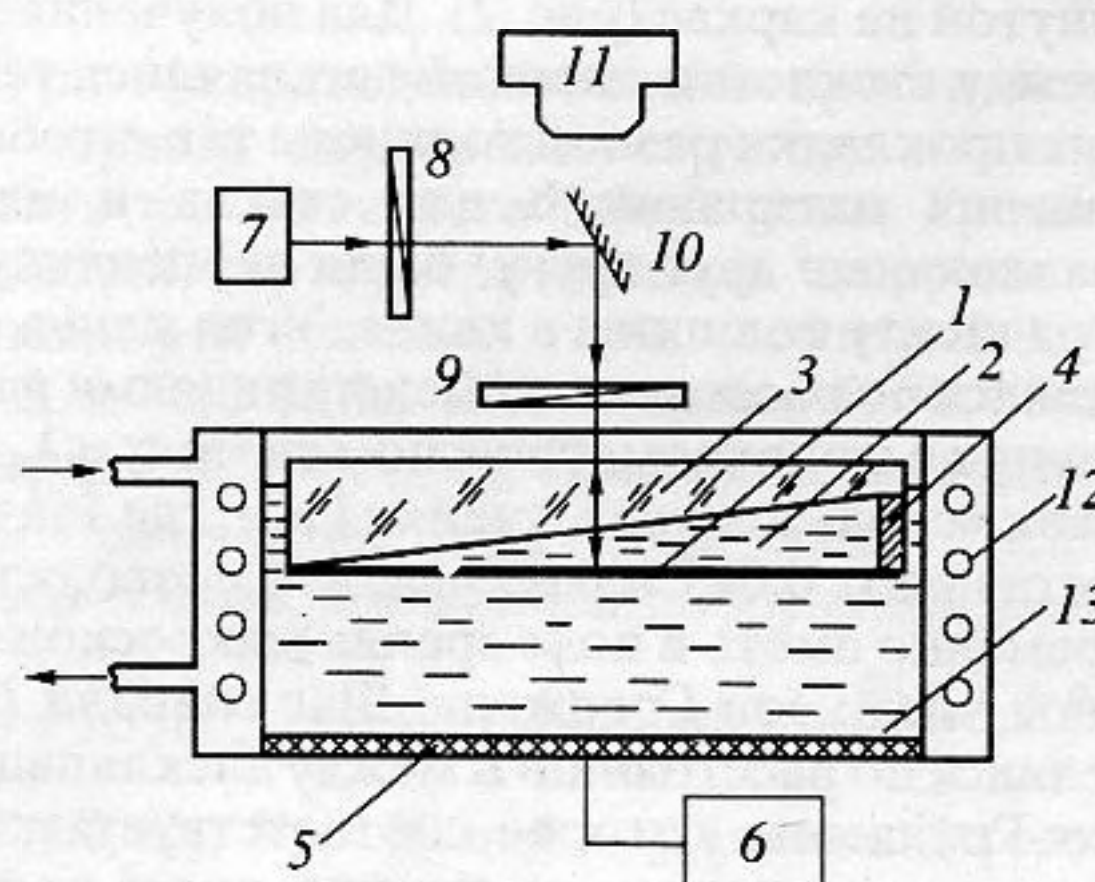


Рис. 2. Схема эксперимента в отраженном свете: 1 – пленка (лавсан) с отражающим свет покрытием, 2 – ХЖК, 3 – покровная пластина, 4 – прокладка, 5 – излучатель ультразвука, 6 – генератор, 7 – источник света, 8–9 – поляриды, 10 – полупрозрачная светоделительная пластина, 11 – микроскоп, 12 – змеевик, связанный с системой термостабилизации, 13 – иммерсионная жидкость.

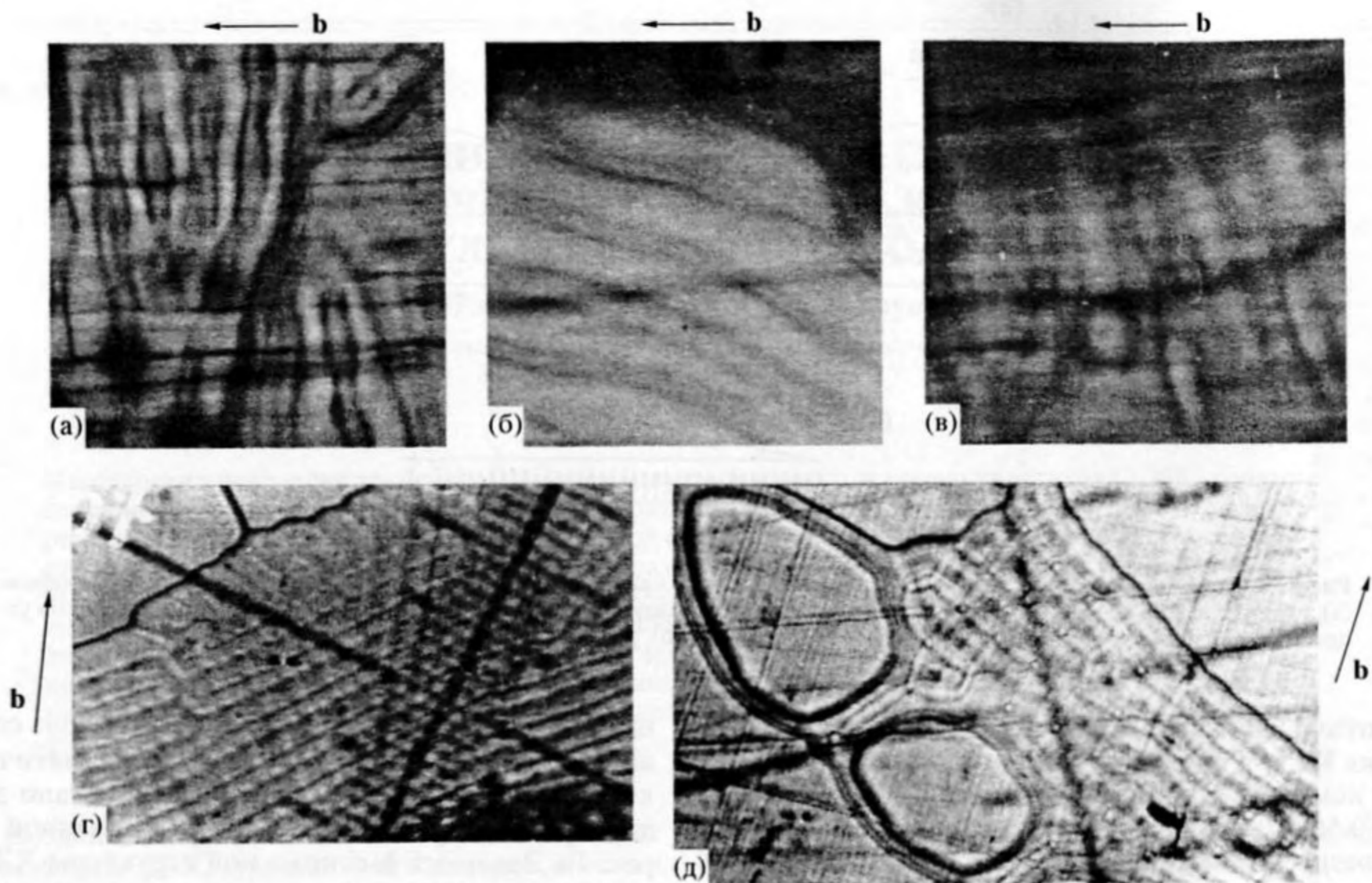


Рис. 3. Оптические картины искажения на пороге неустойчивости: текстура Гранжана в клинообразной ячейке; $f = 3.65$ МГц, $P_0 = 30$ мкм, соотношения между d и P_0 следующие: $d \ll P_0$ (а); $d = 0.5P_0$ (б); $d = P_0$ (в); $P_0 = 4.3$ мкм, $d \gg P_0$ (г); планарная текстура в плоском слое с дисклинацией; $f = 1.2$ МГц, $P_0 = 4.3$ мкм, $d = 40$ мкм (д).

Исследуемый ХЖК – раствор холестерилхлорида в нематическом ЖК (ЖК-404) – заполнял клинообразный зазор между пластиной из стекла и пленкой из лавсана с покрытием из алюминия, натянутой на каркас (рис. 2). Для получения зазора между стеклом и пленкой вставлялись тефлоновые прокладки разной толщины так, чтобы направления натирания \mathbf{b} для стекла и пленки (параллельные друг другу) были перпендикулярны градиенту толщины в клине. Угол клина α определялся по расстоянию l между линиями равной толщины в монохроматическом свете $\alpha = \lambda_0/2l$. В опытах использовались ячейки I и II, где значения α составляют 0.007 и 0.05 рад, что позволяло одновременно иметь в поле зрения микроскопа различное число зон Гранжана. Шаг спирали P_0 определялся по расстоянию L между дисклинациями Кано–Гранжана, которое соответствует скачкообразному изменению на единицу числа полувитков спирали, укладываемых в локальной толщине клина (дисклинация первого порядка) $P_0 = 2\alpha L$. В опытах равновесные значения шага спирали составляли 4.3 и 30 мкм. Для создания планарных граничных условий на поверхности наносили покрытие из поливинилового спирта, а затем их полировали в определенном направлении (\mathbf{b}).

Система термостабилизации позволяла поддерживать температуру ХЖК постоянной ($t = 20^\circ\text{C}$) с точностью 0.5°C . Акустический контакт излучателя со слоем ХЖК осуществлялся через столб жидкости. Частоту ультразвука варьировали в интервале 0.3–3.65 МГц. Для контроля уровня воздействия регистрировали напряжение U на излучателе ультразвука.

Были проведены две серии опытов по изучению структурных превращений в ХЖК под воздействием ультразвуковых волн сжатия с ячейками, которые позволяют наблюдать оптические картины искажения в зонах Гранжана, отвечающих различным соотношениям между локальной толщиной слоя d и шагом спирали P_0 : с ячейкой I в зонах, где значения d и P_0 соизмеримы, и с ячейкой II в зонах с локальными значениями $d > P_0$. Было установлено, что воздействие ультразвука с частотой, отвечающей указанному выше условию, приводит к пороговому возникновению неоднородного распределения ориентации молекул, проявляющегося в виде системы модулированных структур, форма, пространственный период и ориентация которых зависят от соотношения d и P_0 , а также состояния ХЖК-слоя (рав-

новесное или растянутое вдоль оси кристалла). Рассмотрим результаты этих опытов.

В первой серии опытов исследовали образец ХЖК с равновесным шагом спирали 30 мкм в ячейке I на частоте 3.65 МГц. В этих условиях в поле зрения микроскопа можно было наблюдать одновременно области А-С, где значения d и P_0 — соизмеримы (см. рис. 1б). В каждой из этих областей воздействие ультразвука приводит к образованию одномерных модулированных структур (полос), ориентация которых по отношению к направлению натирания \mathbf{b} при переходе из одной области в другую изменяется. Микрофотографии на рис. 3 представляют оптические картины искажения, соответствующие этим областям. Видно, что в области А (рис. 3а), где $d \ll P_0$, и ХЖК оказывается в “раскрученном” состоянии, полосы перпендикулярны направлению натирания \mathbf{b} ³. В области В, где на локальной толщине слоя укладывается один полувиток спирали, полосы почти параллельны направлению натирания \mathbf{b} , так как на этом участке в середине толщины образца директор перпендикулярен \mathbf{b} (рис. 3б). В системе, формирующейся в области С, полосы перпендикулярны направлению натирания \mathbf{b} (рис. 3в). Периоды структур Λ в областях В и С составляют 20.5 и 25.5 мкм, а пороговое напряжение на излучателе ультразвука $U_{\text{пор}} \approx 11\text{В}$. Существует определенная закономерность в процессе образования полос в области В: в первую очередь они появляются вблизи границы с областью С.

Наблюдения динамики процесса в клинообразной ячейке провести не удалось, так как уже при незначительном превышении порога ($U/U_{\text{пор}} = 1.08$) потоки вызывают смещение и искажение линий Кано-Гранжана. Интересно отметить, что видимое в микроскоп турбулентное движение в области А появлялось при несколько меньших напряжениях ультразвука, чем в других областях ячейки I.

Во второй серии опытов исследовали образцы ХЖК с равновесным значением шага спирали $P_0 = 4.3$ мкм в условиях ячейки II, что позволяло одновременно наблюдать большее число зон Гранжана (I-XV). Как показали наблюдения, в этой ситуации картины искажения в зонах Гранжана I-IV, где d и P_0 соизмеримы, не отличались от описанной выше в ячейке I. Различие проявляется в зонах V-XV, где $d \gg P_0$: искажение имеет вид “квадратной” сетки, составленной равноудаленными светлыми линиями, которые располагаются параллельно и перпендикулярно направлению натирания \mathbf{b} (рис. 3г, $P_0 = 4.3$ мкм, $d = 22.5$ мкм, $f = 3.65$ МГц).

Рассмотрим результаты опытов по изучению влияния на пороговые характеристики неустойчивости, сопровождаемой появлением двумерной

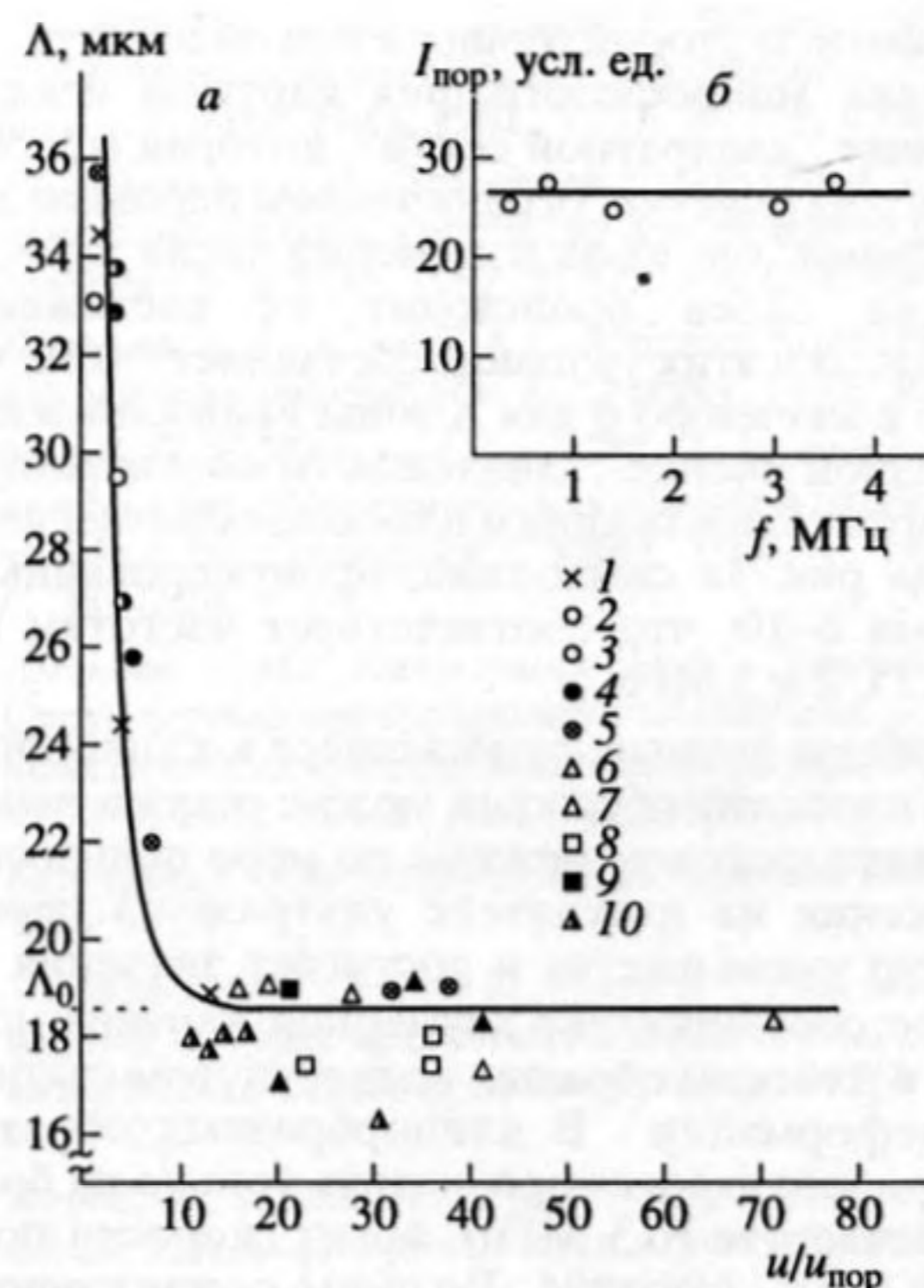


Рис. 4. К анализу пороговых характеристик неустойчивости: частотная зависимость периода Λ двумерных структур на пороге неустойчивости в клинообразной ячейке для X зоны Гранжана и в плоской ячейке с планарной текстурой. Обозначения 1-5 соответствуют частотам 0.3; 0.73; 1.35; 3; 3.65 МГц ($P_0 = 4.3$ мкм, X зона Гранжана, $\sigma = 0.84$). Обозначения 6-10 отвечают частотам 0.3; 0.44; 1.35; 2; 3 МГц ($P_0 = 4.3$ мкм, планарная текстура; $\sigma = 0.89$) (а); частотная зависимость пороговой силы звука (X зона Гранжана; $\sigma = 0.84$) (б).

картины искажения, силы звука I и частоты воздействия при фиксированных значениях d , P_0 и t .

На рис. 4а приведены значения пространственного периода двумерных структур на пороге эффекта и вблизи него для X зоны Гранжана. Символами, пронумерованными цифрами 1-5, показаны эти значения Λ на частотах 0.3, 0.73, 1.35, 3 и 3.65 МГц. Шаг спирали $P_0 = 4.3$ мкм, параметр $\sigma' = |P - P_0|/P_0$, характеризующий деформацию растяжения, для этой зоны Гранжана составляет 0.046; приведенная деформация растяже-

ния $\sigma = 2\sigma'/\sigma'_{\text{пор}} = 0.84$. (Здесь $\sigma'_{\text{пор}} = \frac{P[s(1+s)]^{1/2}}{q}$,

$s = K_2/K$, $K_2, K_1 = K_3 = K$ — упругие постоянные Франка, $q = 2\pi/P_0$.) Как отмечалось выше, уже при небольшом превышении порогового напряжения на излучателе $U_{\text{пор}}$ деформация и движение линий Кано-Гранжана затрудняют наблюдения. Поэтому, чтобы представить динамику процесса, был проведен дополнительный эксперимент с плоским образцом ХЖК в тех же условиях, что и

³ Такой вид искажения наблюдался в нематическом ЖК при планарной ориентации молекул в слое [11].

эксперименты второй серии с ячейкой П. На рис. 3д приведена микрофотография картины искажения в виде "квадратной сетки", которая сформировалась на участке, ограниченном парными дисклинациями, где из-за изменения числа холестерических слоев происходит их растяжение. Значение σ в этих условиях составляет ~ 0.89 , что близко к значению σ для X зоны Гранжана в клинообразной ячейке⁴. Значения Λ , соответствующие картине искажения в плоском образце, показаны на рис. 4а символами, пронумерованными цифрами 6–10, что соответствует частотам 0.3, 0.44, 1.35, 2 и 3 МГц.

Обобщая данные, относящиеся к клинообразному и плоскому образцам, можно сделать вывод, что в надпороговом режиме по мере повышения напряжения на излучателе ультразвука период структур уменьшается и достигает значения Λ_0 , которое соответствует двумерной картине искажения в плоском образце, подвергнутом статической деформации⁵. В клинообразных образцах этот процесс удается проследить только на более низкой частоте (0.3 МГц), когда скорости потоков не столь высокие. Во всем рассмотренном диапазоне частот на пороге эффекта пространственный период сохраняет практически постоянное значение, равное ~ 33.9 мкм. Что касается частотной зависимости пороговой силы звука $I_{\text{пор}} \sim f^2 U_{\text{пор}}^2$ [12], то, судя по представленным на рис. 4б данным, она сохраняет практически постоянное значение в рассмотренной области частот. Эти данные относятся к X зоне Гранжана ($d = 22.5$ мкм, $\sigma = 0.84$).

Сопоставим экспериментальные данные о поведении пороговых характеристик с теоретическими посылками, следующими из моделей [8]. На пороговую колебательную скорость и период структур, согласно [8], влияет не только состояние ХЖК-слоев, но и соотношение между частотой ультразвука и критической частотой, которую определяют следующие соотношения:

$$f_{\text{кр}} = 2\pi\eta pq[s/(1+s)]^{1/2}/\rho \text{ при } P = P_0 \quad (1)$$

и

$$f_{\text{кр}} = 8\pi\eta\sigma pq[s/(1+s)]^{1/2}/\rho \text{ при } P > P_0. \quad (2)$$

Расчеты показывают, что применительно к X зоне Гранжана и $P_0 = 4.3$ мкм критические частоты составляют 5 и 8.2 МГц, соответственно, в усло-

виях, когда ХЖК-слои находятся в равновесном ($P = P_0$) и растянутом ($P > P_0$) состояниях.⁶ Это означает, что полученные в экспериментах данные относятся к области частот $f > f_{\text{кр}}$. В этом случае согласно теории [8] имеем

$$v_{0\text{пор}} \sim \omega^{-1}, \quad \Lambda \sim (dP_0\omega^{-1})^{1/4} \text{ при } P = P_0 \quad (3)$$

и

$$v_{0\text{пор}} \sim (dP_0\omega)^{-1}, \quad \Lambda \sim (dP_0\sigma^{-1})^{1/2} \text{ при } P > P_0. \quad (4)$$

Как показали наблюдения, на пороге эффекта пространственный период структур не зависит от частоты ультразвука; это качественно согласуется с выводом теории (формула (4)), учитывающей растяжение ХЖК-слоев. Что касается численной оценки периода структур, при $P_0 = 4.3$ мкм, $d = 22.5$ мкм и $\sigma = 0.84$ (условия второй серии экспериментов), теоретическое значение составляет 10.9 мкм, что только по порядку величины коррелирует с экспериментальным значением $\Lambda = 33.9$ мкм. Пороговое значение силы звука в экспериментах не зависит от частоты воздействия в рассмотренном диапазоне частот. Этот вывод даже качественно не согласуется с предсказаниями теории (см. формулы (3) и (4)). Численное значение пороговой колебательной скорости, следующее из приведенной в работе [8] точной формулы, которая учитывает растяжение слоя, на порядок превышает реальные значения v_0 , достигаемые в экспериментах при типичных значениях I , равных 0.1–1 Вт/см².

Проведенный анализ показывает, что предложенная в работе [8] физическая модель механизма ориентационной неустойчивости, основанная на представлениях гидродинамики Лесли–Эриксона и учитывающая экспериментально установленные факты существования в ХЖК областей с растянутой спиральной структурой, не дает адекватного описания экспериментальной картины дестабилизации текстуры Гранжана в ультразвуковом поле. Однако полученные нами результаты указывают на ограниченность традиционного подхода к анализу ориентационной неустойчивости ХЖК во внешних полях. Как показали исследования последних лет [13–15], при описании динамической реакции ЖК на любое внешнее воздействие необходимо учитывать релаксационные явления в среде и влияние связанных с ними факторов. В акустических полях на частотах ультразвукового диапазона к таковым относится изменение вязкости ХЖК при сжатии среды в ультразвуковой волне, динамического модуля упругости и т.д. [11]. В свете этих данных вполне

⁴ Величина зазора в плоском капилляре на участке ячейки, где воздействие ультразвука приводило к образованию "сетки", была измерена по интерференционному спектру пропускания ячейки и составляла 40 мкм ($P_0 = 4.3$ мкм).

⁵ Это значение Λ_0 получено нами в независимом опыте, где холестерическая жидкость "перетекала" через плоский капилляр, поступая в него по гибкой трубке при ее деформации из стороннего резервуара.

⁶ Здесь и ниже при проведении численных оценок использовались следующие значения материальных параметров: $K = 10^{-6}$ дн, $K_3 = 3 \times 10^{-6}$ дн, $\rho = 1$ г/см³.

представляется обоснованным вывод о необходимости разработки новой физической концепции для интерпретации результатов экспериментов с ХЖК, которая базируется уже на представлениях неравновесной гидродинамики, что является целью наших дальнейших исследований.

Работа выполнена при финансовой поддержке Международного научного фонда Д. Сороса (Грант J7D100).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Капустин А.П., Капустина О.А. Акустика жидких кристаллов. М.: Наука, 1985. 247 с.
2. Де Жен П. Физика жидких кристаллов. М.: Мир, 1977. 400 с.
3. Легуша Ф.Ф. Эффект Константинова и поглощение звука в неоднородных средах // УФН. 1984. Т. 144. № 3. С. 509–522.
4. Капустина О.А., Лупанов В.Н., Чилая Г.С. Эффект акустической памяти в жидких кристаллах // Акуст. журн. 1978. Т. 24. № 1. С. 136–137.
5. Kapustina O.A. acoustooptical phenomena in liquid crystals // Mol. Cryst. and Liquid Crystals. 1984. V. 112. № 1 and 2. P. 118–122.
6. Gurova I.N., Kapustina O.A. Mechanism for the formation of bubble domains // Liquid Crystals. 1989. V. 6. № 5. P. 525–531.
7. Bertolotti M., Sbrilli L., Scudieri F. Behavior of cholesteric-nematic mixtures under compressional deformations. // J. Appl. Phys. 1982. V. 53. № 7. P. 4750–4754.
8. Кожевников Е.Н. Доменная структура в холестерическом жидком кристалле при воздействии ультразвука // ЖЭТФ. 1987. Т. 92. № 4. С. 1306–1316.
9. Беляков В.А., Сонин А.С. Оптика холестерических жидких кристаллов. М.: Наука, 1982. 360 с.
10. Курик М.В., Лаврентович О.Д. Дефекты в жидких кристаллах: гомотопическая теория и экспериментальные исследования // УФН. 1988. Т. 154. № 3. С. 381–429.
11. Аникеев Д.И., Капустина О.А., Лупанов В.Н. Структурные превращения в планарных образцах нематических кристаллов в ультразвуковом поле // ЖЭТФ. 1991. Т. 100. № 1 (7). С. 197–204.
12. Бергман Л. Ультразвук. М.: Изд-во ин. лит., 1956. 726 с.
13. Scaramuzza N., Carbon V., Ferrero C., Versace C. dynamical response of cholesteric liquid crystal under external fields // Condensed Matter News. 1995. V. 4. № 3. P. 21–23.
14. Wróbel S., Haase W., Pfeiffer M., Beresnev L., Geclhaar T. relaxation processes in a model liquid crystal // Mol. Cryst. and Liq. Cryst. 1995. V. 212. P. 335–343.
15. Rachkevich V.S., Yakovenko S., Pelzl J. optical study of molecular orientational relaxation in liquid crystals // Mol. Cryst. and Liq. Cryst. 1995. V. 212. P. 45–60.

Ultrasound Induced Instability in Grandjean Texture of Cholesterics

I. N. Gurova, O. A. Kapustina

Grandjean texture of cholesterics with a helix pitch P_0 smaller than the cell thickness d acted upon by ultrasound is studied. It is shown that the threshold value of the intensity in the ultrasound wave and the size of domains are essentially frequency independent over the range 0.3 to 3.6 MHz for nemato-cholesteric mixtures. It is established that the types of the texture distortion in the wedge-like and plane cells are affected by stretching of the cholesteric liquid crystal structure along the crystal axis. Two theory models of the action of ultrasound on the cholesterics are analyzed here: an unstretched cholesteric layer with an equilibrium helix pitch P_0 and a stretched one with the helix pitch P larger than the equilibrium value. It is shown that an adequate description of the experimental data in the frame of Leslie–Ericksen hydrodynamics, used as the basis for these models, can not be obtained.