

# Надпороговая динамика акустических доменов в жидких кристаллах

О. А. Капустина<sup>1)</sup>

Акустический институт им. Андреева, 117036 Москва, Россия

Поступила в редакцию 30 апреля 2014 г.

После переработки 7 июля 2014 г.

Получено экспериментальное обоснование достоверности модели надпороговой динамики акустических доменов в планарном слое холестерического жидкого кристалла, построенной в рамках представлений неравновесной гидродинамики с учетом процессов структурной релаксации мезофазы в ультразвуковом поле и нелинейных релаксационных явлений.

DOI: 10.7868/S0370274X14160036

В нелинейном мире широко представлены ситуации, когда при изменении управляющего параметра система теряет устойчивость и демонстрирует различные варианты дальнейшего существования. При этом всегда возникает вопрос о том, какой из вариантов она выбирает. В последние десятилетия большое внимание уделялось исследованиям особенностей динамики диссипативных структур и процесса перехода к ориентационной турбулентности в жидких кристаллах (ЖК). Это привело к открытию разнообразных сценариев трансформации таких структур при развитии электрогидродинамической [1–4] или акустогидродинамической [5–13] неустойчивости. Прорыв в экспериментальном исследовании надпороговой динамики доменов, формирующихся в акустически индуцированных осциллирующих потоках на частотах звукового диапазона, стимулировал создание в рамках линейной гидродинамики Лесли–Эриксона адекватной экспериментальным данным теории эволюции структур за порогом эффекта [14]. На фоне этих достижений выделяется ситуация, сложившаяся с описанием надпороговых явлений в ЖК в области ультразвуковых частот. Впервые образование доменов на этих частотах наблюдалось около полувека назад [15, 16]. В последующие годы были установлены основные закономерности данного явления [17–22]. Адекватное описание таких диссипативных структур удалось получить сравнительно недавно, отказавшись от представлений классической гидродинамики, где принято считать коэффициенты вязкости Лесли постоянными, и переходя на позиции неравновесной гидродинамики. Впервые влияние напряжений, пропорциональных произведению скоро-

сти деформации среды и ее сжатия, при описании ориентационной неустойчивости в ЖК попытался учесть В. Хельффрих [23]. Однако его теория, носившая феноменологический характер, не получила распространения. Позднее Е. Кожевников [20] предложил модель так называемого вихревого механизма дестабилизации планарной структуры ЖК под действием ультразвука (УЗ), которая базировалась на уравнениях классической гидродинамики, но учитывала анизотропию динамического модуля упругости и коэффициента объемной вязкости, обусловленную релаксацией параметра ориентационного порядка. Однако опыты показали, что данная модель дает адекватное описание явления только на частотах, не превышающих частоту релаксации параметра порядка. Это стимулировало развитие исследований по построению нелинейного гидродинамического описания ЖК, учитывающего зависимость коэффициентов вязкости среды от ее ориентационного состояния, и привело к созданию модели [24] нелинейного релаксационного механизма дестабилизации холестерического ЖК (ХЖК), действие которого наиболее эффективно в области частот, превышающих частоту релаксации. Не так давно концепцию [25] о двух механизмах (вихревом и нелинейном релаксационном) дестабилизации структуры слоя ЖК под действием УЗ применили для разработки самой сложной в теории ориентационной неустойчивости ЖК в волновых полях проблемы: надпороговой динамики надмолекулярных структур.

В настоящей работе апробирована построенная в рамках нового подхода первая модель [26] надпороговой динамики акустических двумерных доменов в планарных слоях ХЖК на основании экспериментальных данных о закономерностях изменения пери-

<sup>1)</sup>e-mail: oakapustina@yandex.ru

ода и геометрии доменов в поле продольных УЗ-волн за порогом эффекта для ЖК с равновесным ( $P_0$ ) и вынужденным ( $P$ ) шагом спирали. Установлено соответствие данных экспериментов и теоретической модели.

Модель [26] построена на основе представлений неравновесной гидродинамики с учетом процессов структурной релаксации и нелинейных релаксационных явлений. Она описывает надпороговую динамику системы доменов в планарном слое ХЖК в области частот, где длина волны больше шага спирали, и нелинейные по деформации среды напряжения и моменты релаксационной природы доминируют. Анализ эффекта проведен для ХЖК с шагом спирали  $P_0 \ll d$  в следующей геометрии задачи. На планарный слой в направлении нормали (ось  $z$ ) падает продольная волна с амплитудой сжатия  $\varepsilon_0$  (рис. 1а). Оси  $x$  и  $y$  лежат в плоскости нижней границы слоя ( $z = 0$ ). Ось спирали  $h$  направлена вдоль оси  $z$ , а невозмущенные холестерические слои параллельны плоскости ( $xy$ ). Первая на пути УЗ-волн граница слоя ( $z = 0$ ) акустически прозрачна. Вторая граница ( $z = d$ ) является жесткой. В результате в слое устанавливается стоячая волна сжатия  $\varepsilon(z, t) = 2\varepsilon_0 \cos[k_s(d - z)] \sin \omega t$ , где  $\varepsilon$  – сжатие,  $d$  – толщина слоя,  $t$  – время,  $k_s = \omega/c$ ,  $\omega = 2\pi f$ ,  $f$  – частота,  $c$  – скорость звука. Для директора  $\mathbf{n}$  ХЖК принято следующее представление:  $\mathbf{n} = (\cos \theta \cos \Psi, \cos \theta \sin \Psi, \sin \theta)$ , где  $\theta_0$  и  $\psi_0$  – амплитудные значения угла  $\theta$  между директором  $\mathbf{n}$  и плоскостью ( $xy$ ) и угла  $\psi = qz + \varphi$  ( $\varphi$  – угол отклонения директора  $\mathbf{n}$  от равновесной ориентации в плоскости слоя,  $q = 2\pi/P$ ).

Согласно теории [26] деформацию ХЖК непосредственно за порогом описывает закономерность  $\theta_0 \sim \psi_0 \sim (\varepsilon_0^2 - \varepsilon_{th}^2)^{1/2}$ , аналогичная зависимости параметра фазового перехода от расстояния до температуры перехода в теории Ландау фазовых переходов II рода. При этом аналогом температуры служит обратная интенсивность УЗ  $J^{-1} \sim \varepsilon_0^{-2}$ . Здесь  $\varepsilon_{th}$  – пороговая амплитуда сжатия среды. Формирование доменов с волновым числом  $k$  начинается при амплитуде сжатия, равной  $\varepsilon_0(\omega, k) = [(3 + \beta)(k^4 + k_0^4 - 2k_0^2 k^2 \delta) / 4(2\Omega_1 + \Omega_2)k^2]^{1/2}$ . Минимальное по  $k$  значение амплитуды  $\varepsilon_0$ , имеющее смысл порогового сжатия  $\varepsilon_{th}$ , достигается при  $k = k_0$  и определяется формулой [26]

$$\varepsilon_{th} = [(3 + \beta)k_0^2(1 - \delta) / 2(2\Omega_1 + \Omega_2)k^2]^{1/2}. \quad (1)$$

Здесь  $\delta = \delta^* / \delta_0$  – отношение растяжения слоя  $\delta^*$  к критической деформации растяжения  $\delta_0$ , при которой формируются домены с волновым числом

$k_0 = 2\pi[2\beta/(3 + \beta)]^{1/4} / (P_0 d)^{1/2}$  и периодом  $L_0 = \pi\sqrt{2}/k_0$  [26],  $\delta^* = (P - P_0)/P_0$ ,  $\Omega_1 = \gamma\omega_1^+ / K_{33}$ ,  $\Omega_2 = \gamma\omega_2^+ / K_{33}$ ,  $\gamma$  – коэффициент вращательной вязкости,  $\omega_1^+$  и  $\omega_2^+$  – параметры, имеющие размерность частоты,  $\beta = K_{22}/K_{33}$ ,  $K_{22}$ ,  $K_{33}$  – упругие постоянные Франка. Стационарные искажения ХЖК в УЗ-поле появляются при  $\varepsilon \geq \varepsilon_{th}$ . Их размер определяет волновое число  $k_0$ . Поэтому период акустических доменов  $L = \pi\sqrt{2}/k$  не отличается от периода доменов  $L_0$ , возникающих при критическом растяжении холестерической структуры  $\delta_0$ . За порогом (при  $s = \varepsilon/\varepsilon_{th} > 1$ ) искажения структуры описывает спектр волновых чисел  $k$ , лежащих в интервале, который определяет неравенство  $k_0(s^2(1 - \delta) + \delta - \{[s^2(1 - \delta) + \delta]^2 - 1\}^{1/2})^{1/2} < k < k_0(s^2(1 - \delta) + \delta + \{[s^2(1 - \delta) + \delta]^2 - 1\}^{1/2})^{1/2}$ . Полагая, что в опытах наблюдают искажения с максимальной по волновому числу  $k$  амплитудой, которая достигается при значении  $k_{max} = k_0[s^2(1 - \delta) + \delta]^{1/2}$ , и определяя деформацию структуры через амплитудные значения углов  $\theta_0 = 2(2\beta)^{1/2}P_0 f_{max}(s, \delta, \xi) / 3d$  и  $\varphi_0 = \{4[2\beta(3 + \beta)]^{1/2}P_0 / 9d\}^{1/2} f_{max}(s, \delta, \xi)$ , находят период акустических доменов [26]:

$$L = \pi\sqrt{2}/k_0[s^2(1 - \delta) + \delta]^{1/2}, \quad (2)$$

где  $f_{max}(s, \delta, \xi) = (\{[s^2(1 - \delta) + \delta]^2 - 1\} / 2)^{1/2}$ ,  $\xi = k^2/k_0^2$ . Как следует из формулы (2), период доменов  $L$  связан с относительным сжатием среды в поле УЗ-волн и растяжением холестерической структуры через комбинацию этих параметров  $s^2(1 - \delta) + \delta$ . Зависимость приведенного периода доменов  $L/L_0$  от относительной амплитуды сжатия среды при различных значениях параметра  $\delta$  представляет семейство графиков 1–3 на рис. 2. При расчетах были приняты значения, типичные для 4-метокси-бензилиден-4'-бутиланилина:  $c = 1.5 \cdot 10^5$  см/с,  $\gamma \approx 0.1$  Па,  $K_{22} \approx 4 \cdot 10^{-7}$  дин,  $K_{33} \approx 7.5 \cdot 10^{-7}$  дин,  $\tau = 3 \cdot 10^{-8}$  с [27]. Приведенные графики демонстрируют снижение величины  $L/L_0$  за порогом эффекта при увеличении интенсивности УЗ. С повышением  $\delta$  скорость спада  $L/L_0$  уменьшается. Это говорит о снижении относительного влияния УЗ на поведение доменов за порогом эффекта в условиях предварительного растяжения структуры. Достоверность формулы (2) для оценок значений  $L$  по мере продвижения за порог эффекта определяется следующим неравенством:  $s < s^* = \{[(9d/P_0b + 1)^{1/2} - \delta] / (1 - \delta)\}^{1/2}$ , где  $b = [2\beta(3 + \beta)]^{1/2}$ . При  $\beta \approx 0.028$  оно принимает вид  $s < \{[4.7(d/P_0)^{1/2} - \delta] / (1 - \delta)\}^{1/2}$ . Последнее неравенство показывает, что увеличение  $d/P_0$  при постоянном значении  $\delta$ , а также повышение  $\delta$  при постоянном значении  $d/P_0$  ведут к нарастанию  $s^*$ .

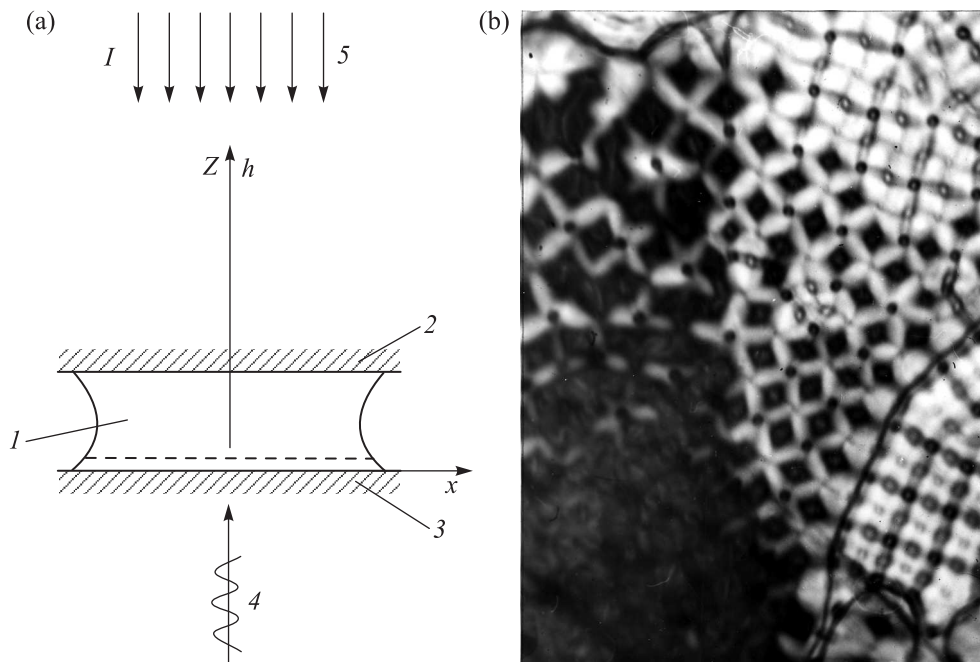


Рис. 1. (а) – Геометрия задачи и упрощенная схема эксперимента: 1 – ХЖК, 2 – оптически прозрачная пластина (стекло), 3 – “звукопрозрачная” пленка с отражающим свет покрытием, 4 – продольная УЗ-волна, 5 – световой поток в направлении нормали к слою ХЖК (вдоль оси  $z$ ). (б) – Оптическая картина искажения планарного слоя ХЖК, содержащего парные дисклинации [27], в плоской ячейке вблизи ее края. Прослеживаются все возможные виды ориентационного состояния системы доменов за порогом эффекта: “квадратная сетка” (длина стороны элемента сетки 32 мкм), которая возникает на пороге деформации, и различные стадии ее трансформации (искажение сетки, смещение составляющих ее линий), в том числе переход к ориентационной турбулизации (темные участки демонстрируют начальную фазу нарушения упорядоченного состояния ХЖК);  $f = 1.2$  МГц,  $U = 36$  В,  $d = 80$  мкм,  $P_0 = 4$  мкм,  $\delta = 0$ ,  $t = 25$  °С

Исследования были проведены на растворах холестерилхлорида в нематическом ЖК (ЖК-404) с равновесными значениями шага спирали 2, 2.2, 4, 4.3 и 10 мкм, которыми заполняли плоскую и клиновидную ячейки. Схема установки отвечала геометрии, принятой при построении модели (см. рис. 1а). Уровень воздействия контролировался вольтметром. Измеряемое им напряжение  $U$ , подводимое к излучателю УЗ, пересчитывалось в амплитуду сжатия  $\varepsilon_0$  на границе с координатой  $z = 0$  по методике [28]. Частота УЗ изменялась в интервале 1–4 МГц. Температура ХЖК в ячейке поддерживалась постоянной с точностью  $\pm 0.5$  °С в интервале 20–30 °С с помощью системы термостабилизации. Наблюдения состояния текстуры велись поляризационно-оптическим методом. Толщина слоя ХЖК в плоской ячейке варьировалась в пределах 20–80 мкм путем перемещения пластины 2. Равновесное состояние холестерической структуры, отвечающее условию  $d = d_m = 0.5mP_0$  (где  $m = 1, 2, \dots$ ), устанавливалось без изменения граничных условий и энергии сцепления молекул ЖК со стенками. В клиновидной ячейке высота зазо-

ра задавалась прокладками из тефлона. При локальной высоте зазора, равной  $d_m$ , спираль вписывается в него без перемены равновесного шага за счет его подгонки с тем же числом полувитков. Наблюдались домены в зонах Гранжана, которые лежат между дисклинациями Кано–Гранжана [27], где формируется структура с вынужденным шагом спирали  $P$ .

Были проведены две серии опытов на слоях ХЖК с равновесной и растянутой структурами, соответственно, в плоской и клиновидной ячейках при разных значениях  $P_0$  и  $d$ . Опыты ставились следующим образом. Электрическое напряжение  $U$ , подводимое к излучателю УЗ, повышалось до порогового значения  $U_0$ . Наблюдались изменения текстуры слоя. На рис. 1б приведена до некоторой степени уникальная оптическая картина искажения планарной структуры ЖК, которая сформировалась вблизи края ячейки. В поле зрения одновременно оказались различные виды ориентационного состояния системы доменов в поле УЗ-волн: квадратная сетка, которая возникает на пороге эффекта, и различные стадии ее трансформации, в том числе переход к ориентаци-

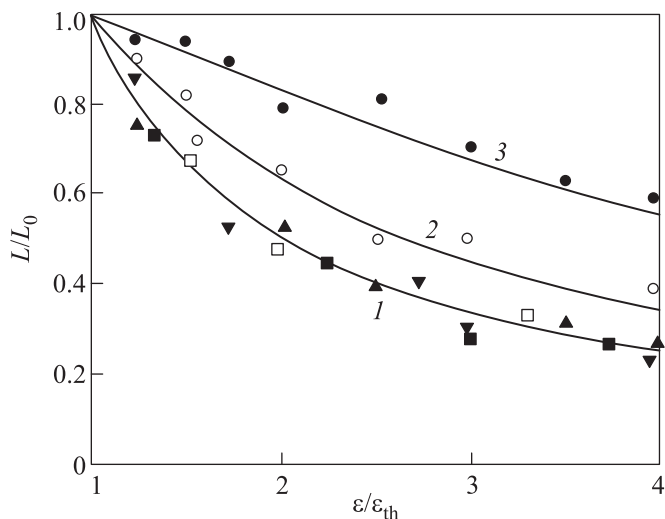


Рис. 2. Сопоставление теоретических и экспериментальных данных по надпороговой динамике акустических доменов, индуцированных воздействием УЗ в планарных слоях ХЖК с равновесным и вынужденным шагом спирали, при различных значениях растяжения холестерической структуры. Графики 1–3 представляют данные численного расчета по формуле (2) и демонстрируют зависимость приведенных значений периода доменов  $L/L_0$  от относительной амплитуды сжатия среды в поле УЗ-волн при значениях  $\delta$  предварительного растяжения холестерической структуры, равных 0, 0.5, 0.85 соответственно. Значки – результаты опытов в совпадающих с расчетными условиях: открытые кружки –  $\delta = 0$ ,  $P_0 = 4$  мкм,  $d = 80$  мкм,  $f = 1.2$  МГц, закрытые кружки –  $\delta = 0$ ,  $P_0 = 4$  мкм,  $d = 80$  мкм,  $f = 2.95$  МГц, закрытые треугольники –  $\delta = 0$ ,  $P_0 = 2$  мкм,  $d = 80$  мкм,  $f = 1.2$  МГц, закрытые перевернутые треугольники –  $\delta = 0$ ,  $P_0 = 10$  мкм,  $d = 80$  мкм,  $f = 1.2$  МГц, закрытые квадраты  $\delta = 0.5$ ,  $P_0 = 2.2$  мкм, 20-я зона,  $d \approx 21.5$  мкм,  $f = 3.65$  МГц, открытые квадраты  $\delta = 0.84$ ,  $P_0 = 4.3$  мкм, 10-я зона,  $d \approx 20.4$  мкм,  $f = 3.65$  МГц. При проведении опытов использовались ХЖК с шагом спирали  $P_0$ , равным 2, 4, 10 мкм (плоская ячейка) и 2.2, 4.3 мкм (клиновидная ячейка)

онной турбулизации мезофазы. Образование такой картины искажения, по-видимому, обусловлено более высокой неоднородностью волнового поля вблизи краев ячейки, что стимулирует развитие потоков, вызывающих турбулизацию среды, и присутствием в этой части слоя парных дисклинаций [27], на которых меняется число холестерических слоев, что ведет к растяжению структуры. Как показали наблюдения, в центральной части слоя вдали от краев ячейки указанные стадии процесса трансформации доменов идут “поочередно” по мере повышения напряжения на излучателе УЗ.

Данные опытов на слоях ХЖК в плоской и клинообразной ячейках демонстрируют, что за порогом эффекта при постоянных значениях  $P_0$ ,  $d$  и  $\delta$  независимо от состояния структуры (растянутое или равновесное) период доменов снижается по мере повышения интенсивности УЗ и при  $U = U^*$  составляет  $L^* \approx 0.5L$ . При этом значение  $U^*/U_0$  зависит от  $\delta$ : в слое с растянутой холестерической структурой оно выше, чем в условиях ее равновесного состояния. Установлено, что в слое ХЖК с вынужденным шагом спирали  $P > P_0$  за порогом эффекта скорость уменьшения периода доменов до значения  $L^*$  не зависит от толщины слоя, а растяжение холестерической структуры ведет к ее понижению. Это отвечает предсказанию теории и указывает на ослабление влияния УЗ на динамику доменов. Совокупность экспериментальных данных по значениям приведенного периода доменов за порогом эффекта при различных величинах  $s = \varepsilon/\varepsilon_{th}$  и  $\delta$  согласуется с графиками 1–3, рассчитанными для разных значений  $P_0$ ,  $d$  и  $f$  (рис. 2).

Сформулируем выводы, следующие из настоящей работы. В ней впервые экспериментально обоснована достоверность модели [26], построенной в рамках неравновесной гидродинамики с учетом нелинейных релаксационных напряжений и описывающей надпороговые ориентационные явления в планарном слое ХЖК. В связи с этим можно утверждать, что процессы структурной релаксации в ЖК играют значимую роль не только при образовании доменов [24, 25], но и при их трансформации за порогом эффекта. Показано, что надпороговые изменения структуры описывает скейлинговая комбинация вида  $s^2(1 - \delta) + \delta$ . Корреляция экспериментальных данных и результатов расчета на основе модели [26] подтверждает концепцию о взаимосвязи ориентационных и релаксационных явлений в ХЖК и обоснованность перехода на позиции неравновесной гидродинамики при описании пороговых и надпороговых изменений симметрии ориентационной структуры в волновых полях. На современном этапе исследований важнейшей является задача развития модели [26] и принятого в ней подхода для создания теории надпороговой эволюции структур в других типах мезофазы.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (проект # 13-02-00099). Автор пользуется возможностью поблагодарить профессора Э.Гюйона (Laboratoire d'hydrodynamique et mécanique physique de l'École Supérieure de Physique et de Chimie Industrielles de la ville de Paris, Франция) за обсуждение полученных результатов.

1. С. А. Пикин, *Структурные превращения в жидких кристаллах*, Наука, М. (1981), 247 с.
2. В. Л. Голо, Е. И. Кац, А. А. Леман, *ЖЭТФ* **86**, 147 (1984).
3. В. А. Делев, О. А. Скалдин, Е. Г. Батыршин, Е. Г. Аксельрод, *ЖТФ* **81**, 1 (2011).
4. О. А. Скалдин, В. А. Делев, Е. С. Шиховцова, Е. Г. Батыршин, Ю. А. Лебедев, *Письма в ЖЭТФ* **93**, 431 (2011).
5. P. Manneville and E. Dubois-Violette, *J. Phys. (France)* **37**, 285 (1976).
6. P. Manneville, *J. Phys. (France)* **49**, 713 (1979).
7. M. G. Clark, F. C. Saunders, I. A. Shanks, and F. M. Leslie, *Mol. Cryst. Liq. Cryst.* **70**, 195 (1981).
8. E. Guazelly and E. Guyon, *J. Phys. (France)* **43**, 915 (1982).
9. S. Hogan, T. Mullen, and P. Woodford, *Proc. Roy. Soc. (London) A* **441**, 559 (1993).
10. Д. И. Аникеев, О. А. Капустина, *ЖЭТФ* **110**, 1328 (1996).
11. T. Börsönyi, A. Buka, A. P. Krekhov, and L. Kramer, *Phys. Rev. E* **58**, 7419 (1998).
12. A. P. Krekhov, T. Börsönyi, P. Tóth, A. Buka, and L. Kramer, *Phys. Rep.* **337**, 171 (2000).
13. О. А. Капустина, *Письма в ЖЭТФ* **83**, 12 (2006).
14. Е. Н. Кожевников, *Кристаллография* **53**, 1 (2007).
15. Л. М. Дмитриев, А. П. Капустин, *Кристаллография* **7**, 32 (1962).
16. O. Kapustina, V. Loupanov, and I. Gourova, In *Abstracts 7-eme Congres International sur les cristaux liquides, Bordeaux*, (1978), p. 51, BP 38.
17. И. Н. Гурова, О. А. Капустина, *Письма в ЖЭТФ* **63**, 866 (1990).
18. Д. И. Аникев, О. А. Капустина, В. Н. Лупанов, *ЖЭТФ* **100**, 197 (1991).
19. H. Moritaki, T. Seike, and K. Toda, *Jap. J. Appl. Phys.* **38**, 3076 (1999).
20. *Physical Properties of Liquid Crystals*, Wiley, Germany, Weinheim (1999).
21. M. Inoue, H. Moritake, and K. Toda, *Jap. J. Appl. Phys.* **39**, 3125 (2000).
22. О. А. Капустина, *Письма в ЖЭТФ* **81**, 481 (2005).
23. W. Helfrich, *Phys. Rev. Lett.* **23**, 372 (1969).
24. Е. Н. Кожевников, *Акуст. журн.* **48**, 777 (2002).
25. O. Kapustina, *J. Acoust. Soc. of America* **123**, 3279 (2008).
26. Е. Н. Кожевников, *Акуст. журн.* **50**, 657 (2004).
27. П. де Жен, *Физика жидких кристаллов*, Мир, М. (1977).
28. В. И. Домаркас, Р. Ю. Кажис, *Контрольно-измерительные пьезоэлектрические преобразователи*, МИИТАС, Вильнюс (1975).