ELEKTROKONVEKCIÓ NEMATIKUS FOLYADÉKKRISTÁLYOKBAN

MTA DOKTORI ÉRTEKEZÉS

Dr. Éber Nándor



MTA Wigner Fizikai Kutatóközpont Szilárdtestfizikai és Optikai Intézet Komplex Folyadékok Osztály

> Budapest 2019. február

dc_1584_18

Tartalomjegyzék

I. Bevezetés	1
II. A folvadékkristály állapot és jellemzői	3
II.1. A folyadékkristály fázisok	3
II.2. Szimmetriák és anizotrópia	4
II.3. Rugalmasság	5
II.4. Kölcsönhatás elektromos és mágneses terekkel	6
II.5. Flexoelektromosság	7
II.6. Elektromos vezetőképesség	8
II.7. A felületi orientáció	9
II.8. Viszkozitás	10
II.9. Optikai tulajdonságok	10
II.10. A nematikus folyadékkristályok kontinuum elmélete	11
III Instahilitásak ás mintázatkángődás falvadákkvistálvakhan	12
III. Instabilitasok és inilitazatképződés lotyadékkristalyokbali III. Ereederiekez étmenet	13 14
III.1. Freedericksz-athenet	14 16
	10
III.3. Elektrokonvekció	17
dard modellie	18
III 3.2 Az SM lineáris stabilitás-analízise	20
III 3.3 Standard elektrokonvekció mint elsődleges instabilitás	20
III 3 4 Standard elektrokonvekció mint másodlagos instabilitás	$\frac{21}{24}$
III 3.5 Küszöb feletti viselkedés és a gyengén nemlineáris közelítés	2 4 25
III.3.6 Nemstandard elektrokonvekció	23 27
	21
IV. Vizsgált anyagok és kísérleti módszerek	31
IV.1. A vizsgált folyadékkristályok	31
IV.2. Mintakészítés	33
IV.3. Megfigyelési módszerek	34
IV.3.1. Polarizációs mikroszkópia	35
IV.3.2. Árnyékleképezés	35
IV.3.3. Mikroszkópia mágneses térben	36
IV.3.4. Diffrakció	37
IV.3.5. Mérési összeállítás	37
IV.4. Kiértékelési módszerek	38
IV.4.1. A mintázat kontrasztja	38
IV.4.2. A mintázat küszöbjellemzői	39
IV.4.3. $x-t$ és $x-\alpha$ felvételek	40

IV.4.4. Komplex demoduláció	40		
V. Standard elektrokonvekció planáris (- +) mintákban	43		
V.1. Haladó hullámok és a gyenge elektrolit modell	43		
V.1.1. Előzmények	43		
V.1.2. Saját eredmények	45		
V.2. Mintázat lebomlása	48		
V.2.1. Előzmények	48		
V.2.2. Saját eredmények	52		
V.3. Elektrokonvekció alacsony frekvenciás gerjesztésnél	55		
V.3.1. Előzmények	56		
V.3.2. Saját eredmények	57		
V.4. Mintázatképződés szuperponált egyen- és váltófeszültség hatására	62		
V.4.1. Előzmények	62		
V.4.2. Saját eredmények	65		
	= 2		
VI. Standard elektrokonvekcio nomeotrop (- +) mintakban	73		
	13		
	13		
	74		
V1.2. Magneses ter hatasa az elektrokonvekciora	/9 70		
V1.2.1. Elozmenyek	/9		
V1.2.2. Sajat eredmenyek	80		
	83		
VI.3.1. Elozmenyek	83		
VI.3.2. Sajat eredmenyek	84		
VII. Nemstandard elektrokonvekció	89		
VII.1.A "prewavy" mintázat jellemzői	89		
VII.1.1. Előzmények	89		
VII.1.2. Saját eredmények	91		
VII.2. Elektrokonvekció hajlott törzsű nematikus folyadékkristályokban	95		
VII.2.1. Előzmények	95		
VII.2.2. Saját eredmények	96		
VII.2.3. Mintázatok más hajlott törzsű nematikus folyadékkristályok-			
ban	102		
VII.3. Elektrokonvekció nagy pozitív dielektromos anizo-trópiájú nemati-			
kus folyadékkristályban	106		
VII.3.1. Előzmények	106		
VII.3.2. Saját eredmények	106		

VIII. Összefoglalás

113

Függelék

MTA DOKTORI ÉRTEKEZÉS

115

в. С.	Az értekezés témájához kapcsolódó egyéb publikációs tevékenység	122
D.	Általános irodalomjegyzék	125
	Köszönetnyilvánítás	139

dc_1584_18

I. fejezet

Bevezetés

A folyadékkristályok, bár felfedezésük után évtizedekig csak tudományos kuriózumnak számítottak, mára a modern elektronika nélkülözhetetlen alapanyagává váltak. Sikerüket annak köszönhetik, hogy optikai tulajdonságaik kis elektromos feszültséggel módosíthatók, ami felhasználható információ megjelenítésére. Ennek révén a folyadékkristályok forradalmasították a kijelzőtechnikát, megteremtve egy ma is bővülő, új iparág alapjait. A folyadékkristály kijelzők (liquid crystal display, LCD) szinte egyeduralkodók lettek nemcsak a kis felbontású megjelenítők (órák, kalkulátorok), de a nagy felbontást igénylő grafikus képernyők (mobiltelefon, kamera, laptop számítógép, monitor, lapos televízió, ...) között is.

Az új folyadékkristályok szintetizálása, szerkezetüknek, fizikai tulajdonságaiknak és a bennük lezajló folyamatoknak a kutatása nélkülözhetetlen volt a jelenleg használt LCD-k kifejlesztéséhez, és egyúttal a folyadékkristályok viselkedésének pontosabb megértése révén újabb alkalmazási lehetőségeket is feltárt.

A jelen doktori értekezés témáját képező elektrokonvekció az első generációs, mára már elavult, folyadékkristály kijelzők fizikai alapját képezte. A mai kijelzőkben az elekt-rokonvekció nem játszik szerepet; pontosabban olyan parazita, a kijelző minőségét rontó jelenségnek számítana, amit feltétlen el kell kerülni. Potenciálisan viszont használható lehet optikai alkalmazásokban, ahol például fénysugár eltérítésére van szükség.

Az elektrokonvekció a folyadékkristályok körében elképzelhető egyik legkomplexebb jelenség, mely reverzibilis és disszipatív folyamatok együttműködéseként valósul meg. Értelmezéséhez az orientációs deformációk, az anyagáramlás és a tértöltések kialakulásának és a fényterjedésnek az együttes megértése szükséges.

Bár az elektrokonvekció alapjelenségét már sok évtizede megfigyelték és azóta az elméleti leírása terén is hatalmas lépéseket sikerült megtenni, a több évtizedes kísérleti és elméleti kutatások ellenére is még mindig voltak és vannak megválaszolatlan kérdések. A jelen értekezés az elmúlt húsz év azon vizsgálatainak eredményét mutatja be, melyek e kérdések számának csökkentését, azaz az elektrokonvekció jelenségének teljesebb megértését célozták. Minthogy a folyadékkristályok elektrokonvekciója viszonylag könnyen tanulmányozható modellrendszernek számít, az eredményeket más mintázatképző nemlineáris rendszerek vizsgálatánál is hasznosíthatják.

Kutatásaim elsődlegesen kísérleti jellegűek, de a megfigyelések értelmezéséhez erős

elméleti háttérre van szükség. Vizsgálataimat így az Universität Bayreuth elméleti fizikus kutatóival szoros együttműködésben végeztem. E gyümölcsöző kooperáció keretében esetenként az elméleti jóslatok kísérleti igazolása volt a cél, máskor az új kísérleti adatok inspirálták az elméleti leírás továbbfejlesztését.

Az értekezés felépítése az alábbi. A jelen bevezetést követő II. fejezet ismerteti a folyadékkristályok fontosabb, az értekezés témájához kapcsolódó tulajdonságait. A III. fejezet rövid áttekintést ad a folyadékkristályokban előforduló mintázatképző folyamatokról, illetve ezen belül az elektrokonvekció előfordulásáról, főbb jellemzőiről és elméleti leírásáról. A IV. fejezet bemutatja a mérésekhez használt folyadékkristályokat, valamint a megfigyelési és kiértékelési módszereinket. Vizsgálataim eredményét a továbbiakban 10 alfejezet ismerteti. A témák a mintázatképződés típusa (standard, illetve nemstandard) és a mérőcella kezdeti felületi orientációja (planáris, illetve homeotrop) szerint három fejezetbe (V-VII. fejezetek) csoportosíthatók. Minthogy az egyes vizsgálatok az elektrokonvekció különböző, egymáshoz csak lazán kapcsolódó területét érintik, minden alfejezetben a saját eredmények bemutatását a közvetlen irodalmi (kísérleti, illetve elméleti) előzmények áttekintése előzi meg. A VIII. fejezet az eredmények rövid összefoglalása és egyúttal kitekintés a fennmaradt problémákra és a jövőbeli továbblépés lehetőségeire. Az A. függelék tézispontokba foglalva sorolja fel az elért új tudományos eredményeket, amit a B. függelékben a tézispontokat megalapozó saját publikációk ([S1]–[S25]) listája követ. A C. függelék az értekezés témájához kapcsolódó, de a tézispontoktól független saját cikkeket ([E1]–[E31]) listázza, míg a D. függelék a felhasznált egyéb irodalmi referenciákat ([1]-[170]) tartalmazza. Az értekezés végül köszönetnyilvánítással zárul.

II. fejezet

A folyadékkristály állapot és jellemzői

II.1. A folyadékkristály fázisok

A világunkat felépítő anyagok túlnyomó többsége közel gömbszimmetrikus alkotóelemekből (atomokból vagy molekulákból) épül fel, így a belőlük kialakuló kondenzált fázisokat az alkotóelemek tömegközéppontjainak elrendeződése egyértelműen jellemzi. Ha azonban az alkotó molekulák jelentős alakanizotrópiával rendelkeznek (pl. rúd, korong vagy banán alakúak), a tömegközéppontok elhelyezkedése mellett a molekulák irányítottsága extra szabadsági fokot jelent. Ezen anyagok kristályos fázisát a tömegközéppontok és a molekulairányok háromdimenziós rendezettsége jellemzi, ami irányfüggő fizikai tulajdonságokat eredményez. A magasabb hőmérsékleten előforduló közönséges folyadék fázisban (I) ellenben mind a tömegközéppontok, mind a molekulairányok rendezetlenek (1a. ábra), így az anyag izotrop.

A molekulák önszerveződése révén e két, teljesen rendezett, illetve teljesen rendezetlen állapot között számos közbülső struktúra is létrejöhet. Ezek közös jellemzője a molekulák hosszú távú irányrendezettsége, ami makroszkopikusan kitüntetett irány, a *direktor* (**n**) megjelenését eredményezi [1]. A köztük lévő különbségek főleg a tömegközépponti elrendeződésben fennálló eltérésekből adódnak. E köztes állapotokat nevezzük folyadékkristály fázisoknak, azokat az anyagokat pedig, melyek valamely hőmérséklettartományban rendelkeznek ilyen fázissal, folyadékkristályoknak. Egy adott vegyület esetenként több folyadékkristály fázissal is rendelkezhet.

A folyadékkristályok többsége hosszúkás, rúd alakú, szerves molekulákból áll (kalamitikus folyadékkristályok). A belőlük felépülő leggyakoribb, egyúttal a legkevésbé rendezett folyadékkristály állapot a *nematikus* (N) fázis. A nematikus fázis csak irányrendezettséggel rendelkezik, a tömegközéppontok rendezetlenek (1b. ábra) [1,2]. Következésképpen a nematikus folyadékkristály tulajdonképpen egy anizotrop folyadék.

A *szmektikus* folyadékkristályok a rendeződés következő fokát jelképezik: bennük a molekulák, az irányrendezettség megtartásával, rétegekben helyezkednek el [1, 3]. Az egyes rétegek közötti csatolás és a rétegeken belüli tömegközépponti rendezettség mértékétől, valamint a rétegnormális és a direktor kölcsönös irányától függően a szmektikus fázisnak számos altípusa létezik, melyeket az abc betűivel jelölünk. Itt most csak a szmektikus A (SmA) és a szmektikus C (SmC) fázisokat említjük meg, melyek a szmektikus rétegeken belül tömegközépponti renddel nem rendelkeznek (kétdimenziós folyadékok). Az SmA fázisban a direktor a rétegnormálissal párhuzamos (1c. ábra), míg az SmC fázisban a rétegnormálissal szöget zár be (1d. ábra).



 ábra: Rúd alakú molekulák rendeződésével kialakuló fázisok szerkezete. a) Izotrop folyadék, b) nematikus folyadékkristály, c) szmektikus A folyadékkristálynak, d) szmektikus C folyadékkristálynak a szmektikus rétegekre merőleges metszete. n a direktort, k a szmektikus rétegnormálist jelöli.

A folyadékkristály állapot nem csak a rúd alakú molekulák sajátja; irányrendezett szerkezetek kialakulhatnak korong vagy akár banán alakú molekulák esetében is. Az előbbi esetén nematikus és oszlopos (egymáson fekvő korongok) fázisokat figyeltek meg, míg a banán alakú molekulák esetén nematikus, szmektikus és ú.n. *banán fázisok* (B₁, ..., B₈) alakulhatnak ki (az utóbbiak szerkezetére itt most nem térünk ki) [4].

Az eddig említett folyadékkristály fázisok mindig csak egy korlátozott, az anyagtól függő hőmérséklettartományban fordulnak elő, ezért őket *termotrop* folyadékkristálynak hívjuk. Az anyagok egy másik csoportja, a komoly élettani jelentőséggel bíró *liotrop* folyadékkristályok, csak alkalmas oldószerrel (pl. vízzel) elegyítve képes a koncentráció és hőmérséklet függvényében többféle folyadékkristály állapot létrehozására [5].

Összességében elmondhatjuk, hogy az ismert folyadékkristály fázisok száma már meghaladja a negyvenet, és ez a szám még tovább nőhet. A jelen disszertációban ismertetett jelenségek közülük csak a termotrop nematikus fázisban fordulnak elő, így a továbbiakban csak e fázis jellemzőivel foglalkozunk.

II.2. Szimmetriák és anizotrópia

Az anyagok fizikai tulajdonságait alapvetően meghatározzák az alkotóelemeiknek és a belőlük felépülő szerkezeteknek (fázisoknak) a szimmetriái. Az alkotó molekulák lehetnek tükörszimmetrikusak vagy pedig királisak. Az előbbi esetben a molekulák tükörképeikkel transzláció, forgatás és/vagy termikusan gerjesztett intramolekuláris konformációváltozások révén egymással fedésbe hozhatók. A királis molekulák molekulaszerkezetükból adódóan két, egymás tükörképének megfelelő, de egymással fedésbe nem hozható és egymásba átalakulni nem képes módosulatban létezhetnek. Következésképpen sem az egyes királis molekulák, sem a belőlük felépülő fázisok nem rendelkeznek tükörszimmetriával. A II.1. fejezetben említett folyadékkristály fázisok mindegyikének lehet, az alkotóelemeik szimmetriáitól függően, tükörszimmetrikus és királis (*-gal jelölt, pl. N*, SmC*) változata [1]. A folyadékkristályok legfontosabb jellemzője a direktorral leírt hosszú távú irányrendezettség. A hosszúkás molekulákból álló nematikus folyadékkristályok esetén a direktor a molekulák hossztengelyei átlagos irányának felel meg. Nematikus folyadékkristályokban ez az egyetlen kitüntetett irány létezik, így a rendszer direktor irányú hengerszimmetriával rendelkezik. A tapasztalatok azt mutatták, hogy mint a folyadékkristályok többsége, a nematikus fázis sem poláros, vagyis a fázis invariáns az $\mathbf{n} \leftrightarrow -\mathbf{n}$ transzformációval szemben (ez ekvivalens a direktorra merőleges tetszőleges tengely körüli 180 fokos elforgatással). Mivel a nematikus fázis tükörszimmetrikus molekulákból áll, az inverzió is szimmetriaművelet. Összességében így a nematikus folyadékkristályok a $D_{\infty h}$ szimmetria csoportba tartoznak.

Minthogy a nematikus folyadékkristályokat az izotrop folyadékoktól eltérően nem gömbszimmetria, hanem csak hengerszimmetria jellemzi, a direktor iránya nem ekvivalens a tőle eltérő irányokkal. Következésképpen, mint azt alább részletesen bemutatjuk, a nematikus folyadékkristályok fizikai tulajdonságai irányfüggőek, azaz *anizotropok*.

II.3. Rugalmasság

Míg a szilárd testekben mechanikai nyírófeszültségek deformációt (elmozdulásgradienst) hoznak létre, izotrop folyadékokban ilyen deformációk nem tarthatók fenn, mert a feszültségeket anyagáramlás relaxálja. A nematikus folyadékkristályok ugyan anizotropok, de folyadékok, így a fenti értelemben vett mechanikai deformációk bennük sem fordulhatnak elő. Mi több, a szokásos körülmények (pl. légköri nyomás) esetén összenyomhatatlannak tekinthetők.

A folyadékkristály állapotra jellemző hosszú távú irányrendezettség miatt a nematikus fázis alapállapotának a térben állandó direktor $[\mathbf{n}(\mathbf{r}) = \mathbf{n}_0]$ felelne meg. Ha a direktort lokálisan ezen irányból kitérítjük, azaz direktor gradienst (orientációs deformációt) hozunk létre, megnő a rendszer szabadenergiája és olyan forgatónyomatékok lépnek fel, melyek e deformációt csökkenteni igyekeznek. A nematikus folyadékkristályban e jelenséget nevezzük rugalmasságnak.

A nematikus fázis II.2-ben tárgyalt szimmetriáiból következik, hogy a deformációhoz tartozó ρf_r rugalmas szabadenergia-sűrűség legáltalánosabb alakja legalacsonyabb rendben [1]:

$$\rho f_{\rm r} = \frac{1}{2} K_1 (\operatorname{div} \mathbf{n})^2 + \frac{1}{2} K_2 (\mathbf{n} \operatorname{rot} \mathbf{n} + q_0)^2 + \frac{1}{2} K_3 (\mathbf{n} \times \operatorname{rot} \mathbf{n})^2.$$
(1)

Az (1) egyenlet három tagja három független alapdeformációnak (sorrendben a feszítésnek, a csavarásnak és a hajlításnak, 2. ábra) felel meg, melyek eredőjeként bármely orientációs deformáció előállítható. K_1 , K_2 és K_3 az egyes alapdeformációkhoz rendelhető, alkalmas módszerekkel megmérhető, tipikusan 10^{-12} N nagyságrendű, rugalmas állandók, ρ a folyadékkristály sűrűsége. A kalamitikus folyadékkristályokban általában $K_3 > K_1 > K_2$.

Komplex jelenségek leírásánál néha, első közelítésben, a rugalmas állandók különbözőségétől eltekintenek. A $K_1 = K_2 = K_3 = K$ feltételezésnek megfelelő, ú.n. egy-rugalmas-



2. ábra: Folyadékkristályok háromféle rugalmas alapdeformációja

állandó (izotrop rugalmasság) közelítés esetenként közelítő analitikus formulák leszármaztatására adhat lehetőséget.

Itt hívjuk fel a figyelmet arra, hogy (1)-ben a q_0 -lal arányos tag sérti a szabadenergiának a tükrözéssel szemben elvárt invarianciáját, ezért a nematikus folyadékkristályban $q_0 \equiv 0$. A királis molekulákat tartalmazó nematikus (N*, vagy másként *koleszterikus*) fázisban viszont $q_0 \neq 0$, aminek eredményeképp a koleszterikus fázis szabadenergia minimumának spontán csavarszerkezet felel meg (a direktor a rá merőleges csavartengely irányában haladva körbefordul).

II.4. Kölcsönhatás elektromos és mágneses terekkel

A folyadékkristály deformációját sokszor külső (mágneses vagy elektromos) terek hozzák létre. A folyadékkristály és e terek közötti kölcsönhatásban meghatározó szerepet játszik a folyadékkristály irányrendezettsége és az abból adódó anizotrópia.

Tetszőleges közegben a **H** mágneses tér, a **B** mágneses indukció, az **M** mágnesezettség, valamint az **E** elektromos tér, a **D** dielektromos eltolás és a **P** polarizáció közötti kapcsolatot a

$$\mathbf{B} = \boldsymbol{\mu}_0(\mathbf{H} + \mathbf{M}); \quad \mathbf{M} = \boldsymbol{\chi} \mathbf{H}, \tag{2}$$

$$\mathbf{D} = \boldsymbol{\varepsilon}_0 \mathbf{E} + \mathbf{P}; \quad \mathbf{D} = \boldsymbol{\varepsilon} \mathbf{E}$$
(3)

egyenletek adják meg, ahol a χ mágneses szuszceptibilitás és az ε dielektromos permittivitás szimmetrikus tenzorok (μ_0 a vákuum permeabilitása, ε_0 pedig a vákuum permittivitása). Nematikus (és koleszterikus) folyadékkristályokban e tenzorok az izotrop közegekben megszokott egy-egy helyett a hengerszimmetria miatt két-két független paramétert tartalmaznak, hiszen a direktorral párhuzamosan ($\chi_{\parallel}, \varepsilon_{\parallel}$), illetve a rá merőlegesen ($\chi_{\perp}, \varepsilon_{\perp}$) mért anyagi paraméterek különböznek [1]. A $\chi_a = \chi_{\parallel} - \chi_{\perp}$ és $\varepsilon_a = \varepsilon_{\parallel} - \varepsilon_{\perp}$ menyiségeket nevezzük a mágneses szuszceptibilitás és a dielektromos permittivitás anizotrópiáinak. Segítségükkel a szuszceptibilitás és a permittivitás tenzorok

$$\boldsymbol{\chi} = \boldsymbol{\chi}_{\perp} \mathbf{1} + \boldsymbol{\chi}_{a} \mathbf{n} \circ \mathbf{n}; \quad \boldsymbol{\varepsilon} = \boldsymbol{\varepsilon}_{\perp} \mathbf{1} + \boldsymbol{\varepsilon}_{a} \mathbf{n} \circ \mathbf{n}$$
(4)

alakba írhatók (1 az egységtenzor, o a diadikus szorzást jelöli).

A folyadékkristályok enyhén diamágneses anyagok, így a $10^{-7} - 10^{-6}$ nagyságrendű mágneses szuszceptibitások negatívak ($\chi_{\parallel} < 0$ és $\chi_{\perp} < 0$), de az aromás gyűrűket tartalmazó kalamitikus folyadékkristályokban az anizotrópiájuk mindig pozitív ($\chi_a > 0$). A dielektromos permittivitások ezzel szemben egységnyi nagyságrendűek, és a dielektromos anizotrópia a molekulaszerkezettől (a molekuláris dipólmomentumok nagyságától és irányától) függően széles tartományban ($-10 \leq \varepsilon_a \leq +20$) változhat.

A külső térbe helyezett folyadékkristály direktorának irányát a ρf_m mágneses, illetve a ρf_e dielektromos kölcsönhatási szabadenergiasűrűségek direktortól függő részeinek,

$$\rho f_{\rm m} = -\frac{1}{2} \mu_0 \chi_{\rm a}(\mathbf{n} \,\mathbf{H})^2; \quad \rho f_{\rm e} = -\frac{1}{2} \varepsilon_0 \varepsilon_{\rm a}(\mathbf{n} \,\mathbf{E})^2, \tag{5}$$

a minimumai határozzák meg. Ebből pozitív anizotrópia ($\chi_a > 0$, illetve $\varepsilon_a > 0$) esetén a térrel párhuzamos direktor ($\mathbf{n} \parallel \mathbf{H}$, illetve $\mathbf{n} \parallel \mathbf{E}$), míg negatív anizotrópia ($\chi_a < 0$, illetve $\varepsilon_a < 0$) esetében a térre merőleges beállás ($\mathbf{n} \perp \mathbf{H}$, illetve $\mathbf{n} \perp \mathbf{E}$) következik [1,6].

Míg, technikai okokból, a folyadékkristályokra adott mágneses tér általában időben állandó, elektromos teret U_{dc} egyenfeszültséggel és $U_{ac}\sqrt{2}\sin\omega t$ váltófeszültséggel egyaránt létrehozhatunk. Itt U_{ac} a váltófeszültség effektív értéke, $\omega = 2\pi f$ a körfrekvencia; az f frekvencia széles tartományban (mHz–MHz) választható. Az utóbbi esetben figyelembe kell venni azonban, hogy a permittivitás értéke frekvenciafüggő.

II.5. Flexoelektromosság

Az (5) egyenletben láthatóan mind a mágneses, mind a dielektromos járulék kvadratikus, a tér négyzetétől függ. Lineáris kölcsönhatás akkor lenne lehetséges, ha a közeg a külső tér hiányában is rendelkezne (spontán) mágnesezettséggel vagy polarizációval. Bár önmagukban ferromágneses folyadékkristályokat nem ismerünk, ferromágneses nanorészecskékkel adalékolt nematikus folyadékkristályok (ferronematikusok) esetén a lineáris mágneses kölcsönhatás is szerepet játszhat [7, E18]. Ferroelektromosság viszont több folyadékkristály fázisban is előfordulhat: pl. a királis molekulákból álló csavart szmektikus C (SmC*) fázis [8], sőt a tükörszimmetrikus, hajlott törzsű molekulákból álló B_2 banán fázis is rendelkezik spontán polarizációval [9].

A nematikus fázis szimmetriái ugyan a ferroelektromosságot kizárják, de lehetővé tesznek egy másik lineáris kölcsönhatást, a flexoelektromosságot [E15]. Meyer 1969-ben mutatta meg, hogy nematikus folyadékkristályban az orientációs deformációk $P_{\rm fl}$ flexoelektromos polarizációt indukálhatnak [10]:

$$\mathbf{P}_{\rm fl} = e_1 \mathbf{n} (\text{div } \mathbf{n}) - e_3 \mathbf{n} \times (\text{rot } \mathbf{n}). \tag{6}$$

Itt e_1 és e_3 a feszítés és a hajlítás deformációkhoz tartozó flexoelektromos együtthatók.

Meyer eredeti modellje szerint [10], ha a molekulák rúd helyett ténylegesen inkább kúp, illetve banán alakúak, akkor a feszítés, illetve hajlítás deformációk megtörik a molekuláris dipólmomentumok irányeloszlásának szimmetriáját, ami nullától különböző eredő polarizációt eredményez (3. ábra). Később Prost és Marcerou bizonyították be, hogy a fenti dipoláris járulék mellett a molekulák kvadrupol momentumából is származtatható



 ábra: Dipólmomentum eredetű flexoelektromosság folyadékkristályokban. Deformáció hiányában a dipólmomentumok kiátlagolódnak. Csepp alakú molekulák feszítés, banán alakú molekulák hajlítás deformációjánál nincs teljes kiátlagolódás, így az eredő polarizáció P ≠ 0.

egy járulék a flexoelektromos polarizációhoz, ami nem követeli meg a molekulák aszimmetrikus alakját [11].

A flexoelektromos polarizáció lineárisan hat kölcsön az elektromos térrel, a releváns szabadenergia így

$$\rho f_{\rm fl} = -\mathbf{P}_{\rm fl} \, \mathbf{E} \tag{7}$$

alakú lesz.

Megjegyezzük, hogy a folyadékkristályok flexoelektromossága a szilárd testek piezoelektromosságával analóg jelenség; mindkettő a mechanika és az elektromosság között teremt lineáris kapcsolatot deformáció által indukált polarizáció, illetve inverz effektusként elektromos térrel indukált deformáció formájában. Lényeges különbség viszont, hogy a piezoelektromosság csak tükörszimmetriával nem rendelkező anyagok sajátja, míg a flexoelektromosság a tükörszimmetrikus nematikus fázisban is létezik.

II.6. Elektromos vezetőképesség

A nematikus folyadékkristályok molekulaszerkezetüknek köszönhetően elvileg szigetelők, a valóságban azonban mindig rendelkeznek véges elektromos vezetőképességgel. A vezetőképesség a bennük található ionokból származik. Az ionok a folyadékkristályba bekerülhettek már a szintézis folyamán, vagy később a határoló felületeken keresztül, illetve keletkezhettek a mintára kapcsolt feszültség (elektromos tér hatására). Az ionos folyamatok miatt a folyadékkristályokat, vezetőképességük precíz leírása érdekében, gyenge elektrolitoknak kellene tekintenünk, ahol a mintára kapcsolt feszültség és a mintán átfolyó áram között bonyolult, nemlineáris kapcsolat áll fenn. A kis elektromos vezetőképesség és a (hangfrekvenciás) váltófeszültségű meghajtás miatt azonban sok esetben kielégítő közelítést jelent, ha a számolások egyszerűsítése érdekében a folyadékkristályokat is ohmos vezetőknek tekintjük, ahol a **J** áramsűrűség és az **E** elektromos tér közötti kapcsolatot a

$$\mathbf{J} = \boldsymbol{\sigma} \mathbf{E}; \quad \boldsymbol{\sigma} = \boldsymbol{\sigma}_{\perp} \mathbf{1} + \boldsymbol{\sigma}_{\mathbf{a}} \mathbf{n} \circ \mathbf{n} \tag{8}$$

összefüggés adja meg. Itt $\boldsymbol{\sigma}$ a szimmetrikus elektromos vezetőképesség tenzor, melynek két független eleme a direktorral párhuzamosan mért σ_{\parallel} és a rá merőlegesen mért σ_{\perp} ; különbségük adja a vezetőképesség $\sigma_{a} = \sigma_{\parallel} - \sigma_{\perp}$ anizotrópiáját.

Az általunk vizsgált anyagokban σ nagyságrendje $10^{-10} - 10^{-7}$ S/m volt, a nagyfelbontású kijelzőkben azonban ennél több nagyságrenddel kisebb vezetőképességű anyagokat használnak.

II.7. A felületi orientáció

A folyadékkristályokat többnyire szilárd, sík határoló lapok közötti vékony $(3 - 50 \ \mu m$ vastag) réteg formájában vizsgáljuk. A folyadékkristályt a kapilláris erők tartják a lapok között. A határoló felületeken a direktor irányát a folyadékkristály molekulák és a felület közötti (anizotrop) kölcsönhatás határozza meg. Kezeletlen felületek esetén a direktor a felületeken kontrollálatlan, véletlenszerű lenne. Ezt elkerülendő általában olyan felület-kezelést használunk, mely egy kívánt irányt kitüntet és ezzel biztosítja, hogy a direktor a felületen mindenhol ebbe a preferált \mathbf{n}_0 irányba álljon be.

A felületi orientáció két alapesete a *planáris* és a *homeotrop*. A planáris orientáció esetén a direktor a felülettel párhuzamosan, meghatározott irányban áll (4a. ábra), míg a homeotrop esetben a direktor a határoló felületre merőleges (4b. ábra) [1]. A ténylegesen alkalmazott felületkezelési módszerekkel ezen ideális geometriákat nem mindig lehet megvalósítani. A leggyakoribb eltérést az okozza, hogy a felületi kitüntetett irány (és ezálta a direktor) a megkívánttól, a módszertől függő mértékben, kissé (< 5° szögben) kidől.

A felületkezelési módszerek egyúttal a felületi kölcsönhatás erősségét is meghatározzák. Ha ez a kölcsönhatás erős, a felületi direktor iránya akkor sem változhat, ha a folyadékkristály réteget deformáljuk. Ha viszont a kölcsönhatás gyenge, a direktor iránya a felületen (a kidőlés nagysága) függ a deformáció mértékétől: minél jobban deformáljuk a folyadékkristály réteget, annál nagyobb lesz a kidőlés.

Planáris orientáció létrehozásához általában a felületetre speciális poliimid bevonatot égetnek rá, majd a kivánt irányban megdörzsölik. Homeotrop orientációhoz a felületet többnyire alkalmas (poláros fejjel és hosszú, apoláros véglánccal rendelkező) felületaktív anyaggal vonják be. A tapasztalatok azt mutatták, hogy a planáris esetben a felületi kölcsönhatás erősnek tekinthető. A homeotrop esetben a kölcsönhatás ugyan gyengébb, de legtöbbször még így is erősként kezelhető.

A folyadékkristály cellák többnyire két, egymással párhuzamos, egyformán kezelt lapot tartalmaznak. Ez biztosítja, hogy a direktor iránya a folyadékkristály rétegen belül is ugyanaz legyen, mint a határoló felületen, vagyis a cella homogén legyen. Egyes esetekben homogén minta helyett adott módon deformált mintára lehet szükség. A csavart nematikus kijelzőben például mindkét határoló lap planárisan orientált, de a kitüntetett irányaik egymásra merőlegesek, így csavardeformáció van jelen. A hibrid cellákban az egyik lap planáris, a másik pedig homeotrop, ami feszítés és hajlítás deformációk szuperpozícióját eredményezi. Ilyen hibrid cellák a flexoelektromos együtthatók mérésénél lehetnek hasznosak [12, 13].

II.8. Viszkozitás

A folyadékkristályok anizotrópiája a viszkózus tulajdonságokban is tetten érhető. Az áramlási viszkozitás mértéke a direktor, az áramlási sebesség és a sebességgradiens kölcsönös irányától függ. Ráadásul folyadékkristályokban nemcsak áramlási viszkozitásról, hanem a direktor forgása esetén fellépő rotációs viszkozitásról is beszélhetünk. A nematikus folyadékkristályok II.10-ben bemutatandó kontinuum elmélete hat áramlási ($\alpha_1, ..., \alpha_6$) és két rotációs (γ_1, γ_2) viszkozitási együtthatót használ, melyek közül azonban csak öt független [1,14]. Rúd alakú molekulák esetén e viszkozitási együtthatók nagyságrendje ~ 10^{-3} Pa s (a vízéhez hasonló).

II.9. Optikai tulajdonságok

A nematikus folyadékkristályok optikai tulajdonságai az egytengelyű kristályokéhoz hasonlók [1]. A hengerszimmetria miatt a direktor egyúttal az (egyetlen) optikai tengely, a törésmutató felület pedig egy forgásellipszoid. Következésképpen, ha a fény nem az optikai tengely irányában halad, felbomlik két egymásra merőlegesen polarizált nyalábra, melyek eltérő sebességgel terjednek, azaz a folyadékkristályokban a törésmutató polarizációfüggő és ezen anyagok kettőstörők. A **k** fényterjedési irány és az **n** direktor által kifeszített síkra merőleges (ordinárius) polarizáció esetén a törésmutató n_0 , míg az ebben a síkban fekvő (extraordinárius) polarizáció esetén a fénypolarizáció és a direktor közötti θ szögtől függően az n_{θ} törésmutató

$$n_{\theta} = n_{\rm o} \sqrt{\frac{1}{1 - \frac{n_{\rm e}^2 - n_{\rm o}^2}{n_{\rm e}^2} \cos^2 \theta}}; \quad n_{\rm o} \le n_{\theta} \le n_{\rm e}, \tag{9}$$

ahol n_e a $\theta = 0$ esetén mérhető extraordinárius törésmutató. A mintára merőlegesen beeső, z irányban haladó, λ hullámhosszú fény esetén a kétféleképpen polarizált fénynyaláb között így

$$\Phi = \frac{2\pi}{\lambda} \int (n_{\theta} - n_{\rm o}) dz \tag{10}$$

fáziskülönbség jelenik meg. A törésmutatók értéke tipikusan az 1,4–1,9 tartományba esik. Rúd alakú molekulákból felépülő nematikus folyadékkristályokban $n_e > n_0$ mindig teljesül, míg az $n_a = n_e - n_0$ törésmutató anizotrópia értéke a folyadékkristály kémiai szerkezetétől függően 0,05 és 0,3 között van.

A folyadékkristályokban a fényelnyelés mértéke általában nagyon kicsi, így azt a továbbiakban mindig elhanyagoljuk.

II.10. A nematikus folyadékkristályok kontinuum elmélete

Mint azt a II.3. fejezetben már említettük, a határoló felületek közé zárt, külső terek hatásának kitett folyadékkristályban a direktor helyfüggővé válhat. Minthogy a deformációk tipikus karakterisztikus távolsága a molekuláris méreteket nagyságrendekkel meghaladja, kontinuum leírást alkalmazhatunk. Az elektromosan szigetelőnek tekintett nematikus (és koleszterikus) folyadékkristályok kontinuum elméletét a közönséges folyadékok hidrodinamikai leírásának az orientációs szabadsági fokokat is figyelembe vevő továbbfejlesztésével Ericksen és Leslie alkották meg az 1960-as évek végén [15-20]. A közeget jellemző független változóknak az $\mathbf{n}(\mathbf{r})$ direktorteret, a $\mathbf{v}(\mathbf{r})$ sebességteret és a $T(\mathbf{r})$ hőmérsékletteret, valamint ezek idő- és térderiváltjait választották. A szokásos függő változók (pu belső energiasűrűség, ρs entrópiasűrűség, $\rho f = \rho u - T \rho s$ szabadenergia-sűrűség, **q** hőáramsűrűség, σ feszültségtenzor) mellett a direktorhoz kapcsolódó új mennyiségeket (π "direktor feszültségtenzor", G és g "direktor erők") vezettek be és a szokásos, a tömegre, impulzusra, impulzusmomentumra és energiára vonatkozó mérlegegyenleteket kiegészítették analógiákra épülő megfontolások alapján a "direktor impulzus" mérlegével. Végül megadták a függő és független változókat összekapcsoló, a rendszer szimmetriáinak megfelelő legáltalánosabb alakú anyagegyenleteket.

A kontinuum elmélet keretében a legegyszerűbb feladat a külső terekkel indukált izoterm, statikus deformációk (az egyensúlyi végállapot) meghatározása. Ez esetben, tisztán reverzibilis jelenségről lévén szó, a rendszer teljes szabadenergiáját – az (1), (5) és (7) egyenletekkel megadott rugalmas, dielektromos, mágneses és flexoelektromos járulékok összegét – kell felírni. A deformált állapothoz tartozó direktorteret e szabadenergiának a határfeltételeket figyelembe vevő minimalizálásával kaphatjuk meg.

Amennyiben időbeli változásokra vagy hőmérsékletgradiens és anyagáramlás hatására is kíváncsiak vagyunk, az irreverzibilis folyamatok miatt a fenti feltételek nem teljesülnek, és a kontinuum elmélet teljes eszköztárát kell használnunk. A rendszer alapvető irreverzibilis folyamatai a direktor relaxáció, az anyagáramlás és a hővezetés, amiket véges elektromos vezetőképesség esetén az elektromos áram egészít ki. E folyamatok közötti csatolások a rendszer szimmetriáitól függenek. A nematikus folyadékkristályok egyik jellemző tulajdonsága a direktor relaxáció és az anyagáramlás közötti kapcsolat. Ez az időben változó direktor által indukált áramlásban, illetve áramlással létrehozott direktor orientációban nyilvánul meg. A tükörszimmetria miatt nematikus folyadékkristályban e folyamatok és az elektromos vagy hővezetés között nem lehet csatolás. Ezzel szemben a tükörszimmetriával nem rendelkező koleszterikus fázisban már lehetséges a mechanikai és termikus jelenségek közötti termomechanikai csatolás [19–22].

ÉBER NÁNDOR

III. fejezet

Instabilitások és mintázatképződés folyadékkristályokban

Ha egy komplex rendszert alkalmas erősségű külső hatással gerjesztünk, a rendszer instabillá válhat és egy új, deformált állapotba kerül. A gerjesztésre adott válaszként létrehozott ezen deformált állapotot hívjuk *mintázatnak*, az ezt előidéző folyamatot pedig *mintázatképződésnek* [23]. A mintázatképződés a természetben és mindennapi életünkben gyakran előforduló folyamat, mellyel a fizikán kívül számos más tudományterületen (kémia, biológia, etológia, szociológia, pénzügyek, közlekedés, ...) is találkozhatunk.

A fizikában a mintázatképződés méret- és időskálája, a spirálgalaxisoktól a homokdűnéken és vízhullámokon át a hópelyhekig, tág határok között változhat. Az instabilitást előidéző külső hatások között megtaláljuk többek között az elektromos és mágneses tereket, a hőmérsékletgradienst, a nyíróáramlást vagy a tömegvonzást.

A folyadékkristályok különösen gazdagok mintázatképző jelenségekben [24]. Egyrészt az izotrop közegekben megfigyelt instabilitások (pl. megszilárdulás, Rayleigh–Bénard-konvekció) léteznek a folyadékkristályokban is, csak jellemzőik változnak az eltérő szimmetriák miatt. Másrészt olyan instabilitások is előfordulhatnak bennük, melyek a folyadékkristályok anizotrópiájának a következményei, mint például a jelen disszertáció témáját képező *elektrokonvekció* [25].

Az instabilitás lehet felületi, amennyiben két különböző közeg (viszkózus ujjasodás) vagy egy közeg két fázisának (megszilárdulás) határfelületén történik, míg a tömbi instabilitások esetén (pl. elektrokonvekció) az instabilitás a teljes térfogatban bekövetkezik [E1]. A továbbiakban csak ezen utóbbi esettel foglalkozunk majd, ezen belül is csak az elektromos térrel keltett instabilitásokkal [E25].

A mintázatok általában akkor jelennek meg, ha a gerjesztés (esetünkben az elektromos tér, illetve a mintára kapcsolt elektromos feszültség) mértéke meghalad egy küszöbértéket. A morfológiákat tekintve igazi sokféleséget tapasztalhatunk. Az instabilitás során kialakuló deformáció lehet a minta síkjában homogén, térben (és/vagy időben) periodikus, de akár kaotikus is. A térben periodikus mintázatok egymással párhuzamos csíkok sorozataként jelennek meg, melyeket a **q** hullámvektorukkal jellemezhetünk. A homogén deformáció így a **q** = 0 speciális esetnek is tekinthető.

A folyadékkristály mintázatok kísérleti szempontból kedvező méret- és időskálával

rendelkeznek. A vizsgálatokat $d = 3-100 \,\mu\text{m}$ vastag, kb. $1-2 \,\text{cm}^2$ területű folyadékkristály rétegen lehet elvégezni, melynek karakterisztikus ideje néhány 100 ms nagyságrendű. A folyadékkristályok átlátszók, optikai anizotrópiájuk (kettőstörésük) miatt a mintázatok vizuális megfigyelése polarizációs mikroszkóppal könnyen megtörténhet.

Itt kívánjuk megjegyezni, hogy különböző rendszerek változatos külső hatásoknak megfelelő gerjesztések és azok eredményeként eltérő fizikai mechanizmusok révén megvalósuló deformációk dacára is képesek nagyon hasonló morfológiájú mintázatok megjelenítésére (pl. Rayleigh-Bénard konvekció folyadékokban, elektrokonvekció és áramlási instabilitások nematikus folyadékkristályokban). Egy adott morfológiát eredményező mintázatképződésnek vannak olyan általános törvényszerűségei, melyek a tényleges mintázatképző mechanizmusoktól már szinte függetlenek (pl. a küszöb feletti, de a küszöbhöz közeli viselkedésre vonatkozó amplitudó egyenletek univerzálisak, csak a bennük található együtthatók értéke specifikus) [23]. A folyadékkristályok a mintázatok könnyű kelthetősége és megfigyelhetősége révén szinte ideális modell rendszernek tekinthetők ezen általános törvényszerűségek vizsgálatára.

III.1. Freedericksz-átmenet

A nematikus folyadékkristály réteg külső térrel keltett instabilitásának alapesete a térrel indukált homogén deformáció. Tekintsünk egy *d* vastagságú nematikus réteget, melynek az x - y síkkal párhuzamos határoló lapjain az erős felületi kölcsönhatás következtében a direktor \mathbf{n}_0 irányú és tegyük ki e réteget **H** mágneses tér hatásának. Amennyiben \mathbf{n}_0 nem egyezik meg a térben preferált \mathbf{n}_H direktor iránnyal (II.4. fejezet), a réteg belsejében a direktor \mathbf{n}_0 -tól \mathbf{n}_H felé kitérül. A kitérülés az x - y síkban homogén, vagyis csak *z*-től függ. Ha $\mathbf{n}_0 \perp \mathbf{n}_H$, a deformáció csak akkor következik be, ha a mágneses tér meghalad egy H_F küszöbértéket. Ezt a küszöbtér átlépésekor bekövetkező jelenséget hívjuk felfedezője után Freedericksz-átmenetnek [1, 6, 26].

Freedericksz-átmenetet elektromos térrel, pontosabban a mintára kapcsolt U elektromos feszültséggel is létre lehet hozni [1, 6, E25]. A mágneses és az elektromos Freedericksz-átmenetek között mindazonáltal nincs teljes analógia. A div $\mathbf{B} = 0$ és div $\mathbf{D} = 0$ Maxwell-egyenletek miatt a mintában \mathbf{B} és \mathbf{D} egyaránt z-független. Míg a nagyon kicsi mágneses szuszceptibilitás anizotrópia miatt a mágneses tér is gyakorlatilag állandónak tekinthető, az egységnyi nagyságrendű permittivitás anizotrópia következtében \mathbf{E} erősen függ a direktortól és ezáltal z-től. Így bár a kontinuum elmélet segítségével kiszámolható H_F küszöbtér és az U_F küszöbfeszültség formulák hasonlóak, a küszöböt meghaladó $H > H_F$ tér, illetve $U > U_F$ feszültség esetén kialakuló $\mathbf{n}(z)$ direktor eloszlás eltérő lesz.

Az E, illetve H terek és \mathbf{n}_0 kölcsönös irányától, valamint a χ_a ill. ε_a anizotrópiák előjelétől függően a Freedericksz-átmenet többféle geometriában is bekövetkezhet. Az értekezés szempontjából a 4. ábrán bemutatott két geometria releváns.

A 4a. ábrán pozitív anizotrópiájú ($\chi_a > 0$, $\varepsilon_a > 0$) nematikus folyadékkristállyal töltött planáris ($\mathbf{n}_0 \parallel \mathbf{x}$) mintára adunk a határoló felületekre (elektródákra) merőleges mágneses vagy elektromos teret ($\mathbf{H}, \mathbf{E} \parallel \mathbf{z}$). A küszöb felett a direktor, a határoló felületeket kivéve, az x - z síkban elfordul, a maximális elfordulás a réteg közepén következik be. Nagy terek

esetén a minta kvázi-homeotrop állapotba kerül (a felületek közvetlen környékén kívül a direktor a felületekre merőlegesen áll). E geometriában a küszöbhöz közeli gerjesztésnél a feszítés deformáció dominál, így a küszöbteret, illetve a küszöbfeszültséget a

$$H_{\rm F} = \frac{\pi}{d} \sqrt{\frac{K_1}{\mu_0 \chi_{\rm a}}}; \quad U_{\rm F} = \pi \sqrt{\frac{K_1}{\varepsilon_0 \varepsilon_{\rm a}}} \tag{11}$$

formulák adják meg [1,6].



4. ábra: Küszöb alatti és küszöb feletti direktoreloszlás a Freedericksz-átmenet két lehetséges geometriájában. (a) pozitív dielektromos (ε_a > 0) és mágneses (χ_a > 0) anizotrópiájú planáris (n₀ || x) nematikus folyadékkristály merőleges elektromos (E || z) és/vagy mágneses (H || z) térben; (b) negatív dielektromos (ε_a < 0), de pozitív mágneses (χ_a > 0) anizotrópiájú homeotrop (n₀ || z) nematikus folyadékkristály merőleges elektromos (E || z) és/vagy párhuzamos mágneses (H || x) térben.

A 4b. ábrán negatív dielektromos anizotrópiájú ($\varepsilon_a < 0$) nematikus folyadékkristállyal töltött homeotrop ($\mathbf{n}_0 || \mathbf{z}$) mintára adunk a határoló elektródákra merőleges elektromos teret ($\mathbf{E} || \mathbf{z}$). A homeotrop orientáció az x - y síkban degenerált (nincs kitüntetett azimutális iránya). A küszöb feletti deformáció ezúttal is a határoló felületekre merőleges síkban történik, de e síknak az x tengellyel bezárt szöge véletlenszerűen választódik ki, következésképpen az x - y síkban helyről helyre változhat. Hasonló deformáció történik, ha pozitív mágneses anizotrópiájú ($\chi_a > 0$) nematikus folyadékkristályra adunk a felülettel párhuzamos mágneses teret ($\mathbf{H} || \mathbf{x}$), csak itt a kihajlás irányát már a mágneses tér definiálja. Nagy terek esetén a minta kvázi-planáris állapotba kerül (a felületek közvetlen környékén kívül a direktor a felületekkel párhuzamos lesz). E geometriában a küszöbhöz közeli gerjesztésnél a hajlítás deformáció dominál, így a küszöbtér, illetve a küszöbfeszültség a

$$H_{\rm F} = \frac{\pi}{d} \sqrt{\frac{K_3}{\mu_0 |\chi_{\rm a}|}}; \quad U_{\rm F} = \pi \sqrt{\frac{K_3}{\varepsilon_0 |\varepsilon_{\rm a}|}} \tag{12}$$

formulák szerinti lesz [1,6].



5. ábra: Flexodomén pillanatfelvételek $d = 6 \ \mu m$ vastagságú 7P-CF₂O-ODBP folyadékkristály esetén (a) a küszöb közelében, (b) jóval a küszöb felett [E25, E26].

Mindkét bemutatott geometriában az elektromos és a mágneses tér ugyanolyan irányú direktor kihajlást hoz létre, így együttes alkalmazásuk egymás hatását erősíti. Ennek következtében a Freedericksz-átmenet már olyan $U < U_F$, $H < H_F$ kombinációnál kialakulhat, melyre a

$$\left(\frac{H}{H_{\rm F}}\right)^2 + \left(\frac{U}{U_{\rm F}}\right)^2 = 1 \tag{13}$$

feltétel teljesül.

Később, a III.3.4. fejezetben látni fogjuk, hogy a Freedericksz-átmenet - a geometriától és az anyagi paraméterek kombinációjától függően - megteremtheti az elektrokonvekció kialakulásának feltételeit, vagy épp ellenkezőleg, meggátolja az elektrokonvekciót.

Megjegyezzük, hogy a folyadékkristály kijelzők, képernyők többségében a megjelenítés fizikai alapját a Freedericksz-átmenet valamely változata biztosítja.

III.2. Flexoelektromos domének

Megfelelő tartományba eső anyagi paraméterekkel rendelkező folyadékkristályokban a mintára kapcsolt feszültség, a Freedericksz-átmenetnek megfelelő homogén direktor elfordulás helyett, térben periodikus deformációt indukál [27–29, E25, S8]. A polarizációs mikroszkópban e deformáció váltakozva sötét és világos, a kezdeti \mathbf{n}_0 direktor iránnyal párhuzamos, csíkokként jelenik meg ($\mathbf{q} \perp \mathbf{n}_0$, 5. ábra). A mintázat egyenfeszültségű és alacsony frekvenciájú (f < 5 Hz) váltófeszültségű meghajtás esetén figyelhető meg.

Bár a periodikus deformáció megnöveli a rendszer ρf_r rugalmas és ρf_e dielektromos szabadenergiáját, egyúttal flexoelektromos polarizációt indukál. Amennyiben az ebből adódó $\rho f_{\rm fl}$ flexoelektromos szabadenergia-nyereség meghaladja a ($\rho f_r + \rho f_e$) növekményt – ami akkor következhet be, ha a feszültség meghalad egy $U_{\rm fl}$ kritikus értéket – összességében a deformált állapot kisebb szabadenergiával fog rendelkezni a deformálatlannál. E jelenség tehát a flexoelektromosság következménye, ezért e mintázatot flexoelektromos doménnek (röviden flexodomén, FD) hívjuk.

A fenti mechanizmusra Bobylev és Pikin mutattak rá először [30,31]; az egy-rugalmasállandó közelítésben ($K_1 = K_2 = K_3 = K$) meghatározták egyenfeszültségű meghajtás esetére a mintázat $U_{\rm fl}$ küszöbfeszültségét és $q_{\rm fl}$ hullámszámát:

$$U_{\rm fl} = \frac{2\pi K}{|e_1 - e_3|(1+\mu)}, \quad q_{\rm fl} = \frac{\pi}{d} \left(\frac{1-\mu}{1+\mu}\right)^{1/2}.$$
 (14)

Mindkét mennyiség a

$$\mu = \frac{\varepsilon_0 \varepsilon_a K}{(e_1 - e_3)^2} \tag{15}$$

anyagi paraméter-kombinációtól függ. A követelmény, hogy a $q_{\rm fl}$ hullámszám valós legyen, a $|\mu| < 1$ megkötést jelenti a μ paraméter értékére. E feltétel olyan anyagoknál teljesülhet, melyek kis dielektromos anizotrópiával és a flexoelektromos együtthatók minél nagyobb $|e_1 - e_3|$ különbségével rendelkeznek. Ez egyúttal magyarázatot ad arra is, hogy miért csak kevés nematikus folyadékkristályban figyeltek meg flexodoméneket. Ugyanis az új folyadékkristályok előállítását jórészt a kijelzőipar követelményei motiválják, márpedig a kijelzőkhöz elsősorban nagy (pozitív vagy negatív) dielektromos anizotrópiájú nematikus folyadékkristályokra van szükség.

Az elméleti leírás kiterjesztése anizotróp rugalmasság ($K_1 \neq K_2 \neq K_3$) és váltófeszültségű meghajtás esetére a közelmúltban történt meg [32]. Általános analitikus megoldás nem volt származtatható, az $U_{\rm fl}$ és $q_{\rm fl}$ értékeket az anyagi paraméterek ismeretében numerikusan lehet kiszámolni. A szimulációk egyrészt megmutatták, hogy az a μ tartomány, mely esetén a flexodomének kialakulhatnak, korlátos, de határai a rugalmas állandók anizotrópiájától függenek és a μ = 0-hoz képest nem szimmetrikusak. Másrészt kiderült, hogy a küszöbfeszültség a frekvenciával gyorsan növekszik, ami indokolja, hogy miért csak alacsony frekvenciáknál láthatunk flexodoméneket.

A flexodomének a küszöböt jóval meghaladó feszültségeknél is észlelhetők. A megfigyelések szerint a hullámszám a feszültséggel lineárisan növekszik [E20,E24,E26], összhangban az elméleti leírás nemlineáris kiterjesztése által jósolt viselkedéssel [E30].

III.3. Elektrokonvekció

A Freedericksz-átmenet és a flexodomének esetében az $\mathbf{n}(\mathbf{r})$ direktortér ismerete önmagában elegendő a mintázat jellemzéséhez, a feszültség rákapcsolása után kialakuló stacionárius végállapot egy reverzibilis deformációnak felel meg. Más mintázatoknál azonban disszipatív folyamatok is szerepet kapnak. E mintázatok egyik példája a jelen értekezés tárgyát képező elektrokonvekció, melynek során a direktortér torzulásával anyagáramlás (konvekció) is együttjár. E jelenséget először az 1930-es években figyelték meg [33] és ez szolgált az 1960-as évek végén a dinamikus szórás elvén működő, első generációs folyadékkristály kijelzők alapjául [34].

Az elektrokonvekció (EC) a flexodoméneknél sokkal gyakrabban (több folyadékkristályban) előforduló, átfogó jelenségcsalád, mely különböző keletkezési mechanizmusú és változatos morfológiájú mintázatokat foglal magába [E2,E25]. A mechanizmusok egy része (pl. a következő III.3.1. fejezetben tárgyalt Carr–Helfrich-mechanizmus) jól ismert és precíz elméleti leírással rendelkezik, míg mások még feltérképezésre és elméleti kidolgozásra várnak. A kialakuló mintázatok többnyire csíkokból (áramlási hengerekből) állnak, de esetenként kétdimenziós (négyszög- vagy hexagonális) rácsok, lokalizált deformációk (férgek, máltai keresztek, dendritek), turbulens áramlás (dinamikus szórás) és topológiai hibákat (diszklinációkat és/vagy diszlokációkat) is tartalmazó komplex struktúrák is megfigyelhetők.

Az, hogy egy adott nematikus folyadékkristályban előfordulhat-e elektrokonvekció, és ha igen, akkor milyen morfológiával, három paramétercsoporttól függ:

- 1. a mérőcella paraméterei: a d mintavastagság és az \mathbf{n}_0 kezdeti direktor orientáció iránya;
- a folyadékkristály anyagi jellemzői: a dielektromos permittivitások (ε_⊥ és ε_{||}) és a dielektromos anizotrópia (ε_a = ε_{||} ε_⊥), az elektromos vezetőképességek (σ_⊥ és σ_{||}) és a vezetőképesség anizotrópiája (σ_a = σ_{||} σ_⊥), a három rugalmas állandó (K₁, K₂, K₃), a hat viszkozitás (α₁, ..., α₆), a két flexoelektromos együttható (e₁ and e₃), stb. [1];
- 3. a kontroll paraméterek: a mintára kapcsolt U elektromos feszültség nagysága, e feszültség jelalakja (ami lehet konstans, szinuszos, négyszögjel, stochasztikus vagy ezek kombinációja) és f frekvenciája, valamint egy esetleges külső (pl. mágneses) tér nagysága és iránya. Az értekezésben a továbbiakban váltakozó feszültségű meghajtás alatt szinuszos jelalakot értünk, ahol U a váltófeszültség effektív értéke.

Az elektrokonvekció kutatásának elmúlt évtizedei során számos összefoglaló tanulmány készült, melyek jól reprezentálják a jelenség felderítésének és megértésének különböző fokozatait [6,25,31,35–37,E2,E25,S4,S8]. Az összegyűlt tapasztalatok rámutattak, hogy az elektrokonvekció kialakulása szempontjából az ε_a dielektromos és a σ_a vezetési anizotrópiák előjele kiemelkedően fontos szerepet játszik, ezért célszerű a nematikus folyadékkristályokat ezen előjelek szerint négy csoportra [(+ +), (+ -), (- -) és (- +) anyagokra] osztani. A továbbiakban e jelölésrendszert fogjuk használni, melyben az első előjel a dielektromos permittivitás, a második az elektromos vezetőképesség anizotrópiájára vonatkozik.

III.3.1. A Carr–Helfrich-mechanizmus és az elektrokonvekció standard modellje

Az elektrokonvekció klasszikus példáját, a Williams-doméneket [38], (- +) nematikus folyadékkristály planárisan rendezett vékony rétegében figyelhetjük meg egyen- vagy váltófeszültségű gerjesztés hatására. A mintára kapcsolt U feszültség az x-y síkkal párhuzamos határoló lapokra merőleges, z irányú E elektromos teret hoz létre. Amíg a feszültség kicsi, a kezdeti, homogén állapot megmarad, viszont deformációkkal szemben instabillá válik, ha U meghalad egy U_c kritikus (küszöb-) értéket. A direktornak az x-y síkból történő periodikus kihajlása a törésmutató modulációját okozza, miáltal a mintázat polarizációs mikroszkóppal megfigyelhetővé válik, sötét és világos csíkok sorozatának formájában. Ezen elektrohidrodinamikai instabilitás magyarázatát a Carr [39] és Helfrich [40] által felismert, a 6. ábrán bemutatott visszacsatolási mechanizmus adja meg. Planáris nematikus folyadékkristályban a termikus fluktuációknak köszönhetően mindig vannak jelen infinitezimális térbeli direktor kihajlás modulációk. Deformáció esetén a direktorra az (1)-ből, illetve (5)-ből származó, a deformációmentes alapállapotot visszaállítani szándékozó, rugalmas és dielektromos forgatónyomatékok hatnak. A direktor kidőlése és a folyadékkristály anizotrop ($\sigma_a \neq 0$) elektromos vezetőképessége miatt az elektromos áramnak lesz az **E** térre merőleges komponense is, ami $\rho_e(\mathbf{r})$ tértöltések kialakulásához vezet. Az elektromos térben e töltésekre ható Coulomb-erő anyagáramlást indukál, ami a határoló felületek kényszere miatt örvények formáját ölti. Az örvényáramlás destabilizáló, viszkózus forgatónyomatékot fejt ki a direktorra, ezzel zárva a visszacsatolási hurkot. Ha $U < U_c$, a visszacsatolás negatív, így minden direktor fluktuáció elhal. $U > U_c$ esetén viszont a visszacsatolás pozitívvá válik a fluktuációk kritikus, $\mathbf{q}_c = (q_c, p_c, 0)$ hullámvektorú Fourier-módusa számára, így az véges amplitudójú mintázattá nőhet fel.

Az elektrokonvekciós mintázatok jellemzőinek kiszámításához a fenti elképzelést kellett differenciál-egyenletek formájába átültetni. A változatos EC morfológiák értelmezésére képes, átfogó elméleti modellt évtizedeken át fejlesztették, melynek végeredményét ma az *elektrokonvekció standard modellje* (SM) [41] néven ismerjük. A modell a nematikus folyadékkristályok direktor relaxációját és áramlását leíró kontinuum elméletét (II.10. fejezet) ötvözi a Maxwell-egyenletekkel, feltételezve, hogy a nematikus fázis összenyomhatatlan, véges (kicsi) ohmos elektromos vezetőképességgel rendelkezik és a flexoelektromosság elhanyagolható. A probléma így hat csatolt, nemlineáris, parciális differenciálegyenletre vezet, melyeknek hat független változója: az $\mathbf{n}(\mathbf{r})$ direktortér két független komponense, a $\mathbf{v}(\mathbf{r})$ sebességtér és a $\phi(\mathbf{r})$ elektromos potenciál. A határfeltételek: erős kölcsönhatás a direktor és a határoló felületek között (a direktor iránya a felületen nem változik), nincs csúszás (a sebesség nulla) a felületeken, valamint az elektróda-felületeken



6. ábra: A Carr–Helfrich visszacsatolási mechanizmus. A zöld rudak a nematikus direktort, a fekete körök a nyilakkal az áramlás irányát, a vörös és kék korongok pedig a pozitív (+) és negatív (-) tértöltés felhőket jelölik.

keresztül nincs töltésátadás.

Az egyenletek különböző fizikai folyamatok közötti csatolást írnak le, melyek eltérő időskálán zajlanak. A rendszer dinamikáját így több karakterisztikus időállandóval jellemezhetjük. Ezek a τ_d direktor relaxációs idő, a τ_q töltés relaxációs idő és a τ_v viszkózus relaxációs idő, melyeket rendre a

$$\tau_{\rm d} = \frac{(\alpha_2 - \alpha_3)d^2}{K_1\pi^2}, \quad \tau_{\rm q} = \frac{\varepsilon_0\varepsilon_\perp}{\sigma_\perp}, \quad \text{valamint} \quad \tau_{\rm v} = \frac{2\rho d^2}{\alpha_4}, \tag{16}$$

összefüggések definiálnak [E6, E12, S2].

Tipikus nematikus anyagi paramétereket feltételezve, $d = 20 \ \mu m$ vastag cella esetén, a karakterisztikus idők nagyságrendjei: $\tau_d \sim 1 \text{ s}$, $\tau_q \sim 10^{-3} \text{ s}$ és $\tau_v \sim 10^{-5} \text{ s}$.

III.3.2. Az SM lineáris stabilitás-analízise

Sajnos az SM egyenletei túl összetettek ahhoz, hogy analitikus megoldást kaphassunk. Így a mintázatok jellemzőiről csak további közelítések alkalmazásával szerezhetünk információt. A legkézenfekvőbb feltevés az, hogy a mintázat megjelenésekor (a küszöbnél) a mintázat amplitudója (pl. a maximális direktor kihajlási szög) még nagyon kicsi. Ez teljesül az EC mintázatok többségénél, ahol az amplitudó folytonosan nő nulláról egy véges értékre, ahogy a feszültséget U_c fölé emeljük. Ekkor az egyenletekben a nemlineáris tagokat elhanyagolhatjuk és lineáris stabilitás-analízist végezhetünk el [42]. Leválasztva a változók térben periodikus ($e^{i\mathbf{qr}}$) és időben exponenciálisan növekvő (e^{vt}) részét a megmaradó z- és t-függéstől (melyeket csonkolt Fourier-sorokkal írhatunk le) a differenciálegyenletrendszer a Fourier-együtthatókra vonatkozó algebrai egyenletrendszerré alakítható. A homogén lineáris egyenletrendszer megoldhatósági feltételéből megkaphatjuk a mintázat $v(\mathbf{q}, U)$ növekedési sebességét. Végezetül a $v(\mathbf{q}, U) = 0$ összefüggés definiálja az $U(\mathbf{q})$ neutrális felületet, melynek $U_c(\mathbf{q}_c)$ minimuma szolgáltatja a mintázat U_c küszöbfeszültséget és \mathbf{q}_c kritikus hullámvektorát.

A fenti eljárást alkalmazhatjuk éppúgy egyenfeszültségű ($U = U_{dc}$), mint széles f frekvenciatartományban váltófeszültségű ($U = U_{ac}\sqrt{2}\sin 2\pi ft$) meghajtásnál. Az SM egyenleteinek vizsgálata kimutatta, hogy váltófeszültség esetén két, eltérő időszimmetriájú megoldás létezik. Az ú.n. *vezetési tartományban* $\langle n_z \rangle \neq 0$ (a direktor z irányú n_z komponensének előjele mindkét félperiódusban megegyezik), míg a *dielektromos tartományban* $\langle n_z \rangle = 0$ (n_z félperiódusonként előjelet vált). Itt $\langle \rangle$ a meghajtó feszültség periódusára vett időátlagot jelöli. A dielektromos az egyedüli megoldás, ha f magasabb az f_{cut} , ú.n. *levágási* frekvenciánál. Mindez azt jelenti, hogy – csak a vezető tagokat figyelembe véve – a vezetési EC mintázatokban a direktor dőlésszög-modulációja (és az áramlási sebességé is) stacionárius, míg a tértöltés-moduláció a meghajtó frekvenciával oszcillál. Ezzel szemben a dielektromos EC mintázatokban a direktor és a sebesség oszcillál, míg a tértöltéseloszlás stacionárius.

A küszöbjellemzőkre (U_c és \mathbf{q}_c) közelítő analitikus megoldást csak akkor kaphatunk, ha a z- és t-függést leíró Fourier-sorból csak a vezető tagokat tartjuk meg (egymódusú közelítés) [25,43]. Pontosabb U_c és \mathbf{q}_c értékeket csak numerikus módszerek adhatnak, de ezekhez ismernünk kell a nematikus folyadékkristály anyagi paramétereit. Mindezek figyelembe vételével kijelenthetjük, hogy az SM képes kvalitatív és az anyagi paraméterek kellő pontosságú ismeretében kvantitatív magyarázatot adni az elektrokonvekcióra vonatkozó kísérleti eredményekre a nematikus folyadékkristályok nagy csoportja [a (- +) és a (+ -) anyagok] esetén. Mindezen EC jelenségeket, melyeket az SM magyarázni képes, *standard elektrokonvekciónak* (s-EC) nevezzük. A folyadékkristályok eltérő paraméterekkel rendelkező, másik csoportjára [a (- -) és (+ +) anyagok] az SM nem jósol instabilitást, mégis esetenként beszámoltak ilyen anyagokban előforduló EC mintázatokról is. E jelenségeket, melyek a standard modellel nem magyarázhatók, *nemstandard elektrokonvekciónak* (ns-EC) nevezzük [E2].

III.3.3. Standard elektrokonvekció mint elsődleges instabilitás

A standard elektrokonvekciót mutató anyagok többsége (pl. a p-azoxianizol (PAA) [38], a 4'-metoxibenzilidén-4-n-butilanilin (MBBA) [44], a 4-etil-2-fluor-4-[2-(transz-4-pentilciklohexil)-etil] bifenil (I52) [45], a 4'-n-oktiloxifenil 4-metoxibenzoát (1008) [S7], vagy a Merck Phase 4 (N4) [46], illetve Merck Phase 5/5A (N5/N5A) [47, S1, S5] és a Mischung 5 [48, 49] elegyek) a (- +) nematikus folyadékkristályok csoportjába tartozik. Évtizedekig a kísérletek és a kapcsolódó szimulációk többségét a hangfrekvenciás tartományba eső f frekvenciájú, váltófeszültségű gerjesztés esetén végezték el. Ekkor a meghajtó feszültség T = 1/f periodusideje sokkal kisebb, mint akár a τ_d direktor relaxációs idő, akár a mintázat növekedési/lebomlási időállandója, ami τ_d mellett függ a hullámszámtól [S2] és a $\Delta U = U - U_c$ feszültségtöbblettől [50,51] is. A mintázat stabilizálódása így számos periódus elteltével következik be. A másik, $T > \tau_d$ határesettel a V.3. fejezetben foglalkozunk.

A (- +) anyagból készült planáris mintákban az elektrokonvekció elsődleges instabilitás: a feszültség növelésekor a mintázat közvetlenül a homogén kezdeti állapotból emelkedik ki. A mintázatot konvekciós hengerek alkotják, melyek a mikroszkópban különböző intenzitású (vagy színű) csíkok sorozataként figyelhetők meg.

Az SM-ből (III.3.1. fejezet) következik, hogy a (- +) anyagokban két, eltérő idődinamikájú EC mintázattípus fordulhat elő; az f_{cut} levágási frekvencia alatti frekvenciáknál mindkét típus megvalósulhat. A mintázat küszöbjellemzői, azaz az $U_c(f)$ küszöbfeszültség és a $\mathbf{q}_c(f)$ kritikus hullámvektor, a két típusnál különböznek. Alacsonyabb frekvenciákon, a vezetési tartományban, $U_c(f)$ meredeken, divergenciaszerűen emelkedik a frekvenciával. Nagyobb f esetén, a dielektromos tartományban, a küszöbfeszültség frekvenciafüggése gyengébb, $U_c(f) \propto \sqrt{f}$. Következésképpen létezik egy f_c átváltási frekvencia, ahol a két $U_c(f)$ görbe metszi egymást. Ez az átváltási frekvencia általában f_{cut} 60–80%ának felel meg. $f < f_c$ esetén a vezetési hengerek (7a. és 7b. ábrák), míg az $f > f_c$ esetben a dielektromos hengerek (7c. és 7d. ábrák) küszöbe alacsonyabb (lásd a 8. ábrát). A frekvencia növelésével így *vezetési hengerek – dielektromos hengerek* átalakulást idézhetünk elő. Ez az átalakulás a mintázat Λ hullámhosszának ugrása révén könnyen észrevehető : a vezetési tartományban Λ körülbelül a d mintavastagságnak felel meg, míg a dielektromos tartományban a hullámhosszat az anyagi paraméterek definiálják a mintavastagságtól függetlenül. Ha d a szokásos 10–100 μ m tartományba esik, a dielektromos mintázathoz tartozó Λ (tipikusan 3–4 μ m) sokkal kisebb, mint a vezetési EC mintázaté. Az $f = f_c$ esetben a két mintázat együtt létezhet, akár egymás melletti doménekben, akár ugyanazon helyen szuperponáltan [S6].



7. ábra: Küszöbhöz közeli, standard EC pillanatfelvételek planáris (- +) nematikus fázisú mintákon [E25]: (a) vezetési ferde hengerek (1008, $d = 11 \ \mu$ m); (b) vezetési merőleges hengerek (N5, $d = 12 \ \mu$ m); (c) dielektromos ferde hengerek (1008, $d = 11 \ \mu$ m); (d) dielektromos merőleges hengerek (N5, $d = 11.4 \ \mu$ m). A kettős nyilak a kezdeti **n**₀ direktorirányt jelölik.

Az átváltásnál a mintázat idődinamikája is változik. Bár hangfrekvenciás gerjesztésnél a periódusidőn belüli időbeli változásokat szabad szemmel nem tudjuk követni, ezt megtehetjük gyors kamerával [48,S6] vagy a mintázaton szóródó fény intenzitásának mérésével [E12].

A konvekciós hengerek lehetnek a kezdeti direktorirányra merőlegesek (merőleges hengerek, normal rolls, NR, $\mathbf{q} \parallel \mathbf{n}_0$, 7b. és 7d. ábrák) vagy a merőlegeshez képest elfordulhatnak egy α szöggel [ferde hengerek, oblique rolls, OR, 7a. és 7c. ábrák). Az utóbbi esetben a két lehetséges elfordulási irány degenerált, ami gyakran cikk-cakk szerkezetet eredményez. A ferde hengereket általában alacsony frekvencián figyelhetjük meg; fnövelésével az $|\alpha|$ ferdeségi szög monoton csökken, nagyjából az $|\alpha| \propto \sqrt{f_L - f}$ összefüggést követve. A ferde hengerek – merőleges hengerek átalakulás az f_L Lifshitz-pontnál következik be (itt α nullává válik). Hangsúlyoznunk kell, hogy a $|\mathbf{q}|$ hirtelen változásával járó átváltás a vezetési és a dielektromos tartományok között független az α változásával járó, OR - NR átmenettől; f_c és f_L az anyagi paraméterek más-más kombinációjától függenek. Ezért, bár a Lifshitz-pont szinte mindig a vezetési tartományba esik *vezetési OR*



8. ábra: Planáris (- +) nematikus folyadékkristályok elektrokonvekciójának tipikus, sematikus morfológiai fázisdiagramja (az EC $U_c(f)$ küszöbfeszültségének frekvenciafüggése).

 vezetési NR átalakulást eredményezve (ahogy azt például a 8. ábra morfológiai fázisdiagramja is mutatja), ez nem szükségszerű. A közelmúltban az N4 elegyben dielektromos OR – dielektromos NR [46], illetve az 1008 anyagban vezetési OR – dielektromos OR – dielektromos NR [57] átalakulási szekvenciát is sikerült kimutatni.

Az SM keretében számolt $U_c(f)$ és $\mathbf{q}_c(f)$ függvények mindkét EC típus esetén jó egyezést mutatnak a fent összegzett kísérleti eredményekkel.

A 8. ábrán a vezetési EC frekvenciatartomány f_c -hez közeli részét sraffozással jelöltük. Esetenként e frekvenciáknál a konvekciós hengerek nem stacionárisak, hanem a hengerekre merőlegesen, mindkét irányban haladnak [50,52–54]. Hogy ilyen *haladó hullámok* (traveling waves) létezhetnek-e, az anyagtól és a mintavastagságtól egyaránt függ. A legkisebb frekvencia ahol haladó hullámok még előfordulhatnak, nincs közvetlen kapcsolatban a Lifshitz-ponttal, így haladó ferde hengereket és haladó merőleges hengereket egyaránt megfigyeltek. A haladó hullámok a Hopf-bifurkáció (a mintázat növekedési sebességének képzetes része is van) egyik kísérleti megvalósulását jelképezik [55]. Bár a mintázatok haladó jellegét az SM nem képes magyarázni, az SM-ből kapott $U_c(f)$ és $q_c(f)$ függések a kísérletekkel jó egyezést mutatnak. A jelenség értelmezéséhez az SMnek az ionos jelenségeket is figyelembe vevő kiterjesztésére volt szükség, amit gyenge elektrolit modellnek (weak electrolyte model, WEM) hívunk [56]. E témával bővebben foglalkozunk a V.1. fejezetben.

Meg kell említsük, hogy standard elektrokonvekció elsődleges instabilitásként nem csak planáris (- +) nematikus folyadékkristályokban fordul elő. A Carr–Helfrich-mechanizmus akkor is érvényesülhet, ha az anizotrópiák előjelét és a kezdeti direktorirányt egyaránt megváltoztatjuk, azaz homeotrop (+ -) anyagot használunk [1]. A két eset között azonban van egy elvi szimmetriakülönbség. A planáris (- +) mintákban a határoló felületek síkjában az egyik irány kitüntetett, azaz a kezdeti állapot két dimenzióban is anizotrop. Ezzel szemben, a homeotrop (+ -) mintákban a direktor a határoló felületekre merőleges, vagyis e felületekkel párhuzamos bármely irány ekvivalens és ezáltal a kezdeti állapot két dimenzióban izotrop. Ez azt jelenti, hogy az anizotrop mintázatnak közvetlenül az izotrop kezdeti állapotból kell kifejlődnie, következésképpen a mintázat várhatóan rendezetlen lesz. A (+ -) anyagok ritkák, így csak kevés kísérleti adat áll rendelkezésre [57,58]. Mindazonáltal a megfigyelt mintázat morfológiákat (melyek különböznek a fentebb bemutatottaktól) az SM keretében végzett szimulációk sikeresen reprodukálták. Minthogy a (+ -) nematikus folyadékkristályok nem képezik a jelen disszertáció tárgyát, e mintázatok részletezését mellőzzük.

III.3.4. Standard elektrokonvekció mint másodlagos instabilitás

Homeotrop (-+) nematikus folyadékkristályban a Carr-Helfrich-mechanizmus nem eredményez destabilizáló forgatónyomatékot; ennélfogva, ebben a geometriában, a kezdeti állapotból nem lehetséges közvetlen átmenet az elektrokonvekcióba. A negatív dielektromos anizotrópia ugyanakkor elsődleges instabilitásként hajlítás típusú Freederickszátmenetetet tesz lehetővé (4b. ábra), ami kváziplanáris (az x-y síkban homogén, de a z irányban deformált) állapothoz vezet, ahol a Carr-Helfrich-mechanizmus ismét működőképes. Az elektrokonvekció így másodlagos instabilitásként, a Freedericksz-átmenet U_F küszöbfeszültségét meghaladó feszültségeknél válik megfigyelhetővé [59–62, S15]. Az elméleti leírásban követhetjük a III.3.2. fejezetben vázolt eljárást, bár az lényegesen komplikáltabbá válik, hiszen egy már deformált Freedericksz-állapotnak kell a periodikus modulációkkal szembeni stabilitását analizálni [63]. A megfigyelhető mintázat morfológiák és azok frekvenciával indukált átalakulásai megegyeznek a III.3.3. fejezetben planáris mintáknál bemutatottakkal: vezetési és dielektromos típusok, ferde (9a. és 9b. ábrák) és merőleges (9c. és 9d. ábrák) hengerek egyaránt előfordulhatnak. Így a 8. ábra sematikus morfológiai fázisdiagramként szolgálhat a homeotrop (-+) nematikus folyadékkristályok esetén is, egy korrekcióval: az EC küszöbgörbék alá be kell húzni egy vízszintes, a frekvenciafüggetlen Freedericksz-küszöböt jelképező vonalat.

Bár a kezdeti, homeotrop állapot két dimenzióban izotrop, e szimmetria már a Freedericksz-átmenet során sérül; így, ellentétben a III.3.3. fejezetben említett homeotrop (+ -) esettel, a mintázat már anizotrop háttéren fejlődik ki. A direktor kidőlésének azimutális iránya azonban a Freedericksz-átmenetkor véletlenszerűen választódik ki. Ez egy lágy módus: az azimutszög térben és időben egyaránt változhat. Ezáltal az EC mintázatok is rendezetlenek, kaotikusak (9a. és 9c. ábrák). Ez a mintázatképződés a téridő káoszba történő közvetlen átalakulás egyik, lágy módusú turbulencia (soft mode turbulence) néven is ismert példája [64–69].

A homeotrop rendezettségből adódó azimutális degenerációt megszüntethetjük a határoló felületekkel párhuzamosan alkalmazott kis **H** mágneses tér segítségével [61, 64, 70, 71]. Elméletileg már egy infinitezimális **H** is elegendő lenne a degeneráció eltüntetésére és a **H**-val párhuzamos irány kitüntetésére. A gyakorlatban a Freedericksz-átmenet $H_{\rm F}$ mágneses küszöbtere harmadának megfelelő H ($d = 26 \,\mu$ m vastag N5A minta esetén $B \approx 100$ mT) válhat szükségessé a véletlenszerű orientációs hibák elnyomására és az EC mintázat rendezésére (9b. és 9d. ábrák).

A planáris (+ -) mintákban a standard EC szintén csak másodlagos instabilitásként fejlődhet ki. Ez esetben a mintára adott feszültség először egy feszítés típusú Freederickszátmenetet indukál (4a. ábra), majd az EC e torzult, kvázihomeotrop Freedericksz-állapot-



9. ábra: Küszöbhöz közeli, standard EC pillanatfelvételek homeotrop (-+) mintán (MBBA, $d = 50 \ \mu m$) [E25]: (a) rendezetlen vezetési ferde hengerek; (b) síkbeli **H** mágneses térrel rendezett ferde hengerek; (c) rendezetlen vezetési merőleges hengerek; (d) síkbeli **H** mágneses térrel rendezett merőleges hengerek. Az **n**₀ kezdeti direktorirány a kép síkjára merőleges.

ból nő ki nagyobb feszültségeknél. Ellentétben a homeotrop (+ -) minták kétdimenziós izotrópiájával, a kvázihomeotrop állapot anizotrop. Így rendezett hengerekből álló mintázatok voltak megfigyelhetők [57, 58, 72, 73].

III.3.5. Küszöb feletti viselkedés és a gyengén nemlineáris közelítés

Az eddig bemutatott mintázatok az elektrokonvekció megjelenésekor látott morfológiák voltak. Ha a feszültséget az U_c küszöbfeszültség fölé növeljük, természetesen azt várjuk, hogy a deformáció amplitudója megnő. Emellett (esetenként helyett) azt tapasztalhatjuk, hogy a mintázat **q** hullámvektora, a rendezettsége, sőt akár a morfológiája is változhat a feszültség növelése hatására.

A csíkszerű mintázatok általános jellemzője, hogy a gerjesztés erősödésekor az eredetileg rendezett mintázat a hibahelyek (diszlokációk, 10a. ábra) megjelenésével szemben instabillá válik. Nem meglepő módon ez az instabilitási mechanizmus az elektrokonvekció esetén is jelen van. A (- +) nematikus folyadékkristályok klasszikus példájánál maradva azonban a két EC típus esetén eltérő viselkedést tapasztalhatunk. A vezetési tartományban a hibahelyek már kis $\Delta U = U - U_c$ feszültségtöbblettel kelthetők. ΔU további növelésével a hibahelyek egyre növekvő számban jelennek meg, a hibahelyek mozgása a mintázatot egyre dinamikusabbá teszi, majd elérjük a defekt-káosz állapotát, amit turbulens áramlás és erős fényszórás jellemez. Utóbbi miatt ezen állapot jelentette a legelső folyadékkristály kijelzési mód, a dinamikus szórás alapját [34, 74].



10. ábra: Jóval küszöb feletti, standard EC pillanatfelvételek planáris (- +) nematikus fázisú mintákon [E25]: (a) hibahelyek (diszlokációk) a vezetési merőleges hengerek struktúrában (N5, $d = 19 \ \mu$ m); (b) hibahelyek rendeződésével kialakuló dielektromos szarufa ("chevron") mintázat (1008, $d = 19 \ \mu$ m).

A dielektromos tartományban szintén kis ΔU mellett megjelennek a hibahelyek, de nagyobb feszültségeknél eltérő viselkedést figyelhetünk meg. A diszlokációk számának növekedésével a hibahelyek **n**₀-ra merőleges láncokba rendeződnek, egy többé-kevésbé rendezett szuperstruktúrát, a szarufa ("chevron") mintázatot létrehozva (10b. ábra) [75]. A láncok közötti távolság sokkal nagyobb a dielektromos hengerek hullámhosszánál, amik a láncok közötti tartományokban láthatók maradnak, bár irányuk váltakozva ellentétes irányban elfordul (az azimutszög előjelet vált a hibahelyláncoknál). A hibahelyek ezen önszerveződését elméletileg megindokolták [76] és kísérletileg igazolták [77]. Megjegyezzük, hogy a szarufa mintázat nem a dielektromos EC típus kizárólagos tulajdonsága. A vezetési EC típus esetén is előfordulhat, bár nem planáris, hanem homeotrop mintákban [**S**15].

Bár az SM lineáris stabilitás-analízise elévülhetetlen érdemekkel rendelkezik az EC mintázatok küszöbjellemzőinek, az egyes változók *z*-függésének és egymáshoz viszonyított arányának meghatározásában, a nemlineáris tagok elhagyása miatt a mintázat amplitudójának feszültségfüggésére és a feszültség növelésekor bekövetkező egyéb változásokra nem szolgáltat információt.

A küszöb feletti, de attól nem távoli (gyengén nemlineáris) viselkedés leírására a Ginz-burg–Landau, vagy más néven amplitudóegyenlet formalizmus használható. E közelítésben feltételezzük, hogy a változók (a direktor- és sebességkomponensek és a potenciál) hely- és időfüggése, valamint az egymáshoz viszonyított arányuk megegyezik a lineáris közelítésben kapottakkal, így a deformáció nagyságát egyetlen mennyiség, az *A* amplitudó, egyértelműen jellemzi. Ezen amplitudó lassú tér- és időfüggését, a legegyszerűbb esetben, a fenomenologikus

$$\tau \partial_t A = \varepsilon A + \xi^2 \triangle A - g|A|^2 A \tag{17}$$

egyenlet írja le [23,42]. Itt $\varepsilon = (U^2 - U_c^2)/U_c^2$ adja meg a küszöbtől eltérést, míg a τ , ξ és *g* paramétereket az eredeti nemlineáris egyenletekből kell leszármaztatni. A (17) egyenletből az $A \propto \sqrt{\varepsilon}$ feszültségfüggés következik. Az egyenletből a hibahelyek dinamikájára vonatkozó egyes következményekkel a VI.3. fejezetben foglalkozunk.

Amennyiben a mintázatot a küszöb közelében két (vagy több) degenerált módus alkotja (pl. jobbra, illetve balra dőlő ferde hengerek, vagy jobbra, illetve balra haladó hullámok), a nemlineáris viselkedés analíziséhez mindkét módusra fel kell írni az amplitudóegyenleteket, melyekben további, a módusok csatolását jellemző tagok is megjelennek [78].

További komplikációt jelent, hogy a feszültség növekedése morfológiai változásokat okozhat. Például, mint azt kutatócsoportunk megfigyelései bizonyították [79], egy spontán szimmetriasértés következtében, a hullámvektor változatlanul maradása mellett a direktor elfordulhat, ú.n. abnormális hengereket eredményezve (lásd a VI.1. fejezetet). Ez esetben az *A* amplitudó mellett a direktor φ azimutszöge is releváns változó, így *x* irányú orientáló *H* mágneses tér jelenlétében, (17) helyett a csatolt

$$\tau \partial_t A = [\varepsilon + \xi_{xx}^2 \partial_x^2 + \xi_{yy}^2 (\partial_y^2 - 2iq_c \varphi \partial_y - q_c^2 \varphi^2) - g|A|^2 + i\beta_y (\partial_y \varphi)]A, \quad (18)$$

$$\widetilde{\gamma}_{1}\partial_{t}\varphi = [K_{1}\partial_{y}^{2} + K_{3}\partial_{x}^{2} - \widetilde{\chi}_{a}H^{2} - (q_{c}^{2}\Gamma/2)|A|^{2}]\varphi + (q_{c}\Gamma/2)\mathrm{Im}A^{*}\partial_{y}A$$
(19)

amplitudóegyenleteket kell használni [42, 80–83]. Ezen egyenletek több másodlagos instabilitásra adnak elméleti magyarázatot. Az abnormális hengereket eredményező bifurkációt érintő következményeket a VI.1. fejezetben részletesebben taglaljuk.

III.3.6. Nemstandard elektrokonvekció

Standard elektrokonvekció akkor lehetséges, ha a Carr-Helfrich-mechanizmus a direktorra destabilizáló forgatónyomatékot eredményez. Könnyű ellenőrizni, hogy a 6. ábra geometriájában σ_a előjelét megváltoztatva [azaz (- -) nematikus folyadékkristályra áttérve] a tértöltések polaritása és ezáltal az anyagáramlás és a viszkózus forgatónyomaték iránya ellentétesre vált. Ennek következtében a visszacsatolás mindig negatív marad, vagyis a direktor fluktuációk minden feszültségnél lecsengenek, tehát az SM szerint ez esetben nem jöhet létre mintázat. E következtetéssel ellentétben a kísérletek már régen megmutatták, hogy a (- -) nematikus anyagok számos tagjában, pl. a 4'-(n-butoxibenzi1idén)-4n-oktilanilin (40.8) [84, 85], a 4,4'-di-n-oktiloxi-azoxibenzol (C8) [84], a 4'-n-deciloxifenil-4-n-hexiloxi-benzoát (10/6) [86] és a 4'-n-oktiloxi-fenil-4-n-heptiloxi-benzoát (8/7) [86, E4] vegyületekben, feszültséggel lehet elektrokonvekciót kelteni. E nemstandard EC vizsgálatára alkalmas folyadékkristályok száma csekély, a tapasztalatok szerint ezen anyagok a nematikus fázis alatt szmektikus (lehetőleg SmC) fázissal is kell rendelkezzenek, hogy a nematikus hőmérséklettartományuk alacsonyabb hőmérsékletű részében $\sigma_a < 0$ teljesüljön. Ezen ns-EC mintázatok közös jellemzője, hogy a konvekciós hengerek longitudinálisak (longitudinal rolls, LR), azaz a kezdeti direktor iránnyal párhuzamosan (11a. ábra) vagy kis szöget bezárva (11b. ábra) futnak; kontrasztjuk alacsony, legjobban majdnem keresztezett polarizátorokkal láthatók és általában kevésbé rendezettek, mint az s-EC mintázatok. Tipikusan kis frekvenciákon fordulnak elő és lineáris $U_{c}(f)$ függéssel rendelkeznek.



11. ábra: Nemstandard EC pillanatfelvételek planáris (- -) mintán (8/7, $d = 12 \ \mu m$) [E25]: (a) longitudinális hengerek; (b) ferde hengerek. A kettős nyilak a kezdeti \mathbf{n}_0 direktorirányt jelölik.

Bár az SM ezen instabilitást nem képes megmagyarázni, ha az SM-be a flexoelektromos jelenségeket is beépítjük (*bővített* SM), már szolgálhat magyarázattal [E8]. A $\mathbf{q} \perp \mathbf{n}_0$ hullámvektorú periodikus direktor torzulás flexoelektromos polarizációt eredményez, ami olyan tértöltés modulációt okoz, amelynek előjele ellentétes a vezetőképesség anizotrópiája miatt fellépőhöz képest. Ha e flexoelektromos töltések dominálnak, a visszacsatolás pozitívvá válik és megjelennek a planáris mintában az ns-EC longitudinális hengerei elsődleges instabilitásként. Ugyanazon folyadékkristályok homeotrop mintáiban viszont a mintázat csak másodlagos instabilitásként, a hajlítás típusú Freedericksz-átmenetet (4b. ábra) követően fejlődhet ki.

Érdemes megemlíteni, hogy a bővített SM parciális differenciál-egyenleteiben a flexoelektromos tagok ugyan összecsatolják a különböző *z*-profilú, vezetési és dielektromos típusú megoldásokat, de az utóbbiak lesznek a dominánsak [E8]. Valóban, a mérések szerint az ns-EC longitudinális hengereinek kontrasztja (akárcsak a diffraktált intenzitása) oszcillál a gerjesztő frekvenciával [E12].

Hopf-bifurkáció ns-EC esetén is előfordulhat, minthogy haladó longitudinális hengereket is sikerült megfigyelni [E4]. E jelenség elméleti leírásához feltehetően az SM két független általánosításának, a bővített SM-nek (flexoelektromosság) és a WEM-nek (ionos effektusok) kombinációjára lenne szükség.

A (+ +) nematikus folyadékkristályok az anyagok másik olyan csoportját képezik, melyben az SM szerint mintázatképződés nem várható, mégis fellép nemstandard EC áramlási hengerek (12b. és 12d. ábrák) [S24], *sejtes* mintázat (12a. és 12c. ábrák) [87, S24] vagy lokalizált cirkuláris doménekre utaló máltai keresztek [88–91] formájában. Az ns-EC elsődleges instabilitásként homeotrop mintákban lép fel, planáris mintákban a feszítés típusú Freedericksz-átmenet (4a. ábra) teremti meg a feltételeket a másodlagos instabilitásként beinduló mintázatképződéshez. Az ezen anyagcsalád reprezentatív képviselőjén, az 4-ciano-4'-pentilbifenil (5CB) folyadékkristályon végzett vizsgálatainkról a VII.3. fejezetben részletesen beszámolunk.

Az eddig bemutatott nemstandard EC mintázatok csak specifikus anyagi paraméter kombinációkkal rendelkező [azaz (- -), illetve (+ +)] anyagokban fordulnak elő. Ismerünk



12. ábra: Nemstandard EC pillanatfelvételek (+ +) folyadékkristály mintán (5CB, d ≈ 20 μm):
(a) küszöb közeli sejtes mintázat és (b) nagy feszültségnél látható rendezetlen hengerek homeotrop mintán; (c) küszöb közeli sejtes mintázat és (d) nagy feszültségnél látható rendezett hengerek planáris mintán [E25, S24]. Az n₀ kezdeti direktorirány ⊙ esetén a síkra merőleges, míg ↔ esetében a síkkal párhuzamos.

azonban egy olyan ns-EC (azaz az SM kereteiben nem magyarázható) mintázatot is, melyik az anizotrópiák előjelére kevésbé érzékeny, hiszen (- +) és (- -) nematikus folyadékkristályokban egyaránt megfigyelték. Ez a széles domének, ismertebb nevén "*prewavy*" (PW) mintázat [44, 92, 93, S20]. A "prewavy" mintázat (13a. ábra) csak keresztezett polarizátorokkal látható, a kezdeti direktorirányra merőlegesen futó csíkokból áll, melyek hullámhossza jócskán meghaladja a *d* mintavastagságot. Főbb jellemzőiket a VII.1. fejezetben részletezzük, előfordulásukat hajlott törzsű nematikus folyadékkristályokban a VII.2. fejezetben taglaljuk.



13. ábra: Nemstandard EC pillanatfelvételek homeotrop MBBA mintán (d = 50 μm) [E25]:
(a) "prewavy" mintázat, (b) hullámos ("wavy") mintázat, (c) hibahelymentes szarufa ("chevron") mintázat (merőleges hengerek és a "prewavy" mintázat szuperpozíciója), (d) merőleges hengerek és a "wavy" mintázat szuperpozíciója. ⊙ jelöli n₀-nak a síkra merőleges irányát, a Freedericksz-kidőlés iránya vízszintes.
IV. fejezet

Vizsgált anyagok és kísérleti módszerek

IV.1. A vizsgált folyadékkristályok

A jelen értekezésben bemutatott eredmények többféle elektrokonvekciós mintázatképződéshez kapcsolódnak. Minthogy az egyes jelenségek eltérő anyagi paraméterekkel rendelkező folyadékkristályokban figyelhetők meg, szükségszerűen többféle nematikus folyadékkristályt kellett a mérésekhez felhasználni. Az egyes folyadékkristályok kiválasztásánál a megfelelő anyagi paraméterek mellett a kémiai stabilitást, az orientálhatóságot és az anyag hozzáférhetőségét kellett figyelembe venni. A mérésekhez használt anyagok szerkezeti képletét a 14. ábrán, fázisszekvenciájukat a 1. táblázat mutatja.

A standard EC vizsgálatánál elsősorban a (-+) családba tartozó Phase 5 (N5), illetve Phase 5A (N5A) elnevezésű, gyári (Merck) elegyeket használtuk [E7, E13, S1-S6, **S9–S11**, **S14–S19**]. Az elegyek a 4-metoxi-4'-butil-azoxibenzol és a 4-metoxi-4'-etilazoxibenzol (14a. ábra) két-két izomerjét tartalmazzák 65:35 mól% arányban [94, 95]. Az N5A elegy az N5-től csak abban különbözik, hogy nem nyilvános összetételű vezető só adalékolásával megnövelték az elegy elektromos vezetőképességét. Ennek mellékhatásaként az N5A tiszta üvegfelületen homeotrop orientálódik, míg az adalékolatlan N5 esetén nem ismert olyan módszer, ami homeotrop orientációt eredményezne. Az N5 az 4'-(metoxibenzilidén)-4-n-butilanilin (MBBA, 14b. ábra) [96] mellett egyfajta referenciaanyagnak számít az elektrokonvekció vizsgálata terén, mert anyagi paramétereik (permittivitások, vezetőképességek, rugalmas állandók és viszkozitások) független mérésekből ismertek, ami lehetőséget ad a kísérleti adatok és a numerikus szimulációk kvantitatív összevetésére. Méréseket végeztünk a 4-n-alkiloxifenil-4'-n-alkiloxibenzoát (nOOm, vagy más jelöléssel n/m, 14c. ábra) homológ sor egyes tagjain. A 4'-n-oktiloxifenil-4metoxibenzoát (1008) vegyületen az elektrokonvekció mellett flexodoméneket is megfigyelhettünk [E20, S7, S12, S13]. A 4-n-oktiloxi-fenil-4'-n-hexiloxibenzoát (6008) vegyületet elegykészítéshez használtuk fel [S22]. A homológ sor két további tagján, 4-nheptiloxi-fenil-4'-n-oktiloxibenzoát (8/7) és 4-n-hexiloxi-fenil-4'-n-deciloxibenzoát (10/6), a (+ -) család nemstandard EC mintázatait tanulmányozhattuk [E4, E8].

További nemstandard EC méréseket végeztünk MBBA-n [S20] és a (+ +) család jól ismert 4-ciano-4'-n-pentilbifenil (5CB, 14d. ábra) [97] képviselőjén [S24, S25].

A hajlott törzsű nematikus folyadékkristályok vizsgálata során más stratégiát követ-

tünk. Itt nem a jelenséghez legjobban illő folyadékkristályt kerestük, hanem az újonnan előállított vegyületek tulajdonságainak feltérképezése volt a fő cél. Az úttörő mérések a laboratóriumunkban előállított, banán alakú, 4-klór-1,3-fenilén *bis*4-[4'-(9-deceniloxi)benzoiloxi]-benzoát (ClPbis10BB, 14e. ábra) [98] vegyületen készültek [E5, E9, E16, S21, S23]. A tulajdonságok változását e hajlott törzsű nematikus folyadékkristálynak a rúd alakú 6008 vegyülettel képzett elegyeiben tanulmányoztuk három koncentráció – 70 tömeg % "banán"- (7B3R), 50 tömeg % "banán"- (5B5R) és 30 tömeg % "banán"-tartalom (3B7R) – esetén [S22, S23]. Vizsgálatokat végeztünk továbbá a 2,5-*di*4-[(4'-alkilfenil)-difluormetoxi]-fenil-1,3,4-oxadiazol (*n*P-CF₂O-ODBP, 14f. ábra) homológ sornak kínai együttműködő partnerünktől kapott három (*n* = 7,8,9) tagján [E22–E24, E26, E28].



14. ábra: A mérésekben használt vegyületek szerkezeti képletei.

jelölés	család	fázisok és fázisátmeneti hőmér- sékletek (°C) hűtésben	referencia
N5 (N5A)	(- +)	Cr5 - N - 74 - I	[94,95]
MBBA	(- +)	Cr - 21 - N - 48 - I	[96]
1008	(- +)	Cr - 53 - N - 76,7 - I	[<mark>S</mark> 7]
6008	(- +)	Cr - 41 - SmC - 50 - N - 89 - I	[S 22]
5CB	(+ +)	Cr – 18 –N – 35 – I	[97]
Clbis10BB	(- +)/()	Cr - 60 - N - 78 - I	[98, S21]
7B3R	(- +)/()	$SmX - 48 - SmC_A - 74 - N - 91 - I$	[S 22]
5B5R	(- +)/()	$Cr - 47 - SmC_A - 74 - N - 91 - I$	[S 22]
3B3R	(- +)/()	$Cr - 47 - SmC_A - 72 - N - 93 - I$	[S 22]
7P-CF ₂ O-ODBP		Cr – 77 – Sm – 90,3 – N – 131,5 – I	[E24, E26, E28]
8P-CF ₂ O-ODBP		Cr - 76 - Sm - 88 - N - 129 - I	[E22,E28]
9P-CF ₂ O-ODBP	()	Cr - 87,3 - Sm - 91,2 - N - 126,4 - I	[E23,E28]

Cr: kristály; N: nematikus; I: izotrop; SmC: szmektikus C; SmC_A: rétegenként felváltva ellentétes irányba dőlő szmektikus C; Sm, Sm X: azonosítatlan szmektikus fázis.

1. táblázat: A vizsgált folyadékkristályok fázisai és fázisátmeneti hőmérsékletei hűtésben

IV.2. Mintakészítés

A mérésekhez részben saját készítésű, részben gyári (EHC, Japán, illetve WAT, Lengyelország) szendvicscellákat használtunk. E cellák felépítését a 15a. ábra szemlélteti. A két síküveg hordozó belső felületén indium-ón-oxid bevonat képezi az átlátszó elektródákat, melyekhez az elektromos csatlakozó vezetékeket ezüsttartalmú vezető ragasztóval, vagy ultrahangos forrasztással rögzítettük. Az üveglapok elektródás felületén helyezkedik el az orientáló bevonat, ami a kezdeti \mathbf{n}_0 direktorirány beállítására szolgál. Az így előkészített üveglapokat egymáshoz képest elcsúsztatjuk, a köztes rés vastagságát ($d = 3-50 \ \mu m$) alkalmas távtartókkal állítottuk be, majd ragasztással rögzítettük. A gyári cellák felépítése hasonló, csak esetükben a felső üveglap mérete az alsónál kisebb; a felső elektródát a cellán belül egy vezetővel az alsó lapra kontaktálják át, így mindkét elektróda kivezetése az alsó lapon található.

A kész, még üres, cella vastagságát spektrofotométerrel (Ocean Optics USB2000) mértük meg. A folyadékkristályt az izotróp fázis hőmérséklettartományában a kapilláris erők szippantják be és tartják benn a résben a folyadékkristály fázisba lehűtéskor.

Egyes mérésekhez planáris, másokhoz homeotrop mintákra volt szükség. A planáris orientációhoz az orientáló réteg a felületre ráégetett poliimid bevonat volt, amit egy irányban bársonnyal többször megdörzsöltünk. A direktor iránya a dörzsölés irányával egyezik meg. Homeotrop cella készítéséhez a vizsgált folyadékkristálytól függő módszert kellett alkalmazni. Az N5A elegy használatakor nem volt szükség orientáló bevonatra; elegendő



15. ábra: Szendvicscella (a) felépítése és (b) elektromos helyettesítő képe.

volt az üvegfelületek alapos megtisztítása ahhoz, hogy a direktor a felületre merőlegesen beálljon. MBBA esetében az üveglapokat felületaktív anyag, N,N'-dietil-N-n-oktadecil-3aminopropil-trimetoxi szilil klorid (DMOAP) oldatába kellett meríteni, majd onnan lassan kihúzva képződött az üveglapon a DMOAP monomolekuláris rétege, ami az orientációt biztosította [S20].

Mivel a planáris mintákhoz használt orientáló (poliimid) réteg elektromosan szigetelő, a 15a. ábra szerinti cellakonstrukcióból következik, hogy a cellára kapcsolt *U* feszültség nem egyezik meg a folyadékkristály rétegen eső U_{LC} feszültséggel, vagyis a cellában van egy belső feszültségosztás. E feszültségosztás mértékét a cellának a 15b. ábrán bemutatott elektromos helyettesítő képe alapján határozhatjuk meg [99, 100]. Mind a poliimid (PI), mind a folyadékkristály (LC) réteget párhuzamos RC tagként kezelhetjük, melyek egymással sorba kapcsolódnak. A folyadékkristályon ténylegesen eső feszültség ω körfrekvenciájú váltófeszültségű meghajtás esetén a Z_{PI} és Z_{LC} komplex impedanciák arányától függ:

$$U_{\rm LC} = U \frac{Z_{\rm LC}}{Z_{\rm PI} + Z_{\rm LC}} = U \frac{(\frac{1}{R_{\rm LC}} + i\omega C_{\rm LC})^{-1}}{(\frac{1}{R_{\rm PI}} + i\omega C_{\rm PI})^{-1} + (\frac{1}{R_{\rm LC}} + i\omega C_{\rm LC})^{-1}}.$$
 (20)

Ezen belső feszültségosztás következtében nemcsak a folyadékkristályon eső feszültség effektív értéke lesz kisebb a cellára kapcsolt feszültségénél, hanem $U_{\rm LC}$ fázisban el lesz tolva *U*-hoz képest. Minthogy a poliimid réteg sokkal vékonyabb a folyadékkristálynál, $C_{\rm PI} \gg C_{\rm LC}$. A szokásos hangfrekvenciás tartományban a kapacitív feszültségosztás dominál, így $U_{\rm LC} \approx U$ jó közelítéssel teljesül, azaz a feszültségosztás elhanyagolható. Alacsony frekvencián (és egyenfeszültségű meghajtásnál) viszont mind a leosztással, mind a fázistolással számolnunk kell, mint azt a V.3.2. fejezetben látni fogjuk.

IV.3. Megfigyelési módszerek

A nagyságrendileg 3–200 μ m hullámhosszú EC mintázatok megfigyeléséhez optikai módszereket: polarizációs mikroszkópot (IV.3.1. fejezet), hosszú munkatávolságú mikroszkópot (IV.3.3. fejezet) vagy fénydiffrakciót (IV.3.4. fejezet) használtunk.

IV.3.1. Polarizációs mikroszkópia

A folyadékkristályoknak, mint anizotrop folyadékoknak alapvető vizsgálati módszere a polarizációs mikroszkópia [101]. A polarizációs mikroszkópban (pl. Leica DM RXP, Zeiss Amplival Pol, Zeiss AxioImager A1) a minta két forgatható polarizátor között helyezkedik el, melyek polarizációs irányát általában egymásra merőlegesen állítjuk be. Ilyen keresztezett polarizátorok esetén a mintán átmenő fény *I* intenzitását az

$$I = I_0 \sin^2(2\alpha) \sin^2(\Phi/2) \tag{21}$$

összefüggés adja meg, ahol I_0 a bemenő intenzitás, α a polarizátor és a direktornak az x-y síkra eső vetülete közötti szög, Φ pedig a (10) által definiált, a kettőstörésből adódó fáziskülönbség. Monokromatikus megvilágítás esetén így a direktor térbeli változása az átmenő intenzitás modulációját eredményezi; fehér fény esetén viszont, Φ fényhullámhossz függése révén, színváltozást figyelhetünk meg. Maximális fényintenzitást $\alpha = \pm 45^{\circ}$ -nál kapunk, míg $\alpha = 0^{\circ}$ és $\alpha = 90^{\circ}$ kioltást eredményez.

Rendezetlen folyadékkristály minták polarizációs mikroszkópban jellegzetes, a fázisukra jellemző képet (texturát) mutatnak, ami fázisátalakulásnál megváltozhat. A polarizációs mikroszkópia így használható a fázisátmeneti hőmérsékletek meghatározására és (bár korlátokkal) fázisazonosításra is.

Mivel az elektrokonvekció a direktor periodikus modulációjával jár együtt, a mintázat sötét–világos (vagy színes) csíkok formájában válik megfigyelhetővé. A módszer érzékeny, kis direktorszög-változásokat is kimutathat, de ezáltal már kis parazita effektusok (pl. a mintavastagság változása, a felületi orientáció hibái) is megzavarhatják a megfigyelést. Ráadásul nagyobb deformációk esetén (21) szerint *I* nem monoton nő. A standard EC tanulmányozásához ezért az árnyékleképezés alább bemutatott módszerét preferáltuk.

IV.3.2. Árnyékleképezés

A mintázatok megfigyelésének másik módszeréhez, az árnyékleképezéshez (shadowgraph) [102–104] csak egyetlen, a kezdeti \mathbf{n}_0 direktoriránnyal párhuzamos irányba állított polarizátort használunk. A direktor dőlésszögének síkbeli modulációja (ami az s-EC jellemzője) az extraordináriusan polarizált fénynyaláb törésmutató-modulációja révén nemcsak a terjedési sebesség változását okozza, hanem az eredetileg a mintára merőlegesen beeső fénynyaláb terjedési irányának módosulását is. A direktordőlés és ezáltal a törésmutató gradiens irányváltása a fényeltérülés irányát is ellentétesre változtatja. Ahol e nyalábok metszik egymást (fókuszálás), az intenzitás megnő, máshol viszont csökken (defókuszálás). A mintán belüli deformáció így a mintától meghatározott távolságban levő síkokra, intenzitásmodulált csíkokként képződik le. A fényeltérülés mértékét megbecsülő számolások megmutatták, hogy éles árnyékleképezett képet kaphatunk, ha a mikroszkópot a minta felső határoló lapjára fókuszáljuk; a csíkok periodicitása ekkor megegyezik a direktor deformációéval (A). Továbbá éles képet kaphatunk még a minta alá és fölé fókuszálva is, de ezen esetekben a csíkok periodicitása a deformáció félhullámhosszának ($\Lambda/2$) felel meg. Az árnyékleképezést az extraordináriusan polarizált fény hozza létre. Az ordinárius fénypolarizáció esetén nincs törésmutató-moduláció és így leképezés sincs. Következésképpen, bár az árnyékleképezés polarizálatlan fénnyel is működik, a kontrasztja rosszabb lesz (az fényintenzitásnak csak a fele modulálódik, a másik fele változatlanul áthalad a mintán).

Az árnyékleképezés módszerének nagy előnye, hogy az előző, IV.3.1. fejezetben említett parazita effektusokra érzéketlen. Hátránya viszont, hogy egyes instabilitási mechanizmusok, mint például az ns-EC, nem okoznak árnyékleképezést a mintázat küszöbénél.

IV.3.3. Mikroszkópia mágneses térben

Az elektromos tér mellett alkalmazott mágneses térrel befolyásolni lehet a mintázatképződést. Mágneses teret egyenárammal táplált laboratóriumi elektromágnessel keltettünk. A maximálisan elérhető mágneses indukció a használt, kb. 5 cm pofatávolságnál $B_{max} = 1$ T volt. A mintázatok mágneses térben történő megfigyeléséhez hagyományos polarizációs mikroszkópok nem alkalmasak, mert sem szerkezeti kialakításuk, sem anyaguk nem tette lehetővé az elektromágnessel történő egybeépítésüket. Helyettük a vizsgálatokhoz hosszú (kb. 30 cm) munkatávolságú mikroszkópot (Questar QM-10) használtunk.

Ez lényegében egy tükrös teleszkóp, melyet az elektromágnes mellett helyeztünk el, háromirányú preciziós mozgatást engedő állványra. A mikroszkóp nagyítását a teleszkóp és a hozzá csatlakoztatott kamera közé helyezett lencsékkel és közgyűrűkkel lehetett korlátozott mértékben változtatni. Szerencsére az elérhető nagyítás jól illeszkedett a vizsgált s-EC mintázatok méretéhez.

A mágnespofák közé rakott mintát fehér fénnyel világítottuk meg. A fényútba, a minta elé és mögé polarizátorokat raktunk, melyeket léptetőmotorok és bordásszíjak segítségével tudtunk akár függetlenül, akár együtt (pl. keresztezett állapotukat fenntartva) forgatni (16. ábra).



 ábra: Mágneses térbe helyezett nematikus minta elektrokonvekciójának vizsgálatához használt mérési összeállítás.

IV.3.4. Diffrakció

Az elektrokonvekciós mintázatot eredményező, térben periodikus direktor deformáció lényegében egy Λ hullámhosszú optikai rácsnak felel meg, így a mintát monokromatikus fénnyalábbal (lézerrel) megvilágítva diffrakciót tapasztalhatunk. Ennek vizsgálatához a mérőcellát tartalmazó termosztátot forgatható tárgyasztalra szereltük fel; ezáltal a megvilágító fénynyaláb β beesési szögét tudtuk változtatni ($\beta = 0^\circ$ a merőleges beesésnek felel meg). Fényforrásként $\lambda = 650$ nm hullámhosszú diódalézert használtunk. A diffrakciós képet a mintától 0,6 m távolságban elhelyezett ernyőn fogtuk fel, az eltérülési szögeket a diffrakciós foltok távolságából számoltuk ki. Az *k*-adik diffrakciós rendhez tartozó α_k eltérülési szöget a

$$\Lambda[\sin\beta + \sin(\alpha_k - \beta)] = k\lambda \tag{22}$$

Bragg-feltétel határozza meg.

Az észlelhető diffrakciós rendek száma a mintázat A amplitudójától (az U_c küszöbhöz képesti $\Delta U = U - U_c$ feszültségtöbblet nagyságától), Λ hullámhosszától és rendezettségétől, valamint a β beesési szögtől függ. Vezetési s-EC mintázatoknál akár 7–8 rend is látható volt, míg a dielektromos s-EC mintázatok esetén a nagyobb eltérülési szögek miatt többnyire csak az első rendet észleltük.

Egy adott rendű diffrakciós nyaláb intenzitása a deformáció mértékével (a maximális direktor kihajlással) áll kapcsolatban. Az intenzitás mérésével így információt kaphatunk a deformáció időbeli változásáról, mind rövid távon (a meghajtó feszültség periódusán belüli viselkedés), mind hosszabb időskálán (mintázat megjelenése és lecsengése). Az intenzitás méréséhez a diffraktált nyaláb közepébe száloptikát állítottunk, ami a fényt fotoelektron-sokszorozóba vezette; így az intenzitással arányos feszültségjelet kaptunk, amit oszcilloszkóppal vizsgáltunk.

IV.3.5. Mérési összeállítás

Minthogy a folyadékkristályok fizikai tulajdonságai erősen hőmérsékletfüggőek, a méréseket mindig kontrollált körülmények között, állandó hőmérsékleten kellett végrehajtani. A cellák termosztálásához részben gyári eszközöket (mikroszkópokhoz kifejlesztett kályhákat, pl. Instec HS-1, HS-250, vagy Linkam LTS350), részben saját tervezésű, cirkuláltatott vízzel, elektromos fűtőtesttel vagy Peltier-elemmel fűtött termosztátokat használtunk. E termosztátokkal a hőmérsékletet $\pm 0,01-0,1$ °C pontossággal lehetett tartani, illetve szabályozni.

A mintázatok keltéséhez szükséges feszültséget egy nagy sávszélességű (dc–200 kHz), nagyfeszültségű (max. ± 200 V) erősítő közbeiktatásával függvénygenerátor állította elő. Annak érdekében, hogy a minta tényleges (esetenként időben változó) elektromos vezetőképességéről információt kaphassunk, a mintázatok megfigyelésével egyidejűleg digitális oszcilloszkóppal mértük a mérőcellára adott feszültséget és a cellával sorbakötött ellenállás vagy áram–feszültség konverter segítségével a cellán átfolyó áramot.

A mintázatok dokumentálását a mikroszkópra erősített kamera tette lehetővé. Kezdetben analóg kamera videojelét rögzítettük videomagnóval, majd a felvételeket képdigitalizáló kártyával konvertáltuk; később digitális kamerákkal a felvételek azonnali digitális archiválása is lehetségessé vált. A mintázatok periódusidőn belüli időfejlődésének vizsgálatához speciális gyors kamerát használtunk, ami változtatható (0–2000 kép/s) felvételi sebességgel 4000 felvétel készítésére volt alkalmas; a sorozatfelvétel indítását a meghajtó feszültség nullaátmenetéhez szinkronizáltuk. A felvett képek későbbi digitális feldolgozásához szükség volt a mikroszkóp nagyításának (azaz egy képelem fizikai méretének) kalibrálására, amit ismert léptékű négyzetrács beosztással ellátott lemezről (Bürker kamráról) készített felvétel segítségével végeztünk el.

A fent felsorolt eszközök számítógéphez csatolt különböző mérési összeállítások részeit képezik, melyeket FORTRAN, C vagy LABVIEW nyelven írt programokkal vezéreltünk.

IV.4. Kiértékelési módszerek

A mintázatképződés vizsgálata során mindenekelőtt a mintázat *C* kontrasztját, U_c küszöbfeszültségét, morfológiáját (azaz a \mathbf{q}_c hullámvektorát) és dinamikáját igyekeztünk meghatározni. E paramétereket többnyire a digitálisan rögzített felvételek utólagos feldolgozása során, egyes esetekben viszont a mérés közben (on-line) határoztuk meg.

IV.4.1. A mintázat kontrasztja

A mikroszkóppal megfigyelt mintázat kifejlődése a kezdeti, homogén intenzitású állapothoz képest térbeli intenzitásmoduláció (csíkok), azaz optikai kontraszt megjelenését jelenti. A mintázat amplitudója (a maximális direktor kihajlási szög) és e kontraszt között a használt módszertől (kettőstörés vagy árnyékleképezés) függő, bonyolult, nemlineáris kapcsolat áll fenn.

A *C* kontraszt definíciója lényegében önkényes. A vizsgálatok során három különféle definíciót használtunk; a kiértékelés növekvő számításigényének sorrendjében ezek:

– A kép I_{max} maximális és I_{min} minimális intenzitásának C_{d} különbsége, vagy C_{dr} relatív különbsége:

$$C_{\rm d} = I_{\rm max} - I_{\rm min}; \quad C_{\rm dr} = \frac{I_{\rm max} - I_{\rm min}}{I_{\rm max} + I_{\rm min}}.$$
 (23)

– A kép $\langle I_{xy} \rangle$ átlagintenzitásától számított C_s átlagos négyzetes eltérés (a $\langle \rangle$ átlagolás a teljes képre történik):

$$C_{\rm s} = \langle (I_{xy} - \langle I_{xy} \rangle)^2 \rangle. \tag{24}$$

– A **q** hullámvektorú módushoz tartozó C_q spektrális intenzitás, azaz a Fourier-térben a $\Psi(\mathbf{q})$ spektrális eloszlásfüggvénynek (a kép kétdimenziós Fourier-transzformáltja abszolút értéke négyzetének) a $\mathbf{q} = (q_x, q_y)$ pontban lokalizált Fourier-csúcs közvetlen Q zárt környezetére vett integrálja:

$$C_q = \int \int_Q \Psi(\mathbf{q}) \, dq_x \, dq_y. \tag{25}$$

Ideális, homogén alapállapotban $C_d = C_s = C_q = 0$, azonban a valóságban valamilyen inhomegenitás a mintázat hiányában is mindig jelen van (pl. termikus fluktuációk következtében), ami ugyan nullától különböző, de kicsi kontrasztot ad. Nyilvánvalóan C_d és C_s fenti definíciója nem mintázat specifikus, azaz bármilyen eredetű intenzitásváltozás (inhomogén megvilágítás, porszem vagy orientációs hiba) növeli a kontrasztot. Különböző morfológiájú (különböző **q** hullámvektorú) mintázatok megkülönböztetése csak C_q alapján lehetséges.

IV.4.2. A mintázat küszöbjellemzői

Az értekezésben tárgyalt EC mintázatok túlnyomó többségénél a mintázat másodrendű átalakulásként, az amplitudó folytonos növekedésével jelenik meg. A küszöb precíz meghatározásához a kontraszt feszültségfüggését kell felvenni. A tipikus C(U) függést a 17. ábra szemlélteti. A kontraszt kis feszültségeknél csak csekély feszültségfüggést mutat, majd a küszöböt elérve gyors növekedésnek indul. Az átmenet nem teljesen éles, mert a mintázat kezdeményei lecsengő, szubkritikus fluktuációk formájában már a küszöb alatti feszültségeknél megjelennek. Az U_c küszöbfeszültség értékét így extrapolációval határozzuk meg, az alapállapoti kontrasztra és a C(U) görbe küszöb feletti, meredeken emelkedő szakaszára (tele körök) illesztett egyenesek metszéspontjaként (szaggatott függőleges vonal a 17. ábrán).

A küszöbfeszültség precíz mérése nagyon időigényes feladat, mert a feszültséget kis lépésekben kell növelni és minden változtatás után meg kell várni a mintázat amplitudójának stabilizálódását. Mindenesetre e módszer kikerülhetetlen, amennyiben az elsődleges instabilitást követő esetleges másodlagos bifurkáció küszöbére is kiváncsiak vagyunk (VI.1. fejezet).



17. ábra: EC mintázat kontrasztjának feszültségfüggése [S7]. A folytonos vonalak a mért $C_d(U)$ görbe egyes szakaszaira illeszett egyenesek, a pont-vonás vízszintes vonal egy önkényesen választott komparálási szint. A szaggatott függőleges vonal az extrapolációval kapott küszöböt, míg a pontozott vonal a komparálásból adódó küszöbértéket jelöli. 1008, f = 60 Hz.

A küszöbfeszültségel jóval gyorsabb, de kevésbé precízen becsülhetjük meg szemmel, amikor a feszültséget manuálisan addig növeljük, amíg a mikroszkópban a mintázat a tel-

jes látótérre kiterjedően éppen észrevehető nem lesz. Ez ugyan egy szubjektív kritérium, de lényegében annak felel meg, hogy azt a feszültséget tekintjük küszöbnek, ahol a kontraszt egy megfelelően megválasztott komparálási szintet elér (pont-vonás vízszintes vonal a 17. ábrán). Láthatóan ezzel a küszöb értékét kissé felülbecsüljük (pontozott függőleges vonal a 17. ábrán). E módszert elsősorban U_c frekvenciafüggésének feltérképezésénél és a küszöbnek szuperponált egyen- és váltófeszültségű meghajtásnál történő meghatározásánál (V.4. fejezet) használtuk, ahol a felülbecslésből adódó hiba elhanyagolható a kontroll paraméter (f vagy U_{dc}) megváltoztatásának köszönhető küszöbváltozáshoz képest.

IV.4.3. x-t és $x-\alpha$ felvételek

A mintázatok dinamikájának vizsgálatához nagy mennyiségű képből álló sorozatok rögzítésére és feldolgozására van szükség. A vizsgálatok kezdetekor a rendelkezésünkre álló számítógépeknek sem a tárolókapacitása, sem a sebessége nem tette lehetővé képek video sebességgel (25 kép/s) történő elmentését. Speciális, on-line aritmetikára képes képdigitalizáló kártyát használva viszont teljes képek feldolgozása helyett lehetővé vált az egymás után felvett képek ugyanazon, kiválasztott sorának elmentése egy új kép egymás alatti soraiba. Ezen *x*–*t* felvételek jól demonstrálják az időbeli változásokat, pl. a haladó hullámok (V.1. fejezet) jelenlétét.

Hasonló módszert alkalmaztunk az abnormális hengerek (VI.1. fejezet) láthatóvá tételére. A IV.3.3. fejezetben bemutatott, nagy munkatávolságú mikroszkópos összeállításban (16. ábra) mind a polarizátort, mind az analizátort léptetőmotorral tudtuk forgatni; egy körülfordulás 200 lépésnek felelt meg. E léptetőmotorokat léptetve mentettük el minden lépés után a kép egy adott sorát az új, ú.n. $x-\alpha$ kép egymás utáni soraiba (18. ábra), ami így a mintázatnak a polarizációs iránytól való függését szemléltette keresztezett vagy párhuzamos polarizátor–analizátor állás mellett.

IV.4.4. Komplex demoduláció

A hibahelyek dinamikájának vizsgálata során a diszlokációk mozgásának sebességét kell meghatározni. A diszlokáció nyomonkövetéséhez azonos időközönként készített felvételsorozatokat használtunk. A hibahely pozíciójának meghatározásához a komplex demoduláció technikáját alkalmaztuk [105, 106].

A hibahely környezetében a mintázat (a lokális u(x, y) intenzitás) helyfüggését

$$u(x,y) = A(x,y)e^{iqx} + A^*(x,y)e^{-iqx} + \text{felharmonikusok}$$
(26)

alakban írhatjuk fel, ahol az A(x, y) komplex amplitudó a $\mathbf{q} = (q, 0)$ hullámvektorú mintázat $\Lambda = 2\pi/q$ hullámhosszához képest lassan változik. A lassan, illetve gyorsan változó tagok szétválasztásához az u(x, y) függvényen elvégezzük a kétdimenziós gyors Fouriertranszformációt, a Fourier-tér q < 0 térfelében a transzformáltat lenullázzuk és a Fouriertér origóját áthelyezzük az első Fourier-csúcs, azaz (q,0) pozíciójába. Ezt inverz gyors Fourier-transzformációval visszatranszformálva a valós térbe megkapjuk a lassan változó A(x, y) komplex amplitudót. A diszlokáció pontos helyét |A(x, y)| = 0 adja meg, amit a



18. ábra: $x-\alpha$ felvételek előállítása pillanatfelvételek sorozatából.



19. ábra: Diszlokáció pontos helyének meghatározása az A demodulált komplex amplitudóból [S19]. A Re(A) = 0 (fekete) és az Im(A) = 0 (fehér) vonalakat rámásoltuk az eredeti mintázatra. A diszlokáció magja a fekete és fehér vonalak kereszteződésében van. A magot körüljárva A fázisa folytonosan változik: az egyes tartományokban a φ fázis rendre 0 < φ < π/2 (1); π/2 < φ < π (2); π < φ < 3π/2 (3); és 3π/2 < φ < 2π (4).

 $\operatorname{Re}(A) = 0$ és az $\operatorname{Im}(A) = 0$ görbék metszéspontjaként kaphatunk meg. A komplex demoduláció módszerét a 19. ábrán szemléltetjük, ahol az eredeti mintázatra rámásoltuk a $\operatorname{Re}(A) = 0$ (fekete) és az $\operatorname{Im}(A) = 0$ (fehér) görbéket. A vonalak a teret négy tartományra osztják. A diszlokáció magját körbejárva A fázisa folytonosan változik: az egyes tartományokban a ϕ fázis rendre $0 < \phi < \pi/2$ (1); $\pi/2 < \phi < \pi$ (2); $\pi < \phi < 3\pi/2$ (3); és $3\pi/2 < \phi < 2\pi$ (4).

ÉBER NÁNDOR

V. fejezet

Standard elektrokonvekció planáris (- +) mintákban

E fejezetben a standard elektrokonvekció klasszikus geometriájában, azaz planáris (-+) ne-matikus mintákon végzett méréseink eredményeit foglaljuk össze. Négy témakört taglalunk részletesebben: a haladó hullámok jellemzőit, a mintázatnak a feszültség lekapcsolását követő lebomlását, az extrém alacsony frekvenciájú gerjesztő feszültség hatását és a mintázatnak a szuperponált egyen- és váltófeszültség hatására bekövetkező viselkedését.

V.1. Haladó hullámok és a gyenge elektrolit modell

V.1.1. Előzmények

A III.3.3. fejezetben már említettük, hogy egyes mintákban a vezetési s-EC nem stacionárius mintázat, hanem haladó hullámok formájában jelentkezik [50,52–54]. A mintában ekkor lokalizált források léteznek, melyek keltik a hullámokat, amik az áramlási hengerekre merőlegesen, a forrástól távolodva haladnak. A minta egy rögzített pontjában ez időben oszcilláló intenzitást jelent. Ezen oszcilláció frekvenciája, az ú.n. $f_{\rm H}$ Hopf-frekvencia határozza meg a haladó hullámok $v = \Lambda f_{\rm H}$ sebességét.

Az SM csak a vezetési EC mintázatok megjelenését tudja, azok haladó hullám jellegét viszont nem képes megmagyarázni. A modellből ugyanis egyértelműen következik, hogy a mintázatképződés küszöbénél a kritikus \mathbf{q}_c hullámvektorú módus növekedési sebességének nem csak a valós, de a képzetes része is nulla.

A haladó hullámok értelmezéséhez az SM-ben tárgyalt, a (16)-ban definiált τ_d , τ_q és τ_v relaxációs idejű folyamatok mellett további, az SM-ben elhanyagolt jelenségeket is figyelembe kell venni. A megoldást végül az elektromos vezetőképesség ohmos közelítésének feladása, vagyis a ténylegesen ionos vezetőképességnek a gyenge elektrolit modell (WEM) keretében történő kezelése jelentette [56, 78, 107]. A WEM-ben a $\mathbf{J} = \mathbf{J}_{diff} + \mathbf{J}_{migr} + \mathbf{J}_{adv}$ elektromos áramsűrűség a kétfajta, egyszeresen ($\pm e$) töltött A^+ pozitív és B^- negatív ionos töltéshordozók diffúziójából, migrációjából és advekciójából származik (*e* az elektron töltése). A $\boldsymbol{\sigma}$ vezetőképesség tenzor már nem anyagi állandó, hanem a töltéshordozók n^+ ill. n^- sűrűségétől és migrációs együttható $\boldsymbol{\mu}^+$, illetve $\boldsymbol{\mu}^-$ tenzorától függő származtatott mennyiség. Feltételezzük, hogy a migrációs együttható $(\mu_{\parallel} - \mu_{\perp})/\mu_{\perp}$ relatív anizotrópiája megegyezik a vezetőképesség σ_a/σ_{\perp} relatív anizotrópiájával.

$$\mathbf{J}_{\text{diff}} = -e(\mathbf{D}^+ \nabla n^+ - \mathbf{D}^- \nabla n^-)$$
(27)

$$\mathbf{J}_{\text{migr}} = \boldsymbol{\sigma} \mathbf{E} = e(\boldsymbol{\mu}^+ n^+ + \boldsymbol{\mu}^- n^-) \mathbf{E}$$
(28)

$$\mathbf{J}_{\mathrm{adv}} = \boldsymbol{\rho}_{\mathrm{e}} \mathbf{v} = \boldsymbol{e}(n^{+} - n^{-})\mathbf{v}$$
⁽²⁹⁾

A \mathbf{D}^{\pm} diffúziós állandó tenzor esetében feltételezzük, hogy Einstein

$$\mathbf{D}^{\pm} = \frac{k_{\rm B}T}{e} \boldsymbol{\mu}^{\pm} \tag{30}$$

törvénye teljesül (k_B a Boltzmann állandó, T az abszolút hőmérséklet). A töltéshordozók száma a disszociálatlan AB molekulák (vagy szennyezők) és az ionok közötti $AB \rightleftharpoons A^+ + B^-$ rekombinációs–disszociációs folyamatok révén változhat, amit reakciósebességi egyenletekkel írhatunk le. A modell a kis ionsűrűségű rendszerek leírására alkalmas, ami a folyadékkristályokra kis vezetőképességük miatt biztosan teljesül.

A WEM az SM-ből átveszi a direktorrelaxációs és a mozgásegyenleteket, de módosítja, illetve új egyenlettel egészíti ki a töltésmegmaradási törvényt. Az ionos folyamatok a rendszerbe két új időskálát visznek be: a rekombinációs–disszociációs egyensúly elérésének sebességét jellemző τ_{rec} rekombinációs időt, valamint az ionoknak a cellán áthaladásához szükséges $\tau_t = d/(E\mu) = d^2/(U\mu)$ áthaladási időt ($\mu = \mu^+ + \mu^-$) [56]. A tipikus nagyságrendek: $\tau_t \sim 0.1$ s és $\tau_{rec} > 5$ s.

Az elektrokonvektív instabilitás elsődleges mechanizmusát továbbra is a Carr–Helfrichmechanizmus képezi. Ugyanakkor a lokális tértöltéssűrűség változására a töltéshordozók diffúziója új, stabilizáló mechanizmust jelent. A két mechanizmus versengése okozza az $f_{\rm H}$ Hopf frekvenciával történő oszcillációt [56].

A WEM lineáris stabilitás analízise megmutatta, hogy e modell szerint a Hopf bifurkáció valóban kialakulhat, hiszen a mintázatképződés U_c küszöbfeszültségénél a \mathbf{q}_c kritikus hullámvektorú módus növekedési sebessége imaginárius. U_c és \mathbf{q}_c esetében a WEM lényegében 1%-on belüli eltéréssel visszaadja az SM-ből számolt értékeket. Az f_H Hopf frekvenciára a térváltozók z és t függését leíró Galerkin-sorfejtésnek csak a vezető tagjait megtartó "egymódusú" közelítésben kapott analitikus formula:

$$f_{\rm H} = \tilde{f} \sqrt{1 - \frac{1}{(2\pi\tau_{\rm rec}\tilde{f})^2}},\tag{31}$$

$$\widetilde{f} = \frac{C}{2} \sqrt{\frac{\sigma_{\rm a}}{\sigma_{\perp}}} \frac{\varepsilon_0 \varepsilon_{\perp} U_{\rm c}^2}{d^3 (1 + \omega^{*2})} \sqrt{\frac{\mu_{\perp}^+ \mu_{\perp}^-}{\gamma_1 \sigma_{\perp}^{\rm eq}}}, \qquad (32)$$

ahol *C* egy egységnyi nagyságrendű dimenziótlan faktor, σ_{\perp}^{eq} a rekombinációs–disszociációs egyensúlyhoz tartozó elektromos vezetőképesség, míg

$$\boldsymbol{\omega}^* = 2\pi f \tau_{\mathbf{q}} \frac{1 + \mathbf{q}_{\mathbf{c}}^{*2} + \frac{\varepsilon_{\mathbf{a}}}{\varepsilon_{\perp}} q_{\mathbf{c}x}^{*2}}{1 + \mathbf{q}_{\mathbf{c}}^{*2} + \frac{\sigma_{\mathbf{a}}}{\sigma_{\perp}} q_{\mathbf{c}x}^{*2}}$$
(33)

tartalmazza a meghajtó frekvenciától függést és $\mathbf{q}^* = \mathbf{q}d/\pi$ a dimenziótlanított hullámvektor [56].

A (31) egyenletből egyértelműen adódik, hogy haladó hullámok csak akkor létezhetnek, ha az $\tilde{f} > (2\pi\tau_{\rm rec})^{-1}$ feltétel teljesül. (32)-ből következik, hogy megfigyelésükhöz lehetőleg vékony, kis vezetőképességű mintát kell minél nagyobb (de még f_c alatti) frekvenciával gerjeszteni.

Az I52 nematikus folyadékkristályon végzett U_c , \mathbf{q}_c és f_H mérések a modell egyes következtetéseit (a meghajtó frekvenciától és σ_{\perp}^{eq} -től függést) visszaigazolták [45], de a vastagságfüggés szisztematikus ellenőrzése nem történt meg. További szépséghibát jelentett, hogy az I52 több paraméterére (egyes rugalmas állandókra és viszkozitási együtthatókra) nem volt független mérés, így hat paramétert az SM-ből számolt $U_c(f)$ és $\mathbf{q}_c(f)$ függvényeknek a kísérleti adatokhoz illesztéséből kaptak meg.

Célunk a WEM független igazolása volt olyan nematikus folyadékkristályon végzett mérésekkel, melyek anyagi paraméterei független mérésekből ismertek, illetve meghatározhatók.

V.1.2. Saját eredmények

A mérésekhez olyan folyadékkristályt kellett keresnünk, melynek legalább az SM-ben szereplő anyagi paraméterei ismertek. A választásunk az N5/N5A nematikus elegyre esett, melynek legnehezebben mérhető paraméterei (az α_2 , ..., α_6 viszkozitási együtthatók) az irodalomban megtalálhatók [95].

A dielektromos permittivitás ε_a anizotrópiáját és az elektromos vezetőképesség σ_a/σ_{\perp} relatív anizotrópiáját mágneses térrel rendezett vastag ($d \approx 400 \ \mu$ m) mintán mértük meg. A rugalmas állandókat a különböző geometriákban elektromos és mágneses térrel indukált Freedericksz-átmenetek küszöbeinek összehasonlításából határoztuk meg. Planáris mintákból a K_1 feszítési és a K_2 csavarási, homeotrop mintákból a K_3 hajlítási rugalmas állandót kaptuk meg. Minthogy a σ_{\perp} a folyadékkristályban található szennyező ionoktól függ, értéke celláról cellára változik. Ezért a vezetőképességet minden, a mintázatképződés vizsgálatánál használt vékonyabb ($d = 10-30 \ \mu$ m) cella esetén meg kellett határozni, amit a vezetési és dielektromos tartományok közötti f_c átváltási frekvencia mérése tett lehetővé. A még hiányzó α_1 viszkozitási együtthatót a Lifshitz-pont illesztéséből kaptuk meg. Méréseink révén az SM által megkívánt összes anyagi paraméter ismertté vált (ezeket az 2. táblázatban összegeztük) [S1], így az N5/N5a elegycsalád a standard elektrokonvekció elméleti jóslatainak a kísérleti adatokkal összehasonlítását lehetővé tevő referenciaanyaggá válhatott.

A WEM ellenőrzése céljából három, különböző vastagságú és vezetőképességű (3. táblázat), cellán végeztünk méréseket. A haladó hullámok jelenlétét *x*-*t* diagramok (IV.4.3. fejezet) felvételével mutattuk ki. Erre mutat példát a 20. ábra. Mindegyik cellán megmértük a haladó hullámok U_c küszöbfeszültségének, q_c kritikus hullámszámának és f_H Hopffrekvenciájának a gerjesztő f frekvenciától való függését. A különböző cellákon mért adatok összehasonlításához célszerű bevezetni az $f^* = 2\pi f \tau_q$ dimenziótlan frekvenciaskálát és a $q_c^* = q_c d/\pi$ dimenziótlan hullámszámot [itt τ_q a (16)-ban bevezetett töltés-relaxációs időállandó]. A 21. ábra összesítve mutatja, cellánként különböző szimbólummal jelölve,

Paraméter	Értéke $T = 30$ °C-on	Forrás	
<i>K</i> ₁	$9,8 imes 10^{-12} \text{ N}$	[\$1]	
<i>K</i> ₂	$4,\!6\times10^{-12}~\mathrm{N}$	[S 1]	
<i>K</i> ₃	$12,7 \times 10^{-12} \text{ N}$	[S 1]	
$arepsilon_{\perp}$	5,19–5,39	[S1] (cellánként változó)	
$\varepsilon_{\rm a}$	-0,184	[S 1]	
$\sigma_{\!\perp}$	$7-17 \times 10^{-9} \ (\Omega \ m)^{-1}$	[S1] (cellánként változó)	
$\sigma_{ m a}/\sigma_{ m ot}$	0,7	[S 1]	
α_1	$-39 \times 10^{-3} \text{ Ns/m}^2$	[S 1]	
α_2	$-109,3 \times 10^{-3} \text{ Ns/m}^2$	[95]	
α_3	$1.5 imes 10^{-3} \text{ Ns/m}^2$	[95]	
α_4	$56,3 \times 10^{-3} \text{ Ns/m}^2$	[95]	
α_5	$82,9 \times 10^{-3} \text{ Ns/m}^2$	[95]	
α_6	$-24,9 \times 10^{-3} \text{ Ns/m}^2$	[95]	
$\sqrt{\mu_{\perp}^+\mu_{\perp}^-}$	$1.1 \times 10^{-10} \text{ m}^2/(\text{Vs})$	[\$1]	
$(\tau_{\rm rec})^{-1}$	$< 0.2 \ { m s}^{-1}$	[S 1]	

2. táblázat: Az N5/N5A folyadékkristály elegy anyagi paraméterei

	Cella C	Cella D	Cella E
<i>d</i> [µm]	23,5	13,4	27,5
$\sigma_{\perp}^{eq} \ [(\Omega m)^{-1}]$	$8,5 imes 10^{-9}$	$16,\!4 \times 10^{-9}$	$7,3 imes 10^{-9}$

3. táblázat: A három mérőcella *d* vastagsága és a folyadékkristály σ_{\perp}^{eq} vezetőképessége [S1]

a mért $U_c(f^*)$ és $q_c^*(f^*)$ függést. A WEM-ből, illetve az ettől mindössze < 1%-kal eltérő, SM-ből kapott elméleti frekvenciafüggés (folytonos vonal a 21. ábrán) szerint sem $U_c(f^*)$, sem $q_c^*(f^*)$ nem érzékeny a vastagság és a vezetőképesség változására, azaz a három cellán mért adatoknak egy görbére kell esniük, ami a mérési hibán belül teljesül [S1].



20. ábra: Jobbra és balra haladó hullámok az *x*–*t* felvételeken. (a) A küszöbfeszültség közelében ($\varepsilon = 0,005$) és (b) a küszöbtől távol ($\varepsilon = 0,017$) [S1]. A haladó hullámok sebessége a csíkok ferdeségi szögéből kapható meg. N5/N5A, $d = 14,7 \,\mu$ m, f = 90 Hz.



21. ábra: Az (a) U_c küszöbfeszültség és a (b) q_c^{*} dimenziótlan hullámszám függése az f^{*} dimenziótlan frekvenciától. A különböző szimbólumok az egyes cellákon mért értékeket jelölik. A folytonos vonal a WEM-ből (illetve az SM-ből) számolt elméleti görbe [S1].

A WEM egyik legfontosabb következtetése, hogy a küszöbfeszültséggel és a dimenziótlan hullámszámmal ellentétben, az $f_{\rm H}$ Hopf frekvencia erősen cellafüggő lehet, hiszen (31) és (32) szerint $f_{\rm H} \propto d^{-3} (\sigma_{\perp}^{\rm eq})^{-1/2}$. Következésképpen, ha a $2\pi f_{\rm H} d^3 (\sigma_{\perp}^{\rm eq})^{1/2}$ szorzatot ábrázoljuk f^* függvényében (22. ábra), a mért adatoknak ismét egy univerzális elméleti görbére kell esniük. Látható, hogy az egyébként ismeretlen nagyságú ionmobilitásszorzatot $\sqrt{\mu_{\perp}^+ \mu_{\perp}^-} = 1, 1 \times 10^{-10} \text{ m}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$ értékűnek választva, ez kb. 25% eltérésen belül teljesül, miközben a Hopf frekvencia értéke 50-szeres tartományban változik [S1]. Az ionmobilitásra kapott fenti érték nagyságrendileg egyezik a más anyagokra független méréssel megállapított $\mu = \mu_{\perp}^+ + \mu_{\perp}^-$ értékekkel.



22. ábra: A $2\pi f_{\rm H} d^3 (\sigma_{\perp}^{\rm eq})^{1/2}$ szorzat függése az f^* dimenziótlan frekvenciától. A különböző szimbólumok az egyes cellákon mért értékeket jelölik. A folytonos vonal a WEM-ből a 2. táblázatban felsorolt anyagi paraméterekkel számolt elméleti görbe [S1].

Megjegyezzük, hogy a τ_{rec} rekombinációs idő még a legkisebb Hopf frekvencia esetén is jóval nagyobb volt, mint $(2\pi f_{\rm H})^{-1}$. Így a mérések során mindvégig messze felette voltunk annak a kritikus gerjesztő frekvenciának, mely a stacionárius mintázatokat elválasztja a Hopf bifurkáció tartományától.

Összegezve elmondhatjuk, hogy az ezen fejezetben bemutatott, a T1 tézispont alapját képező mérések a gyenge elektrolit modell (WEM) addigi legerősebb igazolásának számítanak.

V.2. Mintázat lebomlása

Az elektromos térrel indukált deformációk esetén nemcsak a feszültség alatti végállapothoz tartozó direktoreloszlásra, hanem a változás dinamikájára is kiváncsiak vagyunk. Az elektrokonvekció során rendkívül komplex térbeli-időbeli mintázatok alakulhatnak ki, ezáltal az EC dinamikája egy igen szerteágazó kutatási terület, melynek teljes áttekintésére nem, csupán egyes vonatkozások bemutatására vállalkozhatunk. A jelen V.2. fejezetben a merőleges hengerekből álló mintázat lebomlásával foglalkozunk. A mintázatoknak a gerjesztő feszültség periódusán belüli időbeli változását a V.3. fejezetben, a küszöbfeszültség feletti nemlineáris tartományban keletkező hibahelyek mozgását pedig a VI.3. fejezetben taglaljuk.

V.2.1. Előzmények

A homogén ($\mathbf{q} = 0$) deformáción (a Freedericksz-átmenet speciális esetein) alapuló gyakorlati alkalmazásokban, pl. a csavart nematikus kijelző esetén, a feszültségmentes kezdeti (világos) és a feszültség alatti végállapot (sötét) közötti átkapcsolás sebességének jellemzésére az elektromérnöki gyakorlatban a t_{be} be-, illetve a t_{ki} kikapcsolási időket szokás használni, melyeket azokkal az időtartamokkal azonosítanak, amik alatt az intenzitás 90%-ról 10%-ra, illetve fordítva változik. A fenti kapcsolási idők egyértelműen összekapcsolhatók a direktor relaxációjának τ_{be} , illetve τ_{ki} karakterisztikus idejével. Kikapcsoláskor (U = 0) a τ_{ki} karakterisztikus idő arányos a (16)-ban definiált τ_d -vel, bekapcsoláskor ($U > U_F$) viszont τ_{be} függ a cellára kapcsolt U feszültségtől is [6, 108],

$$\tau_{\rm be} = \tau_{\rm ki} \frac{1}{\left(\frac{U}{U_{\rm c}}\right)^2 - 1},\tag{34}$$

ami nagy feszültségeknél a kikapcsolásnál lényegesen gyorsabb bekapcsolást tesz lehetővé.

A dinamika alapeseteinek EC esetében is a mintázat megjelenése a feszültség rákapcsolásakor, illetve lebomlása a feszültség kikapcsolásakor számítanak. A $\mathbf{q} = 0$ esethez hasonlóan, a be-, illetve kikapcsolás között sebességkülönbséget várhatunk, továbbá számíthatunk arra is, hogy a sebesség függ a mintázat q hullámszámától. Az elméleti leírás szempontjából a bekapcsolás a bonyolultabb eset, mert egyrészt a mintázat megjelenését fluktuációk indítják be, másrészt pedig az SM teljes 6-tagú nemlineáris differenciálegyenlet-rendszerét kellene megoldani. A kikapcsolásnál viszont feszültség hiányában a tértöltéseloszlás szétcsatolódik a direktor és sebességtér relaxációjától (kevesebb egyenlet marad), valamint a mintázat lebomlásának végső szakaszában már kicsi a deformáció, így a lineáris közelítés biztosan használható.

A témakörnek mindazonáltal igen szegényes az irodalma [43, 109]. Első próbálkozásként a direktor relaxációs idejét a III.3.3. fejezetben már említett egymódusú közelítésben számolták ki, $v_x \neq 0$ (nem realisztikus) határfeltétel mellett és az eredményt a bipoláris négyszögjellel hajtott mintázat direktormodulációjának értelmezésére használták fel [43, 109].

A mintázat lebomlásának precíz leírására a kutatócsoportunk és a bayreuth-i egyetem elméleti kutatóinak együttműködése keretében került sor [S2]. A merőleges hengerek (NR) mintázattípusra korlátozódtunk; ez esetben nincs y-függés. A fizikai változókról a csillaggal jelölt

$$x^* = \frac{x\pi}{d}, \quad z^* = \frac{z\pi}{d}, \quad t^* = \frac{t}{\tau_d}, \quad q^* = \frac{qd}{\pi}, \quad s^* = \frac{sd}{\pi}, \quad \mu^* = \mu \tau_d$$
(35)

dimenziótlan mennyiségekre áttérve, a lebomlás során az SM differenciálegyenletrendszere a direktor és a sebesség *z*-komponenseire vonatkozó két csatolt, dimenziótlan differenciálegyenletre redukálható. Ezek megoldását

$$n_z(x^*, z^*, t^*) = \hat{n}(z^*, q^*)e^{-\mu^* t^*}\sin(q^* x^*) = n(s^*, q^*)e^{is^* z^*}e^{-\mu^* t^*}\sin(q^* x^*);$$
(36)

$$v_{z}(x^{*}, z^{*}, t^{*}) = \hat{v}(z^{*}, q^{*})e^{-\mu^{*}t^{*}}\cos(q^{*}x^{*}) = v(s^{*}, q^{*})e^{is^{*}z^{*}}e^{-\mu^{*}t^{*}}\cos(q^{*}x^{*})$$
(37)

alakban keresve egy μ^* -ban elsőfokú, s^{*2} -ben pedig harmadfokú diszperziós relációra jutunk, melynek minden μ^* és q^* esetén hat $(\pm s_1^*, \pm s_2^*$ és $\pm s_3^*)$ gyöke van. A teljes megoldásnak (ami ezen gyökökkel képzett koszinusz függvények összege) ki kell elégítenie a határoló felületeken az

$$n_z = 0, \quad v_z = 0, \quad qv_x = -\partial_z v_z = 0$$
 (38)

határfeltételeket. Ez csak a $\mu_k^*(q^{*2})$ sajátértékek diszkrét sorozatánál ($k = 1, 2, ..., \mu_k^* < \mu_{k+1}^*$)) teljesülhet. Az egyes $\mu_k^*(q^{*2})$ sajátértékekhez különböző $\hat{n}_k(z^*, q^*)$ sajátmódusok tartoznak, melyek teljes rendszert képeznek. A mintázat lebomlása közben a direktor *z*-komponensét így e módusok

$$n_z(x^*, z^*, t^*) = A \sum_{k=1}^{\infty} w_k \hat{n}_k(z^*, q^*) e^{-\mu_k^* t^*} \sin(q^* x^*)$$
(39)

szuperpozíciója adja meg, ahol *A* a mintázat amplitudója (a maximális kitérülés), az egyes módusok w_k súlyát pedig az elektrokonvekció során kialakult, a feszültség lekapcsolásának pillanatában (t = 0) fennálló direktorprofil határozza meg [S2].

A 23a. ábrán példaként bemutatjuk az első tíz sajátértéknek az N5/N5A paraméterekkel numerikusan számolt q^{*2} -függését. Láthatóan k > 1 esetén a $\mu_k^*(q^{*2})$ görbék váltakozva kisebb és nagyobb meredekségű szakaszokból állnak. A számolások azt is megmutatták, hogy adott $\hat{n}_k(z^*, q^*)$ módus esetén a *z*-függést q^{*2} értéke erősen befolyásolja. Ez utóbbit demonstrálja a 24a. ábra a $\hat{n}_1(z^*, q^*)$ módus, míg a 24b. ábra a $\hat{n}_{10}(z^*, q^*)$ módus esetén.

Összehasonlításképpen, a már említett egymódusú közelítésben a (38) egyenletben szereplő $\partial_z v_z = 0$ helyett $\partial_z^2 v_z = 0$ határfeltételt követeltek meg, ami a tapasztalattal ellentétesen, a határoló felületen $v_x \neq 0$ sebességkomponenst is megenged. Cserébe a diszperziós reláció úgy módosul, hogy a $\bar{\mu}_k^*(q^{*2})$ sajátértékek analitikusan számolhatók [43,109]:

$$\bar{\mu}_{k}^{*} = \frac{(2k-1)^{2} + \frac{K_{3}}{K_{1}}q^{*2}}{1 - \frac{(\alpha_{2}q^{*2} - \alpha_{3})^{2}(2k-1)^{2}}{\eta_{2}(2k-1)^{4} + \eta_{r}q^{*2}(2k-1)^{2} + \eta_{1}q^{*4}}},$$
(40)

és hozzájuk egyszerű, $\bar{n}_k(z^*, q^*) = \cos[(2k-1)z^*]$ profilú módusok tartoznak. A (40) egyenletben

$$\eta_1 = (-\alpha_2 + \alpha_4 + \alpha_5)/2, \quad \eta_2 = (\alpha_3 + \alpha_4 + \alpha_6)/2, \quad \eta_r = \eta_1 + \eta_2 + \alpha_1$$
(41)

a viszkozitási együtthatók kombinációi. A (40) egyenletből számolt $\bar{\mu}_k^*(q^{*2})$ sajátértékek q^{*2} -függését a 23b. ábra szemlélteti. Látható, hogy a $\bar{\mu}_k^*(q^{*2})$ görbék meredekségében nincs hirtelen változás, viszont a különböző $\bar{\mu}_k^*(q^{*2})$ görbék átmetszik egymást.

Az EC mintázatoknak megfelelő periodikus direktor moduláció optikai rácsként viselkedik, így lézerrel átvilágítva a fény diffraktálódik. Az egyes diffrakciós rendek α_k eltérülési szöge [lásd a (22) egyenletet] és I_k intenzitása a törésmutatók mellett a megvilágító fény λ és a mintázat Λ hullámhosszától, a β beesési szögtől, a direktor moduláció A amplitudójától és a direktorprofiltól is függ. Az I_k diffraktált intenzitásra $n_z \propto \cos(z^*)$ direktorprofil feltételezésével kaptak analitikus becslést [110]:

$$I_k = B_k (J_k (QA))^2. \tag{42}$$

Itt B_k és Q a törésmutatóktól, a beesési szögtől és a direktorprofil alakjától függő állandók, J_k pedig az elsőfajú, k-ad rendű Bessel-függvény.



23. ábra: A dimenziótlan lebomlási sebességnek az N5/N5A paramétereivel számolt elméleti q^{*2} függése [S2]. (a) A (38) határfeltételeket kielégítő diszperziós reláció alsó tíz $\mu_k^*(q^{*2})$ ága. (b) Az egymódusú közelítésben kapott diszperziós reláció első tíz $\bar{\mu}_k^*(q^{*2})$ ága. A páratlan *k* értékeknek folytonos vonal, a párosaknak pont-vonással jelölt görbe felel meg. A betéti ábrák kinagyítva mutatják a kis q^{*2} -nek megfelelő tartományt.



24. ábra: Az N5/N5A paramétereivel számolt, különböző q^{*2} -hez tartozó, normált $\hat{n}_k(z^*, q^*)$ direktorprofilok: (a) k = 1 és $q^{*2} = 1$ (folytonos vonal), $q^{*2} = 10$ (szaggatott vonal) és $q^{*2} = 100$ (pontozott vonal) esetén; (b) k = 10 és $q^{*2} = 40$ (folytonos vonal), $q^{*2} = 58$ (szaggatott vonal) és $q^{*2} = 76$ (pontozott vonal) esetén [S2].

A diffrakciós optikai számítások összetettebb direktorprofil, így a (39) egyenletben szereplő $\hat{n}_k(z^*,q^*)$ sajátmódusok esetére is általánosíthatók. A számítások eredményeképpen minden sajátmódushoz hozzárendelhetünk egy c_k^{opt} diffrakciós hatásfokot [S3], melynek segítségével a mintázat lebomlása során a (39) egyenlet szerinti direktoreloszláshoz tartozóan a diffrakció első rendjének intenzitása

$$I_1 = A^2 C_q \left| \sum_{k=1}^{\infty} c_k^{\text{opt}} w_k e^{-\mu_k^* t^*} \right|^2,$$
(43)

ahol C_q a módusoktól független, de q^* -függő tényező. A c_k^{opt} diffrakciós hatásfok és a w_k súlyok q^* -függésével a V.2.2. fejezetben, a kísérletekkel való összehasonlítás kapcsán foglalkozunk.

V.2.2. Saját eredmények

Az elektrokonvekciós mintázatoknak a feszültség kikapcsolását követő lebomlását planáris N5, illetve N5A mintákon lézerdiffrakcióval vizsgáltuk. A tapasztalatok azt mutatták, hogy a mintázat lebomlása során a hullámvektor változatlan marad, azaz a diffrakciós folt helyzete nem, csak az intenzitása változik. A mérésnél a merőlegestől $\beta = 5$ fokban eltérő, ferde fénybeesést alkalmaztunk, ami jelentősen megnövelte az elsőrendű diffrakciós folt láthatóságát, vagyis az I1 diffraktált intenzitást, aminek időbeli változását fotoelektronsokszorozó és 16 bites analóg-digitális konverter, illetve nagyobb frekvenciák esetén 8 bites digitális oszcilloszkóp segítségével mértük.

A 25. ábrán különböző amplitudójú gerjesztő feszültség lekapcsolásakor kapott tipikus $I_1(t)$ görbéket mutatunk be [S2]. Közvetlenül a kikapcsolás után az intenzitás változása még nem szükségszerűen monoton. Ez összhangban van a (42) egyenlettel, mert a J_1 Bessel-függvény az argumentum elég nagy értékénél (azaz nagy deformáció esetén) nem monoton. A mintázat lebomlásának végső szakaszában (kb. amikor I1 a maximális intezitás harmada alá csökken) azonban már az intenzitás exponenciális lecsengését $(I_1(t) \propto \exp(-t/\tau))$ tapasztalhatjuk. Ekkor a kis amplitudó miatt már használhatjuk az $I_1 \propto A^2$ közelítést, amiből a diffraktált intenzitás illesztéssel kapott τ időállandója és a (36) egyenletben bevezetett μ^* lebomlási sebesség között a $\tau^{-1}\tau_d = 2\mu^*$ összefüggés adódik.

A kísérleti vizsgálatok célja a lebomlási sebesség q^* -függésének kimérése és ezáltal a V.2.1. fejezetben ismertetett elméleti számítások igazolása volt. A III.3.3. fejezetben láttuk, hogy az EC mintázat hullámszáma a gerjesztő frekvenciától függ. Célunkat így különböző frekvenciájú váltófeszültséggel gerjesztett EC mintázatok lebomlásának vizsgálatával érhettük el. A minél szélesebb q^{*2} tartomány lefedése érdekében két cellát használtunk: a $d = 28 \ \mu m$ vastag N5A mintán vezetési merőleges hengerek alakultak ki a 200 $Hz \le f \le 1380 Hz$ frekvenciatartományban (1,4 $\le q^{*2} \le 11,3$), míg a vékonyabb (d = 9,2μm) és kisebb vezetőképességű N5 mintán dielektromos merőleges hengereket találtunk f > 100 Hz esetén, ezáltal a $14 \le q^{*2} \le 38$ tartomány vált elérhetővé.

A mért (azaz illesztéssel kapott) μ^* dimenziótlan lebomlási sebességnek a dimenziótlan q^{*2} -től való függését a 26a. ábrán mutatjuk be a vezetési EC tartományban, a 26b.



25. ábra: Az I_1 elsőrendű diffraktált intenzitás tipikus, a gerjesztő feszültség lekapcsolását követő időfüggése különböző feszültségamplitudók esetén [S2]. $d = 28 \ \mu \text{m}$ vastag N5A minta, a gerjesztő frekvencia f = 1200 Hz. Az egyes görbékhez tartozó $\varepsilon = (U^2 - U_c^2)/U_c^2$ dimenziótlan kontroll paraméterek értékei: $\varepsilon = 0,009$ (folytonos vonal), $\varepsilon = 0,019$ (szaggatott vonal) és $\varepsilon = 0,066$ (pontozott vonal).



26. ábra: A mért dimenziótlan lebomlási sebesség függése a dimenziótlan q^{*2} -től N5/N5A mintákban, (a) az elektrokonvekció vezetési tartományában (körök); (b) az elektrokonvekció dielektromos tartományában (háromszögek). A folytonos és a pont-vonással jelölt görbék az elméletileg számolt diszperziós reláció első 8 ágának felelnek meg. $\mu_1^*(q^{*2})$ az egymódusú közelítésben számolt első sajátérték (szaggatott vonal) [S2].

ábrán pedig a teljes, a dielektromos EC-t is tartalmazó tartományban. Összehasonlításképpen az ábrán feltüntettük a számolt μ_1^* , ..., μ_8^* sajátértékekhez, illetve az egymódusú közelítésben kapott $\bar{\mu}_1^*$ -hoz tartozó görbéket is.

Megállapíthatjuk, hogy bár a mért $\mu^*(q^{*2})$ görbe kvalitatíven jól követi a (40) egyenletnek megfelelő közelítő $\bar{\mu}_1^*(q^{*2})$ formulát, de attól a vezetési EC tartományában konzekvensen lefelé eltér. Ugyanakkor a mért értékek a q^{*2} tartomány nagy részében kiválóan ráülnek valamelyik $\mu_k^*(q^{*2})$ görbe nagyobb meredekségű szakaszára, leszámítva azon keskeny q^{*2} sávokat, ahol az átváltás az egyik módusról a következőre bekövetkezik [S2]. Ugyanez lényegében nagy q^{*2} értékeknél, a dielektromos EC esetén is elmondható, bár ott az eltérés nagyobb és nem monoton, köszönhetően annak, hogy az ott mért μ^* értékek

bizonytalanabbak a rosszabb intenzitás-felbontás miatt.

A mért adatokból egyértelműen következik, hogy az a naív várakozásunk, miszerint a lecsengés végső (még mérhető) szakaszában a leglassabb módust fogjuk látni, nem teljesül. Helyette, minél nagyobb q^{*2} , annál nagyobb k-val jellemzett módus lesz a domináns, vagyis a diszperziós reláció annál magasabb μ_k^* ágára kerülünk. Hogy melyik módus a domináns (melyik módus w_k súlya a legnagyobb), a (39) egyenlet szerint kezdőfeltételként az EC direktorprofiljától függ. E profilt az egymódusú közelítésnek megfelelő $\bar{n}_1(z^*, q^*) = \cos(z^*)$ függvénnyel közelítve kiszámolhatjuk a $w_k(q^{*2})$ súlyfüggvényeket, melyeket a 27. ábrán mutatunk be. Látható, hogy minden q^{*2} értékhez egy (pontosabban az átváltásoknál legfeljebb kettő) uralkodó módus tartozik, ami a mintázat lebomlásának dinamikáját meghatározza. Pontosabb direktorprofilt az SM lineáris stabilitás analíziséből kaphatunk. A különböző meghajtó frekvenciákra elvégzett szimulációk megadják mind az adott frekvenciához tartozó q^* -t, mind pedig a kapott direktorprofilból a w_k súlyokat, melyeket a 27. ábrán a szimbólumok reprezentálnak. Megállapíthatjuk, hogy a szimbólumok jól egybeesnek az egymódusú közelítéshez tartozó görbékkel. Ez arra utal, hogy $\bar{n}_1(z^*, q^*)$ jól közelíti az EC tényleges direktorprofilját. A 27. ábrából továbbá azt a következtetést is levonhatjuk, hogy azon q^{*2} tartományban, ahol egy $w_k(q^{*2})$ görbének maximuma van, a $\hat{n}_k(z^*, q^*)$ uralkodó módus direktorprofilja csak kevéssé különbözhet $\bar{n}_1(z^*, q^*)$ -től, amit a számítások természetesen megerősítenek (lásd a 24. ábrát). A 23., 26. és 27. ábrák összevetéséből az is egyértelmű, hogy a maximális w_k -hoz tartozó q^{*2} tartomány a diszperziós reláció $\mu_k^*(q^{*2})$ ágán az első nagy meredekségű szakasznak felel meg [S2].



27. ábra: A $\hat{n}_k(z^*, q^*)$ lebomlási módusok w_k súlyfüggvényei a dimenziótlan q^{*2} függvényében P5/P5A mintákban (a) a kis q^{*2} , illetve (b) a nagy q^{*2} tartományban. A vonalak a közelítő $\bar{n}_1(z^*, q^*)$ kezdeti direktorprofilhoz, a szimbólumok a lineáris stabilitás analízisből kapott tényleges direktorprofilhoz tartoznak [S3].

Bár az eddig leírtak már önmagukban is magyarázzák a uralkodó módusok kiválasztódását, a használt kísérleti módszer (a lézerdiffrakció intenzitásának nyomonkövetése) is hozzájárul a dominancia növeléséhez. A diffraktált intenzitást megadó (42) egyenletben bevezetett c_k^{opt} diffrakciós hatásfok ugyanis szintén nem monoton függvénye q^{*2} -nek, sőt körülbelül ugyanabban a q^{*2} tartományban rendelkezik maximummal, ahol w_k , és ahol a direktorprofil közel koszinusz alakú [S3]. Ezt az első három módus esetére a 28. ábrán szemléltetjük.



28. ábra: Az első három $\hat{n}_k(z^*, q^*)$ lebomlási módus c_1^{opt} (folytonos vonal), c_2^{opt} (pontozott vonal), illetve c_3^{opt} (szaggatott vonal) diffrakciós hatásfoka a dimenziótlan q^{*2} függvényében, N5/N5A paraméterekkel számolva [S3].

A fentiek alapján egyértelmű, hogy az EC mintázat lebomlásának dinamikáját az uralkodó módus(ok) határozzák meg. Ennek megváltoztatására csak a kezdeti feltétel, azaz az EC direktorprofiljának módosítása adhat lehetőséget. Ez csak az U_c küszöböt jóval meghaladó U feszültségek (jócskán a nemlineáris tartományba eső mintázat amplitudók) és/vagy a meghajtó feszültség jelalakjának megváltoztatása (pl. szinuszosról négyszögjelre) esetén valósulhat meg. A rendezett mintázat azonban már a feszültség kis növelése során is instabillá válhat a hibahelyek (diszlokációpárok) képződésével szemben, ami a fényszórás növekedésével, azaz a diffrakciós folt élességének és intenzitásának csökkenésével, és ezáltal a mérési felbontás csökkenésével jár. Szerencsére a direktor elfordulása a feszültségnövekedés hatására gyorsabban (~ 100 ms alatt) bekövetkezik, mint a hibahelyek megjelenése (> 1 s). Így közvetlenül a feszültség lekapcsolása előtt rövid, Δt ideig adott, nagyobb feszültségimpulzussal (29a. és 29b. ábrák) a direktor dőlésszöge a mintázat rendezettségének csökkenése nélkül megnövelhető, amit az I_1 diffrakciós intenzitás időfüggésének változása (29c. ábra) igazol [vesd össze a (42) egyenlettel] [S3].

A kísérletek azt mutatták, hogy a feszültségimpulzust négyszögjelű meghajtással kombinálva (azaz a 29b. ábra szerinti jelalakkal történő gerjesztéssel) lehet a lebomlási sebességet érdemben módosítani . A 30. ábrán összehasonlítjuk az utóbbi körülmények között mért lebomlási sebességeket a 26. ábrán bemutatottakkal. A gerjesztés megváltoztatásával a lebomlási sebességek csökkenését tapasztaltuk; a legnagyobb változást a nagy q^{*2} tartományban, azaz a dielektromos EC esetén figyeltük meg [S3].

Az e fejezetben bemutatott eredményeket a T2 tézispont összegzi.

V.3. Elektrokonvekció alacsony frekvenciás gerjesztésnél

A III.3. fejezetben ismertetett és a V.1., V.2., V.4., VI. és VII. fejezetekben részleteiben taglalt elektrokonvekciós jelenségek közös jellemzője, hogy a gerjesztő feszültség T = 1/f periódusideje sokkal kisebb a mintázat kifejlődésének, illetve lebomlásának sebességét meghatározó τ_d direktor relaxációs időnél ($T \ll \tau_d$). E fejezetben az ellenkező



29. ábra: Impulzussal kombinált meghajtó jelalak (a) szinuszos, illetve (b) négyszögjel esetén. A kikapcsolást megelőző Δt időtartamra a feszültséget $U_1 > U_c$ -ről $U_2 > U_1$ -re növeljük. (c) Az I_1 elsőrendű diffraktált intenzitásnak az impulzussal kombinált szinuszos gerjesztő feszültség lekapcsolását követő időfüggése különböző Δt impulzusszélesség esetén [S3]. $d = 28 \ \mu m$ vastag N5A minta, $f = 1200 \ \text{Hz}$, $\varepsilon_1 = (U_1^2 - U_c^2)/U_c^2 = 0.02$, $\varepsilon_2 = (U_2^2 - U_c^2)/U_c^2 = 0.18$. Folytonos vonal: $\Delta t = 0$, szaggatott vonal: $\Delta t = 0.1$ s és pontozott vonal: $\Delta t = 0.2$ s.



30. ábra: A mért dimenziótlan lebomlási sebesség függése a dimenziótlan q^{*2} -től N5/N5A mintákban, (a) az elektrokonvekció vezetési tartományában; (b) az elektrokonvekció dielektromos tartományában. A folytonos és a pont-vonással jelölt görbék az elméletileg számolt diszperziós reláció első 8 ágának felelnek meg. Az üres körök és háromszögek feszültségimpulzus nélküli ($\Delta t = 0$) szinuszos, a tele négyzetek és rombuszok impulzussal kombinált ($\Delta t = 0,2$ s) négyszögjelű meghajtásra vonatkoznak [S3].

végletnek ($T \gg \tau_d$) megfelelő, extrém alacsony (f < 1 Hz) frekvenciájú gerjesztések hatását mutatjuk be.

V.3.1. Előzmények

A $\tau_d \ll T$ határeset érdekességét az adja, hogy extrém alacsony meghajtó frekvenciáknál *T* elég hosszú ahhoz, hogy a mintázat egy perióduson belül ki tudjon alakulni és le is tudjon bomlani. A nagyobb frekvenciákon tapasztalttól eltérő viselkedés tehát elsősorban a periódusidőn belüli időfejlődésben érhető tetten.

Az f < 1 Hz frekvenciatartományban az úttörő vizsgálatokat kis elektromos vezetőképességű N4 folyadékkristályon végezték [46], mely egészen alacsony frekvenciákig is dielektromos EC mintázatokat produkált (a vezetési tartomány hiányzott). E mérések megmutatták, hogy az EC mintázat csak az időben T/2 periódussal ismétlődő felvillanások formájában, a gerjesztés félperiódusának töredékében van jelen. Az is kiderült továbbá, hogy elég alacsony f esetén az elsődleges instabilitás nem elektrokonvekció, hanem flexodomének formájában jelentkezik, annak köszönhetően, hogy a flexodomének és a dielektromos EC $U_c(f)$ küszöbgörbéi átmetszik egymást.

A felvillanásokat naivan azzal magyarázhatnánk, hogy a mintázat akkor jelenik meg, amikor a szinuszos feszültség U(t) pillanatnyi értéke meghalad egy küszöbértéket és akkor tűnik el, amikor a feszültség e küszöbérték alá csökken. A mérések szerint azonban ez már a flexodomének esetében is csak közelítőleg, némi fáziskéséssel teljesül, míg EC esetében egyáltalán nem áll fenn. Az EC felvillanás időpontja inkább a feszültség nullaátmenetéhez áll közel, mint a feszültség maximumához. Mindez azt is jelenti, hogy az EC és FD mintázatok a periódus más időablakában vannak jelen, vagyis elegendően nagy feszültségamplitudó esetén mindkettő megfigyelhető: a dielektromos EC felvillanását a flexodomének felvillanása követi ugyanazon félperióduson belül [46].

Itt emlékeztetnünk kell arra, hogy mint azt a III.3.2. fejezetben említettük, a standard elektrokonvekció két típusát, a vezetési és a dielektromos mintázatot is a periódusidőn belüli viselkedés különbözteti meg. A dielektromos EC mintázatban a direktor *z* irányú komponense a meghajtó feszültséggel oszcillál, az $n_z = 0$ állapoton ismétlődően áthaladva az időátlaga nulla ($\langle n_z \rangle = 0$). A vezetési EC mintázatot azonban $\langle n_z \rangle \neq 0$ jellemzi, ami a hangfrekvenciás tartományban közel állandó n_z -nek felel meg. Ezen elméleti következtetést diffrakciós mérések igazolták [E12].

Mindezek fényében az alacsony frekvenciás dielektromos EC felvillanások akár az $n_z = 0$ állapot időtartamának meghosszabbodása következményeként is értelmezhetők. A vezetési EC mintázat esetén viszont egy cseppet sem volt triviális, hogy extrém alacsony frekvenciákon stacionárius vagy felvillanásokból álló mintázatot kapunk-e, illetve ha az utóbbi áll fenn, akkor hogyan történik meg az átmenet a frekvencia csökkentésével. Célunk így e kérdések eldöntése érdekében a vezetési EC mintázat alacsony frekvenciás tulajdonságainak feltérképezése volt.

V.3.2. Saját eredmények

A vezetési EC mintázat jellemzőinek a frekvencia csökkenése során bekövetkező változását $d = 11,3 \ \mu$ m vastag N5 folyadékkristály mintán tanulmányoztuk. A mintázat küszöbfeszültségének frekvenciafüggését bemutató 31a. ábrán látható, hogy vezetési mintázatot $f < 230 \ Hz$ esetén találtunk. A küszöbfeszültség a frekvenciával monoton csökken, kivéve az extrém alacsony ($f < 0,2 \ Hz$) frekvenciatartományt, ahol a 31b. ábra szerinti erős küszöbnövekedést tapasztaltuk, aminek okát később taglaljuk.

A frekvencia csökkentésének a mintázatra gyakorolt hatását a maximális értékkel normált $C_N(t)$ kontrasztnak a perióduson belüli időfüggésén (32a. ábra) keresztül mu-

tatjuk be. Nagy frekvencián (f = 100 Hz) a kontraszt közel állandó; közepes frekvencián (f = 10 Hz) $C_{\rm N}(t)$ a perióduson belül közel szinuszosan modulálódik; alacsony frekvencián ($f \leq 1$ Hz) a moduláció mértéke megnő, a kontraszt minimuma nullára lecsökken és egy ideig ott is marad. Ez azt jelenti, hogy ezen extrém alacsony frekvenciákon a vezetési mintázat is csak felvillanások formájában létezik [S5–S8], ugyanúgy, ahogy azt a dielektromos EC esetében a V.3.1. fejezetben láttuk. A kontraszt nagysága az árnyékleképezés eredményeképpen a direktornak a mintán belüli maximális kihajlásától, azaz n_z -től függ. Öszehasonlításképpen, a 32b. ábrán bemutatjuk az SM lineáris stabilitás analízise során az $n_z(t)$ függvényre kapott szimuláció eredményét. Láthatóan a mért $C_{\rm N}(t)$ és a számolt $n_z(t)$ függvények perióduson belüli időfüggésének jellege rendkívül jó egyezést mutat.

A stacionárius vezetési EC mintázatból a vezetési EC felvillanásokba történő átmenet nyomon követésére használhatjuk a $C_r(f)$ relatív kontraszt modulációt (a normált kontraszt maximumának és minimumának különbségét), amit a 32c. ábrán mutatunk be. Láthatóan az átmenet folytonos; $C_r(f)$ jól illeszthető az $[1 + (\omega \tau)^2]^{-1}$ függvénnyel $\tau = 0,0184$ s esetén. Minthogy a vizsgált mintára a direktor relaxációs idő $\tau_d = 0,147$ s, a fenti érték $\tau = \tau_d/8$ -nak adódik, ami összhangban van azzal, hogy a felvillanásoknál a mintázat minden periódusban kétszer felépül és lebomlik [S5, S6].

Rögzített extrém alacsony frekvencián a *C* kontraszt nagysága az alkalmazott feszültség *U* effektív értékétől függ, amint azt a 33a. ábrán láthatjuk. Kis feszültségnél *C* kicsi és a periódusidőn belül állandó. Az elektrokonvekció küszöbfeszültségét elérve mindkét félperiódus elején megjelenik az EC mintázat (33b. ábra) felvillanásához tartozó kontrasztcsúcs. A feszültség további növelése, az EC csúcs nagyságának növelése mellett, mindkét félperiódusban egy második kontrasztcsúcs kiemelkedéséhez vezet, ami a flexodomén mintázat (33c. ábra) felvillanását jelzi [S5]. A kétféle kontrasztcsúcs időben jól elkülönül egymástól, azaz a vezetési EC és az FD mintázatok felvillanásai folyamatosan váltakoznak úgy, hogy a köztes időintervallumokban a mintázat lebomlik [S5–S8]. Ezen viselkedés jellegét tekintve megegyezik azzal, amit az alacsony frekvenciás dielektromos EC esetén megfigyeltek [46].



31. ábra: (a) Az EC mintázat U_c küszöbfeszültségének frekvenciafüggése; (b) az $U_c(f)$ görbe alacsony frevenciás része kinagyítva [S6]. A korrigált küszöb értékeknél figyelembe vettük a cellán belüli feszültségosztást. N5 minta, $d = 11,3 \mu m$.

dc_1584_18



32. ábra: (a) A mért normált kontraszt és (b) a direktor n_z komponensének a minta közepére számolt normált értékének időfüggése különböző frekvenciájú meghajtó feszültségek egy periódusán belül. (c) A $C_r(f)$ relatív kontraszt moduláció frekvenciafüggése [S5]. N5 minta, $d = 11,3 \mu$ m.



33. ábra: (a) Az EC mintázat kontrasztjának perióduson belüli időfüggése különböző meghajtó feszültségeknél. Tipikus mintázat morfológiák: (b) vezetési EC ferde hengerek mintázat, (c) flexodomének [S5]. N5 minta, d = 11,3 μm.



34. ábra: A mintázat maximális kontrasztjának helye a perióduson belül (a) elektrokonvekció, (b) flexodomének esetén. A szimbólumok a mért értékek (a korrigált értékeknél figyelembe vettük a cellán belüli feszültségosztásból adódó fázistolást), a folytonos vonal a lineáris stabilitás analízis alapján várt elméleti görbe [S5]. N5 minta, $d = 11,3 \mu$ m.

Az, hogy a mintázat felvillanása a perióduson belül mikor következik be, a meghajtó váltófeszültség frekvenciájától függ. Ennek jellemzése céljából célszerű bevezetni a $t_{\rm EC}$, illetve t_{FD} időtartamokat, amik azt mutatják, hogy a feszültség nullaátmenete után mennyi idővel érjük el az EC, illetve az FD mintázathoz tartozó kontraszt maximális értékét. A felvillanások perióduson belüli helyzetének frekvenciafüggését ($t_{\rm EC}/T$, illetve $t_{\rm FD}/T$) a 34a. és 34b. ábrák mutatják. Láthatóan a mért értékek (tele szimbólumok) a frekvencia csökkenésével egyre jobban eltérnek (kisebbek lesznek) az SM lineáris stabilitás analíziséből kapott elméleti várakozásoktól (folytonos görbe). Az eltérés egyik okának a cellán belüli, a IV.2. fejezetben már említett, feszültségosztás és fázistolás tekinthető, ami a használt extrém alacsony frekvenciákon válik számottevővé. A 15b. ábra elektromos helyettesítő képében szereplő impedanciák sajnos közvetlenül nem mérhetőek, hatásuk azonban a cellán átfolyó áram Φ fázisának frekvenciafüggésében (35. ábra) tetten érhető. A fázis nem monoton viselkedését a helyettesítő kép impedanciáinak alkalmas megválasztásával értelmezhetjük (folytonos görbe a 35. ábrán). Az így becsült impedanciák ismeretében egyrészt korrigálhatjuk a mért frekvenciafüggő küszöbfeszültséget a mintára adott U feszültség helyett a folyadékkristályra ténylegesen jutó, (20) szerinti $U_{\rm LC}$ értéket használva (csillagok a 31. ábrán), miáltal a 31b. ábrán az alacsonyfrekvenciás küszöbnövekedés jórészt eltűnik. Másrészt módosíthatjuk a 34. ábra $t_{\rm EC}/T$ és $t_{\rm FD}/T$ értékeit azáltal, hogy a t = 0 időpontnak nem a cellára kapcsolt U feszültség, hanem a (20) szerinti U_{LC} nullaátmenetét tekintjük, ahogy azt az elmélet is teszi. A flexodomének felvillanását jellemző, a 34b. ábrán csillagokkal jelölt, módosított $t_{\rm FD}/T$ értékek már megfelelnek az elméleti várakozásoknak, míg az elektrokonvekció esetében (34a. ábra) bár jelentősen csökkent mértékben, azért marad eltérés a $t_{\rm EC}/T$ értékekben [S5].

A maradék eltérés magyarázatához a 36. ábra nyújthat támpontot, amin látható, hogy az EC mintázat felvillanásához tartozó kontrasztcsúcs maximuma egybeesik a cellán átfolyó áram maximumával [S7]. Az áramcsúcs abból adódik, hogy a folyadékkristály vezetőképességét adó ionok nagy része a feszültség polaritásváltásakor átvándorol az egyik elektródáról a másikra. Úgy tűnik, hogy az EC instabilitást ezen áramcsúcs indítja be,



35. ábra: A cellán átfolyó áram fázisának frekvenciafüggése. A folytonos vonal mutatja a fázismenetet a 15b. ábra szerinti helyettesítő kép és $R_{\rm PI} = 140 \text{ M}\Omega$, $C_{\rm PI} = 189 \text{ nF}$, $R_{\rm LC} = 16 \text{ M}\Omega$, $C_{\rm LC} = 400 \text{ pF}$ esetén [S5].



36. ábra: (a) A cellára kapcsolt U feszültségnek, (b) a cellán átfolyó I áramnak és (c) a mintázat C kontrasztjának a T periódusidőn belüli időfüggése. Az EC kontraszt- és az áramcsúcsok maximumának időpontjai (szaggatott vonalak) egybeesnek [S7]. 1008 minta, $d = 10.4 \mu \text{m}, f = 50 \text{ mHz}, U = 18 \text{ V}.$

korábban, mint az az ionos áramcsúcs nélkül, tisztán ohmos vezetőképesség mellett bekövetkezne. E feltevés megalapozottnak tűnik, mert az SM szerint az elektrokonvekció, a flexodoménekkel ellentétben nem feszültséggel, hanem árammal indukált instabilitás. Mindazonáltal e feltevés igazolása az SM-től nem várható, mert az ionos folyamatok kívül esnek az SM hatókörén. Helyette a V.1. fejezetben bemutatott gyenge elektrolit modell (WEM) alkalmazására lenne szükség, de erre egyelőre nem adottak a feltételek. Numerikusan egyelőre a váltófeszültség hatására mintázatmentes, izotróp dielektromos rétegben kialakuló áramcsúcsokat szimulálták [111].

Összefoglalásként megállapíthatjuk, hogy extrém alacsony frekvenciájú, szinuszos jelalakú feszültséggel gerjesztés esetén mintázat csak a periódusidő tört részére kiterjedő felvillanás formájában létezik, függetlenül attól, hogy vezetési vagy dielektromos EC-ről vagy flexodoménről van szó. Mi több, ilyen gerjesztésnél még az egyszerű homogén Freedericksz-deformáció időbeli lefutása is hasonló (felvillanásokból álló) jelleggel bír [112]. Továbbá, a felvillanások periódusidőn belüli időpontját és a küszöbfeszültségeket nagy mértékben befolyásolja a folyadékkristály cellán belüli feszültségosztás és fázistolás.

Megjegyezzük, hogy az extrém alacsony frekvenciájú elektromos gerjesztésre adott válasz lényegesen függ a gerjesztés jelalakjától. Négyszögjelű meghajtás esetén például eltérő viselkedést találunk. A négyszögjel polaritásváltása már kis amplitudónál is elekt-rokonvekciót (ferde hengereket) indukál, ami a félperiódus végére az egyenfeszültségű gerjesztéshez tartozó állapot felé relaxál [E19]. Ezen állapot a folyadékkristálytól és a négyszögjel amplitudójától függően lehet a torzítatlan homogén állapot, dc EC vagy fle-xodomén mintázat.

Az alacsony frekvenciás gerjesztéshez kapcsolódó, fent ismertetett eredményeket a T3 tézispontban összegeztem.

V.4. Mintázatképződés szuperponált egyen- és váltófeszültség hatására

Az eddig bemutatott elektrokonvekciós jelenségek mindegyikét a mintára kapcsolt váltófeszültség hozta elő. Mindez azonban nem jelenti azt, hogy egyenfeszültséggel nem lehet mintázatokat kelteni. Éppen ellenkezőleg, a folyadékkristályokban ismert elektrooptikai effektusok szinte mindegyike (pl. Freedericksz-átmenet, flexodomének, EC mintázatok) előidézhető egyenfeszültséggel is. Ebben a fejezetben azt taglaljuk, hogyan változik a mintázatképződés, ha a mintára egyen- és váltófeszültség szuperpozícióját kapcsoljuk.

V.4.1. Előzmények

A III.3.1. fejezetben bevezetett SM egyenfeszültséggel indukált mintázatok elméleti leírására is alkalmas, ha az egyenletekben (f = 0 következtében) minden időderiváltat elhagyunk. Kétfajta mintázatképződést kapunk eredményül: flexodoméneket és elektrokonvekciót. E két jelenség küszöbfeszültségét az anyagi és cellaparaméterek eltérő kombinációja adja meg; közülük az valósul meg, amelyiknek alacsonyabb a küszöbe.

Az egyenfeszültségű mintázatképződés kísérleti vizsgálata meglehetősen szegényes. Ebben szerepet játszhat, hogy egyenfeszültség hatására még feltérképezetlen elektrokémiai folyamatok indulhatnak be, amik a folyadékkristály részleges bomlását eredményezhetik. Ez indokolja, hogy a folyadékkristály kijelzőket szigorúan egyenfeszültségű komponens nélküli jelekkel szabad csak meghajtani. További problémát okoz a folyadékkristály ionos vezetőképessége. Az ionok mennyisége és milyensége kísérletileg nem jól kézbentartható; a vezetőképesség időben és, mint azt a V.4.2. fejezetben látni fogjuk, egyenfeszültség hatására változhat. Az elektróda-közeli ionos kettősrétegek erősen inhomogénné teszik a cellában az elektromos teret, valamint a cellán belüli feszültségosztás (IV.2. fejezet) sem elhanyagolható. Mindezen folyamatok, melyeket az SM nem kezel, károsan befolyásolják a kísérleti adatok reprodukálhatóságát.

Az egyenfeszültséggel (dc) keltett EC mintázat időszimmetriája elvileg különbözik a korábban megismert, váltófeszültséggel (ac) keltett vezetési és dielektromos mintázato-

kétól, hiszen a deformációt jellemző három alapmennyiség (a direktor, a sebesség és a tértöltéseloszlás) mindegyike állandó a dc EC esetén, míg az ac vezetési és dielektromos EC esetében ezek valamelyike mindig oszcillál (vagyis előjelet vált) a meghajtó feszültséggel. Ennek következtében a dc (f = 0) eset nem azonos az $f \rightarrow 0$ ac határesettel, még akkor sem, ha a dc EC morfológiája (hullámvektora) és küszöbfeszültsége nem tér el nagyon az alacsony frekvenciás ac vezetési EC mintázatétól.

Ezen időszimmetriák közötti eltérés teszi érdekessé a szuperponált egyen- és váltófeszültséggel történő meghajtás mintázatképződésre gyakorolt hatásának vizsgálatát. A szuperpozíció következményei elméleti szempontból cseppet sem triviálisak. Minthogy az egyenletek a feszültségben lineáris és kvadratikus tagokat egyaránt tartalmaznak, a megoldást nem lehet egyszerűen a dc, az ac vezetési és az ac dielektromos EC módusokból kikeverni. Mindenesetre az SM numerikus lineáris stabilitás analíziséből meghatározható az U_{dc} egyen- és U_{ac} váltófeszültség szuperpozíciójához tartozó $U_c^{dc}(U_c^{ac})$ stabilitási határgörbe (stability limit curve, SLC). Az U_{ac} – U_{dc} síknegyeden az U_{ac} és U_{dc} tengelyek és az SLC által határolt zárt tartomány belsejében megmarad az eredeti, homogén planáris struktúra, míg az SLC-t átlépve megjelenik a mintázat.

Minthogy az ac mintázat lehet vezetési EC (alacsony f) vagy dielektromos EC (nagy f), a dc mintázat pedig EC vagy pedig flexodomén, négy alapesetre kell tekintettel lenni. A 37. ábrán e négy alapesethez számolt stabilitási határgörbét szemléltetjük [S10]. A számításokat a 2. táblázatban megadott anyagi paraméterekkel végeztük. A flexoelektromos együtthatók önkényes $e_1 = e_3 = 0$ megválasztásával egyenfeszültségnél az EC küszöbe alacsonyabb (37a. és 37b. ábrák), míg $e_1 = 12 \text{ pC/m}, e_3 = 0$ választással egyenfeszültségen flexodoméneket kapunk (37c. és 37d. ábrák). A vízszintes tengelytől az SLC mentén haladva a függőleges tengelyig nyomon követhetjük, hogy a kiterjesztett SM szerint hogyan kellene a váltófeszültségű mintázatnak az egyenfeszültségűbe átalakulnia. Láthatóan ez az átalakulás csak a 37a. ábrán sima; ekkor a mintázat hullámhossza és hullámvektorának iránya is az SLC mentén folytonosan változik. A másik három esetben viszont az SLC két szakaszra bomlik, melyek a görbéken tele körrel jelölt pontokban találkozva morfológiai átalakulás szükségességét mutatják. E pontokban mind a hullámhossznak, mind a hullámvektor irányának ugrása várható. A görbékből látható, hogy mindegyik alapesetben az egyenfeszültség hozzáadása (az SLC alsó, vízszintes tengelyből induló ága) a váltófeszültségű küszöb csökkenését eredményezi. Ezzel ellentétben váltófeszültség hozzáadása (az SLC felső, függőleges tengelyből induló ága) többnyire (a 37a. ábra kivételével) az egyenfeszültségű küszöb növekedéséhez vezet.

Szuperponált egyen- és váltófeszültségű gerjesztés esetén az elektrokonvekciót korábban nem vizsgálták. Egyenfeszültséggel keltett flexodomének esetén ugyan tanulmányozták a váltófeszültségű előfeszítés hatását, ami a 37c. és 37d. ábrák szerinti várakozásoknak megfelelően az egyenfeszültségű küszöb emelkedését eredményezte, de e vizsgálatok csak a stabilitási határgörbének a felső szakaszára korlátozódtak [113, 114].

Célunk így a feszültség-szuperpozíció hatásának a mind a négy alapesetre kiterjedő, részletes feltérképezése volt. A megválaszolandó kérdések: Mikor okozza az eltérő szimmetriájú feszültségek keverése a küszöbök csökkenését, illetve emelkedését? Mennyire követik a mérési eredmények az elmélet által jósolt viselkedést, illetve eltérés esetén mi lehet annak a forrása?



37. ábra: Elméleti stabilitási határgörbe az U_{ac}-U_{dc} síknegyedben a négy alapesetben: (a) egyenfeszültségnél dc EC, váltófeszültségnél vezetési EC; (b) egyenfeszültségnél dc EC, váltófeszültségnél dielektromos EC; (c) egyenfeszültségnél flexodomén, váltófeszültségnél dielektromos EC; (d) egyenfeszültségnél flexodomén, váltófeszültségnél dielektromos EC [S10].



38. ábra: Az ac küszöbfeszültség U_c^{ac}(f) frekvenciafüggése különböző U_{dc} egyenfeszültségű előfeszítés hatására. (a) N5 minta, d = 10,8 μm, T = 30 °C (egyenfeszültségnél dc EC) [S9]; (b) 1008 minta, d = 19,5 μm, T = 58 °C (egyenfeszültségnél flexodomén) [S12]. A tele szimbólumok a vezetési EC, az üresek a dielektromos EC mintázat küszöbét jelölik.

V.4.2. Saját eredmények

A kísérleti vizsgálatokhoz kétféle folyadékkristályt használtunk. A N5 tartalmú cellákban egyenfeszültségre dc EC mintázat alakult ki [S9], míg az 1008 esetében EC helyett flexodoméneket tapasztaltunk [S12]. Az ac EC mintázat két típusa, a vezetési és a dielektromos közötti átváltást ugyanazon mintákon, a gerjesztő feszültség frekvenciájának növelésével biztosítottuk. A vizsgálatok során kétféle megközelítést alkalmaztunk: feltérképeztük, hogy i) hogyan változik az ac küszöbfeszültség $U_c^{ac}(f)$ frekvenciafüggése az U_{dc} egyenfeszültségű előfeszítés hatására; ii) hogyan néz ki rögzített f frekvencián az $U_c^{dc}(U_c^{ac})$ stabilitási határgörbe.

Az egyenfeszültségnek a frekvenciafüggésre gyakorolt hatását a 38a. és 38b. ábrák szemléltetik N5 [S9], illetve 1008 mintákon [S12]. $U_{dc} = 0$ esetén a görbék jellege mindkét mintára hasonló, megfelelnek a 8. ábrán bemutatott tipikus viselkedésnek, csak az 1008 mintában az f_c átváltási frekvencia lényegesen alacsonyabb. Az $U_{dc} \approx 4$ V-ot elérő, illetve meghaladó előfeszítés hatására a küszöbfeszültségek minden frekvencián emelkednek. Az egyenfeszültség másik szembetűnő hatása, hogy az előfeszítéssel f_c gyorsan csökken, majd a vezetési EC mintázat el is tűnik.

Minthogy az f_c átváltási frekvencia elsősorban a minta σ_{\perp} elektromos vezetőképességétől függ, a fenti megfigyelések arra utalnak, hogy a dc előfeszítés megváltoztatja, nevezetesen csökkenti a folyadékkristály vezetőképességét. E gyanút a mintázatok megfigyelésével egyidejűleg végzett árammérések megerősítették, majd független, mágneses térrel orientált vastag (d = 1 mm), 1008 mintán precíziós impedancia analizátorral (Novocontrol Alpha) végrehajtott impedancia méréseink egyértelműen bizonyították [S12].

A 39a. ábrán látható, hogy mind a vezetőképességnek a direktorral párhuzamosan mért σ_{\parallel} , mind a direktorra merőlegesen mért σ_{\perp} értéke, mind pedig σ_{a} csökken, ha $U_{dc} > 5$ V. A csökkenés mértéke jelentős; nagy U_{dc} esetén σ a kezdeti értéknek már csak kb. 20%-a. Mi több, az egyenfeszültség növelése a 39b. ábrán bemutatott $\sigma_{a}/\sigma_{\perp}$ relatív



39. ábra: (a) A σ_{\parallel} , σ_{\perp} és σ_{a} elektromos vezetőképességek és (b) a $\sigma_{a}/\sigma_{\perp}$ relatív vezetőképességanizotrópia függése az U_{dc} egyenfeszültségű előfeszítéstől [S12]. 1008 minta, d = 1 mm, T = 58 °C.



40. ábra: (a) A σ_{\parallel} és σ_{\perp} elektromos vezetőképességek, valamint (b) a σ_a/σ_{\perp} relatív vezetőképesség-anizotrópia időfüggése az $U_{dc} = 0 \Rightarrow U_{dc} = 10$ V $\Rightarrow U_{dc} = 0$ egyenfeszültség-ugrások hatására [S12]. A feszültségugrások pillanatát a függőleges szaggatott vonalak jelzik. 1008 minta, d = 1 mm, T = 58 °C.

vezetőképesség-anizotrópiában is kb. 30%-os csökkenést okoz [S12, S13].

A minta vezetőképessége az egyenfeszültség változását nem követi pillanatszerűen. A 40a. és 40b. ábrákon látható, hogy mi történik a σ_{\parallel} és σ_{\perp} vezetőképességekkel, illetve a σ_a/σ_{\perp} relatív vezetőképesség-anizotrópiával, ha az egyenfeszültséget $U_{dc} = 0$ -ról ugrásszerűen $U_{dc} = 10$ V-ra növeljük, majd 2 óra elteltével hirtelen visszacsökkentjük $U_{dc} = 0$ -ra. Jól látható, hogy a feszültségugrás relaxációs folyamatokat indít el, melyek σ folytonos változását eredményezik [S12]. E relaxáció leggyorsabb, a (16) egyenletben definiált τ_d töltésrelaxációval jellemezhető kezdeti (1–2 másodpercen belüli) szakaszát mérőberendezésünk sebességkorlátja miatt nem tudtuk rögzíteni. További releváns időskálának tekinthetjük a töltéshordozóknak az elektródák közötti áthaladásához szükséges, a V.1.1. fejezetben már bevezetett $\tau_l = d^2/(U\mu)$ áthaladási időt és a töltéshordozók diffuziójára jellemző $\tau_{cd} = d^2/(\mu k_{\rm B} T/e$ töltésdiffúziós időt.

A mért $\sigma(t)$ görbéket jól közelíthetjük két, egymástól nagyságrendben különböző, τ_1
és τ_2 karakterisztikus idejű, exponenciális relaxáció szuperpozíciójaként:

$$\sigma(t) = \sigma_0 + \sigma_1 exp[(t_0 - t)/\tau_1] + \sigma_2 exp[(t_0 - t)/\tau_2].$$

$$\tag{44}$$

A folytonos vonalak a 40a. ábrán a (44) egyenletből $\tau_1 \sim 730$ s, $\tau_2 \sim 10000$ s (U_{dc} bekapcsolása esetén), illetve $\tau_1 \sim 200$ s, $\tau_2 \sim 3500$ s (U_{dc} kikapcsolása esetén) értékekkel kapott illesztett görbék. A τ_1 , illetve τ_2 relaxációs idők nagyságrendileg megfeleltethetők a 2. táblázatban szereplő (tipikus) migrációs együtthatóval becsült τ_1 áthaladási, illetve τ_{cd} töltésdiffuziós időknek. Az is jól látható viszont, hogy a feszültségugrások között eltelt 2 óra alatt a relaxáció még messze nem ért véget. A folyamat további nyomonkövetését technikai okokból nem tudtuk megoldani, így nem eldönthető, hogy a vezetőképesség értékek telítődése bekövetkezik-e, és ha igen akkor mikor. A mintázatok megfigyeléséhez használt minták ugyan vékonyabbak, ami az időállandók jelentős csökkenését eredményezi, a relaxáció befejeződését napos skálán sem észleltük, ami arra utalhat, hogy a (44) egyenletet esetleg további, nagyobb időállandójú tagokkal is ki kell egészíteni. Ilyen hosszú időállandójú folyamat lehet például egyes ionok felületi adszorpciója, vagy az orientáló poliimid rétegen keresztüli diffúziója. Emellett a molekulák esetleges bomlását okozó irreverzibilis elektrokémiai folyamatok létét sem zárhatjuk ki teljesen.

A fenti eredmények egyik következménye, hogy a folyadékkristály elektromos vezetőképességét U_{dc} önmagában még nem határozza meg egyértelműen; σ a minta előéletétől (kapcsoltunk-e rá egyenfeszültséget, mikor és mekkorát) is függhet. Mindez befolyásolja a mintázat küszöb-meghatározásának pontosságát és reprodukálhatóságát.

A 37. ábra elméleti jóslataival történő közvetlen összehasonlítást a stabilitási határgörbék kísérleti meghatározása tette lehetővé. A 41. ábra mutatja a különböző frekvenciákon mért SLC görbéket N5 esetén, amikor egyenfeszültségnél elektrokonvekciót kapunk. A legalacsonyabb frekvencián (f = 10 Hz, 41a. ábra) az SLC ellipszisnegyed alakú; folytonos átmenetet képez a dc EC és a vezetési EC módusok között, kiváló egyezést mutatva az elméleti várakozással (37a. ábra) [S10, S11]. Kicsit nagyobb frekvencián (f = 20 Hz, 41b. ábra) ez az egyezés már elromlik; az egyenfeszültség hozzáadása az ac küszöböt csökkentés helyett növeli, így a stabil tartomány kibővül. Még nagyobb frekvencián (f = 80 Hz, 41c. ábra) az egyenfeszültség hatására az f_c átváltási frekvencia a meghajtó frekvencia alá csökken, így az SLC mentén haladva vezetési EC – dielektromos EC – dc EC morfológiai átalakulást figyelhetünk meg [S9, S11]. Átlépve a dielektromos EC frekvenciatartományába (f = 200 Hz, 41d. ábra), a várakozásoknak (37b. ábra) megfelelően *dielektromos* EC – dc EC morfológiai átalakulást és az SLC felső ágán a dc küszöb növekedését tapasztalhatjuk; ezzel szemben viszont az SLC alsó ágán a dc előfeszítés az ac küszöb emelkedését váltja ki. A stabil tartomány bővülése a frekvencia növelésével egyre jelentősebb, olyannyira hogy végül az SLC a kísérletileg elérhető feszültségtartományban már nem is záródik (f = 400 Hz, 41e. ábra). Megnyílik egy keskeny, mintázat nélküli "csatorna", ahol a mintára a tisztán dc, illetve a tisztán ac küszöbök többszörösének megfelelő, kombinált $U_{ac} + U_{dc}$ feszültséget kapcsolva is stabil marad a planáris textúra [S9, S11].

Az egyenfeszültségű meghajtásnál flexodoménekkel rendelkező 1008 minta viselkedését a 42. ábrán foglaltuk össze. A 37c. és 37d. ábrák alapján azt várjuk, hogy az SLC két, a felső FD és az alsó EC, ágból áll, melyek találkozási pontjában történik meg az EC - FD morfológiai átalakulás. Alacsony frekvencián (f = 2 Hz, 42a. ábra) való-



41. ábra: A stabilitási határgörbe az $U_{ac}-U_{dc}$ síknegyedben, egyenfeszültségen EC mintázattal rendelkező N5 mintán, különböző gerjesztő frekvenciáknál [S11]. (a) f = 10 Hz; (b) f = 20 Hz; (c) f = 80 Hz; (d) f = 200 Hz; (e) f = 400 Hz. $d = 10.8 \mu$ m, T = 30 °C. A csillagok a pillanatfelvételek készítésének helyét jelölik.



42. ábra: A stabilitási határgörbe az $U_{ac}-U_{dc}$ síknegyedben, egyenfeszültségen FD mintázattal rendelkező 1008 mintán, különböző gerjesztő frekvenciáknál. (a) f = 2 Hz; (b) f == 5 Hz; (c) f = 10 Hz [S12]. $d = 19,5 \mu$ m, T = 58 °C. A csillagok a pillanatfelvételek készítésének helyét, a kettős nyilak a kezdeti **n**₀ direktorirányt jelölik. A sárga nyilak hossza 100 μ m, a pirosaké 20 μ m.

ban ezt tapasztaltuk, de nagyobb frekvencián (f = 10 Hz, 42c. ábra) itt is megnyílik a mintázat nélküli "csatorna": az SLC két ága egymással közel párhuzamosan haladva nem záródik az elérhető feszültségtartományban [S12]. Köztes frekvencián (f = 5 Hz, 42b. ábra) a "csatornával" bővült stabil tartomány az SLC újabb, harmadik ágával záródik, ami egy másfajta, rövidebb hullámhosszú flexodomén (flexodomain with shorth wavelength, FDSW) mintázat megjelenésének felel meg (ennek részleteire később még visszatérünk). Látható, hogy az SLC felső (FD) ága követi az elméleti jóslatot: a váltófeszültség hozzákeverése gátolja a mintázatképződést és növeli a dc küszöböt. Az SLC alsó (EC) ágán azonban itt is fennáll a N5 esetén tapasztalt diszkrepancia: a dc előfeszítés szintén gátolja a mintázatképződést az ac küszöb növekedését okozva, pedig az elmélet ennek az ellenkezőjét jósolja.

A 41. és 42. ábrákon bemutatott mérési eredményeket összegezve megállapíthatjuk, hogy a stabilitási határgörbe felső ága (dc EC vagy FD) jellegében megfelel a 37. ábrán látható, várható viselkedésnek, míg az SLC alsó ága (vezetési vagy dielektromos EC), a 41a. ábrát leszámítva, ettől lényegi eltérést mutat. Az alábbiakban azt fogjuk bemutatni, hogy ez az eltérés minek tulajdonítható.

A 37. ábra görbéit a folyadékkristályt ohmos vezetőnek tekintő SM keretein belül,



43. ábra: Az 1008 anyagai paramétereivel, de $\sigma_a/\sigma_{\perp} = 0,5$ és különböző σ_{\perp} vezetőképességek feltételezésével számolt stabilitási határgörbék az $U_{ac}-U_{dc}$ síknegyedben, mind egyen-, mind váltófeszültségen EC mintázattal rendelkező mintára, különböző gerjesztő frekvenciáknál. (a) f = 5 Hz (vezetési EC); (b) f = 25 Hz (dielektromos EC). Feltételezve, hogy $U_{dc} = 0$ esetén $\sigma_{\perp} = 4$ nS m⁻¹, $U_{dc} = 2$ V esetén $\sigma_{\perp} = 3$ nS m⁻¹ és $U_{dc} = 4$ V esetén $\sigma_{\perp} = 2$ nS m⁻¹, a várható küszöböket a rombuszok jelölik és az általuk kijelölt SLC menetét a pont–vonással jelzett görbe mutatja [S12].

rögzített, állandó σ_{\perp} és σ_a/σ_{\perp} értékeket feltételező számolások eredményezték. A valóságban azonban, ahogy azt a 39. ábrán láttuk, mind a vezetőképesség, mind annak relatív anizotrópiája változik U_{dc} függvényében, ami a folyadékkristály valójában ionos vezetőképességének köszönhető. Ennek fényében a tapasztalt diszkrepancia nem meglepő. Precízebb elméleti leíráshoz a vezetőképesség változását okozó ionos folyamatokat és azoknak a mintázatképződésre kifejtett hatását figyelembe vevő elméleti modellre lenne szükség, de ez jelenleg még túl nagy kihívást jelent. A megfigyelések kvalitatív értelmezését azonban megkísérelhetjük az SM keretein belül, ha a vezetőképesség változását kísérleti tényként kezeljük és így a számolásokat minden U_{dc} esetén más paraméterekkel végezzük el. A paraméterek változása módosítja a küszöbfeszültségeket, így minden paraméter értékhez másik, eltolódott SLC tartozik.

A módszer használatát a 43. és 44. ábrák segítségével, a folyadékkristály paramétereinek önkényes, fiktív változtatásával szemléltetjük [S12]. A 43a. ábra σ_{\perp} változtatásának hatását mutatja rögzített σ_a/σ_{\perp} és a vezetési EC tartományába eső (alacsony) frekvencia esetén. A feltételezett, 0V, 2V, illetve 4V egyenfeszültséghez tartozó, rendre 4 nS m⁻¹, 3 nS m⁻¹, illetve 2 nS m⁻¹ σ_{\perp} értékekkel kapott SLC görbék U_{dc} növelésével jobbra, nagyobb U_{ac} felé tolódnak el. A adott U_{dc} -hez tartozó kombinált U_{ac} (az ábrán rombusszal jelölt) küszöbértéket a megfelelő σ_{\perp} -hoz tartozó SLC görbéről kell leolvasni. E pontok összekötésével kaphatjuk meg a vezetőképesség változását is figyelembe vevő ("kísérleti") stabilitási határgörbét (pont–vonással jelzett görbe). Láthatjuk, hogy bár az összes számolt SLC esetén a dc előfeszítés a görbe balra hajlását (küszöbcsökkenés) okozza, a fenti módon konstruált "kísérleti" SLC, a méréssel megegyezően, már jobbra hajlik, azaz küszöbnövekedést mutat. A 43b. ábra ugyanezt a módszert szemlélteti, csak a dielektromos EC tartományába eső (nagy) frekvencián. Sajnos itt U_{dc} növelésével az SLC görbék balra tolódnak, így a konstruált "kísérleti" SLC is balra hajlik, ellentétben a mérésnél



44. ábra: Az 1008 anyagai paramétereivel, de $\sigma_{\perp} = 4$ nS m⁻¹ és különböző σ_a/σ_{\perp} anizotrópiák feltételezésével számolt stabilitási határgörbék az $U_{ac}-U_{dc}$ síknegyedben, mind egyen-, mind váltófeszültségen EC mintázattal rendelkező mintára, különböző gerjesztő frekvenciáknál. (a) f = 5 Hz (vezetési EC); (b) f = 25 Hz (dielektromos EC). Feltételezve, hogy $U_{dc} = 0$ esetén $\sigma_a/\sigma_{\perp} = 0.5$, $U_{dc} = 2$ V esetén $\sigma_a/\sigma_{\perp} = 0.4$ és $U_{dc} = 4$ V esetén $\sigma_a/\sigma_{\perp} = 0.3$, a várható küszöböket a rombuszok jelölik és az általuk kijelölt SLC menetét a pont–vonással jelzett görbe mutatja [S12].

tapasztalttal.

Hasonlóképpen a relatív vezetőképesség-anizotrópia változásának hatása is tesztelhető. A 44. ábra a feltételezett, 0V, 2V, illetve 4V egyenfeszültséghez tartozó, rendre 0,5, 0,4, illetve 0,3 σ_a/σ_{\perp} értékekkel kapott SLC görbéket mutatja, melyek mind a vezetési, mind a dielektromos EC frekvenciatartományában U_{dc} növelésével jobbra, azaz nagyobb U_{ac} felé tolódnak el. Így a konstruált "kísérleti" SLC (pont–vonással jelzett görbe), a mérttel megegyezően, mindkét frekvencián jobbra hajlik, azaz küszöbnövekedést mutat.

A fentieket összegezve tehát megállapíthatjuk, hogy a vezetőképesség és főleg a relatív anizotrópia egyenfeszültséggel indukált változásában találtunk egy lehetséges magyarázatot a kezdeti elméleti várakozások és a mért adatok közötti eltérésre [S12]. Ez persze nem zárja ki, hogy más, az SM-ben figyelembe nem vett folyamatok is befolyásolják a jelenséget. A fentiek alapján az is érthető, miért nem kaptunk eltérést a 41a. ábrán. Elegendően alacsony frekvencián ugyanis a vezetési EC küszöbfeszültsége alig érzékeny σ_{\perp} és σ_a/σ_{\perp} változására, így a különböző paraméterekhez tartozó SLC görbék eltolódása sem számottevő.

A 42b. ábra kapcsán már említett, flexodomének közötti morfológiai átalakulás további diszkussziót érdemel. A flexodomének elméleti leírása szerint az FD mintázatban a direktor n_z komponensének z-függése a $\cos(\pi z/d)$ függvénnyel adható meg. Az egyenleteknek létezik egy másik, $\sin(2\pi z/d)$ alakú megoldása is, aminek váltófeszültségű meghajtás esetén az időszimmetriája is más, hasonlóan a vezetési és dielektromos EC módusok közötti különbséghez. E másik megoldás küszöbfeszültsége mindazonáltal a szokásos FD mintázaténál jóval magasabb, így nem realizálódik. A szimulációk azonban megmutatták, hogy egyen- és váltófeszültség szuperpozíciója esetén létezhet egy olyan feszültségtartomány, ahol a küszöb az FD mintázaté alá csökkenhet. Erre mutat példát a 45a. ábrán látható szimulált stabilitási határgörbe, ami arra az esetre vonatkozik, amikor mind



45. ábra: (a) Szimulációval kapott, az 1008 anyagai paramétereivel számolt stabilitási határgörbék az U_{ac}-U_{dc} síknegyedben, egyenfeszültségen flexodoméneket, váltófeszültségen pedig vezetési EC (szaggatott vonal), illetve FD (folytonos és pontozott vonal) mintázattal rendelkező mintára. (b) A dimenziótlan q* hullámszám változása az SLC mentén [S12]. f = 5 Hz, d = 19,5 μm.

egyen-, mind váltófeszültségnél flexodomének alkotják a mintázatot [S12]. Az SLC három ágból áll: a tengelyektől induló ágak a szokásos FD mintázatnak felelnek meg, míg az összekötő harmadik ág tartozik a másik típusú flexodoménekhez. A mintázat dimenziótlan q^* hullámszámát mutató 45b. ábrán látható, hogy az ágak találkozási pontjaiban q^* ugrása várható, mert a harmadik ág mentén q^* sokkal nagyobb, azaz a hullámhossz itt rövidebb. Meg kell azonban jegyezzük, hogy a 45. ábrák görbéit tulajdonképpen fiktíveknek kellene tekinteni, mert az ugyanazon paraméterekkel számolt EC küszöb (szaggatott vonal) sokkal alacsonyabb. Abban az esetben azonban, ha az elektrokonvekció megjelenését valami gátolja, az egyébként fiktív SLC görbeszakasz is elérhetővé válhat. A 42b. ábrán e gátlást az U_{dc} egyenfeszültség biztosította. A rögzített pillanatfelvételek bizonyítják, hogy az FDSW mintázat hullámhossza sokkal kisebb az FD-énél. A megfigyelt FD - FDSW morfológiai átalakulás így az elméletileg lehetséges, de korábban még nem látott, rövid hullámhosszú flexodomének első kísérleti bizonyítékául szolgál [S12].

Az e fejezetben tárgyalt eredményeimet a T4 tézispont tartalmazza.

VI. fejezet

Standard elektrokonvekció homeotrop (- +) mintákban

E fejezetben a homeotróp (- +) mintákban kialakuló standard elektrokonvekcióhoz kapcsolódó vizsgálataink eredményeit ismertetjük. E geometriában az s-EC a Freederickszátmenetet követően, magasabb küszöbfeszültségnél jelenik meg másodlagos instabilitásként. Három témakörrel foglalkozunk: az abnormális hengerek jellemzőivel, a mágneses térnek a mintázatképződésre gyakorolt hatásával és a mágneses térben a minta elforgatása során keltett hibahelyek vándorlásával.

VI.1. Az abnormális hengerek jellemzői

VI.1.1. Előzmények

Ha a mintára kapcsolt feszültséget a standard EC küszöbfeszültsége fölé növeljük, a küszöbnél még rendezett hengerekből álló mintázat instabillá válhat és különböző másodlagos instabilitások jöhetnek létre. Ezek egyik példája a vezetési EC frekvenciatartományában a kutatócsoportunk által felfedezett *merőleges hengerek* (normal rolls, NR) – *abnormális hengerek* (abnormal rolls, AR) átalakulás [79]. Az NR - AR átalakulás során a direktor a kezdeti irányához képest azimutálisan (a minta síkjában) elfordul anélkül, hogy a mintázat **q** hullámvektora megváltozna. Az instabilitás egy spontán szimmetriasértés következménye, ami kétféle, jobbra ($\varphi > 0$) vagy balra ($\varphi < 0$) elfordult direktorú tartományból álló degenerált állapotot, doménstruktúrát eredményez.

Az abnormális hengereket először homeotróp MBBA-n figyelték meg [70, 71, 79], majd később planáris mintákon is kimutatták [115]. Planáris minták esetén az abnormális hengerek mintázatban a direktor elfordulása csavardeformációt jelent. Ez az optikai megfigyelést nehezíti, hiszen a szokásos ~ 10 μ m mintavastagságok esetén teljesülnek a fényterjedés Mauguin-limitjének [1] követelményei (a fény polarizációja a direktorral együtt el-, majd visszafordul), így az AR domének csak speciális módszerrel különböztethetőek meg egymástól [115]. Ezzel szemben a homeotróp mintákban a határoló felületnek nincs kitüntetett azimutális iránya, következésképpen csavardeformáció sem jön létre; helyette a direktor a minta teljes vastagságában egyöntetűen elfordul, ami könnyen detektálható. Az abnormális hengerek felfedezése szükségessé tette a küszöb feletti jelenségek leírását célzó gyengén nemlineáris elméleti modell újragondolását és kibővítését. Ennek keretében rámutattak, hogy a mintázat *A* amplitúdója és a direktor φ azimutszöge között a (19) által kifejezett szoros kölcsönhatás áll fenn [80, 81]. A modell a φ azimutszög villa-bifurkációjaként értelmezte az NR–AR átalakulást:

$$\varphi = \begin{cases} \pm \Psi \sqrt{\varepsilon - \varepsilon_{AR}} & (\varepsilon > \varepsilon_{AR}) \\ 0 & (\varepsilon < \varepsilon_{AR}) \end{cases}$$
(45)

ami az U feszültségnek az s-EC NR mintázat U_c küszöbfeszültségétől eltérését jellemző dimenziótlan $\varepsilon = (U^2 - U_c^2)/U_c^2$ kontrol paraméternek az ε_{AR} küszöbértékénél következik be. A bifurkáció során kialakuló azimutszögek nagyságát a Ψ paraméter jellemzi. A modellből mind ε_{AR} , mind Ψ frekvenciafüggése számolható.

Az abnormális hengerek kísérleti vizsgálata során célunk egy olyan mérőberendezés összeállítása volt, aminek segítségével az AR mintázat könnyen láthatóvá tehető és ami lehetőséget ad az azimutszög feszültség- és frekvenciafüggésének pontos mérésére és általa az elméleti modell jóslatainak igazolására.

VI.1.2. Saját eredmények

Mint azt az előző, VI.1.1 fejezetben említettük, homeotróp mintákban egyszerűbb az abnormális hengerek megfigyelése; vizsgálatainkat ezért homeotróp N5A mintákon végeztük el. Annak érdekében, hogy a mintázatnak a homeotrop határfeltétel azimutális degenerációjából adódó rendezetlenségét elkerüljük, a mintát x irányú, $H = H_F/3$ nagyságú mágneses térbe helyeztük (H_F a mágneses térrel indukált Freedericksz-átmenet küszöbtere). Ennek következtében a feszültség hatására bekövetkező Freedericksz-átmenet során a direktor az x irányban hajlik ki, kijelölve az EC mintázatképződés előtti **n**₀ kezdeti direktorirányt.

A direktor elfordulásának kimutatásához a IV.3.3. fejezetben a 16. ábrán bemutatott mérési elrendezést állítottuk össze, mely lehetővé tette egyrészt rögzített polarizátorok mellett pillanatfelvételek, másrészt a polarizátor (**P**) és az analizátor (**A**) párhuzamos (**A** \parallel **P**) vagy keresztezett (**A** \perp **P**) állásában, szinkronizált körbefordításuk révén *x*– α felvételek (IV.4.3. fejezet) készítését [S14–S16]. Példaként a 46a. ábrán merőleges hengerekről, a 46b. ábrán pedig az abnormális hengerekről készített felvételeket mutatjuk be.

A pillanatfelvételek összehasonlításakor láthatjuk, hogy az s-EC mintázat megfigyelésekor használt extraordinárius megvilágítás esetén ($\mathbf{P} \parallel \mathbf{n}_0$, $\alpha = 0$) az NR és az AR mintázat szinte megkülönböztethetetlen. Ennek oka az, hogy e megvilágításnál a cellán átmenő fény intenzitása nem függ a direktor azimutszögének előjelétől. Azonban, ha a polarizátort akár csak kis α szöggel is elforgatjuk, a jobb-bal szimmetria sérül, így a kétféle ($\varphi > 0$ és $\varphi < 0$) AR domén sötétebb és világosabb foltokként elkülönül (47. ábra) [S15]. A korábbi vizsgálatoknál is e módszert alkalmazták a polarizátorok manuális elforgatásával [70, 71].

A berendezésünk újdonsága, hogy alkalmas $x-\alpha$ felvételek készítésére, melyek a polarizátor lépésenkénti körbeforgatásának hatását szemléltetve, kíválóan alkalmasak az NR



46. ábra: (a) Merőleges hengerek ($\varepsilon = 0,013$), (b) abnormális hengerek ($\varepsilon = 0,040$) $d = 31 \ \mu m$ vastag homeotrop N5A mintán, *x* irányú $H = H_F/3$ mágneses térben [S15]. A bal oldali pillanatfelvételek *x* irányú, párhuzamos polarizátor (**P**) és analizátor (**A**) állással készültek. A jobb oldalon párhuzamos (**A** || **P**), illetve keresztezett (**A** \perp **P**) polarizátorokkal készített *x*- α felvételek láthatók. Az *U* feszültségnek az s-EC *U*_c küszöbfeszültségétől eltérését az $\varepsilon = (U^2 - U_c^2)/U_c^2$ kontrol paraméterrel jellemeztük.

ÉBER NÁNDOR

MTA DOKTORI ÉRTEKEZÉS



47. ábra: AR doménekről készült pillanatfelvételek (keresztezett polarizátorok, $\alpha = 8^{\circ}$). (a) Kicsi $\varepsilon - \varepsilon_{AR}$, (b) nagy $\varepsilon - \varepsilon_{AR}$ [S15]. N5A minta, $d = 31 \ \mu m$.

és az AR mintázatok megkülönböztetésére. Párhuzamos polarizátorok (A || P) esetén a mintázat $C_d \propto \cos^4(\alpha - \varphi)$ kontrasztja extraordinárius megvilágításnál a legnagyobb, míg ordinárius esetén mintázat nélküli fényintenzitást kapunk. Keresztezett polarizátorok (A \perp P) esetén az intenzitás, (21)-nek megfelelően, $I \propto \sin^2(2\alpha - 2\varphi)$ szerint változik; vagyis mind ordinárius, mind extraordinárius megvilágításnál teljes a kioltás, míg az intenzitás és ezzel a mintázat kontrasztja akkor maximális, ha a direktor φ azimutszöge a polarizátorétól 45°-ban különbözik. Ennek megfelelően a merőleges hengerek (NR) esetén (ahol $\varphi = 0$) mind a maximális kontraszthoz, mind a kioltáshoz tartozó vonalak egyenesek, ahogy azt a 46a. ábrán láthatjuk. Az abnormális hengerekből álló domének megjelenésével viszont e vonalak behullámosodnak, mutatva a φ azimutszög helyfüggését és váltakozó előjelváltását (46b. ábra) [S14–S16].

A különböző meghajtó feszültségeknél, azaz a küszöbtől eltérést jellemző ε kontrol paraméter különböző értékeinél, párhuzamos polarizátorok esetén rögzített *x*- α felvételek kiértékeléséből kaphatjuk meg a (23) szerinti kontraszt $C_d(\varepsilon)$ függését, melyet a 48a. ábrán mutatunk be [S14]. A keresztezett polarizátorokkal készült *x*- α felvételek kiértékelése a direktor mintázaton belüli maximális $\phi(\varepsilon)$ azimutszögének feszültségfüggésére szolgáltat információt (48b. ábra). Az s-EC küszöbe alatt a kontraszt alacsony értéke megfelel a homogén, planáris kezdeti állapotbeli direktorfluktuációknak. Az NR mintázat megjelenése után a kontraszt a feszültséggel meredeken emelkedik, majd az *NR* – *AR* átalakulást követően csökkenni kezd. Ez a viselkedés lényegében megfelel a gyengén nemlineáris elméleti modell szerinti várakozásoknak. A direktor azimutszöge az s-EC küszöbe alatt ($\varepsilon < 0$) a várakozásoknak megfelelően közel nulla. A 48b. ábrán látható minimális ($\sim 1^\circ$) eltérés szintén a fluktuációk számlájára írható; egyúttal ez jelzi a módszer felbontásbeli korlátját. Az NR mintázat megjelenésekor az azimutszög nem változik, viszont az *NR* – *AR* átmenetnél a várt villa-bifurkáció szépen megfigyelhető [S14–S16]: a folytonos görbe a (45) szerinti illesztést mutatja.

A meghajtó frekvencia változtatásának hatását a 49. ábra szemlélteti [S15] és a 50. ábra összegzi [S14]. Az NR - AR átmenet ε_{AR} küszöbében nem találtunk szignifikáns változást, noha a gyengén nemlineáris elméleti modell számításai alapján a frekvencia csökkenése a küszöb növekedésével kellene járjon (folytonos vonal a 50a. ábrán). Az viszont jól látható, hogy a villa-bifurkáció során az azimutszög (és így a Ψ paraméter) csökkenő



48. ábra: (a) Az EC mintázat C_d kontrasztja és (b) a direktornak a mintázaton belüli maximális ϕ azimutszöge az U_c s-EC küszöbfeszültségtől eltérést jellemző dimenziótlan $\varepsilon = (U^2 - U_c^2)/U_c^2$ kontrol paraméter függvényében. A pontozott vonal a küszöböt ($\varepsilon = 0$), míg a szaggatott vonal az NR - AR átmenetet ($\varepsilon_{AR} = 0,0166$) jelöli. A folytonos görbe a (45) szerinti illesztést mutatja [S14].



49. ábra: A direktornak a mintázaton belüli maximális ϕ azimutszöge az U_c s-EC küszöbfeszültségtől eltérést jellemző dimenziótlan $\varepsilon = (U^2 - U_c^2)/U_c^2$ kontrol paraméter függvényében különböző frekvenciákon [S15]. (a) f = 1200 Hz; (b) f = 900 Hz; (c) f = 400 Hz. A folytonos görbe a (45) szerinti illesztésnek felel meg. A pontozott vonal az EC küszöböt ($\varepsilon = 0$), a szaggatott vonal az NR - AR átmenetet (ε_{AR}), míg a pont-vonás a "CRAZY" hengerek küszöbét (ε_{CY}) jelöli.



50. ábra: (a) Az abnormális hengerek ε_{AR} , valamint a "CRAZY" hengerek ε_{CY} küszöbértékei és (b) az azimutszögek nagyságát meghatározó Ψ paraméter frekvenciafüggése. A folytonos görbék a gyengén nemlineáris elméleti modellből számolt függést mutatják [S14]. A szaggatott vonal az f_L Lifshitz-frekvenciát jelöli.

frekvenciával meredeken emelkedik, jó egyezést mutatva az elméleti várakozással (50b. ábra).

NR - AR átmenetről csak a Lifshitz-pont feletti frekvenciáknál ($f > f_L$) beszélhetünk. A kísérleti módszerünk kimutatta, hogy a direktor azimutszögének villa-bifurkációja $f < f_L$ esetén is fennáll, ráadásul nem is csak f_L közelében, hanem az OR tartomány közepén is (49c. ábra). Ez összhangban van egyes korábbi megfigyelésekkel [70] és elméleti következtetésekkel [82,83,116], miszerint a direktor elfordulásával járó szimmetriasértés többféle instabilitással is megvalósulhat.

A feszültség, vagyis ε növelésével nem csak a direktor azimutszöge nő, hanem az AR domének morfológiája is változik. Az ε_{AR} küszöb közelében az AR domének alacsony kontrasztú, nagy, alaktalan foltok (47a. ábra), míg a küszöbtől távol, nagy $\varepsilon - \varepsilon_{AR}$ esetén, a domének *y* irányban elnyúlt kontrasztos, keskenyebb sávokká alakulnak, mintegy másodlagos periodicitásként, melyek szélessége az eredeti s-EC hullámhosszának néhányszorosa (47b. ábra) [S15]. Amennyiben a direktor azimutszöge elegendően naggyá válik, egy újabb instabilitás következik be, ami egy morfológiájában új mintázat, a "CRAZY" hengerek megjelenését eredményezi (51. ábra) [S14–S16]. Az instabilitás ε_{CY} küszöbét a 47b. és 47c. ábrákon pont–vonással jelöltük, a küszöb frekvenciafüggését a 50a. ábra mutatja. Minthogy ε_{CY} gyorsan nő a frekvenciával, a "CRAZY" hengereket csak $f \leq 900$ Hz esetén detektáltuk.

A "CRAZY" hengerek hullámhossza megegyezik az eredeti NR, illetve AR mintázatéval. A 47b. és a 51. ábrák összevetéséből egyértelműen látszik, hogy míg az abnormális hengerekben a direktor azimutszöge csak lassan változik, a "CRAZY" hengerek esetében a hullámhosszon belül φ változása ±90°. A "CRAZY" hengereknek két módosulata van: a C típusnál az azimutszög +45°-ról -45°-ra, míg a D típusnál fordítva, -45°-ról +45°-ra változik. A "CRAZY" hengerek képesek önállóan kitölteni a teret, ez esetben a szomszédos hengerek felváltva különböző típusúak; de, mint például a 51. ábrán látható, előfordulhatnak egyesével vagy kisebb egységekben, ez esetben köztük AR mintázatot találunk (ez utóbbit a szekvenciában •-tal jelöltük). A mikroszkópos megfigyelések alapján



51. ábra: "CRAZY" hengerek ($\varepsilon = 0.065$) mintázat $d = 31 \ \mu m$ vastag homeotrop N5A mintán, x irányú $H = H_F/3$ mágneses térben. A bal oldali pillanatfelvétel x irányú, párhuzamos polarizátor (P) és analizátor (A) állással készült. A jobb oldalon párhuzamos (A || B), illetve keresztezett (A \perp B) polarizátorokkal készített x- α felvételek láthatók. A •D••DCDC... szekvencia mutatja, hogyan töltik ki a teret az abnormális hengerek (•) és a "CRAZY" hengerek C, illetve D típusú, Λ szélességű egységei [S15].

arra következtethettünk, hogy a "CRAZY" hengert a konvekció megléte mellett a hengeren belül, az z–y síkban található diszklináció hurok jellemzi. Nevét is innen kapta, az angol elnevezés (convection in a regular array of z-y disclination loops) kezdőbetűiből képzett betűszóként [S14].

Mágneses tér hatása az elektrokonvekcióra **VI.2**.

VI.2.1. Előzmények

A III.3.4. fejezetben említettük, hogy homeotrop (-+) anyagokban a Freedericksz-átmenet felett megjelenő s-EC mintázatok orientációja rendezetlen. A mintázatok rendezéséhez meg kell törni a felületi orientáció degeneráltságát, amire a felülettel párhuzamos mágneses tér a legalkalmasabb [61,64,70]. Következésképpen, homeotrop s-EC tanulmányozásához általában használnak mágneses teret (ahogy az előző VI.1.2. fejezetben mi is tettük [S14–S16]), kivéve, ha éppen a rendezetlen mintázat kaotikusságának vizsgálata a cél.

Elvben a degenerációt már infinitezimális mágneses tér is megtöri. Ugyanakkor, valós körülmények között, a homeotrop orientáció sem tökéletes és egy gyenge, akár helyfüggő azimutális iránykiválasztódás a cellákban nem zárható ki. Ennek elnyomásához pedig már véges, kb. $H = H_F/3$ mágneses térre lehet szükség [S18]. Minthogy a diamágneses kölcsönhatás H^2 -tel arányos, a fenti tér még nagyrészt kicsinek számít. Nagyobb terek esetén



52. ábra: (a) A Freedericksz-átmenet és az elektrokonvekció küszöbfeszültségének mágnesestérfüggése különböző frekvenciák esetén. (b) Az EC Λ_c kritikus hullámhosszának és (c) az EC hengerek α ferdeségi szögének frekvenciafüggése különböző mágneses tereknél. (d) Az EC mintázat f_L Lifshitz-pontjának mágneses térfüggése [S18]. H_F a tisztán mágneses Freedericksz-átmenet küszöbtere. Homeotrop N5A, $d = 46 \ \mu$ m.

viszont H stabilizáló (a direktor-modulációt gátló) hatású lehet, ezáltal a mintázatnak az irányán kívül egyéb paramétereit is befolyásolhatja.

Célunk annak felderítése volt, hogy a mágneses tér nagysága hogyan módosítja a homeotrop s-EC küszöbjellemzőit (küszöbfeszültségét és hullámvektorát) és milyen hatással van a VI.1. fejezetben tárgyalt *NR*–*AR* átmenetre.

VI.2.2. Saját eredmények

A homeotrop textúra első instabilitása a Freedericksz-átmenet. A 4b. ábra szerinti geometriában az elektromos és mágneses tér hatása összeadódik, így a Freedericksz-átmenet kombinált U(H) küszöbét a (13) formula adja meg. A 52a. ábrán jól látható, hogy a mért kombinált Freedericksz-küszöbértékek (piros tele négyzetek) kiválóan illeszkednek a (13) szerint várt ellipszis görbéhez (szaggatott vonal).

A 52a. ábra mutatja az EC küszöbfeszültség mágnesestér-függését is különböző meghajtó frekvenciák esetén. Annak érdekében, hogy a frekvenciával gyorsan növekvő küszöbértékeket összehasonlíthassuk, a küszöböket minden frekvencián a H = 0-nál mért U_{c0} küszöbértékkel, a mágneses teret pedig a tisztán mágneses Freedericksz-átmenet $H_{\rm F}$ küszöbterével lenormáltuk. A mágneses tér direktor-modulációt csökkentő, stabilizáló hatása alapján azt várnánk, hogy minél nagyobb H, annál nagyobb lesz U_c . Láthatóan ez csak nagy frekvenciák esetén teljesül; alacsony (f < 650 Hz) frekvenciákon viszont nemmonoton $U_c(H)$ függést, kis térnél csökkenést, nagy H-nál növekedést tapasztalunk [S18]. Ez az első látásra meglepő megfigyelés azzal függ össze, hogy a homeotrop mintában az EC a Freedericksz-átmenetet követő másodlagos instabilitásként keletkezik.

Ha két, egyébként azonos tulajdonságú, planáris és homeotrop mintát összehasonlítunk, a homeotrop minta $U_{ch}(f)$ vezetési s-EC küszöbfeszültsége szükségszerűen alacsonyabb, mint a planáris minta $U_{cpl}(f)$ küszöbe. A homeotrop mintára kapcsolt U feszültségnek ugyanis feltétlen meg kell haladnia egy $U/U_F > 1$ küszöb értéket ahhoz, hogy az EC feltétele (kellően kidőlt kváziplanáris állapot) bekövetkezhessen. A 8. ábrán láttuk, hogy $U_{cpl}(f)$ a frekvenciával erősen növekedik; ezzel szemben az U_F Freederickszküszöb frekvencia-független. Így alacsony frekvencián $U_{cpl} < U_F$, míg magas frekvencián $U_{cpl} > U_F$ teljesül. Ebből adódóan az $U_{ch}(f) - U_{cpl}(f)$ feszültségkülönbség alacsony frekvencián várhatóan jóval nagyobb lesz, mint nagy f esetén.

Megfelelő H mágneses tér hozzáadása alacsony frekvencián a Freedericksz-átmenet küszöbfeszültségét $U_{cpl}(f)$ alá csökkenti; így viszont a konvekciót beindító kváziplanáris állapotot is alacsonyabb feszültségnél érjük el, azaz az $U_{ch}(f) - U_{cpl}(f)$ különbség a H = 0 esethez képest lecsökken. Nagy mágneses tereknél e küszöbcsökkentő hatást a tér stabilizáló járuléka felülírja, így kapjuk a 52a. ábra minimummal rendelkező $U_{ch}(H)$ görbéit [S18].

Nagyobb frekvenciák esetén $U_{cpl} \gg U_F$ már eleve teljesül, így *H*-nak a Freederickszküszöböt csökkentő hatása elhanyagolható; csak a stabilizáló járulék számít, ami a várt, monoton növekvő $U_{ch}(H)$ görbét eredményezi.

A mágneses tér a küszöbökön kívül a mintázat morfológiáját (hullámhosszát és hullámvektorának irányát) is befolyásolja. A 52b. ábra az s-EC mintázat Λ hullámhosszának, a 52c. ábra pedig a hengerek α ferdeségi szögének frekvenciafüggését mutatja különböző mágneses terek esetén. A hullámhossz *f* növelésére mindegyik *H* esetén csökken; ez a tendencia összhangban van az SM lineáris stabilitás analíziséből kapott elméleti várakozással (folytonos görbe a 52b. ábrán). A mágneses tér növelése a hullámhosszot ugyancsak csökkenti.

Az igazán váratlan eredményt a hengerek ferdeségi szögének mérése szolgáltatta. A korábbi tapasztalatok alapján azt vártuk, hogy a 8. ábrához hasonlóan, a frekvenciát az f_L Lif-shitz pont alá csökkentve merőleges hengerek helyett ferde hengereket kapunk majd. Meglepő módon azonban, a homeotróp N5A esetén létezik egy második, alsó f_{L2} Lifshitz-pont is, mely alatti frekvenciákon ismét merőleges hengereket ($\alpha = 0$) találunk [S15, S17, S18]. Ezt a 52c. ábra adatai (piros tele négyzetek) mellett a 53. ábra pillanatfelvételei is egyértelműen bizonyítják. A két Lifshitz-pont léte eleddig példátlan, hiszen más homeotrop nematikus folyadékkristályok (pl. MBBA [70, 71]), valamint planáris minták (akár N5A [S1], akár MBBA [44]) vizsgálata eddig mindig csak egy Lifshitzpontot eredményezett.

Érdekes ugyanakkor, hogy bármennyire is meglepő a fenti megfigyelés, összhangban van az elméleti várakozásokkal. A két Lifshitz-pont létét az SM keretében az N5A anyagi paramétereivel elvégzett szimulációk is igazolták (folytonos görbe a 52c. ábrán) [S18],



53. ábra: Standard EC mintázatok $d = 46 \ \mu m$ vastag homeotrop N5A mintán, x irányú $H = 0,249H_F$ mágneses térben: (a) merőleges hengerek $f < f_{L2}$ esetén; (b) ferde hengerek $f_{L2} < f < f_L$ esetén; (c) merőleges hengerek $f > f_L$ esetén [S18]. A képméret $384 \times 391 \ \mu m$.

míg más paraméterkombinációk (pl. MBBA) esetében, a szimulációk is csak egy Lifshitzpontot adtak.

A mérések szerint a mágneses tér növelésével a Lifshitz-pontok alacsonyabb frekvenciák felé tolódnak el [71,S18]. Az alsó f_{L2} Lifshitz-pont már viszonylag kis mágneses térnél ($H < 0,439H_F$) eltűnik, bár az $\alpha(f)$ függvény még maximummal rendelkező marad. Nagyobb ($H > H_F$) tereknél a szokásos $\alpha \propto \sqrt{f_L - f}$ függést kapjuk. A felső (nagyobb H-nál egyetlen) f_L Lifshitz-pont a tér növelésével közel lineárisan csökken (52d. ábra). E változások végsősoron a mágneses térnek a küszöbök kapcsán már említett stabilizáló hatásával vannak kapcsolatban.

A VI.1.2. fejezet 50. ábráján az NR - AR átmenet ε_{AR} küszöbének és a direktor azimutszögének nagyságát megadó Ψ paraméternek frekvenciafüggését láthattuk, rögzített kis mágneses tér jelenlétében. Ezen ábra párjaként, ugyanezen mennyiségek mágnesestérfüggését az 54. ábra mutatja be. A VI.1.1. fejezetben már említett, gyengén nemlineáris elméleti modell az NR - AR küszöbre az

$$\varepsilon_{\rm AR} = \gamma \left(\frac{H^2}{H_{\rm F}^2}\right) \tag{46}$$

dimenziótlan összefüggést jósolja. Az N5A anyagi paraméterei esetén, f = 1000 Hz frekvencián, $\gamma = 0,095$ -t kapunk (folytonos görbe az 54a. ábrán). A mért adatokkal összevetve látható, hogy a kvadratikus mágneses térfüggés kis terekre ($H \le 1,1H_F$) teljesül (szaggatott görbe a 54a. ábrán), de a legkisebb négyzetek módszerével illesztett paraméterre $\gamma = 0,071$, azaz a vártnál csak kb. 25%-kal kisebb érték adódik. Az 54b. ábrán az is látható, hogy ugyanebben a H tartományban, a mért Ψ értékek a modellből számított görbéhez jól illeszkednek [S18]. Nagyobb terek esetén a modellben használt közelítések érvényüket vesztik, így ott egyezés nem is várható.

Figyelembe véve, hogy a számításokban felhasznált anyagi paraméterek értékei (a σ_{\perp} vezetőképesség kivételével, amit az $f_{\rm L}$ Lifshitz-ponthoz illesztésből kaptunk meg) korábban, független mérésekből lettek meghatározva, a 48–50. és 54. ábrákon bemutatott eredmények azt bizonyítják, hogy a gyengén nemlineáris elméleti modell jó közelítésnek számít az NR - AR átmenet leírására.



54. ábra: (a) Az abnormális hengerek ε_{AR} küszöbének és (b) a villa-bifurkáció nyílásszögét meghatározó Ψ paraméternek mágneses térfüggése. A folytonos görbék a gyengén nemlineáris elméleti modell jóslatát mutatják. A szaggatott vonal a mérési adatokra illesztett kvadratikus térfüggésnek felel meg [S18]. Homeotrop N5A, $d = 46 \ \mu m$, f = 1000 Hz.

Az itt ismertetett eredmények szolgálnak a T5 tézispont alapjául.

VI.3. Hibahely dinamika

A III.3 fejezetben láttuk, hogy a kialakuló mintázat morfológiája (**q** hullámvektora) adott folyadékkristály cella esetén a kontroll paraméterektől (EC esetén az *U* feszültség nagyságától és *f* frekvenciájától) függ. A kontroll paraméterek megváltoztatása esetén a rendszer egy más, \mathbf{q}_{eq} hullámvektorral kerülne a stacionárius egyensúly állapotába. Ezen egyensúlyi és a tényleges (pillanatnyi) hullámvektorok közötti $\Delta \mathbf{q} = \mathbf{q}_{eq} - \mathbf{q}$ eltérés, melyet a rendszer csökkenteni igyekszik, különösen a paraméterek hirtelen megváltoztatása esetén lehet jelentős.

Általános megfigyelés, hogy kiterjedt rendszerek rendezett, csíkszerű mintázataiban a hullámvektor nem tud folytonosan változni. **q** módosulása vagy a mintázat hullámosodási instabilitása, vagy hibahely (diszlokáció) párok keltése, a hibahelyek mozgása és végül annihilációja révén történhet meg [117,118]. E fejezetben az utóbbi mechanizmussal kapcsolatos, az elektrokonvekcióban elért eredményeinkról számolunk be.

VI.3.1. Előzmények

Az EC mintázatban akkor beszélünk hibahelyről (diszlokációról), ha egy konvekciós hengerpár egy adott pontban véget ér, míg a szomszédosak folytatódnak (10a. ábra). A hibahelyek párokban keletkeznek; a pár két, egymástól eltávolodó tagjához ellentétes topológiai töltést rendelhetünk. Egyébként az azonos topológiai töltésű hibahelyek taszítják, míg az ellentétes töltésűek vonzzák egymást, végezetül annihilációjukat eredményezve.

A hibahelyek mozgásának irányát tekintve két lehetőséget különböztethetünk meg: ha a mozgás a hengerekkel párhuzamosan történik, mászásnak ("climb") nevezzük, míg ha rájuk merőlegesen, akkor keresztcsúszásnak ("glide"). A diszlokációk mozgása során a rendszer **q** hullámvektora átállítódik. A mászás során $|\mathbf{q}|$ változik, míg a keresztcsúszás során **q** elfordulására kerül sor. Egy véges $\Delta \mathbf{q}$ hullámvektor-eltérés eltüntetése általában sok hibahely keletkezését, elvándorlását, majd annihilációját követeli meg.

A diszlokációk dinamikájára az amplitudó-egyenletek közelítésében végeztek elméleti számításokat [118–121]. Ezek szerint a többiektől távol levő és így azokkal nem kölcsönható, magányos diszlokáció v mozgási sebessége Δq -ra merőleges, továbbá e sebesség $|v(\Delta q)|$ nagysága $\Delta q \rightarrow 0$ esetén gyenge (logaritmikus) szingularitással rendelkezik:

$$v^* \ln(V_0/v^*) = 2\Delta q^* (1 - 0.25\Delta q^{*2}), \tag{47}$$

ahol

$$v^{*} = \frac{\tau_{0}}{\sqrt{\varepsilon}} \sqrt{(v_{x}^{2}/\xi_{\parallel}^{2} + v_{y}^{2}/\xi_{\perp}^{2})}; \quad \Delta q^{*} = \frac{1}{\sqrt{\varepsilon}} \sqrt{(\Delta q_{x}^{2}/\xi_{\parallel}^{2} + \Delta q_{y}^{2}/\xi_{\perp}^{2})}$$
(48)

rendre a dimenziótlan sebesség és a dimenziótlan hullámszámeltérés, $V_0 = 3,29$ egy állandó, ξ_{\parallel} és ξ_{\perp} a **q**-val párhuzamos és a rá merőleges anizotrop koherenciahosszak, τ_0 a korrelációs idő és $\varepsilon = (U^2 - U_c^2)/U_c^2$ jellemzi a küszöbtől eltérés mértékét.

Az első mérésekben Δq -t geometriai kényszer (strukturált elektródák) segítségével lehetett korlátozottan változtatni [122]; e módszerrel a sebesség irányára és nagyságrendjére levont következtetésekkel egyezést kaptak. Más módszerrel, a kritikus hullámszám $q_c(f)$ frekvenciafüggését felhasználva keltett hullámvektor-eltéréssel is kaptak félig kvantitatív egyezést, de e módszerrel csak mászás volt indukálható és a felbontás épp a $|\Delta q| \rightarrow 0$ tartományban nem volt kielégítő [105,123]. Később lézernyaláb segítségével ellenőrzötten keltett hibahelyeket is vizsgáltak, melyekkel állítólag a szinguláris viselkedést sikerült igazolni; sajnos az eredményeket azóta sem publikálták [124].

Vizsgálataink célja olyan mérési eljárás kidolgozása volt, mellyel ellenőrzött körülmények között lehet a diszlokációk keresztcsúszását megfigyelni és a sebesség szingularitására vonatkozó elméleti állítást bizonyítani.

VI.3.2. Saját eredmények

A III.3.4., VI.1. és VI.2. fejezetekben láttuk, hogy a homeotróp (- +) anyagok esetén az elektrokonvekció feszültség hatására másodlagos instabilitásként jelenik meg és a mintázatot a kiegészítő mágneses tér teszi rendezetté. A **q** hullámvektor irányát a **H** mágneses tér jelöli ki. Ha adott feszültség mellett a mágneses teret a minta síkjában elfordítjuk, az EC mintázat *q* hullámszáma nem, csak a **q** hullámvektor iránya változik. E módszerrel így könnyen lehet a mintázatban jelen lévő diszlokációkat a kívánt keresztcsúszásra kényszeríteni [S4, S15, S19].

A fenti elv kísérleti megvalósítása során a 16. ábrán bemutatotthoz hasonló mérési összeállítást használtunk, azzal a különbséggel, hogy a léptetőmotorokkal nem a polarizátorokat, hanem a termosztált mintát tudtuk a rögzített irányú mágneses térhez képest elforgatni [S19]. Az elforgatás hatását a 19. ábra szemlélteti. Az eredetileg **H**-ra merőleges (függőleges) hengerek (19a–19b. ábrák) az elforgatás utáni pillanatban ezen iránnyal α szöget zárnak be (19c. ábra). Következésképpen a **q** hullámvektor *H*-hoz képest ugyancsak α szögben áll. Az új egyensúlyi állapotnak a **H**-val párhuzamos (vízszintes) **q**_{eq}



55. ábra: A diszlokáció-dinamikai mérések geometriája. (a) Rendezett merőleges hengerek mintázat, $\mathbf{q} = \mathbf{q}_{eq} \parallel \mathbf{H}$; (b) diszlokáció a merőleges hengerek mintázatban; (c) a mintázat közvetlenül a cella α szöggel történő elfordítása után, $\mathbf{q} \neq \mathbf{q}_{eq} \parallel \mathbf{H}$; (d) a relaxált stacionárius végállapot, $\mathbf{q} = \mathbf{q}_{eq} \parallel \mathbf{H}$.

hullámvektor felel meg (19d. ábra). A $\Delta \mathbf{q} = \mathbf{q}_{eq} - \mathbf{q}$ eltérés beindítja a diszlokáció mozgását, melynek pályáját $\Delta t = 40-15000$ ms időközönként készített felvétel sorozatokkal dokumentáltuk. A hibahely pontos helyzetét a IV.4.4. fejezetben ismertetett komplex demodulációs módszer segítségével határoztuk meg.

A mérésekhez $d = 27 \ \mu m$ vastag N5A, illetve $d = 79,5 \ \mu m$ vastag, kék festékkel adalékolt MBBA mintát használtunk. A mérés elindításához a minta forgástengelyéhez közeli magányos diszlokációra volt szükség, amit kétféleképpen lehetett biztosítani. Az egyik módszer szerint a feszültséget a küszöb alatti értékről ($\varepsilon < 0$) jóval a küszöb fölé emeltük a turbulens tartományba ($\varepsilon \approx 0,2$), ahol sok hibahely pár keletkezett, majd a feszültséget visszacsökkentettük a küszöb közelébe ($\varepsilon \approx 0,03$) és vártunk, amíg a diszlokációk többsége annihilálódik. Egy diszlokációt akkor tekintettünk magányosnak, ha 500 μ m távolságon belül nem volt más hibahely. A csak festett MBBA-nál használt másik módszer [124] esetén fókuszált lézerfénnyel párban keltettünk diszlokációkat, melyek az elfordulás után távolodtak egymástól. Mindkét esetben a diszlokáció pályáját addig követtük, amíg a kétdimenziós FFT transzformált csúcsa nem mozdult el észrevehetően, vagy más hibahely nem került túl közel.

A 56a. ábrán példákat láthatunk az origóból induló diszlokáció által követett pályára [S19]. A folytonos vonalak a pályára illesztett egyenest jelölik. Az ábrából egyértelműen következik, hogy az elmozdulás iránya, amit ezen egyenesnek a **H**-val bezárt α_1 szögével jellemezhetünk, függ az α elfordítási szögtől. Az $\alpha_1(\alpha)$ függést a 56b. ábra szemlélteti. Jól láthatóan ez az összefüggés hibahatáron belül megegyezik az $\alpha_1 = \alpha/2$ relációval, azaz a diszlokáció mozgásának átlagos iránya a várakozásoknak megfelelően a **Δq** hullámvektor-eltérésre merőleges, azaz elsősorban keresztcsúszás típusú [S17, S19].

A 56a. ábrán ugyanakkor az is látszik, hogy a diszlokáció pályája nem szigorúan egyenes, benne periodikus moduláció figyelhető meg; e periodicitás az EC mintázat hullámhosszával (egy hengerpár szélességével) korrelál. Hasonlóképpen, az egyes elmozdulásokat a Δt időközzel elosztva kapott v sebességekben is látható hasonló moduláció. Erre számítani lehetett, mert a hengerekre merőleges keresztcsúszás esetén a rendszer nem rendelkezik folytonos transzlációs invarianciával, szemben a hengerekkel párhuzamos irányú



56. ábra: (a) Diszlokáció trajektóriája különböző α elfordulási szögek és az egymás utáni felvételek közötti Δt időkülönbség esetén [S19]. Négyzetek: $\alpha = 3,08^{\circ}$, $\Delta t = 20$ s; háromszögek: $\alpha = 6,16^{\circ}$, $\Delta t = 10$ s; körök: $\alpha = 10,78^{\circ}$, $\Delta t = 10$ s. A folytonos vonalak a pályára illesztett egyenest mutatják. (b) A sebesség **H**-val bezárt α_1 szöge a mintázat α elfordítási szöge függvényében. Háromszögek: N5A, $d = 27 \ \mu$ m; körök: MBBA, $d = 79,5 \ \mu$ m.

mászással, ahol ilyen pályamodulációt nem várunk és nem is figyeltek meg. E pályamoduláció ellenére, több felvételsorozat átlagában azt tapasztaltuk, hogy diszlokáció által megtett $\langle D \rangle$ távolság az idővel egyenes arányban növekszik, azaz az átlagos \bar{v} sebesség (a megfigyelt tartományban) állandó [S19].

A mérések konklúzióját, a $\overline{\nu}(\Delta q)$ összefüggést, a 57. ábra mutatja mind az N5A, mind a festett MBBA mintákra, mindegyik esetben pozitív és negatív topológiai töltésű diszlokációkra egyaránt. Jól látható, hogy az ellentétes topológiai töltésű hibahelyek ellenkező irányban mozognak. Annak érdekében, hogy e mért eredményeket az elmélet (47) jóslatával kvantitatívan összevethessük, szükséges a dimenziótlan paraméterek fizikaivá alakítása (48) felhasználásával. A ξ_{\parallel} és ξ_{\perp} koherenciahosszak megállapításához egy elfordulásmentes ($\alpha = 0$), statikus hibahely körül mért demodulált $|A_d|$ amplitudót illesztettünk a Ginzburg-Landau egyenletek [118, 119, 121] numerikus megoldásaihoz. A τ_0 korrelációs időt a mintázatnak a feszültség küszöb alá ugrására adott válaszából, a mintázat lebomlási sebességéből kaptuk meg. Az így nyert paraméterekkel a (47)-ből számolt görbéket szintén rárajzoltuk a 57. ábrára. Láthatóan mindkét minta esetén kiváló egyezést tapasztaltunk, ami igazolja, hogy az elméleti leírás szerinti szingularitás nemcsak a diszlokációk mászása, hanem keresztcsúszása esetén is fennáll [S4, S19].

A hibahelyek mozgásával kapcsolatos fenti eredményeket a T7 tézispont összegzi.



57. ábra: Diszlokáció átlagos \overline{v} mozgási sebességének függése a Δq) hullámszámeltéréstől. Háromszögek: N5A; körök: festett MBBA. A tele szimbólumok negatív, az üresek pedig pozitív topológiai töltésű diszklinációkhoz tartoznak. A szaggatott (N5A), illetve folytonos (MBBA) görbék az elmélet (47) jóslata szerinti összefüggést mutatják [S19].

ÉBER NÁNDOR

VII. fejezet

Nemstandard elektrokonvekció

E fejezetben az SM keretében nem értelmezhető, így a nemstandard elektrokonvekció körébe tartozó mintázatokkal kapcsolatos eredményeinket mutatjuk be. Három témakört részletezünk: a "prewavy" mintázat jellemzőit, a hajlott törzsű nematikus folyadékkristályokban előforduló elektrokonvekciót és a (+ +) anyagcsaládba tartozó 5CB EC mintázatait.

VII.1. A "prewavy" mintázat jellemzői

VII.1.1. Előzmények

Míg a standard EC vezetési és dielektromos mintázatai egyaránt a kétszeres mintavastagságnál rövidebb hullámhosszal (azaz $q^* > 1$ dimenziótlan hullámszámmal) rendelkeznek, nematikus folyadékkristályokban a mintavastagságnál sokkal nagyobb hullámhosszú ($\Lambda > 3d$) mintázat is előfordulhat. Ilyen újfajta, ú. n. széles doméneket először a sokak által vizsgált, a (- +) anyagcsaládba tartozó, MBBA planáris mintáin figyeltek meg [92, 125–128]. Hasonlóan nagy hullámhosszú, ú. n. "prewavy" mintázatot (13a. ábra) homeotróp MBBA-ban is észleltek a Freedericksz-küszöböt meghaladó feszültségeknél [44, 129]. Később hasonlóan nagy hullámhosszú struktúrákat más rúdalakú nematikus folyadékkristályokban [127, 128, 130, 131, S17], fecskefarkú [132] és hajlott törzsű molekulákból [S21] álló nematikus folyadékkristályokban is találtak. A továbbiakban a fenti mintázatokra az irodalomban elterjedtebb "prewavy" (PW) megnevezést használjuk.

A PW mintázatok a kezdeti \mathbf{n}_0 direktorra merőleges csíkok képében, egy f_{pw} frekvencia felett jelentek meg, többnyire a dielektromos ($f > f_{pw} > f_c$) frekvencia-tartományban, a dielektromos szarufa ("chevron") mintázat küszöbe alatti feszültségeken, de alkalmanként (ha f_c elég nagy frekvenciára esett) $f_{pw} < f < f_c$ esetén is előfordultak. Így a frekvencia növelésekor *vezetési EC – dielektromos EC – "prewavy" mintázat*, valamint *vezetési* EC – "prewavy" mintázat morfológiai átalakulásokról egyaránt beszámoltak.

A nagy hullámhossz mellett a PW mintázat másik fő jellemzője, hogy a standard EC mintázatokkal ellentétben csak keresztezett (vagy majdnem keresztezett) polarizátorokkal lehet őket megfigyelni; az árnyékleképezés (IV.3.2. fejezet) módszerével nem láthatók. A PW mintázat U_{pw} küszöbfeszültségének és hullámhosszának frekvenciafüggése a stan-

dard EC mintázatoknál tapasztalthoz képest gyengébb. Továbbá, U_{pw} csökken a minta σ vezetőképességének növekedésekor; a PW mintázat megfigyelhetőségéhez így viszonylag nagy vezetőképességű nematikus folyadékkristályra van szükség.

A megfigyelések azt is egyértelműen bizonyították, hogy a PW mintázat ténylegesen elektrokonvekció. A mintában véletlenszerűen megtalálható vagy szándékosan adalékolt mikrorészecskék (porszemek, mikrogömbök) a feszültség hatására a mintázat megjelenése után folytonos mozgásban vannak. E mozgás az x-y síkban történik [35, 93, S20], ellentétben a standard EC mintázatokkal, melyeknél az áramlás iránya az x-z síkba esik. A PW mintázat kialakulásának, illetve lebomlásának karakterisztikus ideje szokatlanul hosszú (több perc), szemben a standard EC-nél megszokott < 1 s nagyságrenddel.

A feszültséget az U_{pw} fölé növelve vagy elérjük az s-EC küszöbét, ahol megjelenik a szarufa mintázat (13c. ábra) [92, 125], vagy – elsősorban homeotróp mintákban – a mintázat behullámosodik és diszklináció hurkokat is tartalmazó komplex, ú. n. "wavy" mintázattá (13b. ábra) alakul át. A "prewavy" elnevezés tulajdonképpen innen ered, hiszen a PW ez utóbbi "wavy" struktúrát megelőző mintázat.

A fenti megfigyeléseket összegezve megállapíthatjuk, hogy a PW mintázat olyan karakterisztikákkal rendelkezik, melyek nem értelmezhetők az SM (vagy akár a flexoelektromossággal kibővített SM) segítségével, tehát a PW valóban az ns-EC mintázatok körébe tartozik.

A jelenség magyarázatára két alternatív mechanizmust javasoltak. A mérések egy része azt mutatta, hogy a hőmérséklet növelésekor Upw nem viselkedik szingulárisan az N–I fázisátmenetnél; sőt, bár mintázat az izotrop fázisban nem látszik, a mikrorészecskék áramlása a fázisátmenet mindkét oldalán ugyanolyan feszültségeknél figyelhető meg [92, 125, 126, 133]. Ez arra utal, hogy az instabilitás nem kötődik a folyadékkristály anizotrop tulajdonságaihoz (az optikai kontraszthoz persze kell az anizotrópia), ennek megfelelően izotrop folyadékokban is működő instabilitási mechanizmust (pl. töltésinjektálás a felületeken keresztül [134, 135]) javasoltak. E következtetésnek ellentmondanak azok a mérések, melyeket az MBBA-hoz hasonló szerkezetű, de szmektikus fázissal is rendelkező 4'-butoxibenzilidén-4-n-butilanilin és 4'-butoxibenzilidén-4-n-heptilanilin nematikus anyagokon végeztek [127, 128]. E vegyületekben a σ_a vezetőképesség anizotrópia előjelet vált a hőmérséklet függvényében: az anyag a szmektikus fázis közelében a (--), míg magasabb hőmérsékleteken a (-+) családba tartozik. A PW mintázat mindkét hőmérséklettartományban jelen volt, de az U_{pw} küszöbfeszültség divergált a vezetőképesség anizotrópiájának előjelváltásakor (ahol $\sigma_a = 0$). Ez arra utal, hogy σ_a előjele ugyan nem fontos, de a nagysága számít. A fent említett izotrop mechanizmus helyett így a mintázatképződés okának az SM egyenletekben elvileg szereplő, de ott mindig elhanyagolt a gyorsulással arányos – tehetetlenségi tagot tekintették [6,31,136].

Sajnos a két javasolt mechanizmus egyike sincs még az SM lineáris stabilitás analíziséhez hasonló mélységben elméletileg kidolgozva, így sem a PW mintázat küszöbfeszültségének $U_{pw}(f)$, sem a hullámvektorának $\mathbf{q}_{pw}(f)$ frekvenciafüggésére nem állnak rendelkezésre a mérésekkel összevethető és legalább kvalitatív egyezés mutató szimulációk. Így, érthetően, a jelenség magyarázatára jelenleg még nincs általánosan elfogadott magyarázat.

A PW mintázat vizsgálatának újabb lökést adott a szarufa mintázat sikeres elméle-

ti leírása, miszerint a dielektromos szarufa mintázat a dielektromos hengerek mintázat feszültség növelésekor kialakult hibahelyeinek (diszlokációinak) rendeződésével jön létre [81]. A kialakuló másodlagos, nagy hullámhosszú periodicitást hibahelyek láncával elválasztott csíkszerű domének jellemzi, melyekben a konvekciós hengerek és az átlagos direktorirány felváltva ellentétes irányba dől ((10b. ábra). Ennek kapcsán kiderült, hogy a feszültség növelésekor a PW mintázatból $f_{pw} < f < f_c$ esetén kialakuló szarufa mintázat (13c. ábra) más szerkezetű [129]. Az ellentétesen dőlő hengerekből álló csíkok határán nicsenek diszlokációk, helyette a hengerek orientációja folytonosan változással megy át az egyik dőlésből a másikba. Ez a hibahelymentes szarufa struktúra tulajdonképpen két, különböző hullámhosszú mintázatnak, a PW-nek és a vezetési EC merőleges hengereinek a szuperpozíciója.

A fenti megfigyelések összességében arra utaltak, hogy a PW mintázatot a direktor x-y síkbeli φ azimutszögének periodikus változása jellemzi. Vizsgálataink célja ennek megerősítése, valamint e szögmoduláció amplitudójának és a mintázat hullámhosszának meghatározása a feszültség függvényében volt, hogy ezzel további támpontot adhassunk a jelenség még hiányzó értelmezéséhez.

VII.1.2. Saját eredmények

A "prewavy" mintázatbeli direktor azimutszögének tanulmányozásához $d = 50 \ \mu \text{m}$ vastag homeotrop MBBA-t használtunk; a viszonylag nagy ($\sigma_{\perp} = 7,37 \times 10^{-7} \text{ Sm}^{-1}$) elektromos vezetőképességet kis mennyiségű (0,01 tömeg %) tetra-n-butilammónium-bromid (TBAB) hozzáadásával állítottuk be. Az elektrokonvekció kialakulásának feltételeit a frekvenciafüggetlen U_{F} küszöbbel rendelkező Freedericksz-átmenet teremtette meg. A meghajtó feszültség f < 2500 Hz frekvenciája a vezetési EC mintázat $f < f_{\text{c}}$ frekvenciatartományába esett [S20].

A megfigyelt s-EC, illetve ns-EC mintázatok $U_c(f)$, illetve $U_{pw}(f)$ küszöbfeszültségeit a 58a. ábrán mutatjuk be. Láthatóan a PW mintázat $U_{pw}(f)$ küszöbe, ami a frekvenciával közel lineárisan nő, $f_{pw} \approx 1950$ Hz felett alacsonyabb, mint $U_c(f)$. Méréseinket az f = 2150 Hz > f_{pw} frekvencián végeztük.

A direktor a kezdeti \mathbf{n}_0 -tól ($\varphi = 0$) x irányban periodikusan, felváltva pozitív, és negatív φ azimutszögek irányába tért ki; a kitérés mértéke a mintára kapcsolt feszültségtől függött [S20]. A 59a. ábrán a ϕ maximális azimutszöget ábrázoltuk a küszöbtől eltérést jellemző $\varepsilon_{pw} = (U^2 - U_{pw}^2)/U_{pw}^2$ függvényében. A PW küszöbét ($\varepsilon_{pw} = 0$) a függőleges szaggatott vonal jelzi. A függőleges pont–vonás a vezetési s-ECnek hibahelymentes szarufa mintázat formájában megjelenését ($\varepsilon_{pw} \approx 1,65$) jelöli. A mért, a $\phi = 0$ tengelyre lényegében szimmetrikusan elhelyezkedő, $\phi(\varepsilon_{pw})$ pontok erősen emlékeztetnek egy villa-bifurkációra, amilyet például a VI.1. fejezetben a 48b. és a 49. ábrákon láttunk.

A 59b. ábrán lg(ε_{pw}) függvényében ábrázoltuk a a fokokban mért $|\phi|$ azimutszög logaritmusát. Látható, hogy a villa-bifurkációra jellemző $\phi \propto \pm \sqrt{\varepsilon_{pw}}$ összefüggés (folytonos vonal a 59a. és 59b. ábrákon) legfeljebb csak kis $\varepsilon_{pw} \approx 0$ esetén ad elfogadható közelítést. A 59b. ábrán a teljes AR tartománybeli mérési pontokra illesztett egyenes (két pont–vonal) meredekségéből a $|\phi| \propto \varepsilon_{pw}^n$ összefüggés kitevőjére $n = 0.32 \pm 0.02$ értéket kapunk, vagyis megállapíthatjuk hogy az empirikus $\phi \propto \pm \sqrt[3]{\varepsilon_{pw}}$ függvény pontosabb le-



58. ábra: EC mintázatok küszöbfeszültségeinek frekvenciafüggése (a) MBBA ($d = 50 \ \mu$ m) [S20], illetve (b) N5/N5A ($d = 14 \ \mu$ m) esetén [S17]. A rombuszok a Freedericksz-átmenet, a négyzetek a vezetési EC, a háromszögek a dielektromos EC, a körök a "prewavy" mintázat küszöbét jelölik. A szaggatott vonal azt az f_{pw} frekvenciát jelöli, ahol a "prewavy" mintázat megjelenik; a pontozott vonal a vezetési EC–dielektromos EC átmenet f_c frekvenciáját mutatja.



59. ábra: (a) A direktor maximális ϕ azimutszöge a küszöbtől eltérést jellemző $\varepsilon_{pw} = (U^2 - U_{pw}^2)/U_{pw}^2$ függvényében (U_{pw} a "prewavy" mintázat küszöbfeszültsége) [S20]; (b) a fokokban mért ϕ azimutszög logaritmusa ε_{pw} logaritmusa függvényében az abnormális hengerek tartományában. A folytonos görbe a küszöb környezetére illesztett $\phi \propto \sqrt{\varepsilon_{pw}}$, a két pont–vonás görbe pedig a teljes $\varepsilon_{pw} > 0$ tartományra illesztett $\phi \propto \varepsilon_{pw}^n$ függvénynek felel meg. Az illesztés szerint $n = 0.32 \pm 002$. A függőleges szaggatott vonal a PW mintázatnak, a pontozott vonal a szubkritikus szögeltérések megjelenésének, a pont–vonás a szarufa ("chevron") mintázatnak a küszöbét jelöli.



60. ábra: A "prewavy" mintázat (a) maximális ϕ azimutszögének és (b) A hullámhosszának feszültségfüggése két mérési módszer esetén [S20]. A szaggatott függőleges vonal az U_{pw} küszöbfeszültséget jelöli. Az egyik esetben (körök) a feszültséget folyamatosan, lassan, míg a másik esetben (négyzetek) küszöb alatti $U = 10 \text{ V} < U_{pw}$ feszültségről ugrásszerűen növeltük a mérőfeszültség értékére. A folytonos görbék az adatokra illesztett $\phi \propto \sqrt[3]{U-U_{pw}}$ függvényt, a pontozott vonalak pedig az illesztett egyenest mutatják.

írást ad.

A további vizsgálataink arra is felhívták a figyelmet, hogy a PW mintázat ϕ maximális azimutszögének és Λ hullámhosszának feszültségfüggését az is befolyásolhatja, hogy a mérőfeszültséget milyen módon érjük el [S20]. A 60a., illetve 60b. ábrákon két módszerrel mért $\phi(U)$, illetve $\Lambda(U)$ görbéket hasonlítunk össze. Az egyik módszer szerint a feszültséget fokozatosan, kis lépésekben növelve végeztük el a mérést (körök a 60. ábrán). A másik módszer szerint minden mért pont után a feszültséget az U_{pw} küszöb alá (de az $U_{\rm F}$ Freedericksz-küszöb fölé, U = 10 V-ra) csökkentettük, megvártuk, amíg az esetleges korábbi mintázat lebomlott, majd innen ugrottunk fel a mérőfeszültségre (négyzetek a 60. ábrán). Az ábrán a szaggatott vonal jelöli a PW mintázat U_{pw} küszöbfeszültségét. Láthatóan a két módszer különböző eredményre vezetett. Bár a $\phi(U)$ görbe villa-bifurkáció jellege mindkét esetben megmarad (a folytonos vonalak a 60a. ábrán $\phi \propto \sqrt[3]{U-U_{pw}}$ illesztésnek felelnek meg), a fokozatos feszültségnövelés esetén a direktor kitérése nagyobb; a hullámhossz gyakorlatilag nem változik. Ezzel szemben, a feszültségugrásnál a kitérés kisebb, de a hullámhossz a feszültség növelésével közel lineárisan csökken (pontozott vonal a 60b. ábrán).

A két módszer eredményei közti különbséget a mintázatképződés általános hullámhossz-kiválasztódási szabályai alapján értelmezhetjük. Még az elektrokonvekcióra jellemző disszipatív folyamatok jelenlétében is jogos az a várakozás, hogy a gerjesztő feszültség emelése megnöveli a deformáció mértékét és szabadenergiáját. A szabadenergia növelése periodikus mintázatnál kétféleképpen történhet: (a) adott hullámhossz esetén megnöveljük a direktor kitérésének nagyságát (azaz ϕ -t); vagy (b) adott kitérésnél növeljük a direktor gradienst (azaz csökkentjük Λ -t). Amennyiben küszöb alattiról küszöb feletti feszültségre ugrunk, a homogén állapotban jelen levő, különböző hullámhosszú fluktuációk széles spektrumából várhatóan az új feszültség által preferált hullámhosszúnak lesz a legnagyobb a növekedési sebessége. Így az ezen módszerrel kapott hullámhossz közelíti legjobban a stacionárius mintázat $\Lambda(U)$ összefüggését. A feszültség lassú növelése esetén viszont egy már létező hullámhosszat kellene egy kicsit módosítani, azaz létrejön egy Δq hullámvektor-eltérés. A VI.3. fejezetben láttuk, hogy a hullámvektor módosítása hibahelyek keltése révén történhet, ami általában egy lassú folyamat, különösen a kis feszültségváltozással létrehozott kis Δq esetén. Ráadásul, mint fentebb említettük, a PW mintázat egyik jellemzője a szokatlanul hosszú relaxációs idő. Ez magyarázza, hogy miért nem tapasztaltuk a hullámhossz megváltozását a mérés órás időtartama alatt. Ugyanakkor a direktor kitérésének megváltozása lényegesen gyorsabb folyamat és emellett a megnövelt kitérés jelentősen csökkenti a minta deformációs feszültségét, ami magyarázza miért kaptunk nagyobb $\phi(U)$ értékeket [S20].

Annak érdekében, hogy a direktor kitéréssel együttjáró konvekcióról is tudjunk valamit állítani, a folyadékkristályhoz 3,88 μ m átmérőjű polisztirén gömböket adtunk hozzá. A standard EC merőleges hengereinek frekvenciatartományában e mikrorészecskék pályái az *x*–*z* síkba eső zárt hurkok voltak, egyezésben az elméleti várakozásokkal. Ezzel szemben a PW mintázatban *z* irányú mozgást nem lehetett megfigyelni, a mikrogömbök az *x*–*y* síkban mozogtak [S20]. Kétfajta mozgástípust detektáltunk: (i) A gömbök a $\varphi = 0$ vonalak mentén felváltva *y*, illetve –*y* irányban mozogtak. Ahol a PW egy csíkja végetért egy diszlokáció miatt, a hibahely felé mozgó gömb a hibahelynél irányt váltott és a szomszédos $\varphi = 0$ vonal mentén ellenkező irányban folytatta a mozgást. (ii) Egyes részecskék nagy *v_x* sebességgel keresztezték a PW mintázat csíkjait, de nem egyenes vonalban, hanem cikk-cakk irányváltásokkal. Ez is azt bizonyítja, hogy a PW mintázatban a direktor kitérése periodikus *v_y* sebességmodulációval jár együtt, melyben a *v_y* sebesség ott maximális, ahol a direktornak éppen nincs kitérése ($\varphi = 0$). Ezen eredmények teljes összhangban vannak mind a korábbi megfigyelésekkel [35], mind a későbbi részletesebb vizsgálatokkal [93].

A fent leírt tulajdonságokkal rendelkező PW mintázatot nemcsak MBBA-ban figyeltük meg, hanem az N5/N5A elegyben, az elektrokonvekciós vizsgálatok másik referencia anyagában is kimutattuk. Az elegyítésre olyan vezetőképesség beállításához volt szükség, ami lehetővé tette, hogy a szobahőmérsékleten a frekvencia növelésekor *vezetési EC* – *dielektromos EC* – *PW* morfológia sorrend magasabb hőmérsékleten (azaz nagyobb vezetőképesség esetén) *vezetési EC* – *PW mintázat* átalakulássá változzon (58b. ábra) [S17]. A hajlott törzsű (banán alakú) nematikus folyadékkristályokban megfigyelt PW mintázatokkal a VII.2.2. fejezetben részletesebben foglalkozunk.

Bár a fent bemutatott eredmények nem szolgáltattak olyan perdöntő bizonyítékot, aminek alapján a PW mintázat mechanizmusa egyértelműen beazonosítható lenne, rámutattak a *homogén állapot – PW* átmenet során villa-bifurkáció-szerűen megjelenő direktor elfordulásra. Hasonló azimutális szögmodulációt láttunk megjelenni a VI.1. fejezetben a *merőleges hengerek→abnormális hengerek* átmenetnél, továbbá hasonló szögmoduláció figyelhető meg a *dielektromos hengerek – dielektromos* (hibahelyeket tartalmazó) *szarufa mintázat* átalakulásnál. Mindkét esetben az azimutális modulációnak megfelelő, másodlagos, nagy hullámhosszú periodicitás az eredeti, rövidebb hullámhosszú mintázat küszöbe feletti újabb instabilitás (spontán szimmetriasértés) eredménye. E formális hasonlóságok miatt felmerült az a hipotézis is [137], hogy a PW mintázat esetleg maga is egy szarufa mintázat, melynek az eredeti hullámhossza olyan extrém rövid, hogy a mikroszkóp azt nem tudja felbontani. Ilyen extrém rövid hullámhosszat eredményezhet esetleg a VII.1.1. fejezetben már említett izotróp mechanizmus, a Debye koherenciahossz ugyanis a szubmikrométer tartományba eshet. Amennyiben ez igaz, úgy ezen extrém rövid hullámhosszú mintázatnak már az U_{pw} küszöbfeszültség alatt is jelen kellene lennie.

A 59. ábrán látható, hogy egy kicsi azimutszög-eltérés már valamivel a PW mintázat küszöbe alatt (függőleges pontozott vonal), a $-0.13 \leq \varepsilon_{pw} < 0$ tartományban is megfigyelhető [S20]. Más kutatócsoport beszámolt arról, hogy mikrorészecskék már U_{pw} alatt mozgásba jönnek [125]. Mindez esetleg utalhat az optikailag nem felbontható mintázat jelenlétére. Ugyanakkor e megfigyelések küszöb alatti, szubkritikus fluktuációkként is értelmezhetők, mely fluktuációk a standard elektrokonvekció esetén teljesen mindennaposak [47, 138]. Az egyértelmű döntéshez további, új módszereken alapuló vizsgálatokra lenne szükség.

A fenti eredmények szolgáltak a T8 tézispont alapjául.

VII.2. Elektrokonvekció hajlott törzsű nematikus folyadékkristályokban

VII.2.1. Előzmények

A II.1. fejezetben már említettük, hogy nematikus fázist rúd alakú molekulákon kívül hajlott törzsű (banán alakú) molekulák is képezhetnek. E "banán"-nematikus folyadékkristályok az elmúlt húsz évben egyre nagyobb érdeklődésre tettek szert, mert egyes fizikai tulajdonságaik lényegesen különbözhetnek a rúd alakú vegyületekétől [139]. Ezek közé tartozik a megszokottnál kisebb rugalmas állandó arány ($K_3 > K_1$ helyett $K_3 < K_1$) [140, 141], a szokásos $\eta \approx 0.1$ N s m⁻² értéknél 10–100-szor nagyobb viszkozitás [142], a kivételesen alacsony (több száz MHz helyett ~ 10 kHz) frekvenciákon észlelhető dielektromos relaxáció [143, E11] és a rúd alakú folyadékkristályokban tipikus $\sim 10 \text{ pC cm}^{-2}$ flexoelektromos együtthatóknál három nagyságrenddel nagyobb óriási flexoelektromosság [144, E3, E16]. Ezen különbségeknek szerkezeti okai vannak; a molekulák önszerveződése poláros, szmektikus rend kialakulását preferálja. Fényszórás és NMR mérések valószínűsítették, majd röntgenszórás és fagyasztva tört mintákon elvégzett transzmissziós elektronmikroszkópos mérések egyértelműen bizonyították, hogy a nematikus, sőt az izotrop fázisban is cibotaktikus csoportosulások vannak jelen, melyek 10–100 molekulából álló, dinamikusan keletkező majd elbomló, lokálisan ferro- vagy antiferroelektromos szmektikus rendezettségű tartományok [145-149]. A fenti tulajdonságok mindegyike megfigyelhető a laboratóriumunkban előállított ClPbis10BB molekulán [98, E9, S23], mely így számos kutatócsoport által vizsgált nemzetközi referenciaanyaggá vált.

Meg kell azonban jegyezzük, hogy amint a rúd alakú folyadékkristályok esetén is a molekulaszerkezettől függően a tulajdonságok széles spektruma volt megfigyelhető, a hajlott törzsű molekulák között is nagy a változatosság és közülük nem mindegyik rendelkezik a fenti speciális tulajdonságokkal [E14].

Elektromos tér hatására hajlott törzsű nematikus folyadékkristályokban is előfordulhat

ÉBER NÁNDOR

<i>T</i> (°C)	$f_{\sigma 1}$ (Hz)	$f_{\sigma 2}$ (Hz)
70	1150	8100
75	1600	9490
77	1860	10990

4. táblázat: A CIPbis10BB folyadékkristály elektromos vezetőképesség-anizotrópiájának előjelváltási frekvenciái különböző hőmérsékleteken.

elektrokonvekció. A mintázatokat először egyes új klór- [150, 151], bróm- [151] és ciánrezorcinol [152] származékok (65b. ábra) szintézise kapcsán említették meg, de ez csak a textúrákról készült pillanatfelvételek bemutatására korlátozódott.

A hajlott törzsű nematikus folyadékkristályok elektrokonvekciójának szisztematikus vizsgálatában kutatócsoportunk úttörő szerepet játszott, melynek során elért eredményeket a VII.2.2. fejezetben mutatjuk be. Azt ezt követően, más hajlott törzsű nematikus folyadékkristályokon megfigyelt mintázatokat a VII.2.3. fejezetben taglaljuk.

VII.2.2. Saját eredmények

A "banán"-nematikus folyadékkristályok elektrokonvekciójának vizsgálatához a ClPbis10BB vegyületet használtuk. Dielektromos spektroszkópiai mérések [E11, S21] megmutatták, hogy a nematikus fázisban az 1 Hz–100 kHz frekvenciatartományban a dielektromos anizotrópia végig negatív ($\varepsilon_a < 0$), viszont az elektromos vezetőképesség anizotrópiája kétszer előjelet vált: alacsony ($f < f_{\sigma 1}$) frekvencián $\sigma_a < 0$, közepes ($f_{\sigma 1} < f < f_{\sigma 2}$) frekvenciáknál $\sigma_a > 0$, míg magas ($f > f_{\sigma 2}$) frekvenciáknál ismét $\sigma_a < 0$. A 4. táblázatban megadjuk e frekvenciákat néhány hőmérsékletre. Láthatóan a hőmérséklet növelésekor e frekvenciák felfelé tolódnak, de a kettős előjelváltás megmarad. A vezetőképesség ezen előjelváltásai a szokatlanul alacsony frekvencián bekövetkező dielektromos relaxációból adódnak [E11].

A fenti dielektromos mérések szerint tehát a ClPbis10BB folyadékkristály alacsony és magas frekvenciákon a nematikus anyagok (- -), egyébként pedig a (- +) csoportjába tartozik.

A 61. ábrán az elektromos tér hatására kialakuló mintázatokról készült reprezentatív pillanatfelvételek láthatók, míg e mintázatok küszöbfeszültségeinek frekvenciafüggését a 62a. ábra mutatja be logaritmikus frekvenciaskálán. Az ábra alapján a vizsgált frekvenciatartomány négy részre osztható [S4, S21–S23].

A legalacsonyabb, $f < f_c \approx 28$ Hz frekvenciákon a (- -) családba tartozó rúd alakú nematikus folyadékkristályoknál is megfigyelt longitudinális hengerek (longitudinal rolls, LR) alakultak ki (61a. ábra). Mint az a 62b. ábrán látható, e frekvencia-tartományban az $U_c(f)$ görbe a várakozásoknak megfelelően lineáris.

Az f_c értékét meghaladó frekvenciájú gerjesztés esetén \mathbf{n}_0 -ra merőleges, széles csíkokból álló mintázatot figyeltünk meg mind alacsony (61b. ábra), mind pedig nagy f (61c.



61. ábra: Planáris ClPbis10BB folyadékkristály reprezentatív elektrokonvekciós mintázatai [S21]. (a) ns-EC longitudinális hengerek (LR) ($d = 15 \ \mu m$, $f = 12 \ Hz$, $U = 28 \ V$, $T = 75 \ ^{\circ}C$); (b) "prewavy" (PW_A) mintázat ($d = 15 \ \mu m$, $f = 200 \ Hz$, $U = 48 \ V$, $T = 75 \ ^{\circ}C$); (c) "prewavy" (PW_B) mintázat ($d = 10 \ \mu m$, $f = 20 \ Hz$, $U = 30 \ V$, $T = 70 \ ^{\circ}C$). A fehér rudak 100 μm hosszúak. A kezdeti \mathbf{n}_0 direktorirány vízszintes. A felvételek \mathbf{n}_0 -hoz képest kb. 15 fokkal elfordított, keresztezett polarizátorokkal készültek. A fehér kör egy tipikus hibahelyet (diszlokációt) vesz körbe.

ábra) esetén, amiket jellemzőik alapján a VII.1 fejezetben bemutatott "prewavy" mintázatként azonosítottunk. Az alacsony frekvenciás PWA és a nagyfrekvenciás $(f > f_{d2})$ PW_B "prewavy" mintázatok megjelenésében nincs észlelhető különbség, ugyanakkor az $U_{\rm c}(f)$ küszöbfeszültségük a frekvenciával ellentétesen változik; a PW_A küszöbe meredeken emelkedik, míg a PWB küszöbe meredeken csökken a frekvencia növelésekor. A 62c. ábrán a küszöbfeszültség reciprokát $(1/U_c)$ ábrázoltuk a frekvencia függvényében. A mérési pontok mind a PW_A, mind a PW_B esetén egyenessel illeszthetők. Ezen egyenesek a frekvenciatengelyt az f_{d1} és az $f_{d2} > f_{d1}$ pontokban metszik (a tengelymetszet végtelen nagy feszültségnek felel meg). Mindez azt jelenti, hogy a küszöbfeszültségek hiperbolikus divergenciát mutatnak: a PW_A esetén az $f_c < f < f_{d1}$ frekvenciatartományban $U_{\rm c}(f) \propto 1/(f_{\rm d1}-f)$, míg a PW_B esetében az $f > f_{\rm d2}$ frekvenciáknál $U_{\rm c}(f) \propto 1/(f-f_{\rm d2})$. Az illesztett hiperboláknak a 62a. ábrán a folytonos vonalak felelnek meg. A köztes, $f_{d1} < f < f_{d2}$ frekvenciatartományban semmilyen mintázat nem alakul ki; itt a mintázat hiánya nem a mintát meghajtó erősítő korlátozott kimeneti feszültségéből adódik [S21-S23].

A PW_B mintázat a küszöbfeszültség divergenciája mellett más okból is figyelemre méltó. Egyrészt, a mintázat szokatlanul nagy, akár 100 kHz feletti frekvenciáknál is megfigyelhető, míg rúd alakú nematikus folyadékkristályokban e frekvencia-tartományban már nem találtak elektrokonvekciót. Másrészt, eleddig példátlan módon, a PW_B esetében $\frac{\partial U_c}{\partial f} < 0$, vagyis a küszöb csökken a frekvencia növelésekor. Rúd alakú nematikus anyagokban minden mérés alkalmával $\frac{\partial U_c}{\partial f} > 0$ -t találtak, és mi több, minden eddigi elméleti modell és szimuláció is frekvenciával növekvő küszöböt eredményezett. Ez alól csak az extrém alacsony frekvenciáknál tapasztalt, a folyadékkristály nagy vezetőképessége miatt bekövetkező, a IV.2. fejezetben említett cellán belüli feszültségosztás által okozott küszöbnövekedés jelent kivételt.

A fejezet elején láttuk, hogy a CIPbis10BB elektromos vezetőképesség anizotrópi-



62. ábra: (a) Planáris CIPbis10BB folyadékkristály elektrokonvekciós mintázatai küszöbfeszültségeinek frekvenciafüggése logaritmikus frekvenciaskálán [S21]. Alacsony frekvenciákon ns-EC longitudinális hengerek (LR), majd "prewavy" (PW_A) mintázat látható. Közepes frekvenciáknál van egy mintázat nélküli frekvenciatartomány, majd nagy frekvenciákon ismét "prewavy" (PW_B) mintázat figyelhető meg. A pontozott vonal jelöli az LR és PW_A mintázatok közötti f_c átváltási frekvenciát, a szaggatott vonalak pedig azon f_{d1} és f_{d2} frekvenciákat mutatják, ahol U_c divergál. A folytonos vonalak hiperbolikus illesztések. (b) A longitudinális hengerek küszöbfeszültségének frekvenciafüggése. A folytonos vonal az $U_c(f)$ pontokra illesztett egyenes. (c) A "prewavy" mintázatok küszöbfeszültségeinek reciproka a frekvencia függvényében. Az $U_c^{-1}(f)$ mérési pontokra illesztett egyenesek az f_{d1} és f_{d2} frekvenciáknál metszik a vízszintes tengelyt. A nyilak a σ_a előjelváltásaihoz tartozó $f_{\sigma1}$ és $f_{\sigma2}$ frekvenciákat jelölik. $d = 15 \ \mu m, T = 75 \ ^{\circ}C$.

ájának előjele változik a frekvenciával. A 62c. ábrán nyilakkal jelöltük meg azt a két $(f_{\sigma 1} \text{ és } f_{\sigma 2})$ frekvenciát, ahol ez az előjelváltás megtörténik. Az ábrán látható, hogy e frekvenciák nem esnek egybe az f_{d1} és f_{d2} küszöbdivergencia-frekvenciákkal. A PW_A frekvencia-tartomány egészében az anyag a (- -) családba tartozik, viszont a mintázat nélküli köztes tartomány és a PW_B divergencia-tartomány nagy részében (- +) áll fenn és csak még nagyobb frekvenciáknál kerül vissza az anyag ismét a (- -) családba.

Emlékeztetünk arra, hogy a PW mintázat egyike az ns-EC azon képviselőinek, melyekben a mintázat mechanizmusa még ismeretlen. Így egyelőre azt sem lehet eldönteni, hogy σ_a előjelváltásának van-e és ha igen, akkor milyen szerepe van a küszöbfeszültségek divergenciájában.

A fent bemutatott, a frekvencia növelésekor *longitudinális hengerek* – PW_A – *nincs mintázat* – PW_B morfológiai szekvenciával jellemzett mintázatképződés nagyban eltér a rúd alakú anyagoknál tapasztalttól és eddig a ClPbis10BB-n kívül csak néhány "banán"nematikus folyadékkristályban sikerült megfigyelni [143, 151, 152, 155, 156, 158]. Így feltételezhetjük, hogy e viselkedés összefügghet a "banán"-nematikus fázis speciális szerkezetével, illetve tulajdonságaival. Ez indokolta annak feltérképezését, hogyan változik a mintázatképződés, ha a "banán"-nematikus anyagot különböző koncentrációban rúd alakú molekulákkal elegyítjük.

A vizsgálatokhoz a hajlott törzsű CIPbis10BB és a rúd alakú 6008 vegyületek elegyeit használtuk, amik korábbi mérések szerint [153] tetszőleges koncentráció esetén rendelkeztek nematikus fázissal. A 6008 szintén negatív dielektromos anizotrópiájú, de vezetőképesség anizotrópiája a vizsgált frekvenciatartományban végig pozitív, így a (- +) családba tartozik. A tiszta komponensek mellett három, 70% "banán"- (7B3R), 50% "banán"-(5B5R) és 30% "banán"-tartalmú (3B7R) elegy részletes vizsgálatára került sor. A tiszta CIPbis10BB morfológiai fázisdiagramját a 62a. ábrán mutattuk be, a 7B3R, 5B5R és 3B7R elegyek, valamint a tiszta 6008 morfológiai fázisdiagramjait pedig a 63. ábrán láthatjuk [S22].

A többségében "banánt" tartalmazó 7B3R elegy morfológiai fázisdiagramja (63a. ábra) nagyon emlékeztet a tiszta ClPbis100BB-ére: A PW_A és PW_B "prewavy" mintázatok és a köztes mintázat nélküli tartomány jelen vannak, csak nagyobb frekvenciák felé eltolódtak, viszont kis *f* esetén az ns-EC longitudinális hengerei helyett az s-EC vezetési tartományának ferde hengerei alakulnak ki. Ez azt mutatja, hogy az elegyítés hatására e frekvenciatartományban a 7B3R elegy már a (- +) családba tartozik. A "banán"-tartalom további csökkentése (5B5R) hatására a morfológiai fázisdiagram még mindig hasonló, de a nagyfrekvenciákon megfigyelhető, $\frac{\partial U_c}{\partial f} < 0$ meredekségű EC mintázat aperiodikus, nem lehet hozzá egyértelmű hullámvektort rendelni. A többségében rúd alakú nematikus molekulákból álló 3B7R elegyben nagyfrekvenciás mintázat már egyáltalán nem volt megfigyelhető, akárcsak a tiszta 6008 esetén, ahol a vezetési hengereket nem PW mintázat, hanem dielektromos hengerek követték *f* növelésekor. Ennek oka feltehetően a 6008 vegyületnek a ClPbis10BB-énél lényegesen alacsonyabb (kb. huszadakkora) elektromos vezetőképessége [S22].

A fenti mérések azt mutatták, hogy ClPbis10BB koncentrációjának csökkenése az elektrokonvekció "banán"-specifikus jellegének (két divergáló küszöbű PW mintázat, nagyfrekvencián $\frac{\partial U_c}{\partial f} < 0$) fokozatos gyengülését, majd megszűnését eredményezi. A kon-



63. ábra: Planárisan rendezett elegyek elektrokonvekciós mintázatai küszöbfeszültségeinek frekvenciafüggése logaritmikus frekvenciaskálán [S22]. (a) 70% "banán"-tartalmú elegy (7B3R): Alacsony frekvencián s-EC vezetési hengerek, majd alacsony frekvenciás (PW_A), illetve nagy frekvenciás (PW_B) "prewavy" mintázat figyelhető meg. (b) 50% "banán"-tartalmú elegy (5B5R): Alacsony frekvencián s-EC vezetési hengerek, majd PW mintázat, végül nagy frekvencián aperiodikus mintázat látható. (c) 30% "banán"-tartalmú elegy (3B7R): Alacsony frekvencián s-EC vezetési hengerek, majd PW mintázat alakul ki, nagy frekvencián nincs mintázat. (d) Tiszta 6008: Alacsony frekvencián s-EC vezetési hengerek, majd s-EC dielektromos hengerek keletkeznek, nagy frekvencián nincs mintázat.



64. ábra: TBABE ionos sóval dópolt, planárisan rendezett elegyek elektrokonvekciós mintázatai küszöbfeszültségeinek frekvenciafüggése logaritmikus frekvenciaskálán [S22].
(a) dópolatlan elegy (7B3R): Alacsony frekvencián s-EC vezetési hengerek, majd alacsony frekvenciás (PW_A), illetve nagy frekvenciás (PW_B) "prewavy" mintázat figyelhető meg, mintázat nélküli köztes tartománnyal. (b) 0,01 tömeg % TBABE sótartalmú 7B3R: Alacsony frekvencián s-EC vezetési hengerek, majd PW mintázat küszöbmaximummal. (c) 0,1 tömeg % TBABE sótartalmú 7B3R: Alacsony frekvencián s-EC vezetési hengerek, majd PW mintázat küszöbmaximummal. (d) 1 tömeg % TBABE sótartalmú 7B3R: Alacsony frekvencián s-EC vezetési hengerek, majd PW mintázat küszöbmaximummal. (d) 1 tömeg % TBABE sótartalmú 7B3R: Alacsony frekvencián s-EC vezetési hengerek, majd PW mintázat küszöbmaximummal.

centráció csökkenése viszont egyúttal a vezetőképesség csökkenésével is együtt jár. Annak érdekében, hogy a molekula alakjának és a vezetőképesség változásának hatását legalább részben szétválasszuk, rögzített koncentrációnál (7B3R elegy) változtattuk a vezetőképességet. A vezetőképességet csökkenteni ugyan nem tudtuk, növelése viszont 0,01, 0,1, illetve 1 tömeg % ionos só (tetrabutil-ammónium-benzoát, TBABE) hozzáadásával megoldható volt. A legnagyobb sókoncentrációval elérhető vezetőképesség-növekedés több mint két nagyságrend volt.

A dópolatlan 7B3R és a különböző sókoncentrációjú dópolt 7B3R elegyek morfológiai fázisdiagramjait a 64. ábrán hasonlíthatjuk össze [S22]. A vezetőképesség növekedésének egyik hatása a vezetési hengerek – PW mintázat átalakulás átváltási frekvenciájának lényeges növekedése. Másik következményként a PW_A és PW_B mintázatok közötti deformációmentes tartomány (64a. ábra) eltűnik; a küszöbök divergenciája helyett egy véges küszöbmaximumot találunk (64b. ábra). Az e maximumhoz tartozó frekvencia felfelé, a küszöbmaximum értéke pedig lefelé tolódik a sókoncentráció (és egyúttal σ) növelésekor (64c. ábra). A legnagyobb sókoncentrációnál (64d. ábra) a PW mintázat küszöbe már csak lassan, monoton változik és egyúttal $U_c(f)$ nagyfrekvenciás, negatív meredekségű szakasza is eltűnik (az alacsony frekvenciás küszöbnövekedés a cellán belüli feszültségosztás következménye).

Mindez azt mutatja, hogy a vezetőképesség növelése a "banán"-specifikus jelleg eltűnéséhez vezet. Ez ugyanakkor azt is bizonyítja, hogy CIPbis10BB nematikus folyadékkristályban a rúd alakú 6008 vegyülettel higításkor megfigyelt módosulások nem írhatók a vezetőképesség változásának számlájára, hiszen a higításnál a vezetőképesség nem nő, hanem csökken. Ez megerősíti azt a feltevést, hogy az EC eddig csak "banán"-nematikus folyadékkristályban megfigyelt specifikus jellemzői a "banán"-nematikus fázis speciális szerkezetének és sajátos tulajdonságainak köszönhetőek. A legszignifikánsabb változást (a nagyfrekvenciás mintázat eltűnését) a "banán"-tartalom 50 % alá csökkenésekor tapasztalhattuk. A CIPbis10BB/6008 rendszeren végzett egyéb mérések hasonló, 50 % körüli koncentráció-tartományban mutattak ki lényeges változásokat a nanoszerkezetben (a cibotaktikus csoportosulások jelenlétében) [148], a dielektromos relaxációban [E11] és a lineáris elektromechanikai jelenségben [154].

A hajlott törzsű nematikus folyadékkristályok mintázataihoz kapcsolódó fenti eredményeket a T9 tézispont összegzi.

VII.2.3. Mintázatok más hajlott törzsű nematikus folyadékkristályokban

A VII.2.2. fejezetben ismertetett méréseket követően több kutatócsoport is tanulmányozta hajlott törzsű nematikus folyadékkristályokban a mintázatképződést. A vizsgált anyagok rendkívül eltérő kémiai szerkezetét a 65. ábrán mutatjuk be. Ennek alapján nem meglepő, hogy rajtuk megfigyelt mintázatok jellemzői $[U_c(f), \mathbf{q}_c(f)]$ között nagy különbségeket fordulnak elő. Az összehasonlítást nehezíti, hogy e vegyületek anyagi paraméterei és nanoszerkezete többnyire nem ismertek; esetenként az anizotrópiák előjele szerinti osztályba sorolásuk is nehézséget okoz.

Az általunk tanulmányozott ClPbis10BB folyadékkristállyal a legnagyobb hasonlósá-


65. ábra: Azon hajlott törzsű nematikus folyadékkristályok kémiai szerkezete, melyeken más kutatócsoportok elektromos térrel keltett mintázatokat vizsgáltak. got egy 2,7-diszubsztituált naftalin származék, a 65a. ábra BCN1 vegyülete mutatta [155]. Ezen anyagban is megfigyelték a frekvenciával növekvő (PW_A), illetve csökkenő (PW_B) küszöbfeszültségű "prewavy" mintázatot, de a köztes frekvenciatartományban is találtak (elmosódott) mintázatot, valamint alacsony frekvenciákon áramlási hengerek helyett töredezett, polidomén struktúrát figyeltek meg. Polarizációs mikroszkópos mérések alapján a PW mintázatot alternáló előjelű csavardeformációt tartalmazó szerkezetnek tekintették. Rámutattak arra is, hogy nagy (f > 300 kHz) frekvenciáknál, jóval U_c feletti feszültségekkel nematikus–izotróp fázisátalakulás indukálható, melynek küszöbfeszültsége a PW_B küszöbfeszültségéhez hasonlóan csökken f növelésekor. Ezen fázisátalakulás a nagyfrekvenciáknál már számottevő, a dielektromos veszteségből adódó fűtés következménye. Ez felveti annak a lehetőségét, hogy esetleg már alacsonyabb frekvenciáknál és feszültségeknél is lehet a dielektromos fűtés okozta kisebb (fázisátmenetet még nem okozó) hőmérsékletnövekedésnek szerepe.

A ClPbis10BB-hez hasonló viselkedést észleltek a 65b. ábra szerinti klór-rezorcin származékban [BCN2(nX); n = 11, X=Cl] is [151, 156]. A BCN2(11Cl) morfológiai fázisdiagramja nagyon emlékeztet a 62a. ábrán bemutatottra, csak ezúttal a PW_A és a PW_B "prewavy" mintázatok közvetlenül alakulnak át egymásba (nincs mintázat nélküli tartomány). Egyenfeszültség hatására a BCN2(11Cl)-ben flexodomének jelennek meg [114], hasonlóképpen mint a ClPbis10BB-ben [157].

A nagyfrekvenciás, negatív $\partial U_c/\partial f$ -vel rendelkező "prewavy" (PW_B) mintázatot megfigyelték más rezorcin-származékokban is [BCN2 (nX) a 65b. ábrán; n = 9, 11, X=CN]. Közülük a BCN2(9CN) vegyületben [143, 152] az alacsony frekvenciás PW_A mintázat csak a nematikus tartomány felső részén volt látható; egy kritikus hőmérséklet alatt viszont helyette hasonló $U_c(f)$ függést mutató, nagy hullámhosszú, de \mathbf{n}_0 -lal párhuzamos csíkok alakultak ki. Az alacsony (f < 100 Hz) frekvenciákon standard EC volt megfigyelhető. A homológ sor hosszabb szénláncú, BCN2(12CN) tagján [152, 158] már a teljes nematikus tartományban helyettesítették a párhuzamos csíkok a PW_A mintázatot. A párhuzamos csíkok megjelenésére egyelőre még nincs magyarázat. A két anyag közötti különbségekben feltehetőleg fontos szerepet játszik, hogy az elektromos vezetőképesség anizotrópiája mind a frekvenciával, mind pedig a hőmérséklettel változik (és akár előjelet is vált).

A vizsgált hajlott törzsű nematikus folyadékkristályok egy másik csoportjában a mintázatképződés "banán"-specifikus tulajdonságai (pl. a negatív küszöbmeredekségű nagyfrekvenciás PW_B mintázat) nem voltak megfigyelhetők. Az oxadiazol alapú BCN3 vegyületben (65.c ábra) [159, 160] csak nemstandard longitudinális hengerekről számoltak be; $f \approx 5$ kHz feletti frekvenciáknál mintázat nem alakult ki. Az ezen anyagon, rögzített f = 1 kHz frekvencián, a feszültség növelésekor létrejövő morfológiai átalakulások hőmérsékletfüggőnek bizonyultak; a minta hűtésekor egy kritikus hőmérsékleten az egyik morfológia eltűnik, amit az anyag *egytengelyű nematikus – kéttengelyű nematikus* fázisátalakulásával magyaráztak [159].

Egy másik, szintén oxadiazol alapú homológ sor (14f. ábra) három tagját (7P-CF₂O-ODBP, 8P-CF₂O-ODBP és 9P-CF₂O-ODBP) mi is vizsgáltuk. Egyenfeszültségű meghajtásnál flexodoméneket figyeltünk meg; a nagy feszültségtartományban legrendezettebb, a feszültséggel lineárisan növekvő hullámszámú flexodoméneket a

7P-CF₂O-ODBP anyagon detektáltuk [E24, E26, E28, E30]. A 8P-CF₂O-ODBP esetén a 30 Hz < f < 1100 Hz frekvenciatartományban ferde hengereket, longitudinális hengereket és "prewavy" mintázattal azonosítható merőleges csíkokat találtunk, melyek között a feszültség növelésével generálhatunk átmenetet [E22, E28]. A 9P-CF₂O-ODBP anyagban ugyan kb. 80 kHz-ig találtunk PW mintázatot, de az $U_c(f)$ függvény meredeksége mindvégig pozitív volt. Az alacsony frekvenciás (f < 25 Hz) ferde hengerek esetén viszont nem várt polaritásérzékenységet tapasztaltunk: a hullámvektor iránya a meghajtó szinuszjel polaritásváltására elfordult, ezáltal a csíkoknak \mathbf{n}_0 -lal bezárt szöge +40°-ról -40°-ra, majd a következő félperiódusban visszafelé változott [E23, E28].

Összegezve, az oxadiazol alapú nematikus folyadékkristályok ugyan hajlott törzzsel rendelkeznek, de a bennük előforduló mintázatok és azok morfológiai változásai inkább hasonlítanak a rúd alakú nematikus molekuláknál megfigyeltekre [E4], mint a "banán"-nematikus ClPbis10BB-ére.

A vizsgált anyagok harmadik csoportjába azokat a molekulákat sorolhatjuk, melyek egymással flexibilis alkillánccal összekötött rúd alakú és hajlott törzsű szegmenseket tartalmaznak. A BCN4 dimer (65d. ábra) [161, 162] esetén a frekvencia növelésekor nem a vezetőképesség, hanem a permittivitás előjele változik. Az anyag a dielektromos inverziós frekvencia ($f_i \approx 150$ kHz) alatt a (++), míg f_i felett a (-+) családba tartozik. Ennek megfelelően homeotrop mintában, nagy frekvencián, a Freederiksz-átmenetet követően észleltek s-EC merőleges hengereket és PW mintázatot.

Egy másik dimer, a BCN5 (65e. ábra) [72, 73, 163–165] viszont a teljes vizsgált frekvenciatartományban a (+ -) családba tartozik. Planáris mintán, a Freedericksz-átmenetet követően, f növelése során *longitudinális hengerek – ferde hengerek – merőleges hengerek* átalakulást figyeltek meg, hasonlóan a rúd alakú (+ -) anyagok viselkedéséhez [E4].

Hajlott törzsű molekulák esetén már a Freedericksz-átmenet során kialakuló diszklináció-hurkok szerkezete és viselkedése is eltérhet a rúd alakú molekuláknál tapasztaltaktól. E diszklináció-hurkokat tanulmányozták mind a BCN2 (6CN) [166], mind pedig a BCN5 [164] nematikus anyag felhasználásával.

A fenti példák meggyőzően bizonyítják, hogy a hajlott törzsű nematikus folyadékkristályok mintázatképződése során ugyanúgy a mintázatok (morfológiák) sokféleségét tapasztalhatjuk, mint rúd alakú folyadékkristályok esetén. E mintázatok többsége a még kevéssé feltérképezett nemstandard elektrokonvekció körébe tartozik. A mintázatok kialakulási mechanizmusainak tisztázása és a morfológiai átalakulások értelmezése, különös tekintettel a CIPbis10BB-ben, a BCN1 és BCN2 vegyületekben talált "banán"-specifikus jelenségekre, még további kísérleti vizsgálatokat és az elméleti modellek továbbfejlesztését igénylik.

VII.3. Elektrokonvekció nagy pozitív dielektromos anizotrópiájú nematikus folyadékkristályban

VII.3.1. Előzmények

A VII. fejezetben már említettük, hogy a (+ +) családba tartozó nematikus folyadékkristályok esetén a Carr-Helfrich-mechanizmus nem eredményez destabilizáló forgatónyomatékot, vagyis az SM szerint ilyen anyagokban standard elektrokonvekció nem fordulhat elő. Ugyanakkor régóta ismert tény, hogy egyen- vagy váltófeszültséggel indukált (nemstandard) elektrokonvekciót megfigyeltek mind kis pozitív ($0 < \varepsilon_a < 3$) [88,89,167,168], mind pedig nagy pozitív ($\varepsilon_a > 7$) [87–91,169] dielektromos anizotrópiájú (++), homeotrop orientációjú nematikus folyadékkristályokban. Alacsony frekvenciákon a kialakuló mintázatok többnyire rendezetlen, ujjlenyomatszerűen tekeredő csíkokból [88,168,169], míg nagy frekvencián máltai keresztek sokaságából [88,169] álltak. Ez utóbbi mintázat lokálisan közel hengerszimmetrikusan deformált egységek (cirkuláris domének [89]) létezésére utal. Egyenfeszültségen, illetve 1 Hz alatti frekvenciáknál egy harmadik, celluláris mintázatot is leírtak [87]. E mintázatok homeotrop mintákban, közvetlenül a homogén alapállapotból, elsődleges instabilitásként fejlődnek ki. Ilyen körülmények között a mintázatképződés elég váratlan, hiszen nagy pozitív ε_a esetén a homeotrop mintában jelentős dielektromos stabilizáló forgatónyomaték hat a direktorra.

Az instabilitás mechanizmusa még nincs teljesen feltárva. Mindenesetre sem a standard EC Carr–Helfrich-visszacsatolása, sem pedig a (- -) anyagok nemstandard elektrokonvekcióját okozó flexoelektromos kölcsönhatás nem tehető felelőssé az instabilitásért. Miután egyes mérések szerint a mintázat küszöbfeszültsége folytonosan változik a hőmérséklettel a nematikus–izotrop fázisátmenet során, magyarázatként izotrop folyadékokban is működő instabilitási mechanizmust (pl. töltésinjektálás a felületeken keresztül [134, 135]) javasoltak [89, 170]. Az elméleti leírás azonban, sajnos, egyelőre nincs olyan mélységig kidolgozva, mint ahogy az az SM esetében már megtörtént, így a mintázat küszöbfeszültségéről és morfológiájáról még nem állnak rendelkezésre a kísérleti eredményekkel összevethető részletes szimulációk.

Vizsgálataink elsősorban a homeotrop és a planáris cellákban megfigyelhető mintázatképződés hasonlóságainak és eltéréseinek feltárását, másrészt az egyen- és váltófeszültség szuperpozíciója hatásának a feltérképezését célozták.

VII.3.2. Saját eredmények

Méréseinkhez a (+ +) folyadékkristály család egy jól ismert képviselőjét, az 5CB-t használtuk. A $d \approx 20 \ \mu$ m vastag homeotrop, illetve planáris mintákat $T = 30 \ ^\circ$ C-on termosztáltuk és polarizációs mikroszkópban vizsgáltuk. A mintákon mindkét felületi orientáció esetén kétfajta nemstandard EC mintázatot figyeltünk meg: sejtes mintázatot és merőleges hengereket, melyeket a 12a-d. ábrákon szemléltettük. A mintázatok kimutatásához a mintákat keresztezett (vagy majdnem keresztezett) polarizátor és analizátor közé kellett tenni. A standard EC vizsgálatánál jól bevált árnyékleképezés ezúttal nem volt használható, ugyanis e mintázatok küszöbének közelében nem adott kontrasztot.



66. ábra: Homeotrop 5CB folyadékkristály sejtes és merőleges henger mintázatai (a) U_c küszöbfeszültségének és (b) q_c^* dimenziótlan hullámszámának frekvenciafüggése [S24]. $d = 20,2 \ \mu$ m.

A sejtes és a hengeres mintázat ugyanabban a frekvenciatartományban, de különböző feszültségeknél volt megfigyelhető [S24]. A homeotrop mintára az egyes mintázatok küszöbfeszültségeinek $U_c(f)$ frekvenciafüggését a 66a. ábra, a mintázatok dimenziótlan hullámszámának $q_c^*(f)$ frekvenciafüggését pedig a 66b. ábra mutatja. A feszültség növelésével először a viszonylag kis kontrasztú sejtes mintázat emelkedik ki a homogén alapállapotból, majd a feszültség növelésekor e mintázat majdnem eltűnik és egy újabb, magasabb küszöbfeszültségnél jelenik meg a nagyobb kontrasztú, hengeres mintázat. Mindkét mintázat küszöbfeszültsége hasonló, $U_c \propto \sqrt{f}$ frekvenciafüggéssel rendelkezik.

A sejtes mintázat (12a. ábra) kétdimenziós cellákból áll, melyekhez hullámvektort nem, csak a karakterisztikus méretnek megfelelő hullámszámot rendelhetünk hozzá. Ezzel szemben a hengeres mintázathoz egyértelmű hullámvektor tartozik; igaz, ennek iránya helyről helyre változik, a mintázat rendezetlen (12b. ábra). Ezt az okozza, hogy a homeotrop felületi orientáció egy azimutális irányt sem tüntet ki, így a feszültség hatására megjelenő mintázat hullámvektorának iránya véletlenszerű. A 66b. ábrán látható, hogy a kétfajta mintázat eltérő hullámszámmal rendelkezik, sőt frekvenciafüggésük is különböző. Az alacsony (f < 10 Hz) frekvenciatartományban a frekvencia növelésekor a sejtes és a hengeres mintázatok dimenziótlan hullámszáma ellentétes irányban változik (a sejtesé csökken, a hengeresé nő), míg nagyobb (f > 20 Hz) frekvenciáknál már gyakorlatilag nem változik.

Planáris mintában már $U > U_F \approx 0.8$ V esetén Freedericksz-átmenetet figyelhetünk meg, ami nagyobb feszültségeknél biztosítja a mintázatképződéshez elengedhetetlen, az x-y síkban homogén, de z irányban deformált, kvázihomeotróp kezdeti állapotot. Mint az a küszöbfeszültségek, illetve a dimenziótlan hullámszámok frekvenciafüggését szemléltető 67a. és 67b. ábrákon látható, a planáris mintán is mind a sejtes (12c. ábra), mind a hengeres (12d. ábra) mintázat megfigyelhető. A 12a. és 67a. ábrák összehasonlításából látszik, hogy a planáris minta küszöbfeszültsége mindkét mintázat esetén lényegesen magasabb. A hullámszámok nagysága nem függ a felületi orientációtól, viszont a mintázat a planáris mintában sokkal rendezettebb, ami legjobban a kezdeti direktorirányra merőleges hengereknél (12d. ábra) figyelhető meg.



67. ábra: Planáris 5CB folyadékkristály sejtes és merőleges henger mintázatai (a) U_c küszöbfeszültségének és (b) q_c^* dimenziótlan hullámszámának frekvenciafüggése [S24]. d = 19,5 μ m.



68. ábra: Planáris 5CB folyadékkristály merőleges henger mintázatán diffraktált fény I_1 intenzitásának és a mintára kapcsolt, az amplitudóval normált *u* feszültségnek a *T* periódusidőn belüli időfüggése küszöb alatti (U = 25 V $< U_c$) és küszöb feletti (U = 40 V $> U_c$) feszültségek esetén [S24]. $d = 19,5 \ \mu m, f = 20$ Hz.



69. ábra: Szuperponált U_{ac} váltó- és U_{dc} egyenfeszültséggel gerjesztett planáris 5CB folyadékkristály elektrokonvekciós mintázatainak sematikus morfológiai fázisdiagramja f = 20 Hz esetén [S25]. Az origó közeli fehér tartomány a kezdeti planáris állapotnak, míg az ezt követő szürke tartomány a Freedericksz-átmenet utáni, *x*-*y* síkban homogén, *z* mentén deformált kvázihomeotróp állapotnak felel meg. A szaggatott, illetve a két-pont–vonás egyenesek azon állandó egyen- és váltófeszültség arányt ($R = U_{dc}/U_{ac} = 0.5$, illetve R = 1,4) jelölik, melyek mentén haladva vizsgáltuk a morfológiák változásához tartozó küszöbfeszültségeket.

A merőleges hengerek mintázat periódusidőn belüli fejlődését a mintázaton diffraktálódó fény első rendje I_1 intenzitásának mérésével követtük nyomon, melyre a 68. ábrán mutatunk példát. Az ábrán feltüntettük a mintára kapcsolt, amplitudóval normált *u* feszültségnek az időfüggését is. Küszöb alatti ($U < U_c$) feszültségnél I_1 kicsi és gyakorlatilag állandó, viszont $U > U_c$ esetén két intenzitáscsúcsot kaptunk. Ez azt mutatja, hogy a mintázat nincs folyamatosan jelen, hanem csak felvillanások formájában létezik. Először felépül, majd lebomlik és ez a folyamat ismétlődik minden félperiódusban. Ez a viselkedés emlékeztet a standard EC extrém alacsony frekvenciás gerjesztése esetén (V.3. fejezet) tapasztaltakra. Meglepő azonban, hogy míg ott f < 1 Hz frekvenciákat kellett alkalmaznunk, a jelen esetben a felvillanások jóval magasabb ($f \approx 50$ Hz) frekvenciákon is észlelhetők voltak. A mintázat felvillanásainak maximuma a $t/T \approx 0.2$, illetve $t/T \approx 0.7$ időpillanatokhoz tartozik és nem függ a meghajtó frekvenciától [S24].

A V.4. fejezetben láttuk, hogy standard EC mintázat nemcsak tisztán váltó- vagy tisztán egyenfeszültségű meghajtás esetén képződhet, hanem a kétféle feszültség szuperpozíciója esetén is. Bár az 5CB folyadékkristály standard helyett nemstandard EC mintázatokat mutat, itt is számíthatunk arra, hogy szuperponált egyen- és váltófeszültség, azaz $U(t) = U_{dc} + U_{ac}\sqrt{2}\sin(2\pi ft)$ hatására is jelennek meg mintázatok. A szuperpozíció hatásának feltérképezéséhez különböző vastagságú (20 μ m $\leq d \leq 630 \mu$ m) planáris cellákat használtunk.

A 69. ábrán az e cellákon f = 20 Hz frekvencián végzett mérések eredményekép-

pen leszűrhető sematikus morfológiai fázisdiagramot mutatjuk be, vagyis azt, hogy az $U_{ac}-U_{dc}$ sík egyes tartományaiban milyen mintázat volt megfigyelhető [S25]. Speciálisan, a korábban a 67. ábrán bemutatott mérések a vízszintes U_{ac} tengely adatait alapozták meg. Az $U_{ac}-U_{dc}$ sík feltérképezéséhez többféle stratégiát alkalmaztunk. Végeztünk méréseket rögzített $U_{dc} \neq 0$ (vízszintes vonal), rögzített $U_{ac} \neq 0$ (függőleges vonal) és állandó $R = U_{dc}/U_{ac}$ arány (ferde vonal) mentén. Az utóbbi módszer bizonyult a legcélravezetőbbnek.

A különböző cellák közös vonása, hogy kis $(\sqrt{U_{dc}^2 + U_{ac}^2} < U_F \approx 1 \text{ V})$ feszültség esetén a cellák megőrzik eredeti, planáris állapotukat, míg $\sqrt{U_{dc}^2 + U_{ac}^2} > U_F$ hatására bekövetkezik a Freedericksz-átmenet, ami az *x*-*y* síkban még homogén, csak *z*-től függő deformációt eredményez. Az *x*-*y* síkban periodikus első deformáció mind tisztán egyen-, mind tisztán váltófeszültség esetén, mind pedig a szuperpozíciójuknál a sejtes mintázat.

Nagyobb feszültségeknél hengeres mintázat is megfigyelhető. A tisztán váltófeszültségű meghajtásnál is látott merőleges hengerek (12d. ábra) mellett, kizárólag szuperponált feszültségeknél, a kezdeti direktoriránnyal párhuzamos csíkok (70a. ábra) is kialakultak. A két, egymásra merőleges irányú mintázat között nincs éles átmenet, helyette egy feszültségtartományban a két mintázat szuperponálódik, halszálkás mintázatot (70b. ábra) eredményezve. Állandó, R = 0.5 egyen-/váltófeszültség arányt fenntartva (a 69. ábrán a szaggatott vonal mentén) elvégzett méréseknél a feszültség növelésével így morfológiai átalakulások sorozatát, azaz a *planáris alapállapot – Freedericksz-deformált állapot – sejtes mintázat – párhuzamos csíkok – halszálkás mintázat – merőleges hengerek* közötti átalakulási szekvenciát indukálhatjuk [S25]. A 71. ábrán egyes EC mintázatok $d = 20 \,\mu$ m vastag cellán mért küszöbfeszültségeinek frekvenciafüggését ábrázoltuk.

Nagyobb, R = 1,4 egyen-/váltófeszültség arány esetén (két-pont–vonás a 69. ábrán) hengeres mintázatot nem tudtunk megfigyelni; a feszültség növelésekor a sejtes mintázatból a káoszba vezet az út. Érdekes ugyanakkor, hogy alkalmas, de pontosan még nem körülhatárolt körülmények teljesülése esetén (pl. $d = 127 \mu$ m vastag planáris cellában) a sejtes mintázat sejtjei közel szabályos hatszögeket formázhatnak (70c. ábra). Összehasonlításképpen e hatszöges sejtes mintázat küszöbfeszültségének frekvenciafüggését szintén feltüntettük a 71. ábrán. Látható, hogy a sejtes (hatszöges) mintázat vastagabb cellán mért küszöbe lényegesen alacsonyabb a vékony cellán mértnél.

A 72. ábrán egy planáris 5CB cella áram–feszültség karakterisztikáját mutatjuk be különböző típusú meghajtások esetére. Tiszta váltófeszültségnél az $I_{ac}(U_{ac})$ függvény egyenes, míg tiszta egyenfeszültségnél az $I_{dc}(U_{dc})$ görbe nemlineáris. Kombinált egyenés váltófeszültségű meghajtás (R = 0,5) esetén az áram mért effektív értéke, $I_{mért}(U_{ac})$, szintén nemlineáris, sőt lényegesen különbözik az áramnak az egyen- és váltófeszültségű komponensek összeadásával számolt $I_{számolt}(U_{ac}) = \sqrt{[I_{dc}(RU_{ac})]^2 + [I_{ac}(U_{ac})]^2}$ effektív értékétől. Ez mutatja, hogy az egyenfeszültség hatással van a váltóáramú vezetőképességre [S25]. E jelenséget, a vezetőképesség egyenfeszültséggel indukált megváltozását, más folyadékkristályok kapcsán már tárgyaltuk, sőt méréssel bizonyítottuk a V.4.2. fejezetben.

Az itt bemutatott mérések adják a T10 tézispont alapját. Ezen eredmények, bár hozzájárultak a (+ +) folyadékkristályok mintázatainak jobb megismeréséhez, sajnos nem szolgáltattak egyértelmű bizonyítékot a mintázatképződés mechanizmusának megállapí-



70. ábra: Nemstandard EC pillanatfelvételek planáris 5CB-én: (a) párhuzamos csíkok és (b) halszálkás mintázat ($d = 20 \ \mu m$, R = 0.5); (c) hatszöges mintázat 5CB-én ($d = 127 \ \mu m$, R = 1.4) [S25].



71. ábra: Nemstandard EC mintázatok U_c küszöbfeszültségének frekvenciafüggése planáris 5CB folyadékkristályban $d = 20 \ \mu m$ vastag cellán $R = U_{dc}/U_{ac} = 0.5$ esetén (sejtes, párhuzamos és halszálkás), illetve $d = 127 \ \mu m$ vastag cellán R = 1.4 esetén (hatszöges) [S25].

tásához. A korábbi megfigyelések mellett méréseink is rámutattak, hogy a folyadékkristályok ionos vezetőképességéhez kapcsolódó jelenségek fontos szerepet játszhatnak. Úgy gondoljuk, hogy a V.1.1. fejezetben bemutatott gyenge elektrolit model (WEM) [56] tartalmazhatja a jelenség leírásához szükséges alapegyenleteket. Mindazonáltal a mintázatképződésnek a WEM keretében történő részletes analízise jelenleg még túl nagy elméleti kihívást jelent és továbbra is várat magára.



72. ábra: Planáris 5CB folyadékkristály cella áram–feszültség karakterisztikája tisztán váltófeszültségű [$I_{ac}(U_{ac})$, négyzetek], tisztán egyenfeszültségű [$I_{dc}(U_{dc})$, körök], illetve szuperponált egyen- és váltófeszültségű [R = 0.5, $I_{mért}(U_{ac})$, háromszögek] meghajtás esetén [S25]. Az áramnak az egyen-, illetve váltófeszültségű komponensek összeadásával számolt $I_{számolt}(U_{ac}) = \sqrt{[I_{dc}(RU_{ac})]^2 + [I_{ac}(U_{ac})]^2}$ effektív értékét a csillagok jelölik.

VIII. fejezet Összefoglalás

Az értekezésben bemutatott kutatások a nematikus folyadékkristályok elektrokonvekciójának területén tíz, egymáshoz csak lazán kapcsolódó probléma megoldását célozták.

E problémák többsége a standard elektrokonvekció körébe tartozik, ahol jól kidolgozott elméleti leírás áll rendelkezésünkre, lehetővé téve a kísérletek során kapott eredmények és az elméleti várakozások összevetését.

A haladó hullámok (V.1. fejezet) esetében a mérések igazolták a gyenge elektrolit modell (WEM) által jósolt skálázási törvényt.

A mintázat lebomlásának vizsgálata során (V.2. fejezet) a mért lebomlási sebesség, valamint az egyes módusok súlyának a hullámszámfüggése jól illeszkedett a számolt diszperziós relációhoz és súlyfüggvényekhez. Azt is bebizonyosodott, hogy a módus-kiválasztódást a kezdeti feltételekkel lehet befolyásolni.

Az alacsony frekvenciás gerjesztésnél (V.3. fejezet) a kontraszt perióduson belüli időfüggése a várakozásokat követi. Bizonyítást nyert, hogy a félperóduson belül időben eltolva kétféle mintázat van jelen felvillanások formájában. E felvillanások mért és számolt fázisainak eltérése egyrészt a cellán belüli feszültségosztásnak, másrészt az elméleti modell által figyelembe nem vett ionos folyamatoknak tulajdonítható.

Megmutattuk, hogy homeotrop nematikus folyadékkristályban a mágneses tér (VI.2. fejezet) frekvenciafüggő hatással van a küszöbfeszültségre és a konvekciós hengerek ferdeségi szögére és az anyagi paraméterek speciális kombinációja esetén (N5A elegy) két Lifshitz-pont is lehetséges. Mérési összeállításunkkal bizonyítottuk, hogy az abnormális hengerekben (VI.1. fejezet) a direktor azimutszöge egy villa-bifurkációnak megfelelően változik. A küszöbfeszültség és a villa nyílásszögének frekvenciafüggése, valamint rögzített frekvencián a mágneses térfüggése jól egyezik a gyengén nemlineáris elméleti modell következtetéseivel. Megmutattuk továbbá, hogy nagy feszültségeknél egy újfajta, diszklinációhurkot tartalmazó mintázat is kialakulhat.

Homeotrop nematikus minta mágneses térben történő elfordításával kényszerítettük ki az elektrokonvekciós mintázatban diszlokációnak a hengerekre merőleges mozgását (VI.3. fejezet). Igazoltuk a gyengén nemlineáris elméleti modell állítását, hogy a diszlokáció mozgásának sebessége a hullámvektor-eltéréstől függ, és kis eltérés esetén logaritmikus szingularitással rendelkezik.

Az egyen- és váltófeszültség szuperpozíciója esetén (V.4. fejezet) a stabilitási határ-

görbék numerikus szimulációval történő meghatározását méréseink inspirálták. A kísérletekkel való összevetés a határgörbéknek csak egyes szakaszain eredményezett részleges egyezést. A megfigyelt jelentős eltérések okát azonban sikerült a vezetőképesség nagyságának és anizotrópiájának egyenfeszültség-függésében azonosítani és így a megfigyelésekre kvalitatív magyarázatot adni. Méréseink továbbá bebizonyították egy elméletileg megjósolt, de korábban még nem látott flexodomén típus létezését.

A fenti eredmények megnyugtatóan bizonyították a standard elektrokonvekció jelenleg használt elméleti modelljének alkalmazhatóságát, mind a közvetlenül küszöb környéki (lineáris modell), mind pedig a küszöböt meghaladó (gyengén nemlineáris modell) feszültségek esetén. Ugyanakkor rámutattak a modell korlátaira is, nevezetesen arra, hogy az ionos jelenségeket az elméleti leírás többnyire elhanyagolja (kivéve a haladó hullámok esetét).

A nemstandard elektrokonvekció általunk vizsgált két fajtájánál, a "prewavy" mintázatnál (VII.1. fejezet) és az 5CB mintázatképzésénél (VII.3. fejezet), ugyanakkor nem támaszkodhattunk elméleti várakozásokra, mert a mintázatok keletkezési mechanizmusa sajnos még nem ismert. A "prewavy" mintázat esetén bizonyítottuk, hogy nem csak egy speciális folyadékkristály (MBBA) esetén fordul elő, valamint hogy a direktor azimutszöge az abnormális hengerekhez hasonlóan villa-bifurkációt követ. Az 5CB-nél jellemeztük a sejtes és a merőleges hengerekből álló mintázatokat és megmutattuk, hogy mind planáris, mind homeotrop mintában előfordulnak, továbbá egyen- és váltófeszültség kombinációjával ezen felül párhuzamos csíkok is kialakíthatók. Mindez azonban nem bizonyult elegendőnek ahhoz, hogy a mintázatok keletkezési mechanizmusát feltárjuk. Továbblépésként egyrészt a korábban már javasolt izotrop mintázatképződési mechanizmus igazolásához (vagy elvetéséhez) az ionos jelenségek figyelembe vételére, azaz első lépésben a gyenge elektrolit modell (WEM) alapos (feltehetően numerikus) analízisére lenne szükség, másrészt olyan további kísérleti vizsgálatokra, melyek kijelölhetnék az elméleti modell esetleges más bővítési irányát.

A hajlott törzsű nematikus folyadékkristályok mintázatképződése terén úttörő vizsgálatokat végeztünk el (VII.2. fejezet). Megmutattuk, hogy a "prewavy" mintázat két frekvenciatartományban létezik, küszöbfeszültségük e tartományok egyik határán divergál, a nagyfrekvenciás mintázat küszöbe pedig csökken a frekvencia növelésekor. Ilyen viselkedést eddig csak banán alakú nematikus folyadékkristályban figyeltek meg. Kimutattuk, hogy e "banán"-specifikus jellemzők eltüntethetők a vezetőképesség növelésével, illetve kalamitikus nematikus folyadékkristállyal történő higítással. Ezen eredmények ellenére a mérések egyelőre több kérdést vetettek fel, mint amennyit megválaszolni sikerült. Ez nem meglepő, mert a hajlott törzsű nematikus folyadékkristályok elektrokonvekciójának tanulmányozása jelenleg még gyerekcipőben jár; kb. ott tart, ahol a kalamitikus folyadékkristályoké évtizedekkel ezelőtt. Mindenesetre azt már tudjuk, hogy a hajlott törzsű nematikus folyadékkristályoknál ugyanúgy a mintázat-morfológiák sokfélesége fordulhat elő, mint a rúd alakú nematikus anyagoknál. Átfogó kép kialakításához további, új anyagokon elvégzett vizsgálatok, ezen anyagok eleddig ismeretlen anyagi paramétereinek megmérése és az elméleti modell(ek) továbbfejlesztése szükségeltetne.

Függelék

A. ÚJ TUDOMÁNYOS EREDMÉNYEK (<u>T</u>ÉZISEK)

- T1 Különböző vastagságú és elektromos vezetőképességű planáris N5 nematikus folyadékkristály mintákon meghatároztam a váltakozó feszültséggel keltett elektrokonvekciós mintázatok küszöbfeszültségének és hullámszámának, valamint a haladó hullámok sebességére jellemző Hopf-frekvenciának a meghajtó frekvenciától való függését [S1]. Az elmélettel összehasonlítást elősegítendő megmértem az N5 néhány fontos, a numerikus szimulációk elvégzéséhez szükséges anyagi paraméterét (a dielektromos permittivitás és az elektromos vezetőképesség anizotropiáját, valamint a rugalmas állandókat) [S1]. A kapott eredmények igazolták, hogy a Hopffrekvencia reciproka a vezetőképesség gyökével és a mintavastagság köbével skálázódik, amint azt a haladó hullámok értelmezésére kifejlesztett gyenge elektrolit modell [56] megjósolta.
- T2 Fénydiffrakcióval tanulmányoztam a planáris nematikus folyadékkristályban váltófeszültséggel keltett elektrokonvekciós mintázatoknak a feszültség lekapcsolásakor bekövetkező lebomlását. Megmértem a lebomlás sebességét különböző hullámszámú mintázatok esetén és megállapítottam, hogy az a hullámszám négyzetétől közel kvadratikusan függ [S2, S4]. A bayreuth-i kutatók által kidolgozott elmélet szerint a lebomlás több, eltérő karakterisztikus idővel jellemzett, relaxációs módus szuperpozíciójaként írható le. Megállapítottam, hogy a hullámszám növelésekor egyre gyorsabb módusok határozzák meg a relaxáció folyamatát [S2, S4]. A módus kiválasztódását a kezdeti feltétel (a mintázat direktorprofilja) határozza meg. Megmutattam, hogy a meghajtó feszültség jelalakját szinuszosról négyszögjelre cserélve a kezdeti feltétel megváltoztatható és ezáltal a módus kiválasztódás a lassabb módusok felé eltolható [S3].
- T3 Polarizációs mikroszkópra szerelt gyors kamerával és fénydiffrakcióval egyaránt vizsgáltam az elektrokonvekciós mintázatoknak a meghajtó váltófeszültség periódusán belüli időfüggését. Megállapítottam, hogy nagy (f > 10 Hz) frekvencián a vezetési elektrokonvekciós mintázat (ferde vagy merőleges hengerek) stacionárius, kontrasztja az elméleti várakozásoknak megfelelően gyakorlatilag állandó; ezzel szemben, extrém alacsony (néhány mHz) frekvencián a vezetési elektrokonvekciós mintázat a meghajtó feszültség félperiódusainak csak a tört részében van jelen [S5–S8]. Az a frekvencia, melynél a nagy frekvencián stacionáris mintázat felvillanások sorozatává alakul át, jó közelítéssel megegyezik a direktor relaxációs idejének reciprokával [S5, S6]. Elegendően alacsony vezetőképességű mintákban a félperióduson belül, de az elektrokonvekciótól időben elkülönülve, egy más morfológiájú mintázat is felvillan, amit flexoelektromos doménként azonosítottam [S5–S8].
- T4 Planáris nematikus folyadékkristályban vizsgáltam szuperponált egyen- és váltófeszültség hatását az elektromos térrel indukált mintázatok kialakulására. Kimutat-

tam, hogy az egyenfeszültség hozzáadására a konduktív és a dielektromos mintázatok közötti átalakulás kritikus frekvenciája lecsökken, sőt a konduktív mintázat teljesen el is tűnhet [S9,S12]. A mintán átfolyó áram mérésével bizonyítottam, hogy az egyenfeszültség hozzáadásával a minta vezetőképessége jelentősen csökken, ami magyarázza a kritikus frekvencia csökkenését. Precíziós impedanciaméréssel kimutattam, hogy a vezetőképesség mellett annak relatív anizotrópiája is csökken egyenfeszültségű előfeszítés hatására [S12, S13]. Megállapítottam, hogy a feszültségugrás hatására bekövetkező vezetőképesség-változás időfüggésének leírásához legalább két időállandó szükséges. A gyorsabb változások perces, a lassabbak több órás időskálán következnek be [S12].

Kimértem különböző frekvekciákra a mintázat nélküli tartomány stabilitási határgörbéjét és meghatároztam, hogy milyen a megjelenő mintázatok morfológiája [S9, S11, S12]. Megállapítottam, hogy az egyen- és váltófeszültség összeadásakor a küszöbfeszültségek emelkednek, vagyis a szuperpozíció a mintázatképződést gátolja. A frekvencia növelésével e gátlás olyan mértékű lehet, hogy a mintázat nélküli tartomány a tiszta egyen-, illetve tiszta váltófeszültségű küszöbök többszöröséig is kiterjedhet [S11, S12].

A fenti eredményeket összevetettem az elektrokonvekció flexoelektromossággal kiterjesztett standard elméleti modelljéből konstans vezetőképességet feltételezve kapott elméleti várakozásokkal. Megállapítottam, hogy a határológörbének az egyenfeszültség által dominált szakaszán az elmélet és a kísérlet jó kvalitatív egyezést mutat [S10, S12]. Ezzel szemben a váltófeszültséggel dominált szakaszon az elmélet a küszöb csökkenését jósolja, míg a kísérletben a küszöb növekedését mértem [S11, S12]. Megmutattam, hogy ezt a diszkrepanciát a vezetőképességnek és a vezetőképesség relatív anizotrópiájának egyenfeszültségtől való függése okozza [S12].

- T5 Eljárást dolgoztam ki a homeotrop nematikus folyadékkristály elektrokonvekciója során másodlagos instabilitásként fellépő mintázat, a direktor azimutszögének elfordulásával jellemezhető abnormális hengerek, kimutatására [S14–S16, S18]. Különböző frekvenciájú gerjesztő feszültségeknél meghatároztam a *merőleges hengerek abnormális hengerek* átalakulás küszöbfeszültségét, valamint megmértem az azimutszög feszültségfüggését, ami egy villa-bifurkációnak felelt meg [S14–S17]. Megállapítottam, hogy a kapott eredmények jól egyeznek az elektrokonvekció küszöb feletti viselkedésének leírására kifejlesztett, gyengén nemlineáris modell [80] jóslataival [S14]. Megmutattam, hogy a meghajtó feszültség növelésével az abnormális hengerek egy új típusú mintázattá, "CRAZY" hengerekké alakulhatnak át, melyet a konvekción kívül a *z-y* síkban futó diszklináció hurkok periodikus sorozata jellemez [S14–S16].
- T6 Kísérletekben vizsgáltam a mágneses tér hatását homeotrop nematikus folyadékkristályban váltófeszültséggel keltett elektrokonvekciós mintázatokra. Megállapítottam, hogy míg magas frekvencián az elektrokonvekció küszöbfeszültsége monoton növekszik a mágneses térrel, alacsony frekvencián a tér függvényében mini-

mummal rendelkezik [S4,S17,S18]. Az elektrokonvekció küszöbfeszültségének kis mágneses tereknél tapasztalt csökkenését az elektrokonvekciót megelőző Freederickszátmenet küszöbcsökkenésének tulajdonítottam [S4,S18].

Megállapítottam, hogy a vizsgált nematikus folyadékkristály (N5) kis mágneses tér esetén a frekvencia csökkentésével *merőleges hengerek – ferde hengerek – merőleges hengerek* morfológiai átalakulásokat mutat, vagyis két Lifshitz-ponttal rendelkezik [S15–S18]. E szokatlan viselkedést az elektrokonvekció standard modellje alapján elvégzett numerikus szimulációk is igazolták. A mágneses tér növelésével visszakaptam a más anyagoknál megszokott, egy Lifshitz-ponttal jellemzett, *merőleges hengerek – ferde hengerek* morfológiai szekvenciát [S18]. Kimértem mágneses térnek kitett homeotrop nematikus folyadékkristályban a *merőleges hengerek – abnormális hengerek* bifurkáció küszöbfeszültségének és a bifurkáció során megjelenő direktor elfordulás szögének mágneses tér függését [S4,S18]. A kapott eredmények jó kvantitatív egyezést mutattak az elektrokonvekció gyengén nemlineáris modelljéből [80] számolt görbékkel.

- T7 Eljárást dolgoztam ki mágneses térnek kitett homeotrop nematikus folyadékkristály elektrokonvekciós mintázataiban hibahelyek keltésére és dinamikájuk vizsgálatára [S4,S15,S17,S19]. A mágneses tér elfordítása esetén az elektrokonvekció merőleges hengereinek hullámvektora időlegesen eltér az egyensúlyi, a mágneses térre merőleges értéktől. Az új egyensúlyi hullámvektorhoz visszatérés hibahelyek (diszlokációpárok) keltése és e hibahelyeknek a hengerekre merőleges elmozdulása, keresztcsúszása révén történik meg. A hibahelyek sebességének mérésével sikerült igazolni az elektrokonvekció gyengén nemlineáris modelljének Ginzburg–Landauegyenletei által a sebesség és a hullámvektor eltérése között fennálló kapcsolatra jósolt, logaritmikusan szinguláris összefüggést [S4, S19].
- T8 Homeotrop nematikus folyadékkristály (MBBA) elektrokonvekcióját vizsgálva néhány kHz meghajtó frekvenciáknál az elektrokonvekció standard modelljével nem értelmezhető "prewavy" mintázatot találtam. Megállapítottam, hogy e mintázatot a direktor azimutális elfordulása jellemzi [S20]. Megmértem az azimutszög feszültségfüggését, ami villa-bifurkációra emlékeztet. Megmutattam, hogy a feszültséget fokozatosan lassan növelve, illetve nulláról közvetlenül a kívánt értékre ugorva, mind az azimutszögre, mind a mintázat hullámhosszára különböző értékeket kapunk [S20].

Megmutattam, hogy a "prewavy" mintázat az MBBA-n kívül más rúd alakú nematikus folyadékkristályokban (N5) [S17], sőt "banán"-nematikus folyadékkristályokban (ClPbis10BB) is megfigyelhető [S21–S23].

T9 Vizsgáltam az elektromos térrel indukált mintázatképződést hajlott törzsű (banán alakú) molekulákból álló nematikus folyadékkristályokban. Megállapítottam, hogy a ClPbis10BB banán nematikus folyadékkristályban csak nemstandard elektrokonvekció lép fel. Alacsony frekvencián párhuzamos hengereket, magasabb frekvenciákon pedig két "prewavy" morfológiát figyeltem meg, melyeket egy mintázat nélküli frekvenciatartomány választ el [S4, S21, S23]. E frekvenciatartomány széléhez

közeledve mindkét "prewavy" mintázat küszöbfeszültsége divergál. Megállapítottam, hogy a szokatlanul magas frekvenciákon előforduló "prewavy" mintázat küszöbfeszültsége precedens nélküli csökkenést mutat a frekvencia növelésével [S21].

Megvizsgáltam, hogyan változik a mintázatképződés, ha a "banán"-nematikus folyadékkristályt rúd alakú molekulákból álló nematikus folyadékkristállyal higítjuk. Megállapítottam, hogy a higítás hatására az alacsonyfrekvenciás nemstandard mintázat standard elektrokonvekcióvá alakul át, míg a kétféle "prewavy" mintázat frekvenciatartománya a magasabb frekvenciák felé tolódik el. Ha az elegyben a rúd alakú vegyület kerül többségbe, a "banán"-nematikus folyadékkristályra jellemző nagyfrekvenciás mintázat eltűnik [S22].

Megállapítottam, hogy az elegy vezetőképességének jelentős növelésével a "banán"nematikus folyadékkristályra jellemző viselkedés eltüntethető [S22].

T10 Nagy pozitív dielektromos anizotrópiájú nematikus folyadékkristályban (5CB) az elektrokonvekció standard modelljével nem értelmezhető, nemstandard elektrokonvekciós mintázatokat figyeltem meg. Megállapítottam, hogy mind homeotrop mintákban, mind pedig a Freedericksz-átmenetetet követően planáris mintákban a feszültséget növelve előbb kis kontrasztú sejtes, majd nagy kontrasztú, merőleges hengerekből álló mintázat jelenik meg [S24, S25].

Megállapítottam, hogy planáris mintákban az elektrokonvekció megfigyelhető mind egyenfeszültségű, mind váltófeszültségű, mind pedig szuperponált egyen- és váltófeszültségű gerjesztés esetében [S25]. Feltérképeztem az egyes mintázatokhoz tartozó ac és dc feszültségtartományokat. Megállapítottam, hogy a szuperponált gerjesztés esetén egy új mintázat morfológia (a párhuzamos hengerek) is megjelenik [S25].

B. A TÉZISPONTOK ALAPJÁUL SZOLGÁLÓ <u>S</u>AJÁT TU-DOMÁNYOS KÖZLEMÉNYEK

- [S1] M. Treiber, N. Éber, Á. Buka, L. Kramer: Travelling waves in electroconvection of the Nematic Phase 5: A test of the weak electrolyte model, J. Physique II 7, 649-661 (1997).
- [S2] N. Éber, S. A. Rozanski, S. Németh, Á. Buka, W. Pesch, L. Kramer: Decay of spatially periodic patterns in a nematic liquid crystal. *Phys. Rev. E* 70, 061706/1-8 (2004). Preprint in electronic-Liquid Crystals Communications: http://www.e-lc.org/docs/2004_08_30_02_32_15 (2004).
- [S3] W. Pesch, L. Kramer, N. Éber, Á. Buka: The Role of Initial Conditions in the Decay of Spatially Periodic Patterns in a Nematic Liquid Crystal. *Phys. Rev. E* 73, 061705/1-10 (2006). Preprint in electronic-Liquid Crystals Communications: http://www.e-lc.org/docs/2006_02_23_10_34_41 (2006).
- [S4] Á. Buka, N. Éber, W. Pesch, L. Kramer: Isotropic and anisotropic electroconvection. *Phys. Reports* 448, 115-132 (2007).
- [S5] N. Éber, L.O. Palomares, P. Salamon, A. Krekhov and Á. Buka: Temporal evolution and alternation of mechanisms of electric field induced patterns at ultra-lowfrequency driving. *Phys. Rev. E* 86, 021702/1-9 (2012).
- [S6] N. Éber, P. Salamon and Á. Buka: Competition between Electric Field Induced Equilibrium and Non-Equilibrium Patterns at Low Frequency Driving in Nematics. In *Proceedings of the 13th Small Triangle Meeting on Theoretical Physics*, Stará Lesná, November 14-16, 2011, J. Buša, M. Hnatič and P. Kopčanský (eds.), IEP SAS, Košice, 2012, pp. 56-63.
- [S7] P. Salamon, N. Éber, A. Krekhov and Á. Buka: Flashing flexodomains and electroconvection rolls in a nematic liquid crystal. *Phys. Rev. E* 87, 032505/1-10 (2013).
- [S8] Á. Buka, T. Tóth-Katona, N. Éber, A. Krekhov and W. Pesch, Chapter 4. The role of flexoelectricity in pattern formation. In eds. Á. Buka and N. Éber, *Flexoelectricity in Liquid Crystals. Theory, Experiments and Applications*, Imperial College Press, London, 2012. pp. 101-135.
- [S9] N. Éber, P. Salamon, B. Fekete, T. Tóth-Katona, R. Karapinar, M. Sacks, Á. Buka: Electroconvection in a Nematic Liquid Crystal under Superposed AC and DC Electric Voltages, In *Proceedings of the 15th Small Triangle Meeting on Theoretical Physics*, Stará Lesná, October 27-30, 2013, J. Buša, M. Hnatič and P. Kopčanský (eds.), IEP SAS, Košice, 2014, pp. 46–51.
- [S10] A. Krekhov, W. Decker, W. Pesch, N. Éber, P. Salamon, B. Fekete, and Á. Buka: Patterns driven by combined AC and DC electric fields in nematic liquid crystals, *Phys. Rev. E* 89, 052507/1-9 (2014).

- [S11] P. Salamon, N. Éber, B. Fekete, and Á. Buka: Inhibited pattern formation by asymmetrical high-voltage excitation in nematic fluids. *Phys. Rev. E* 90, 022505/1-5 (2014).
- [S12] **N. Éber**, P. Salamon, B. A. Fekete, R. Karapinar, A. Krekhov, and Á. Buka: Suppression of spatially periodic patterns by dc voltage, *Phys. Rev. E* **93**, 042701 (2016).
- [S13] N. Éber, B. Fekete, P. Salamon, Á. Buka, A. Krekhov: Influence of DC voltage on the dielectric properties of nematics, in *Materials Research Proceedings*, Vol. 1, Dielectric Materials and Applications ISyDMA 2016, Eds. M. E. Achour, R. Touahni, R. Messoussi, M. Elaatmani, M. Ait Ali, Materials Research Forum LLC, Millersville, 2016, pp 42-44.
- [S14] A. G. Rossberg, N. Éber, Á. Buka, L. Kramer: Abnormal rolls and regular arrays of disclinations in homeotropic electroconvection. *Phys. Rev. E Rapid Communication* 61, R25-R28 (2000).
- [S15] Á. Buka, P. Tóth, N.Éber, L. Kramer: Electroconvection in homeotropically aligned nematics. *Physics Reports* 337, 157-169 (2000).
- [S16] N. Éber, A. G. Rossberg, Á. Buka, L. Kramer: New Scenarios in the Electroconvection of a Homeotropic Nematic Liquid Crystal. *Mol. Cryst. Liq. Cryst.* 351, 161-168 (2000).
- [S17] N. Éber, Á. Buka: Electroconvection in homeotropic nematic liquid crystals. *Phase Transitions* 78, 433-442 (2005).
- [S18] N. Éber, Sz. Németh, A. G. Rossberg, L. Kramer, Á. Buka: Magnetic Field Effects on the Thresholds of a Sequence of Transitions in the Electroconvection of a Homeotropic Nematic Liquid Crystal. *Phys. Rev. E* 66, 036213/1-8 (2002).
- [S19] P. Tóth, N. Éber, T.M. Bock, Á. Buka, L. Kramer: Dynamics of defects in electroconvection patterns. *Europhys. Lett.* 57 (6), 824-830 (2002).
- [S20] J.-H. Huh, Y. Hidaka, Y. Yusril, N. Éber, T. Tóth-Katona, Á. Buka, S. Kai: Prewavy pattern: a director-modulation structure in nematic liquid crystals. *Mol. Cryst. Liq. Cryst.* 364, 111-122 (2001).
- [S21] D. B. Wiant, J. T. Gleeson, N. Éber, K. Fodor-Csorba, A. Jákli, T. Toth-Katona: Non-Standard Electroconvection in a Bent Core Nematic. *Phys. Rev. E* 72, 041712/1-12 (2005) Preprint in electronic-Liquid Crystal Communications, http://www.e-lc.org/docs/2005_04_15_13_57_18 (2005).
- [S22] S. Tanaka, H. Takezoe, N. Éber, K. Fodor-Csorba, A. Vajda, and Á. Buka: Electroconvection in nematic mixtures of bent-core and calamitic molecules. *Phys. Rev. E* 80, 021702/1-8 (2009) Preprint in electronic-Liquid Crystal Communications: http://www.e-lc.org/docs/2009_04_16_07_01_45.

- [S23] Á. Buka, N. Éber, K. Fodor-Csorba, A. Jákli and P. Salamon: Physical properties of a bent-core nematic liquid crystal and its mixtures with calamitic molecules. *Phase Transitions* 85, 872-887 (2012).
- [S24] P. Kumar, J. Heuer, T. Tóth-Katona, **N. Éber**, and Á. Buka: Convection-roll instability in spite of a large stabilizing torque. *Phys. Rev. E* **81**, 020702(R)/1-4 (2010).
- [S25] L.E. Aguirre, E. Anoardo, N. Éber and Á. Buka: Regular structures in 5CB liquid crystals under the joint action of ac and dc voltages. *Phys. Rev. E* 85 041703/1-9 (2012).

C. Az értekezés témájához kapcsolódó <u>e</u>gyéb publikációs tevékenység

- [E1] Á. Buka, T. Börzsönyi, N. Éber, T. Tóth-Katona: Patterns in the bulk and at the interface of liquid crystals. In Coherent Structures in Complex Systems: Selected Papers of the XVII Sitges Conference on Statistical Mechanics, Held at Sitges, Barcelona, Spain, 5-9 June 2000, Lecture Notes in Physics 567, Eds. David Reguera, Luis López Bonilla, José-Miguel Rubí, Springer, 2001, pp.298-318.
- [E2] Á. Buka, N. Éber, W. Pesch, L. Kramer: Convective patterns in liquid crystals driven by electric field. In *Self-Assembly, Pattern Formation and Growth Phenomena in Nano-Systems*. Eds. A. A. Golovin, A. A. Nepomnyashchy, NA-TO Science Series II, Mathematica, Physics and Chemistry, Vol. 218, Springer, Dordrecht, 2006. Preprint in electronic-Liquid Crystal Communications, http://www.e-lc.org/docs/2005_07_12_04_29_54 (2005).
- [E3] J. Harden, B. Mbanga, N. Éber, K. Fodor-Csorba, S. Sprunt, J.T. Gleeson, A. Jákli: Giant flexoelectricity of bent-core nematic liquid crystals. *Phys. Rev. Lett.* 97, 157802/1-4 (2006). Preprint in electronic-Liquid Crystals Communications: http://www.e-lc.org/docs/2006_07_18_08_47_15 (2006).
- [E4] T. Tóth-Katona, A. Cauquil-Vergnes, N. Éber, Á. Buka: Non-standard electroconvection with Hopf-bifurcation in a nematic with negative electric anisotropies. *Phys. Rev. E* 75, 066210/1-12 (2007). Preprint in electronic-Liquid Crystals Communications: http://www.e-lc.org/docs/2006_12_15_06_27_48 (2006).
- [E5] N.Éber, A. Jákli, J. Harden, J. Gleeson, D. Wiant, S. Sprunt, K. Fodor-Csorba, T. Tóth Katona, Y. Shimbo, H. Takezoe, Á. Buka: Flexoelectricity and electroconvection in a banana nematic. *International Symposium on Banana Liquid Crystals Polarity, Chirality, Biaxiality and Frustration* (BANANA'07), Tokyo, 10-12 September, 2007, Proceedings/Extended Abstracts. pp. 30-34.
- [E6] T. Tóth-Katona, N. Éber, Á. Buka, A. Krekhov: Flexoelectricity and competition of time scales in electroconvection, *Phys. Rev. E* 78, 036306/1-12 (2008).
- [E7] Tóth Katona T, Éber N, Krekhov A, Buka Á: Competing time-scales in electroconvection. In *Proc of the 36th German Topical Meeting on Liquid Crystal*, Magdeburg, Germany, March 12-14, 2008, Proceedings/Extended Abstracts. p. 109-112 (2008).
- [E8] A. Krekhov, W. Pesch, N. Éber, T. Tóth-Katona, Á. Buka: Nonstandard electroconvection and flexoelectricity in nematic liquid crystals. *Phys. Rev. E* 77, 021705/1-11 (2008). Preprint in electronic-Liquid Crystals Communications: http://www.e-lc.org/docs/2007_09_14_08_02_35 (2007).

- [E9] A. Jákli, M. Chambers, J. Harden, M. Madhabi, R. Teeling, J. Kim, Q. Li, G.G. Nair, N. Éber, K. Fodor-Csorba, J.T. Gleeson, S. Sprunt: Extraordinary properties of nematic phases of bent-core liquid crystals. Emerging Liquid Crystal Technologies III, San Jose, January 20-24, 2008, *Proc. SPIE* Vol. 6911, 691105/1-10 (Jan. 29, 2008).
- [E10] T. Tóth-Katona, N. Éber, Á. Buka: Flexoelectricity in electroconvection. Mol. Cryst. Liq. Cryst. 511, 11-24 (2009).
- [E11] P. Salamon, N. Éber, Á. Buka, J. T. Gleeson, S. Sprunt, and A. Jákli, Dielectric properties of mixtures of a bent-core and a calamitic liquid crystal *Phys. Rev. E* 81, 031711 (2010).
- [E12] T. Tóth-Katona, N. Éber, and Á. Buka: Temporal response to harelectroconvection. Rev. monic driving in Phys. Ε 83. 061704/1electronic-Liquid Crystal 8 (2011). Preprint in Communications: http://www.e-lc.org/docs/2008_04_05_13_56_07 (2008).
- [E13] N. Éber, L.O. Palomares, P. Salamon, A. Krekhov, Á. Buka: Competition between Electric Field Induced Equilibrium and Dissipative Patterns at Low Frequency Driving in Nematics. 24th International Liquid Crystal Conference, Mainz, August 19th - 24th, 2012, Proceedings/Extended Abstracts, 5551_0884.pdf.
- [E14] P. Salamon, N. Éber, M. Lehmann, J.T. Gleeson, S. Sprunt and A. Jákli, Dielectric technique to measure the twist elastic constant of liquid crystals - The case of a bent-core material. *Phys. Rev. E* 85, 061704 (2012).
- [E15] Á. Buka and N. Éber (eds.): Flexoelectricity in Liquid Crystals. Theory, Experiments and Applications, Imperial College Press, London, 2012.
- [E16] A. Jákli, J. Harden and N. Éber: Chapter 3. Flexoelectricity of bent-core molecules, In eds. Á. Buka and N. Éber, *Flexoelectricity in Liquid Crystals. Theory, Experiments and Applications*, Imperial College Press, London, 2012. pp. 61-99.
- [E17] N. Éber: Appendix A. Measured Flexoelectric Coefficients of Nematic Liquid Crystals, In eds. Á. Buka and N. Éber, *Flexoelectricity in Liquid Crystals. Theory, Experiments and Applications*, Imperial College Press, London, 2012. pp. 249-265.
- [E18] N. Tomašovičová, P. Kopčanský, N. Éber: Chapter 11, Magnetically Active Anisotropic Fluids Based on Liquid Crystals, In Ed. H.G. Lemu, Anisotropy Research: New Developments, (Nova Science Publishers, 2012), pp. 253-282.
- [E19] L. O. Palomares, P. Salamon, N. Éber, Á. Buka: Pattern Formation in a Nematic Submitted to Low Frequency Square Wave and DC Voltages, 24th International Liquid Crystal Conference (ILCC 2012), Mainz, 19–24 August, 2012, poszter PI-015.

- [E20] P. Salamon, N. Éber, Á. Buka, T. Ostapenko, S. Dölle, and R. Stannarius: Magnetic control of flexoelectric domains in a nematic fluid, *Soft Matter* 10, 4487-4497 (2014).
- [E21] A. Jákli and N. Éber, Chapter 24, Electromechanical effects in liquid crystals, In Eds. J. W. Goodby, P. J. Collings, T. Kato, C. Tschierske, H. F. Gleeson, P. Raynes, *Handbook of Liquid Crystals, 2nd Edition, Vol. 8. Applications of Liquid Crystals.* Wiley-VCH Verlag, 2014, pp. 751-772.
- [E22] Y. Xiang, Y. Liu, Á. Buka, N. Éber, Z. Zhang, M. Xu, and E. Wang: Electric-fieldinduced patterns and their temperature dependence in a bent-core liquid crystal. *Phys. Rev. E* 89, 012502/1-9 (2014).
- [E23] Y. Xiang, M. Zhou, M. Xu, P. Salamon, N. Éber, and Á. Buka: Unusual polaritydependent patterns in a bent-core nematic liquid crystal under low-frequency ac field, *Phys. Rev. E* 91, 042501 (2015).
- [E24] M. Xu, M. Zhou, Y. Xiang, P. Salamon, N. Éber, and Á. Buka: Domain structures as optical gratings controlled by electric field in a bent-core nematic. *Optics Express* 23(12), 15224 (2015).
- [E25] **N. Éber**, P. Salamon and Á. Buka: Electrically induced patterns in nematics and how to avoid them, *Liquid Crystals Reviews* **4**(2), 101-134 (2016).
- [E26] Y. Xiang, H. Jing, Z. Zhang, W. Ye, M. Xu, E. Wang, P. Salamon, N. Éber, and Á. Buka: Tunable optical grating based on the flexoelectric effect in a bent-core nematic liquid crystal, *Phys. Rev. Appl.* 7, 064032 (2017).
- [E27] Á. Buka, and N. Éber: Nematic Liquid Crystals: Instabilities. In: S. Hashmi (editor-in-chief), *Reference Module in Materials Science and Materials Engine*ering. Oxford: Elsevier; 2018. pp. 1-10.
- [E28] N. Éber, Y. Xiang, and Á. Buka: Bent core nematics as optical gratings, J. Mol. Liq. 267, 436-444 (2018).
- [E29] H. Jing, Y. Xiang, M. Xu, E. Wang, J. Wang, N. Éber, Á. Buka: Light controllable electroconvection patterns in a chiral nematic liquid crystal, *Phys. Rev. Appl.* 10, 014028 (2018).
- [E30] W. Pesch, A. Krekhov, N. Éber, Á. Buka: Nonlinear analysis of flexodomains in nematic liquid crystals, *Phys. Rev. E* 98, 032702 (2018).
- [E31] H. Jing, M. Xu, Y. Xiang, E. Wang, D. Liu, A. Poryvai, M. Kohout, N. Éber, and Á. Buka: Light Tunable Gratings Based on Flexoelectric Effect in Photoresponsive Bent-Core Nematics, Adv. Optical Mater. (2019), doi:10.1002/adom.201801790.

D. ÁLTALÁNOS IRODALOMJEGYZÉK

- [1] P. G. de Gennes, J. Prost, *The Physics of Liquid Crystals* (Oxford Science Publications, 2001).
- [2] P. Oswald, P. Pieranski, Nematic and Cholesteric Liquid Crystals: Concepts and Physical Properties Illustrated by Experiments (Liquid Crystals Book Series) (Volume 1) 1st Edition (CRC Press, Boca Raton, 2006).
- [3] P. Oswald, P. Pieranski, Smectic and Columnar Liquid Crystals: Concepts and Physical Properties Illustrated by Experiments (Liquid Crystals Book Series) (Volume 2) 1st Edition (CRC Press, Boca Raton, 2006).
- [4] H. Takezoe, Y. Takanishi, Bent-core liquid crystals: Their mysterious and attractive world, Jpn. J. Appl. Phys. 45(2A), 597–625 (2006).
- [5] A. G. Petrov, *The Lyotropic State of Matter. Molecular Physics and Living Matter Physics*, (Gordon and Breach Science Publishers, L.-N.J., 1999).
- [6] L. M. Blinov, V. G. Chigrinov, *Electrooptic Effects in Liquid Crystal Materials* (Springer, New York, 1996).
- [7] A. Mertelj, D. Lisjak, M. Drofenik, M. Čopič, Ferromagnetism in suspensions of magnetic platelets in liquid crystal, *Nature* 504, 237–242 (2013).
- [8] R. B. Meyer, L. Liebert, L. Strzelecki, P. Keller, Ferroelectric liquid crystals, J. *Phys. Lett. (Paris)*, **36**, L-69–L-71 (1975).
- [9] T. Niori, T. Sekine, J. Watanabe, T. Furukawa, H. Takezoe, Distinct ferroelectric smectic liquid crystals consisting of banana shaped achiral molecules, *J. Mater. Chem.* **6**(7), 1231–1233, (1996).
- [10] R. B. Meyer, Piezoelectric effects in liquid crystals, *Phys. Rev. Lett.* 22(18), 918–921, (1969).
- [11] J. Prost, J. P. Marcerou, On the microscopic interpretation of flexoelectricity, J. Phys. (Paris) 38(3), 315–324, (1977).
- [12] I. Dozov, Ph. Martinot Lagarde and G. Durand, Flexoelectrically controlled twist of texture in a nematic liquid crystal, J. Phys. Lett. (Paris) 43(10), L-365–L-369, (1982).
- [13] N. V. Madhusudana, G. Durand, Linear flexo-electro-optic effect in a hybrid aligned nematic liquid crystal cell, J. Phys. Lett. (Paris) 46(5), L-195–L-200, (1985).
- [14] O. Parodi, Stress tensor for a nematic liquid crystal, J. Phys. Paris 31(7), 581–584 (1970).

- [15] J. L. Ericksen, Conservation Laws for Liquid Crystals, *Trans. Soc. Rheol.* 5, 23–34 (1961).
- [16] F. M. Leslie, Some constitutive equations for anisotropic fluids, *Quart. J. Mech. Appl. Math.* XIX, 357–370 (1966).
- [17] F. M. Leslie, Some constitutive equations for liquid crystals, Arch. Rational Mech. Anal. 28, 265–283 (1968).
- [18] J. L. Ericksen, On equations of motion for liquid crystals, *Quart. J. Mech. Appl. Math.* XXIX, 203–208 (1976).
- [19] F. M. Leslie, Some Thermal Effects in Cholesteric Liquid Crystals, Proc. Roy. Soc. A 307, 359–372 (1968).
- [20] F. M. Leslie, Continuum Theory of Cholesteric Liquid Crystals, Mol. Cryst. Liq. Cryst. 7, 407–431 (1969).
- [21] N. Éber, I. Jánossy, An experiment on the thermomechanical coupling in cholesterics, *Mol. Cryst. Liq. Cryst.* 72, 233–238 (1982).
- [22] N. Éber, I. Jánossy, Thermomechanical coupling in compensated cholesterics, *Mol. Cryst. Liq. Cryst.* 102, 311–316 (1984).
- [23] M. C. Cross, P. C. Hohenberg, Pattern formation outside of equilibrium, *Rev. Mod. Phys.* 65, 851–1112 (1993).
- [24] A. Buka, L. Kramer (eds.), Pattern Formation in Liquid Crystals. (Springer-Verlag, New York, 1996).
- [25] L. Kramer, W. Pesch, *Electrohydrodynamic instabilities in nematic liquid crystals*. In eds. Á. Buka, and L. Kramer, *Pattern Formation in Liquid Crystals*. (Springer-Verlag, New York, 1996) pp. 221–256.
- [26] V. Fréedericksz, A. Repiewa, Theoretisches und Experimentelles zur Frage nach der Natur der anisotropen Flüssigkeiten, Zeitschrift für Physik 42, 532–546 (1927).
- [27] L. K. Vistin', Electrostructural effect and optical properties of a certain class of liquid crystals and their binary mixtures, *Sov. Phys. Crystallogr.* 15(3), 514–515, (1970) [*Kristallografiya* 15(3), 594–595, (1970)].
- [28] M. I. Barnik, L. M. Blinov, A. N. Trufanov, B. A. Umanski, Flexoelectric domains in nematic liquid crystals, *Sov. Phys. JETP* 46(5), 1016–1019, (1977) [*Zh. Eksp. Teor. Fiz.* 73(5), 1936–1943, (1977)].
- [29] M. I. Barnik, L. M. Blinov, A. N. Trufanov, B. A. Umanski, Flexoelectric domains in liquid crystals, J. Phys. (Paris) 39(4), 417–422, (1978).

- [30] Yu. P. Bobylev, S. A. Pikin, Threshold piezoelectric instability in a liquid crystal, Sov. Phys. JETP 45(1), 195–198, (1977) [Zh. Eksp. Teor. Fiz. 72(1), 369–374, (1977)].
- [31] S. A. Pikin, *Structural Transformations in Liquid Crystals*. (Gordon and Breach Science Publishers, 1991).
- [32] A. Krekhov, W. Pesch, Á. Buka, Flexoelectricity and pattern formation in nematic liquid crystals, *Phys. Rev. E* **83**(5), 051706, (2011).
- [33] V. Fréedericksz, V. Tsvetkov, Bewegung anisotroper Flüssigkeiten im elektrischen Feld, *Acta Physicochim. U.R.S.S.* **3**, 879 (1935).
- [34] G. H. Heilmeier, L. A. Zanoni, and L. A. Barton, Dynamic Scattering In Nematic Liquid Crystals, *Appl. Phys. Lett.* 13, 46–47 (1968).
- [35] L. M. Blinov, M. I. Barnik, A. N. Trufanov, Modern classification of electrohydrodynamic instabilities in the nematic phase. *Mol. Cryst. Liq. Cryst.* 89, 47–55 (1982).
- [36] W. Pesch, U. Behn, Electrohydrodynamic convection in nematics. In eds. F. H. Busse, S. C. Müller, *Evolution of spontaneous structures in dissipative continuous systems*. (Lecture Notes in Physics, Vol. 55)(Springer, Berlin–Heidelberg, 1998). pp. 335–383.
- [37] L. Kramer, W. Pesch, Electrohydrodynamics in nematics. In eds. D. A. Dunmur, A. Fukuda, G. R. Luckhurst, *Physical properties of nematic liquid crystals*. (Inspec, London, 2001) pp. 441–454.
- [38] R. Williams, Domains in liquid crystals. J. Chem. Phys. 39, 384–388 (1963).
- [39] E. F. Carr, Influence of electric fields on the molecular alignment in the liquid crystal p-(anisalamino)-phenyl acetate, *Mol. Cryst. Liq. Cryst.* 7(1), 253–268, (1969).
- [40] W. Helfrich, Conduction-induced alignment of nematic liquid crystals: basic model and stability considerations, *J. Chem. Phys.* **51**(9), 4092–4105, (1969).
- [41] E. Bodenschatz, W. Zimmermann, L. Kramer, On electrically driven patternforming instabilities in planar nematics, J. Phys. (Paris) 49(11), 1875–1899, (1988).
- [42] W. Pesch, L. Kramer, General mathematical description of pattern-forming instabilities. In eds. Á. Buka, L. Kramer, *Pattern formation in liquid crystals*. (Springer-Verlag, New York, 1996). pp. 69–90.
- [43] R. A. Rigopoulos and H. M. Zenginoglou, Electrohydrodynamic Instability Limits of Nematics, *Mol. Cryst. Liq. Cryst.* 35 (3–4), 307–318 (1976).

- [44] S. Kai, K. Hirakawa, Phase diagram of dissipative structures in the nematic liquid crystal under a.c.-field. *Solid State Commun.* **18**, 1573–1577 (1976).
- [45] M. Dennin, M. Treiber, L. Kramer, G. Ahlers, D. Cannell, Origin of traveling rolls in electroconvection of nematic liquid crystals, *Phys. Rev. Lett.* 76, 319–322 (1996).
- [46] M. May, W. Schöpf, I. Rehberg, A. Krekhov, Á. Buka, Transition from longitudinal to transversal patterns in an anisotropic system, *Phys. Rev. E* **78**, 046215 (2008).
- [47] I. Rehberg, S. Rasenat, M. de la Torre Juarez, W. Schöpf, F. Hörner, G. Ahlers, H. R. Brand, Thermally induced hydrodynamic fluctuations below the onset of electroconvection. *Phys. Rev. Lett.* 67, 596–599 (1991).
- [48] H. Amm, M. Grigutsch, R. Stannarius, Optical Characterization of Electroconvection in Nematics, *Mol. Cryst. Liq. Cryst.* **320**, 11 (1998).
- [49] H. Amm, M. Grigutsch, and R. Stannarius, Spatio-temporal Analysis of Electroconvection in Nematics, Z. Naturforsch. 53a, 117 (1998).
- [50] S. Kai, K. Hirakawa, Successive transitions in electrohydrodynamic instabilities of nematics. *Prog. Theor. Phys. Suppl.* **64**, 212–243 (1978).
- [51] E. Ramou, H. M. Zenginoglou, P. L. Papadopoulos, On an objective experimental method for the determination of the electrohydrodynamic instability thresholds in a nematic liquid crystal. *Liq. Cryst.* **41**, 1–8 (2014).
- [52] A. Joets, R. Ribotta, Localized, time-dependent state in the convection of a nematic liquid crystal, *Phys. Rev. Lett.* **60**, 2164–2167 (1988).
- [53] I. Rehberg, S. Rasenat, J. Fineberg, M. de la Torre Juarez, V. Steinberg, Temporal modulation of traveling waves. *Phys Rev Lett.* 61, 2449–2452 (1988).
- [54] I. Rehberg, S. Rasenat, V. Steinberg, Traveling waves and defect-initiated turbulence in electroconvecting nematics. *Phys. Rev. Lett.* 62, 756–759 (1989).
- [55] M. Silber, H. Riecke, L. Kramer, Symmetry-breaking Hopf bifurcation in anisotropic systems, *Physica D* 61, 260–278 (1992).
- [56] M. Treiber, L. Kramer, Bipolar electrodiffusion model for electroconvection in nematics. *Mol. Cryst. Liq. Cryst.* 261 311–326 (1995).
- [57] A. Buka, B. Dressel, W. Otowski, K. Camara, T. Tóth-Katona, L. Kramer, J. Lindau, G. Pelzl, W. Pesch, Electroconvection in nematic liquid crystals with positive dielectric and negative conductivity anisotropy, *Phys Rev E* 66, 051713 (2002).
- [58] B. Zhang, H. Kitzerow, Pattern formation in a nematic liquid crystal mixture with negative anisotropy of the electric conductivity – A long-known system with "inverse" light scattering revisited. J. Phys. Chem. B 120(27), 6865–6871 (2016).

- [59] D. Meyerhofer, A. Sussman, Electrohydrodynamic Instabilities in Nematic Liquid Crystals in Low-Frequency Fields, *Appl. Phys. Lett.* **20**, 337–339 (1972).
- [60] M. I. Barnik, L. M. Blinov, M. F. Grebenkin, S. A. Pikin, V. G. Chigrinov, Electrohydrodynamic instability in nematic liquid crystals, *Sov. Phys. JETP*, 42(3), 550–553 (1975) [*Zh. Eksp. Teor. Fiz.* 69, 1080–1087 (1975)].
- [61] H. Richter, N. Klöpper, A. Hertrich, Á. Buka, Electroconvection in a homeotropic nematic under the influence of a magnetic field. *Europhys. Lett.* **30**, 37–42 (1995).
- [62] H. Richter, A. Buka, I. Rehberg, Electrohydrodynamic convection in a homeotropically aligned nematic sample, *Phys. Rev. E* 51, 5886–5890 (1995).
- [63] A. Hertrich, W. Decker, W. Pesch, L. Kramer, The electrohydrodynamic instability in homeotropic nematic layers. *J. Phys. II (Paris)* **2**, 1915–1930 (1992).
- [64] S. Kai S, K.-i. Hayashi, Y. Hidaka, Pattern forming instability in homeotropically aligned liquid crystals. *J. Phys. Chem.* **100**, 19007–19016 (1996).
- [65] Y. Hidaka, J. Huh, K. Hayashi, M. Tribelsky, S. Kai, Dynamical aspects of spatiotemporal chaos at the onset of electroconvection of homeotropic nematics, *J. Phys. Soc. Jpn.* 66, 3329–3332 (1997).
- [66] Y. Hidaka, J.-H. Huh, K. Hayashi, S. Kai, M. I. Tribelsky, Soft-mode turbulence in electrohydrodynamic convection of a homeotropically aligned nematic layer, *Phys. Rev. E* 56(6), R6256–R6259 (1997).
- [67] J.-H. Huh, Y. Hidaka, S. Kai, Transition properties of the soft-mode turbulence in the homeotropic electroconvection superposing magnetic fields, *J. Phys. Soc. Jpn.* 67(6), 1948–1954 (1998).
- [68] Y. Hidaka, K. Tamura, S. Kai, Soft-mode turbulence in electroconvection of nematics, *Prog. Theor. Phys. Suppl.* 161, 1–11 (2006).
- [69] Y. Hidaka, N. Oikawa Chaos and spatiotemporal chaos in convective systems, *Forma* 29, 29–32 (2014).
- [70] J.-H. Huh, Y. Hidaka, S. Kai, Observation and determination of abnormal rolls and abnormal zigzag rolls in electroconvection in homeotropic liquid crystals, *Phys. Rev. E* 58(6), 7355–7358 (1998).
- [71] J.-H. Huh, Y. Hidaka, S. Kai, Formation scenarios for nonlinear patterns in electroconvection under controlling Goldstone modes in magnetic field, *J. Phys. Soc. Jpn.* 68(5), 1567–1577 (1999).
- [72] R. Stannarius, J. Heuer, Electroconvection in nematics above the splay Fréedericksz transition. *Eur. Phys. J. E* 24, 27–33 (2007).

- [73] J. Heuer, R. Stannarius, M. G. Tamba, W. Weissflog, Longitudinal and normal electroconvection rolls in a nematic liquid crystal with positive dielectric and negative conductivity anisotropy. *Phys. Rev. E* 77, 056206 (2008).
- [74] B. Bahadur, Dynamic Scattering Mode LCDs, In ed. B. Bahadur, *Liquid Crystals*. *Applications and Uses, Vol. 1*, (World Scientific, Singapore, 1990), pp. 196–230.
- [75] Orsay Liquid Crystal Group, AC and DC regimes of the electrohydrodynamic instabilities in nematic liquid crystals, *Mol. Cryst. Liq. Cryst.* **12**, 251–266 (1971).
- [76] A. G. Rossberg, L. Kramer, Pattern formation from defect chaos a theory of chevrons. *Physica D* 115, 19–28 (1998).
- [77] H. Amm, R. Stannarius, A. G. Rossberg, Optical characterization of chevron texture formation in nematic electroconvection. *Physica D* 126, 171-188 (1999).
- [78] M. Treiber, L. Kramer, Coupled complex Ginzburg-Landau equations for the weak electrolyte model of electroconvection, *Phys. Rev. E* 58, 1973–1982 (1998).
- [79] H. Richter, A. Buka, I. Rehberg, On the optical characterization of convection patterns in homeotropically aligned nematics, *Mol. Cryst. Liq. Cryst.* 251, 181–189 (1994).
- [80] A. G. Rossberg, A. Hertrich, L. Kramer, W. Pesch, Weakly Nonlinear Theory of Pattern-Forming Systems with Spontaneously Broken Isotropy, *Phys. Rev. Lett.* 76, 4729–4732 (1996).
- [81] A. G. Rossberg, L. Kramer, Weakly Nonlinear Theory of Electroconvection in Homeotropically Oriented Nematic Liquid Crystals, *Physica Scripta* **T67**, 121–124 (1996).
- [82] E. Plaut, W. Decker, A. G. Rossberg, L. Kramer, W. Pesch, A. Belaidi, R. Ribotta, New Symmetry Breaking in Nonlinear Electroconvection of Nematic Liquid Crystals, *Phys. Rev. Lett.* **79**, 2367–2370 (1997).
- [83] E. Plaut, W. Pesch, Extended weakly nonlinear theory of planar nematic convection, *Phys. Rev. E* 59(2), 1747–1769 (1999).
- [84] M. Goscianski, L. Léger, Electrohydrodynamic instabilities above a nematic to smectic A (or C) transition J. Phys. (Paris) Coll. 36, C1-231–C1-235 (1975).
- [85] L. M. Blinov, M. I. Barnik, V. T. Lazareva, A. N. Trufanov, Electrohydrodynamic instabilities in the liquid crystalline phases with smectic ordering. *J. Phys. (Paris) Coll.* 40, C3-263–C3-268 (1979).
- [86] E. Kochowska, Sz. Németh, G. Pelzl, Á. Buka, Electroconvection with and without the Carr-Helfrich effect in a series of nematic liquid crystals. *Phys. Rev. E* **70**, 011711 (2004).

- [87] M. Nakagawa, T. Akahane, A new type of electrohydrodynamic instability in nematic liquid crystals with positive dielectric anisotropy. I. The existence of the charge injection and the diffusion current, J. Phys. Soc. Jpn. 52, 3773–3781 (1983).
- [88] M. I. Barnik, L. M. Blinov, S. A. Pikin, A. N. Trufanov, Instability mechanism in the nematic and isotropic phases of liquid crystals with positive dielectric anisotropy. *Sov. Phys. JETP* **45**, 396–398 (1977) [*Zh. Eksp. Teor. Fiz.* **72**, 756–761 (1977)].
- [89] A. N. Trufanov, M. I. Barnik, L. M. Blinov, V. G. Chigrinov, Electrohydrodynamic instability in homeotropically oriented layers of nematic liquid crystals. *Sov. Phys. JETP* 53, 355–361 (1981) [*Zh. Eksp. Teor. Fiz.* 80, 704–715 (1981)].
- [90] D. K. Rout, R. N. P. Choudhary, Electrohydrodynamic instability in some nematic cyanobiphenyls in an a.c. electric field. *Liq. Cryst.* 4, 393–398 (1989).
- [91] E. I. Rjumtsev, S. G. Polushin, Electrohydrodynamic instabilities in nematic liquid crystals with large positive dielectric anisotropy. *Liq. Cryst.* **13**, 623–628 (1993).
- [92] P. Petrescu, M. Giurgea, A new type of domain structure in nematic liquid crystals. *Phys. Lett. A* **59**, 41–42 (1976).
- [93] J.-H. Huh, Y. Yusuf, Y. Hidaka, S. Kai, Prewavy instability of nematic liquid crystals in a high-frequency electric field, *Phys. Rev. E* **66**, 031705 (2002).
- [94] R. Steinsträsser, L. Pohl, Nematische Systeme IV: Niedrig Schmelzende p-Alkylp'-Alkoxy und p-Alkyl-p'-Acyloxy-Azoxybenzole, *Tetrahedron Lett.* 22, 1921– 1924 (1971).
- [95] H.-H. Graf, H. Kneppe, F. Schneider, Shear and rotational viscosity coefficients of two nematic liquid crystals, *Mol. Phys.* 77(3), 521–538 (1992).
- [96] H. Kelker, B. Scheurle, Eine flüssig-kristalline (nematische) Phase mit besonders niedrigem Erstarrungspunkt, *Angew. Chem.* **81**, 903–904 (1969).
- [97] G. W. Gray, K. J. Harrison, J. A. Nash, New Family of Nematic Liquid Crystals for Displays, *Electron. Lett.* 9, 130–131 (1973).
- [98] K. Fodor-Csorba, A. Vajda, G. Galli, A. Jákli, D. Demus, S. Holly, E. Gâcs-Baitz, Ester-Type Banana-Shaped Monomers and Investigations of Their Electro-Optical Properties, *Macromol. Chem. Phys.* 203, 1556–1563 (2002).
- [99] M. Schadt, Linear and non-linear liquid crystal materials, electro-optical effects and surface interactions. Their application in present and future devices. *Liq. Cryst.* 14(1), 73–104 (1993).
- [100] A. Abderrahmen, F. F. Romdhane, H. B. Ouada, A. Gharbi, Investigation of the liquid crystal alignment layer: effect on electrical properties, *Sci. Technol. Adv. Mater.* 9, 025001/1–5 (2008).

- [101] N. H. Hartshorne, A. Stuart, *Crystals and the polarising microscope. Fourth Edition.* (Edward Arnold (Publishers) Ltd, London, 1970).
- [102] Rasenat S, Hartung G, Winkler BL, Rehberg I. The shadowgraph method in convection experiments. *Exp. Fluids* **7**, 412–420 (1989).
- [103] S. P. Trainoff, D. S. Cannell, Physical optics treatment of the shadowgraph. *Phys. Fluids* 14, 1340–1363 (2002).
- [104] W. Pesch, A. Krekhov, Optical analysis of spatially periodic patterns in nematic liquid crystals: Diffraction and shadowgraphy. *Phys. Rev. E* 87, 052504 (2013).
- [105] S. Rasenat, V. Steinberg, and I. Rehberg, Experimental studies of defect dynamics and interaction in electrohydrodynamic convection, *Phys. Rev. A* 42 5998–6008 (1990).
- [106] M. Scheuring, L. Kramer, J. Peinke, Formation of chevrons in the dielectric regime of electroconvection in nematic liquid crystals, *Phys. Rev. E* **58**, 2018–2026 (1998).
- [107] M. Treiber, On the Theory of the Electrohydrodynamic Instability in Nematic Liquid Crystals near Onset, PhD dissertation, University of Bayreuth (1996).
- [108] Deng-Ke Yang, Shin-Tson Wu, Fundamentals of Liquid Crystal Devices (John Wiley & Sons, Chichester, 2006) pp. 144-155.
- [109]) P. L. Papadopoulos, H. M. Zenginoglou, J. A. Kosmopoulos, Optical measurement of the director relaxation time in a periodically reoriented nematic liquid crystal, J. Appl. Phys., 86, 3042–3047 (1999).
- [110] T. John, U. Behn, R. Stannarius, Laser diffraction by periodic dynamic patterns in anisotropic fluids, *Eur. Phys. J. B* **35**, 267–278 (2003).
- [111] G. Derfel, Numerical study of ionic current in dielectric liquid layer subjected to ac voltage, *J. Mol. Liq.*, **144**, 59–64 (2009).
- [112] A. Krekhov, Magánközlés.
- [113] Y. Marinov, A. G. Petrov, H. P. Hinov, On a simple way for obtaining important material constants of a nematic liquid crystal: longitudinal flexoelectric domains under the joint action of dc and ac voltages, *Mol. Cryst. Liq. Cryst.* 449, 33–45 (2006).
- [114] P. Tadapatri, K. S. Krishnamurthy, W. Weissflog, Patterned flexoelectric instability in a bent-core nematic liquid crystal, *Soft Matter* **8**, 1202–1214 (2012).
- [115] S. Rudroff, V. Frette, I. Rehberg, Relaxation of abnormal rolls in planarly aligned electroconvection, *Phys. Rev. E* **59**(2), 1814–1820 (1999).

- [116] S. Rudroff, H. Zhao, L. Kramer, I. Rehberg, Secondary Instabilities Form a Codimension-2 Point Accompanied by a Homoclinic Bifurcation, *Phys. Rev. Lett.* 81, 4144–4147 (1998).
- [117] M. Lowe, J. P. Gollub, Pattern Selection near the Onset of Convection: The Eckhaus Instability, *Phys. Rev. Lett.* 55, 2575–2578 (1985).
- [118] E. Bodenschatz, W. Pesch, L. Kramer, Structure and dynamics of dislocations in anisotropic pattern-forming systems, *Physica D* **32**, 135–145, (1988).
- [119] L. Kramer, E. Bodenschatz, W. Pesch, Interaction and Dynamics of Defects in Anisotropic Pattern-Forming Systems, *Phys. Rev. Lett.* **64**, 2588 (1990).
- [120] L. M. Pismen, J. D. Rodriguez, Mobility of singularities in the dissipative Ginzburg-Landau equation, *Phys. Rev. A* **42**, 2471–2474 (1990).
- [121] E. Bodenschatz E, A. Weber, L. Kramer, Interaction and Dynamics of Defects in Convective Roll Patterns of Anisotropic Fluids, J. Stat. Phys. 64, 1007–1015 (1991).
- [122] S. Nasuno, S. Takeuchi, Y. Sawada, Motion and interaction of dislocations in electrohydrodynamic convection of nematic liquid crystals, *Phys. Rev. A* 40 3457– 3460 (1989).
- [123] G. Goren, I. Procaccia, R. Rasenat, V. Steinberg, Interactions and Dynamics of Topological Defects: Theory and Experiments near the Onset of Weak Turbulence, *Phys. Rev. Lett.* 63, 1237–1240 (1989).
- [124] D. Ilan, V. Steinberg, unpublished (1996); D. Ilan, M. SC. Thesis, Weizmann Institute, Rehovot, 1996.
- [125] R. Ribotta, G. Durand, High frequency electrohydrodynamical instabilities in nematic liquid crystals, *J. Phys. (Paris) Collog. C3* **40**, C3-334–C3-337 (1979).
- [126] L. Nasta, A. Lupu, Characteristics of Domains Appearing in Nematic Liquid Crystals Below the Threshold Voltage of Chevrons, *Mol. Cryst. Liq. Cryst.* 71, 65 (1981).
- [127] A. N. Trufanov, L. M. Blinov, M. I. Barnik, In Advances in Liquid Crystal Research and Applications (Ed. L. Bata), 549 (Akadémiai Kiadó, Budapest – Pergamon Press, New York, 1980).
- [128] A. N. Trufanov, L. M. Blinov, M. I. Barnik, New type of high-frequency electrohydrodynamic instability in nematic liquid crystals, *Sov. Phys. JETP* **51**, 314– 319 (1980) [*Zh. Eksp. Teor. Fiz.* **78**, 622–631 (1980)].
- [129] J.-H. Huh, Y. Hidaka, A. G. Rossberg, S. Kai, Pattern formation of chevrons in the conduction regime in homeotropically aligned liquid crystals, *Phys. Rev. E* 61, 2769–2776 (2000).

- [130] M. Petrov, B. Katranchev, E. Keskinova, H. Naradikian, The electroconvection in dimeric nematic liquid crystals, *J. Optoelectr. Adv. Mater.* **9**, 438–441 (2007).
- [131] B. Katranchev, M. Petrov, Prewavy electrohydrodynamic instability in dimeric nematic liquid crystals with short range smectic "C" order. *Compt. rend. Acad. bulg. Sci.* 62, 329–334 (2009).
- [132] W. Weissflog, G. Pelzl, H. Kresse, D. Demus, Liquid crystalline swallow-tailed compounds (III). Swallow-tailed compounds with terminal cyano groups, *Cryst. Res. Technol.* 23, 1259–1265 (1988).
- [133] Y. Yusuf, Y. Hidaka, S. Kai, Dynamical behavior of prewavy pattern near nematic-isotropic transition. J. Phys. Soc. Jpn. 82, 044601 (2013).
- [134] N. Felici, Phénomènes hydro et aérodynamiques dans la conduction des diélectriques fluides, *Rev. Gén. Électr.* **78**, 717–734 (1969).
- [135] P. Atten, Stabilité Électrohydrodynamique des liquides de faible conductivité, J. Mécan. 14, 461–495 (1975).
- [136] S. A. Pikin, V. G. Chigrinov, New type of high-frequency instability in nematic liquid crystals, *Sov. Phys. JETP* **51**, 123–126 (1980) [*Zh. Eksp. Teor. Fiz.* **78**, 246– 252 (1980)].
- [137] S. Komineas, H. Zhao, L. Kramer, Modulated structures in electroconvection in nematic liquid crystals. *Phys. Rev. E* 67, 031701 (2003).
- [138] I. Rehberg, F. Hörner, L. Chiral, H. Richter, B. L. Winkler, Measuring the intensity of director fluctuations below the onset of electroconvection, *Phys. Rev. A* 44(12), R7885–R7887 (1991).
- [139] Jákli A. Liquid crystals of the twenty-first century Nematic phase of bent-core molecules. *Liq. Cryst. Rev.* **1**, 65–82 (2013).
- [140] P. Sathyanarayana, M.Mathew, Q. Li, V. S. S. Sastry, B. Kundu, K. V. Le, H. Takezoe, S. Dhara, Splay bend elasticity of a bent-core nematic liquid crystal, *Phys. Rev. E* 81, 010702(R) (2010).
- [141] M. Majumdar, P. Salamon, A. Jákli, J. T. Gleeson, S. Sprunt, Elastic constants and orientational viscosities of a bent-core nematic liquid crystal, *Phys Rev E* 83, 031701 (2011).
- [142] C. A. Bailey, K. Fodor-Csorba, J. T. Gleeson, S. N. Sprunt, and A. Jákli, Rheological properties of bent-core liquid crystals, *Soft Matter* 5, 3618 (2009).
- [143] P. Tadapatri, K. S. Krishnamurthy, W. Weissflog, Multiple electroconvection scenarios in a bent-core nematic liquid crystal, *Phys. Rev. E* **82**, 31706 (2010).

- [144] J. Harden, R. Teeling, J.T. Gleeson, S. Sprunt, A. Jákli, Converse flexoelectric effect in a bent-core nematic liquid crystal, *Phys. Rev. E* **78**, 031702 (2008).
- [145] S. Stojadinovic, A. Adorjan, S. N. Sprunt, H. Sawade, A. Jákli, Dynamics of the nematic phase of a bent-core liquid crystal, *Phys. Rev. E* **66**, 060701(R) (2002).
- [146] V. Domenici, C. A. Veracini, B. Zalar, How do banana-shaped molecules get oriented (if they do) in the magnetic field? *Soft Matter* **1**, 408–411 (2005).
- [147] S. Chakraborty, J. T. Gleeson, A. Jákli, S. Sprunt, A comparison of short-range molecular order in bent-core and rod-like nematic liquid crystals. *Soft Matter* 9, 1817–1824 (2013).
- [148] S. H. Hong, R. Verduzco, J. T. Gleeson, S. Sprunt, A. Jákli, Nanostructures of liquid crystal phases in mixtures of bent-core and rod-shaped molecules, *Phys. Rev. E* 83, 061702 (2011).
- [149] C. Zhang, M. Gao, N. J. Diorio, W. Weissflog, U. Baumeister, S. N. Sprunt, J. T. Gleeson, A. Jákli, Direct Observation of Smectic Layers in Thermotropic Liquid Crystals, *Phys. Rev. Lett.* **109**, 107802 (2012).
- [150] G. Pelzl, A. Eremin, S. Diele, H. Kresse, W. Weissflog, Spontaneous chiral ordering in the nematic phase of an achiral banana-shaped compound, *J. Mater. Chem.* 12, 2591-2593 (2002).
- [151] W. Weissflog, S. Sokolowski, H. Dehne, B. Das, S. Grande, M. W. Schröder, A. Eremin, S. Diele, G. Pelzl, H. Kresse, Chiral ordering in the nematic and an optically isotropic mesophase of bent-core mesogens with a halogen substituent at the central core, *Liquid Crystals* **31**(7), 923–933 (2004).
- [152] L. Kovalenko, M. W. Schröder, R. Amaranatha Reddy, S. Diele, G. Pelzl, W. Weissflog, Unusual mesomorphic behaviour of new bent-core mesogens derived from 4-cyanoresorcinol, *Liquid Crystals* 32(7), 857–865 (2005).
- [153] G. G. Nair, C. A. Bailey, S. Taushanoff, K. Fodor-Csorba, A. Vajda, Z. Varga, A. Bóta, A. Jákli, Electrically Tunable Color by Using Mixtures of Bent-Core and Rod-Shaped Molecules, *Adv. Mater.* 20, 3138 (2008).
- [154] A. Jákli, Magánközlés.
- [155] S. Tanaka, S. Dhara, B. K. Sadashiva, Y. Shimbo, Y. Takanishi, F. Araoka, K. Ishikawa, and H. Takezoe, *Phys. Rev. E* 77, 041708 (2008).
- [156] P. Tadapatri, K. S. Krishnamurthy, Competing instability modes in an electrically driven bent-core nematic liquid crystal, *J. Phys. Chem. B* **116**, 782–793 (2012).
- [157] P. Salamon, Magánközlés.

- [158] P. Tadapatri, U. S. Hiramath, C. V. Yelamaggad, K. S. Krishnamurthy, Patterned electroconvective states in a bent-core nematic liquid crystal, *J. Phys. Chem. B* 114, 10–21 (2010).
- [159] Y. Xiang, J. W. Goodby, V. Görtz, H. F. Gleeson, Revealing the uniaxial to biaxial nematic liquid crystal phase transition via distinctive electroconvection, *Appl. Phys. Lett.* 94, 193507 (2009).
- [160] S. Kaur, A. Belaissaoui, J. W. Goodby, V. Görtz, H. F. Gleeson, Nonstandard electroconvection in a bent-core oxadiazole material, *Phys. Rev. E* 83, 041704 (2011).
- [161] P. Kumar, U. S. Hiremath, C. V. Yelamaggad, A. G. Rossberg, K. S. Krishnamurthy, Electroconvection in a homeotropic bent-rod nematic liquid crystal beyond the dielectric inversion frequency, *J. Phys. Chem. B* **112**, 9753–9760 (2008).
- [162] P. Kumar, U. S. Hiremath, C. V. Yelamaggad, A. G. Rossberg, K. S. Krishnamurthy, Drifting Periodic Structures in a Degenerate-Planar Bent-Rod Nematic Liquid Crystal Beyond the Dielectric Inversion Frequency, J. Phys. Chem. B 112, L9270 (2008).
- [163] M. G. Tamba, B. Kosata, K. Pelz, S. Diele, G. Pelzl, Z. Vakhovskaya, H. Kresse, W. Weissflog, Mesogenic dimers composed of a calamitic and a bent-core mesogenic unit, *Soft Matter* 2, 60–65 (2006).
- [164] M.-G. Tamba, W. Weissflog, A. Eremin, J. Heuer, R. Stannarius, Electro-optic characterization of a nematic phase formed by bent core mesogens, *Eur. Phys. J. E* 22, 85–95 (2007).
- [165] M. G. Tamba, U. Baumeister, G. Pelzl, W. Weissflog, Banana-calamitic dimers: unexpected mesophase behaviour by variation of the direction of ester linking groups in the bent-core unit, *Liquid Crystals* 37(6-7), 853–874 (2010).
- [166] K. S. Krishnamurthy, P. Tadapatri, W. Weissflog, Twist disclination loops in a bentcore nematic liquid crystal, *Soft Matter* 7, 6273–6284 (2011).
- [167] R. A. Kashnow, H. S. Cole, Electric Effects in MBBA/PEBAB Mixtures, Mol. Cryst. Liq. Cryst. 23(3-4), 329–342 (1973).
- [168] M. I. Barnik, L. M. Blinov, M. F. Grebenkin, A. N. Trufanov, Dielectric Regime of Electrohydrodynamic Instability in Nematic Liquid Crystals, *Mol. Cryst. Liq. Cryst.* 37(1), 47–56 (1976).
- [169] D. K. Rout, R. N. P. Choudhary, Electrohydrodynamic Instability in 8CB (4/-n-Octyl-4-Cyanobiphenyl) Liquid Crystal, *Mol. Cryst. Liq. Cryst.* 154(1), 241–258 (1988).

[170] M. Nakagawa, T. Akahane, A new type of electrohydrodynamic instability in nematic liquid crystals with positive dielectric anisotropy. II. Theoretical Treatment, J. Phys. Soc. Jpn. 52, 3773–3781 (1983).

ÉBER NÁNDOR
Köszönetnyilvánítás

Köszönettel tartozom a Wigner Fizikai Kutatóközpont Szilárdtest-fizikai és Optikai Intézete (korábban MTA Szilárdtest-fizikai és Optikai Kutatóintézet) vezetésének, amiért a feltételek biztosításával lehetőséget nyújtottak a bemutatott kutatások elvégzésére.

Hálás vagyok az intézet és különösen a Komplex Folyadékok Osztály Részben Rendezett Rendszerek kutatócsoportja minden korábbi és jelenlegi munkatársának, a kutatásokat támogató, nyugodt, baráti tudományos légkör kialakításáért, ami jó alapot teremtett az eredményes munkához, lehetővé téve az eredmények megvitatását, a felmerülő problémák megoldását.

Hálás vagyok Bata Lajosnak és Jánossy Istvánnak a kutatói pályám indulásakor és azóta is nyújtott támogatásukért.

Kiemelt köszönettel tartozom Buka Ágnesnek, aki figyelmemet először a folyadékkristályok mintázatképződési folyamataira irányította, akivel e témán több mint két évtizedet dolgozhattam szoros együttműködésben és aki kitartóan ösztökélt ezen értekezés megírására.

Hálás vagyok minden külföldi és hazai társszerzőmnek az eredmények elérését lehetővé tevő érdemi hozzájárulásukért. A mérések értelmezéséhez az elméleti hátteret az Universität Bayreuth elméleti fizikus kutatói (néhai Lorenz Kramer, Werner Pesch, Alexei Krekhov, Martin Treiber és Alexander Rossberg) biztosították. Többen (Stanislaw A. Rozanski, Laura O. Palomares, Ridvan Karapinar, Marla Sacks, Peter Tóth, Thomas M. Bock, Yoshiki Hidaka, Shoichi Kai, James T. Gleeson, Shingo Tanaka, Hideo Takezoe, Pramoda Kumar, Jana Heuer, Louis E. Aguirre, Esteban Anoardo, Ying Xiang) vendégkutatóként működtek közre egyes mérések elvégzésében és interpretálásában. Fodor Tamásné egyes folyadékkristályok előállításával, tisztításával, Vajda Boldizsárné elegyek készítésével teremtette meg a mérések kémiai hátterét. Tóth-Katona Tiborral a nemstandard elektrokonvekció, Jákli Antallal a hajlott törzsű nematikusfolyadékkristályok, Németh Szilárddal a mágneses tér hatása terén dolgoztunk együtt. Fekete Balázs András diplomamunkásként, Salamon Péter diplomamunkásként, majd doktoranduszként vett részt témavezetésemmel a kutatásokban.

Köszönettel tartozom Sásdi Györgynének és Kenderesi Viktornak a mérésekhez nyújtott technikai segítségért, Börzsönyi Tamásnak és Somfai Elláknak az értekezés írása közbeni bátorításukért, Buka Ágnesnek, Péter Lászlónak és Somfai Elláknak az értekezés kritikus átolvasásáért és hasznos tanácsaikért.

A bemutatott kutatások hazai (OTKA T014957, T022772, F022771, T031808, T032667, T037336, M 041888, K61075, K81250, NN110672 és NKFP-128/6) és külföldi [EU Networks "Patterns, Noise and Chaos" (ERB FMRX-CT96-0085), PHYNECS (EU-HPRN-CT-2002-00312), EU Center of Excellence Project KFKI-CMRC (ICA1-CT-2000-70029), Volkswagen-Stiftung, NATO (CRG.LG 973103) és OM00224/2001] pályázatok anyagi támogatása révén valósulhattak meg. A vendégkutatók budapesti látogatását az EU Network és kétoldalú (MTA-CONACYT, MTA-JSPS, MTA-NSF, MTA-INSA, MTA-DFG, MTA-CONICET, TÉT_12_CN-1-2012-0039) projektek tették lehetővé.