

03;05;09;12

Исследование СВЧ диэлектрической проницаемости жидких кристаллов в электрических и магнитных полях

© Б.А. Беляев, Н.А. Дрокин, В.Ф. Шабанов, В.Н. Шепов

Институт физики им. Л.В. Киренского СО РАН,
660036 Красноярск, Россия

(Поступило в Редакцию 14 мая 1996 г.)

Предложена автогенераторная конструкция СВЧ датчика для исследования действительной и мнимой компонент диэлектрической проницаемости жидких кристаллов во внешних электрических и магнитных полях. Приведены результаты измерений на частоте 500 МГц для двух типов нематических кристаллов 5ЦБФ и МББА. Выявлены основные закономерности в поведении СВЧ диэлектрической проницаемости образцов под воздействием электрических и магнитных полей. Показано, что минимуму высокочастотных диэлектрических потерь в жидких кристаллах соответствует ситуация, в которой длинные оси молекул ориентированы параллельно направлению СВЧ электрического поля.

Введение

Диэлектрические константы жидких кристаллов (ЖК), как правило, исследуются в диапазоне частот $f = 0-10^7$ Hz, где наиболее сильно проявляются дисперсионные свойства материала, обусловленные ориентационными механизмами поляризации молекул. В более высокочастотном дециметровом диапазоне волн ($f = 10^8-10^9$ Hz) характер поведения диэлектрической проницаемости ЖК и ее взаимосвязь с молекулярными ориентационными процессами в электрических и магнитных полях практически не исследован. Это во многом обусловлено трудностями эксперимента, так как в названном диапазоне частот традиционные датчики на сосредоточенных элементах уже не работают, а электродинамические системы с распределенными параметрами слишком громоздки и поэтому обладают недостаточной чувствительностью.

Для исследования ЖК в дециметровом диапазоне волн в работе [1] предложены новые оригинальные конструкции миниатюрных СВЧ датчиков, построенных на основе микрополосковых структур. Показано, что микрополосковые измерительные ячейки позволяют на достаточно малых образцах ЖК (объемом $\approx 10^{-3}$ см³) фиксировать с хорошей точностью изменения как действительной, так и мнимой составляющих диэлектрической проницаемости жидкого кристалла под действием внешнего электрического поля. Толщина слоя образца в СВЧ датчике определяется зазором между измерительными пластинами и обычно составляет величину ≈ 100 мкм. Это сравнимо с толщиной реальных жидкокристаллических ячеек, используемых в различных практических устройствах. Такие зазоры позволяют получать важную информацию о влиянии ограничивающих образцов ЖК поверхностей на поведение диэлектрических характеристик материала.

Описанные в [1] конструкции микрополосковых измерительных датчиков предназначались для работы в комплексе со стандартным измерителем амплитудно-

частотных характеристик. В данной работе исследуется усовершенствованная конструкция СВЧ датчика, в которой микрополосковый измерительный резонатор включен в качестве задающего контура в автогенераторную СВЧ схему. При этом существенно увеличивается чувствительность устройства и точность измерений. Для иллюстрации работы прибора приводятся результаты экспериментальных исследований поведения диэлектрических констант двух типичных нематогенов: 4-н-пентил-4-цианобифенил (5ЦБФ) и 4-метоксибензилиден-4-бутиланилин (МББА) под воздействием постоянных электрических и магнитных полей. Полученные результаты обсуждаются на основе представлений о процессах электрической и магнитной ориентации дипольных молекул жидких кристаллов и связанного с этим изменения величины СВЧ диэлектрических потерь.

Автогенераторная схема датчика

Задающим контуром в автогенераторной схеме СВЧ датчика (рис. 1) являлся микрополосковый резонатор (МПР) "кольцевого" типа с вертикальными измерительными пластинами [1]. Генератор размещался в металлическом корпусе, имеющем габариты $30 \times 24 \times 15$ мм. Конструкция резонатора служила верхней крышкой корпуса и изготавливалась на подложке из поликора ($\epsilon = 9.8$) толщиной $h = 1$ мм, размером 24×30 мм. При этом нижняя металлизированная сторона подложки, называемая экраном, припаивалась к стенкам металлического корпуса датчика по всему периметру. Рисунок проводников на верхней стороне подложки показан также на рис. 1. Позолоченные измерительные пластины (а) размером 2.5×2.5 мм припаивались к металлическим площадкам на концах полоски МПР вертикально к плоскости подложки так, что измерительный зазор составлял величину 100 мкм. Жидкий кристалл, помещенный в зазор, удерживался в нем силами поверхностного натяжения. Для уменьшения влияния емкости между краями

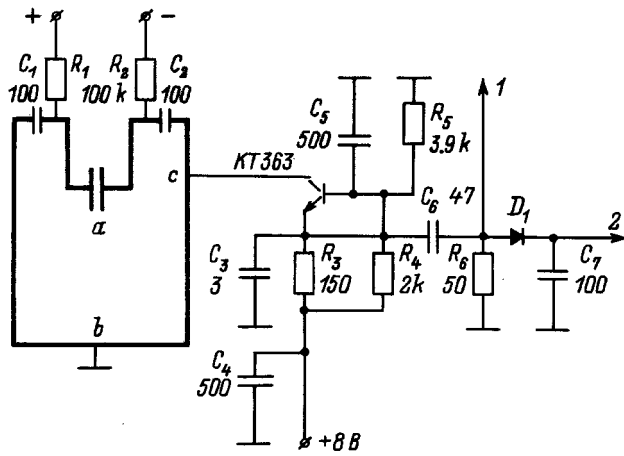


Рис. 1. Принципиальная схема автогенераторного датчика. 1 — выход (частота), 2 — выход (амплитуда).

корпуса датчика и измерительными пластинами последние располагались ближе к центру подложки за счет изгиба полосковых линий. С этой же целью с обратной стороны подложки непосредственно под измерительными пластинами датчика химическим травлением удалялся небольшой участок металлизации экрана.

Автогенераторная схема настраивалась на возбуждение основной полуволновой моды колебаний МПР. Для осуществления питания транзистора по постоянному току верхняя полоска резонатора замыкалась переключкой на корпус в точке минимума высокочастотного напряжения (точка *b* на рис. 1). При этом коллектор транзистора подключался непосредственно к полоске МПР в точке (*c*), образуя с резонатором кондуктивную (автотрансформаторную) связь по высокой частоте. Ориентирующее электрическое поле на измерительных пластинах создавалось приложением к ним постоянного напряжения через развязывающие резисторы R_1 и R_2 . Для гальванической развязки источников питания использовались разделительные емкости C_1 и C_2 . В СВЧ генераторе предусмотрено два выхода: один для измерения частоты, а другой для измерения амплитуды автоколебаний. Настройка данной схемы осуществлялась установлением оптимальной кондуктивной связи резонатора с СВЧ транзистором, т.е. поиском оптимальной точки подключения коллектора транзистора к полоске резонатора (*c*) и тщательным подбором точки заземления полоски МПР (*b*) вблизи ее середины. Поскольку при заливке в измерительный зазор жидкого кристалла существенно уменьшается добротность полуволновой моды резонатора, то может наблюдаться самопроизвольное переключение автогенератора на более добротные "паразитные" резонансы. Для устранения таких нестабильностей требуется компактное расположение деталей схемы вблизи резонатора и подбор емкости C_3 , шунтирующей высшие резонансы. Рабочая частота автогенераторного датчика измерялась цифровым частотомером и составляла величину около 500 МГц при залитом

образце жидкого кристалла. В этом случае амплитуда СВЧ колебаний, измеренная цифровым вольтметром на выходе СВЧ детектора, устанавливалась на уровне около 0.1 В.

Отметим, что все эксперименты на ЖК в настоящей работе проводились при температуре $T = 24 \pm 0.1^\circ\text{C}$. Поэтому СВЧ датчик размещался в миниатюрном термостате, который располагался между полюсами электромагнита. Магнитное поле можно было разворачивать до величины $H = 2.3$ кОе. Корпус автогенератора мог вращаться между полюсными наконечниками магнита так, что направление поля H могло быть как параллельно, так и перпендикулярно направлению сверхвысокочастотного и внешнего постоянного электрического поля.

Образцы и методика исследования

Как уже отмечалось, в качестве образцов для исследования использовались два широко известных нематогена: 5ЦБФ — состав с относительно высокой положительной диэлектрической анизотропией [2] и слабоанизотропный жидкий кристалл МББА с отрицательной анизотропией [3–5]. Методика проведения измерений сводилась к следующему: в зазор измерительных пластин СВЧ датчика автогенератора помещался жидкий кристалл и выдерживался в нем в течение часа для достижения равновесного состояния. За это время стабилизировалась температура датчика и устанавливались исходные значения частоты и амплитуды автоколебаний. Для каждого образца жидкого кристалла при наложении магнитного поля H снимались зависимости относительного изменения частоты $F(H)$ и относительного изменения амплитуды $P(H)$ автоколебаний датчика в установившемся режиме. Аналогичные зависимости $F(U)$ и $P(U)$ снимались при приложении к измерительным пластинам датчика электрического напряжения U . Исследовались также зависимости изменений параметров СВЧ автогенератора при совместном воздействии на жидкий кристалл электрического и магнитного поля.

При оптимально подобранной кондуктивной связи МПР с СВЧ транзистором уровень автоколебаний генератора линейно зависит от добротности задающего резонатора, которая в свою очередь в эксперименте связана с тангенсом угла диэлектрических потерь образца ЖК. В результате наблюдаемое изменение амплитуды СВЧ колебаний $P(U, H)$ обратно пропорционально изменению мнимой компоненты диэлектрической проницаемости образца $\Delta\epsilon''$. Как известно, изменение действительной компоненты диэлектрической проницаемости образца ЖК $\Delta\epsilon'$ приводит к изменению резонансной частоты автогенератора датчика. Причем частота повышается, если диэлектрическая проницаемость ϵ' падает, и наоборот. Следовательно, $F(U, H) \sim (\Delta\epsilon')^{-1}$.

Результаты экспериментальных исследований

На рис. 2 приведены зависимости относительных изменений уровня СВЧ колебаний датчика с образцом 5ЦБФ. Для удобства сравнения зависимости от электрического напряжения $P(U)$ и от магнитного поля $P(H)$ представлены на одном рисунке. Аналогичные кривые, снятые для образца МББА, показаны на рис. 3. Кривые 1 на рисунках снимались в отсутствие магнитного поля ($H = 0$), а кривые 2 и 3 — в отсутствие электрического поля ($U = 0$). Причем зависимости 2 построены для случая, когда направление постоянного магнитного поля H было параллельно направлению высокочастотного поля e в измерительном зазоре датчика, а кривые 3, напротив, — когда направление поля H было перпендикулярно направлению e . Кроме того, были сняты зависимости $P(U)$ при одновременном воздействии на образец магнитного поля $H = 2.3$ кОе, направленного либо параллельно e (кривые 4), либо перпендикулярно e (кривые 5).

Наблюдаемые особенности в поведении кривых $P(U)$ и $P(H)$ связаны с хорошо известными ориентационными фазовыми переходами второго рода, получившими название переходов Фредерикса [5]. Такие переходы являются следствием борьбы конкурирующих сил, действующих на молекулы образца со стороны ограничивающих жидкий кристалл стенок ячейки и со стороны внешних полей. Основной особенностью переходов Фредерикса является наличие критических полей, выше которых исходно сформированная стенками ориентационная конфигурация молекул становится неустойчивой и происходит смещение директора молекулы к новому состоянию, которое определяется величиной и направлением внешних полей. Для жидких кристаллов нематического типа, обладающих анизотропией диэлектрической $\epsilon_a = \epsilon_{\parallel} - \epsilon_{\perp}$ и магнитной восприимчивости $\chi_a = \chi_{\parallel} - \chi_{\perp}$, соответствие критических электрических E_c и магнитных H_c полей может быть описано следующим выражением [6]:

$$\frac{1}{2}\chi_a H_c^2 = \frac{\epsilon_a E_c^2}{8\pi}. \quad (1)$$

Из рис. 2 и 3 видно, что критические поля нетрудно определить из результатов эксперимента. Для образцов 5ЦБФ поле $H_c \approx 120$ Ое, а поле $E_c \approx 3$ В/мм. Учитывая, что анизотропия диамагнитной восприимчивости кристалла χ_a составляет величину порядка 10^{-7} , по формуле (1) можно определить анизотропию диэлектрической проницаемости $\epsilon_a \approx 2$. Такая величина ϵ_a хорошо согласуется с результатами других измерений на жидких кристаллах этого типа.

Измерения на образцах жидкого кристалла МББА (рис. 3) показывают, что электрические и магнитные критические поля оказываются в нем почти на порядок больше, чем у кристалла 5ЦБФ. Это является вполне естественным, так как известно, что кристалл МББА является слабоанизотропным.

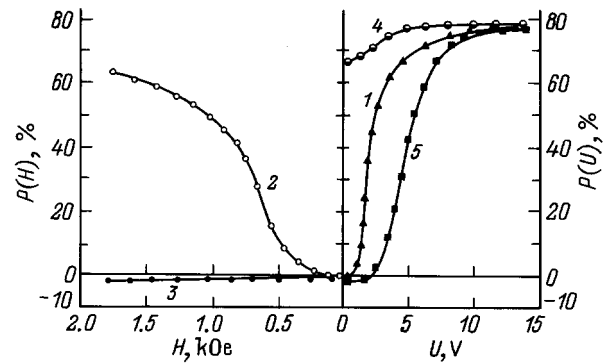


Рис. 2. Зависимости относительного уровня СВЧ колебаний датчика с образцом 5ЦБФ от электрического напряжения $P(U)$ и от магнитного поля $P(H)$.

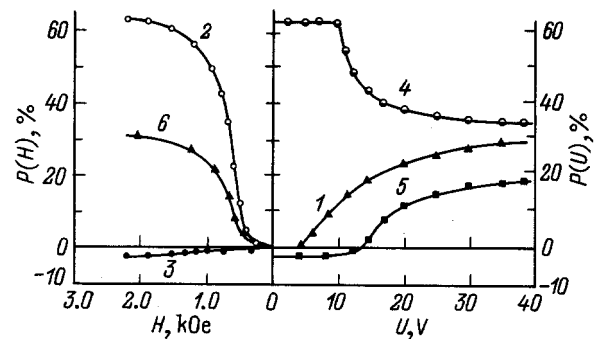


Рис. 3. Зависимости относительного уровня СВЧ колебаний датчика с образцом МББА от электрического напряжения $P(U)$ и от магнитного поля $P(H)$.

Из анализа характера поведения электрических и магнитных зависимостей $P(U)$ и $P(H)$ в полях, больших критических, можно, очевидно, качественно определить исходные конфигурационные состояния молекул и процесс их ориентации под воздействием конкурирующих сил. Отметим, что ориентационное воздействие магнитного поля связано с диамагнитной компонентой восприимчивости, обусловленной наличием в составе молекул бензольных колец. Минимуму магнитной энергии соответствует состояние, когда плоскость бензольных колец лежит в направлении магнитного поля. Это означает, что в данном типе жидких кристаллов длинные оси молекул ориентируются параллельно магнитному полю.

Рассмотрим вначале влияние постоянного магнитного и электрического поля на величину СВЧ диэлектрических потерь для жидкого кристалла 5ЦБФ. Как видно из рис. 2, в случае, если внешнее магнитное поле параллельно высокочастотному полю e , амплитуда автоколебаний генератора датчика с ростом H монотонно возрастает до насыщения (кривая 2). При этом происходит поворот длинных осей дипольных молекул нормально к плоскости измерительных пластин, т.е. параллельно высокочастотному полю e , что и приводит к существенному уменьшению СВЧ диэлектрических потерь в образце ЖК.

В противоположном же случае, когда направление магнитного поля $H \perp e$, амплитуда автогенератора и, следовательно, диэлектрические потери в образце ЖК почти не изменяются (кривая 3 на рис. 2). Очевидно, такое направление магнитного поля должно приводить к ориентации длинных осей молекул вдоль измерительных пластин, то есть длинные оси молекул должны поворачиваться перпендикулярно направлению высокочастотного поля. В результате диэлектрические потери должны увеличиваться, а амплитуда автоколебаний падать. Тот факт, что в этой ситуации эксперимент не обнаруживает существенных изменений $P(H)$, свидетельствует о том, что все диполи уже ориентированы вдоль стенок измерительных пластин за счет воздействия на молекулы ориентирующих сил поверхностей.

Поскольку ε_a жидкого кристалла 5ЦБФ положительна, то параллельная ориентация директора вдоль СВЧ поля должна устанавливаться и под воздействием внешнего электрического поля, приложенного к измерительным пластинам. И действительно, как видно из рис. 2, зависимость $P(U)$ (кривая 1) по характеру поведения практически не отличается от соответствующей "магнитной" кривой (2). На основе вышесказанного несложно объяснить и поведение "электрических" кривых 4 и 5, снятых при одновременном воздействии на образец максимального магнитного поля $H = 2.3 \text{ кОе}$. Очевидно, сильное магнитное поле, приложенное в эксперименте параллельно высокочастотному полю, почти полностью ориентирует жидкий кристалл, поворачивая длинные оси молекул вдоль направления e . В результате с ростом добавочного электрического поля, приложенного в этом же направлении, наблюдается лишь небольшой доворот осей молекул, поэтому увеличение амплитуды колебаний генератора $P(U)$ незначительно (кривая 4).

В случае же перпендикулярно приложенного магнитного поля, длинные оси молекул ориентируются почти перпендикулярно направлению e . В результате требуется значительно большее постоянное электрическое поле для того, чтобы повернуть оси молекул на 90° , так как необходимо преодолеть не только ориентирующие силы со стороны поверхностей измерительных пластин, но и ориентирующие силы со стороны магнитного поля. Поэтому в эксперименте наблюдается существенное возрастание значения критического поля E_0 (рис. 2, кривая 5).

Жидкий кристалл МББА отличается от кристалла 5ЦБФ отрицательной анизотропией диэлектрической проницаемости ($\varepsilon_a = -0.59$), однако анизотропия диамагнитной восприимчивости $\chi_a = 1.23 \cdot 10^{-7}$ в нем положительна. В результате длинные оси молекул МББА ориентируются вдоль направления магнитного поля также, как и в кристалле 5ЦБФ, а "магнитные" зависимости на рис. 3 (кривые 2, 3) очень похожи на аналогичные кривые для 5ЦБФ (рис. 2). Магнитное поле, параллельное высокочастотному полю, ориентирует оси молекул вдоль e , поэтому диэлектрические потери уменьшаются до минимума (кривая 2). Принимая во внимание тот

факт, что с ростом магнитного поля H_\perp изменения $P(H)$ в эксперименте незначительны (рис. 3, кривая 3), можно утверждать, что ориентирующее воздействие стенок измерительных пластин для МББА, так же как и для 5ЦБФ, имеет преимущественное направление в плоскости пластин.

Однако в отличие от предыдущих случаев с увеличением напряжения U при одновременном воздействии на образец кристалла МББА максимального магнитного поля H_\parallel наблюдается некоторое уменьшение величины $P(U)$, т.е. рост диэлектрических потерь в кристалле (кривая 4). Это означает, что электрическое поле в данном случае приводит к отклонению направления осей молекул от направления ориентирующего параллельного магнитного поля. Аномальное поведение $P(U)$ объясняется тем, что у кристалла МББА параллельная и перпендикулярная составляющие компонент диэлектрической проницаемости мало отличаются друг от друга $\varepsilon_\parallel = 5.17$, $\varepsilon_\perp = 4.58$ [5]. При этом направление результирующего вектора поляризации определяется как векторная сумма этих двух величин. Поскольку вектор поляризации при больших U ориентируется вдоль постоянного электрического поля, то длинная ось молекулы оказывается повернутой относительно исходного состояния при $U = 0$. В результате соответственно возрастают СВЧ диэлектрические потери. Угол, на который поворачиваются длинные оси молекул, можно определить из соотношения

$$\varphi = \text{arctg}(\varepsilon_\perp/\varepsilon_\parallel) = 42.34^\circ. \quad (2)$$

В доказательство к вышесказанному на рис. 3 приведена кривая 6, снятая при ориентации магнитного поля под вычисленным углом $\varphi \approx 42^\circ$. Как видно, наблюдаемое изменение величины $P(H)$ достаточно хорошо совпадает с максимальным изменением $P(U)$, что подтверждает образование наклонной ориентации директора в электрическом поле. Небольшая величина диэлектрической анизотропии в жидких кристаллах МББА, как уже указывалось выше, приводит к тому, что существенно возрастает критическое поле до $E_c = 50 \text{ В/мм}$ (кривая 1), а при одновременном действии на образец перпендикулярного магнитного поля критическое поле увеличивается до $E_c = 140 \text{ В/мм}$ (кривая 5).

Отметим, что относительное изменение частоты автоколебаний во всех экспериментах не превышало величины $F \approx 0.6\%$. Причем уменьшение СВЧ потерь в образце ЖК под воздействием электрического или магнитного постоянных полей, как правило, приводило к уменьшению частоты автоколебаний датчика, т.е. к увеличению реальной части диэлектрической проницаемости, и наоборот. Таким образом, эксперименты показали, что даже в дециметровом диапазоне волн процессы ориентации молекул сопровождаются достаточно большими изменениями не только мнимой, но и действительной компоненты СВЧ диэлектрической проницаемости исследованных жидких кристаллов.

Заключение

Описанная в настоящей работе автогенераторная схема датчика для исследований свойств жидких кристаллов на СВЧ позволяет оперативно и с хорошей точностью фиксировать относительные изменения как действительной, так и мнимой компонент высокочастотной диэлектрической проницаемости образцов под действием внешних полей. Высокая чувствительность данной методики открывает большие возможности для постановки новых, весьма тонких экспериментов, связанных с изучением ориентационных процессов в ЖК, а также особенностей взаимодействия молекул жидких кристаллов с ограничивающими образец поверхностями из различных материалов.

В настоящей работе показано, что изменения СВЧ диэлектрических характеристик жидких кристаллов 5ЦБФ и МББА однозначно связаны с процессами ориентации дипольных молекул. Показано также, что минимальным диэлектрическим потерям соответствует направление, при котором СВЧ электрическое поле параллельно продольной компоненте диэлектрической проницаемости жидкого кристалла. При этом экспериментально установлено, что величина диэлектрических потерь в образцах ЖК на сверхвысоких частотах сравнительно велика. Хотя, как следует из различных работ, например [2–4,6], с ростом частоты диэлектрическая проницаемость жидких кристаллов имеет тенденцию к быстрому уменьшению из-за высокой инерционности поляризационных колебаний молекул. С этой точки зрения в СВЧ диапазоне жидкий кристалл должен иметь лишь незначительные диэлектрические потери, приближающиеся по величине к оптическому показателю поглощения.

Логично было бы предположить, что сильное поглощение СВЧ мощности, наблюдаемое в эксперименте, обусловлено заряженными ионными комплексами или примесями, существующими в жидких кристаллах [7,8], концентрация которых может быть достаточно высока. Однако это предположение не объясняет тот факт, что диэлектрические потери в эксперименте значительно изменяются при ориентации молекул исследуемых кристаллов в постоянных электрических и магнитных полях. Поэтому наиболее вероятно, что природа наблюдаемых высоких потерь в образцах ЖК на СВЧ связана с широким спектром релаксационных колебаний отдельных концевых групп молекул, связанных с бензольными кольцами, так называемых "хвостов".

Список литературы

- [1] *Беляев Б.А., Дрокин Н.А., Шепов В.Н.* // ЖТФ. 1995. Т. 65. Вып. 2. С. 189–197.
- [2] *Cummins P.G., Dunmur D.A., Laidler D.A.* // Mol. Cryst. Liq. Cryst. 1975. Vol. 30. P. 109–123.
- [3] *Булыгин Ф.В.* // Вест. МГУ. 1988. № 5. Сер. 3. С. 77–79.
- [4] *Сабуров Б.С., Мамабаев У., Роджаб И.У., Адоме-нас П.В.* // ДАН СССР. 1989. Т. 306. № 6. С. 1393–1396.

- [5] *Блинов Л.М.* Электро- и магнитооптика жидких кристаллов. М.: Наука, 1978. С. 121.
- [6] *Де Жен П.* Физика жидких кристаллов. М.: Мир, 1977. С. 115.
- [7] *Гриценко Н.И., Гуленко И.Н., Мошель Н.В.* // Изв. вузов. Физика. 1989. № 7. С. 9–12.
- [8] *Spokel G.J.* // Mol. Cryst. Liq. Cryst. 1973. Vol. 22. P. 249–260.