

FELÜLETI INSTABILITÁSOK ÉS ELEKTROMECHANIKAI JELENSÉGEK FERROELEKTROMOS NEMATIKUS FOLYADÉKKRISTÁLYOKBAN

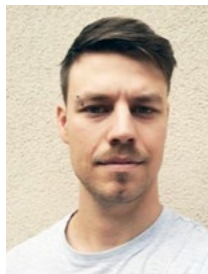
Salamon Péter[®], Máthé Marcell Tibor
¹HUN-REN Wigner Fizikai Kutatóközpont, Budapest
[®]E-mail: salamon.peter@wigner.hun-ren.hu

A termotrop folyadékkristályok rendezettséggel bíró folyékony vagy lágy anyagok, melyek legtöbbször hosszúságú, rúd alakú szerves molekulákból állnak. A folyadékkristály-fázisok az illető anyagtól függő hőmérséklettartományokban figyelhetők meg a szilárd kristályos és a rendezetlen izotrop folyadék fázisok között, ezért gyakran mezofázisoknak, azaz köztes fázisoknak is hívják őket. Napjainkig több mint 50 különböző szerkezetű mezofázist fedeztek fel, melyek közül a legismertebb a nematikus (1. ábra). A gyakorlati alkalmazás szempontjából is a nematikus fázis a legfontosabb,

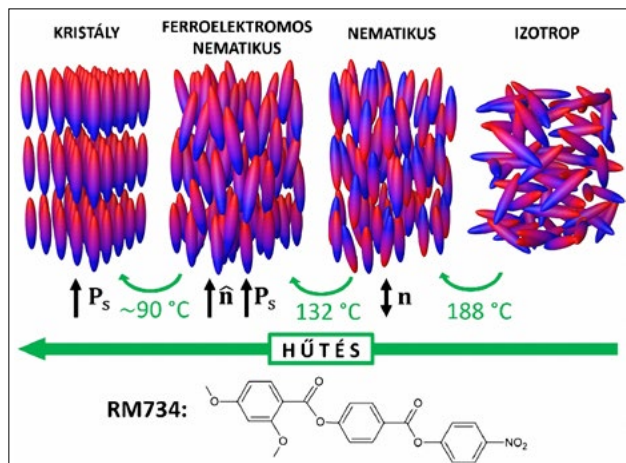
mivel a folyadékkristályos kijelzőkben, monitorokban, televíziókban ezt használják. A nematikus folyadékkristály hosszú távú orientációs rendezettséggel bír, a molekulák hossz tengelyei egy lokális átlagirány körül fluktuálnak (1. ábra). Ezt az átlagirányt direktornak nevezzük és egy helyfüggő egységvektorral jelöljük: $\mathbf{n}(\mathbf{r})$. A nematikus fázist alkotó molekulák legtöbbször aszimmetrikusak, így a dipólusmomentumuk nem nulla, azaz rendelkeznek molekuláris töltésmegosztással. A fázis maga viszont olyan, hogy átlagosan ugyanannyi dipólus mutat egy irányba, mint ellenkezőleg, ezért a dipó-



Salamon Péter a HUN-REN Wigner Fizikai Kutatóközpont tudományos főmunkatársa. A következő kutatási területeken aktív: lágy anyagok, a folyadékkristályok fizikája, nemlineáris jelenségek, mintázatképződés, topológiai defektusok, reológia és mikrofluidika anizotrop komplex rendszerekben.



Máthé Marcell Tibor a HUN-REN Wigner Fizikai Kutatóközpont tudományos munkatársa, frissen szerzett doktori címet az ELTE Fizika Doktori Iskolában. Kutatómunkája során elsősorban a lágy anyagok és a komplex anizotrop rendszerek fizikájával foglalkozik, kiemelve a felületi instabilitásokat, kereszteffektusokat és az elektrooptikai jelenségek vizsgálatát.



1. ábra. Egy tipikus ferroelektromos nematikus folyadékkristály (RM734) fázisai, átmeneti hőmérsékletei és molekulaszervezete. A molekulákat jelölő ellipszoidok piros és kék részei pozitív és negatív töltésekre utalnak

lussűrűség kiátlagolódik. Ebből következik a nematikus fázis inverziós szimmetriája: $\mathbf{n}(\mathbf{r}) = -\mathbf{n}(\mathbf{r})$.

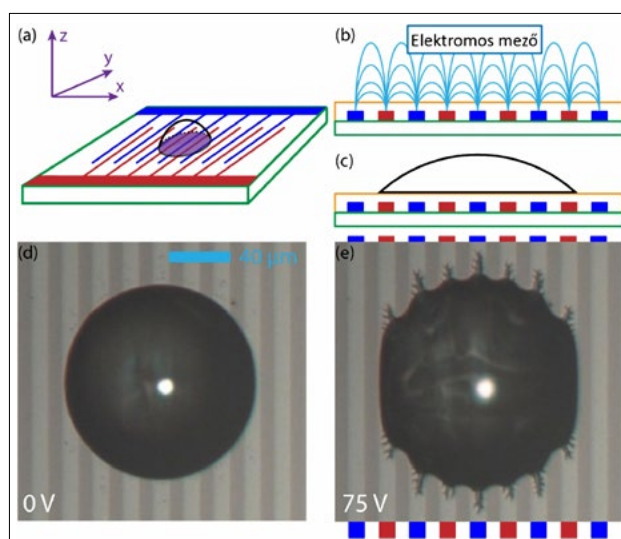
Max Born 1916-ban publikált [1] elméleti munkájában leírt egy a nematikushoz hasonló olyan folyadékkristály fázist, melyben a dipólusmomentumok egy irányba rendeződnek (1. ábra), és ez az anyag makroszkopikus spontán polarizációjához vezet. A gyakorlatban azonban több mint száz évig nem sikerült ilyen anyagot előállítani. 2017-ben egymástól függetlenül két kutatócsoport [2, 3] is szintetizált olyan anyagokat, melyekről 2020-ban alakult ki a tudományos konszenzus [4], hogy a makroszkopikus spontán elektromos polarizációval rendelkező ferroelektromos nematikus fázist mutatják. Ezen felfedezés jelentősége óriási, mivel egy teljesen újfajta anyagállapot megismerését tette lehetővé, ami egy homogén egykomponensű anyagban kombinálja a háromdimenziós folyékonyt és az orientációs rendezettséghez csatolt spontán polarizációt. Ferroelektromos folyadékkristályokat már korábban is előállítottak. Ezek legismertebb típusa a királis szmektikus-C*, melyben a molekulák rétegekbe rendeződnek, és a rétegekben belül a direktor nullánál nagyobb szöget zár be a rétegnormálissal. Ekkor a spontán polarizáció a dőlés irányában, a rétegekkel párhuzamosan jelenik meg, de a fázis csavarszerkezete miatt körbefordul és így kiátlagolódhat. A szmektikus-C* fázis továbbá nem tekinthető három dimenzióban folyékonynak, mivel a rétegnormális irányában az anyag szilárdként viselkedik, mindemellett a lokális spontán polarizációja is több mint egy nagyságrenddel kisebb, mint a ferroelektromos nematikusoknak.

Az új ferroelektromos nematikus folyadékok jellemző spontán polarizációja ($|P_s| \approx 1\text{--}10 \mu\text{C}/\text{cm}^2$) meghaladja sok ferroelektromos kristályt és közelítőleg tíze-de a legerősebb ferroelektrikumok, pl. a lítium-niobát értékeinek. Az efféle anyagok effektív mérhető relatív permittivitása az $\varepsilon \sim 10000$ -es tartományba esik, ami több mint két nagyságrenddel nagyobb a hagyományos nematikusok jellemző értékeinél [5]. Ebből az következik, hogy az anyag rendkívül érzékeny az elektromos

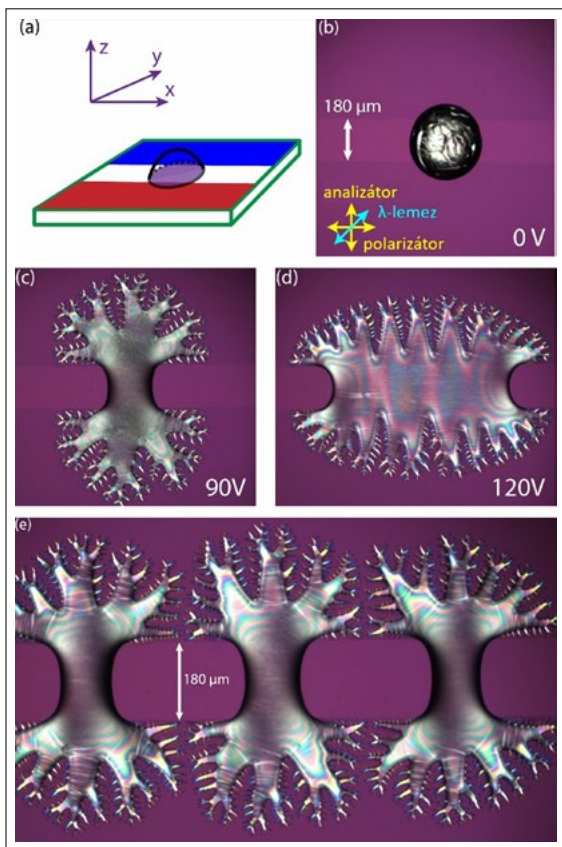
mezőkre. A poláris direktor 180°-os átorientálása ezredmásodperc alatti kapcsolási idővel lehetséges 0,1 V/ μm elektromos mezővel [4], ami a kijelzőkben vagy az egyéb elektrooptikai eszközökben történő hasznosítást vetíti előre. Az elektromos mezővel történő átorientálás a poláros kölcsönhatás miatt küszöb nélkül történik [6]. Az új anyagfajta óriási elektroeológiai effektust is mutat, azaz a viszkozitása nagy mértékben növelhető elektromos mező segítségével [7]. További érdekesség, hogy a ferroelektromos nematikus folyadékból nagyon könnyű hosszú szálat húzni, ami az anyag kezelésénél szembevető. Ez azért furcsa, mert ellentmond a Rayleigh–Plateau-instabilitásnak, ami miatt a csapból kifolyó víz is cseppekre szakad. Kiderült, hogy a szálat az anyag belső elektromos mezője stabilizálja a Maxwell-feszültség által, és a szálat tovább stabilizálhatók a végeik közti potenciálkülönbség külső növelésével [8].

A ferroelektromos nematikus fázis szimmetriája nélkülözi az inverzió műveletét, ezért a poláris direktor esetén $\hat{\mathbf{n}}(\mathbf{r}) \neq -\hat{\mathbf{n}}(\mathbf{r})$. Az inverziós szimmetria hiánya olyan jelenségek fellépését teszi lehetővé, mint például az optikai másodharmonikuseltetés, aminek során a min-tán átmenő fény egy része kétszeres frekvenciájú fénné alakul. Az effektust jellemző nemlineáris optikai együtt-ható megközelíti az erős optikai másodharmonikuseltető szilárd kristályok, pl. a lítium-niobát értékeit [9]. A jelen-ség elektromos mezővel való hangolhatósága új lehetőségeket ad összefonódott állapotú fotonpárok keltésére kvantumoptikai alkalmazásokban [10]. A különleges szimmetria miatt továbbá furcsa keresztjeffektusok válnak lehetővé, például a hőmérséklet-gradiensben fellépő forgatónyomaték [11] vagy áramlás [12].

Felvetődött a kérdés, hogy a ferroelektromos nematikus folyadékok szabad felszíne instabillá válik-e elektromos mezőkben, analóg módon a mágneses mezőbe helyezett mágneses ferrofluidokban megfigyel-



2. ábra. Ferroelektromos folyadékkristály-csepp (RM734) felületi instabilitása fésűs felületi elektródákon: (a) a kísérlet térbeli vázlata, (b, c) oldalnézeti ábra az elektromos mezővel és a cseppel, (d, e) a csepp felületi mikroszkópos képe 0 és 75 V alkalmazása mellett



3. ábra. Ferroelektromos folyadékkristály-csepp (RM734) felületi instabilitása elektródapáron: (a) a kísérlet térbeli vázlata, (b–d) polarizációs mikroszkópos képek a feszültség függvényében, (e) osztódás után egymást taszító cseppek

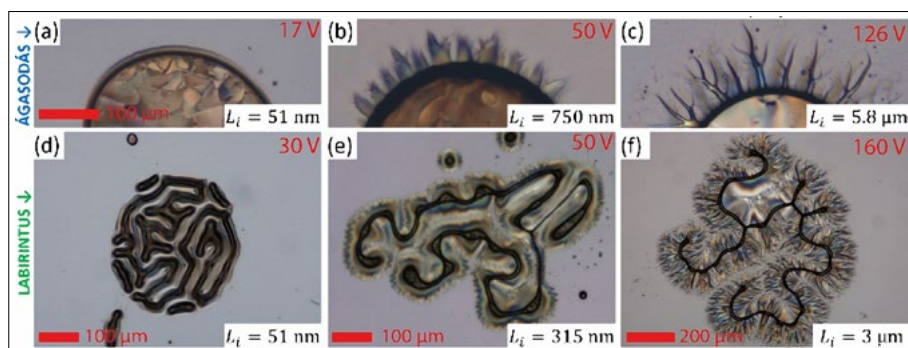
hető Rosensweig-féle instabilitáshoz. További ötletként felmerült, hogy ki lehet-e használni a ferroelektromos nematikusok óriási permittivitását olyan digitális mikrofluidikai alkalmazásokban, ahol apró folyadékcseppek mozgatása felületi elektródák segítségével történik a dielektro-nedvesítés jelensége miatt. Ez utóbbi effektus azon alapul, hogy az anyagnak energetikailag megéri minél nagyobb elektromos mezőben lenni, így a folyadék felületi elektródákon jellemzően több száz volt feszültséggel a Maxwell-feszültség segítségével teríthető, mely az anyag effektív kontaktszögének csökkenésével jár. A jelenség erőssége a folyadék és a külső közeg (levegő) permittivitásának hányadosával arányos, ezért a hasznosítása ferroelektromos nematikus folyadékkal az óriási permittivitás miatt több nagyságrenddel alacsonyabb feszültségeken várható.

Ferroelektromos nematikus cseppeket helyeztünk fésűs elrendezésű átlátszó (indium-ón-oxid, ITO) felületi elektródákra és feszültséget alkalmazva vizsgáltuk az anyag viselkedését (2. ábra). Az elektródákra egy vékony

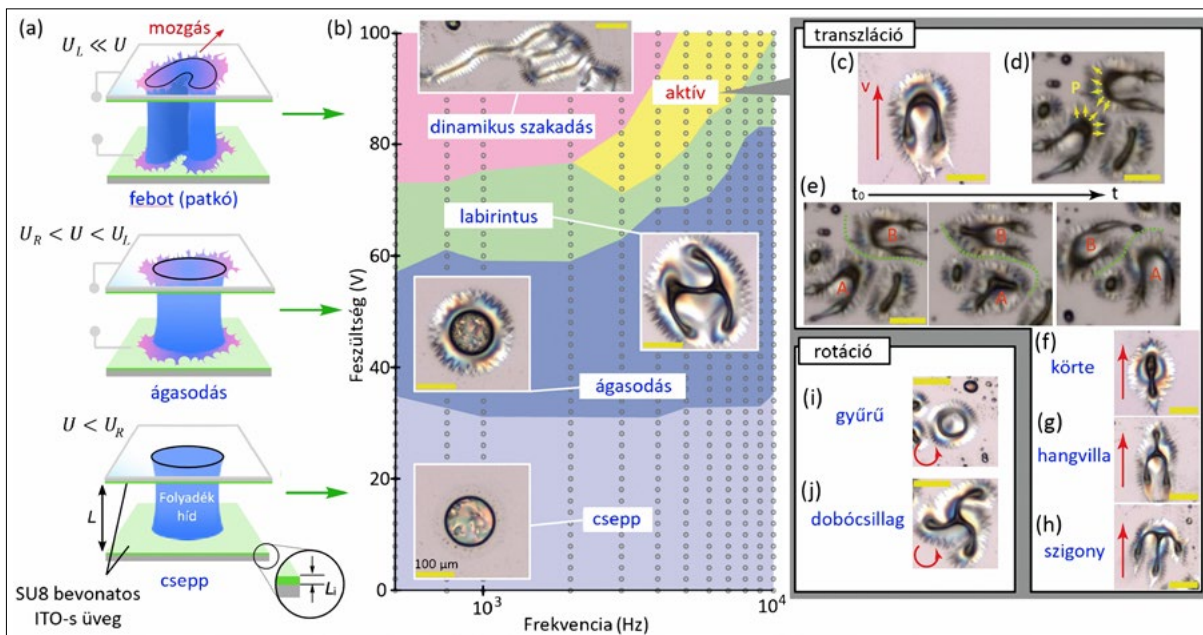
szigetelőréteget (SU8 polimert) vittünk fel annak érdekében, hogy síkká tegyük a felszínt, és meggátoljuk az elektrokémiai reakciókat. Azt tapasztaltuk, hogy a csepp egyenletes területe helyett ágszerű nyúlványok nőnek ki a felületből az elektródák fölött [13] (2e. ábra). Tovább vizsgálódva szélesebb felületi elektródapárokat helyeztünk a cseppeket (3. ábra). Egy éles küszöbfeszültség felett ebben az esetben is megfigyeltük a folyadéknyúlványok kialakulását, melyek nagyobb feszültség mellett fraktál-szerű ágas szerkezetet alkotnak (3c. ábra). Tovább emelve a feszültséget a csepp megnyúlva elterül (3d. ábra) és a feszültség hirtelen ki-bekapcsolásával több egymást taszító cseppre osztható (3e. ábra). Polarimetrikus mikroszkópos mérések eredményei arra utaltak, hogy a direktor és így a spontán polarizáció a nyúlványok csúcsaival párhuzamos, ami megmagyarázza a cseppek taszító kölcsönhatását.

A jelenséget tovább vizsgáltuk párhuzamos sík elektródák közé helyezett cseppekben (folyadékhidakban), ahol további instabilitások fellépését tapasztaltuk (4., 5. ábra) [14, 15]. Az eddig taglalt ágasodás után, nagyobb feszültségeken és ugyancsak éles küszöb felett a csepp alakja hirtelen teljesen megváltozik, és egy labirintusszerű alakot vesz fel (4d–f. ábra). Ez a jelenség analóg a mágneses ferrofluidokban is megfigyelhető Rosensweig-féle labirintusos instabilitással. A kísérleteink azt mutatták, hogy az instabilitások kialakulásában kulcsszerepet játszik az elektródákat borító szigetelőréteg és annak L_i vastagsága (4. ábra). Szigetelőréteg nélkül nem lépnek fel az instabilitások, és nagyobb L_i esetén az ágasodás nyúlványai hosszabbak, ami a labirintusszerkezet morfológiáját is befolyásolja. A végeselem-módszerrel végzett szimulációink azt mutatták, hogy az instabilitások fő hajtóereje az elektródákkal párhuzamos elektromos térkomponens megjelenése volt, ami a szigetelőréteg, a folyadék és a levegő találkozási vonalában a legerősebb, egyfajta csúcshatásként [14].

Kiderítettük, hogy tovább növelve a feszültséget, egy meghatározott frekvencia- és feszültségtartományban bekövetkezik egy harmadlagos instabilitás, amikor a labirintusos instabilitás által deformált alakú cseppek elkezdnek mozogni. A mozgó cseppeket „febot”-oknak („ferroelektromos robot”) neveztük el. A febotok többnyire translációs mozgást végeznek a tükörszimmet-



4. ábra. A szigetelőréteg L_i vastagságának hatása az ágasodásra és a labirintusos instabilitásra



5. ábra. Sík elektródák közé szorított ferroelektromos nematikus cseppek elektromos mező által keltett felületi instabilitásai. (a) Sematikus térbeli ábrázolás. (b) Morfológiai fázisdiagram. (c) Tipikus patkó alakú „ferroelektromos robot – febot” az aktív tartományban. (d, e) Febotok ütközése. (f–j) Különböző formájú febotok

ria-tengelyük irányában. Legtöbbször patkó alakúak (5c. ábra), de megfigyeltünk egyéb formákat és rotációs mozgást végző egyedeket is (5f–j. ábra). A felületükön lévő nyúlványok taszítása miatt két febot találkozásakor azok nem olvadnak össze, hanem ütköznek, ezért irányuk megváltozik.

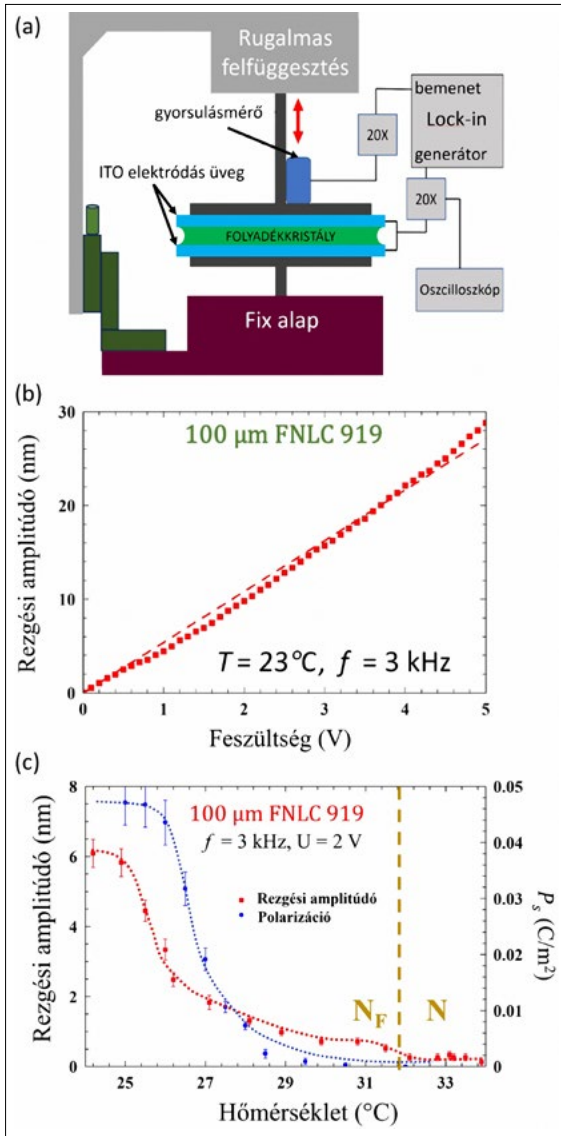
A febotok sokasága kölcsönható aktív részecskerendszerként viselkedik, melyben a febotok olyan dinamikus organizmusokra hasonlítanak, mint a rajzó rovarok, mikrobák vagy mikrorobotok [15]. Az aktív cseppecskék statisztikai elemzése azt mutatta, hogy a mozgás szabályozható az alkalmazott feszültséggel, ami a rendszer lehetséges alkalmazását jelenti új típusú mikrofluidikai eszközökben.

A kísérletezés során arra lettünk figyelmesek, hogy a febotok mozgását erős hangkibocsátás kíséri. Különböző f frekvenciájú szinuszos feszültséget a mintára kapcsolva a spektrális elemzés azt mutatta, hogy a kibocsátott hang tartalmaz f és $2f$ frekvenciájú komponenseket, és az előbbi (első harmonikus) amplitúdója lineárisan, míg az utóbbi (második harmonikus) kvadratikusan függ a feszültségtől. Ez arra utalt, hogy a hangkibocsátás mögött a ferroelektromos nematikus folyadékban fellépő lineáris és kvadratus elektromechanikai jelenségek, azaz a piezoelektromosság és az elektrostriktió állnak.

Szimmetriaelvekből következően minden ferroelektromos anyag rendelkezik piezoelektromos tulajdonságokkal, ezért a ferroelektromos nematikus fázisban tapasztalható lineáris elektromechanikai effektus csak azért furcsa, mert a szóban forgó anyag folyadék. A 6a. ábrán vázolt berendezés segítségével megmértük a piezoelektromos csatolási együtthatót az FNL919 nevű folyadékkristályban, ami már szobahőmérsékleten mutatja a ferroelektromos nematikus fázist [16]. Ehhez

az anyagot két ITO elektródával ellátott üveglap közé tettük, melyek közül az alsó mereven rögzített volt, a felső lapot pedig egy olyan rugalmas felfüggesztéshez erősítettük, mely csak függőleges irányú elmozdulást engedett. A mintára váltófeszültséget kapcsoltunk, és mértük a felső lap rezgési amplitúdóját egy gyorsulásmérő segítségével. A 6b. ábrán látható, hogy a feszültség függvényében a rezgési amplitúdó lineáris függést mutat, amiből megadható az elektromos mező és a mechanikai deformáció közötti effektív piezoelektromos csatolási együtthatónak egy alsó becslése. 6 kHz alatti frekvenciák esetén ez nagyobbra adódott, mint 1 nC/N, ami eléri a szilárd piezoelektromos anyagok értékeit. A rezgési amplitúdó hőmérsékletfüggésén (6c. ábra) jól látható, hogy az elektromechanikai hatás csak a ferroelektromos nematikus (N_F) fázisban figyelhető meg, és korrelál a spontán polarizációval. A nematikus (N) fázisban mindkettő mennyiség eltűnik.

A piezoelektromos csatolási együttható egy tenzormennyiség, melynek különböző komponenseit egymástól függetlenül megmérni további kísérleti erőfeszítéseket igényel. A ferroelektromos nematikus anyagok elektromechanikai válaszában pontosabb megértése lehetővé tehet egy újfajta energiakonverziót, és új utat nyithat a folyadéaktuátorok, mikropozicionálók és elektromosan hangolható optikai lencsék kifejlesztéséhez. Az inverziós szimmetria hiánya miatt egyes kristályokhoz, polimerekhez és biológiai anyagokhoz hasonlóan ezekben a különleges folyadékokban is felléphet direkt és inverz piezoelektromos hatás is. A direkt effektus esetén az anyag periodikus deformációjával kelthetünk elektromos áramot. Ezt jelenleg vizsgáljuk, az előzetes eredmények összhangban vannak az inverz piezoelektromosság esetén tapasztaltakkal.



6. ábra. (a) Az inverz piezoelektromosság mérésére alkalmas kísérlet vázlata. (b) Az FNLC919 ferroelektromos nematikus folyadékkristály lineáris elektromechanikai válasza. (c) Elektromechanikai válasz a hőmérséklet függvényében a nematikus (N) és a ferroelektromos nematikus (N_F) fázisban

Visszatérve a febotok mozgásához, úgy gondoljuk, hogy a jelenség az anyag erős elektromechanikai tulajdonságai miatt következik be. Egy feszültségperióduson belül, nagy sebességű képalkotással vizsgálva a febotokat az látható, hogy a mozgási tartományban (magasabb frekvencián) az anyagnak nincs ideje relaxálni az egyensúlyi alakjához, ezért a kontakvonal elmozdulhat. A kerület mentén a kicsi elmozdulások függenek a lokális elektromos mezőtől, amit a környező anyagforma befolyásol. Ha a febotnak csak egy tükörszimmetria-tengelye van, akkor annak irányában várható nettó elmozdulás.

Végezetül megemlítjük, hogy a fentebb olvasható előzetes várakozásunkat, a ferroelektromos folyadékok nagyon alacsony feszültséggel történő terítését, elektro-ndvesítését az elektródát borító szigetelő vékonyrétegek miatt nem sikerült megfigyelni. Már a néhány nanométer vastag szigetelő is jelentősen csökkenti a ferroelektromos

anyagon eső feszültséget annak alacsony impedanciája miatt, nem is beszélve a szigetelőréteg miatt fellépő instabilitásokról. Legújabb kísérleteink azt mutatják, hogy a szigetelőréteg elhagyásával 2 V feszültség is elegendő egy csepp teljes elterítéséhez, azaz a kontaktszögének nulla közelébe viteléhez.

Köszönetnyilvánítás

A szerzők hálásak Jákli Antal közreműködéséért, aki állandó támogatást nyújtott a munkájuk során. A szerzők köszönik az alábbi projektek anyagi támogatását: NKFIH FK142643 és 2023-1.2.1-ERA_NET-2023-00008.

Irodalom

1. M. Born (1916): Über anisotrope Flüssigkeiten: Versuch einer Theorie der flüssigen Kristalle und des elektrischen Kerr-Effekts in Flüssigkeiten. *Sitzungsber. Preuss. Akad. Wiss.*, 30, 614.
2. H. Nishikawa, K. Shiroshita, H. Higuchi, Y. Okumura, Y. Haseba, S. Yamamoto, K. Sago, H. Kikuchi (2017): A fluid liquid-crystal material with highly polar order. *Advanced Materials*, 29, 1702354.
3. R. J. Mandle, S. J. Cowling, J. W. Goodby (2017): A nematic to nematic transformation exhibited by a rod-like liquid crystal. *Physical Chemistry Chemical Physics*, 19, 11429.
4. X. Chen, et al. (2020): First-principles experimental demonstration of ferroelectricity in a thermotropic nematic liquid crystal: Polar domains and striking electro-optics. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 117, 14021.
5. N. Sebastián, M. Čopič, A. Mertelj (2022): Ferroelectric nematic liquid-crystalline phases. *Phys. Rev. E* 106, 21001.
6. M. T. Máthé, N. Éber, Á. Buka, H. Nishikawa, F. Araoka, A. Jákli, P. Salamon (2025): Reorientation of ferroelectric nematic liquid crystals under out-of-plane electric and magnetic fields. *J. Mol. Liq.*, 428, 127525.
7. H. Nishikawa, P. Salamon, M. T. Máthé, A. Jákli, F. Araoka (2025): Giant electro-viscous effects in polar fluids with paraelectric-modulated antiferroelectric-ferroelectric phase sequence. *Giant*, 22, 100356.
8. M. T. Máthé, K. Perera, Á. Buka, P. Salamon, A. Jákli (2024): Fluid ferroelectric filaments. *Advanced Science*, 11, 2305950.
9. M. Lovšin, L. Cmok, C. J. Gibb, J. Hobbs, R. J. Mandle, A. Mertelj, I. Drenšek-Olenik, N. Sebastian (2025): Ferroelectric fluids for nonlinear photonics: Evaluation of temperature dependence of second-order susceptibilities. *ArXiv* 2509.11835.
10. V. Sultanov, A. Kavčič, E. Kokkinakis, N. Sebastián, M. V. Chekhova, M. Humar (2024): Tunable entangled photon-pair generation in a liquid crystal. *Nature*, 631, 294.
11. T. Tóth-Katona, I. Jánossy, P. Salamon, A. Jákli (2025): Light-induced thermomechanical reorientation and helicity flipping in ferroelectric nematic phase. *Commun. Mater.*, 6, 225.
12. M. T. Máthé, Á. Buka, A. Jákli, P. Salamon (2022): Ferroelectric nematic liquid crystal thermomotor. *Phys. Rev. E* 105, L052701.
13. M. T. Máthé, B. Farkas, L. Péter, Á. Buka, A. Jákli, P. Salamon (2023): Electric field-induced interfacial instability in a ferroelectric nematic liquid crystal. *Sci. Rep.*, 13, 6981.
14. M. T. Máthé, H. Nishikawa, F. Araoka, A. Jákli, P. Salamon (2024): Ramification and labyrinth instabilities in a ferroelectric nematic fluid exposed to electric fields. *J. Mol. Liq.*, 413, 126047.
15. M. T. Máthé, H. Nishikawa, F. Araoka, A. Jákli, P. Salamon (2024): Electrically activated ferroelectric nematic microrobots. *Nat. Commun.*, 15, 6928.
16. M. T. Máthé, M. S. H. Himel, A. Adaka, J. T. Gleeson, S. Sprunt, P. Salamon, A. Jákli (2024): Liquid piezoelectric materials: Linear electromechanical effect in fluid ferroelectric nematic liquid crystals. *Adv. Funct. Mater.*, 34, 2314158.