

50376  
1995  
7

50376

N° D'ORDRE : 1463

# THESE

**L'UNIVERSITE DES SCIENCES ET TECHNOLOGIES  
DE LILLE**

pour obtenir le grade de :

**DOCTEUR DE L'UNIVERSITE**

Spécialité : **SCIENCES DES MATERIAUX**

par

**Delphine LOUVERGNEAUX - HECTOR**

## **ETUDE PAR REFLECTIVITÉ DE L'ORIENTATION DE FILMS NÉMATIQUES HYBRIDES**

.....  
SOUTENUE LE 13 JANVIER 1995 DEVANT LA COMMISSION D'EXAMEN :

- |                              |   |                                 |
|------------------------------|---|---------------------------------|
| <b>P. MARTINOT LAGARDE :</b> | <b>Professeur à l'Université de Paris sud, Orsay</b>                    | <b>PRÉSIDENT<br/>RAPPORTEUR</b> |
| <b>G. BARBERO :</b>          | <b>Professeur associé, Politecnico di Torino</b>                        | <b>RAPPORTEUR</b>               |
| <b>J. LEFEBVRE :</b>         | <b>Professeur à l'Université de Lille I</b>                             | <b>EXAMINATEUR</b>              |
| <b>N. ISAERT :</b>           | <b>Professeur à l'Université de Lille I</b>                             | <b>EXAMINATEUR</b>              |
| <b>M. WARENGHEM :</b>        | <b>Professeur à l'Université d'arts et métiers (Directeur de thèse)</b> | <b>EXAMINATEUR</b>              |







A ma Famille et mes Amis

A Eric



# **REMERCIEMENTS**





Ce présent travail a été effectué dans l'Unité de Formation et de Recherche de Physique de l'Université des Sciences et Technologies de Lille au sein de l'équipe de Physique des Stases Anisotropes dirigée par Monsieur le Professeur Noël ISAERT. Cette équipe fait partie du Laboratoire de Dynamique et Structure des Matériaux Moléculaires (LDSMM), Unité de Recherche Associée au C.N.R.S. (URA 801), dirigé par Monsieur le Professeur Jacques LEFEBVRE.

Les travaux de recherche ont été réalisés sous la direction de Monsieur le Professeur Marc WARENGHEM. Je le remercie vivement pour sa grande disponibilité, pour ces nombreux conseils qui m'ont permis de mener à bien ce travail et pour la formation scientifique qu'il m'a donnée.

Je tiens à remercier Monsieur le Professeur P. MARTINOT LAGARDE qui a accepté la charge d'être rapporteur de ma thèse.

Je tiens à exprimer ma gratitude à Monsieur le Professeur G. BARBERO qui a également accepté de juger mon travail et d'être rapporteur.

Mes chaleureux remerciements vont à Monsieur le Professeur Noël ISAERT qui m'a acceptée dans son équipe, a suivi mon travail et m'a fait l'honneur de se joindre au jury de thèse.

Je suis également honorée de compter Monsieur le Professeur Jacques LEFEBVRE parmi les membres de jury de cette thèse.

Un grand merci à tous les membres de l'équipe de Physique des Stases Anisotropes pour l'aide qu'ils m'ont apportée, les discussions fructueuses et avec qui j'ai passé quatre années agréables : J.M. BUISINE, P. CUVELIER, J.M. DESLANDES, M. DOMON,

G. JOLY, A. ANAKKAR, A. DAOUDI, M. ISMAILI, sans oublier les thésards :  
F. BOUGRIOUA et V. LAUX et les DEA : F. BARBET, L. DETRE.

J'adresse un remerciement particulier à Monsieur Jean-Marc DESLANDES pour son aide efficace, ses conseils, sa bonne humeur et le soutien qu'il m'a témoigné au cours de ces quatre années.

Je tiens à exprimer ma reconnaissance à l'ensemble du personnel, enseignants, membres du Laboratoire, secrétariat et services techniques de l'UFR de Physique, qui ont participé à l'élaboration de ce mémoire.

Enfin, je remercie Serge FAUQUEMBERGUE et Pascal BONTE qui se sont chargés de la reprographie de ce mémoire.

# **SOMMAIRE**



AVANT PROPOS .....	5
REMERCIEMENTS .....	7
<b>INTRODUCTION .....</b>	<b>17</b>
<b>PARTIE PRELIMINAIRE :</b>	
<b>Rappels sur les cristaux liquides nématiques et sur l'orientation d'un film nématique.....</b>	<b>21</b>
INTRODUCTION.....	23
I - DESCRIPTION DE LA PHASE NEMATIQUE.....	25
II - DIFFERENTES ORIENTATIONS D'UN NEMATIQUE SUR UNE SURFACE.....	26
II - 1 - ALIGNEMENT PLANAIRE.....	28
II - 2 - ALIGNEMENT HOMEOTROPE.....	31
II - 3 - ALIGNEMENT INCLINE.....	33
II - 4 - GEOMETRIE D'UN FILM EN FONCTION DES CONDITIONS LIMITES.....	34
<b>PARTIE 1 :</b>	
<b>Structure d'un film en fonction des conditions limites.....</b>	<b>39</b>
INTRODUCTION.....	41

CHAPITRE 1 : OUTIL POUR METTRE EN EVIDENCE LA STRUCTURE D'UN FILM.....	43
INTRODUCTION.....	45
I - 1 - PRINCIPE DE LA REFLEXION TOTALE . .....	47
I - 2 - MONTAGE PROPOSE.....	50
I - 2 - a - Description du réfractomètre du Laboratoire.....	50
I - 2 - b - Description du porte-échantillon.....	53
CHAPITRE 2 : ANALYSE DES COURBES DE REFLECTIVITE.....	55
INTRODUCTION.....	57
II - 1 - LE POINT ANGULEUX (REFLEXION TOTALE).....	59
II - 2 - LES OSCILLATIONS EN REGIME TRANSMISSION.....	60
II - 3 - CALCUL DU DEPHASAGE POUR UNE ONDE ORDINAIRE.....	63
II - 4 - CALCUL DU DEPHASAGE POUR UNE ONDE EXTRAORDINAIRE.....	64
II - 4 - a - Cas d'un film homogène.....	67
II - 4 - b - Cas d'un film hétérogène.....	68
II - 4 - b - 1 - Variation d'indice croissante.....	68
II - 4 - b - 2 - Variation d'indice décroissante.....	69
II - 5 - SIMULATION NUMERIQUE.....	71
II - 6 - CONCLUSION.....	72
CHAPITRE 3 : ROUTINE D'EXPLOITATION DES COURBES DE REFLECTIVITE.....	75
III - 1 - TRACE DE LA COURBE $\phi(X)$ .....	77

III - 2 - EXPLOITATION DES COURBES DE REFLECTIVITE POUR LA POLARISATION TE..	78
III - 3 -EXPLOITATION DES COURBES DE REFLECTIVITE POUR LA POLARISATION TM..	80
III - 4 - DETERMNINATION EXPERIMENTALE DE LA DISTRIBUTION ANGULAIRE DU DIRECTEUR DANS LE VOLUME. ....	81
CONCLUSION.....	86
 <b>PARTIE 2 :</b>	
<b>Les expériences</b> .....	87
INTRODUCTION.....	89
CHAPITRE 1 : PREPARATION DES ECHANTILLONS, PRECISION DES MESURES .....	91
I - TRAITEMENT N-HTAB. ....	93
II - TRAITEMENT LECITHINE.....	94
III - PRECISION DES MESURES.....	96
CHAPITRE 2 : RESULTATS .....	99
I - RESULTATS DU TRAITEMENT N-HTAB.....	101
II - RESULTATS DU TRAITEMENT LECITHINE.....	107
III - CAS PARTICULIERS. ....	111

## **PARTIE 3 :**

<b>Confrontation avec les modèles</b> .....	115
<b>I - LA THEORIE ELASTIQUE CLASSIQUE</b> .....	117
<b>II - CONFRONTATION AVEC LA THEORIE ELASTIQUE</b> .....	122
<b>II - 1 - ÉPAISSEUR CRITIQUE</b> .....	122
<b>II - 1 - 1 - Traitement n-HTAB</b> .....	122
<b>II - 1 - 2 - Traitement lécithine</b> .....	122
<b>II - 2 - INCLINAISON EN SURFACE</b> .....	123
<b>II - 2 - 1 - Traitement n- HTAB</b> .....	123
<b>II - 2 - 2 - Traitement lécithine</b> .....	123
<b>II - 3 - DISTRIBUTION DU DIRECTEUR EN VOLUME</b> .....	127
<b>II - 3 - 1 - Traitement n-HTAB</b> .....	127
<b>II - 3 - 2 - Traitement lécithine</b> .....	127
<b>III - CONCLUSION</b> .....	136
<b>CONCLUSION</b> .....	141
<b>ANNEXES : Essai des butées piézoélectriques sur des cellules tests</b> .....	147
<b>REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES</b> .....	153



# **INTRODUCTION**



Durant les vingt-cinq dernières années, de nombreux travaux théoriques et expérimentaux ont été consacrés aux interactions entre les cristaux liquides et les surfaces solides. Ces interactions sont responsables de l'orientation des molécules de cristal liquide en surface et dans le volume. L'étude de celles-ci est intéressante d'un point de vue fondamental comme d'un point de vue technologique. Par exemple, l'alignement et l'ancrage des molécules de cristal liquide jouent un rôle essentiel dans la qualité des dispositifs d'affichage à cristaux liquides. Dans ces dispositifs, on confine le cristal liquide entre deux lames pour obtenir un film mince et il est indispensable d'avoir une orientation bien définie des molécules (film monocristallin). Des techniques pour obtenir ce résultat ont été mises au point et sont maintenant assez bien connues. Des théoriciens ont parallèlement essayé de décrire le comportement des cristaux liquides sur une paroi. On sait ainsi que la théorie élastique permet de représenter assez correctement ce qui se passe dans le volume, par contre ce qui se produit près de l'interface est plus compliqué et pour en rendre compte, il est nécessaire d'apporter des corrections à cette théorie élastique. Des modèles tels que : un paramètre d'ordre non constant, le modèle dit de "second order elasticity" ( $K_{13}$ ), la flexoélectricité et la double couche électrique en surface tiennent compte d'effets auxquels on peut s'attendre en surface. Cependant, les mécanismes responsables d'une orientation donnée d'un cristal liquide sont complexes et encore assez mal connus et à ce jour, aucune expérience n'a permis de trancher définitivement en faveur de telle ou telle théorie.

Partant de la théorie élastique, les paramètres pertinents de la structure orientationnelle des films nématiques sont, outre les caractéristiques physiques du cristal liquide, les énergies d'ancrage aux interfaces et l'épaisseur du film. Pour étudier ces interactions, il est intéressant de connaître la distribution angulaire du directeur en surface et dans le volume lorsque ces deux paramètres varient et de remonter ainsi aux énergies d'ancrage. Un type d'échantillon est particulièrement adapté à cette étude : il s'agit des films nématiques hybrides et c'est ce type de films que nous avons utilisé pour

appréhender d'un point de vue expérimental les phénomènes d'orientation des Nématiques.

Après un préliminaire dans lequel nous faisons quelques rappels sur les cristaux liquides et leur orientation, nous décrivons dans une première partie les moyens expérimentaux que nous nous sommes donnés pour étudier la distribution du directeur moléculaire. La méthode expérimentale (réflectométrie) que nous avons choisie permet de faire une mesure directe de l'angle d'inclinaison du directeur en surface et de reconstituer la distribution angulaire du directeur dans tout le volume du Nématique. Elle consiste à enregistrer la courbe de l'intensité réfléchie par le film en fonction de l'angle d'incidence à l'interface verre-Nématique. Comme elle a l'avantage d'être indépendante de tout modèle théorique, nous espérons apporter une contribution intéressante à la compréhension des structures orientationnelles de ces films. Nous décrivons également dans cette partie, comment nous analysons ces courbes pour remonter à la distribution du directeur en surface et dans le volume.

Ensuite, dans une deuxième partie, nous exposons les expériences qui ont été effectuées sur plusieurs films dont l'orientation hybride a été réalisée en utilisant différent type de traitement de surface des parois limitant le cristal liquide. Enfin, dans une troisième partie, les résultats obtenus sont discutés et confrontés à des modèles théoriques. En particulier, nous avons observé un désaccord avec la théorie élastique pour des couches nématiques proches de l'interface. La "longueur de pénétration" de ce phénomène étant de l'ordre du micron et dépendant de l'épaisseur de l'échantillon, c'est à dire de son volume, nous pensons qu'une interprétation en termes de flexoélectricité et de double couche électrique est assez probable.

# **PARTIE PRELIMINAIRE :**

**RAPPELS SUR LES CRISTAUX LIQUIDES**

**NEMATIQUES ET SUR L'ORIENTATION**

**D'UN FILM NEMATIQUE**



# INTRODUCTION

Depuis la découverte de l'existence de substances à la fois fluides et biréfringentes par Reinitzer [1], la classification usuelle de la matière en trois états (solide, liquide, gaz) est complétée par un nouvel état, intermédiaire entre le cristal et le liquide : l'état cristallin liquide. Plusieurs ouvrages constituent une bonne base de travail pour l'étude de ce nouvel état de la matière [2-4]. On appelle mésogènes thermotropes, les substances organiques qui présentent cet état dans une gamme de température et on distingue essentiellement deux grandes familles de ces mésogènes : les mésogènes calamitiques (molécules en forme de bâtonnet) et les mésogènes discotiques (molécules en forme de disque). Ce travail s'intéresse au cas des mésogènes calamitiques.

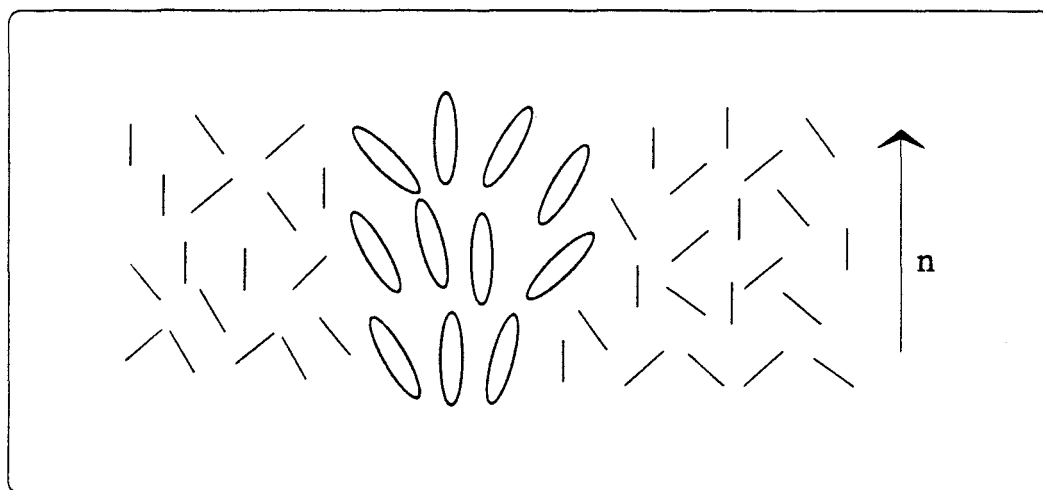
Un mésogène peut présenter plusieurs phases cristal liquide appelées mésophases ou phases mésomorphes, globalement rangées en trois groupes : Smectique, Nématique et Cholestérique, suivant leur arrangement moléculaire. On s'intéresse ici à la phase Nématique. Dans un premier temps, nous décrirons cette phase puis nous donnerons ses principales caractéristiques. Dans un second temps, nous définirons quelques termes concernant les géométries possibles de films contenant du cristal liquide nématique. Commençons donc par décrire la phase nématique.





## I - DESCRIPTION DE LA PHASE NEMATIQUE.

La phase nématique est la phase la moins organisée des mésophases. Les centres de gravité des molécules sont désordonnés dans l'espace mais les molécules sont en moyenne parallèles entre elles suivant une direction qui est conventionnellement décrite par un vecteur unité  $\mathbf{n}$  que l'on appelle le directeur [5]. L'arrangement moléculaire d'un Nématique est représenté sur la figure 1 où les molécules sont schématisées par des formes oblongues.



*Figure 1 : Représentation schématique de l'arrangement moléculaire dans la phase nématique.*

Un cristal liquide nématique est un milieu optiquement uniaxe dont l'axe optique est parallèle au directeur  $\mathbf{n}$ . Les molécules peuvent tourner librement autour de leur grand axe moléculaire. De plus, comme on ne peut distinguer la direction  $+\mathbf{n}$  de la direction  $-\mathbf{n}$ , cette phase est centrosymétrique et ne peut donc pas être ferroélectrique. Cette dernière propriété est vraie dans le volume mais près d'une surface, la symétrie de translation du système est détruite et une couche ferroélectrique peut apparaître.

Les Nématiques ont une apparence blanchâtre, signe que  $\mathbf{n}$  n'est pas uniforme mais fluctue dans l'espace et dans le temps autour d'une orientation moyenne. Cette fluctuation est due à l'agitation thermique. Pour un système de molécules en forme de bâtonnets, le degré d'alignement des molécules est conventionnellement décrit par le paramètre d'ordre  $S$  [5] :

$$S = \left\langle \frac{3 \cos^2 \psi - 1}{2} \right\rangle \quad (1)$$

où  $\psi$  est la valeur locale et à l'instant  $t$  de l'orientation du grand axe moléculaire par rapport à  $\mathbf{n}$ , et les crochets dénotent une moyenne statistique.

Ce paramètre d'ordre  $S$  est principalement fonction de la température, il vaut 1 dans un cristal parfait et zéro dans un milieu totalement désordonné, comme les liquides isotropes.

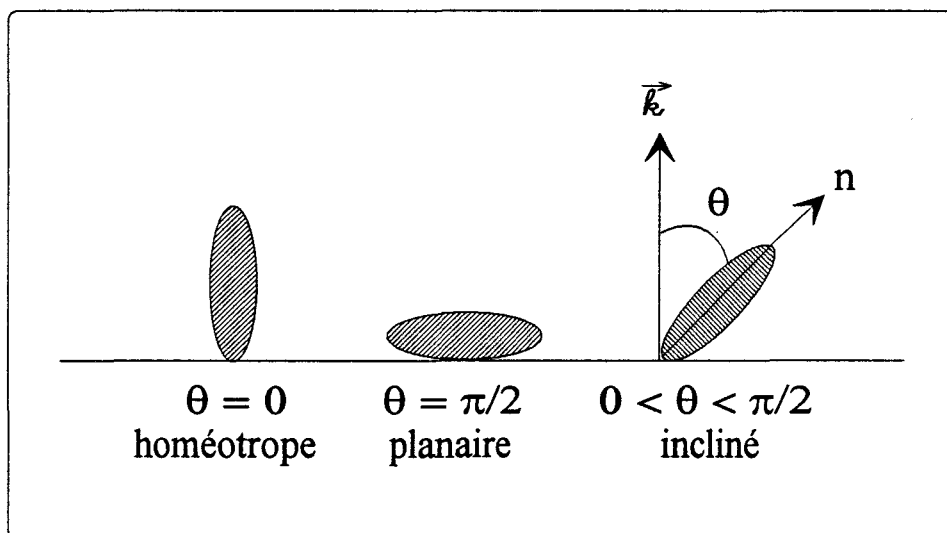
## II - DIFFERENTES ORIENTATIONS D'UN NEMATIQUE SUR UNE SURFACE.

L'orientation du directeur est arbitraire dans le volume du cristal liquide. Par contre, les interactions en surface, c'est à dire entre le cristal liquide et le milieu avec lequel il entre en contact, sont responsables de l'orientation de  $\mathbf{n}$  à l'interface. Celle-ci se transmettra dans le volume par le biais de l'élasticité, caractéristique de ce type de matériau. On obtiendra donc des échantillons de cristaux liquides alignés suivant une certaine direction par des traitements adéquats des surfaces. Avant de préciser les traitements chimiques ou physico-chimiques utilisés, nous donnons la terminologie associée aux différents types d'alignements sur lesquels il est usuel de travailler. On

définit l'orientation des molécules à une interface suivant les valeurs de  $\theta$ , l'angle moyen des molécules par rapport à la normale  $\vec{k}$  à la surface :

- $\theta = 0$  : l'orientation est dite homéotrope ; les molécules sont perpendiculaires à la surface.
- $\theta = \frac{\pi}{2}$  : l'orientation est dite planaire ; les molécules sont parallèles à la surface.
- $0 < \theta < \frac{\pi}{2}$  : l'orientation est dite inclinée.

Ces trois orientations sont représentées sur la figure 2.



*Figure 2 : Définitions des orientations des molécules de cristal liquide au contact d'une surface.*

Intuitivement, on conçoit que les interactions qui engendrent ces alignements peuvent être plus ou moins fortes et les molécules ou plus exactement le directeur, plus ou moins rigidement "accroché" à l'interface dans des positions telles que celles indiquées sur la figure 2. On parle alors d'ancrage fort s'il est très difficile d'écartier les molécules de

leur position privilégiée à l'interface et d'ancrage faible dans le cas contraire. Le paramètre physique décrivant ce concept est appelé l'énergie d'ancrage [6], notion sur laquelle nous reviendrons ultérieurement.

Nous décrivons maintenant les méthodes de traitement des interfaces capables d'avoir une action d'orientation sur les cristaux liquides. Il faut néanmoins garder en mémoire qu'il s'agit d'interactions mutuelles entre deux matériaux différents et que les propriétés physico-chimiques de chacun des deux matériaux entrent en ligne de compte pour donner l'alignement final à l'interface.

En s'inspirant de la classification de Mada [7], nous pouvons regrouper les problèmes d'alignement en trois catégories grossières :

- les alignements "naturels" obtenus par simple contact et liés essentiellement aux interactions de Van der Waals.

- les alignements obtenus par traitements mécaniques de la surface ; c'est la structure géométrique ou topographique de cette dernière qui provoque un alignement des molécules de cristal liquide.

- les alignements obtenus par traitement chimique du substrat (dépôts de surfactants).

Les problèmes d'alignement ont aussi été expliqués par d'autres approches [8,9].

Nous retrouvons ces aspects dans les méthodes exposées ci-après.

## **II - 1 - ALIGNEMENT PLANAIRE.**

Mauguin a décrit la fabrication d'une cellule de cristal liquide par frottement des lames de verre avec du papier afin d'obtenir un alignement planaire [10]. Cette méthode est aussi appelée méthode de Chatelain [11]. Ce dernier a émis l'hypothèse que cette orientation résultait des interactions dipolaires entre une couche ordonnée d'impuretés

grossièrement adsorbées et les molécules du Nématique. Néanmoins il n'a pas exclu l'hypothèse que l'orientation pouvait être causée par l'altération de la surface du substrat. L'explication de cet alignement est la suivante : les longues molécules d'acides gras qui ne manquent pas de se trouver sur le papier ou sur les mains de l'opérateur, se déposent sur le verre unidirectionnellement et favorisent sans doute l'alignement. La direction de frottement détermine l'axe du monocristal nématique. Comme la méthode utilisée par Chatelain ne permet pas toujours d'avoir des ancrages suffisamment forts en surface, elle a été modifiée de la façon suivante : le verre est poli dans une direction donnée grâce à de la pâte de diamant (grain de  $0.25 \mu\text{m}$ ). En effet, cela crée un micro-relief dans le verre sous forme de stries qui favorisent l'orientation des molécules suivant ces stries (elles ont tendance à "s'arranger" parallèlement à la surface). Certains auteurs ont repris cette idée d'alignement des molécules par des rainures et ont proposé une méthode utilisant la photolithographie par rayons X [12]. Par la suite, Cheng et Boyd [13] ont trouvé que l'existence des rainures n'est ni nécessaire, ni toujours suffisante comme condition pour cet alignement. De leurs côtés, Känel et al [14] ont montré que des gravures de période suffisamment petite ou de profondeur suffisante peuvent induire un alignement planaire du cristal liquide nématique. Le rôle de la topographie de surface serait de canaliser partiellement l'écoulement le long de la surface.

De meilleurs résultats sont obtenus en déposant sur le substrat une fine couche de monoxyde de Silicium  $\text{SiO}_2$ , d'or ou d'autres métaux, par évaporation sous vide suivant un angle bien défini (entre la source et le substrat) [15]. Cette technique a été utilisée pour la première fois par J.L. Janning [16], qui a obtenu une orientation planaire en évaporant le film de  $\text{SiO}_2$  sous un angle de 85 degrés approximativement par rapport à la normale au substrat. Le dépôt oblique provoque la croissance du film dans une direction préférentielle et l'alignement du cristal liquide dépend de cette direction, avec le directeur moléculaire pointant vers la direction d'évaporation. Il a en effet été observé que sous des angles faibles de dépôt (incidence rasante de 5 degrés sur le substrat), le directeur du cristal liquide n'est pas parallèle à la surface mais plutôt incliné dans le plan de la surface et on peut trouver des inclinaisons entre 20 et 40 degrés, dirigées dans la direction

initiale du dépôt oblique et en tous cas, dans le même quadrant que la direction de dépôt [17].

Depuis la découverte de Jannings, cette méthode s'est largement répandue pour faire des "effets de champ" dans les systèmes d'affichage à cristaux liquides. Cette méthode a l'avantage de donner des alignements de surface reproductibles qui sont plus stables que ceux obtenus avec les techniques de frottement unidirectionnel.

Hochbaum et Labes [18] ont également obtenu un alignement planaire en évaporant du SiO sous un angle de 60 degrés par rapport à la normale au substrat. Une telle surface aligne le directeur des couches de cristal liquide parallèlement à la surface et perpendiculairement au plan d'incidence du SiO.

D'autres types de matériaux évaporés sur des tranches de Silicium produisent aussi une orientation planaire, comme des films métalliques d'or ou de chrome [19].

Les monocouches adsorbées de surfactant comme le bromure d'hexadécyltriméthylammonium (HTAB) peuvent également induire une orientation planaire [20] mais ce mécanisme permet aussi d'obtenir des orientations homéotropes. Ce qui est déterminant pour obtenir l'une ou l'autre de ces orientations, c'est la concentration de surfactant (la densité superficielle) et la structure des monocouches adsorbées.

Kashnow et al [21] ont aussi trouvé des dopants (acides dicarboxyliques) qui génèrent une orientation planaire des Nématiques mais celle-ci n'était pas stable car l'absorption des acides sur le substrat n'était pas chimique mais physique. Matsumoto et al [22] ont repris cette idée en traitant la lame de verre avec un complexe dicarboxylatochrome, traitement suivi dans certains cas par un frottement doux à l'aide d'un coton dans une direction donnée. Cette méthode donne une structure planaire stable et sûre.

A notre stade d'expérimentation de laboratoire, nous avons adopté la technique la plus simple : celle d'un frottement unidirectionnel avec de la pâte de diamant.

Nous abordons maintenant les méthodes utilisées pour générer un alignement homéotrope.

## II - 2 - ALIGNEMENT HOMEOTROPE.

Nous allons retrouver dans ce paragraphe quelques unes des techniques employées pour obtenir un alignement planaire. La tendance à l'homéotropie est assez naturelle sur des lames de verre non traitées. On obtient une orientation homéotrope en déposant des couches monomoléculaires de savons ou de lipides sur le verre.

Les surfactants utilisés sont typiquement des résines, des lécithines [23] ou du bromure d'hexadécyltriméthylammonium [20,15] déjà cité dans le paragraphe précédent. Quand ces surfactants sont adsorbés par une surface, leurs longues chaînes aliphatiques se tiennent perpendiculairement à la surface (Figure 3). L'ancrage homéotrope obtenu peut s'expliquer à l'aide de considérations stériques : les molécules de cristal liquide (de forme allongée sur la figure 3) ont la "place" de se glisser entre les chaînes paraffiniques.

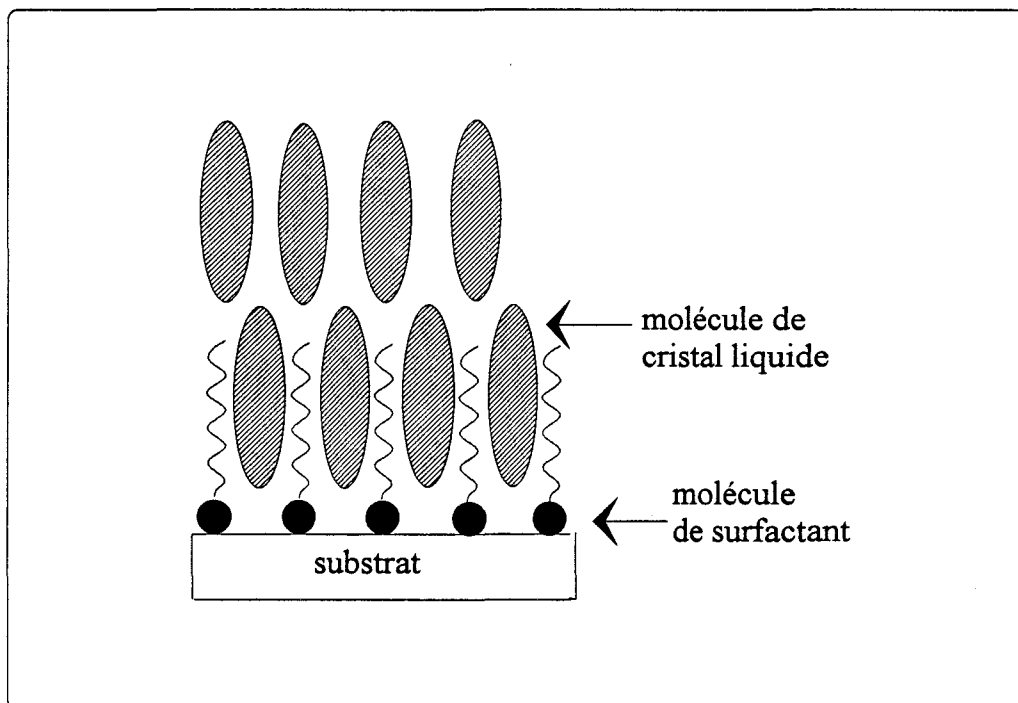


Figure 3 : Orientation homéotrope obtenue grâce à une monocouche de surfactant.

L'interaction élastique entre ces molécules ancrées normalement à la surface et les molécules adjacentes en volume provoque l'alignement homéotrope. La force d'attraction entre la tête du matériau et la surface de verre peut être si grande que même le frottement n'est pas suffisant pour la contrer.

On retrouve aussi la méthode de dépôt d'un film mince sous incidence oblique : dépôt de cuivre [15,19], de monoxyde de silicium [18] ou d'argent [19]. Hochbaum et Labes proposent une double évaporation grâce à deux sources symétriques de SiO avec rotation du substrat ou une évaporation unique sous un angle de 85 degrés avec rotation du substrat, pour obtenir un alignement homéotrope. On peut aussi combiner les deux méthodes évoquées, c'est à dire effectuer une évaporation oblique de SiO sous un angle de 60 degrés par rapport à la normale au substrat, puis déposer une fine couche de lécithine [24].

On peut encore utiliser des complexes de monocarboxylatochrome pour induire un alignement homéotrope [25]. Les chaînes d'acide gras rendent la surface hydrophobe et il en résulte une action d'orientation perpendiculaire des complexes. Ce procédé permet une orientation stable et persistante des cristaux liquides dans les systèmes à cristaux liquides.

Enfin, une autre méthode possible consiste à utiliser des complexes métalliques contenant du chrome ou du cobalt [26]. Le dépôt sur le substrat est obtenu en faisant réagir dans une solution aqueuse, le sel du métal correspondant et la solution de liants.

Pour nos expériences, nous avons utilisé les surfactants suivant pour obtenir un alignement homéotrope : le n-HTAB et la lécithine.

Nous finissons par les méthodes d'alignement provoquant une orientation inclinée.



## II - 3 - ALIGNEMENT INCLINE.

L'alignement incliné peut être obtenu soit à partir d'un effet de surface, soit à partir de la compétition entre les déformations imposées aux différentes interfaces limitant le cristal liquide. Les inclinaisons en surface ont été décrites pour la première fois par Guyon et al [27]. Grâce à une double évaporation de SiO sous incidence rasante, ces derniers ont obtenu des angles d'inclinaison entre 30 et 40 degrés par rapport à la normale à l'interface. Cette méthode a ensuite été généralisée par Raynes et Rowell [28] pour obtenir un alignement incliné contrôlé : deux évaporations simultanées grâce à deux sources placées respectivement à 5 et 30 degrés par rapport au substrat. Une autre technique consiste à réaliser successivement les deux évaporations. On obtient alors des angles d'inclinaison de 0 à 45 degrés et ces méthodes ont l'avantage d'être reproductibles pour la valeur des angles d'inclinaison.

Hochbaum et Labes [18] ont obtenu des angles d'inclinaison de 25 à 45 degrés, grâce à une évaporation oblique de 85 degrés par rapport à la normale au substrat. Le directeur est alors contenu dans le plan d'incidence du SiO mais incliné en dehors du plan du substrat.

Porte [29] a obtenu le phénomène d'inclinaison grâce à une série de surfactants à courte chaîne aliphatique. L'angle d'inclinaison est relié à la longueur de la chaîne. Les composés sont de la forme  $C_nH_{2n+1} - NH_2$  et il a montré que si  $n$  est supérieur à 12, l'orientation est homéotrope, elle est inclinée si  $n$  est inférieure à 10.

Enfin, une nouvelle méthode a été mise au point par Frunza et al [30]. Une couche de SiO est déposée obliquement puis recouverte d'alcool polyvinyl (PVA). Sans PVA, on obtient un angle d'inclinaison de 30 degrés et au fur et à mesure que la concentration de PVA augmente, l'angle d'inclinaison décroît jusqu'à 7 degrés.

Grâce à la combinaison de plusieurs des méthodes citées dans les deux paragraphes précédents, on peut aussi obtenir une orientation inclinée [31] :

- méthode de frottement avec de la pâte de diamant, suivie d'une évaporation oblique.
- méthode de l'évaporation oblique suivie d'un traitement de surface homéotrope.
- méthode de frottement sur une couche de SiO évaporée, suivie d'un traitement de surface homéotrope.

Dans nos expériences, les orientations inclinées obtenues ne sont le résultat que de la compétition entre les deux interfaces limitant le cristal liquide. C'est le résultat de cette compétition qui va nous intéresser durant toute cette étude. Pour faire jouer cette compétition, le cristal liquide sera confiné entre une lame et un prisme de verre. Plusieurs cas de figure peuvent alors être envisagés et c'est ce qui fait l'objet du paragraphe suivant.

## **II - 4 - GEOMETRIE D'UN FILM EN FONCTION DES CONDITIONS LIMITES.**

Dans la suite, on appelle film, l'ensemble formé par deux substrats entre lesquels on a introduit le cristal liquide nématique. Les contraintes imposées par les conditions aux surfaces à ce film nématique sont responsables de l'orientation en volume du Nématique. Compte tenu des différentes orientations que nous avons citées au dessus, on peut fabriquer plusieurs types de films (Figure 4) et il en résulte une distribution du directeur dans le film qui peut être soit homogène, soit hétérogène, c'est à dire un directeur en tout point parallèle à une direction donnée (Figure 5.a) ou un directeur dont la direction évolue d'un point à un autre du film (Figure 5.b).

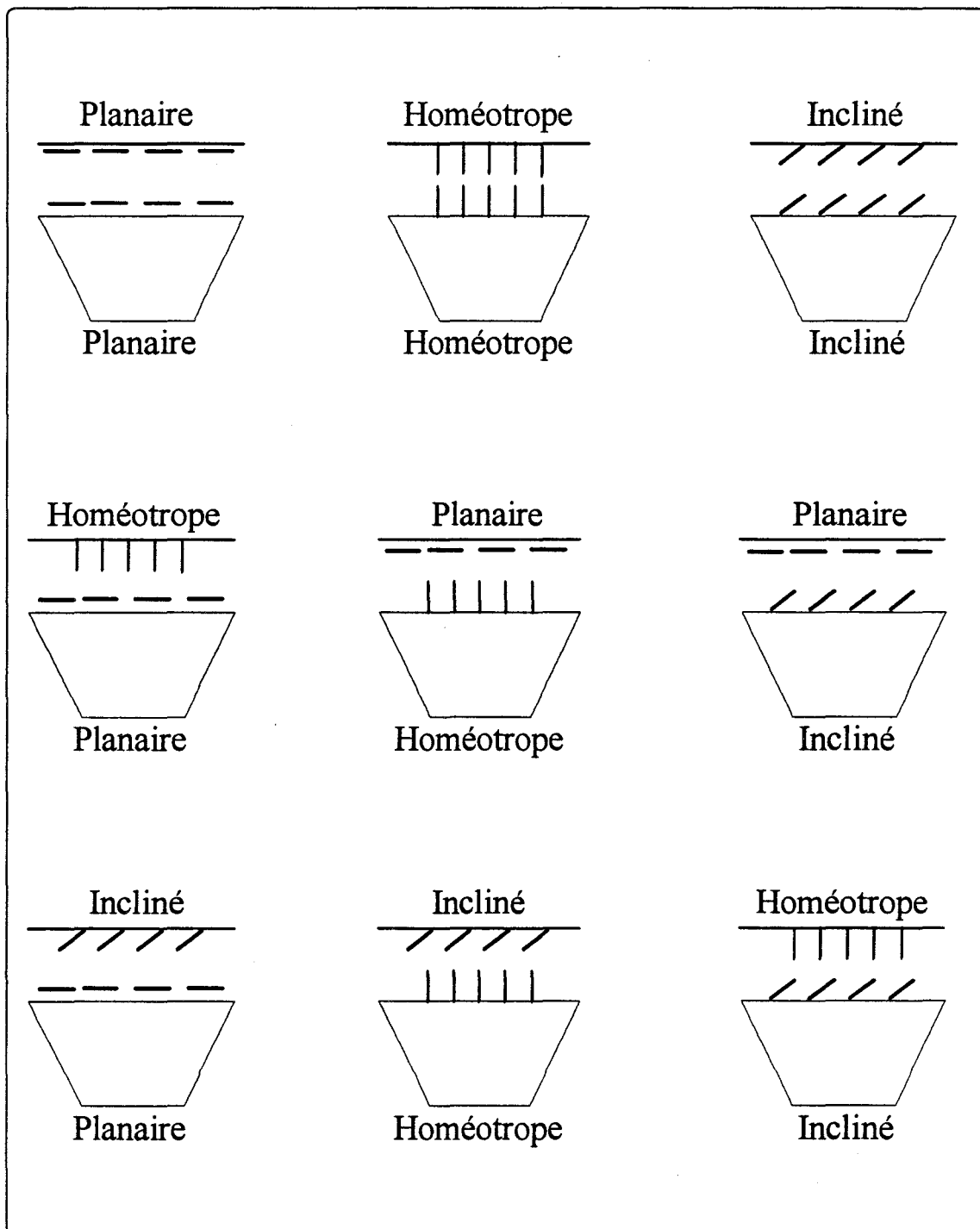
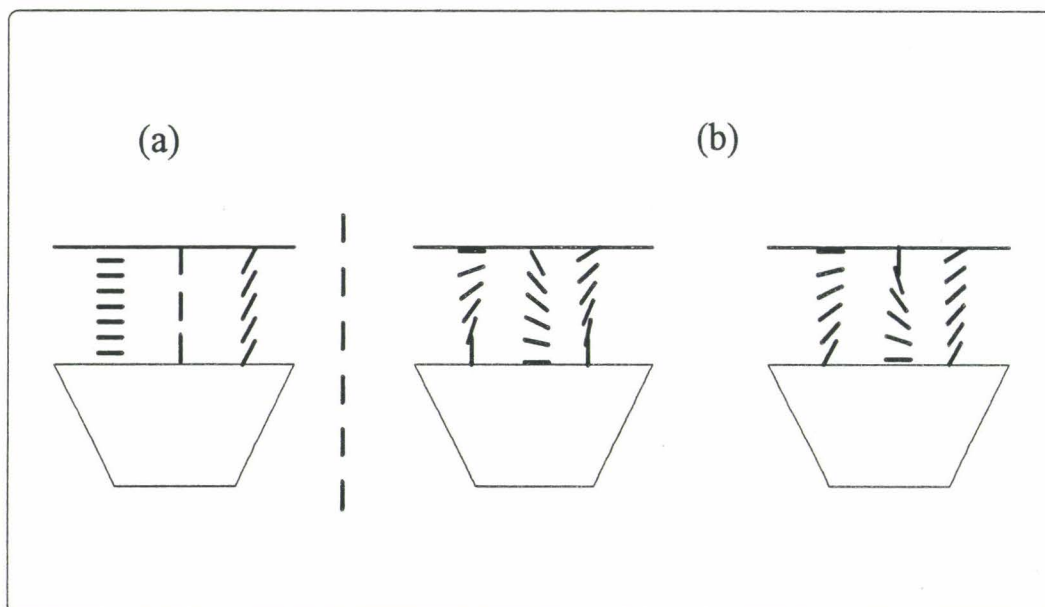


Figure 4 : Différentes fabrications possibles pour un film nématique

Les différents cas de figure représentés sur la figure 5 correspondent à des situations pour lesquelles on suppose que les molécules ne sortent pas du plan perpendiculaire au substrat, hypothèse que nous conservons tout au long de cette étude, tout en sachant qu'il en existe d'autres.



*Figure 5 : Distributions du directeur qui résultent de la compétition entre les deux substrats limitant le cristal liquide.*

*(a) films homogènes.*

*(b) films hétérogènes.*

Lorsque les deux interfaces sont traitées de la même manière, la structure du film est homogène alors que lorsque les deux traitements sont différents, on peut obtenir soit une structure homogène, soit une structure hétérogène selon que l'épaisseur du film est respectivement inférieure ou supérieure à une épaisseur dite critique [32, 33], dont la valeur dépend des énergies d'ancrage aux deux interfaces et des constantes élastiques du cristal liquide.

La distribution du directeur dans les films hétérogènes est déterminée par la compétition entre les deux contraintes différentes exercées par les interfaces sur le volume. La connaissance de cette distribution en dehors de tout modèle théorique, sera donc un apport précieux pour étudier cette compétition.

Dans la partie 1, nous présentons la technique expérimentale que nous avons choisie pour faire cette étude et nous décrivons la routine d'exploitation des résultats qui donne accès aux phénomènes qui nous intéressent. La partie 2 est consacrée à la discussion des résultats expérimentaux et la partie 3, à la comparaison de ceux-ci avec les modèles de la théoriques.



# **PARTIE 1 :**

**STRUCTURE D'UN FILM EN FONCTION**

**DES CONDITIONS LIMITES**





# INTRODUCTION

Pour étudier la distribution spatiale du directeur dans un film de cristal liquide, nous avons choisi une technique de réflexion totale interne atténuée. En nous plaçant dans des conditions géométriques telles que nous puissions obtenir cette réflexion totale soit à l'interface prisme - Nématique, soit à l'intérieur même du Nématique, nous pouvons mesurer localement les indices de réfraction du matériau et en déduire les inclinaisons du directeur à la fois en surface et dans le volume.

Nous avons vu dans le chapitre préliminaire que plusieurs paramètres interviennent dans l'orientation d'un film nématique et on peut citer, entre autres, les énergies d'ancrage, l'épaisseur du film et la température. Les énergies d'ancrage sont difficiles à reproduire d'un échantillon à l'autre et pour garantir le contrôle de ce paramètre, nous avons mis au point une cellule à épaisseur variable : nous pouvons ainsi faire des mesures à des épaisseurs différentes avec une énergie d'ancrage qui reste sensiblement constante.

Dans ce chapitre, nous commençons par rappeler le principe de la réflexion totale puis nous décrivons le dispositif expérimental, qui nous donne la courbe de l'intensité réfléchie par le film en fonction de l'angle d'incidence du faisceau à l'interface verre - Nématique. Ensuite, nous expliquons comment nous dépouillons ces courbes pour remonter à la distribution du directeur nématique en surface et dans le volume.



# **CHAPITRE 1 :**

**OUTIL POUR METTRE EN EVIDENCE**

**LA STRUCTURE D'UN FILM**



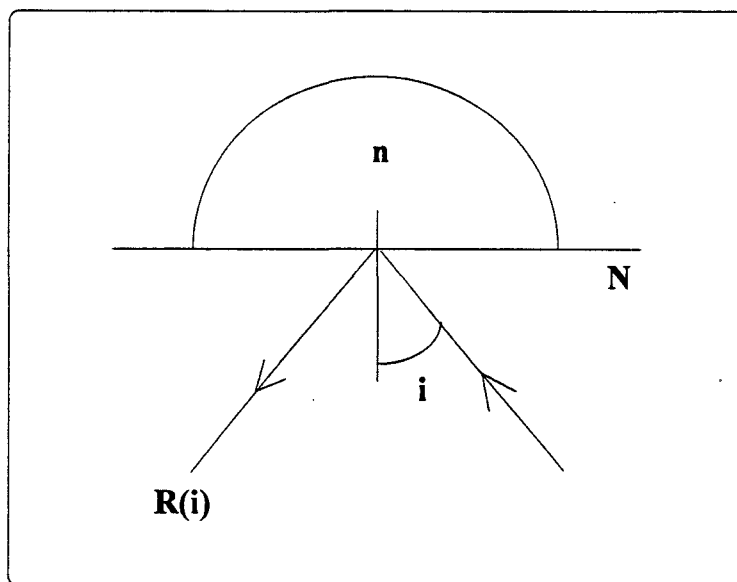
## INTRODUCTION

La technique de réflexion totale a été utilisée sur des cristaux liquides pour la première fois en 1934 par Frederickz et collaborateurs [34]. Elle a connu un renouveau avec la construction d'un certain nombre d'appareillages optiques, par exemple les déviateurs de faisceau [35,36] ou les guides d'onde optique [37-40]. En 1978, Rivière et al [41,42] utilisent cette méthode pour mesurer les indices de réfraction d'un cristal liquide, avec une précision de  $10^{-3}$  et ont montré qu'il était même possible de déterminer les angles d'inclinaison en surface des cristaux liquides. Ceci conduit directement à l'étude des interactions entre un cristal liquide et son substrat et à la détermination des énergies d'ancrage [43,44]. L'étude de Naemura [45] sous champ a permis de donner une évaluation des coefficients d'énergies d'ancrage, pour différents substrats et surfactants.



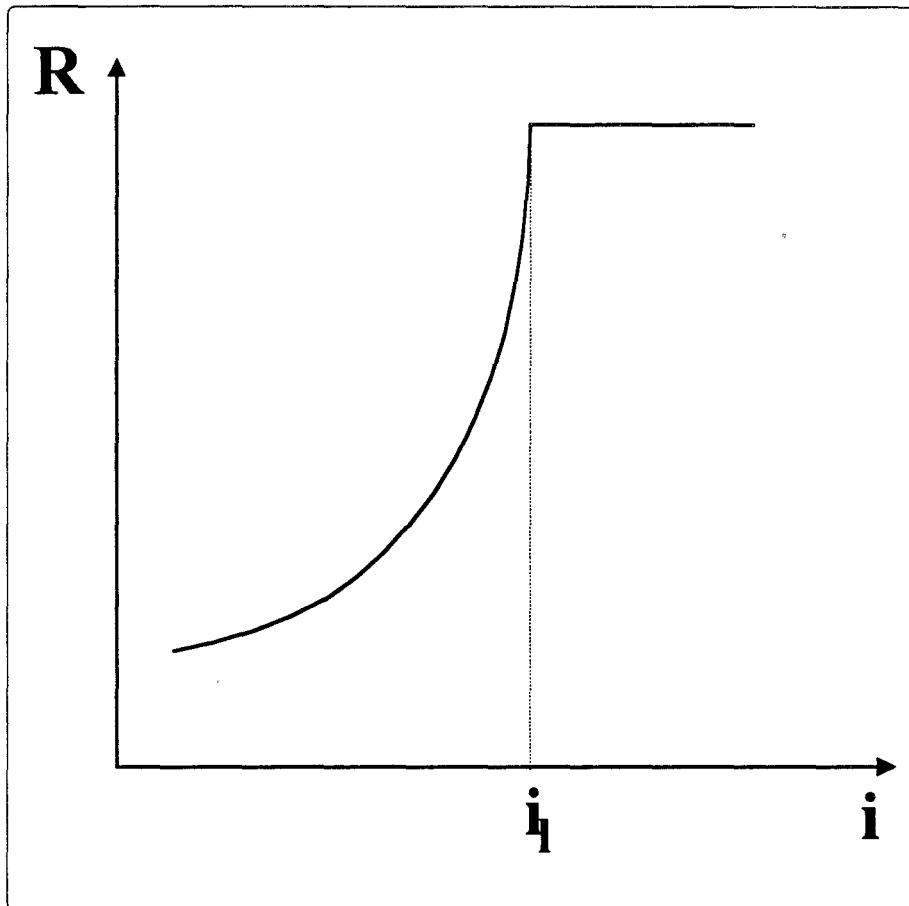
## I - 1 - PRINCIPE DE LA REFLEXION TOTALE .

Nous utilisons un montage dont le principe de base est celui d'un réfractomètre d'Abbe ou de Pulfrich (Figure 6).



*Figure 6 : Principe d'un réfractomètre d'Abbe ou de Pulfrich.*

Nous enregistrons la courbe de l'intensité réfléchie  $R(i)$  en fonction de l'angle d'incidence du faisceau de sonde. Typiquement, la courbe obtenue devrait avoir l'allure présentée sur la Figure 7, si on pouvait considérer les milieux comme semi-infinis.



*Figure 7 : Allure caractéristique d'une courbe de réflectivité (coefficients de Fresnel).*

En notant  $i_\ell$  l'angle d'incidence qui correspond à la brusque diminution des coefficients de réflexion [46,47] à la limite de la réflexion totale et  $n$  l'indice de l'échantillon étudié, la loi de Snell-Descartes [46,47] devient :

$$N \sin i_\ell = n \quad (2)$$

De la mesure de  $i_\ell$  sur la courbe, nous déduisons ainsi la valeur de l'indice du matériau étudié  $n$ , connaissant l'indice  $N$  du milieu dense.



Lorsque le milieu est biréfringent, il faut préciser la signification de cet indice. Nous devons considérer d'une part, la réflexion totale de l'énergie (et non de la phase) et d'autre part, les directions respectives de l'axe optique, des polarisations et de la propagation. On distingue l'onde ordinaire (polarisation TE, transverse électrique, Figure 8.a) et l'onde extraordinaire (polarisation TM, transverse magnétique, Figure 8.b).

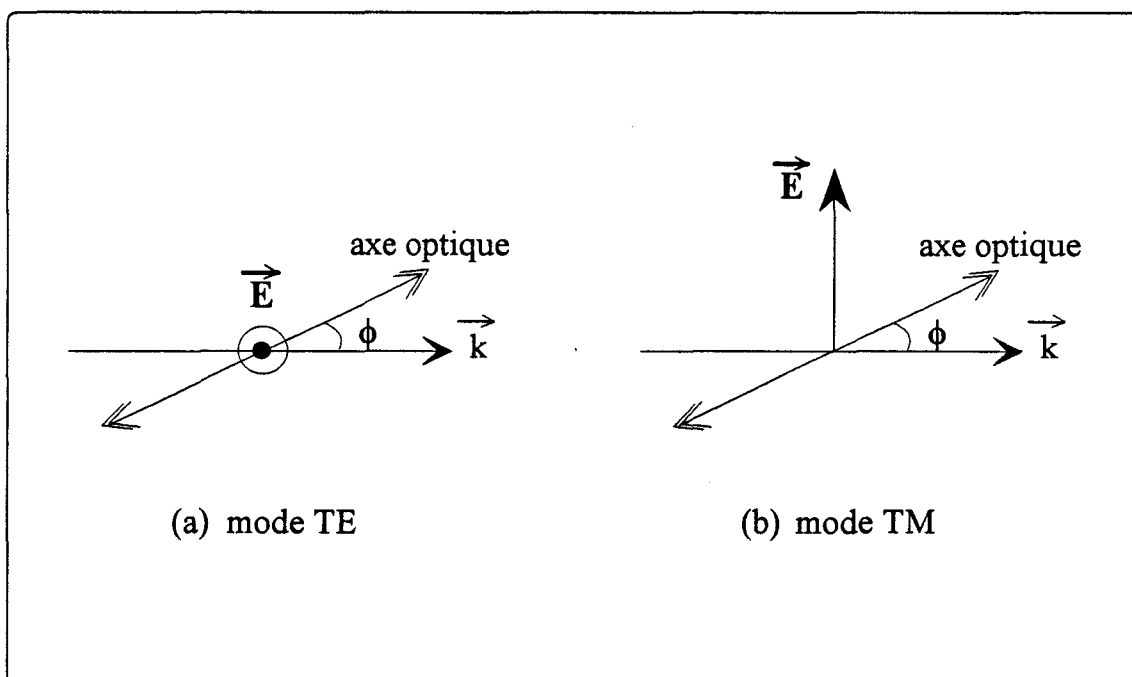


Figure 8 : Définition des ondes ordinaire et extraordinaire :

- (a) onde ordinaire : le champ  $\vec{E}$  de l'onde est normal au plan formé par la direction de propagation  $\vec{k}$  et l'axe optique.
- (b) onde extraordinaire : le champ  $\vec{E}$  est parallèle à ce plan.

Les indices de réfraction du cristal liquide sont donc liés à la direction de l'axe optique par rapport au plan d'incidence et à la direction de propagation du faisceau. Dans le cas où l'axe optique est situé dans le plan d'incidence et fait un angle  $\theta$  avec la

normale au dioptre, pour une onde polarisée transverse magnétique TM, la condition de réflexion totale de l'énergie donne alors :

$$N \sin i_{\ell} = \sqrt{n_e^2 \cos^2 \theta + n_o^2 \sin^2 \theta} \quad (3)$$

où  $n_e$  et  $n_o$  sont les indices principaux du matériau étudié, alors que pour la polarisation transverse électrique TE, cette relation est simplement :

$$N \sin i_{\ell} = n_o \quad (4)$$

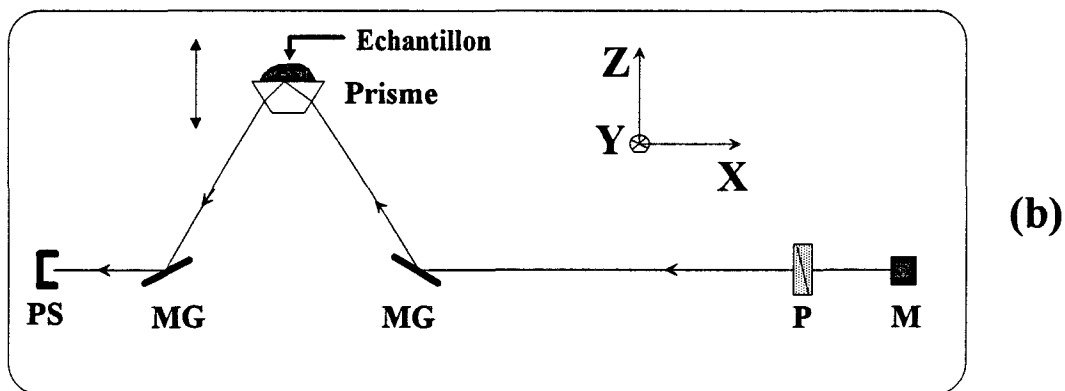
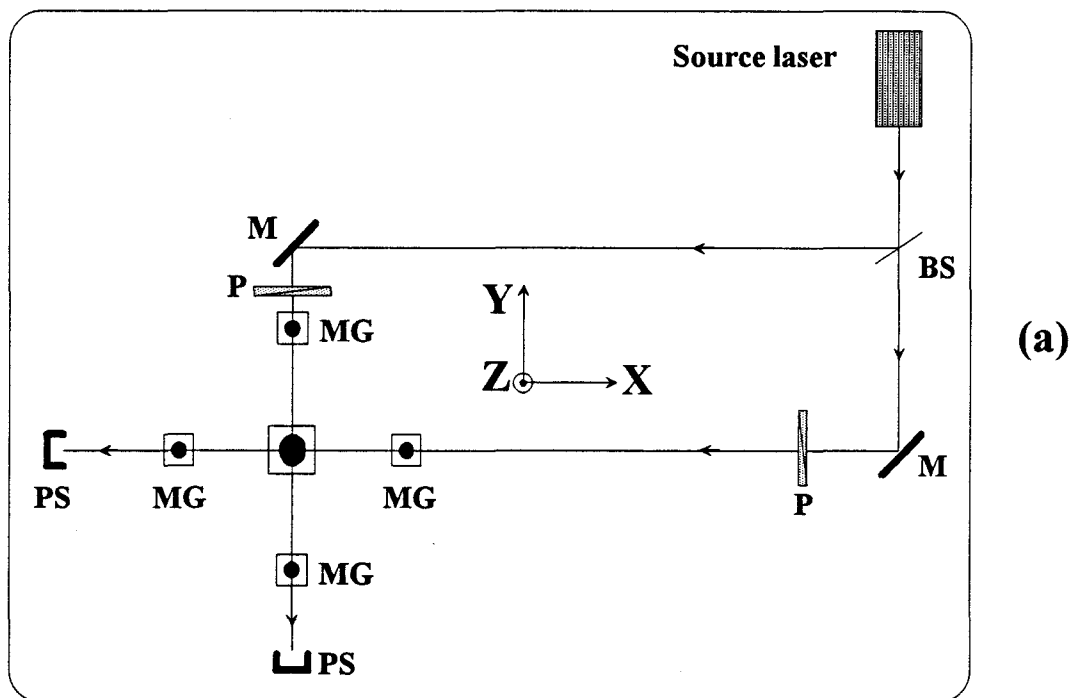
## **I - 2 - MONTAGE PROPOSE.**

### **I - 2 - a - Description du réfractomètre du Laboratoire.**

Le montage est constitué de deux réfractomètres classiques disposés orthogonalement de façon à analyser le matériau dans deux directions (x et y comme l'indique la figure 9). Pour chacune de ces directions pour le faisceau de sonde, nous pouvons utiliser deux polarisations, parallèle (TM) et perpendiculaire (TE) au plan d'incidence, en plaçant des polariseurs sur le trajet optique. De cette façon, il nous est possible d'obtenir quatre courbes de réflectivités différentes :

$$R_{x\perp} = f(i), R_{x//} = f(i), R_{y\perp} = f(i) \text{ et } R_{y//} = f(i)$$

et donc d'analyser ce qui se passe dans chacun des plans d'incidence, en ce qui concerne l'orientation du directeur.



BS : lame séparatrice	P : Polariseur
PS : Capteur Photosensible	M : Miroir fixe
MG : Miroir placé sur une rotation	

Figure 9 : Description du réfractomètre : "Pulfrich à double bras".

(a) Vue de dessus et (b) Vue de face.

Le montage est présenté sur la Figure 9 et se compose :

- d'une source lumineuse utilisée comme faisceau de sonde. Nous disposons de deux sources : un laser hélium-néon (He-Ne) et un laser à argon ionisé ( $Ar^+$ ), ce qui permet de travailler avec des longueurs d'onde différentes et pour plusieurs puissances.

- de miroirs (MG, Fig. 9) montés sur des berceaux goniométriques motorisés dont la résolution est au millième de degré.

- d'un porte-échantillon, que nous détaillerons dans un prochain paragraphe, muni d'une translation verticale motorisée dont le déplacement maximum est de 15 cm et la résolution d'un dixième de micron.

- de photodétecteurs (PS, Fig. 9) reliés à un radiomètre permettant de mesurer l'intensité réfléchie. L'intensité  $I_0$  du faisceau incident peut également être enregistrée.

Les différents moteurs sont reliés à un ordinateur. Le faisceau incident est dévié par le premier miroir et se réfléchit sur la face supérieure du prisme. Il est ensuite réfléchi par le deuxième miroir vers le capteur photosensible. A chaque mouvement des miroirs, le porte-échantillon est translaté verticalement afin que le faisceau analyse toujours le même endroit sur l'interface prisme-échantillon. Les courbes de réflectivité sont alors obtenues en faisant varier l'angle d'incidence sur la face supérieure du prisme par rotation des berceaux goniométriques et en enregistrant l'intensité lue par les photodétecteurs pour chaque valeur de l'angle d'incidence.

## I - 2 - b - Description du porte-échantillon.

Le cahier des charges de ce porte-échantillon est le suivant :

- pouvoir régler facilement le parallélisme de la face supérieure du prisme par rapport à notre plan de référence qui est ici défini par le banc de mesure (plan xy, Fig. 9).
- pouvoir changer l'épaisseur entre la lame et le prisme tout en maintenant le parallélisme précédent.
- pouvoir régler le parallélisme entre la lame et le prisme de manière à ce que l'épaisseur de la surface illuminée par le faisceau de sonde soit bien constante.

Ces différents points ont été satisfaits à l'aide de diverses butées microcontrôles et translations. En particulier, le réglage du parallélisme et de l'épaisseur du film nématique est réalisé grâce à des butées piézoélectriques. Notre choix s'est porté sur trois butées Tropel, constituées d'un cristal piézoélectrique en série avec un micro-déplacement standard. Les mouvements mécaniques sont directement lus sur un vernier. Le mouvement électronique peut être déduit des courbes de calibration données par le constructeur. Chaque butée supporte une tension allant jusque 1000 volts, qui correspondent à un déplacement de  $4 \mu\text{m}$ , au-delà le cristal piézoélectrique devient extrêmement non-linéaire. La résolution mécanique des butées est de 0.0001 pouce, soit  $2.54 \mu\text{m}$ . La résolution électronique est de  $40 \text{ \AA/V}$ . Les trois butées sont situées sur un triangle équilatéral, de telle sorte que deux des butées correspondent à la direction x et une seule à la direction y (Fig. 9).

Ce système, qui nous permet de régler finement l'épaisseur de l'échantillon, a été testé et on trouvera les résultats correspondant en Annexe .



# **CHAPITRE 2 :**

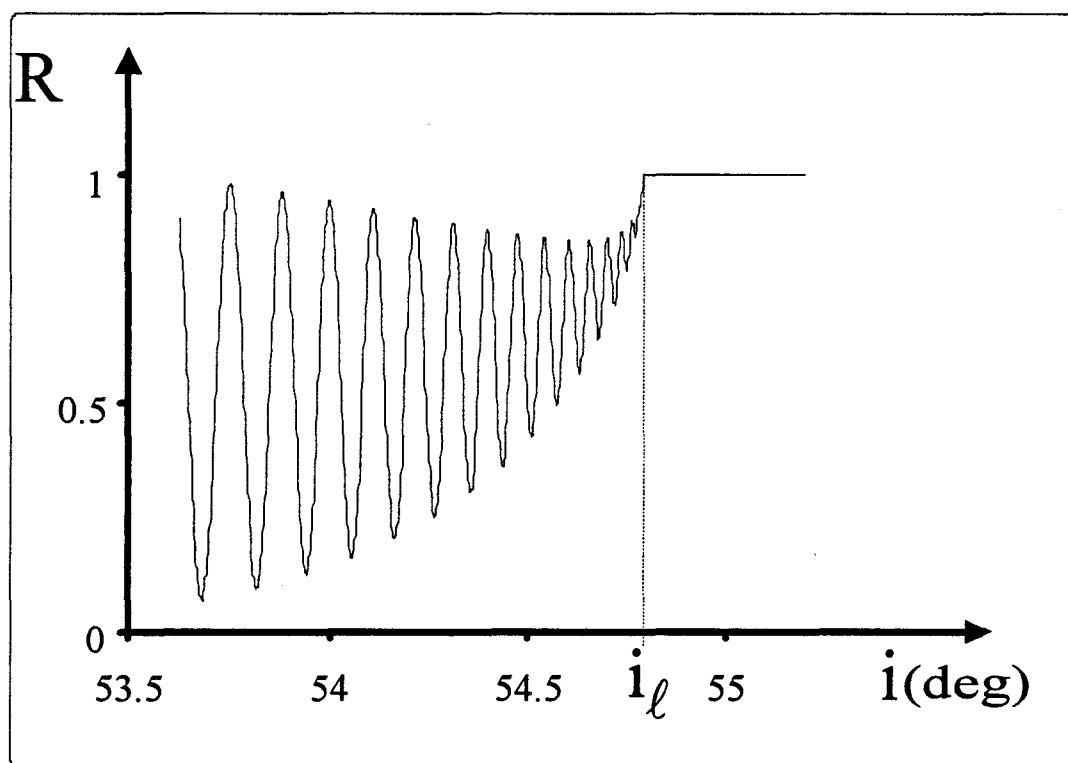
## **ANALYSE DES COURBES DE REFLECTIVITE**





## INTRODUCTION

Les courbes de réflectivité obtenues lorsque le film a une épaisseur bien constante sur la surface illuminée par le faisceau de sonde sont typiquement semblables à celle représentée sur la figure 10.



*Figure 10 : Allure des courbes de réflectivité expérimentales.*

Nous distinguons deux régimes : celui de la réflexion totale et celui de la transmission. En plus du point angulaire correspondant à la limite de la réflexion totale ( $i_l$ , Fig. 10), nous observons des franges provenant de l'interférence entre l'onde réfléchie par l'interface prisme-échantillon et l'onde réfléchie soit par l'interface supérieure limitant le film, soit à l'intérieur de l'échantillon. Ces interférences contiennent donc des informations liées à la structure interne de l'échantillon. Nous examinons tout d'abord les informations obtenues avec le point angulaire puis celles obtenues avec la figure d'interférences.



## II - 1 - LE POINT ANGULEUX (REFLEXION TOTALE).

Comme annoncé dans le paragraphe I-1, la mesure de l'abscisse du point anguleux, nous conduit à la valeur d'un indice qui dépend de la géométrie de l'échantillon. Rappelons que nous imposons au directeur de ne pas sortir du plan d'incidence. Les différents cas de figure sont résumés dans le tableau 1 (les valeurs d'indices sont déduites des expressions (3) et(4) du I-1).

orientation du directeur à l'interface ↓	Axe optique dans le plan (xz)		Axe optique dans le plan (yz)	
	TM	TE	TM	TE
homéotrope	$R_{x//} = f(i) : n_e$	$R_{x\perp} = f(i) : n_o$	$R_{x//} = f(i) : n_e$	$R_{x\perp} = f(i) : n_o$
planaire	$R_{x//} = f(i) : n_o$	$R_{x\perp} = f(i) : n_o$	$R_{x//} = f(i) : n_o$	$R_{x\perp} = f(i) : n_e$
incliné	$R_{x//} = f(i) : n$	$R_{x\perp} = f(i) : n_o$	$R_{x//} = f(i) : \square$	$R_{x\perp} = f(i) : \square$
homéotrope	$R_{y//} = f(i) : n_e$	$R_{y\perp} = f(i) : n_o$	$R_{y//} = f(i) : n_e$	$R_{y\perp} = f(i) : n_o$
planaire	$R_{y//} = f(i) : n_o$	$R_{y\perp} = f(i) : n_e$	$R_{y//} = f(i) : n_o$	$R_{y\perp} = f(i) : n_o$
incliné	$R_{y//} = f(i) : \square$	$R_{y\perp} = f(i) : \square$	$R_{y//} = f(i) : n$	$R_{y\perp} = f(i) : n_o$

*Tableau 1 : Indices mesurés dans le cas d'un milieu uniaxe suivant la géométrie du directeur en surface, lorsque celui-ci est astreint à rester soit dans le plan d'incidence (xz), soit dans le plan (yz). Les cases blanches indiquent le cas où l'onde ne se propage plus suivant une ligne neutre dans le milieu anisotrope : la mesure des indices n'est plus possible. Dans le cas où le directeur est incliné à l'interface, il est possible connaissant les indices principaux  $n_e$  et  $n_o$ , de trouver l'angle de tilt  $\theta$  en utilisant l'expression (3).*

## II - 2 - LES OSCILLATIONS EN REGIME TRANSMISSION.

Le phénomène d'interférences obtenu avec une lame à faces parallèles a été observé pour la première fois par Herschel en 1809. En 1849, Haidinger explique que ce sont des franges d'égale épaisseur. Ce phénomène d'interférence est devenu la base de plusieurs méthodes et systèmes optiques, comme l'interféromètre de Perot-Fabry et les cavités lasers. Cependant, peu de personnes se sont intéressées au comportement de ces franges près de l'angle limite de la réflexion totale.

Quelle que soit l'origine des interférences, l'exploitation du système de franges passe par le calcul du déphasage entre les faisceaux qui interfèrent. Même si dans certains cas nous observons un phénomène d'interférences à ondes multiples, seule la position des minimums nous importe et le calcul du déphasage est celui d'un phénomène à deux ondes. Dans l'approximation de l'optique géométrique, et compte tenu du fait que la nature des réflexions est identique, ce déphasage ou plus exactement l'ordre d'interférence est donné par [48] :

$$\frac{\Phi}{2\pi} = \frac{1}{\lambda} \left[ \int_0^e n \cdot \cos r \, dz + \int_e^0 n' \cdot \cos r' \, dz \right] \quad (5)$$

Chacune des deux intégrales représente respectivement le "chemin aller" du faisceau et le "chemin retour" ;  $n$ ,  $n'$  et  $r$ ,  $r'$  sont les indices et angles de réfraction locaux. La borne  $e$  de ces intégrales dépend de la nature du film. Lorsque celui-ci est homogène, les deux faisceaux qui interfèrent sont ceux réfléchis par la face supérieure du prisme et la lame de verre :  $e$  représente alors l'épaisseur totale du film  $d$  (Figure 11 ).

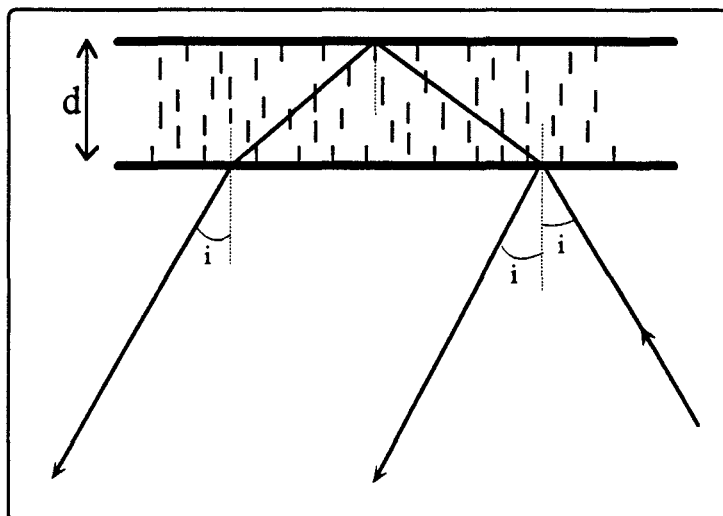


Figure 11 : Représentation des faisceaux qui interfèrent pour un film homogène.

Par contre, lorsque le cristal liquide est déformé, le film est hétérogène et il faut distinguer deux cas :

- le gradient d'indice est négatif, nous pouvons avoir réflexion totale à l'intérieur même de l'échantillon. L'intégrale ne doit alors se calculer que jusqu'à l'épaisseur correspondante  $z_{IV}$  et non plus sur l'épaisseur totale du film (Figure 12).
- le gradient d'indice est positif, il ne peut plus y avoir de réflexion totale à l'intérieur de l'échantillon. Dans ce cas, comme dans le cas d'un film homogène, les deux faisceaux qui interfèrent sont ceux réfléchis par la face supérieure du prisme et par la lame. Le calcul d'intégrale se fait donc sur l'épaisseur totale  $d$  du film (Figure 13).

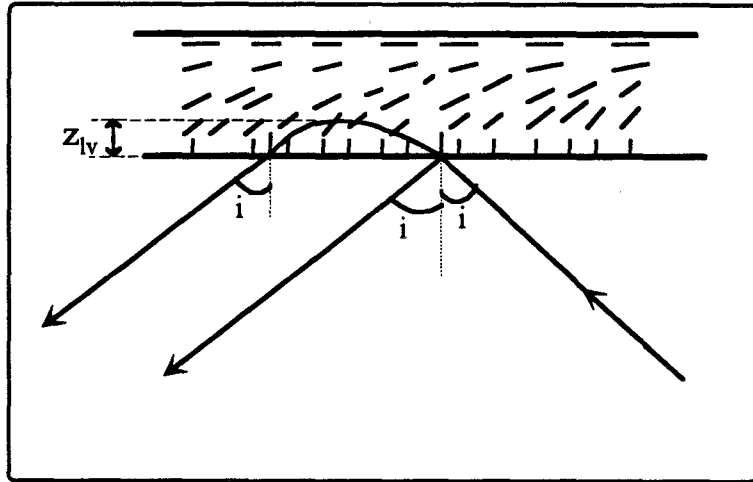


Figure 12 : Représentation des faisceaux qui interfèrent pour un film hétérogène à variation d'indice décroissante.

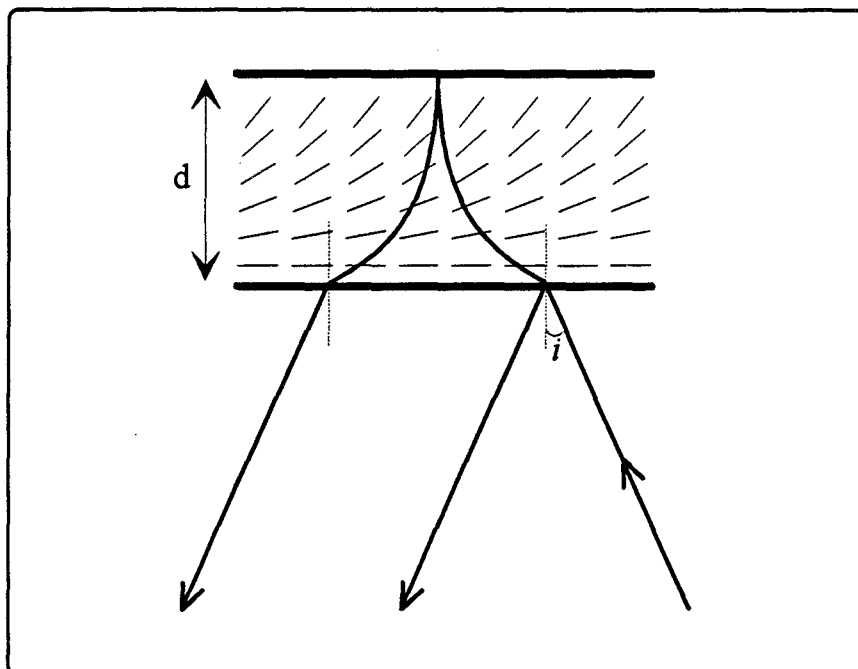


Figure 13 : Représentation des faisceaux qui interfèrent pour un film hétérogène à variation d'indice croissante.

En plus de cette distinction des bornes, pour exprimer l'intégrand il faut également tenir compte de la polarisation, autrement dit celle d'une onde ordinaire et celle d'une

onde extraordinaire. Rappelons que dans les calculs qui suivront, nous considérons que l'axe optique reste toujours dans le plan d'incidence, le faisceau incident attaque ainsi le milieu anisotrope suivant une ligne neutre. De plus, pour faciliter l'exploitation ultérieure, nous exprimerons, comme Eidner [49,50], le déphasage en fonction d'une variable  $X$  qui sera définie juste au dessous.

### II - 3 - CALCUL DU DEPHASAGE POUR UNE ONDE ORDINAIRE.

L'onde ordinaire correspond au mode de propagation transverse électrique (TE). Quelle que soit la géométrie de l'échantillon, homogène ou hétérogène, l'indice de réfraction mesuré est toujours l'indice ordinaire  $n_o$  : le milieu est "vu" par le faisceau comme un milieu homogène d'indice constant et donc de direction de propagation constante ( $r$  est alors indépendant de  $z$ ). La borne supérieure de l'intégrale est donc l'épaisseur totale du film  $d$ . L'expression du déphasage est alors :

$$\frac{\Phi}{2\pi} = \frac{2d}{\lambda} n_o \cos r \quad (6)$$

Introduisons maintenant les notations d'Eidner :

$$\begin{aligned} g^2(\theta) &= n_e^2 \cos^2 \theta(z) + n_o^2 \sin^2 \theta(z) \\ k^2 &= N^2 \sin^2 i \\ X &= \sqrt{N^2 \sin^2 i_e - N^2 \sin^2 i} \end{aligned} \quad (7)$$

$i$  étant l'angle d'incidence du faisceau à l'interface prisme-échantillon et la variable  $X$  est une variable connectée à l'abscisse angulaire.

Exprimons  $n_o \cos r$  :

$$n_o \cos r = n_o \sqrt{1 - \sin^2 r} \quad (8)$$

en utilisant la loi de Descartes :

$$N \sin i = n_o \sin r \quad (9)$$

nous obtenons :

$$n_o \cos r = \sqrt{n_o^2 - n_o^2 \sin^2 r} = \sqrt{N^2 \sin^2 i_\ell - N^2 \sin^2 i} = X \quad (10)$$

Le déphasage devient alors :

$$\frac{\Phi}{2\pi} = \frac{2d}{\lambda} X \quad (11)$$

Cette expression est valable quelle que soit la nature du film, pourvu que le directeur ne sorte pas du plan d'incidence.

## II - 4 - CALCUL DU DEPHASAGE POUR UNE ONDE EXTRAORDINAIRE.

L'onde extraordinaire correspond au mode de propagation transverse TM. Nous avons déjà vu que si l'axe optique du cristal liquide est incliné d'un angle  $\theta$  par rapport à la normale au dioptre ( i.e la direction z), l'indice local n dépend des indices principaux ordinaire et extraordinaire, de l'angle  $\theta$  et de l'angle de réfraction r, tous deux pris par rapport à l'axe z :

$$n = n_e n_o / \sqrt{n_e^2 \cos^2(\theta - r) + n_o^2 \sin^2(\theta - r)} \quad (12)$$



En tenant compte de la relation de Descartes, nous obtenons pour  $n(\theta, r) \cos r$  une équation du second ordre à résoudre :

$$g^2(\theta) \cdot n^2 \cos^2(r) - \left[ (n_e^2 - n_o^2) \cdot \sin(2\theta) \cdot N \sin(i) \right] \cdot n \cos(r) + \left[ (n_e^2 + n_o^2) - g^2(\theta) \right] \cdot N^2 \sin^2(i) - n_e^2 n_o^2 = 0 \quad (13)$$

dont les solutions sont :

$$n(r, \theta) \cos r = \frac{(n_e^2 - n_o^2) k \sin(\theta) \cos(\theta) \pm n_e n_o \sqrt{g^2(\theta) - k^2}}{g^2(\theta)} \quad (14)$$

où nous rappelons que :

$$\begin{aligned} g^2(\theta) &= n_e^2 \cos^2 \theta(z) + n_o^2 \sin^2 \theta(z) \\ k^2 &= N^2 \sin^2 i \end{aligned} \quad (15)$$

Le signe + correspond à une propagation du faisceau réfracté vers les z positifs et le signe - à une propagation vers les z négatifs. Nous retenons la première solution, soit :

$$n(r, \theta) \cos r = \frac{(n_e^2 - n_o^2) k \sin(\theta) \cos(\theta) + n_e n_o \sqrt{g^2(\theta) - k^2}}{g^2(\theta)} \quad (16)$$

L'expression de  $n' \cos r'$  s'obtient en remplaçant  $\theta$  par  $-\theta$  dans l'expression ci-dessus. Donc, l'expression finale du déphasage est :

$$\frac{\Phi}{2\pi} = \frac{2n_e n_o}{\lambda} \int_0^e \frac{\sqrt{g^2(\theta) - k^2}}{g^2(\theta)} dz \quad (17)$$

Nous pouvons réécrire cette intégrale en fonction de la variable X déjà introduite.

Il vient :

$$\frac{\Phi}{2\pi} = \frac{2n_e n_o}{\lambda} \int_0^e \frac{\sqrt{g^2(\theta) - g^2(\theta_1) + X^2}}{g^2(\theta)} dz \quad (18)$$

expression dans laquelle l'angle  $\theta_1$  est l'angle d'inclinaison à l'interface prisme-échantillon. Dans la géométrie pour laquelle il peut y avoir réflexion totale à l'intérieur du Nématique, la borne e dépend de la variable X.

Pour la suite, il est plus confortable de passer en variable angulaire. Le déphasage est alors :

$$\frac{\Phi}{2\pi} = \frac{2n_e n_o}{\lambda} \int_{\theta_1}^{\theta'} \frac{\sqrt{g^2(\theta) - g^2(\theta_1) + X^2}}{g^2(\theta)} \frac{dz}{d\theta} d\theta \quad (19)$$

La borne  $\theta'$  est alors soit l'angle d'inclinaison  $\theta_2$  sur la deuxième interface, soit  $\theta_X$  s'il y a réflexion totale à l'intérieur du Nématique avec  $\theta_X$  tel que :

$$g^2(\theta_X) = g^2(\theta_1) - X^2 \quad (20)$$

Expérimentalement, la gamme d'angles d'incidence balayée est telle que X reste petit devant 1. Il est alors intéressant d'étudier le comportement du déphasage aux alentours de l'origine des X, autrement dit d'utiliser un développement de Mac-Laurin pour le déphasage :

$$\phi(X) = \phi(0) + \left( \frac{d\phi}{dX} \right)_{X=0} \cdot X + \frac{1}{2} \left( \frac{d^2\phi}{dX^2} \right)_{X=0} \cdot X^2 + \dots \quad (21)$$

où nous posons :  $\phi = \frac{\Phi}{2\pi}$

La valeur de chacune des contributions  $\phi(0)$ ,  $\left(\frac{d\phi}{dX}\right)_{X=0}$ ,  $\left(\frac{d^2\phi}{dX^2}\right)_{X=0}$

sera différente selon qu'il y a ou non réflexion totale à l'intérieur du Nématique.

Ce qui nous amène à distinguer les différentes géométries possibles, c'est à dire les films homogènes, hétérogènes à gradient d'indice positif et hétérogène à gradient d'indice négatif.

#### II - 4 - a - Cas d'un film homogène.

L'orientation du directeur est identique dans tout le film :  $\theta$  est donc indépendant de  $z$ . Les deux faisceaux qui interfèrent sont ceux réfléchis par la face supérieure du prisme et par la lame. L'intégrale concerne l'épaisseur totale  $d$  du film et il faut utiliser directement l'expression (17) qui peut être intégrée facilement :

$$\frac{\Phi}{2\pi} = \frac{2n_e n_o}{\lambda} \frac{d \sqrt{g^2(\theta) - k^2}}{g^2(\theta)} \quad (22)$$

Il est simple d'évaluer la fonction  $g^2(\theta)$  pour les différents cas possibles :

$$\text{- pour un film homéotrope : } \theta = 0 \quad g^2(0) = n_e^2 \quad \frac{\Phi}{2\pi} = \frac{2d n_o}{\lambda n_e} X \quad (23)$$

$$\text{- pour un film planaire : } \theta = \frac{\pi}{2} \quad g^2\left(\frac{\pi}{2}\right) = n_o^2 \quad \frac{\Phi}{2\pi} = \frac{2d n_e}{\lambda n_o} X \quad (24)$$

$$\text{- pour un film incliné : } \theta = \theta_0 \quad g^2(\theta_0) = n^2 \quad \frac{\Phi}{2\pi} = \frac{2d n_e n_o}{\lambda n^2} X \quad (25)$$

## II - 4 - b - Cas d'un film hétérogène.

Dans ce cas de figure, l'angle  $\theta$  dépend de  $z$  :  $\theta = f(z)$ . Cette fonction peut être soit croissante, soit décroissante. Si elle est croissante, la réflexion totale peut avoir lieu à l'intérieur même de l'échantillon. Par contre, si c'est une fonction décroissante, le faisceau traverse l'échantillon sur toute son épaisseur. Nous avons donc deux situations très différentes.

Notons également que dans tous les cas, la dérivée de  $z$  par rapport à  $\theta$ ,  $\frac{dz}{d\theta}$ , est indépendante de la variable  $X$ .

### II - 4 - b - 1 - Variation d'indice croissante.

Nous savons que dans ce cas le faisceau traverse entièrement la cellule (Fig.13) et nous devons considérer l'épaisseur totale  $d$  du film : la borne supérieure de l'intégrale  $\theta'$  ne dépend pas de  $X$  et vaut  $\theta_2$ . L'expression (19) est alors :

$$\frac{\Phi}{2\pi} = \frac{2n_e n_o}{\lambda} \int_{\theta_1}^{\theta_2} \frac{\sqrt{g^2(\theta) - g^2(\theta_1) + X^2}}{g^2(\theta)} \frac{dz}{d\theta} d\theta \quad (26)$$

où  $\theta_2$  représente l'angle d'inclinaison sur le deuxième substrat limitant le cristal liquide. Les différents coefficients du développement (21) sont successivement :

$$\phi(0) = \frac{2n_e n_o}{\lambda} \int_{\theta_1}^{\theta_2} \frac{\sqrt{g^2(\theta) - g^2(\theta_1)}}{g^2(\theta)} \frac{dz}{d\theta} d\theta \neq 0 \quad (27)$$

$$\frac{d\phi}{dX} = \frac{2n_e n_o}{\lambda} \int_{\theta_1}^{\theta_2} \frac{X [g^2(\theta) - g^2(\theta_1) + X^2]^{-1/2}}{g^2(\theta)} \frac{dz}{d\theta} d\theta \quad (28)$$

Soit en  $X=0$  :  $\left(\frac{d\phi}{dX}\right)_{X=0} = 0$ .

et le terme d'ordre 2 :

$$\begin{aligned} \frac{d^2\phi}{dX^2} &= \frac{2n_e n_o}{\lambda} \int_{\theta_1}^{\theta_2} \frac{[g^2(\theta) - g^2(\theta_1) + X^2]^{-1/2}}{g^2(\theta)} \frac{dz}{d\theta} d\theta \\ &\quad - \frac{2n_e n_o}{\lambda} \int_{\theta_1}^{\theta_2} \frac{X^2 [g^2(\theta) - g^2(\theta_1) + X^2]^{-3/2}}{g^2(\theta)} \frac{dz}{d\theta} d\theta \end{aligned} \quad (29)$$

Donc pour  $X=0$  :

$$\left(\frac{d\phi}{dX}\right)_{X=0} = \frac{2n_e n_o}{\lambda} \int_{\theta_1}^{\theta_2} \frac{[g^2(\theta) - g^2(\theta_1)]^{-1/2}}{g^2(\theta)} \frac{dz}{d\theta} d\theta \neq 0 \quad (30)$$

Finalement, le comportement du déphasage est purement parabolique aux alentours de l'origine :

$$\phi = \phi(0) + \frac{1}{2} AX^2 \quad (31)$$

#### II - 4 - b - 2 - Variation d'indice décroissante.

Cette fois, il peut y avoir réflexion totale à l'intérieur du Nématique et la borne supérieure de l'intégrale (19) dépend de  $X$ . Nous avons alors :

$$\frac{\Phi}{2\pi} = \frac{2n_e n_o}{\lambda} \int_{\theta_1}^{\theta_x} \frac{\sqrt{g^2(\theta) - g^2(\theta_1) + X^2}}{g^2(\theta)} \frac{dz}{d\theta} d\theta \quad (32)$$

où nous rappelons que  $g^2(\theta)$  vérifie les relations suivantes :

$$\begin{aligned} g^2(\theta_1) - g^2(\theta_x) &= X^2 \\ g^2(\theta) &= n_e^2 \cos^2 \theta + n_o^2 \sin^2 \theta \end{aligned} \quad (33)$$

En calculant les différents coefficients du développement (21), nous obtenons :

$$\phi(0) = \lim_{\theta_x \rightarrow \theta_1} \frac{2n_e n_o}{\lambda} \int_{\theta_1}^{\theta_x} \frac{\sqrt{g^2(\theta) - g^2(\theta_1)}}{g^2(\theta)} \frac{dz}{d\theta} d\theta = 0 \quad (34)$$

pour le terme d'ordre 1 :

$$\begin{aligned} \left( \frac{d\phi}{dX} \right) &= \frac{2n_e n_o}{\lambda} \int_{\theta_1}^{\theta_x} \frac{X [g^2(\theta) - g^2(\theta_1) + X^2]^{-1/2}}{g^2(\theta)} \frac{dz}{d\theta} d\theta \\ &+ \frac{2n_e n_o}{\lambda} \left( \frac{d\theta_x}{dX} \right) \cdot \frac{[g^2(\theta_x) - g^2(\theta_1) + X^2]^{+1/2}}{g^2(\theta_x)} \end{aligned} \quad (35)$$

Le deuxième terme étant nul, nous avons simplement :

$$\left( \frac{d\phi}{dX} \right) = \frac{2n_e n_o}{\lambda} \int_{\theta_1}^{\theta_x} \frac{X [g^2(\theta) - g^2(\theta_1) + X^2]^{-1/2}}{g^2(\theta)} \frac{dz}{d\theta} d\theta \quad (36)$$

Pour  $X = 0$ , cette expression devient indéterminée. Il en va de même pour le terme d'ordre 2 :

$$\begin{aligned}
\frac{d^2\phi}{dX^2} = & \frac{2n_e n_o}{\lambda} \int_{\theta_1}^{\theta_x} \frac{[g^2(\theta) - g^2(\theta_1) + X^2]^{-1/2}}{g^2(\theta)} \frac{dz}{d\theta} d\theta \\
& - \frac{2n_e n_o}{\lambda} \int_{\theta_1}^{\theta_x} \frac{X^2 [g^2(\theta) - g^2(\theta_1) + X^2]^{-1/2}}{g^2(\theta)} \frac{dz}{d\theta} d\theta \\
& + \frac{2n_e n_o}{\lambda} \left( \frac{d\theta_x}{dX} \right) \frac{X [g^2(\theta_x) - g^2(\theta_1) + X^2]^{-1/2}}{g^2(\theta_x)}
\end{aligned}$$

(37)

Les discontinuités qui apparaissent sont liées au fait qu'à la réflexion totale, le faisceau se propage parallèlement au dioptre et "ne revient jamais". Dans cette situation précise, il est alors illusoire de calculer un déphasage. Nous pouvons néanmoins simuler le comportement de ce déphasage à l'ordinateur : celui-ci ne connaissant en effet que les fonctions définies par morceaux, ce point de discontinuité peut être artificiellement ignoré. De plus, les mesures expérimentales sont toujours des valeurs intégrées et la discontinuité mathématique est ainsi "cachée".

## II - 5 - SIMULATION NUMERIQUE.

Pour avoir une idée de l'importance des contributions des différentes puissances de X dans le développement de  $\phi$  (relation 21 du paragraphe II-4), nous avons réalisé des simulations numériques en utilisant une méthode de trapèzes pour calculer l'intégrale et en utilisant l'évolution de  $\theta$  avec z, donnée par la théorie élastique classique [51] :

$$\frac{dz}{d\theta} = d \frac{\sqrt{1-h^2 \sin^2 \theta}}{\int_{\theta_1}^{\theta_2} \sqrt{1-h^2 \sin^2 \theta} d\theta} \quad ; \quad h^2 = 1 - \frac{K_1}{K_3} \quad (38)$$

où  $K_1$  et  $K_3$  sont les constantes élastiques du Nématique considéré [52].

Nous avons utilisé comme valeur des indices principaux  $n_e = 1.7$ ,  $n_o = 1.53$ , une épaisseur de  $50 \mu\text{m}$ , une anisotropie élastique de  $0.3$ , et pour les angles d'ancrage  $\theta_1$  et  $\theta_2$  aux deux interfaces, successivement les couples :  $(0^\circ ; 90^\circ)$ ,  $(10^\circ ; 90^\circ)$ ,  $(20^\circ ; 90^\circ)$ ,  $(30^\circ ; 90^\circ)$ ,  $(0^\circ ; 80^\circ)$ ,  $(20^\circ ; 80^\circ)$ ,  $(30^\circ ; 80^\circ)$ ,  $(30^\circ ; 50^\circ)$ .

Les courbes obtenues sont reproduites sur les figures 14 et 15. Toutes ces courbes passent par l'origine. Elles sont bien fittées par un polynôme au moins d'ordre deux, l'ordre quatre étant nécessaire lorsque la différence entre  $\theta_1$  et  $\theta_2$  est plus petite qu'environ  $60$  degrés.

La courbe pour  $\theta_1 = 30^\circ$ ,  $\theta_2 = 50^\circ$  est déformée et semble tendre vers une droite. Ceci est simplement dû au fait que le faisceau se réfléchit sur la deuxième interface ; mathématiquement, la borne supérieure de l'intégrale (32) est alors constante. Expérimentalement, nous n'avons jamais observé ce type de comportement.

Nous avons également traité les cas pour lesquels le gradient d'indice est positif. Dans ce cas, les courbes ne passent par l'origine mais des fits polynômiaux sont possibles.

## II - 6 - CONCLUSION.

En calculant la différence de phase entre les faisceaux réfléchis par la première interface (prisme) et le faisceau réfléchi par une deuxième interface, qui peut être soit la lame de verre dans le cas d'un film homogène ou hétérogène avec une variation d'indice croissante, soit une couche interne de l'échantillon dans le cas d'un film hétérogène avec une variation d'indice décroissante, nous pouvons exprimer l'ordre d'interférence  $m = \frac{\Phi}{2\pi}$  en fonction de la variable  $X$ , liée à la différence entre la position angulaire des différents minimums par rapport à la position angulaire du point anguleux, correspondant à la limite de la réflexion totale. Nous sommes arrivés aux résultats suivants :



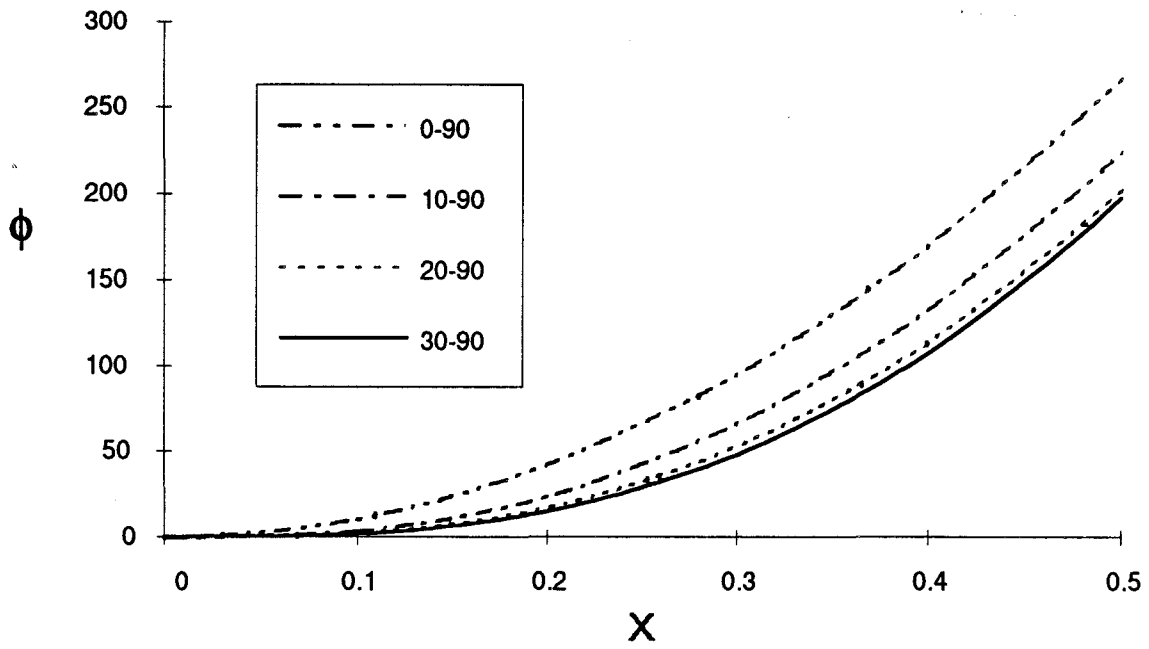


Figure 14 : Simulation numérique de  $\phi(X)$  pour  $\theta_1$  allant de 0 à 30 degrés et  $\theta_2 = 90$  degrés.

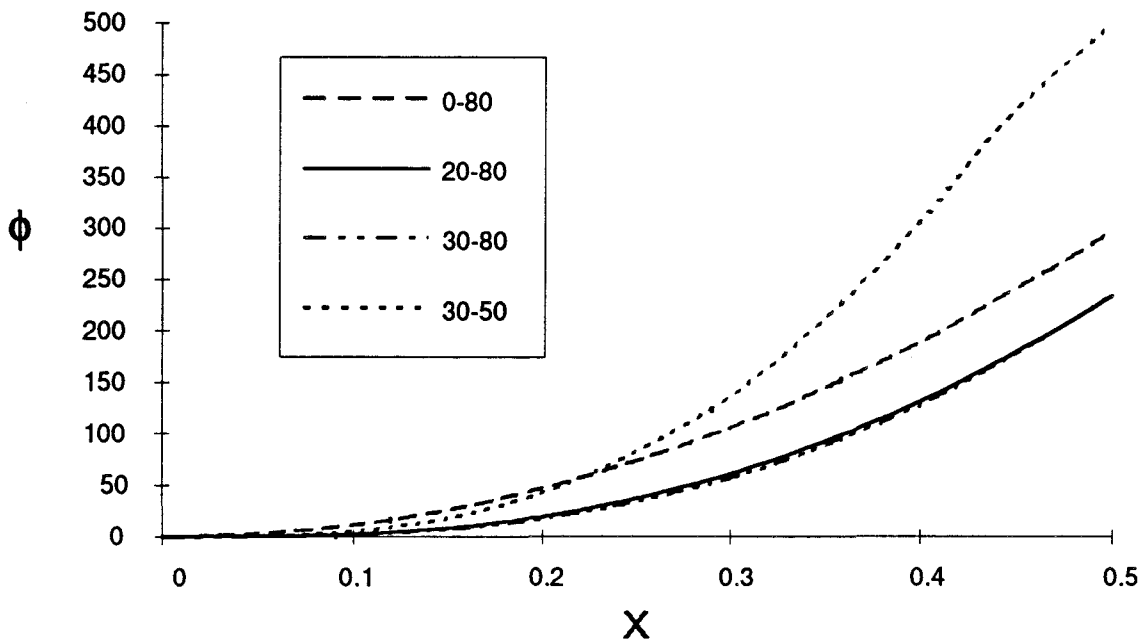


Figure 15 : Simulation numérique de  $\phi(X)$  pour  $\theta_1$  allant de 0 à 30 degrés et pour  $\theta_2$  allant de 80 à 50 degrés.

pour la polarisation TE :

- dans le cas d'un film homogène (planaire, homéotrope ou incliné), la courbe obtenue est une droite dont la pente nous permet de calculer l'épaisseur totale  $d$  du film.
- dans le cas d'un film hétérogène avec une variation d'indice croissante ou décroissante, la courbe obtenue est également une droite dont la pente permet de calculer l'épaisseur totale du film.

pour la polarisation TM :

- dans le cas d'un film homogène planaire, homéotrope ou incliné, la courbe  $\phi(X)$  a un comportement linéaire.
- dans le cas d'un film hétérogène avec une variation d'indice croissante, la courbe n'est plus linéaire et pour les petites valeurs de  $X$ , elle a un comportement parabolique et ne passe pas par l'origine.
- dans le cas d'un film hétérogène avec une variation d'indice décroissante, la courbe passe par l'origine et peut être assimilée à un développement polynômial limité à l'ordre deux.

A partir de ces différents résultats, nous avons mis en place une routine d'analyse des courbes de réflectivité, que nous exposons dans le prochain chapitre.

# **CHAPITRE 3 :**

**ROUTINE D'EXPLOITATION DES COURBES DE  
REFLECTIVITE.**



Dans ce chapitre, nous décrivons successivement comment nous traçons la courbe  $\phi(X)$  et comment nous exploitons les courbes de réflectivité pour les deux polarisations TE et TM.

### III - 1 - TRACE DE LA COURBE $\phi(X)$ .

Dans une figure d'interférences à deux ondes, les minimums d'intensité correspondent à des valeurs demi-entières de l'ordre d'interférence. Nous utilisons ce point pour construire la courbe  $\phi(X)$  à partir des données expérimentales (courbes de réflectivité). Pour chaque minimum, nous relevons son abscisse angulaire  $i_k$ , nous calculons la variable  $X_k$  associée (cf relation (7)) et nous portons en abscisse cette dernière valeur sur un graphe  $(\phi, X)$ . A cette abscisse  $X_k$ , nous faisons correspondre le demi-entier  $k+1/2$  porté en ordonnée sur le même graphe ; nous obtenons un point représentatif (A, Fig. 16) de la courbe  $\phi(X)$ . Celle-ci est alors obtenue avec autant de points qu'il y a de minimums sur la courbe expérimentale.

Nous déterminons le caractère linéaire ou non de la courbe  $\phi(X)$  en effectuant un fit polynomial par la méthode des moindres carrés, limité à l'ordre deux.

Notons, toutefois que nous n'avons pas accès à la valeur absolue de  $k$ . De même, si la position angulaire des minimums sur la courbe de réflectivité peut être mesurée avec précision, cela est moins vrai pour le point anguleux. L'ensemble des valeurs de  $X_k$  peut alors être modifié par ce seul paramètre. Nous allons mesurer l'importance de cette remarque dans les paragraphes suivants.

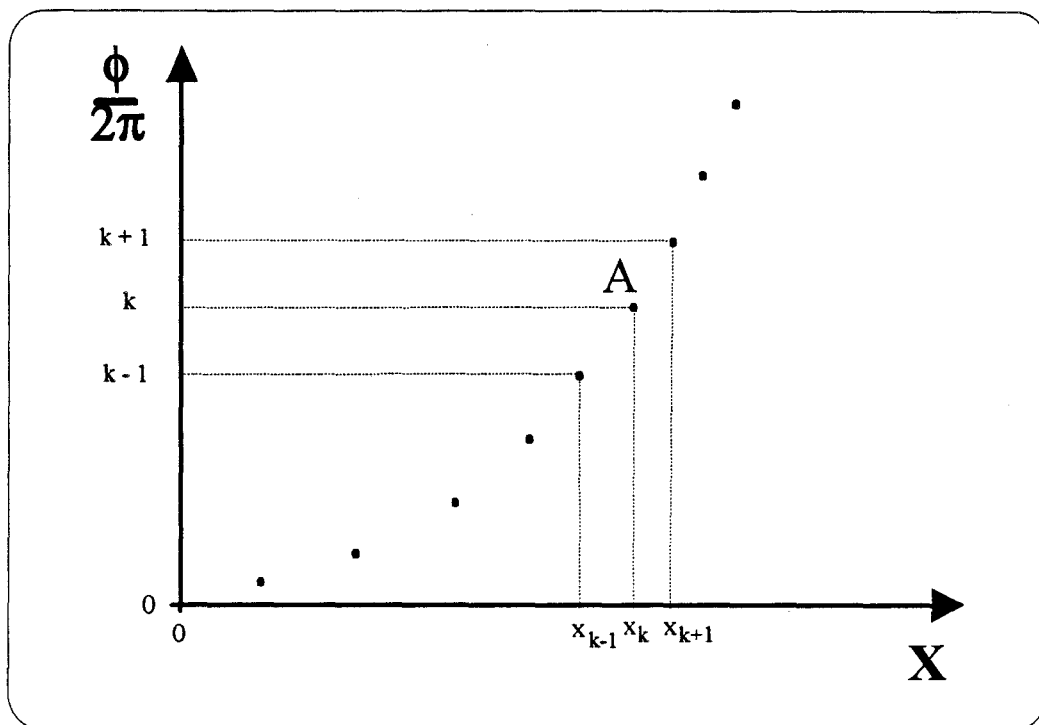


Figure 16 : Courbe de l'ordre d'interférence en fonction de la variable X.

### III - 2 - EXPLOITATION DES COURBES DE REFLECTIVITE POUR LA POLARISATION TE.

D'après les calculs précédents (II - 3), quel que soit le type d'échantillon (homogène ou non) mais avec un axe optique (directeur) dans le plan d'incidence, nous devrions obtenir une droite, dont la pente ne dépend que de la longueur d'onde et de l'épaisseur totale de l'échantillon. En outre, cette droite doit passer par l'origine.

Partant de la courbe expérimentale, nous construisons la courbe  $\phi(X)$  comme expliqué dans le paragraphe précédent. Si la courbe obtenue n'est pas une droite, cela signifie que les molécules sortent du plan d'incidence et une telle expérience n'est pas traitée.

Nous adaptons ensuite la valeur absolue de l'entier associé au premier minimum pointé ainsi que l'abscisse du point anguleux de manière à obtenir une droite  $\phi(X)$  qui passe par l'origine. La plupart du temps, nous obtenons plusieurs solutions pour la valeur de l'angle limite de la réflexion totale. En reportant ces différentes valeurs sur la courbe de réflectivité, il est en général possible de choisir la "bonne" valeur (les autres étant à des positions aberrantes, Fig. 17).

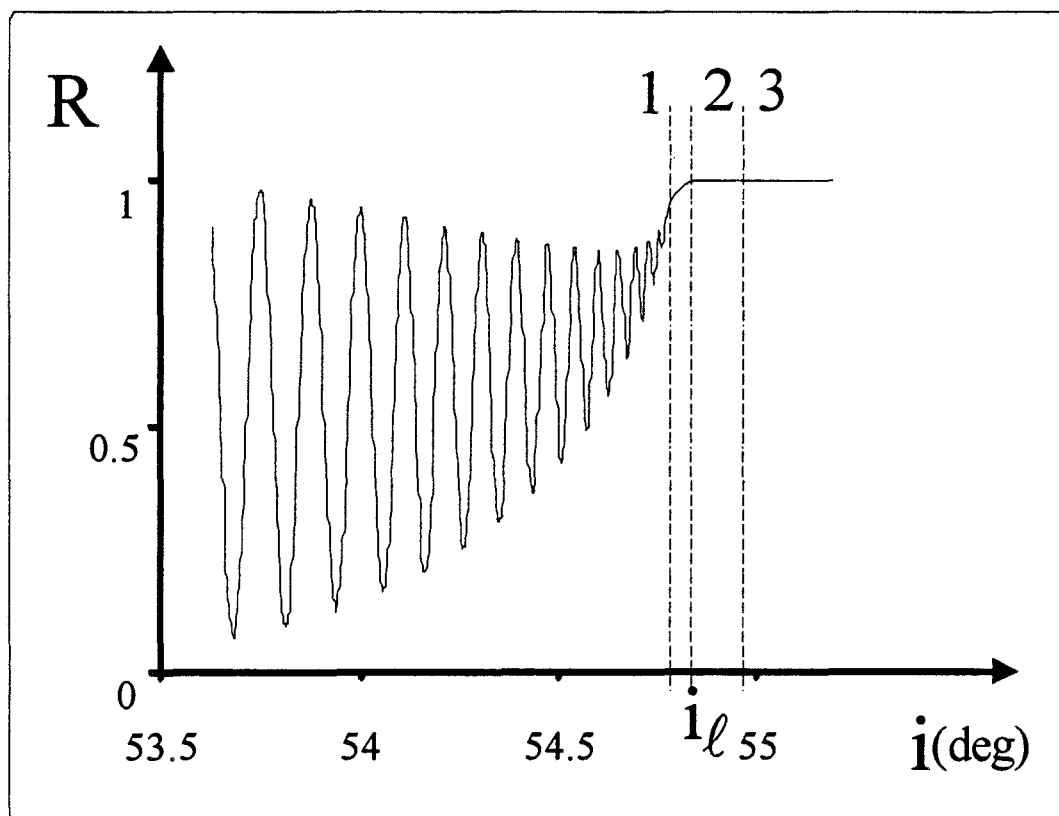


Figure 17 : Exemple de choix possibles pour l'abscisse du point anguleux de la courbe de réflectivité. La meilleure solution est souvent évidente (ici 2).

De cet angle limite, on tire l'indice ordinaire  $n_o$ . Par comparaison avec l'ensemble de valeurs d'indices ( $n_o(T,\lambda)$ ,  $n_e(T,\lambda)$ ) obtenues à l'aide d'un réfractomètre de Talbot-

Rayleigh [53], nous déduisons la valeur de la température de l'échantillon et l'indice extraordinaire  $n_e$  qui lui correspond.

Enfin de la pente de la courbe  $\phi(X)$ , nous déduisons l'épaisseur totale  $d$  du film.

### III - 3 - EXPLOITATION DES COURBES DE REFLECTIVITE POUR LA POLARISATION TM.

D'après les résultats précédents (II - 4), la courbe  $\phi(X)$  a un comportement linéaire si l'échantillon est homogène et non linéaire s'il est hétérogène ; cette courbe devant passer par l'origine dans le cas des gradients d'indice négatifs mais pas dans le cas des gradients d'indice positifs. Lors de nos expériences, nous avons choisi d'étudier les films à gradients négatifs. La courbe  $\phi(X)$  doit alors passer par l'origine.

Nous procédons alors de la même manière que pour l'exploitation des courbes de réflectivité en mode TE : nous traçons la courbe expérimentale  $\phi(X)$  et agissons sur la valeur de l'abscisse de l'angle limite de manière à ce que la droite ou la parabole passe par l'origine. De cette abscisse et en appliquant la relation (3) (Partie 1, Chap. 1) dans laquelle les indices principaux sont ceux déterminés à l'aide de la courbe de réflectivité en mode TE, nous déduisons l'angle tilt en surface, tout en étant conscient que ce résultat n'est qu'une valeur intégrée sur l'épaisseur de pénétration de l'onde évanescente ( c'est à dire quelques longueurs d'onde).

Enfin, de la forme de la courbe, parabolique ou linéaire, nous déduisons le caractère hétérogène ou homogène du film nématique.

Dans le cas d'un film homogène, il doit y avoir cohérence entre la pente de la droite  $\phi(X)$  et la valeur de l'angle de tilt puisque ces deux quantités font intervenir la valeur des indices principaux  $n_e$  et  $n_o$  (cf. relations (23), (24) et (25), Partie 1, Chap. 2).

Dans le cas d'un film hétérogène à gradient d'indice négatif, il est possible, sans faire appel à un modèle théorique, de remonter à la distribution angulaire du directeur



dans le volume. Pour cela, nous utilisons un traitement numérique initialement mis au point par le groupe de Naples [54], dont nous avons modifié la formulation. Nous la présentons maintenant et nous en donnons les avantages en conclusion.

### III - 4 - DETERMINATION EXPERIMENTALE DE LA DISTRIBUTION ANGULAIRE DU DIRECTEUR DANS LE VOLUME (D'APRES [48,54]).

Nous repartons de l'expression (17) du déphasage. La limite supérieure  $e$  de l'intégrale est, dans le cas d'un film hétérogène à gradient d'indice négatif, une partie de l'épaisseur totale du film ( $z_{IV}$ , Fig. 12). Elle correspond à un endroit pour lequel le rayon transmis à travers le dioptre Nématique-prisme est totalement réfléchi. En cet endroit, le directeur est incliné d'un angle noté  $\theta_{IV}$ . En notation angulaire, le déphasage devient :

$$\frac{\Phi}{2\pi} = \frac{2n_e n_o}{\lambda} \int_{\theta_0}^{\theta_{IV}} \frac{\sqrt{g^2(\theta) - k^2}}{g^2(\theta)} z d\theta \quad (39)$$

avec :

$$g^2(\theta_n) = k^2 = N^2 \sin^2 i \quad ; \quad \dot{z} = \frac{dz}{d\theta} \quad (40)$$

Sur la courbe expérimentale, il est facile de pointer avec précision l'angle d'incidence  $i_j$  correspondant au minimum  $j$  de l'intensité réfléchie. De là, nous pouvons calculer la valeur de  $k_j$  correspondante, donnée par :

$$k_j = N \sin i_j \quad (41)$$

et l'angle  $\theta_j$  donné par :

$$g^2(\theta_j) = k_j^2 \quad (42)$$

Pour le minimum  $p$ , l'ordre d'interférence a pour valeur  $p + \frac{1}{2}$ , il s'en suit la relation :

$$\frac{\Phi_p}{2\pi} = p + \frac{1}{2} = \frac{2n_e n_o}{\lambda} \int_{\theta_1}^{\theta_p} \frac{\sqrt{g^2(\theta) - k_p^2}}{g^2(\theta)} z d\theta \quad (43)$$

Cette intégrale peut être décomposée en utilisant les différentes valeurs de  $\theta_j$ , calculées comme décrit ci-dessus. Alors l'expression de l'ordre d'interférence devient :

$$\frac{\Phi_p}{2\pi} = p + \frac{1}{2} = \frac{2n_e n_o}{\lambda} \sum_{j=1}^p \int_{\theta_j}^{\theta_{j+1}} \frac{\sqrt{g^2(\theta) - k_p^2}}{g^2(\theta)} z d\theta \quad (44)$$

Expérimentalement, les angles  $\theta_j$  et  $\theta_{j+1}$  sont très proches l'un de l'autre et on peut raisonnablement supposer que la fonction  $z(\theta)$  est linéaire entre ces deux angles. Cela revient à découper l'échantillon en tranches dans lesquelles la fonction  $\theta(z)$  varie linéairement.

On peut ainsi considérer que dans cette tranche la dérivée  $\dot{z}$  est constante -notons la  $z_j$ - et nous pouvons donc la sortir de l'intégrale. Ceci mène à l'expression (45) :

$$\frac{\Phi_p}{2\pi} = p + \frac{1}{2} = \frac{2n_e n_o}{\lambda} \sum_{j=1}^p \left[ z_j \left( \int_{\theta_j}^{\theta_{j+1}} \frac{\sqrt{g^2(\theta) - k_p^2}}{g^2(\theta)} d\theta \right) \right] \quad (45)$$

Nous pouvons alors calculer l'intégrale  $\int_{\theta_j}^{\theta_{j+1}} \frac{\sqrt{g^2(\theta) - k_p^2}}{g^2(\theta)} d\theta$  qui ne dépend plus

que de  $\theta$ . Notons la  $I_{i,p}$ .

L'expression (45) devient :

$$\frac{\Phi_p}{2\pi} = p + \frac{1}{2} = \frac{2n_e n_o}{\lambda} \sum_{j=1}^p \dot{z}_j I_{j,p} \quad (46)$$

Nous appliquons alors cette relation au premier minimum, au deuxième et ainsi de suite jusqu'au  $p^{\text{ième}}$  minimum, pour obtenir le système linéaire ci-dessous :

$$\begin{aligned} \dot{z}_0 I_{01} &= \lambda_0 \\ \dot{z}_0 I_{02} + \dot{z}_1 I_{12} &= \lambda_1 \\ &\vdots \\ &\vdots \\ &\vdots \\ \dot{z}_0 I_{0p} + \dots + \dot{z}_{p-1} I_{p-1,p} &= \lambda_p \end{aligned}$$

(47)

$$\text{où } \lambda_p = \frac{\left(p + \frac{1}{2}\right)\lambda}{2n_e n_o}$$

Nous pouvons écrire ce système sous forme matricielle :

$$\begin{pmatrix} \dot{z}_j \end{pmatrix} (I_{j,i}) = (\lambda_i) \quad (48)$$

et l'inverser :

$$\begin{pmatrix} \bullet \\ z_j \end{pmatrix} = (R_{j,i})(\lambda_i) \quad (49)$$

Cette expression admet une solution si le déterminant de  $(R_{j,i})$  est différent de zéro, c'est à dire si les intégrales  $I_{j,i}$  sont elles-mêmes différentes de zéro ou encore si  $\theta_j \neq \theta_i$ , c'est à dire si le film est hétérogène. La résolution du système (49) donne la valeur locale de la dérivée  $\bullet z_j$  et par conséquent nous en déduisons facilement la distribution angulaire  $\theta(z)$  du directeur dans le volume, à une constante d'intégration près. Cette constante correspond à l'angle d'inclinaison du directeur en surface. Elle est obtenue en mesurant l'angle d'incidence à la limite entre la réflexion totale et le régime transmission.

La remarque que nous avons faite dans le paragraphe III - 2 peut encore être appliquée ici. La position angulaire des minimums peut être mesurée avec précision, par contre cela est moins vrai pour le point anguleux. Les angles  $\theta_j$  sont alors obtenus avec une bonne précision, mais pas l'angle  $\theta_1$  de tilt en surface. Ce dernier angle intervient dans les intégrales  $I_{1,i}$ , c'est à dire dans la première colonne de la matrice  $I_{j,i}$  du système linéaire (48). On peut montrer que ces éléments restent dans la première colonne de la matrice inverse  $R_{j,i}$ . Dans les valeurs de  $\bullet z_j$ , la valeur de  $\theta_1$  n'intervient alors que par l'élément de la première colonne de la matrice  $R_{j,i}$  et celui-ci est multiplié par le plus faible des coefficients  $(\lambda_i)$  : en conclusion, les valeurs de  $\bullet z_j$  pour les tranches éloignées de l'interface ( $j > 1$ ) sont très peu sensibles à la valeur de l'angle  $\theta_1$ . Donc si nous modifions la valeur de l'angle de tilt en surface, nous n'influons que très peu la position des points expérimentaux éloignés de la surface (par exemple, A,B,C et D de la Figure 18). Ceci minimise donc l'importance de la constante d'intégration dans notre traitement numérique.

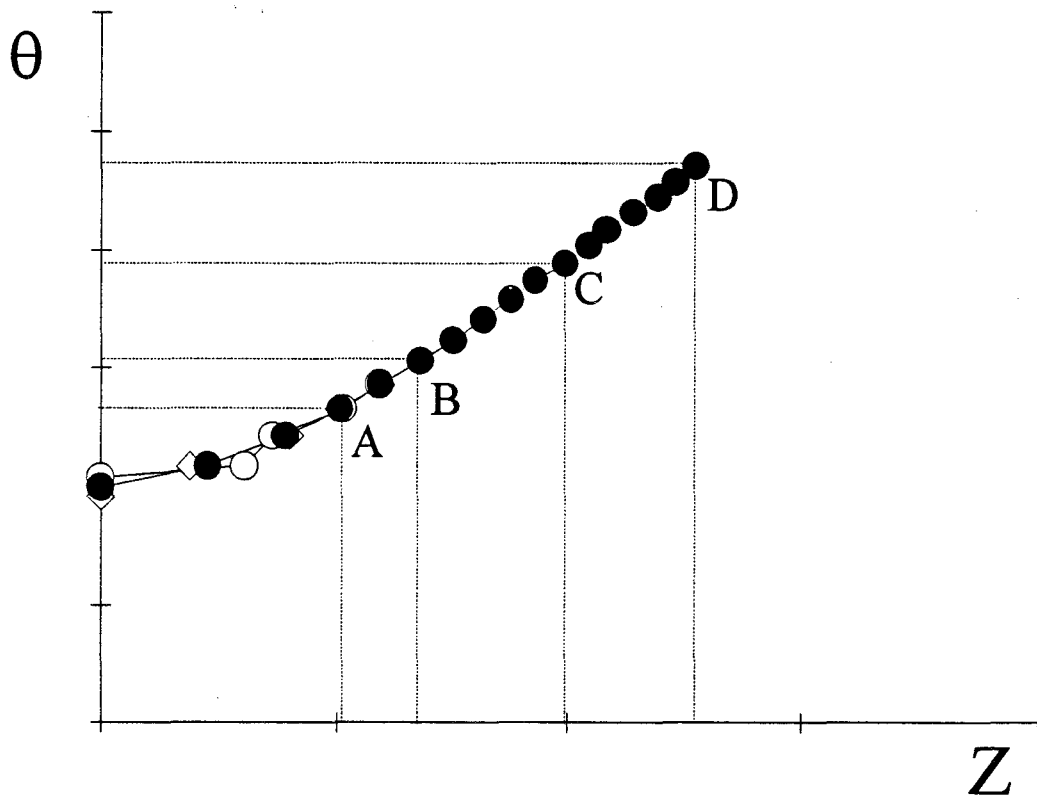


Figure 18 : Influence de la constante d'intégration sur la courbe  $\theta(z)$ . Trois valeurs d'angle de tilt en surface ( $\theta_{01}$ ,  $\theta_{02}$ ,  $\theta_{03}$ ) donnent des courbes identiques dans le volume.

Nous avons ainsi un moyen d'affiner la position angulaire du point correspondant à la limite de la réflexion totale. Nous pouvons modifier légèrement sa position puis nous reportons cette valeur sur la courbe de réflectivité et nous choisissons la meilleure solution qui fasse passer la courbe  $\phi(X)$  par l'origine.

Finalement, en supposant que l'échantillon est composé de couches successives anisotropes et homogènes, nous pouvons déterminer l'angle de tilt  $\theta_j$  du directeur moléculaire à l'intérieur de chaque couche où a lieu la réflexion totale interne et reconstruire avec précision la fonction  $\theta(z)$ .

## CONCLUSION

Dans cette première partie, nous avons vu comment nous enregistrons les courbes de réflectivité et comment nous les exploitons. Nous pouvons ainsi déterminer :

- la nature du film : homogène ou hétérogène suivant l'allure de la courbe  $\phi(X)$  et calculer son épaisseur totale  $d$ . Si la courbe est linéaire, c'est que le film est homogène. Dans le cas contraire, le film est hétérogène avec soit une variation d'indice croissante, soit décroissante. Le fait que la courbe  $\phi(X)$  passe ou non par l'origine, nous permet de distinguer ces deux derniers cas.
- l'angle d'inclinaison du directeur à l'interface prisme-échantillon.
- la distribution  $\theta(z)$  du directeur dans le volume.

Tous ces résultats sont obtenus indépendamment de tout modèle théorique et nous conduisent directement à l'étude expérimentale de l'épaisseur critique et de la distribution spatiale du directeur dans un film nématique hybride (homéotrope- planaire).

La seconde partie est consacrée à cette étude expérimentale. Nous présentons les différentes expériences qui ont été effectuées et nous discutons dans une dernière partie les résultats que nous avons obtenus en les comparant à différents modèles théoriques.

**PARTIE 2 :**

**LES EXPERIENCES**





## INTRODUCTION

Nous présentons dans cette partie tout d'abord les aspects techniques, c'est à dire la préparation des échantillons et un ordre de grandeur de la précision des mesures. Dans le chapitre 2, nous présentons les résultats effectivement obtenus et pour terminer, nous exposons quelques cas particuliers que nous avons rencontrés.

Nous ne donnons ici que quelques exemples de courbes expérimentales. Un deuxième fascicule comprenant l'ensemble des résultats est disponible.



# **CHAPITRE 1 :**

**PREPARATION DES ECHANTILLONS,**

**PRECISION DES MESURES**



Le cristal liquide utilisé est le pentylcyanobiphényl 5CB (BDH). Nous en avons contrôlé la pureté chimique en vérifiant les températures de transition sous microscope et en les comparant à celles données par le fabricant. Nous connaissons d'autre part les indices principaux  $n_e(\lambda, T)$  et  $n_o(\lambda, T)$  (mesurés avec un réfractomètre de Talbot-Rayleigh [53]). Les expériences sont réalisées à la température ambiante qui est constamment mesurée. Ce cristal liquide est introduit par capillarité dans la cellule composée d'un prisme et d'une lame de verre. Les prismes utilisés sont soit des prismes de verre Schott, d'indice  $N = 1.94325$  pour la longueur d'onde  $\lambda = 0.6328 \mu\text{m}$ , soit des prismes de verre Corning, d'indice  $N = 1.8783$  pour la même longueur d'onde.

Pour obtenir les films hybrides souhaités, nous avons traité le prisme avec des surfactants (alignement homéotrope) et la lame de verre est frottée de manière unidirectionnelle (alignement planaire). Nous avons utilisé deux types de surfactants : du bromure d'hexadécyltriméthylammonium (HTAB) et de la lécithine (Merck). Le frottement unidirectionnel est réalisé avec de la pâte de diamant d'un grain de  $0.25 \mu\text{m}$ .

## **I - TRAITEMENT N-HTAB.**

Pour cette série, nous ne disposons pas de la cellule porte-échantillon à épaisseur variable et les épaisseurs sont ici fixées par des cales de mylar placées entre le prisme (Schott SF59) et la lame. Nous avons fabriqué 5 films de différentes épaisseurs allant de 28 à  $125 \mu\text{m}$  en utilisant des cales de 23, 36 et  $50 \mu\text{m}$ . Pour ces 5 films, la concentration de n-HTAB est identique et les frottements correspondent à une vingtaine d'aller-retour de la lame sur la feuille de feutre ; la pression exercée étant faible, on peut considérer que l'ancrage sur la lame est faible. Les caractéristiques de ces films sont regroupées dans le tableau 2.

	film 1	film 2	film 3	film 4	film 5
épaisseur	29 $\mu\text{m}$	37 $\mu\text{m}$	62 $\mu\text{m}$	75 $\mu\text{m}$	125 $\mu\text{m}$

*Tableau 2 : Caractéristiques des films fabriqués. L'orientation hybride est obtenue en utilisant du n-HTAB sur le premier substrat et un frottement unidirectionnel avec de la pâte de diamant sur l'autre substrat. Les épaisseurs sont celles effectivement obtenues à partir du traitement des courbes de réflectivité en mode TE.*

## II - TRAITEMENT LECITHINE.

Cette fois, les expériences ont été réalisées avec la nouvelle cellule porte-échantillon qui permet de faire varier l'épaisseur du film sans changer pratiquement les énergies d'ancrage. Nous avons ainsi fabriqué 4 films (prisme Corning et lame frottée) en traitant les substrats de façon à bénéficier de plusieurs types d'ancrage. Nous les avons alors classés de la manière suivante :

- film 1 : frottement fort et concentration faible de lécithine.
- film 2 : frottement moyen et concentration très faible de lécithine.
- film 3 et 4 : frottement faible et concentration très faible de lécithine.

Les épaisseurs pour ces films vont de 13 à 140  $\mu\text{m}$ . Pour les films 1 et 3, nous avons effectué des mesures en deux points différents de l'échantillon (notés 1-a, 1-b et 3-a, 3-b) tandis que pour les autres films, les mesures correspondent à un point unique de l'échantillon. Les caractéristiques de ces quatre films sont résumées dans le tableau 3.

	Film 1-a	Film 1-b	Film 2	Film 3-a	Film 3-b	Film 4
substrat 2	fort	fort	moyen	faible	faible	faible
substrat 1	faible	faible	très faible	très faible	très faible	très faible
é p a i s s e u r  d u  f i l m  ( $\mu\text{m}$ )					140	
	121			128	129	124
						107
	92					93
		86	86	85	89	88
					83	80
				76	74	75
	65			66	66	67
		63	61	64	62	63
				57		58
	54	53	52	52	54	
					49	51
	46	45	41	44	41	43
	40	37	37			38
	36		33	35		
	30	33	30		31	31
		28	26	25	26	
		22	22	21	19	
		17	14	14		
	16					

*Tableau 3 : Caractéristiques et épaisseurs des films hétérogènes fabriqués à l'aide de la lécithine pour le prisme et du frottement unidirectionnel pour la lame.*

Avant de présenter les résultats expérimentaux obtenus avec ces deux séries de films, nous donnons les caractéristiques techniques du banc de mesure qui nous permettent d'appréhender l'ordre de grandeur de la précision des résultats.

### III - PRECISION DES MESURES.

Avant de procéder à une expérience, il faut effectuer quelques réglages préliminaires et nous commençons par les rappeler sans les détailler.

Dans un premier temps, il faut aligner le faisceau parallèlement à notre plan de référence (xy, Fig.9). Ensuite, nous réglons le parallélisme entre la lame et le prisme grâce aux trois butées piézoélectriques (cf partie 1 (I-2-b)) et nous finissons par régler le parallélisme du bloc lame + porte-échantillon par rapport à notre plan de référence. Ces réglages se font également par autocollimation grâce à une équerre optique.

L'origine angulaire des miroirs étant aléatoire, il nous faut une valeur de référence fiable pour la lecture des valeurs d'angle des miroirs. Elle est obtenue en réalisant par autocollimation l'incidence normale sur la face d'entrée du prisme. Nous savons, qu'étant donné l'angle de 60 degrés au sommet du prisme, à l'incidence normale l'angle du miroir vaut 15 degrés. Nous initialisons donc les différents miroirs à cette valeur d'angle. Compte tenu des précisions sur ces angles (angle correspondant à l'incidence normale :  $\Delta\alpha = 10^{-4}$  rad, angle au sommet du prisme :  $\Delta A = 5.10^{-5}$  rad,  $\Delta N = 2.10^{-5}$ ,  $\Delta\lambda = 1 \text{ \AA}$ ), notre montage nous permet de mesurer les indices avec une précision de  $2.10^{-4}$ . Mais cela suppose que le point anguleux entre le régime réflexion totale et le régime transmission soit bien marqué, que les réglages préliminaires soient optimum et que quelques précautions quant au matériel utilisé soient prises. Il est ainsi indispensable que les surfaces du prisme soient bien polies, bien planes (pour éviter une perte d'intensité due à la diffusion de la lumière et avoir un bon front d'onde) et les caractéristiques mécaniques et optiques du matériau doivent être faiblement dépendantes de la température [55]. Mais il existe cependant certains cas pour lesquels le point anguleux peut ne pas être très net. Par exemple si le faisceau lumineux n'est pas de bonne qualité (convergent ou divergent), ou si l'ouverture du capteur photosensible est trop importante. De plus, comme la taille du faisceau de lecture est d'environ  $5 \text{ mm}^2$ , il faut que le matériau étudié soit aussi homogène que possible, d'un point de vue orientation,



sur cette surface. Ces différents aspects ont été pris en compte et les erreurs systématiques éliminées au mieux.

Une méthode complémentaire à celle que nous utilisons consiste à observer la disparition de la tâche correspondant à la lumière transmise. Elle donne la valeur de l'angle limite en une seule mesure avec une précision de l'ordre de 2 à 3° [56], ce qui est bien inférieur à ce que nous obtenons (quelques centièmes de degrés).

Nous avons vu que grâce aux courbes de réflectivité en mode TE, nous pouvons calculer l'épaisseur totale du film étudié (dans l'hypothèse où les molécules ne sortent pas du plan d'incidence). Nous obtenons en effet une courbe  $\phi(X)$  linéaire dont la pente ne dépend que de l'épaisseur et de la longueur d'onde. Nous avons alors estimé la précision sur l'épaisseur du film. D'après la relation (11) (Partie 1, chap. 2), l'épaisseur dépend aussi de la position angulaire des minimums et du point anguleux correspondant à la limite de la réflexion totale à travers la variable X :

$$d = \frac{p\lambda}{2} \quad (50)$$

où p représente la pente du fit linéaire réalisé au cours du traitement des données.

L'erreur faite sur cette épaisseur vient donc principalement des erreurs faites sur les angles d'incidence. Ces erreurs dépendent de la netteté du point anguleux, de l'erreur que nous faisons en réglant le 15° sur la face d'entrée du prisme par autocollimation et du pas que nous avons choisi pour incrémenter les miroirs. Toutes ces erreurs s'additionnent mais sont atténués dans le lissage de la courbe  $\phi(X)$ . On peut estimer que la précision sur la pente est environ de 1 % d'où une précision sur l'épaisseur du même ordre de grandeur. Ceci ne signifie pas pour autant que nous mesurons l'épaisseur réelle de l'échantillon avec cette précision : c'est la valeur de l'épaisseur moyenne sur la surface éclairée par le faisceau de sonde, que nous mesurons avec beaucoup de précision. Cette remarque vaut également pour les valeurs d'angle de tilts.

Maintenant que nous avons une idée de la précision de nos résultats expérimentaux, nous allons passer ceux-ci en revue dans le chapitre suivant.



# **CHAPITRE 2 :**

## **RESULTATS**



## I - RESULTATS DU TRAITEMENT N-HTAB.

Nous présentons, à titre d'exemple, sur les Figures 19 à 22, les courbes de réflectivité obtenues pour les polarisation TE et TM (les autres courbes de réflectivité étant assez semblables à celles données par ces Figures). Par souci de commodité, les courbes sont exprimées en fonction de l'angle d'incidence sur le premier miroir (Fig. 9),  $R = f(\alpha)$  et non pas en fonction de l'angle d'incidence à l'interface prisme-échantillon  $R = f(i)$ . Les courbes de réflectivité  $R = f(i)$  se déduisent des courbes  $R = f(\alpha)$  par une relation simple entre  $\alpha$  et  $i$ .

A partir des courbes de réflectivité, nous avons tracé les courbes  $\phi(X)$ . Nous présentons les deux types de courbes obtenues sur les figures 23 à 26. L'allure de ces courbes, nous permet de déterminer la nature homogène ou hétérogène du film et nous les commentons maintenant.

Pour le film 1, nous avons obtenu une courbe  $\phi(X)$  linéaire pour les deux polarisations, ce qui correspond conformément aux résultats de la partie 1, à un film homogène. La valeur de l'indice mesuré pour la polarisation TM, nous indique que ce film est de plus homéotrope.

Pour les films 2 et 3, nous avons obtenu une courbe  $\phi(X)$  linéaire pour la polarisation TE mais pas pour la polarisation TM. Dans ce dernier cas, nous avons pu trouver une valeur d'angle d'incidence limite telle que la courbe passe par l'origine, nous avons donc affaire à des films hétérogènes avec une variation d'indice décroissante et puisque la courbe en mode TE est linéaire, la rotation des molécules s'effectue dans le plan d'incidence. La valeur des indices mesurés pour chacun des films pour la polarisation TM, nous permet d'évaluer les angles de tilt à l'interface (cf partie 1, chapitre 2, II-1).

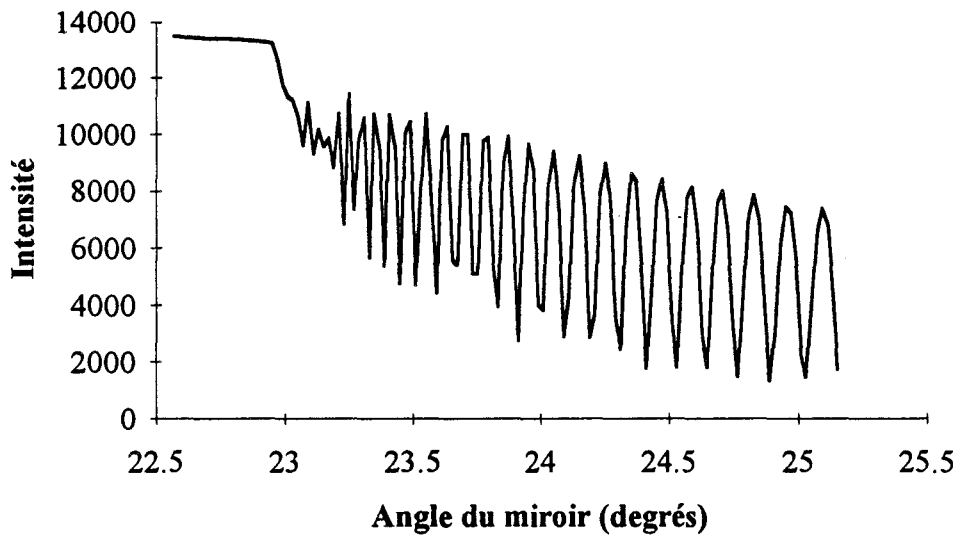


Figure 19 : Courbe de réflectivité  $R = f(\alpha)$  pour le film 1 et la polarisation TE.

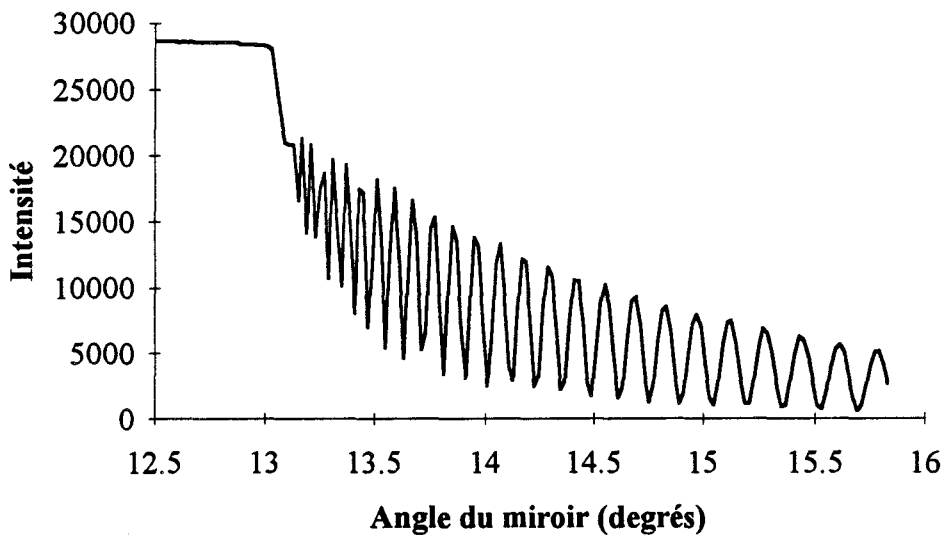


Figure 20 : Courbe de réflectivité  $R = f(\alpha)$  pour le film 1 et la polarisation TM.

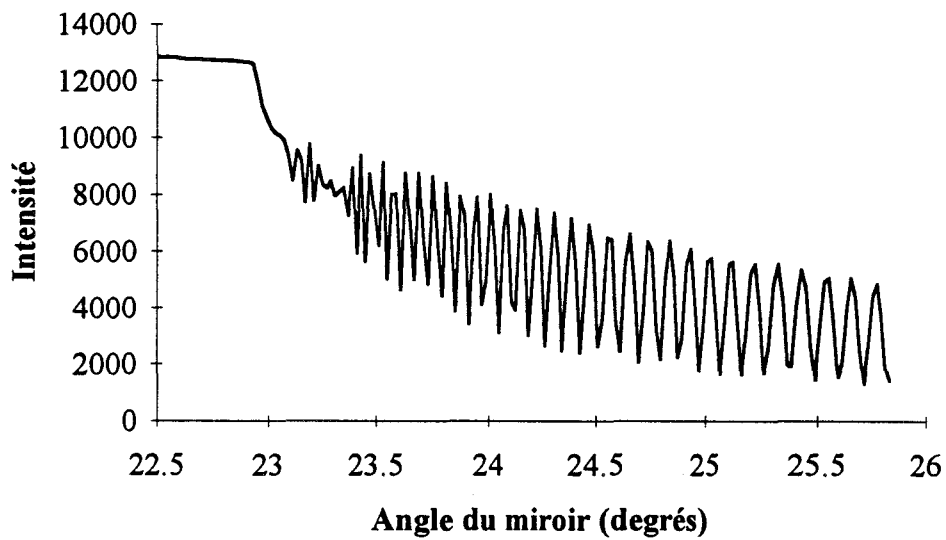


Figure 21 : Courbe de réflectivité  $R = f(\alpha)$  pour le film 2 et la polarisation TE.

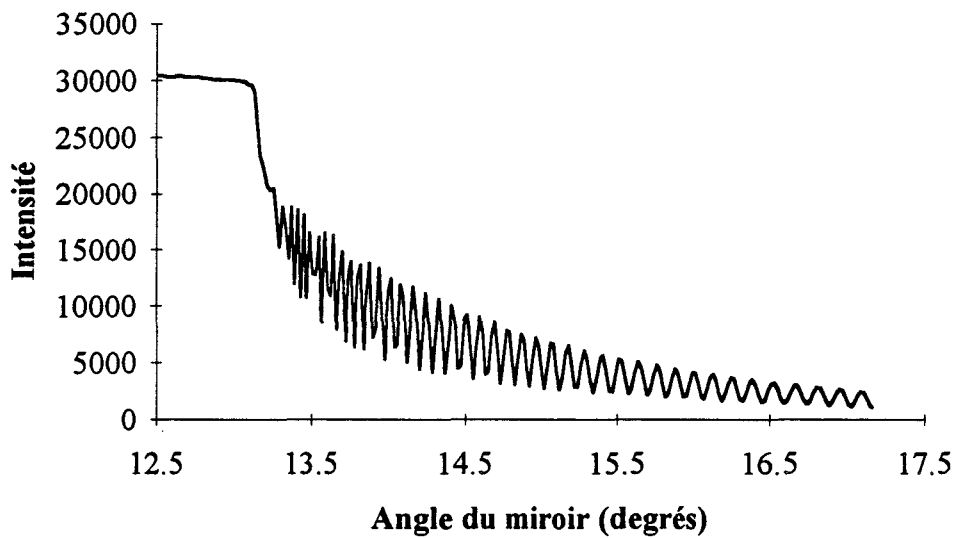


Figure 22 : Courbe de réflectivité  $R = f(\alpha)$  pour le film 2 et la polarisation TM.

Pour les films 4 et 5, la courbe  $\phi(X)$  n'est linéaire ni pour la polarisation TE, ni pour la polarisation TM. Les films sont alors doublement hétérogènes, c'est à dire que la rotation des molécules ne se fait plus dans un plan unique mais aussi en dehors du plan d'incidence. Nous avons vu dans la partie 1 que ce type de films n'était pas traité puisqu'ils ne satisfont plus les hypothèses de calcul. Il est vraisemblable que pour ces films dont les épaisseurs sont importantes (75 et 125  $\mu\text{m}$ ), la nucléation de nombreux défauts soit assez facile, d'où ces résultats.

Rappelons que tous les films sont initialement hybrides et que la nature finale de chacun de ces films correspond bien au résultat de la compétition entre les différentes énergies (de volume et de surface) en jeu.

Les résultats que nous avons obtenus sont résumés dans le tableau 4.

	épaisseur du film ( $\mu\text{m}$ )	nature du film	tilt en surface
film 1	29	homogène	0°
film 2	37	hétérogène	10°
film 3	62	hétérogène	5°
film 4	75	doublement hétérogène	-
film 5	125	doublement hétérogène	-

*Tableau 4 : Nature des films préparés avec du n-HTAB en fonction de l'épaisseur totale du film.*



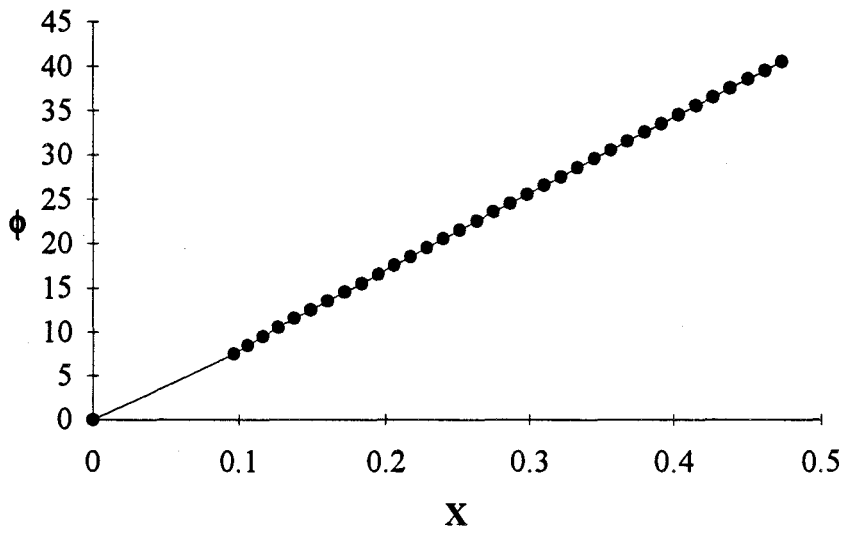


Figure 23 : Courbe  $\phi(X)$  pour le film 1 et la polarisation TE.

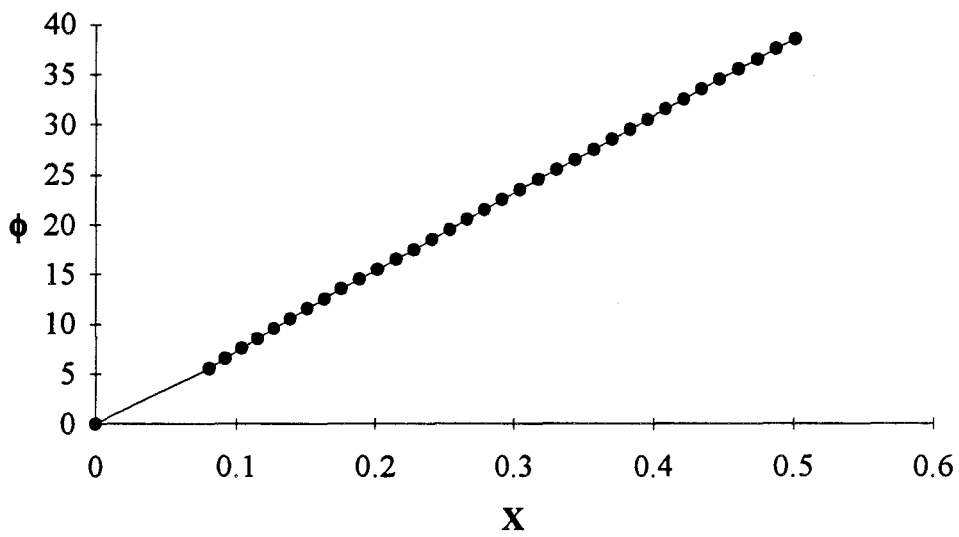


Figure 24 : Courbe  $\phi(X)$  pour le film 1 et la polarisation TM.

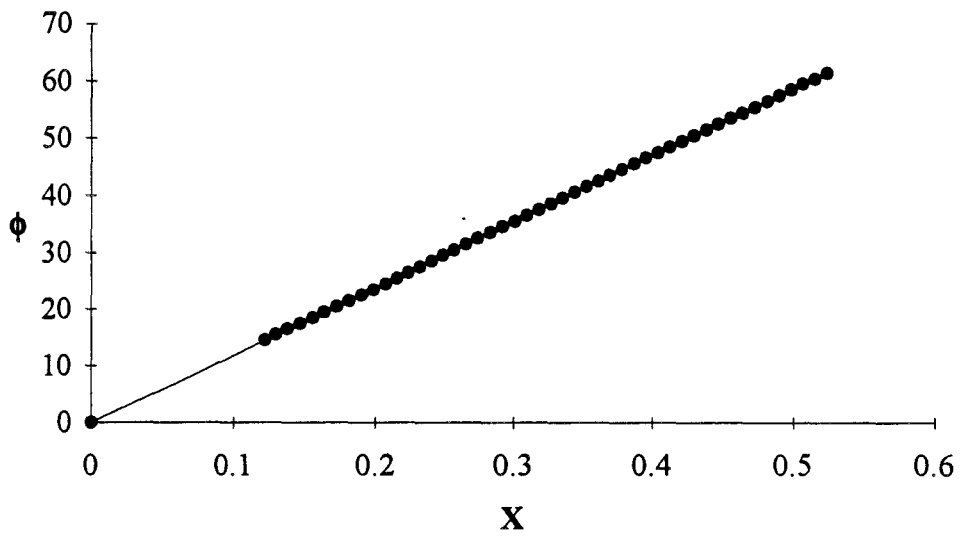


Figure 25 : Courbe  $\phi(X)$  pour le film 2 et la polarisation TE.

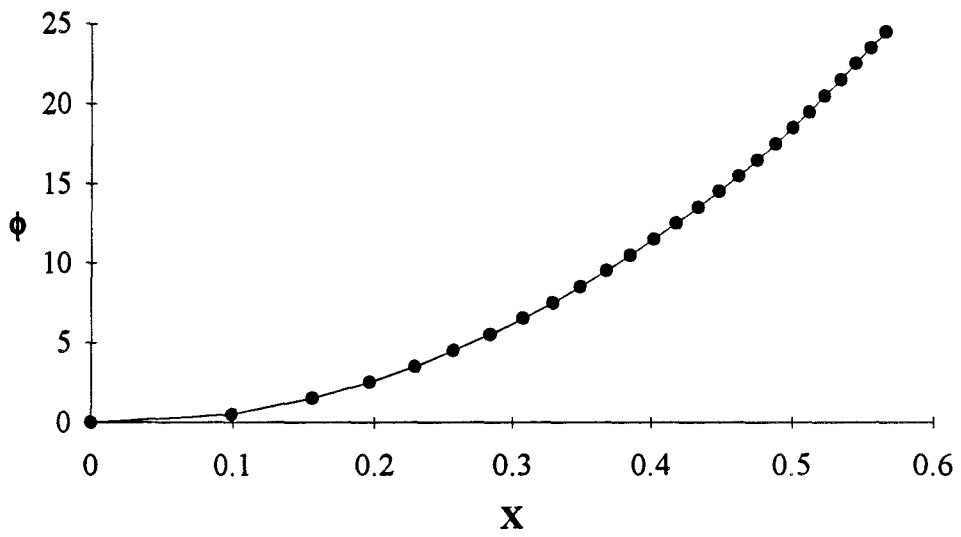


Figure 26 : Courbe  $\phi(X)$  pour le film 2 et la polarisation TM.

Enfin, nous avons vu dans la partie 1 (chap.3, III-4) que nous pouvons remonter à la distribution du directeur dans le volume  $\theta(z)$  grâce à un traitement numérique. Ce traitement ne peut s'appliquer qu'aux films hétérogènes ( donc ici aux films 2 et 3) et les résultats sont présentés sur la Figure 27.

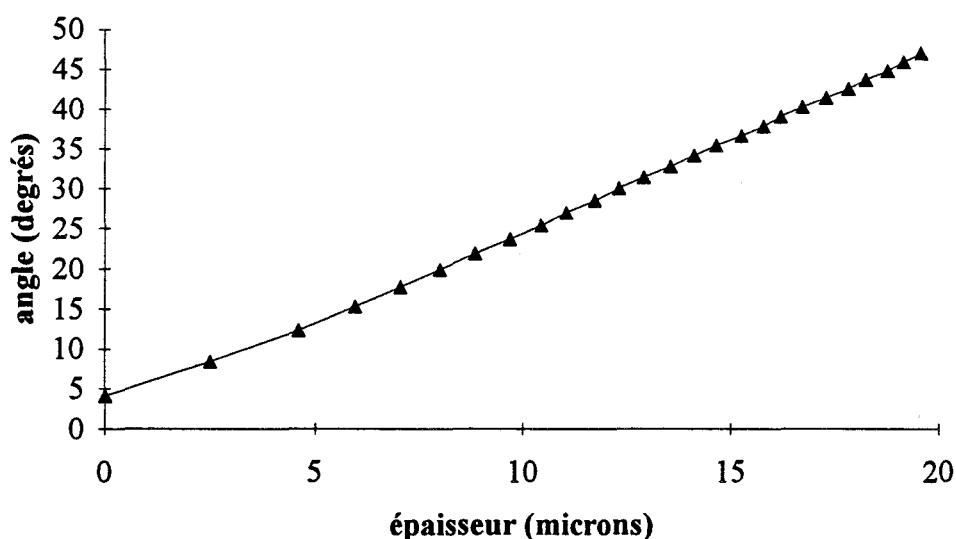


Figure 27 : Courbe  $\theta = f(z)$  pour le film 2.

## II - RESULTATS DU TRAITEMENT LECITHINE.

Toutes les courbes de réflectivité obtenues sont semblables à celles représentées sur les Figures 28 et 29, que ce soit pour la polarisation TE ou TM. Pour la polarisation TE, la courbe présente un deuxième point anguleux en régime transmission lié à la réflexion totale sur la lame supérieure.

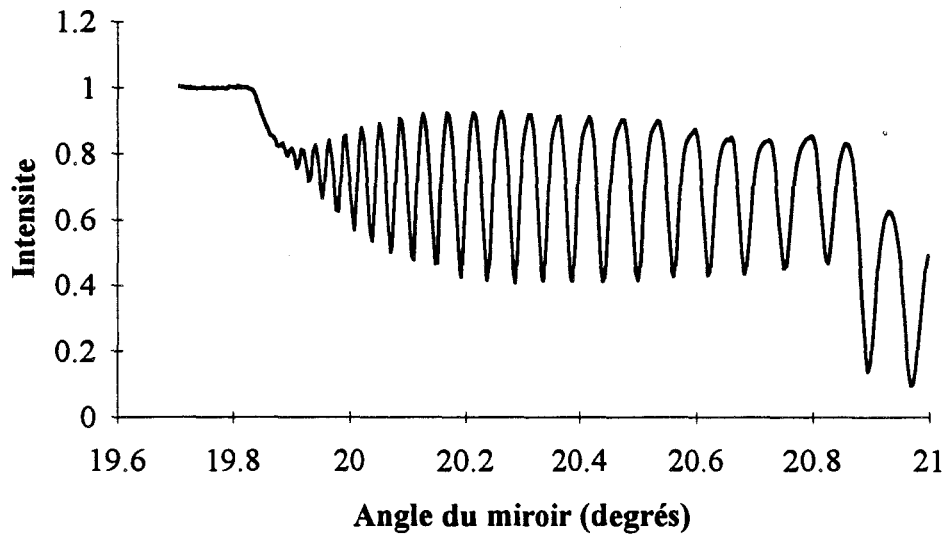


Figure 28 : Courbe de réflectivité  $R = f(\alpha)$  pour le film 2 et pour la polarisation TE.

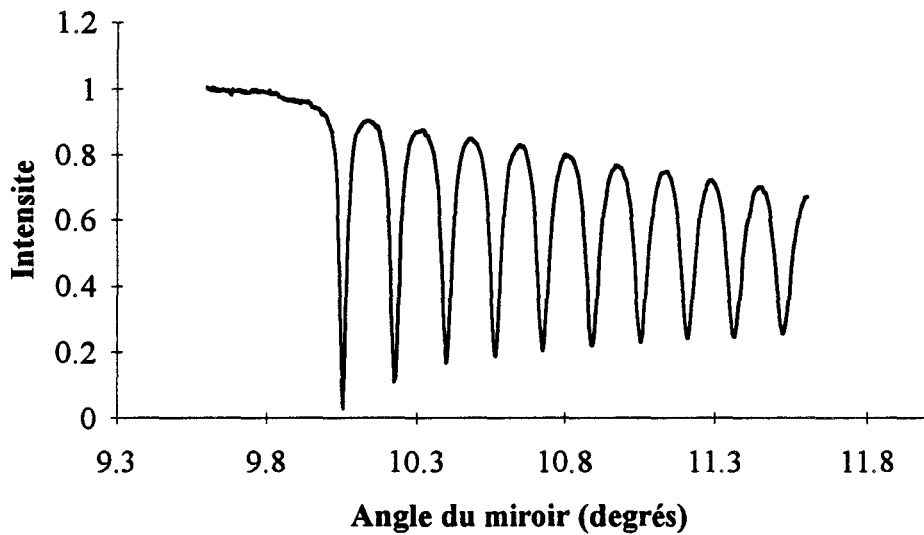


Figure 29 : Courbe de réflectivité  $R = f(\alpha)$  pour le film 2 et pour la polarisation TM.

Nous avons tracé les courbes  $\phi(X)$  : elles ont même allure pour les quatre films. A titre d'exemple, nous en présentons une pour la polarisation TE et pour la polarisation TM (Fig. 30, 31).

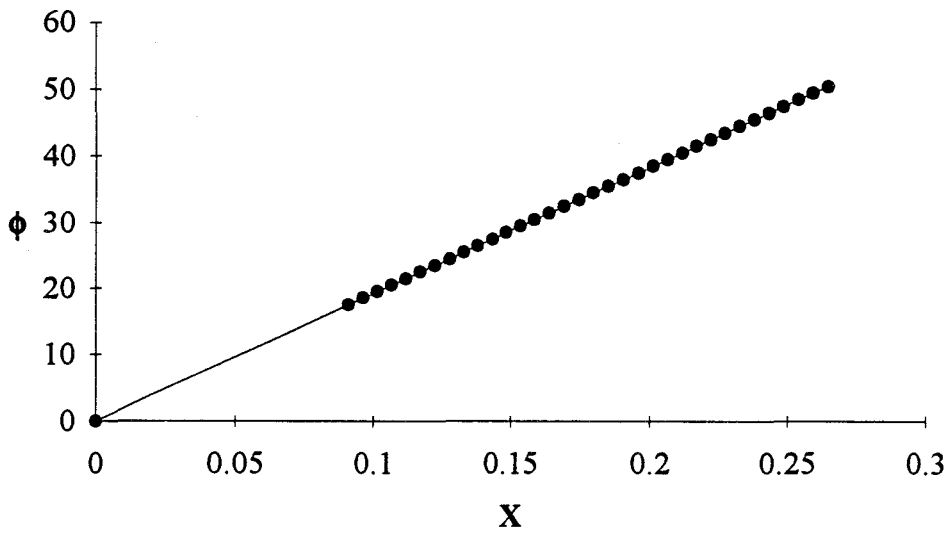


Figure 30 : Courbe  $\phi(X)$  pour le film 2 et pour la polarisation TE.

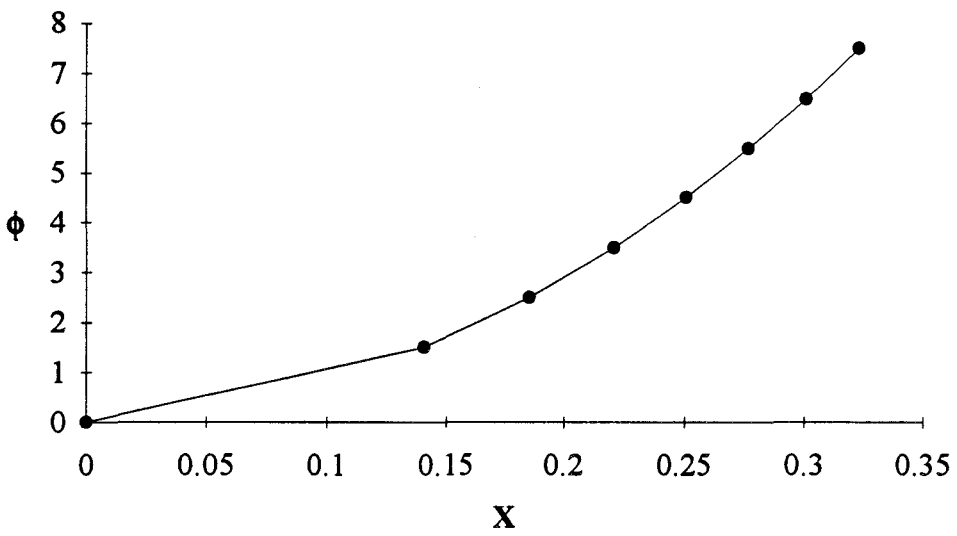


Figure 31 : Courbe  $\phi(X)$  pour le film 2 et pour la polarisation TM.

Pour la polarisation TE et pour les quatre films, la courbe  $\phi(X)$  est linéaire, signe que les molécules restent dans le plan d'incidence.

Pour la polarisation TM et pour les quatre films, la courbe  $\phi(X)$  n'est pas linéaire et il a été possible de trouver une valeur d'angle d'incidence limite telle que la courbe passe par l'origine. Les films sont donc tous hétérogènes avec une variation d'indice décroissante.

Il faut ajouter cependant, qu'en dessous de  $14 \mu\text{m}$  et pour la polarisation TE, pour aucun des films la courbe  $\phi(X)$  n'est linéaire, ce qui signifie que la rotation des molécules se fait dans et en dehors du plan d'incidence. Nous n'avons donc pas poursuivi les expériences aux épaisseurs plus faibles.

Nous nous sommes ensuite intéressés à la distribution angulaire du directeur  $\theta(z)$  en fonction de l'épaisseur des films, en appliquant le traitement numérique décrit dans la partie 1 (chap.3, III-4). Pour chacun de ces films l'allure de la courbe  $\theta = f(z)$  est typiquement celle de la Figure 32.

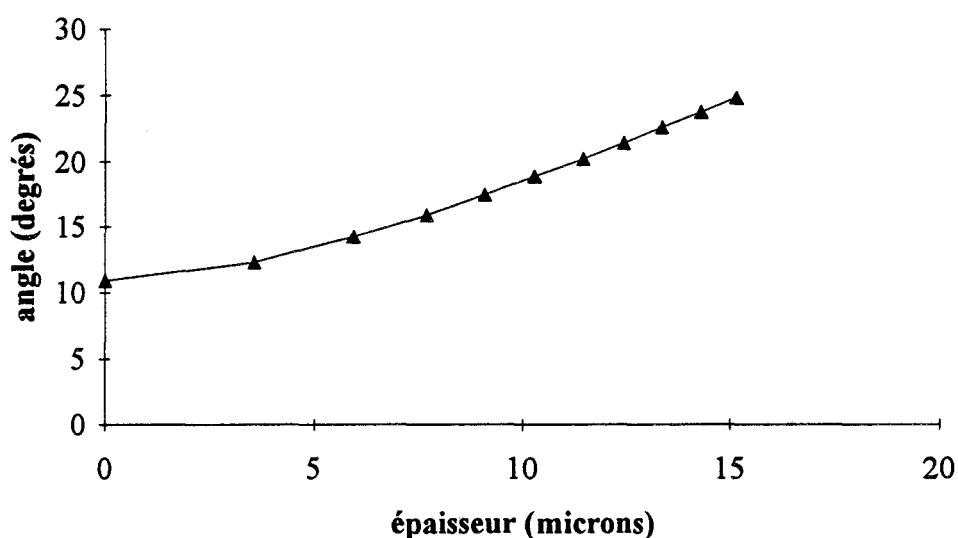
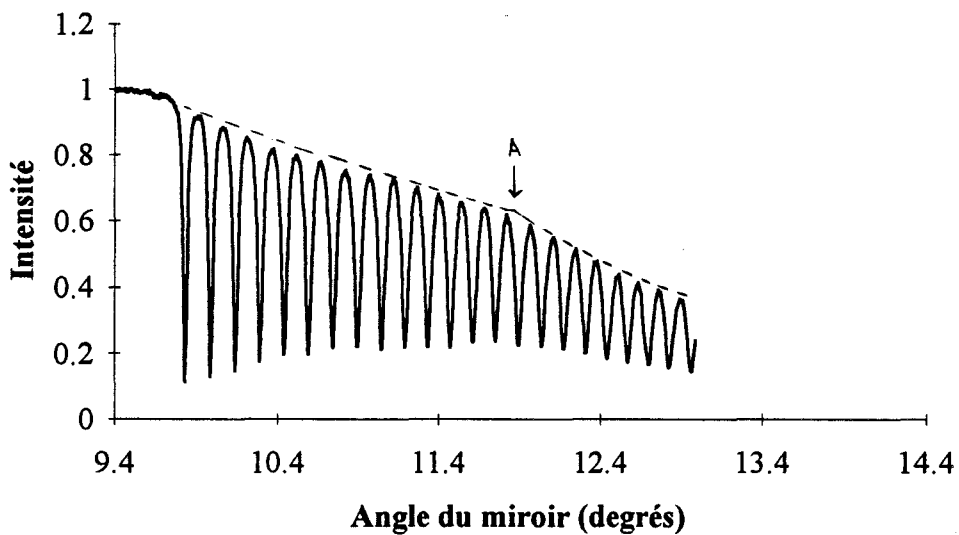


Figure 32 : Allure des courbes  $\theta = f(z)$  pour la série de films traités avec de la lécithine. La courbe correspond au film 2 ayant une épaisseur totale de  $61 \mu\text{m}$ .

### III - CAS PARTICULIERS.

Sur certaines courbes de réflectivité et notamment pour le film 4 obtenu avec un traitement lécithine, nous avons remarqué, pour la polarisation TM, une diminution des coefficients de réflexion en régime transmission. L'allure des courbes est celle de la Figure 33.

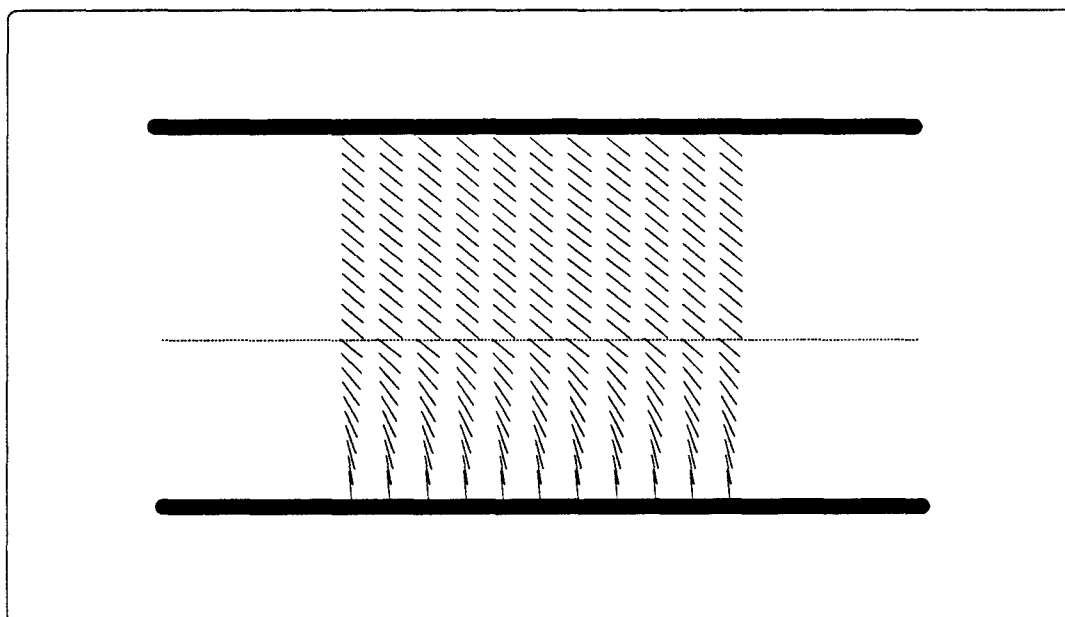


*Figure 33 : Allure des courbes de réflectivité pour les films 4 et pour la polarisation TM : une chute d'intensité (enveloppe supérieure) est enregistrée en A.*

Nous nous sommes aperçus que si nous pointions tous les minimums de la courbe de réflectivité pour la polarisation TM, il n'était plus possible de faire passer la courbe  $\phi(X)$  par l'origine. Par contre, si nous ne pointions que les premiers minimums de la courbe de réflectivité (situés avant la deuxième brusque diminution des coefficients de réflexion), il était alors facile de trouver une solution correcte pour l'abscisse du point anguleux (correspondant à la réflexion totale à l'interface prisme-échantillon) qui fasse

passer la courbe  $\phi(X)$  par l'origine. Cette dernière remarque est surtout vraie lorsque le nombre de minimums correspondant à la deuxième partie est plus important que celui de la première : l'influence de ces minimums est alors grande et le résultat obtenu ne reflète plus ce qui se passe dans la première zone mais donne l'image de ce qui se passe dans les deux à la fois. Nous avons donc traité les courbes en ne considérant que les minimums situé avant la deuxième diminution des coefficients de réflexion.

Cette situation anormale pourrait être liée à l'existence de deux couches à l'intérieur de l'échantillon dans lesquelles la variation d'indice serait différente. Par exemple, on pourrait imaginer une situation telle que sur la Figure 34, où le film est hétérogène dans une première couche avec une variation d'indice décroissante puis homogène incliné dans une deuxième couche.



*Figure 34 : Apparition d'une deuxième couche à l'intérieur du Nématique avec une variation d'indice différente de celle de la couche située près de l'interface.*



La modélisation complète de cette situation est en cours.

Nous avons exposé dans cette partie tous les résultats expérimentaux des deux séries de films (traitement n-HTAB et traitement lécithine). Ces résultats ont l'avantage d'être indépendants de tout modèle théorique et nous allons les confronter avec différents modèles de la théorie élastique. C'est ce qui fait l'objet de la partie 3.



**PARTIE 3 :**

**CONFRONTATION AVEC LES  
MODELES**



## I - LA THEORIE ELASTIQUE CLASSIQUE.

L'orientation du directeur sur un substrat est définie par deux angles  $\theta$  et  $\phi$ , angles avec la normale à la surface et mesuré dans le plan de la surface par rapport à une direction fixe du substrat. La direction facile  $\theta_0, \phi_0$  correspond à l'orientation naturelle du Nématique à la surface. Le concept d'axe facile a été introduit en premier par Grandjean [57]. La plupart du temps, une surface donnée force le directeur nématique à s'orienter, localement, parallèlement à une direction appelée facile. L'équilibre d'un film d'épaisseur finie est obtenu en minimisant simultanément les énergies de volume et de surface. L'énergie de volume correspond à l'énergie qu'il faut fournir aux molécules pour détruire leur parallélisme. Les couples de surfaces associés aux énergies de surface sont responsables du couple de rappel que subissent les molécules dans le volume. Supposons l'équilibre thermodynamique atteint et augmentons, de manière réversible, la surface  $S$  recouverte par le Nématique de  $dS$ . Nous pouvons écrire la variation d'énergie associée sous la forme :  $dW = \gamma dS$ .  $\gamma$  est appelé le coefficient de tension superficielle du contact Nématique-substrat et dépend de ces deux quantités. La tension superficielle est anisotrope et l'orientation que prend spontanément le Nématique est celle qui est imposée localement par le substrat et correspond à une énergie superficielle minimale. La fonction d'énergie d'ancrage est alors définie de la façon suivante : c'est la variation positive d'énergie superficielle associée une variation d'orientation de la molécule, qui prend une direction  $(\theta, \phi)$  différente de celle  $(\theta_0, \phi_0)$  qui minimise l'énergie superficielle [58]. Par définition,  $W(\theta_0, \phi_0) = 0$ . L'énergie d'ancrage correspond donc à l'énergie qu'il faut dépenser pour amener la molécule dans la direction la plus difficile.

En 1958, Frank [52] propose d'écrire l'énergie élastique du film sous la forme d'une fonction quadratique des forces de torsion qui s'exercent dans le film et analogue à la loi d'élasticité de Hooke, dans laquelle les modules élastiques apparaissent comme des coefficients. Ainsi l'énergie libre  $G$  du film est une intégrale de volume de la densité

d'énergie libre  $g$ , où  $g$  est une fonction quadratique de six coefficients différentiels ( en coordonnées cartésiennes ) :  $G = \int_V g d\tau$

Jenkins et Barratt [59] ont ensuite complété cette énergie de volume en introduisant une énergie de surface anisotrope. L'énergie du film est donc la somme d'un terme de volume et d'un terme de surface pour chaque interfaces :

$$g = f_v + f_{s_1} + f_{s_2} \quad (51)$$

et le terme volumique communément admis est donné par l'expression :

$$f_v = \frac{1}{2} \left[ K_{11}(\text{div } n)^2 + K_{22}(n \cdot \text{rot } n)^2 + K_{33}(n \wedge \text{rot } n)^2 \right] \quad (52)$$

Dans cette expression, le premier terme correspond aux déformations de divergence (splay), le deuxième aux déformations de torsion (twist) et le troisième aux déformations de flexion (bend) [60].  $K_{11}, K_{22}$  et  $K_{33}$  sont les coefficients d'élasticité de Frank. Pour l'expression de l'énergie de surface, certains auteurs utilisent l'expression de Rapini et al [6] :

$$f_s(\theta_S) = \gamma_0 + W_p \cos^2 \theta_S \quad (53)$$

Dans ce cas simplifié, le coefficient d'ancrage  $W_p = \frac{1}{2} \frac{\partial^2 f_s}{\partial \theta_S^2} \Big|_{\theta_0, \phi_0}$  coïncide avec

l'énergie d'ancrage définie comme le travail nécessaire pour tourner le directeur d'une position d'équilibre stable à une position d'équilibre instable.

La structure stable d'un film est obtenue par la minimisation de ces énergies (51). Cette dernière conduit aux équations d'Euler-Lagrange, qui ne font intervenir que l'expression de la densité d'énergie en volume, avec des conditions limites tenant compte

des termes de surface. Quelle que soit l'expression de ces derniers, l'équation d'Euler-Lagrange trouvée pour une densité d'énergie de distorsion en volume telle que (51) est :

$$\left(K_1 \sin^2 \theta + K_3 \cos^2 \theta\right) \left(\frac{d\theta}{dz}\right)^2 = \text{cte} \quad (54)$$

Ce qui conduit à la distribution angulaire du directeur en volume [33, 51] :

$$z = d \frac{\int_{\theta_1}^{\theta} \sqrt{1 - h^2 \sin^2 \theta} d\theta}{\int_{\theta_1}^{\theta_2} \sqrt{1 - h^2 \sin^2 \theta} d\theta} \quad (55)$$

où les angles  $\theta_1$  et  $\theta_2$  (ancrages en surface) sont donnés par les conditions aux limites, c'est à dire par les énergies de surface. Quel que soit le modèle utilisé pour ces termes de surface, la minimisation de l'énergie totale du film conduit à la notion d'épaisseur critique pour les films hybrides. M.M. Labes et al et L. Terminassian-Saraga [61] ont montré qu'un film nématique soumis à des ancrages antagonistes, homéotrope et planaire sur deux lames de verre, n'est distordu que si l'épaisseur est plus grande qu'une épaisseur critique  $d_c$ . En deça de celle-ci, le champ directeur devient uniforme suivant l'axe facile ayant l'énergie d'ancrage la plus forte. M.M. Labes et al ont donné un ordre de grandeur de cette épaisseur critique dans le cas simple d'alignement planaire de force  $W_s$  et d'un alignement homéotrope de force  $W_f$ , en supposant  $W_s > W_f$  :

$$\frac{1}{2} K_1 \left( \frac{1}{W_s} - \frac{1}{W_f} \right) \quad (56)$$

En 1983, Barbero et Barberi [32] ont aussi montré que pour une cellule hybride (homéotrope-planaire), sous l'hypothèse  $W_{\text{homéotrope}} > W_{\text{planaire}}$  et en l'absence de

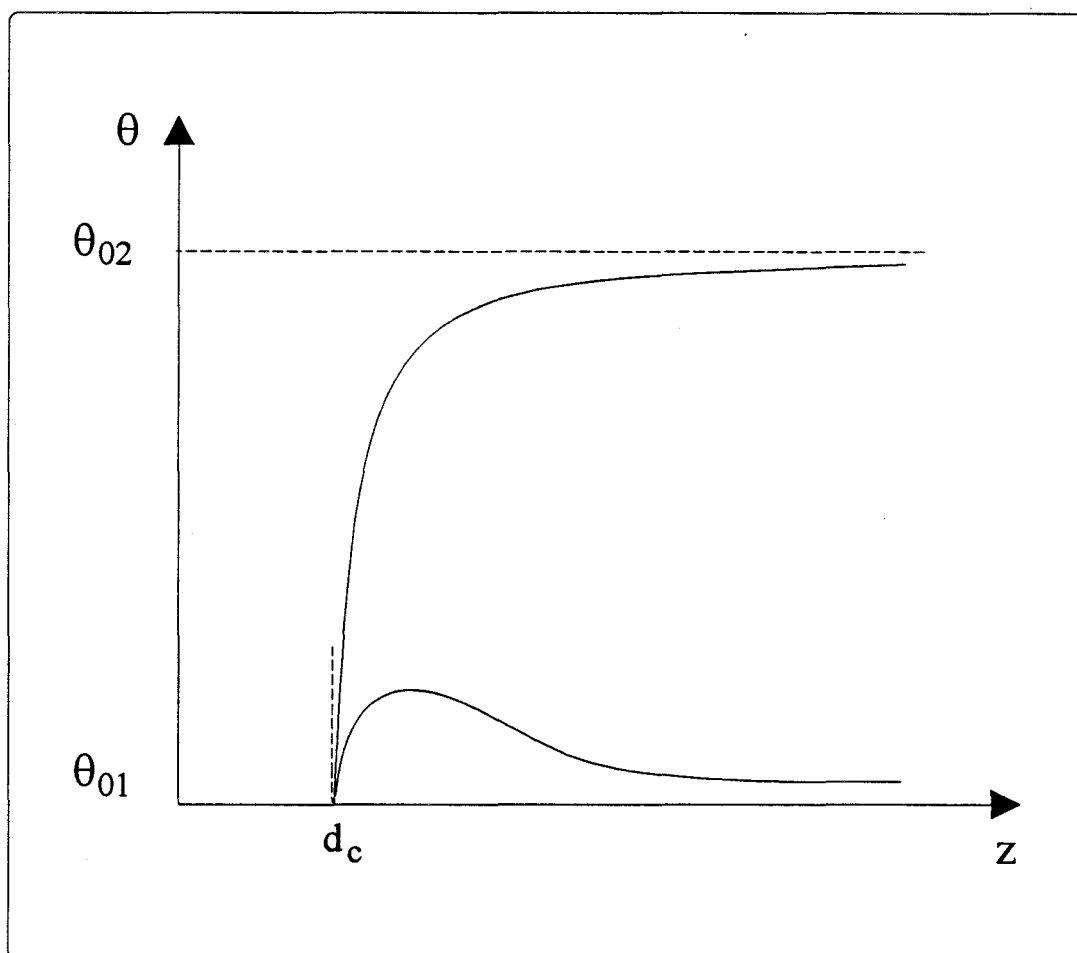
champ électrique, il existe une épaisseur  $d_c$  en dessous de laquelle le cristal liquide n'est pas déformé.

Cependant la plupart des auteurs s'imposent une orientation définie du Nématique à l'interface. Celle-ci correspond donc à une hypothèse de calcul et n'apparaît pas comme une conséquence de la recherche du minimum d'énergie [62, 63]. Donc, tous ces travaux ne permettent pas de prédire les orientations des Nématiques sur un substrat.

M. Warengem [33] a repris la résolution des équations d'équilibre d'un film Nématique en y introduisant pour les énergies interfaciales un développement de Fourier à un ordre supérieur à celui de Rapini et al. En plus du comportement critique, il existe pour des épaisseurs proches de cette épaisseur critique, un comportement original des molécules qui consiste à une inclinaison de celles-ci sur les deux substrats et non pas sur un seul comme le prévoit les autres études, ce qui permet de diminuer la distorsion en volume. L'évolution des angles en surface avec l'épaisseur est montrée sur la Figure 35.

Une alternative à la transition hétérogène-homogène qui apparaît à l'épaisseur critique, est une situation dans laquelle le directeur peut, en plus des distorsions de flexion et de divergence, adopter une distorsion en "twist" ce qui permet également de diminuer l'énergie de déformation du film [64].





*Figure 35 : Evolution avec l'épaisseur du film des angles d'ancrage en surface côté homéotrope ( $\theta_1$ ) et planaire ( $\theta_2$ ) lorsque l'ancrage homéotrope est plus fort que l'ancrage planaire ( $\theta_{01}$  et  $\theta_{02}$  sont les angles faciles à chaque interface). L'évolution de  $\theta_1$ , assez inattendue, est expliquée en disant que la perte d'énergie en surface ( $\theta_1 - \theta_{01} \neq 0$ ) est compensée par une diminution de l'énergie de déformation en volume [33].*

## **II - CONFRONTATION AVEC LA THEORIE ELASTIQUE.**

Nous allons reprendre successivement les trois caractéristiques (épaisseur critique, tilt en surface et distribution angulaire du directeur en volume) mises en évidence par la théorie élastique et les comparer à nos résultats expérimentaux.

### **II - 1 - EPAISSEUR CRITIQUE.**

Rappelons que l'épaisseur critique est mise en évidence si on observe une transition d'orientation hétérogène-homogène lorsque que l'épaisseur varie.

#### **II - 1- 1 - Traitement n-HTAB.**

Nous avons effectivement observé cette transition d'orientation puisqu'à 29  $\mu\text{m}$  le film est homogène, homéotrope et qu'à 37  $\mu\text{m}$ , le film est hétérogène (homéotrope-planaire). A 29  $\mu\text{m}$ , l'épaisseur du film est inférieure à l'épaisseur critique et le substrat de plus forte énergie superficielle impose son orientation dans tout le film. Dans ces conditions d'ancrage, l'épaisseur critique se situerait donc entre 29 et 37  $\mu\text{m}$ . Ce résultat ne restera néanmoins que qualitatif : en effet, si les traitements de surface de chacun des films sont identiques, on ne peut garantir la parfaite reproductibilité des énergies d'ancrage et les valeurs numériques ne sont pas significatives.

#### **II - 1 - 2 - Traitement lécithine.**

Il n'a pas été possible pour cette série de films de mettre en évidence l'épaisseur critique : tous les films sont et restent hétérogènes au fur et à mesure que nous diminuons l'épaisseur. Nous avons constaté qu'en dessous d'environ 14  $\mu\text{m}$ , les

molécules sortent du plan d'incidence. Pour ce type d'échantillons, la solution en "twist" [64] semble énergétiquement moins coûteuse qu'une solution homogène.

## **II - 2 - INCLINAISON EN SURFACE.**

Grâce aux courbes de réflectivité, nous pouvons remonter à l'inclinaison du directeur en surface. L'angle  $\theta_s$  est obtenu comme nous l'avons décrit dans la partie 1 (chapitre 3, III - 2), par comparaison de l'ensemble de valeurs d'indices ( $n_o(T,\lambda)$ ,  $n_e(T, \lambda)$ ) et en utilisant la relation (3) (Partie 1, chapitre 1, I - 2). Compte tenu des précisions sur la température, les indices principaux et l'angle limite, nous estimons que la précision sur l'angle d'inclinaison est de l'ordre du degré.

### **II - 2 - 1 - Traitement n- HTAB.**

Pour ces films, nous ne disposons pas de la nouvelle cellule à épaisseur variable et les épaisseurs étaient fixées par des cales de mylar. Les quatre films correspondent à chaque fois à des énergies d'ancrage différentes et l'évolution de l'angle de tilt ne représente donc pas l'évolution de cet angle en fonction de l'épaisseur pour des énergies d'ancrage données. Cette étude, dans ce cas précis, ne nous a pas paru intéressante et nous ne présentons pas de résultats.

### **II - 2 - 2 - Traitement lécithine.**

Nous avons tracé les courbes  $\theta_s = f(d)$  pour chacun des films et nous les présentons sur les Figures 36 à 41. Les courbes ont un comportement similaire, c'est à dire que l'angle en surface reste à peu près constant jusqu'à une épaisseur d'environ 40  $\mu\text{m}$  puis commence à croître légèrement pour des épaisseurs plus faibles, ce qui est

conforme à la théorie élastique : l'augmentation de cet angle permet de diminuer la distorsion en volume et ainsi de rééquilibrer les énergies de déformations de volume et de surface. Lorsque l'épaisseur diminue encore, la théorie prévoit soit une diminution de l'angle de tilt juste avant la transition hétérogène-homogène, soit une déformation avec twist. C'est cette dernière solution qui est adoptée dans nos films traités avec de la lécithine.

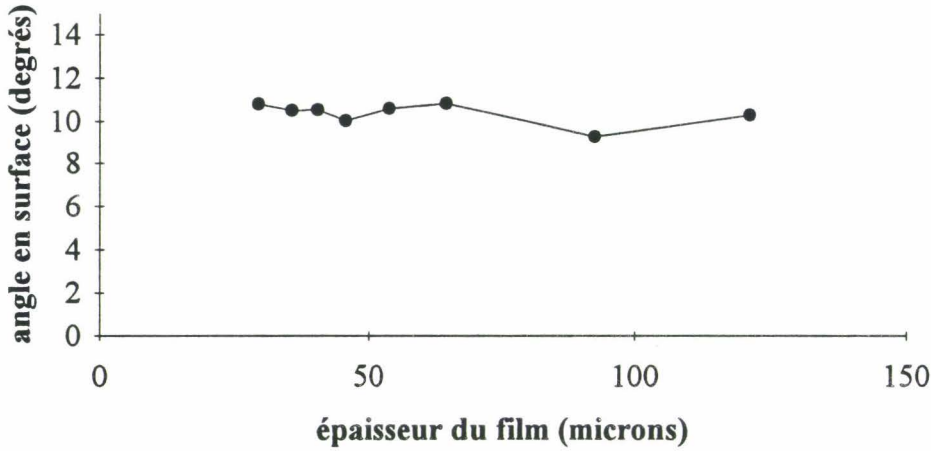


Figure 36 : Variation de l'angle en surface pour un point sur le film 1

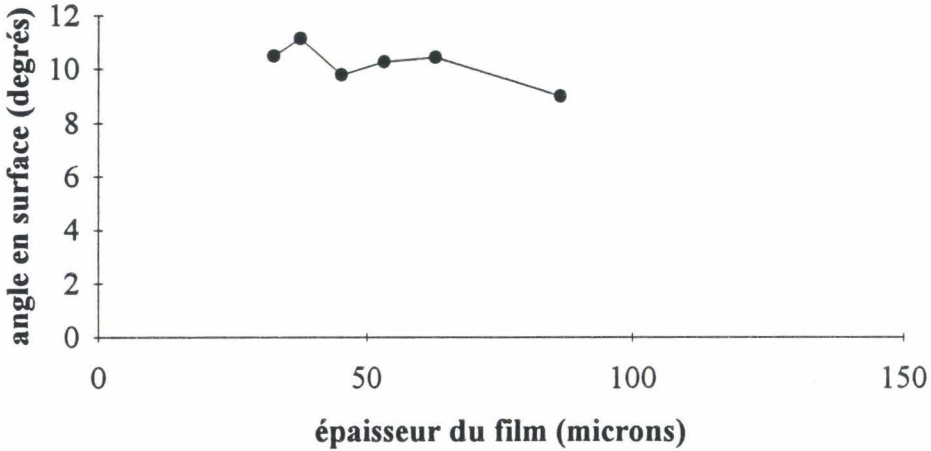


Figure 37 : Variation de l'angle en surface pour un deuxième point sur le film 1.

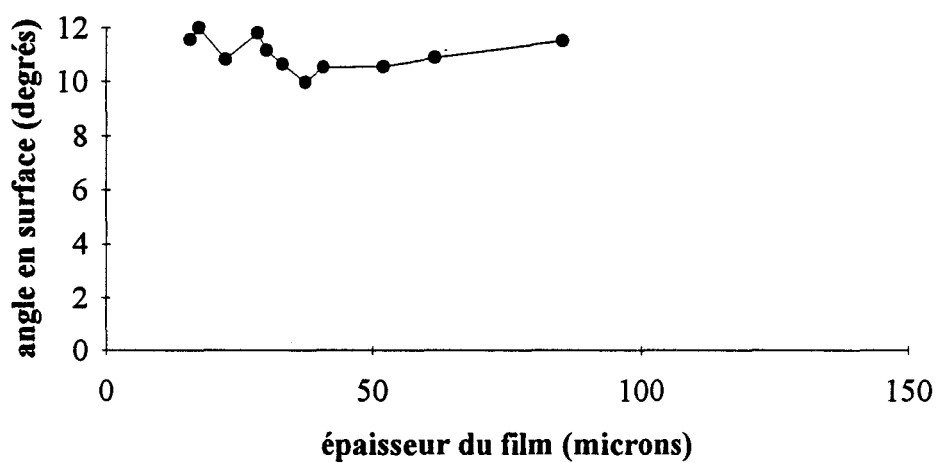


Figure 38 : Variation de l'angle en surface pour le film 2.

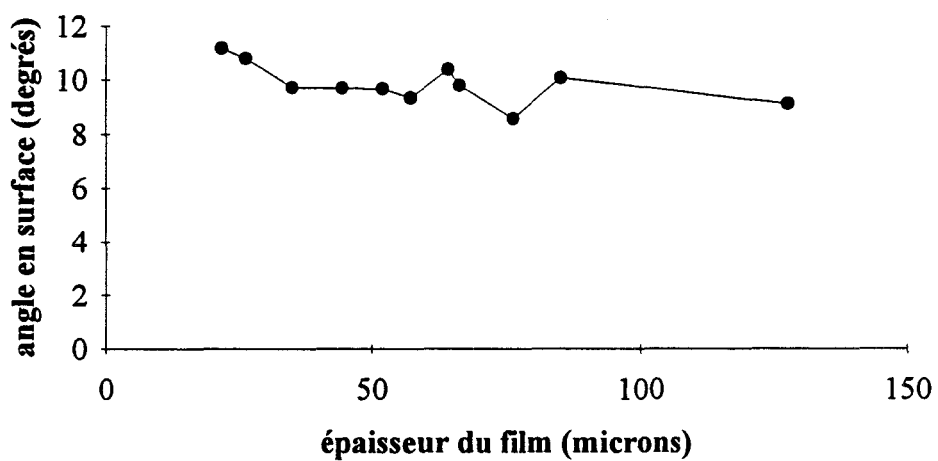


Figure 39 : Variation de l'angle en surface pour un point sur le film 3.

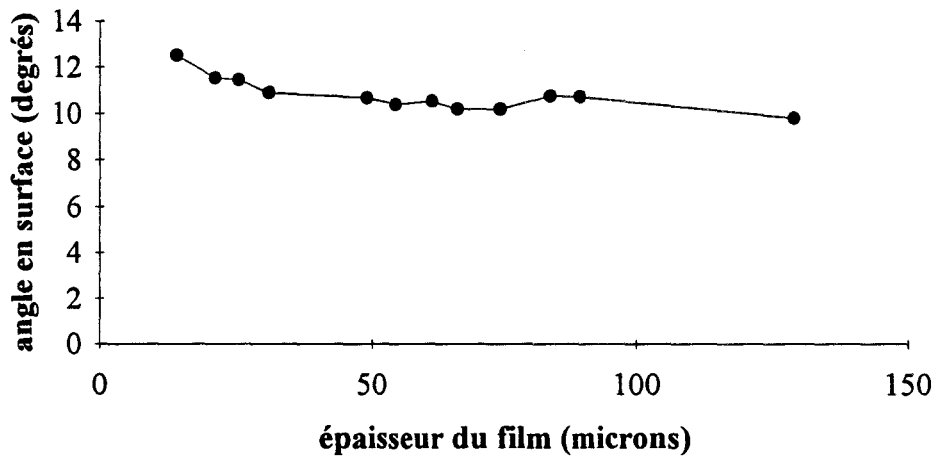


Figure 40 : Variation de l'angle en surface pour le deuxième point sur le film 3.

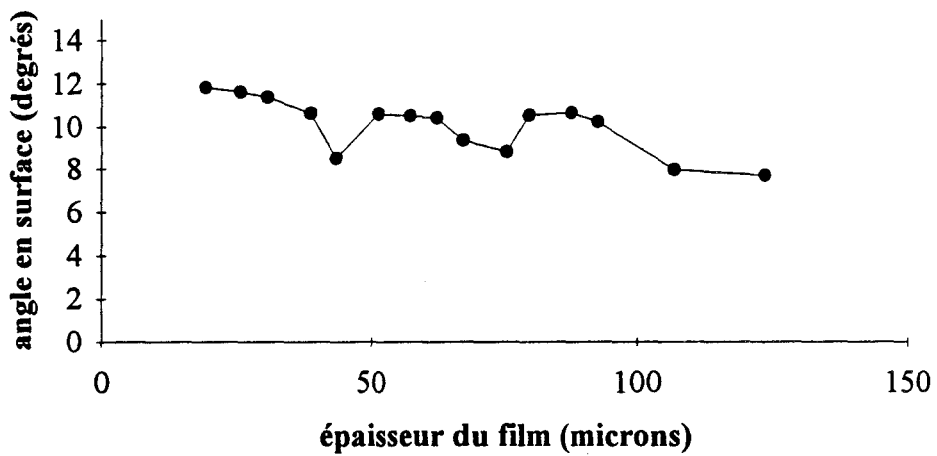


Figure 41 : Variation de l'angle en surface pour le film 4.

## **II - 3 - DISTRIBUTION DU DIRECTEUR EN VOLUME.**

En utilisant le traitement numérique, que nous avons décrit dans la partie 1 (chapitre 3, III-4), (qui, rappelons le, a l'avantage d'être indépendant de tout modèle théorique) nous avons tracé l'angle  $\theta$  du directeur en volume en fonction de l'épaisseur des films. Nous avons comparé les résultats obtenus avec ceux déduits de la théorie élastique classique (relation (55)). Nous distinguons une fois de plus, les résultats obtenus avec la série de films préparés avec du n-HTAB et la série de films préparés avec de la lécithine.

### **II - 3 - 1 - Traitement n-HTAB.**

Comme on peut le constater sur la Figure 42, les résultats obtenus sont en accord avec la théorie élastique. Pour faire cette comparaison, nous avons dû ajuster la valeur des angles  $\theta_h$  et  $\theta_p$  (ancrage en surface, homéotrope et planaire), donnée par les conditions aux limites (énergies de surface) et nous avons retenu les valeurs suivantes :

-  $\theta_h = 2.5^\circ$ ,  $\theta_p = 92^\circ$ , valeurs qui sont reportées sur la Figure 42. Cette dernière valeur, supérieure à  $90^\circ$  peut paraître surprenante mais il ne s'agit là que d'un fit et les valeurs expérimentales ne concernent qu'une gamme d'épaisseur proche de la première interface. Une valeur de l'angle d'ancrage supérieure à  $90^\circ$  sur la deuxième interface peut ainsi signifier qu'il y a une distorsion quelque part pour des épaisseurs non explorées (cf, par exemple, le cas de la Figure 34).

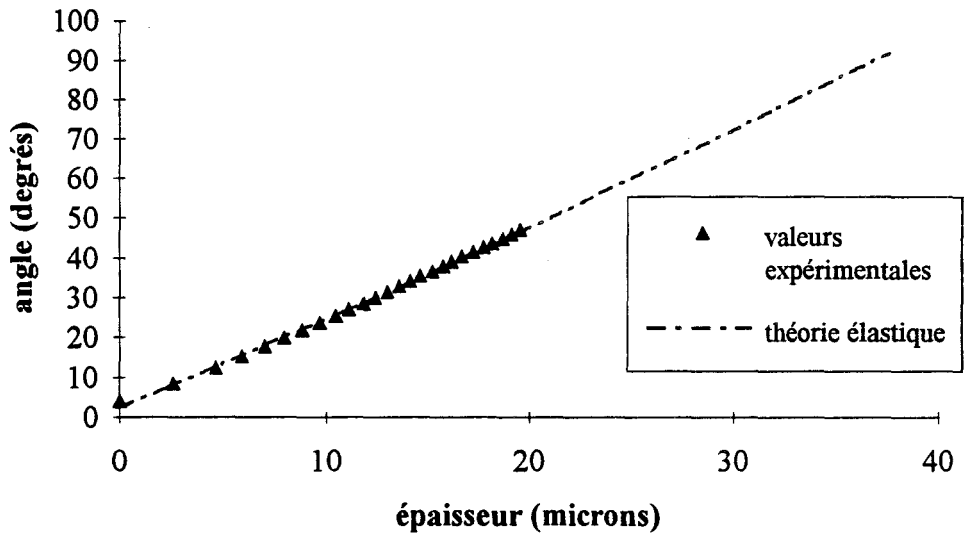


Figure 42 : Comparaison de la distribution angulaire du directeur obtenue expérimentalement et celle déduite de la théorie élastique (épaisseur de 37  $\mu\text{m}$ ).

### II - 3 - 2 - Traitement lécithine.

De même que dans le paragraphe précédent, nous avons comparé la distribution angulaire du directeur obtenue avec nos résultats expérimentaux et celle donnée par la théorie élastique. Les courbes ont toutes la même allure, représentée sur la figure 43 et on peut cette fois-ci constater que s'il y a concordance entre les résultats expérimentaux et théoriques dans le volume, ceci n'est plus vrai près de l'interface.

Les valeurs de  $\theta_h$  et de  $\theta_p$  qui fittent le mieux la distribution en volume sont regroupées dans les tableaux 5-a à 5-d. Si un écart de l'ordre de deux degrés est tolérable sur la valeur annoncée de  $\theta_p$ , pour  $\theta_h$ , un écart d'un demi degré suffit pour que la courbe théorique s'écarte notablement des valeurs expérimentales.



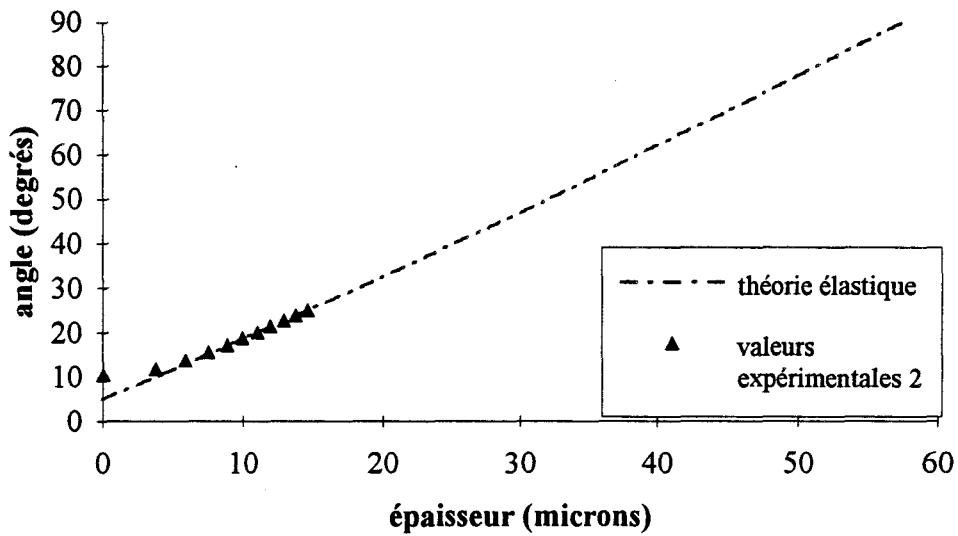


Figure 43 : Comparaison de la distribution du directeur en volume  $\theta(z)$  obtenue expérimentalement et celle déduite de la théorie élastique (épaisseur  $67 \mu\text{m}$ ).

Nous avons représenté sur les Figures 44 à 49, les variations de ces deux angles en fonction de l'épaisseur des films. Nous pouvons remarquer que l'angle côté homéotrope est quasiment constant ( $5^\circ$ ).

film 1-a			film 1-b		
épaisseur ( $\mu\text{m}$ )	$\theta_h$ (degrés)	$\theta_p$ (degrés)	épaisseur ( $\mu\text{m}$ )	$\theta_h$ (degrés)	$\theta_p$ (degrés)
121	5	90			
92	5	80	86	4.3	80
65	6	90	63	5.1	90
54	5.6	90	53	5.5	89
46	5.2	90	45	5.2	90
40	6	90			
36	6	90	37	5.9	86
30	5.4	87	33	5.8	85

*Tableau 5-a : Valeurs de  $\theta_h$  et  $\theta_p$  retenues pour fitter la distribution angulaire du directeur pour deux points différents (1-a, 1-b) du film 1.*

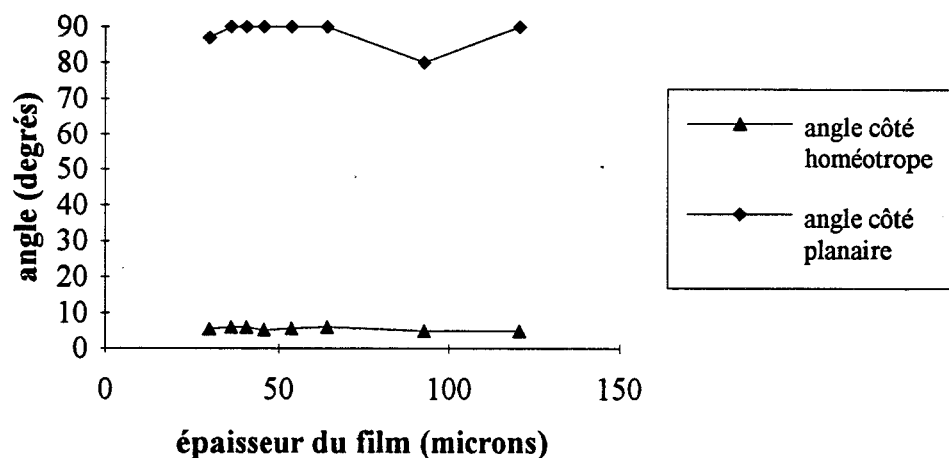


Figure 44 : Variation des angles d'ancrage de la théorie élastique en fonction de l'épaisseur pour le premier point sur le film 1.

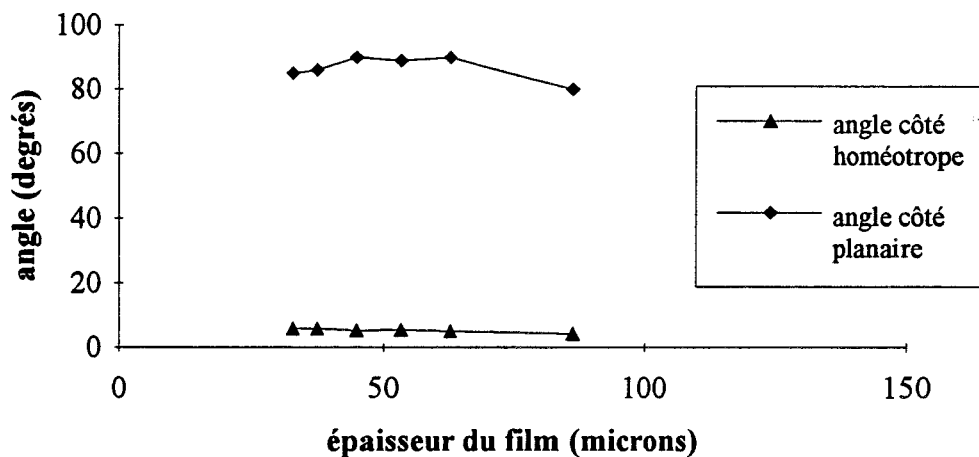


Figure 45 : Variation des angles d'ancrage de la théorie élastique en fonction de l'épaisseur pour le deuxième point sur le film 1.

film 2		
épaisseur ( $\mu\text{m}$ )	$\theta_h$ (degrés)	$\theta_p$ (degrés)
86	6.8	84
61	6.2	87
52	5.7	90
41	5.9	90
37	5.9	89
33	6.4	85
30	6.8	84
29	6.2	89
22	6.2	90
17	6.9	90
16	6.5	90

Tableau 5-b : Valeurs de  $\theta_h$  et  $\theta_p$  retenues pour fitter la distribution angulaire du directeur du film 2.

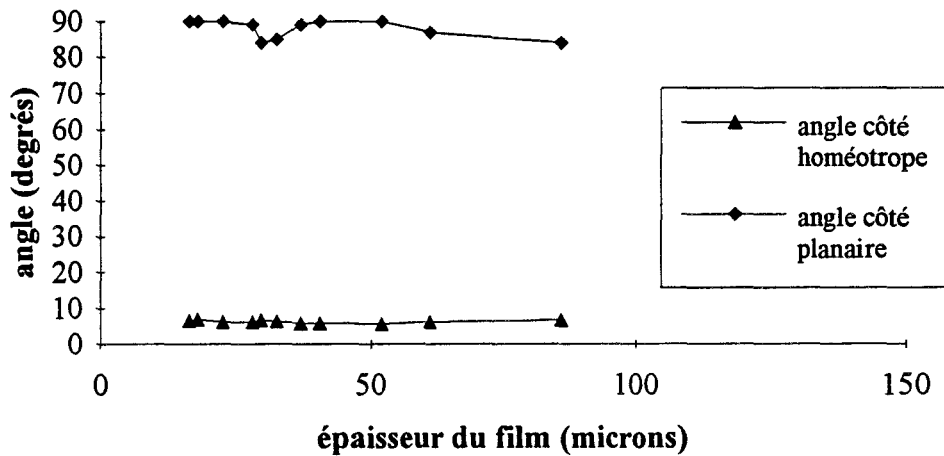


Figure 46 : Variation des angles d'ancrage de la théorie élastique en fonction de l'épaisseur pour le film 2.

film 3-a			film 3-b		
épaisseur ( $\mu\text{m}$ )	$\theta_h$ (degrés)	$\theta_p$ (degrés)	épaisseur ( $\mu\text{m}$ )	$\theta_h$ (degrés)	$\theta_p$ (degrés)
			140		
127	5.2	75	129	5.4	91
			89	5.5	90
85	5.3	80	83	5.5	89
76	4	89	74	5.4	90
66	5	83	66	4.9	90
64	5	89	62	5.8	90
57	4.5	90	54	5.7	87
52	4.9	88	49	5.5	89
44	5.1	90			
35	5.3	91	31	5.7	90
26	5.5	86	25	6.5	90
22	5.2	90	21	6.2	90
14	6.5	90	14	7.3	90

*Tableau 5-c : Valeurs retenues pour  $\theta_h$  et  $\theta_p$  pour fitter la distribution du directeur pour deux points différents du film 3.*

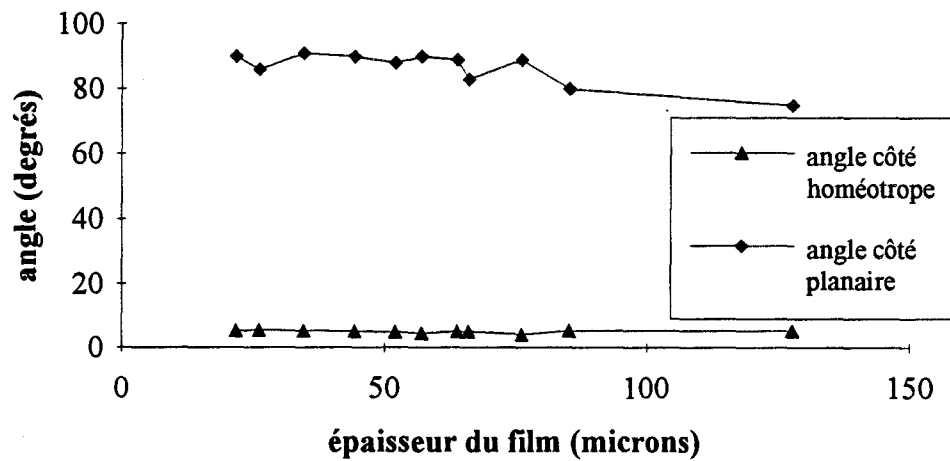


Figure 47 : Variation des angles d'ancrage de la théorie élastique en fonction de l'épaisseur pour le premier point sur le film 3.

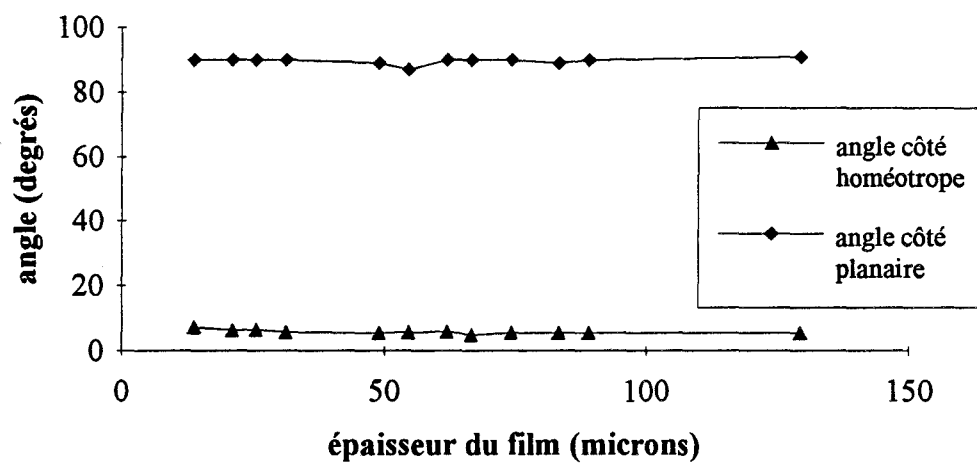


Figure 48 : Variation des angles d'ancrage de la théorie élastique en fonction de l'épaisseur pour le deuxième point sur le film 3.

film 4		
épaisseur ( $\mu\text{m}$ )	$\theta_h$ (degrés)	$\theta_p$ (degrés)
124	4	88
107	4.7	90
93	5	89
88	5.4	92
79	5.3	89
75	4.2	92
67	5.7	88
63	6.2	90
58	6.5	90
51	7.5	89
43	7.5	88
38	8.5	90
31	7.5	89
26	9	88

*Tableau 5-d : Valeurs retenues pour  $\theta_h$  et  $\theta_p$  pour fitter la distribution du directeur du film 4.*

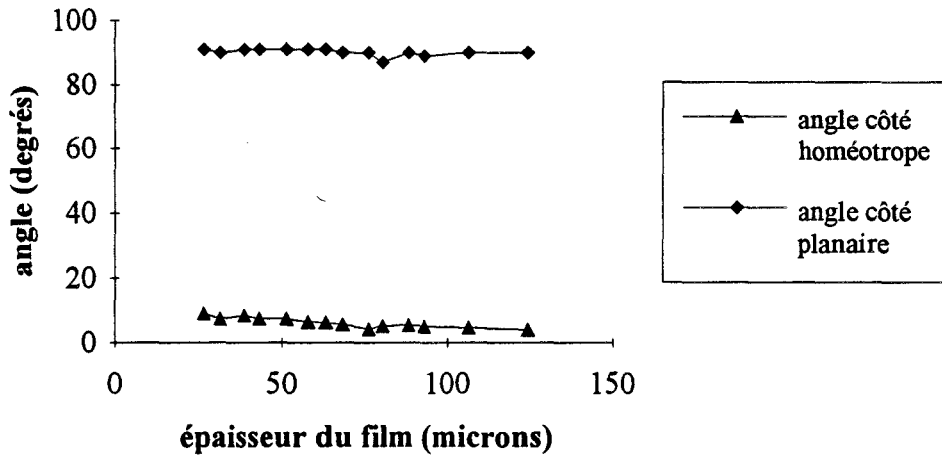


Figure 49 : Variation des angles d'ancrage de la théorie élastique en fonction de l'épaisseur pour le film 4.

### III - CONCLUSION.

Nous avons trouvé dans le paragraphe précédent que la théorie élastique classique concorde bien avec la distribution angulaire expérimentale du directeur en volume mais pas près de la surface. Nous avons donc complété le fit pour qu'il y ait aussi concordance avec les valeurs expérimentales correspondant aux couches proches de l'interface prisme-nématique, sans préjuger d'une quelconque explication de l'effet observé donc d'un quelconque modèle. L'idée est conserver le fit en volume et d'ajouter une expression qui décroît rapidement avec  $z$ . Nous avons essayé une solution sous la forme d'une exponentielle décroissante :

$$\theta(z) = \theta_{\text{élast.}}(z) + (\theta_s - \theta_h) e^{-\frac{z\mu}{d}} \quad (57)$$



où  $\theta_{\text{élast.}}$  est l'expression théorique (55) et  $\theta_s, \theta_h$  sont respectivement l'angle de tilt du directeur en surface et l'angle d'ancrage de la théorie élastique,  $d$  l'épaisseur du film. Nous avons conservé les valeurs de  $\theta_s, \theta_h$  et  $\theta_p$  données dans les Tableaux 5-a à 5-d et nous avons adapté le paramètre  $\mu$ . Celui-ci est relativement peu sensible : une variation de sa valeur de 0.5 ne change que très peu la courbe  $\theta(z)$ . Les valeurs obtenues pour  $\mu$  sont représentées sur les Figures 50 à 55. On remarque qu'elles sont quasiment constantes en fonction de l'épaisseur et que la valeur moyenne est environ 19 pour trois des quatre films (les valeurs pour le film 4 sont légèrement plus élevées), autrement dit "l'épaisseur de pénétration" de l'effet qui gouverne le phénomène de surface est proportionnelle à l'épaisseur du film.

Ce résultat remarquable devrait aider à la compréhension du phénomène observé pour le surfactant considéré - lécithine -.

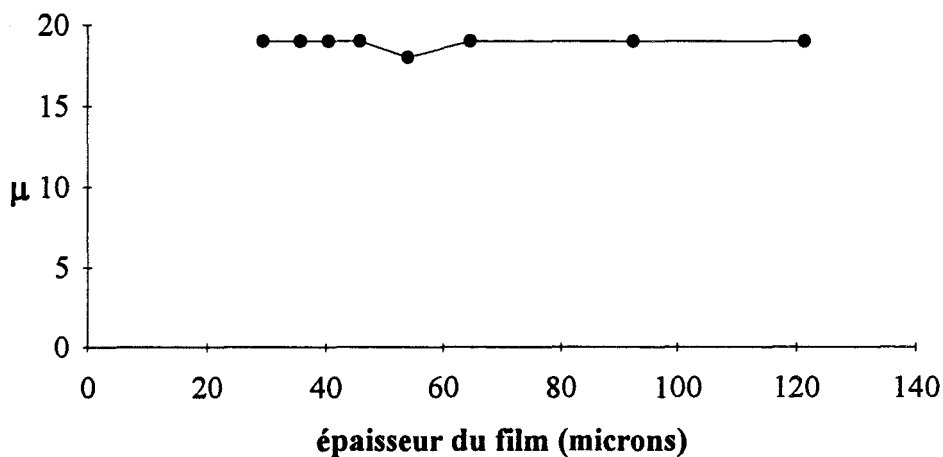


Figure 50 :  $\mu = f(d)$  pour le premier point sur le film 1.

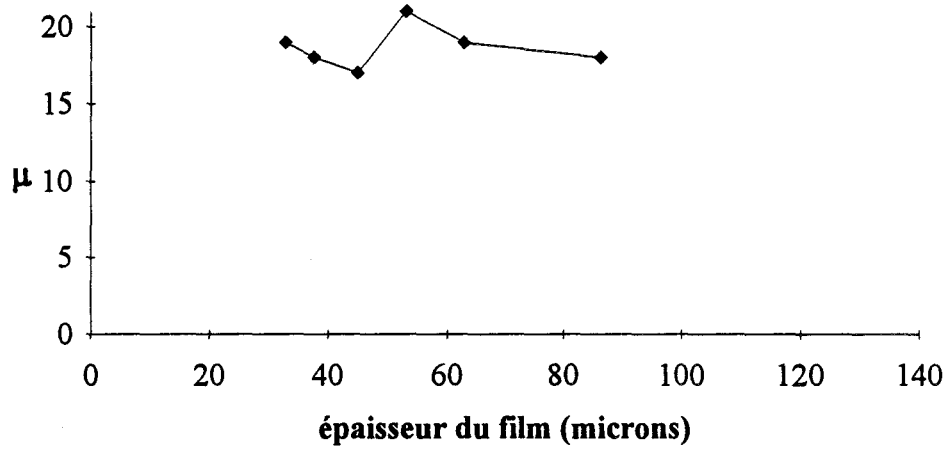


Figure 51 :  $\mu = f(d)$  pour le deuxième point sur le film 1.

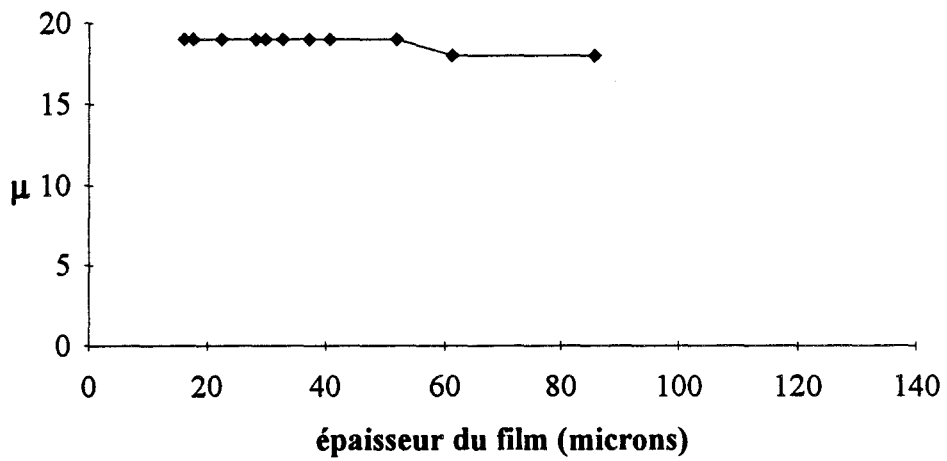


Figure 52 :  $\mu = f(d)$  pour le film 2.

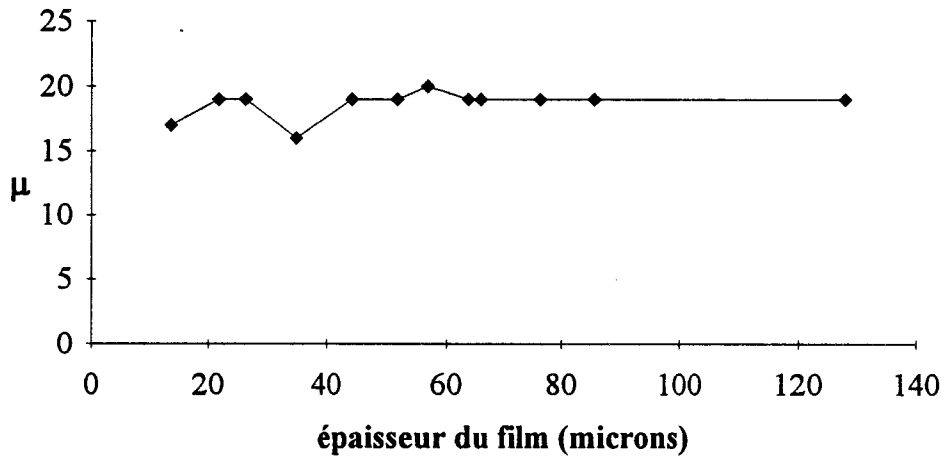


Figure 53 :  $\mu = f(d)$  pour le premier point sur le film 3.

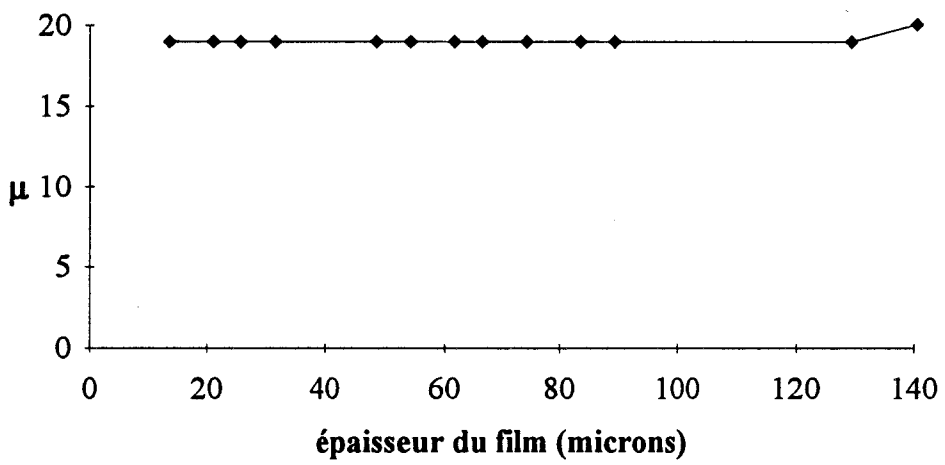


Figure 54 :  $\mu = f(d)$  pour le deuxième point sur le film 3.

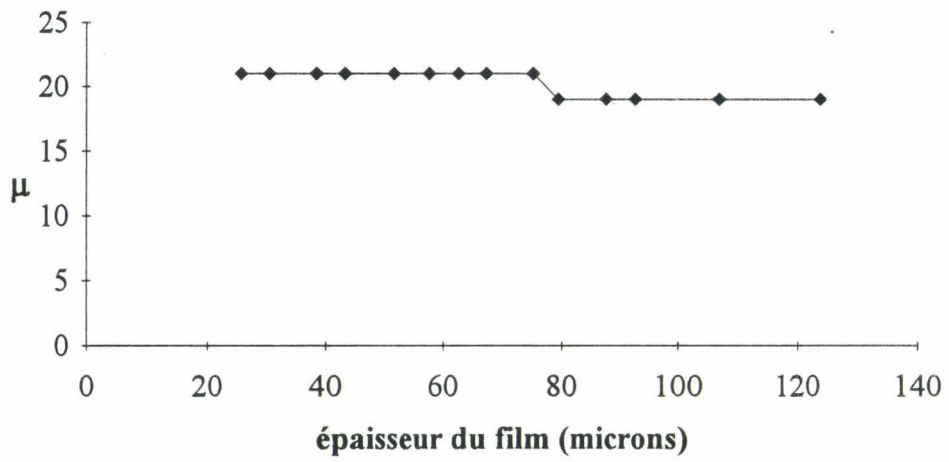


Figure 55 :  $\mu = f(d)$  pour le film 4.

# **CONCLUSION**



Le but de ce travail était d'étudier l'orientation de films nématiques en fonction de l'épaisseur. L'équilibre d'un tel film met en jeu deux énergies de surface et une énergie de volume et pour faire cette étude nous avons choisi une technique expérimentale qui nous permet à la fois d'explorer la surface et le volume. Cette technique est basée sur le principe de la réflexion totale. La courbe de réflectivité (intensité réfléchie par le film en fonction de l'angle d'incidence du faisceau à l'interface verre-Nématique) présente deux régimes : un régime de réflexion totale (à l'interface verre-Nématique) et un régime de transmission. Ces deux régimes sont séparés par un point anguleux dont l'abscisse angulaire nous permet de calculer les indices de réfraction du matériau étudié et de remonter à l'angle d'inclinaison du directeur à la surface. Outre ce point anguleux, les courbes présentent en régime transmission des oscillations liées à un phénomène d'interférences. L'analyse de ces oscillations, nous permet de déterminer la nature homogène ou hétérogène du film, de calculer l'épaisseur totale du film et de remonter à la distribution angulaire du directeur Nématique dans le volume  $\theta(z)$ . L'originalité du traitement des données tient dans le fait que la distribution obtenue est indépendante de tout modèle théorique, puisqu'il ne s'appuie que sur un calcul de déphasage de deux faisceaux qui interfèrent entre-eux.

Les paramètres pertinents de la structure orientationnelle des films nématiques sont, outre les caractéristiques physiques du cristal liquide (par exemple, les constantes élastiques), les énergies d'ancrage aux interfaces, la température et l'épaisseur du film. Il est donc intéressant de pouvoir faire varier chacun de ces paramètres pendant que les autres restent constants. Pour cela, nous avons mis au point une cellule à épaisseur variable et contrôlable au moyen de butées piézoélectriques. Nous avons également joué sur le paramètre énergie d'ancrage en utilisant deux surfactants différents : le bromure d'hexadécyltriméthylammonium et la lécithine, plus ou moins dilués afin d'obtenir des ancrages plus ou moins faibles. Par contre, les indices de réfraction sont très sensibles aux variations de température et nous avons dû contrôler minutieusement la température au cours des différentes expériences.

Nous avons choisi de travailler avec des films de 5CB. Nous avons enregistré puis interprété les courbes de réflectivité obtenues pour deux polarisations TM et TE, respectivement normale et perpendiculaire au plan d'incidence, avec les deux traitements de surface et nous les avons comparé au modèle théorique le plus couramment utilisé, c'est à dire celui de la théorie élastique. Basée sur la minimisation de l'énergie totale du film, cette théorie prévoit :

- une transition d'orientation (hétérogène-homogène) à l'épaisseur critique.
- une inclinaison inattendue du directeur Nématique sur les deux substrats pour des épaisseurs proches de l'épaisseur.

- une distribution angulaire du directeur dans le volume donnée par des intégrales elliptiques.

Pour le traitement n-HTAB, ces trois points ont pu être vérifiés et sont en parfait accord avec la théorie élastique. Par contre, pour le traitement lécithine, les résultats obtenus sont originaux. D'abord, nous n'avons pas pu mettre en évidence la transition d'orientation à l'épaisseur critique et nous avons vu qu'une explication possible en est une solution où les molécules s'inclinent en dehors du plan d'incidence, solution également prévue par la théorie pour minimiser l'énergie de déformation en volume. Ensuite, nous avons constaté que si la théorie élastique est en accord avec la valeur de la distribution angulaire  $\theta(z)$  dans le volume, cela n'est plus vrai au fur et à mesure que l'on se rapproche de l'interface. Nous avons alors trouvé qu'un terme correctif en décroissance exponentielle additionné à la distribution du directeur donnée par la théorie élastique donne des valeurs très proches des valeurs expérimentales. La "longueur de pénétration" de la décroissance est trouvée proportionnelle à l'épaisseur du film.

Ce résultat devrait nous guider pour expliquer le phénomène observé. Plusieurs modèles ont déjà été proposés pour représenter les comportements probables d'un Nématique près d'une interface : un paramètre d'ordre non constant dans le film [2, 5] ; un modèle dit de "second order elasticity" ( $K_{13}$ ) [65, 66] ; la flexoélectricité et la double couche électrique en surface [67, 68]. Tous ces modèles donnent en première approximation un écart exponentiel à la théorie élastique près de l'interface. Les deux



premiers modèles semblent devoir être écartés d'une part sur des arguments d'ordre de grandeur : l'effet attendu n'intéresse qu'une épaisseur mésoscopique alors que nous observons un effet sur des dimensions de l'ordre du micron et d'autre part, la longueur de pénétration de la décroissance exponentielle dépend linéairement de l'épaisseur alors que dans ces deux théories, cette dépendance n'intervient pas. Par contre, il a été démontré [69, 70] que la double couche électrique et le potentiel ou le champ électrique qui en découle, dépendent du volume de matériau donc ici de l'épaisseur du film. Une interprétation en termes de flexoélectricité et de double couche électrique semble ainsi assez probable, d'autant plus que les ordres de grandeur des épaisseurs des couches concernées sont de l'ordre du micron, ce qui est comparable à ce que nous avons observé.

Tout cet aspect modélisation constitue la suite logique de ce travail.



# ANNEXES



## ESSAIS DES BUTEES PIEZOELECTRIQUES SUR DES CELLULES TESTS

L'épaisseur du film peut être ajustée à l'aide de butées piézoélectriques en série avec un micromètre standard. La plus petite graduation sur le vernier des butées correspond à un déplacement mécanique de  $2.54 \mu\text{m}$ . Electroniquement, le déplacement d'une butée est donnée par la courbe de calibration (tension en fonction du déplacement) fournie par le constructeur.

Lorsque l'on change l'épaisseur du film, il est indispensable de conserver le parallélisme du prisme par rapport à la lame, en d'autres termes, la tension appliquée à chaque butée doit être telle que les déplacements induits soient identiques pour les trois butées. Celles-ci étant calibrées, il ne reste qu'à s'assurer que le générateur délivre la même tension sur les trois voies. Après différents essais, il est apparu qu'il suffisait de corriger la tension affichée sur le boîtier de 1 % pour la butée 2, pour que l'accord entre les trois tensions délivrées soit bon et le parallélisme respecté. Cette vérification étant faite, nous avons fait des expériences sur trois cellules "tests" afin de contrôler la courbe de calibration (quasi linéaire, pente de  $4 \mu\text{m} / 1000 \text{ V}$ ). Nous avons travaillé sur un produit isotrope : le 1-bromonaphtalène, pur à 98 %, de chez Jansen Chimica. Sa densité est de  $1.4890 \text{ g/ml}$ . D'après le fournisseur, l'indice du bromonaphtalène à  $20 \text{ }^\circ\text{C}$  et pour la raie du sodium est de  $1.6576$ . Les résultats obtenus sont présentés sur dans le tableau A1.

	film 1	film 2	film 3
V = 0 V	28.24 $\mu\text{m}$	56.79 $\mu\text{m}$	80.53 $\mu\text{m}$
V = 100 V	29.25 $\mu\text{m}$	56.54 $\mu\text{m}$	80.89 $\mu\text{m}$
V = 200 V	29.55 $\mu\text{m}$	56.51 $\mu\text{m}$	81.41 $\mu\text{m}$
V = 300 V	29.72 $\mu\text{m}$	57.13 $\mu\text{m}$	81.93 $\mu\text{m}$
V = 400 V	30.50 $\mu\text{m}$	57.64 $\mu\text{m}$	82.27 $\mu\text{m}$
V = 500 V	30.78 $\mu\text{m}$	57.94 $\mu\text{m}$	82.91 $\mu\text{m}$
V = 600 V	31.04 $\mu\text{m}$	58.75 $\mu\text{m}$	
V = 700 V	31.58 $\mu\text{m}$	58.85 $\mu\text{m}$	84.14 $\mu\text{m}$
V = 800 V	32.59 $\mu\text{m}$	59.43 $\mu\text{m}$	84.19 $\mu\text{m}$
V = 900 V	33.09 $\mu\text{m}$	60.00 $\mu\text{m}$	84.58 $\mu\text{m}$
V = 1000 V	33.17 $\mu\text{m}$	60.05 $\mu\text{m}$	84.76 $\mu\text{m}$

*Tableau A1 : Epaisseurs mesurées pour trois films de 1-bromonaphtalène en fonction des tensions appliquées aux butées (l'épaisseur est obtenue en traitant les courbes de réflectivité).*

Les films 1 et 2 correspondent à deux échantillons différents. Par contre, les films 2 et 3 correspondent au même échantillon dont nous avons changé l'épaisseur manuellement. Signalons à ce sujet que la diminution d'épaisseur au début de l'expérience n° 2 peut s'expliquer par le fait que nous n'aurions pas laissé assez de temps au produit pour fluer entre les deux changements d'épaisseur.

Assimilées à des droites, chacune des courbes représentant le déplacement obtenu en fonction de la tension appliquée nous donne une pente que nous pouvons comparer à celle donnée par le constructeur. Les valeurs que nous avons obtenues sont les suivantes:

- film 1 :  $e = 0.0048553 \text{ V} + 28.440245$
- film 2 :  $e = 0.0045422 \text{ V} + 55.756112$
- film 3 :  $e = 0.0045163 \text{ V} + 80.551903$

d'où une pente moyenne de  $4.6 \mu\text{m}$  pour  $1000 \text{ V}$ . Pour faire le fit sur la courbe correspondant au film 2, nous avons au préalable éliminé les trois premières valeurs qui nous semblaient incohérentes. Rappelons que ces expériences ont été réalisées avec un produit isotrope assez fluide. Dans le cas des cristaux liquides, il est préférable de ne travailler qu'en épaisseur décroissante de manière à toujours faire fluer le produit vers l'extérieur de la cellule (l'inverse engendrant, en plus des effets de pressions atmosphériques, des perturbations orientationnelles).





**REFERENCES**  
**BIBLIOGRAPHIQUES**



- [1] - F. Reinitzer, *Monatsh. Chem.* 9, (1888), p. 421.
- [2] - P.G. de Gennes, *The Physics of Liquid Crystals*, (1974).
- [3] - G. W. Gray, P. A. Winsor, *Liquid Crystals & Plastics Crystals*, Vol. 1 et 2, Ed. Ellis Horwood, 1974.
- [4] - W.H. de Jeu, *Physical properties of liquid crystalline materials*, Ed. Gordon and Breach, (1980).
- [5] - C. W. Oseen, *Trans. Faraday Soc.*, 29, (1933), p. 883.  
W. Tsvetkof, *Acta Physicochim.*, URSS, 16, (1942), p. 132.
- [6] - A. Rapini, M. Papoular, *J. Phys.*, Colloque C-4, suppl. n° 11-12, Tome 30, (1969), p. 54.
- [7] - H. Mada, *Mol. Cryst. Liq. Cryst.*, Vol. 53, (1979), pp.127-136.
- [8] - P.J. Barratt, I.T. Jenkins, *J. Phys.*, 10, (1973), p. 756.
- [9] - W.A. Crossland, *Appl. Phys. Lett.*, 26, (1975), p. 598.
- [10] - C. Mauguin, *Bull. Soc. fr. Miner.*, 34, (1911), p. 71.
- [11] - P. Chatelain, *Bull. Soc. fr. Miner.*, 66, (1943), p. 105.
- [12] - D.C. Flanders, D.C. Shaver, H.I. Smith, *Appl. Phys. Lett.*, 32, (1978), p. 597.
- [13] - J. Cheng, G.D. Boyd, *Appl. Phys. Lett.*, 35, n°6, (1979), p. 444.

- [14] - H.V. Känel, J.D. Litster, J. Melngailis, H.I. Smith, Phys. Rev. A, Vol. 24, n°5, (1981), p. 3713.
- [15] - F.J. Kahn, Appl. Phys. Lett., Vol. 22, n°8, (1973), p. 386.
- [16] - J.L. Janning, Appl. Phys. Lett., Vol. 21, n°4, (1972), p.173.
- [17] - W.R. Heffner, D.W. Berreman, M. Sammon, S. Meiboom, Appl. Phys. Lett., 36, n°2, (1980), p. 144.
- [18] - A. Hochbaum, M.M. Labes, J. Appl. Phys., 53, n°4, (1982), p. 2998.
- [19] - P.N. Sanda, D.B. Dove, H.L. Ong, S.A. Jansen, R. Hoffmann, Phys. Rev. A, Vol. 39, n°5, (1989), p. 2653.
- [20] - J.E. Proust, L. Ter-Minassian-Saraga, E. Guyon, Solid State Commun., Vol. 11, (1972), pp. 1227-1230.
- [21] - R.A. Kashnow, 4<sup>th</sup> International Liquid Crystal Conference, Kent, Ohio, (1972).
- [22] - S. Matsumoto, D. Nakagawa, N. Kaneko, K. Mizunoya, Appl. Phys. Lett., Vol. 29, n°2, (1976), p. 67.
- [23] - K. Hiltrop, H. Stegemeyer, Mol. Cryst. Liq. Cryst., 49, (1978), p. 61.
- [24] - K. Flatischler, L. Komitov, S.T. Lagerwall, B. Stebler, Mol. Cryst. Liq. Cryst., Vol. 198, (1991), pp. 119-130.

- [25] - S. Matsumoto, M. Kawamoto, N. Kaneko, *Appl. Phys. Lett.*, Vol. 27, n°5, (1975), p. 268.
- [26] - S. Frunza, M. Fiti, L. Frunza, D.N. Stoenescu, R. Moldovan, T. Beica, *Liq. Cryst.*, Vol. 16, n°2, (1994), pp. 277-285.
- [27] - E. Guyon, P. Pieranski, M. Boix, *Lett. Appl. Eng. Sci.*, 1, (1973), p. 19 ;  
E. Guyon, P. Pieranski, M. Boix, *J. Phys.*, 39, (1978), p. 99.
- [28] - E.P. Raynes, D.K. Rowell, I.A. Shanks, *Mol. Cryst. Liq. Cryst.*, Vol. 34 (letters), (1976), pp. 105-110.
- [29] - G. Porte, *J. de Phys.*, Tome 37, (1976), p. 1245.
- [30] - S. Frunza, R. Moldovan, T. Beica, D. Stoenescu, M. Tintaru, *Liq. Cryst.*, Vol. 14, n°2, (1993), pp. 293-296.
- [31] - H. Seki, Y. Masuda, Y. Itoh, T. Uchida, *Mol. Cryst. Liq. Cryst.*, Vol. 199, (1991), pp. 151-158.
- [32] - G. Barbero, R. Barberi, *J. Phys.* 44, (1983), pp. 609-616.
- [33] - M. Warenghem, N. Isaert, *J. Optics (Paris)*, Vol. 16, n° 1, (1985), pp. 37-45.
- [34] - V. Freedericksz, V. Zwetkoff, *Phys. Zeit. der Sowjetunien*, 6, (1934), p. 490.
- [35] - R.A. Kashnow, C.R. Stein, *Appl. Optics*, 12, (1973), p. 2309.
- [36] - G. Labrunie, S. Valette, *Appl. Optics*, 13, (1974), p. 1802.

- [37] - D.J. Chanin, Appl. Phys. Lett., 22, (1973), p. 365.
- [38] - J.P. Sheridan, J.M. Schnur, T.C. Giallorenzi, Appl. Phys. Lett., 22, (1973), P. 561.
- [39] - Ch. Hu, J.R. Whinnery, N.M. Amer, IEEE J. Quant. Electronics, QE-10, (1974), p. 218.
- [40] - Ch. Hu, J.R. Whinnery, IEEE J. Quant. Electronics, QE-10, (1974), p. 556.
- [41] - D. Rivière, Y. Levy, C. Imbert, Opt. Commun., Vol. 25, n° 2, (1978), p. 206.
- [42] - Y. Levy, D. Rivière, C. Imbert, M. Boix, Opt. Commun., Vol. 26, n° 2, (1978), p.225.
- [43] - C. Williams, V. Vitek, M. Kléman, Solid. State Commun., 12, (1973), p. 581.
- [44] - C. Williams, M. Kléman, Philos. Mag., 23, (1973), p. 721.
- [45] - S. Naemura, J. de Phys., Colloque C3, supplément au n° 4, Tome 40, (1979), p. 514.
- [46] - M. Born, E. Wolf, Principles of optics, Ed. Pergamon press, (1959).
- [47] - G. Bruhat, cours d'optique, Ed. Masson & Cie, (1965), Paris.
- [48] - F. Simoni, F. Bloisi, L. Vicari, M. Warenghem, M. Ismaili, D. Hector, Europhys. Lett., Vol. 21, n° 2, (1993), p. 189.

- [49] - K. Eidner, G. Mayer, R. Schuster, Z. Naturforsch, 40a, (1985), pp. 748-751.
- [50] - K. Eidner, G. Mayer, R. Schuster, Phys. Lett. A, Vol. 118, n° 3, (1986), p. 152.
- [51] - M. Warengem, Thèse de doctorat es Sciences Physique : "Sur l'orientation des Nématiques aux interfaces", (1984), p.40.
- [52] - F.C. Frank, Dis. Fara. Soc., 25, (1958), p. 19.
- [53] - S.T. Wu, C.S. Wu, M. Warengem, M. Ismaili, Optical engineering, Vol, 32, n° 8, (1993), p. 1775.
- [54] - F. Bloisi, L. Vicari, F. Simoni, Mol. Cryst. Liq. Cryst., Vol. 179, (1990), p. 45.  
F. Bloisi, L. Vicari, F. Simoni, Nuovo Cimento D, 12, (1990), p. 1273.
- [55] - D. Rivière, Thèse, Centre Universitaire d'Orsay, Paris XI, (1978).
- [56] - H.P. Hinov, Rev. Phys. Appl., 15, (1980), pp. 1307-1321.
- [57] - F. Grandjean, Bull. Soc. fr. Miner., 29, (1916), p. 164.
- [58] - M. Kléman, Points, Lignes et Parois, Tome I, Les éditions de Physique, (1977).
- [59] - J. T. Jenkins, P.J. Barratt, Quat. J. Mech. Appl. Math., Vol. 27, Pt. 1, (1974), p.111.
- [60] - H. Zocher, Trans. Faraday Soc., 29, (1933), p.945.

- [61] - E. Perez, J.E. Proust, L. Ter-Minassian-Saraga, E. Mauer, *Colloid Polym. Sci.*, Vol. 255, (1977), p. 1003.
- [62] - G. Ryschenkow, M. Kléman, *J. of Chem. Phys.*, Vol. 64, n° 1, (1976), p.404.
- [63] - E. Perez, J.E. Proust, L. Ter-Minassian-Saraga, *Colloid and Polym. Sci.*, Vol. 256, n° 8, (1978), pp. 784-792.
- [64] - P. Palffy-Muhoray, E.C. Gartland, J.R. Kelly, *Liq. Cryst.*, Vol. n° 4, (1994), p 713.
- [65] - G Barbero, A. Striggazzi, *Liq. Cryst.*, Vol. 5, n° 2, (1989), pp. 693-696.
- [66] - V.M. Pergamenschik, P.I.C. Teixeira, T.J. Sluckin, *Phys. Rev. E*, Vol. 48, n° 2, (1993), p. 1265.
- [67] - A.L. Alexe-Ionescu, G. Barbero, A.G. Petrov, *Phys. Rev. E*, Vol. 48, (1993), p. R1631.
- [68] - A.L. Alexe-Ionescu, *Phys. Lett. A*, 180, (1993), p. 456.
- [69] - G. Barbero, G. Durand, *J. Phys. France*, 51, n° 4, (1990), pp. 281-291.
- [70] - G. Barbero, G. Durand, *J. Appl. Phys.*, 67, n° 5, (1990), p. 2678.