

## Instabilité zig-zag d'une paroi d'Ising dans les cristaux liquides

C. Chevallard, M. Clerc, P. Couillet, J.-M. Gilli  
*Institut Non Linéaire de Nice*  
 1361, Route des Lucioles, 06560 Sophia Antipolis

### Résumé

Nous avons observé expérimentalement l'instabilité zig-zag d'une paroi d'Ising formée dans un cristal liquide nématique. A partir de l'équation de Ginzburg-Landau, valable au seuil de la transition de Fréedericksz, nous avons dérivé une équation qui décrit la dynamique de l'interface à proximité du seuil de bifurcation. Cette dynamique est caractérisée par un paramètre d'ordre conservatif qui satisfait une équation de type Cahn-Hilliard.

La paroi d'Ising est l'un des défauts topologiques de l'instabilité de Fréedericksz qui intervient dans les cristaux liquides nématiques [1]. Cette instabilité correspond à la réorientation des molécules du volume dans un échantillon nématique initialement orienté par l'ancrage (conditions de bord fixes) et soumis à l'action d'un champ extérieur, électrique ou magnétique [2]. L'existence de domaines de basculement opposés traduit la dégénérescence de l'état bifurqué. La paroi d'Ising constitue l'interface de deux domaines pour une géométrie particulière de la transition de Fréedericksz (géométrie homéotrope [3]).

Lorsqu'une paroi d'Ising est formée dans un échantillon de cristal liquide d'*anisotropie diélectrique négative*, soumis simultanément à un champ magnétique horizontal et à un champ électrique vertical, il est possible d'induire sa déstabilisation en modifiant la valeur des champs appliqués. On observe alors la transformation de la paroi d'Ising en paroi de Bloch [4-5]. Cette instabilité s'explique par l'apparition d'un autre mode marginal au voisinage de la bifurcation de Fréedericksz.

Pour des produits dont l'*anisotropie diélectrique est positive* et pour le même type de champs appliqués, une telle instabilité n'est plus observable car il existe un seul mode marginal au voisinage de la transition de Fréedericksz. Dans ce cas, nous avons pu mettre en évidence expérimentalement une nouvelle instabilité pour la paroi d'Ising. Cette instabilité, de type zig-zag, correspond à une instabilité spatiale induite par l'anisotropie élastique du cristal liquide.

L'instabilité zig-zag de l'interface est qualitativement identique à celle qui affecte les systèmes de rouleaux droits dans les problèmes d'électroconvection de fluides anisotropes [6] ou de thermoconvection [7]. Elle intervient dans diverses situations physiques, comme en croissance cristalline au niveau de l'interface séparant les deux phases thermodynamiques en compétition [8]. Nous avons cherché à la caractériser de manière expérimentale et à en donner une explication théorique dans un cadre général.

Pour cela, nous avons déduit de l'équation de Ginzburg-Landau, valable au voisinage de la transition de Fréedericksz [9], une équation modélisant la dynamique de l'interface à proximité du seuil de bifurcation. Comme le suggérerait l'analyse des symétries de notre problème, la forme de l'équation ainsi obtenue est semblable à celles dérivées pour décrire l'instabilité zig-zag dans d'autres systèmes physiques. Cette équation ne se prête pas à une comparaison quantitative avec nos résultats expérimentaux car ceux-ci ont été obtenus loin du seuil de Fréedericksz. Cependant les prédictions théoriques issues de l'analyse de l'équation dynamique coïncident bien avec les observations expérimentales. Des simulations numériques ont par ailleurs permis de confirmer la pertinence de notre modèle.

Nous avons réalisé des échantillons cristaux liquides en utilisant un composé cyanobiphényl, le 5CB, produit qui, à la température ambiante est dans une phase cristal liquide nématique. L'anisotropie des propriétés physiques du produit utilisé est caractérisée par

les grandeurs suivantes à  $T = 25^\circ\text{C}$  : constantes élastiques  $K_1 = 6.3$ ,  $K_2 = 4.1$ ,  $K_3 = 8.4$  ( $10^{-7}$  dynes) ; anisotropie diélectrique  $\epsilon_a = 11.3$  ; anisotropie diamagnétique  $\chi_a = 1.142$  ( $10^{-7}\text{cm}^3\cdot\text{g}^{-1}$ ).

Les échantillons sont formés de deux lames de verre séparées par de minces câbles de mylar qui déterminent l'épaisseur de la cellule (entre 50 et 250  $\mu\text{m}$ ). Une mince couche de lécithine déposée sur la face intérieure des lames de verre oriente les molécules situées au voisinage perpendiculairement à ces surfaces (ancrage homéotrope). On applique à l'échantillon ainsi formé un champ électrique vertical sinusoïdal  $\vec{E} = E\vec{e}_z$  ( $V_{eff.} \sim 0 - 9\text{V}$ ) de fréquence élevée ( $f \sim 5\text{kHz}$ ) afin d'éviter d'éventuels phénomènes d'injection de charges dans l'échantillon ou d'électroconvection (voir fig.1). Deux aimants permanents induisent par ailleurs un champ magnétique horizontal homogène  $\vec{H} = H\vec{e}_x$  au niveau de l'échantillon. L'amplitude du champ magnétique peut être modifiée en écartant ou en rapprochant les aimants. Sa valeur maximale est de 0.55 Tesla.

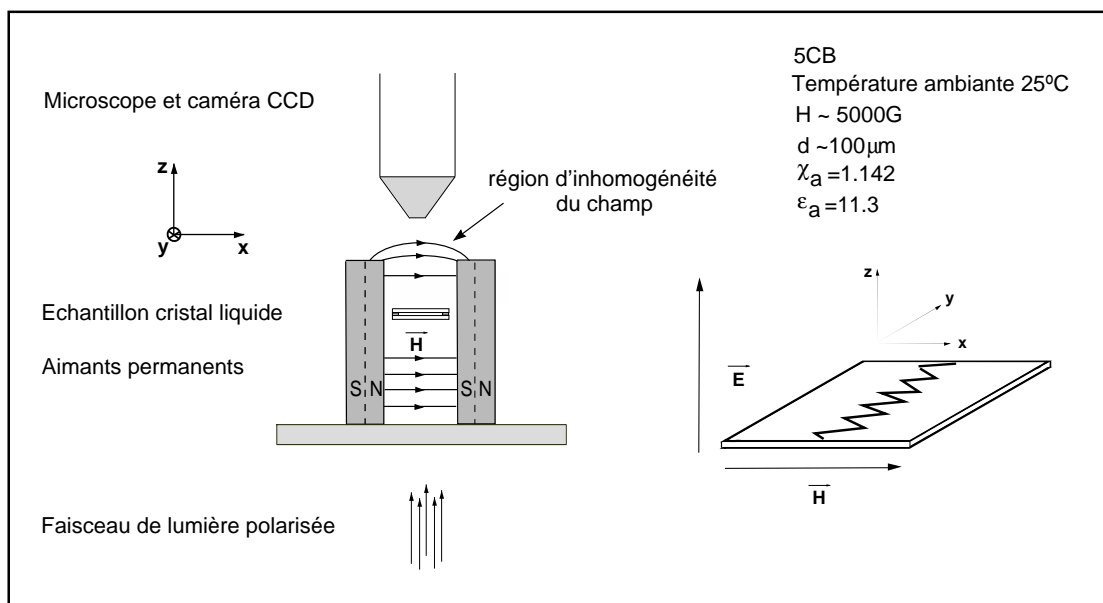


FIG. 1: *Dispositif expérimental.*

La paroi d'Ising en configuration splay-bend est formée en exploitant la courbure des lignes de champ dans une région de l'espace où le champ est inhomogène (voir fig.1). Puis elle est "plongée" dans la région, située entre les deux aimants, où le champ est homogène. La largeur de la paroi dépend alors de l'écart au seuil de la transition de Fréedericksz et peut être modifiée en changeant les valeurs des champs électrique et magnétique. Rappelons qu'avec le produit que nous utilisons, seul le champ magnétique peut induire la transition de Fréedericksz. Le champ électrique favorise en permanence l'état homéotrope de départ.

Le comportement de la paroi est observé à travers un microscope polarisant. Une caméra 3CCD, placée en sortie du microscope, permet de réaliser des enregistrements vidéo ou d'acquérir des images numériquement (voir fig.2).

Expérimentalement, nous nous sommes toujours situés assez loin du seuil de la transition de Fréedericksz. Près du seuil en effet, la paroi est peu contrainte et il est alors très difficile de la maintenir dans une position moyenne entre les deux aimants (la moindre imperfection sur le parallélisme entre l'échantillon et le plan du champ magnétique fait dériver la paroi vers un bord de l'échantillon). La paroi d'Ising en configuration splay-bend est toujours instable, pour le domaine de paramètres de contrôle exploré expérimentale-

ment, lorsqu'on la "plonge" dans une région d'homogénéité du champ magnétique. Dans un premier temps, il apparaît une oscillation spatiale de l'interface dont la longueur d'onde est déterminée par la valeur des paramètres expérimentaux. Par la suite, la sinusoïde se transforme en une ligne brisée formée de segments tournés d'un angle  $\pm\Psi_0$ . La jonction entre deux segments d'orientation opposée est assurée par une région de forte courbure de l'interface que nous appellerons un "kink" (voir fig.2).

La dynamique consiste alors en un regroupement des domaines de même orientation. L'orientation des segments "zig" et "zag" reste inchangée durant cette dynamique. Le regroupement s'effectue grâce à des annihilations de kinks sans qu'une longueur caractéristique n'apparaisse dans le système. La taille moyenne des domaines augmente en effet constamment au cours du temps (voir fig.2). La dynamique réalise ainsi, progressivement, la séparation des états zig et zag. Elle est l'analogue, à une dimension, de la dynamique de décomposition spinodale observée dans les mélanges binaires conservatifs [10].

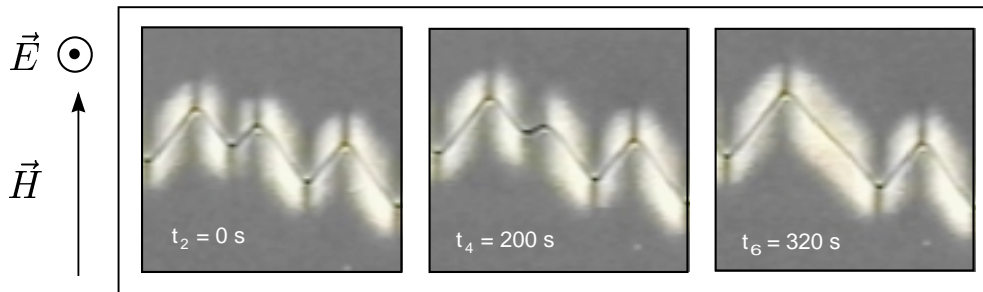


FIG. 2: *Dynamique de décomposition spinodale de l'interface observée à travers polariseur et analyseur croisés.*

L'instabilité observée traduit l'influence de l'anisotropie élastique du cristal liquide sur les déformations orientationnelles présentes dans la paroi d'Ising. Les déformations impliquées dans la paroi dépendent de l'orientation de l'interface par rapport à la direction du champ magnétique. En particulier le coût énergétique d'une paroi alignée dans le sens du champ (paroi de twist) est moins élevé que celui d'une paroi perpendiculaire au champ magnétique (paroi splay-bend). La réorientation de la paroi, qui suit sa déstabilisation, permet donc de diminuer l'énergie libre du système. Cette réorientation ne peut s'effectuer par une rotation globale de la paroi car cela reviendrait à introduire un centre privilégié de rotation dans un milieu unidimensionnel infini. Le système est donc obligé de décomposer la paroi en des segments tournés d'un angle  $\pm\Psi_0$  dépendant des paramètres de contrôle expérimentaux (voir fig.3). L'angle  $\Psi_0$  sélectionné est le résultat d'une compétition entre un effet élastique qui favorise la rotation de l'interface et un effet d'allongement de paroi qui défavorise cette rotation. Il faut également prendre en compte un terme d'interaction magnétique qui s'oppose à la rotation car elle s'accompagne, à proximité de la paroi, d'une sortie des molécules du plan vertical contenant le champ magnétique. Enfin la décomposition de la paroi fait apparaître une quantité importante de kinks que la dynamique tend à supprimer car ils sont coûteux énergétiquement.

Bien que les expériences aient été réalisées loin du seuil de la transition de Fréedericksz, nous allons déduire notre modèle théorique de l'équation de Ginzburg-Landau qui décrit le système au voisinage de cette transition [9] (le directeur a alors pour composantes  $\vec{n} = (X \cos(\frac{\pi z}{d}), Y \cos(\frac{\pi z}{d}), 1 - \frac{(X^2 + Y^2)}{2} \cos^2(\frac{\pi z}{d}))$ ) :

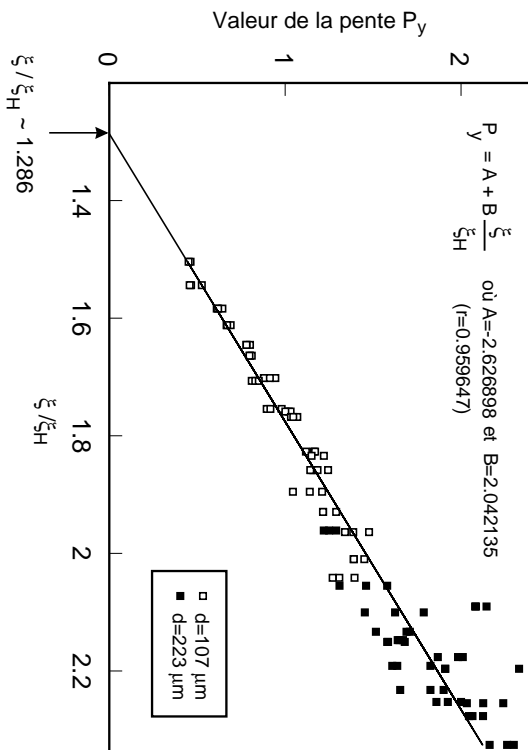


FIG. 3: Courbe expérimentale donnant la valeur de la pente  $P_y$  de l'interface en fonction du rapport adimensionné  $\frac{\xi}{\xi_H}$  où  $\xi$  est la longueur de cohérence électro-magnétique et  $\xi_H$  la longueur de cohérence magnétique.

$$\gamma_1 A_t = \mu A + \gamma \bar{A} + \frac{K_1 + K_2}{2} \nabla^2 A + \frac{K_1 - K_2}{2} \bar{A} \eta_{\eta} - a |A|^2 A - \frac{b}{2} (A^2 + \bar{A}^2)$$

où  $A = X + iY$ ,  $\bar{A}$  est son complexe conjugué,  $\eta = x - iy$ ,  $\partial_{\eta\bar{\eta}} \equiv \nabla^2 = \partial_{xx} + \partial_{yy}$ ,  $\partial_{\eta} = \partial_x + i\partial_y$ ,  $\mu = -\varepsilon_a E^2 - K_3 \frac{\tilde{\mu}^2}{d^2}$ ,  $\gamma = \frac{\chi_a}{2} H^2$ ,  $a = \frac{1}{2} (K_1 - \frac{3}{2} K_3) \frac{\tilde{\mu}^2}{d^2} - \frac{3}{4} \varepsilon_a E^2 + \frac{3}{8} \chi_a H^2$ ,  $b = \frac{3}{8} \chi_a H^2$ .

L'instabilité stationnaire apparaît quand  $\mu_c + \gamma_c = 0$  ( $\mu_c - \gamma_c < 0$ ). Au voisinage du seuil de bifurcation, on applique le changement de variables suivant :

$$\begin{pmatrix} X \\ Y \end{pmatrix} = Z(x - P(y)) \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix} + \frac{\kappa_1}{\gamma_c} \partial_{xy} Z \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \end{pmatrix} + \frac{\kappa_1}{\gamma_c} \left( \kappa_2 \partial_{xx} + \frac{\partial_{yy}}{\kappa_2} \right) \partial_{xy} Z \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \end{pmatrix} + \text{not}$$

avec  $Z(x - P(y)) \equiv \sqrt{\frac{\tilde{\mu} + \tilde{\gamma}}{a + b}} \tanh \left( \sqrt{\frac{\tilde{\mu} + \tilde{\gamma}}{2\kappa_2(a+b)}} (x - P) \right)$ , et  $P(y)$  repère la position de l'interface,  $\tilde{\mu} \equiv \mu - \mu_c$ ,  $\tilde{\gamma} \equiv \gamma - \gamma_c$ ,  $\kappa_1 \equiv \frac{K_1 - K_2}{\sqrt{K_1 K_2}}$ ,  $\kappa_2 \equiv \frac{K_2}{K_1}$ , les termes d'ordres supérieurs sont des termes non-linéaires en  $Z$  ainsi que des termes en dérivées de  $Z$  d'ordres supérieurs.

L'équation dynamique de  $P$  s'obtient en écrivant la condition de persistance pour la solution  $Z(x - P)$  :

$$\partial_t P = D_1 P_{yy} + D_2 P_y^2 P_{yy} - D_3 P_{yyy} \quad (1)$$

avec  $D_1 \equiv \left( 1 - \frac{\kappa_1^2 (\tilde{\mu} + \tilde{\gamma})}{5\gamma_c} + \frac{\kappa_1^2 \kappa_2}{\gamma} \left( \frac{\tilde{\mu} + \tilde{\gamma}}{\gamma_c} \right)^2 \right)$ ,  $D_2 \equiv \frac{6\kappa_1^2}{7\kappa_2} \left( \frac{\tilde{\mu} + \tilde{\gamma}}{\gamma_c} \right)^2$ ,  $D_3 \equiv \frac{\kappa_1^2}{5\kappa_2} \frac{\tilde{\mu} + \tilde{\gamma}}{\gamma_c}$ .  $D_1$  est le coefficient du terme de diffusion (ou d'antidiffusion),  $P_y^2 P_{yy}$  est un terme de diffusion non-linéaire et le dernier terme un terme d'hyperdiffusion.

L'équation (1), valable de manière exacte au seuil de la transition de Fréedericksz, permet néanmoins une comparaison qualitative avec les expériences. En accord avec celles-ci, le coefficient de diffusion  $D_1$  exprime le fait que l'anisotropie joue le rôle moteur dans le

déclenchement de l'instabilité ( $D_1 < 0$ ), alors que le champ magnétique s'oppose à la déstabilisation de l'interface. Par ailleurs des simulations numériques de l'équation de Ginzburg-Landau permettent d'observer l'instabilité zig-zag pour une valeur d'anisotropie élastique suffisante (voir fig.4). Le modèle présenté ci-dessus est bien celui qui décrit l'instabilité

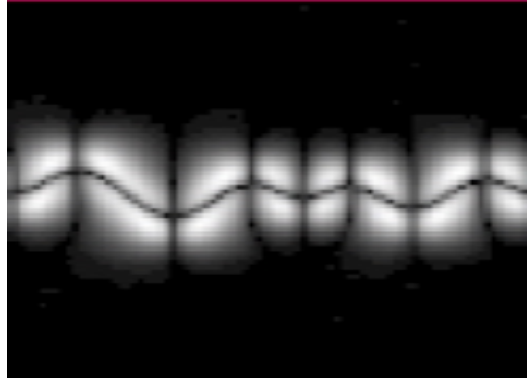


FIG. 4: Simulation numérique de l'équation de Ginzburg-Landau pour une anisotropie élastique importante  $\frac{K_1-K_2}{K_1+K_2} \approx 0.9$ .

zig-zag dans les différents systèmes physiques rappelés en introduction [6,7]. Il caractérise la dynamique d'une interface invariante par translation spatiale ( $P \rightarrow P + P_0$ ) et par réflexion spatiale suivant les directions tangente ( $y \rightarrow -y$ ) et orthogonale ( $P \rightarrow -P$ ) à l'interface. Après avoir normalisé certains coefficients, cette équation peut être réécrite de la manière suivante :

$$\partial_t P = \varepsilon P_{yy} + P_y^2 P_{yy} - P_{yyyy} \quad (2)$$

Il s'agit d'une équation de continuité qui exprime la conservation de l'aire située entre l'interface et l'axe (Oy). Cette équation peut être écrite sous forme variationnelle :

$$\partial_t P = -\frac{\delta \mathcal{F}}{\delta P}, \quad \mathcal{F}[P] = \int dy \left\{ \varepsilon \frac{P_y^2}{2} + \frac{P_y^4}{4} + \frac{P_{yy}^2}{2} \right\} \quad (3)$$

où l'"énergie libre"  $\mathcal{F}$  dépend uniquement des dérivées d'espace du paramètre d'ordre. En introduisant la variable  $\Lambda \equiv P_y$ , l'équation précédente devient :

$$\partial_t \Lambda = \partial_{yy} (\varepsilon \Lambda + \Lambda^3 - \Lambda_{yy}) \quad (4)$$

Cette dernière équation est l'équation de Cahn-Hilliard [10] qui décrit les processus de séparation de phases dans les systèmes binaires conservatifs. Le comportement dynamique reproduit par cette équation a fait l'objet de nombreux travaux [11]. La complexité de l'étude à mener tient au fait qu'il faut résoudre un problème variationnel avec contrainte [12]. Dans notre cas par exemple, le système doit minimiser son énergie libre sous la contrainte d'une aire nulle. Un raisonnement simple permet ici d'appréhender correctement la dynamique du système. De façon générale, les solutions stationnaires du problème sont données par l'équation :

$$\varepsilon \Lambda + \Lambda^3 - \Lambda_{yy} = K \quad (5)$$

Les seules néanmoins à assurer la conservation d'une aire nulle sont les solutions périodiques obtenues pour  $K = 0$  (l'équation ci-dessus est alors l'équation des "kinks"). A

partir du nombre d'onde instable ( $k_{yc} = \sqrt{-\varepsilon/2}$ ), le système évolue donc vers une structure périodique de kinks. La période spatiale de cette structure croît au cours du temps car la dynamique tend à supprimer les gradients de paramètre d'ordre présents dans le système. Elle s'identifie de la sorte à une dynamique de coarsening. Cette dynamique est cependant extrêmement lente car les transitoires du système correspondent à des solutions stationnaires et seul le bruit peut permettre au système d'évoluer.

Enfin, on peut remarquer qu'en supposant que les deux derniers termes dominent l'expression de  $D_1$ , soit  $D_1 \approx -\frac{\kappa_1^2(\tilde{\mu}+\tilde{\gamma})}{5\gamma_c} + \frac{\kappa_1^2\kappa_2}{7} \left(\frac{\tilde{\mu}+\tilde{\gamma}}{\gamma_c}\right)^2$ , la valeur de la pente  $P_y$  des segments en zig et zag est donnée (au signe près) par  $P_y = \sqrt{\frac{3D_1}{D_2}} \propto \frac{\gamma_c}{\tilde{\mu}+\tilde{\gamma}} + cste \propto \frac{\xi}{\xi_H} + cste$ , résultat semblable à celui de l'expérience (voir fig.3).

L'étude de la dynamique associée à une condition initiale quelconque fait l'objet d'une publication en préparation.

Les auteurs remercient S. Thiberge pour de fructueuses discussions.

## Références :

- [1] W. Helfrich, Phys. Rev. Lett., **21**, 1518 (1968).
- [2] P.G. de Gennes and J. Prost, *The Physics of Liquid Crystals*, Oxford Science Publications, Clarendon Press, second edition (1993).
- [3] F. Brochard, J. Phys.(Paris), **33**, 607 (1972).
- [4] L. N. Bulaevskii, V. L. Ginzburg, Zh. Eksp. Teor. Fiz., **45**, 772 (1963) [Sov. Phys. JETP, **18**, 530 (1964)]. P. Couillet, J. Lega, B. Houchmanzadeh, J. Lajzerowicz, Phys. Rev. Lett., **65**, 1352 (1990).
- [5] J.-M. Gilli, M. Morabito, T. Frisch, J. Phys. II France, **4**, 319 (1994).
- [6] R. Ribotta, A. Joets, Lin Lei, Phys. Rev. Lett., **56**, 1595 (1986). E. Bodenschatz, M. Kaiser, L. Kramer, W. Pesch, A. Weber, W. Zimmermann, *New Trends in Nonlinear Dynamics and Pattern-Forming Phenomena*, édité par P. Couillet et P. Huerre, Plenum Press, New York (1990).
- [7] P. Manneville, J.-M. Piquemal, Phys. Rev. A, **28**, 1774 (1983).
- [8] A. A. Golovin, S. H. Davis, A. A. Nepomnyashchy, Physica D, **122**, 202 (1998).
- [9] T. Frisch, Physica D, **84**, 601 (1995). T. Frisch, S. Rica, P. Couillet, J.-M. Gilli, Phys. Rev. Lett. **72**, 1471 (1994).
- [10] J. W. Cahn, J. E. Hilliard, J. Chem. Phys. **28**, 258 (1958).
- [11] T. Kawasaki, T. Munakata, Prog. Theor. Phys. **74**, 656 (1988). T. Kawasaki, T. Ohta, Physica A **11**, 573 (1982).
- [12] C. M. Elliot, D. French, IMA Journal Appl. Math. **38**, 97 (1987).