

## Transition de Fréedericksz du premier ordre dans un cristal liquide nématique et en présence d'une rétroaction optique

M.G. Clerc, S. Residori et C.S. Riera

*Institut du Non Linéaire de Nice*

1361, Route des Lucioles, 06560 Sophia Antipolis [residori@inln.cnrs.fr](mailto:residori@inln.cnrs.fr)

### Résumé

En utilisant une cellule de cristal liquide nématique munie d'une couche photoconductrice nous réalisons un mécanisme de rétroaction optique créant une dépendance entre le champ électrique appliqué à la couche de cristal liquide et l'orientation des molécules de cristal liquide. Nous montrons que, grâce à cet effet de rétroaction, la transition de Fréedericksz devient sous-critique. Près du seuil de la transition de Fréedericksz nous arrivons à observer une zone de bistabilité assez robuste. Celle-ci est caractérisée par la propagation de fronts connectant les états bistables et par la présence d'un point de Maxwell. Du point de vue théorique, la dérivation d'une équation d'amplitude, valable près du point de transition, nous permet d'obtenir un bon accord qualitatif avec les résultats expérimentaux.

## 1 Introduction

Les cristaux liquides soumis à des champs électriques ou magnétiques présentent divers types d'instabilités et de comportements complexes, comme par exemple, l'électroconvection, la formation de structures spatiales [1] ou de spirales [2], les instabilités optiques [3]. On considérera ici un des phénomènes le plus connu, correspondant au changement orientationnel du film nématique induit par un champ appliqué et appelé transition de Fréedericksz [4]. Pour un film nématique la transition de Fréedericksz est généralement une transition du deuxième ordre [5]. La transition de Fréedericksz peut devenir du premier ordre soit par l'application simultanée d'un champ électrique et d'un champ magnétique [6], soit par l'action d'un champ optique [7] et ceci pour des cristaux liquides caractérisés par une grande anisotropie. Mais dans les deux cas il est très difficile d'obtenir une confirmation expérimentale, surtout sur une zone étendue de cristal liquide. Nous montrons [8] que la transition de Fréedericksz peut devenir du premier ordre pour un film nématique chaque fois que l'on se trouve en présence d'un mécanisme de rétroaction capable d'introduire une dépendance du champ électrique appliqué par rapport à l'orientation des molécules de cristal liquide. Expérimentalement on réalise cet effet par le biais d'une valve à cristal liquide dite LCLV de l'anglais Liquid Crystal Light Valve [9] et d'une boucle optique de rétroaction.

## 2 Description de l'expérience

L'expérience, qui correspond à une valve optique à cristaux liquides (LCLV) dans une boucle de rétroaction optique, est déjà connue pour la formation de structures spatiales [10]. Dans notre cas, la boucle optique est conçue de façon à éviter la formation de ces structures et de maximiser la biréfringence de la LCLV. Un schéma simplifié est

présenté dans la Fig.1. La LCLV se compose essentiellement d'un film nématique prise en sandwich entre une lame de verre et une lame photoconductrice sur laquelle un miroir diélectrique est déposé. Les deux parois en contact avec le cristal liquide sont traitées de façon à induire un ancrage planaire (directeur nématique  $\vec{n}$  parallèle aux parois). Le photoconducteur se comporte comme une résistance variable qui diminue lorsque l'intensité lumineuse augmente.

On applique sur la LCLV une tension sinusoïdale à la fréquence  $f = 20 \text{ KHz}$  et d'amplitude r.m.s.  $V_0$ . La transition de Fréedericksz se produit au-delà d'une tension seuil de l'ordre de  $V_0 = 3 V_{r.m.s.}$ . La rétroaction s'obtient en renvoyant sur le photoconducteur la lumière qui a traversé la couche de cristal liquide et qui, après un polariseur, a une intensité qui dépend de l'orientation des molécules du cristal liquide. Cette Intensité module la tension effective appliquée sur la couche de cristal liquide et donc la réorientation des molécules. Ce mécanisme nous permet d'induire la transition de Fréedericksz pour de faibles valeurs de l'intensité lumineuse ( $I_{in} \simeq 0.9 \text{ mW/cm}^2$ ). Par conséquent, on peut aisément éclairer une grande aire de l'échantillon du cristal liquide ( $A \simeq 1 \text{ cm}^2$ ) sur laquelle la transition de Fréedericksz peut devenir sous critique.

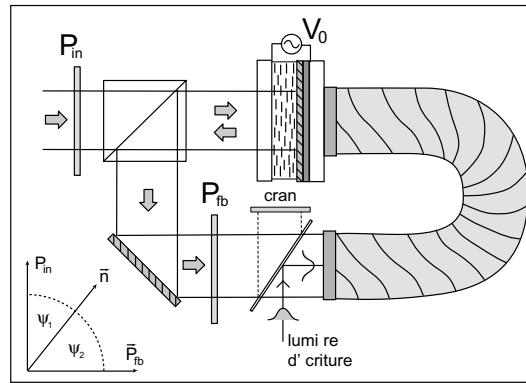


FIG. 1 – Schéma de l'expérience: la LCLV, sur laquelle on applique une tension  $V_0$ , est illuminée par une onde plane; l'onde réfléchiée par le miroir de la LCLV est dirigée vers le photoconducteur grâce à un faisceau de fibres optiques (en gris dans le dessin).  $P_{in}$  et  $P_{fb}$  sont deux polariseurs dont l'orientation relative est montrée en bas à gauche par rapport au directeur des cristaux liquides  $\vec{n}$ . Avant le plan d'entrée du faisceau de fibres, un élément semirefléchissant permet, d'une part, de visualiser la distribution lumineuse qui arrive sur le photoconducteur, et d'autre part, d'envoyer une lumière additionnelle d'écriture, qui peut déclencher localement la transition de Fréedericksz.

### 3 Dérivation d'un modèle général

On explique comment la transition de Fréedericksz, qui est usuellement du deuxième ordre, peut se transformer en une transition du premier ordre. Notre modèle est dérivé à partir de la description classique en termes d'énergie libre de Frank pour les cristaux liquides. On exprime cette dernière de manière générale en prenant en compte l'effet de rétroaction ainsi que les termes élastiques usuels. La rétroaction introduit une relation entre le champ électrique appliqué à la couche nématique et la réorientation du cristal liquide. Ensuite, on dérive une équation d'amplitude près de la transition de Fréedericksz et on montre que la transition de Fréedericksz peut devenir du premier ordre en fonction des

valeurs des paramètres, dont le plus important régit l'orientation relative de la polarisation de la lumière et du directeur du cristal liquide.

L'équation dynamique pour le directeur d'un cristal liquide nématique s'écrit [5]

$$\gamma \vec{n} \wedge \partial_t \vec{n} = -\vec{n} \wedge \frac{\delta \mathcal{F}}{\delta \vec{n}}, \quad \vec{n} \cdot \vec{n} = 1 \quad (1)$$

où  $\gamma$  est la viscosité, et  $\mathcal{F}$  l'énergie libre de Frank qui s'exprime, de manière générale, par la forme suivante:

$$\begin{aligned} \mathcal{F} = & \frac{1}{2} \int K_1 (\vec{\nabla} \cdot \vec{n})^2 + K_2 (\vec{n} \cdot (\vec{\nabla} \wedge \vec{n}))^2 + K_3 (\vec{n} \cdot (\vec{\nabla} \wedge \vec{n}))^2 \\ & - \epsilon_{\perp} \vec{E}^2(\vec{n}) - \epsilon_a (\vec{n} \cdot \vec{E}(\vec{n}))^2 d\vec{r}. \end{aligned} \quad (2)$$

Les  $K_i$  sont les constantes élastiques du cristal liquide,  $\epsilon_a$  est l'anisotropie diélectrique et  $\epsilon_{\perp}$  la perméabilité diélectrique perpendiculaire. Par simplicité on considérera  $K_1 = K_2 = K_3 = K$ , ce qui donne pour l'équation dynamique

$$\begin{aligned} \gamma \partial_t \vec{n} = & K (\nabla^2 \vec{n} - \vec{n} (\vec{n} \cdot \nabla^2 \vec{n})) \\ & + \epsilon_a (\vec{n} \cdot \vec{E}) (\vec{E} - \vec{n} (\vec{n} \cdot \vec{E})) + \frac{\epsilon_{\perp}}{2} \frac{\partial \vec{E}^2}{\partial \vec{n}} \\ & - \frac{\epsilon_{\perp}}{2} (\vec{n} \cdot \frac{\partial}{\partial \vec{n}}) \vec{E}^2 + \frac{\epsilon_a}{2} (\vec{n} \cdot \vec{E}) \vec{n} \cdot ((\vec{n} \cdot \frac{\partial}{\partial \vec{n}}) \vec{E}). \end{aligned} \quad (3)$$

Le champ électrique appliqué au cristal liquide dépend de la réponse du photoconducteur par rapport à l'intensité d'écriture  $I_w$  et à la tension imposée  $V_0 = E_0/d$ . Si l'intensité  $I_w$  est suffisamment faible (ce qui est normalement le cas dans l'expérience) la réponse du photoconducteur est linéaire. Par conséquent, le champ électrique total peut s'écrire dans la forme  $E(n) = E_0 + \alpha I_w(\vec{n})$ , où  $\alpha \simeq 4$  est un paramètre évalué à partir des caractéristiques de la LCLV (en mesurant  $I_w$  en  $mW/cm^2$ ).

L'intensité  $I_w$  est donnée [10] par  $I_w = |\cos \psi_1 \cos \psi_2 + \sin \psi_1 \sin \psi_2 e^{-i\beta \cos^2 \theta}|^2 I_{in}$  où  $\beta \cos^2 \theta$  est le déphasage subi par la lumière qui traverse la couche de cristal liquide,  $\theta$  étant l'angle de réorientation des molécules du cristal liquide et  $\beta \equiv 2kd\Delta n$  avec  $k = 2\pi/\lambda$  vecteur d'onde optique,  $d$  épaisseur de la couche de cristal liquide et  $\Delta n$  la différence entre l'indice de réfraction extraordinaire ( $\parallel$  à  $\vec{n}$ ) et ordinaire ( $\perp$  à  $\vec{n}$ ).  $I_{in}$  est l'intensité à l'entrée de la boucle de rétroaction,  $\psi_1$  et  $\psi_2$  sont les angles entre les polariseurs  $P_{in}$  et  $P_{fb}$  et le directeur  $\vec{n}$ . L'expression pour le champ électrique devient donc  $E(n) = E_0 + A + B \cos(\beta \cos^2 \theta)$ , avec  $A = \frac{1}{4}(\cos 2(\psi_1 - \psi_2) + \cos 2(\psi_1 + \psi_2) + 2)\alpha I_{in}$  et  $B = \frac{1}{4}(\cos 2(\psi_1 - \psi_2) - \cos 2(\psi_1 + \psi_2))\alpha I_{in}$ . Dans notre expérience  $\beta \simeq 120$ , car  $\lambda = 633 \text{ nm}$ ,  $\Delta n = 0.2$ ,  $d = 30 \mu m$ , et  $\psi_1 = \psi_2 = 45^\circ$ .

Pour la géométrie du problème on a  $\vec{E} = (0, 0, E)$  et  $\vec{n} = (n_x, 0, n_z)$  avec  $n_x^2 + n_z^2 = 1$ . Le premier mode instable a deux composantes de Fourier,  $n_z = u(x, y) \sin(\pi z/d)$  et  $n_x = 1 - u^2 \sin^2(\pi z/d)/2$ . En insérant  $E(n)$  dans (3), et via la théorie des bifurcations, on peut dériver une équation d'amplitude pour  $u$ , la déformation du directeur près du seuil de la transition. Il s'agit d'une équation de Swift-Hohenberg généralisée de la forme

$$\partial_t u = c_1 u + c_3 u^3 + c_5 u^5 + \kappa \nabla_{\perp}^2 u \quad (4)$$

où les coefficients  $c_1$ ,  $c_3$  et  $c_5$  sont fonctions des paramètres de l'expérience A, B et  $\beta$  et du cristal liquide,  $\kappa = K/\gamma$ . Ces coefficients sont donnés de manière explicite dans [8].

### 3.1 Propriétés du modèle

Quand  $c_3$  est négatif et d'ordre un, l'équation (4) décrit une transition de Fréedericksz du deuxième ordre. La transition de Fréedericksz devient du premier ordre quand  $c_1$  et  $c_3$  sont positifs (et petits), avec  $c_5$  négatif. Cette situation est en accord qualitatif avec les observations expérimentales. En fait  $c_3$  est fonction des angles entre les polariseurs, de l'intensité d'entrée et de la tension appliquée à la LCLV. En particulier on a vérifié que les changements des angles des polariseurs produisent des variations du même signe dans l'expérience et dans le modèle. Néanmoins il est important de noter que le modèle n'est valable que dans la limite asymptotique  $c_3 \sim (c_1)^{1/2}$  alors que pour une description quantitative il faudrait  $c_3 \sim 1$ , ce qui est incompatible avec l'analyse asymptotique [11]. Dorénavant on considérera  $c_3 > 0$  and  $c_5 < 0$ .

## 4 Résultats expérimentaux et comparaison avec le modèle.

Pour observer la transition de Fréedericksz on report l'intensité  $I_w$  qui arrive sur le photoconducteur en fonction de la tension imposée  $V_0$  qu'on utilise comme paramètre de bifurcation. Pour évaluer  $I_w$  on prélève une petite portion de la lumière de rétroaction et on mesure son intensité avec une photodiode.

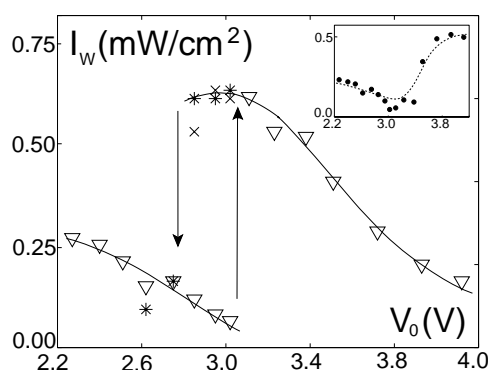


FIG. 2 – Diagramme de bifurcation pour la transition de Fréedericksz qui devient sous critique en présence de la rétroaction optique. Les triangles sont mesurés en augmentant  $V_0$  et les étoiles représentent les points que l'on trouve seulement en diminuant  $V_0$ . Dans le cadre en haut à droite, le même diagramme mesuré en absence de rétroaction.

Pour vérifier la validité de la procédure de mesure, on caractérise d'abord la réponse en absence de rétroaction. On bloque donc l'entrée du faisceau des fibres avec un écran noir, ( $A = B = 0$  dans l'équation). Le diagramme de bifurcation ainsi obtenu est présenté dans le petit cadre de la Fig.2. On peut voir que la transition de Fréedericksz a lieu pour  $V_0 \simeq 3.2$  V r.m.s. Quand la boucle de rétroaction est ouverte, on a que  $I_w$ , qui dépend de l'orientation des cristaux liquides, à son tour modifie la tension efficace sur la couche de cristal liquide et donc induit une ultérieure réorientation. On montre dans la Fig.2 que dans ce cas la transition de Fréedericksz est caractérisée par un saut d'intensité et devient sous critique. Un cycle d'hystérésis peut être identifié de manière claire.

Avec une caméra on regarde la distribution lumineuse totale qui arrive sur le photoconducteur. On observe que le point de transition est caractérisé par l'apparition d'une

tache lumineuse (blanche) qui se développe sur un fond noir. Au cours du temps, le front de la tache blanche s'étend jusqu'à que l'état blanc recouvre tout l'espace à disposition. Pour l'équation d'amplitude ce comportement correspond à un front entre l'état instable  $u_0 = 0$  et l'état stable  $u_{\pm}^2 = (-c_3 \pm \sqrt{c_3^2 - 4c_1c_5})/(2c_5)$ , ce qui correspond à un front du type Kolmogorov [12]. En augmentant encore  $V_0$  l'état blanc devient "gris" jusqu'à que l'état noir redevienne prédominant. Pour des valeurs plus élevées de  $V_0$ , on observe des transitions successives entre l'état blanc et noir. Ces états correspondent à des valeurs des paramètres loin du point de transition de Fréedericksz [13] et donc on ne les considérera pas ici.

Quand on diminue  $V_0$  on observe un cycle d'hystérésis. Pour déterminer l'extension de la zone de bistabilité on injecte dans la boucle de rétroaction une tache de lumière additionnelle (laser He-Ne de faible puissance). Cette lumière agit comme une petite perturbation qui déclenche la transition de l'état noir à l'état blanc. L'état blanc persiste même quand on bloque la lumière d'écriture et pour revenir à l'état noir il faut interrompre la rétroaction. Les flèches dans la Fig.2 marquent les limites de la région dans laquelle cette procédure d'écriture est robuste. Il faut noter que la stabilité relative des deux états peut être influencée par les inhomogénéités et autres sources de bruit qui peuvent être présentes dans l'expérience. De plus, juste avant la transition il y a une considérable diminution de l'intensité  $I_w$ . Cela est en fait une signature de la proximité du point de transition, où les fluctuations deviennent très grandes et causent une diffusion de la lumière dans toutes les directions en causant une diminution de la réflexion de la LCLV (opalescence critique).

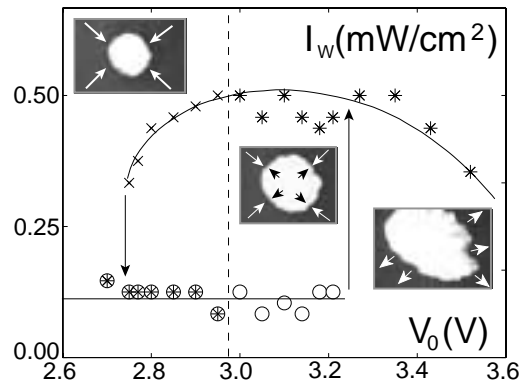


FIG. 3 – Diagramme de bifurcation avec les images correspondant à la contraction ou à la dilatation de l'état blanc, selon sa stabilité par rapport à l'état noir.

Dans la Fig.3 on présente un diagramme de bifurcation centré autour du point de transition avec les images correspondant aux points représentatifs des deux états. Sur les images les flèches montrent la direction de propagation du front et donc indiquent la stabilité relative des deux états. La ligne en pointillé marque la position du point de Maxwell où les deux états ont la même stabilité.

Les points principaux du diagramme de bifurcation sont le début de la zone de bistabilité, le point de Maxwell et le point de la transition de Fréedericksz. On peut identifier ces trois points par la divergence des temps de réponse de la LCLV. On a mesuré ces temps de réponse pour le même ensemble de points du diagramme de la Fig.3. Dans la Fig.4a on montre les temps de montée  $\tau_r$  et de descente  $\tau_f$  de l'état blanc une fois que la lumière d'écriture est, respectivement, allumée ou éteinte. La divergence de  $\tau_r$  identifie le début de

la zone de bistabilité alors que la divergence de  $\tau_f$  est en correspondance avec le point de Maxwell. Dans la Fig.4b on a reporté les temps de montée  $\tau_{on}$  et de descente  $\tau_{off}$  mesurés quand la rétroaction est, respectivement, ouverte ou bloquée. La transition de Fréedericksz se fait au point de divergence de ces deux temps. Dans l'équation d'amplitude le début de la zone de bistabilité est donné par  $c_3^2 - 4c_1c_5 \geq 0$ ,  $c_1 < 0$ , le point de Maxwell par  $c_3^2 = 16c_5c_1/3$  ( $c_1 < 0$ ) et la transition de Fréedericksz par  $c_1 = 0$ .

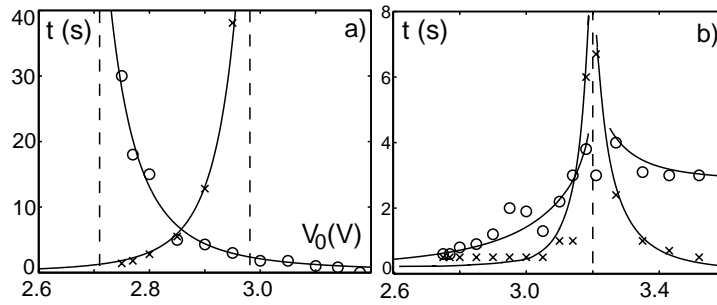


FIG. 4 – a)  $\tau_r$  (cercles) et  $\tau_f$  (étoiles) en fonction de  $V_0$ ; b)  $\tau_{on}$  (étoiles) et  $\tau_{off}$  (cercles) en fonction de  $V_0$ .

### Remerciements

Ce travail a été financé par le Ministère de la Recherche dans le cadre d'un projet ACl-jeunes chercheurs.

### Références

- [1] *Pattern Formation in Liquid Crystals*, edited by A. Buka and L. Kramer (Springer-Verlag, New York, 1996).
- [2] T. Frisch, S. Rica, P. Couillet and J.M. Gilli, Phys. Rev. Lett. **72** 1471 (1994).
- [3] N.V. Tabiryan, A.V. Sukhov and B. Ya. Zel'dovich, Mol. Cryst. Liq. Cryst. **136**, 1 (1985).
- [4] V. Fréedericksz and V. Zolina, Trans. Faraday Soc. **29**, 919 (1933).
- [5] P. G. de Gennes and J. Prost, *The Physics of Liquid Crystals*, (Oxford Science Publications, Clarendon Press, deuxième édition 1993).
- [6] B.J. Frisken and P. Palffy-Muhoray, Phys. Rev. A **39**, 1513 (1989), Phys. Rev. A. **40**, 6099 (1989); S. Garg, S. Saeed and U.D. Kini, Phys. Rev. E **51**, 5846 (1995).
- [7] A. J. Karn, S.M. Arakelian, Y.R. Shen and H. L. Ong, Phys. Rev. Lett. **57**, 448 (1986).
- [8] M.G. Clerc, S. Residori and C.S. Riera, *First-Order Fréedericksz transition in the presence of a light-driven feedback in nematic liquid crystals*, soumis à Phys. Rev. E (2001).
- [9] S.A. AKhmanov, M.A. Vorontsov and V.Yu. Ivanov, JETP Lett. **47**, 707 (1988).
- [10] Pour une revue des structures optiques voir F.T. Arecchi, S. Boccaletti and P.L. Ramazza, Physics Reports **318**, 1 (1999) et ses références.
- [11] P. Manneville, *Dissipative structures and weak turbulence*, (Academic Press, San Diego 1990).
- [12] M. Cross and P. Hohenberg, Rev. Modern Phys. **65**, 851 (1993).
- [13] P.L. Ramazza, S. Residori, E. Pampaloni, A.V. Larichev, Phys. Rev. A **53**, 400 (1996).