

Rappels sur les cholestériques

*Chaque science, chaque étude, a son
jargon inintelligible, qui semble
n'être inventé que pour en défendre
les approches.*

VOLTAIRE, Essai sur la poésie
épique

L'objectif de ce chapitre est de rappeler quelques propriétés physiques essentielles des cristaux liquides, et plus spécifiquement des cholestériques. Nous introduirons aussi les notations qui seront utilisées par la suite.

2.1 Ordre orientationnel

Les cristaux liquides auxquels nous allons nous intéresser sont constitués de molécules de forme allongée, relativement rigides. Dans la phase liquide isotrope usuelle, les molécules ont des positions et des orientations aléatoires. Lorsque le système est refroidi en dessous d'une température T_{NI} , il subit une transition de phase. Les molécules tendent à s'orienter autour d'une direction locale commune, repérée par un vecteur unitaire, le directeur, noté $\vec{n}(\vec{r})$.

On notera z l'axe vertical orienté vers le haut. L'orientation du directeur sera repérée par les angles d'Euler θ et ϕ , θ désignant l'angle entre le directeur et le plan xy horizontal et ϕ désignant l'azimut du directeur par rapport à l'axe x .

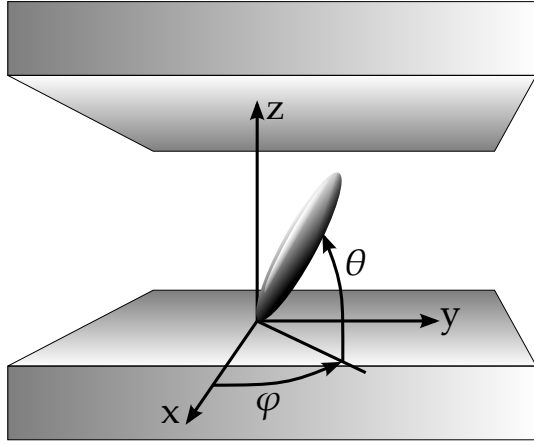


FIGURE 2.1 – Convention utilisée pour repérer l'orientation du directeur.

$$\vec{n} = \begin{cases} \cos \theta \cos \varphi \\ \cos \theta \sin \varphi \\ \sin \theta \end{cases}$$

On peut définir un paramètre d'ordre noté S pour la transition liquide isotrope-cristal liquide :

$$S = \frac{3 \langle (\vec{u} \cdot \vec{n})^2 \rangle - 1}{2}$$

où $\vec{u}$ est l'axe d'une molécule et $\langle . \rangle$ désigne une moyenne sur les molécules. Nous supposons que S ne dépend que de la température.

2.2 Anisotropie

L'existence d'une direction¹ privilégiée brise l'isotropie du milieu. Les propriétés physiques telles que les conductivités thermique λ et électrique σ , la permittivité diélectrique relative ϵ , l'indice optique n , etc. ont des valeurs différentes dans la direction du directeur et perpendiculairement. Le milieu est anisotrope et les grandeurs précédentes sont des tenseurs et non des scalaires. On notera respectivement avec les indices $\parallel$ et $\perp$ les grandeurs dans les directions parallèle et perpendiculaires au directeur. La grandeur indicée a représentera la différence entre la grandeur parallèle et la grandeur perpendiculaire. Par exemple, $\epsilon_a = \epsilon_{\parallel} - \epsilon_{\perp}$. Dans le cas des indices optiques, on utilisera les notations suivantes : n_e (respectivement n_o) désignera l'indice extraordinaire (respectivement, ordinaire), correspondant à une polarisation parallèle (respectivement perpendiculaire) au directeur et $\Delta n = n_e - n_o$ représentera la biréfringence.

Dans un cholestérique le directeur tend à former spontanément une hélice dont le pas p dépend de la température. La torsion spontanée est

1. Physiquement, $\vec{n}$ et $-\vec{n}$ ne sont pas distinguables.

définie comme $q_0(T) = \pm \frac{2\pi}{p}$, p étant positif. Elle est positive si l'hélice est droite et négative si l'hélice est gauche. Dans un cholestérique compensé, il existe une température T_0 à laquelle q_0 s'annule et change de signe. À cette température, l'état le plus stable est donc uniformément déroulé, comme dans un nématique.

2.3 Élasticité

Les déformations du champ de directeurs par rapport à sa configuration d'équilibre en absence de contraintes sont défavorables énergétiquement. L'énergie libre volumique f associée à une déformation quelconque vaut

$$f = \frac{K_1}{2} (\vec{\nabla} \cdot \vec{n})^2 + \frac{K_2}{2} (\vec{n} \cdot \vec{\nabla} \times \vec{n} + q_0)^2 + \frac{K_3}{2} (\vec{n} \times \vec{\nabla} \times \vec{n})^2 \quad (2.1)$$

Dans cette expression, les trois termes correspondent aux trois modes possibles de déformation : K_1 est la constante élastique associée à une déformation en éventail, K_2 correspond à une déformation de torsion, tandis que K_3 est associé à une déformation de flexion.

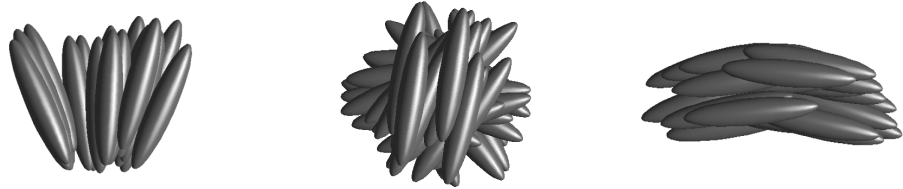


FIGURE 2.2 – Déformations élastiques élémentaires : éventail (K_1), torsion (K_2) et flexion (K_3).

Il est facile de vérifier que la configuration de plus basse énergie correspond à une structure en hélice du directeur telle que

$$\vec{n}(\vec{r}) = \cos q_0 z \vec{e}_x + \sin q_0 z \vec{e}_y \quad (2.2)$$

dans un repère orthonormé direct $(\vec{e}_x, \vec{e}_y, \vec{e}_z)$ quelconque. La constante q_0 caractérise donc la torsion spontanée de la phase cholestérique, puisqu'à l'équilibre² $f = 0$ et la torsion réelle $-\vec{n} \cdot \vec{\nabla} \times \vec{n}$ est égale à q_0 .

2. À l'équilibre, f est minimum, donc $f = 0$.

2.4 Polarisation

La polarisation macroscopique du cristal liquide peut avoir deux origines : elle peut être induite par un champ électrique extérieur ou provenir d'une déformation du champ de directeurs. Dans ce dernier cas, on parle de *flexo-électricité*. Détaillons ces deux mécanismes de polarisation.

Du fait de la polarisabilité des molécules, le milieu acquiert une polarisation volumique induite en présence d'un champ électrique :

$$\vec{P} = \varepsilon_0 \chi \vec{E} = \varepsilon_0 (\chi_{\perp} \vec{E} + \chi_a (\vec{n} \cdot \vec{E}) \vec{n}) \quad (2.3)$$

où χ est le tenseur de susceptibilité diélectrique du cristal liquide. Le vecteur déplacement électrique $\vec{D} = \varepsilon_0 \vec{E} + \vec{P}$ vaut donc

$$\vec{D} = \varepsilon_0 \varepsilon_{\perp} \vec{E} + \varepsilon_0 \varepsilon_a (\vec{n} \cdot \vec{E}) \vec{n} \quad (2.4)$$

avec $\varepsilon_{\perp} = 1 + \chi_{\perp}$ et $\varepsilon_a = \chi_a$.

Les dipôles permanents portés par les molécules du cristal liquide peuvent aussi produire une polarisation volumique macroscopique à condition que leur orientation moyenne ne soit pas nulle. C'est généralement le cas lorsque le champ de directeurs est déformé en éventail ou courbé, cf. figure 2.3. Ce phénomène porte le nom de flexo-électricité. Par des arguments de symétrie, on peut montrer que la polarisation flexo-électrique vaut

$$\vec{P} = e_1 (\vec{\nabla} \cdot \vec{n}) \vec{n} + e_3 \vec{n} \times \vec{\nabla} \times \vec{n} \quad (2.5)$$

où e_1 est la constante flexo-électrique associée à une déformation en éventail tandis que e_3 est associé à une déformation de flexion.

Le vecteur déplacement électrique vaut donc dans le cas général

$$\vec{D} = \varepsilon_0 \varepsilon_{\perp} \vec{E} + \varepsilon_0 \varepsilon_a (\vec{n} \cdot \vec{E}) \vec{n} + e_1 (\vec{\nabla} \cdot \vec{n}) \vec{n} + e_3 \vec{n} \times \vec{\nabla} \times \vec{n} \quad (2.6)$$

et la densité volumique d'énergie électrique $-\int_0^E \vec{D} \cdot d\vec{E}$ s'écrit

$$f_{\text{élec}} = -\varepsilon_0 \varepsilon_{\perp} \frac{E^2}{2} - \varepsilon_0 \varepsilon_a \frac{(\vec{n} \cdot \vec{E})^2}{2} - e_1 (\vec{\nabla} \cdot \vec{n}) (\vec{n} \cdot \vec{E}) - e_3 (\vec{n} \times \vec{\nabla} \times \vec{n}) \cdot \vec{E} \quad (2.7)$$

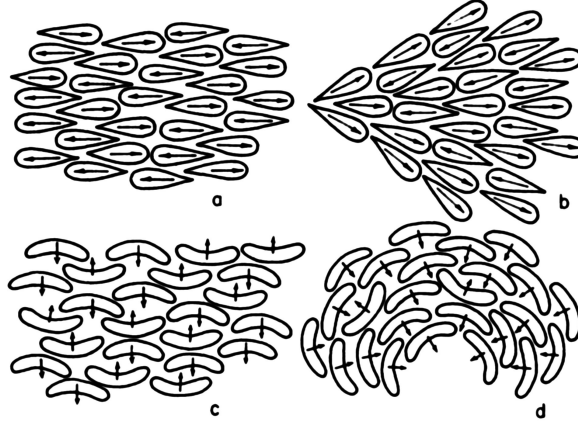


FIGURE 2.3 – *a* et *c* : en l'absence de déformation, la moyenne des moments dipolaires des molécules est nulle. *b* : apparition d'une polarisation spontanée lors d'une déformation en éventail. *d* : apparition d'une polarisation spontanée lors d'une déformation de courbure. [Mey69]

2.5 Équation d'équilibre des couples

2.5.1 Couple élastique

Lorsque le champ de directeurs est déformé, les molécules s'orientent de façon à minimiser l'énergie élastique totale

$$F = \iiint f \, dx \, dy \, dz \quad (2.8)$$

où f est la densité volumique locale d'énergie élastique. Partant d'une configuration quelconque du directeur, une petite variation $\delta \vec{n}(\vec{r})$ de cette configuration entraîne une variation de l'énergie libre totale

$$\delta F = \iiint \delta f \, dx \, dy \, dz = - \iiint \vec{h}_{\text{mol}} \cdot \delta \vec{n} \, dx \, dy \, dz \quad (2.9)$$

On a introduit ici la dérivée fonctionnelle

$$\vec{h}_{\text{mol}}(\vec{r}) = - \frac{\delta f}{\delta \vec{n}(\vec{r})} \quad (2.10)$$

appelée le *champ moléculaire*³. On peut montrer que pour minimiser l'énergie élastique totale F , les interactions moléculaires tendent à aligner le directeur le long de $\vec{h}_{\text{mol}}$, avec une « force » égale à son amplitude.

Le couple volumique qui s'exerce sur le directeur dû aux interactions moléculaires s'écrit donc

$$\vec{\Gamma}_{\text{mol}} = \vec{n} \times \vec{h}_{\text{mol}} \quad (2.11)$$

2.5.2 Couple électrique

De même, la densité d'énergie électrique dépend de l'orientation du directeur. Il s'exerce donc un couple supplémentaire sur le directeur. L'analogie électrique du champ moléculaire est

$$\vec{h}_{\text{elec}} = -\frac{\delta f_{\text{elec}}}{\delta \vec{n}} \quad (2.12)$$

On peut le décomposer en une partie d'origine diélectrique et une partie d'origine flexo-électrique. La partie diélectrique vaut

$$\vec{h}_{\text{diél}} = \varepsilon_0 \varepsilon_a (\vec{n} \cdot \vec{E}) \vec{E} \quad (2.13)$$

et la partie flexo-électrique vaut⁴

$$\vec{h}_{\text{flexo}} = (e_1 + e_3)(\vec{\nabla} \cdot \vec{n})\vec{E} - e_1 \vec{\nabla}(\vec{n} \cdot \vec{E}) + e_3 (\vec{n} \cdot \vec{\nabla})\vec{E} - e_3 (\vec{\nabla}\vec{n}) \cdot \vec{E} \quad (2.14)$$

Le couple électrique total se déduit de $\vec{h}_{\text{elec}}$ par la relation

$$\vec{\Gamma}_{\text{elec}} = \vec{n} \times \vec{h}_{\text{elec}} \quad (2.15)$$

2.5.3 Couple visqueux

Lors d'une rotation du directeur, celui-ci subit un couple visqueux qui s'oppose au changement d'orientation. En l'absence d'écoulement, ce couple s'écrit

$$\vec{\Gamma}_{\text{vis}} = -\vec{n} \times \gamma_1 \frac{\partial \vec{n}}{\partial t} \quad (2.16)$$

Le coefficient γ_1 est appelé *viscosité rotationnelle*. Il n'a pas d'équivalent dans les fluides isotropes.

3. Ses composantes sont $h_{\text{mol } i} = -\frac{\partial f}{\partial n_i} + \frac{d}{dx_j} \frac{\partial f}{\partial n_{i,j}}$ où la sommation sur les indices répétés est implicite et où $n_{i,j} = \frac{\partial n_i}{\partial x_j}$. Notons que seule la composante de $\vec{h}_{\text{mol}}$ perpendiculaire à $\vec{n}$ est pertinente compte tenu du fait que $\vec{n}$ est unitaire.

4. On entend par $(\vec{n} \cdot \vec{\nabla})\vec{E}$ le vecteur dont la $i^{\text{ème}}$ composante vaut $n_j E_{i,j}$ et par $(\vec{\nabla}\vec{n}) \cdot \vec{E}$ le vecteur dont la $i^{\text{ème}}$ composante vaut $n_{j,i} E_j$.

2.5.4 Couples du type Lehmann

En présence d'un gradient de température (ou d'un champ électrique), la théorie de Leslie de l'hydrodynamique des cholestériques prédit que le directeur subit un couple d'expression

$$\vec{\Gamma}_{\text{Lehmann}} = \nu \vec{n} \times (\vec{n} \times \vec{\nabla} T) = \vec{n} \times \vec{h}_{\text{Lehmann}} \quad (2.17)$$

avec $\vec{h}_{\text{Lehmann}} = \nu \vec{n} \times \vec{\nabla} T$. ν est le *coefficient Lehmann*. La convention de signe choisie pour l'effet Lehmann électrique est la suivante

$$\vec{\Gamma}_{\text{Lehmann}} = \nu_E \vec{n} \times (\vec{n} \times \vec{E}) \quad (2.18)$$

2.5.5 Équilibre des couples

D'après le théorème du moment cinétique et en négligeant le moment cinétique propre des molécules, la somme des couples volumiques doit être nulle à chaque instant et en tout point. Cette condition s'écrit

$$\vec{n} \times \gamma_1 \frac{\partial \vec{n}}{\partial t} = \vec{n} \times (\vec{h}_{\text{mol}} + \vec{h}_{\text{élec}} + \vec{h}_{\text{Lehmann}}) \quad (2.19)$$

que l'on peut réécrire, en projection dans le plan perpendiculaire au directeur

$$\gamma_1 \frac{\partial \vec{n}}{\partial t} = \vec{h}_{\text{mol}} \perp + \vec{h}_{\text{élec}} \perp + \vec{h}_{\text{Lehmann}} \quad (2.20)$$

Il s'agit de l'équation d'évolution du directeur en l'absence d'écoulement et sous l'influence de champs extérieurs — gradient de température ou champ électrique.