

Classification
 Physics Abstracts
 61.30

CONVECTION THERMIQUE DANS LES FILMS NÉMATIQUES ORIENTÉS OBLIQUEMENT

E. GUYON, P. PIERANSKI et M. BOIX

Laboratoire de Physique des Solides, Université Paris-Sud, 91405 Orsay, France

(Reçu le 29 juillet 1977, accepté le 9 septembre 1977)

Résumé. — Nous discutons l'apparition d'instabilités de convection thermique dans un film nématique lorsque l'orientation du directeur est oblique par rapport aux plaques limites. Cet alignement peut être obtenu à partir d'une double évaporation oblique préalable sur ces plaques. Une instabilité convective peut être obtenue sur le même échantillon à la fois en chauffant par le haut ou par le bas, les rouleaux convectifs étant à angle droit entre les deux cas. D'autres configurations obliques sont décrites.

Abstract. — We describe the occurrence of convective thermal instability in a nematic film contained between two parallel plates when the director orientation \mathbf{n} is oblique with respect to these plates. This alignment can be obtained from surface treatment by two consecutive oblique evaporations. A convective instability can be obtained on the same sample by heating from below (with rolls perpendicular to \mathbf{n}) and from above (with rolls at right angle). Other oblique configurations are discussed.

1. Introduction. — Les phénomènes de convection thermique dans un film de cristal liquide nématique (C.L.) orienté contenu entre deux plaques horizontales parallèles (\parallel à z) sont tout à fait originaux par rapport à ceux observés pour un liquide isotrope (convection de Rayleigh-Bénard). Dans le cas d'un C.L. l'instabilité convective résulte d'un couplage entre l'écoulement convectif induit par la poussée d'Archimède en présence d'une inhomogénéité de température, la distorsion de l'orientation causée par les gradients de vitesse et la focalisation de la chaleur due à l'orientation inhomogène et qui renforce l'inhomogénéité de température. L'effet de focalisation provient du fait que, dans les matériaux étudiés, la composante du tenseur de conductivité thermique parallèle à l'axe moléculaire moyen (le directeur caractérisé par un vecteur unitaire \mathbf{n}) est environ 50 % plus grande que celle perpendiculaire.

Dans le cas de l'orientation *homéotrope* (directeur $\mathbf{n}(\parallel z)$ perpendiculaire aux plaques limites) la convection est obtenue en chauffant par le haut : $\Delta T = T_B - T_H < 0$ [1].

L'orientation planaire ($\mathbf{n}(\parallel x)$) parallèle aux plaques limites) peut être obtenue si les plaques ont été préalablement recouvertes d'un film mince (SiO, Au) déposé sous vide sous incidence oblique (l'angle d'évaporation avec la normale au plan d'incidence $\theta_1 \sim 60$ à 70° ; voir encart de la figure) [2]. Dans cette géométrie

le seuil de convection est très abaissé par rapport à un liquide isotrope de mêmes propriétés moyennes [3].

Dans cette note, nous décrivons qualitativement les régimes de convection obtenus pour une orientation oblique du directeur (caractérisée, en l'absence de convection, par un angle φ avec l'axe x) en montrant qu'il est possible d'obtenir de la convection aussi bien en chauffant par le bas que par le haut le même échantillon.

Nous avons réalisé l'alignement oblique à partir d'une méthode de traitement de surface des plaques permettant d'obtenir des angles d'obliquité variables du directeur.

Nous comparons ces résultats avec ceux obtenus par d'autres méthodes d'alignement oblique (champ magnétique, cisaillement). Les études ont été faites en utilisant du MBBA (méthoxy-benzylidène p-n-butyl aniline) dans sa phase nématique entre 18 et 47°C .

2. Alignement du cristal liquide. — Il est possible d'obtenir un alignement oblique d'un film de cristal liquide ($\varphi \sim 30$ à 40° suivant le cristal liquide utilisé) en déposant sur les plaques un film mince sous incidence rasante ($\theta_2 \sim 85^\circ$) [4]. Cette méthode a été récemment généralisée [5] afin d'obtenir un angle φ variable : un premier film d'épaisseur d_1 est évaporé sous un angle $\theta_1 \sim 70^\circ$ (plan d'incidence yz ; voir encart de la figure 1), puis un deuxième film d'épais-

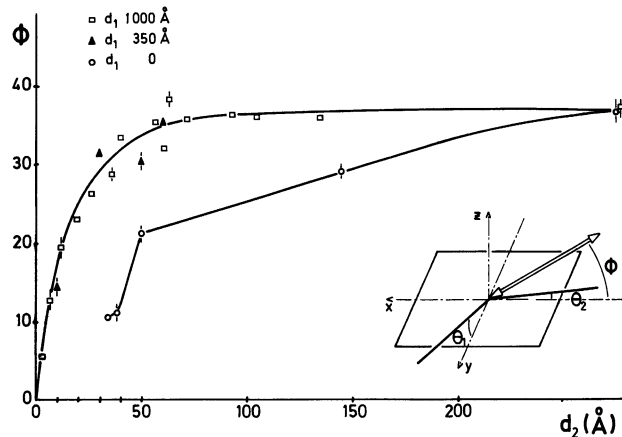


FIG. 1. — Donne la variation de l'angle d'obliquité du directeur, φ , défini dans l'encart, lorsque le C.L. est déposé sur une plaque de verre ayant reçu deux évaporations d'épaisseur d_1 puis d_2 sous les $\theta_1 \sim 70^\circ$, $\theta_2 \sim 85^\circ$.

[Gives the variation of the angle of tilt of the director, φ (defined in the inset) when the L.C. is deposited on a glass plate which had previously been exposed to two evaporations under angles $\theta_1 \sim 70^\circ$, $\theta_2 \sim 85^\circ$.]

seur d_2 est déposé sous un angle rasant θ_2 (plan d'incidence xz). Dans nos expériences la double couche de SiO est déposée sous un vide de 10^{-6} torr à partir d'un seul creuset chauffé par effet Joule et donnant un taux d'évaporation constant ($\sim 16 \text{ \AA/s}$ pour le film d_1 , 2 \AA/s pour d_2). Les deux angles d'évaporation sont obtenus en tournant de 90° sous vide le substrat de verre sur lequel est déposé le SiO, l'angle d'évaporation étant modifié dans la même opération. L'étalonnage en épaisseur a été fait optiquement à partir de couches plus épaisses formées sous les angles θ_1 et θ_2 et la mesure des épaisseurs a été dans chaque cas déduite du changement de fréquence d'une balance de quartz.

L'angle d'obliquité φ d'une couche de C.L. formée entre deux plaques ainsi évaporées est mesuré en utilisant la méthode optique décrite en [6]. On place la cellule de C.L. dans un champ magnétique dont on peut varier la direction autour d'un axe parallèle à y et on observe que, pour la valeur particulière (φ) de l'angle du champ avec la normale au plan du film, la figure conoscopique formée en lumière convergente à travers le C.L. n'est pas modifiée par l'application du champ.

Les résultats de l'étude sont rassemblés dans la figure 1. Pour une série de films d'épaisseur d_1 constante, l'angle φ augmente continûment jusqu'à une valeur maximum $\varphi \sim 40^\circ$ qui correspond à peu près à la valeur obtenue en l'absence de sous-couche d_1 . Cette loi de variation est pratiquement indépendante de l'épaisseur d_1 tant que celle-ci reste supérieure à 300 \AA . Par contre, φ décroît relativement brutalement lorsque d_1 diminue en dessous d'une valeur critique ($d_1 \sim 200 \text{ \AA}$ pour d_2 fixe $\sim 50 \text{ \AA}$). Notons toutefois que la présence de la sous-couche d_1 n'est pas indispensable pour obtenir une variation de l'angle φ

et que celle-ci peut être obtenue uniquement en variant l'épaisseur de d_2 pour des faibles valeurs d'épaisseur.

3. Convection thermique. — Nous avons utilisé une cellule horizontale, limitée par deux disques transparents de saphir d'épaisseur 1 mm, décrite dans la référence [3]. Les deux températures T_B , T_H sont définies par des circulations d'eau. En l'absence de gradient thermique, nous avons obtenu des échantillons bien orientés jusqu'à des épaisseurs de 2 mm.

3.1 CHAUFFAGE PAR LE BAS, $\Delta T = T_B - T_H > 0$. — **3.1.1 Cas de l'alignement oblique (Fig. 2a).** — Dans un liquide isotrope, la force d'Archimède est alors déstabilisante pour un liquide à coefficient de dilatation positif. Dans le cas d'un film planaire nématique, on observe, au-dessus d'un seuil $\Delta T(0)$, la formation de rouleaux convectifs d'axe perpendiculaire à la direction du directeur ($\mathbf{n} \parallel x$); les rouleaux sont observables seulement en lumière polarisée parallèlement à \mathbf{n} et sont dus à une distorsion périodique de \mathbf{n} dans le plan vertical xz le long de x .

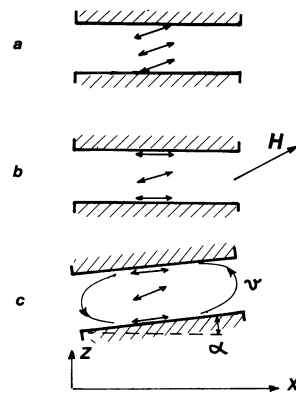


FIG. 2. — En l'absence de convection en rouleaux, une orientation oblique peut être obtenue : a) par alignement oblique sur les surfaces limites, b) par un champ magnétique oblique, c) par l'effet du rouleau convectif d'ensemble existant pour un faible gradient thermique ($T_B - T_H \gtrsim 0$).

[Below the roll instability threshold, an oblique orientation can be obtained : a) by oblique alignment on the limit plates, b) by an oblique magnetic field, c) under the effect of a global convective roll existing under a small temperature gradient ($T_B - T_H \gtrsim 0$).]

Pour un film d'épaisseur $d = 1 \text{ mm}$, le seuil $\Delta T_{cb} = 2,3 \text{ }^\circ\text{C}$ (obtenu en soustrayant la contribution due à la conductivité thermique du saphir) est de l'ordre de 500 fois plus faible que pour un liquide isotrope de mêmes propriétés moyennes.

Pour des cellules à ancrage oblique, on observe deux modifications :

(i) Le seuil de convection $\Delta T_{cb}(\varphi)$ augmente avec l'angle φ . Pour un angle φ de 35° le seuil ΔT_{cb} est de 7° pour un échantillon de 1 mm d'épaisseur et de l'ordre de $1,3^\circ$ pour un échantillon de 1,6 mm.

(ii) La structure devient asymétrique avec une alternance de rouleaux larges et étroits.

L'augmentation du seuil peut être considérée à partir du modèle initial de la convection thermique en orientation planaire. Dans l'équation de la chaleur (formule (2.4) de la référence [1]), la modification dominante provient du remplacement du terme de focalisation thermique $k_a \beta \frac{d\varphi}{dx}$ qui exprime l'effet de l'anisotropie de la conductivité thermique, en présence d'un gradient thermique vertical β et d'une courbure $d\varphi/dx$ fonction de x (autour de $\varphi = 0$), par le terme $k_a \beta \cos 2\varphi \frac{d\varphi}{dx}$. Dans le cas planaire, le seuil est abaissé proportionnellement au coefficient d'anisotropie k_a ; l'existence de l'angle fini φ cause ainsi une augmentation du seuil proportionnelle à $(\cos 2\varphi)^{-1}$. Compte tenu du côté très qualitatif de cette description, il y a un accord raisonnable avec la variation du seuil avec l'angle indiquée plus haut. Une analyse détaillée de ce problème, rendant en particulier compte de l'alternance des rouleaux, reste à faire.

Autres situations d'alignement oblique. — Nous avons aussi obtenu un effet d'alternance de taille de rouleaux convectifs en chauffant par le bas un film de C.L. où l'alignement oblique (dans le plan xz) était obtenu de deux façons différentes :

3.1.2 *En appliquant un champ magnétique oblique* (Fig. 2b) dans le plan xz perpendiculaire à l'axe des rouleaux. On a utilisé un champ magnétique $H \sim 2H_c$; H_c , le champ critique de Freedericksz, mesurant le seuil de distorsion en champ perpendiculaire au film, caractérise l'efficacité de la distorsion sous l'effet d'un champ magnétique. Le rapport des périodes des rouleaux décroît à peu près linéairement avec l'angle que fait le champ avec l'axe x . Pour un angle $\varphi = 30^\circ$, le rapport des périodes $\sim 0,3$ est comparable à la valeur donnée par l'alignement oblique. Dans ce cas, le champ oblique favorise la croissance des domaines où l'orientation de \mathbf{n} est dans le même secteur, ce qui cause l'alternance des demi-périodes.

3.1.3 *En inclinant une cellule planaire* (Fig. 2c), la direction de plus grande pente parallèle à x faisant

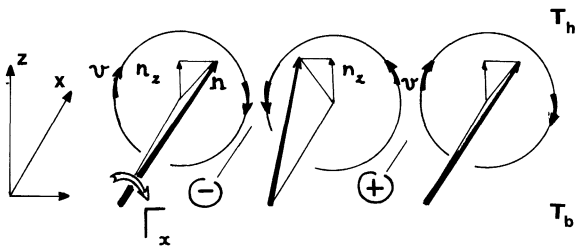


FIG. 3. — La cellule est chauffée par le haut ($T_B - T_H < 0$). La figure décrit le couplage entre la vitesse, qui crée un couple Γ_x sur le directeur, et l'anisotropie de température le long de y , résultant de la distribution inhomogène d'orientation, qui renforce le mouvement convectif initial.

[The cell is heated from above. The figure describes the coupling between the velocity, which gives rise to a torque Γ_x on the director, and the temperature anisotropy along y , resulting from the inhomogeneous distribution of orientation, which reinforces the initial convective motion.]

un angle α avec l'horizontale. En présence d'une composante horizontale du gradient thermique, il ne peut y avoir d'équilibre hydrostatique : en régime permanent, il existe une cellule de courant dans le plan vertical xz , même pour des faibles gradients thermiques. Le gradient de vitesse résultant crée une distorsion de la structure dans la masse du cristal liquide qui se caractérise par l'apparition d'un basculement du directeur dans le plan xz . L'angle de distorsion φ_{\max} , obtenu dans le plan médian du film, varie comme $\alpha_3 \sin \alpha/d^3$ [7] ⁽¹⁾; α_3 est le couple hydrodynamique qui s'exerce sur des molécules parallèles à la vitesse dans un cisaillement simple. Pour une épaisseur de film nématique $d = 0,5$ mm et une différence de température $\Delta T = 2,5$ °C (inférieure au seuil de convection) l'angle φ_{\max} est de l'ordre de 7° . Lorsqu'on augmente le gradient on voit apparaître des rouleaux alternativement larges et étroits, le rapport des largeurs étant du même ordre de grandeur que dans le cas précédent. Dans ce dernier cas, c'est l'effet du couple hydrodynamique dû à la circulation d'ensemble qui tend à favoriser la croissance des domaines pour lesquels la circulation des rouleaux convectifs élémentaires est dans le même sens que le grand rouleau convectif.

3.2 **CHAUFFAGE PAR LE HAUT, $\Delta T < 0$.** — Dans ce cas il est possible, avec une orientation *homéotrope*, d'obtenir une instabilité convective au-dessus d'un seuil linéaire de valeur comparable à celui obtenu pour un nématique planaire chauffé par le bas de même épaisseur : pour $d = 1$ mm, $|\Delta T_{cH}(0)| = 5,5$ °C.

Lorsque l'alignement est oblique, on peut aussi observer, au-dessus d'un seuil $\Delta T_{cH}(\varphi)$ suffisamment grand en valeur négative, une instabilité faite de rouleaux convectifs d'axe *parallèle* à x (c'est-à-dire perpendiculaire à la direction des rouleaux obtenue en chauffant la même couche de C.L. par le bas). La période des rouleaux (~ 4 fois l'épaisseur) est grande par rapport au cas planaire. Cette instabilité *linéaire* ne présente pas d'hystérésis en gradient croissant ou décroissant. Le seuil est considérablement élevé par rapport au cas $\varphi = \pi/2$. Pour $d = 1,5$ mm et $\varphi = 32^\circ$, le seuil vaut $\Delta T_H = T_B - T_H = 20 - 46 = -26$ °C. Il n'est d'ailleurs pas possible d'obtenir de convection avec l'épaisseur plus faible $d = 1$ mm.

Le mécanisme de cette instabilité peut être compris qualitativement à partir de celui qui s'applique au cas homéotrope (voir figure 3). Imaginons une boucle de convection hydrodynamique dans le plan vertical yz . Si l'orientation était planaire avec le directeur \mathbf{n} parallèle à x , il n'existerait pas de couplage entre \mathbf{n} et ce courant au moins tant que la vitesse reste suffisamment faible [8]. Par contre, dans le cas d'une orientation oblique, l'existence de la composante verticale du

⁽¹⁾ Tant que le gradient est suffisamment faible pour qu'on puisse négliger la contribution du couple mesuré par α_2 .

directeur n_z permet l'existence d'un couple Γ_x proportionnel à l'amplitude de la vitesse. S'il existe un régime périodique de rouleaux d'axe // à x , il en résulte une orientation périodique distordue caractérisée par la composante $n_z(y)$. Dans cette situation, les lignes de courant de chaleur sont déplacées par rapport à la situation sans convection. Le signe de cet effet, tout comme dans le cas homéotrope [1], est tel qu'il conduit à une accumulation de chaleur dans la région de vitesse ascendante, ce qui renforce la convection.

• Tout comme dans le cas homéotrope [9], une analyse bidimensionnelle, décrivant en particulier l'augmentation importante de la longueur d'onde des rouleaux par rapport à $2d$, est nécessaire.

Il est possible de modifier le seuil de convection oblique en appliquant un champ magnétique vertical. Prenons une couche d'épaisseur d donnée assez grande (Fig. 4). Il existe 3 domaines en champ :

- (i) Pour un gradient thermique insuffisant
 $(\Delta T < 17^\circ\text{C} \text{ pour } d = 1 \text{ mm}),$

l'application d'un champ magnétique ne permet jamais d'observer le régime de convection cellulaire.

- (ii) Pour un gradient thermique intermédiaire pour lequel il n'existe toujours pas de convection en

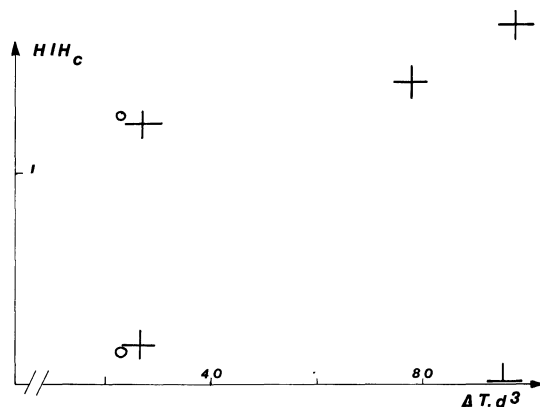


FIG. 4. — Donne en unités réduites H/H_c (H_c = champ de Freedericksz pour la transition en éventail) et $\Delta T d^3$ (en $^\circ \times \text{mm}^3$) les valeurs limites entre lesquelles on a observé une instabilité en chauffant par le haut. Pour les gradients thermiques trop faibles, l'effet essentiel du champ est le basculement homogène du directeur.

[Gives, in reduced units H/H_c (H_c is the Freedericksz threshold for the splay transition) versus $\Delta T d^3$ (in $^\circ \text{mm}^3$), the limiting values between which an instability has been obtained when heating from above. For small temperature gradients, the essential role of the field is to develop the homogeneous splay of the director.]

l'absence de champ, l'application d'un champ faible ($H_1 < H < H_c$) qui permet d'augmenter l'angle φ dans la masse de l'échantillon permet d'obtenir une instabilité convective du même type que celle que nous venons de décrire (rouleaux // x).

Par contre, pour une valeur de champ supérieure $H > H_2$, l'action stabilisante du champ limite la distorsion du directeur et bloque la convection.

(iii) Enfin, pour des gradients assez grands pour lesquels existe une convection en l'absence de champ, seul existe un seuil maximum $H_2(\Delta T)$ au-delà duquel la convection est bloquée.

4. Conclusion. — Nous avons décrit qualitativement les conditions d'apparition de la convection thermique dans un cristal liquide orienté obliquement, montrant en particulier qu'il était possible d'obtenir, dans une même cellule, de la convection en chauffant par le bas et par le haut. L'existence de deux systèmes de rouleaux à angle droit l'un de l'autre peut être rapprochée de résultats d'études sur la convection électrohydrodynamique dans les nématiques. Pikin, Ryschenkov et Urbach [10] ont étudié la modification du régime classique d'instabilité de Williams, obtenu en orientation planaire et en champ électrique basse fréquence et pour lequel les rouleaux convectifs sont perpendiculaires au directeur, lorsque l'orientation devient oblique : pour des films suffisamment minces, ils observent des rouleaux perpendiculaires aux rouleaux de Williams. Le mécanisme utilisé par Pikin *et al.* [1] utilise un couplage (semblable à celui indiqué sur la figure 3) entre la direction moléculaire et la vitesse hydrodynamique. La distorsion inhomogène résultante donne lieu à des effets de focalisation de charge. Une extension de cette analyse devrait être possible dans le cas thermique que nous avons décrit et pour lequel n'existe pas la complication due à l'anisotropie de la constante diélectrique rencontrée dans le problème électrique.

Note. — Nous avons eu connaissance d'un travail indépendant récent de F. U. Kahn [12] analysant à partir de mesures capacitives l'angle d'obliquité variable obtenu par une même succession de 2 évaporations. Les résultats sont en accord avec les nôtres et indiquent une intéressante modification de comportement lorsque l'ordre des évaporations d_1 et d_2 est inversé : les résultats se rapprochent alors de ceux que nous avons obtenus sans sous-couche d_1 .

Remerciements. — Nous remercions Mme Dubois-Violette pour les discussions que nous avons eues avec elle tout au long des études de convection thermique.

Bibliographie

- [1] PIERANSKI, P., DUBOIS-VIOLETTE, E. et GUYON, E., *Phys. Rev. Lett.* **30** (1973) 736.
- [2] JANNING, J. L., *Appl. Phys. Lett.* **21** (1972) 173.
- [3] DUBOIS-VIOLETTE, E., GUYON, E. et PIERANSKI, P., *Mol. Cryst. Liq. Cryst.* **26** (1973) 193.
- [4] GUYON, E., PIERANSKI, P. et BOIX, M., *Lett. Appl. Eng. Sci.* **1** (1973) 19.
- [5] RAYNES, E. P., ROWELL, D. K. et SHANKS, I. A., *Mol. Cryst. Liq. Cryst. Lett.* **34** (1976) 105.
- [6] NEHRING, I., KMETZ, A. R. and SCHEFFER, T. J., *J. Appl. Phys.* **47** (1976) 850.
- [7] GUYON, E., HORN, D. et PIERANSKI, P., *Revue Phys. Appl.* **11** (1976) 139.
- [8] PIERANSKI, P. et GUYON, E., *Phys. Rev. A* **9** (1974) 404.
- [9] DUBOIS-VIOLETTE, E., *Solid State Commun.* **14** (1974) 767.
- [10] PIKIN, S., RYSCHENKOW et URBACH, W., *J. Physique* **37** (1976) 241.
- [11] PIKIN, S., INDENBOM, V. L. et CHIGRINOV, V. G., Commun. à la conférence de Kent, Ohio (août 1976). Notons que le régime convectif est sensible au signe du couple caractérisé par le coefficient α_3 . Nous n'avons pas analysé cet effet ici (pour MBBA, $\alpha_3 < 0$).
- [12] KAHN, F. J., *Mol. Cryst. Liq. Cryst.* **38** (1977) 109.
-