Ondes transverses dans les smectiques Ba, Bc et E a

H. Ünal, J.-C. Bacri

► To cite this version:

H. Ünal, J.-C. Bacri. Ondes transverses dans les smectiques Ba, Bc et E a. Journal de Physique Lettres, 1977, 38 (4), pp.111-116. 10.1051/jphyslet:01977003804011100 . jpa-00231338

HAL Id: jpa-00231338

<https://hal.science/jpa-00231338>

Submitted on 1 Jan 1977

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Classification
 Physics Abstracts
 7.130 — 7.250

ONDES TRANSVERSES DANS LES SMECTIQUES B_A , B_C ET E_A

H. ÜNAL (*) et J.-C. BACRI

Laboratoire d'ultrasons (**), Université Pierre-et-Marie-Curie,
 Tour 13, 4, place Jussieu, 75230 Paris Cedex 05, France

(Reçu le 20 décembre 1976, accepté le 20 janvier 1977)

Résumé. — La propagation d'ondes ultrasonores transverses a été mise en évidence à 110 MHz dans les phases smectiques B_A , B_C et E_A de trois cristaux liquides. Ces expériences, complétées par des mesures impédométriques, nous ont permis de calculer la constante élastique de cisaillement et le coefficient de viscosité associé.

Abstract. — We have observed the transmission of ultrasonic shear waves at 110 MHz in smectic B_A , B_C and E_A phases in three liquid crystals. These experiments, combined with a shear wave reflectance technique, give the shear elastic constant and the dynamic viscosity.

1. Introduction. — Peu d'expériences ont mis en évidence la propagation d'ondes transverses ultrasonores dans la phase smectique B. Liao, Clark et Pershan [1] ont étudié cette propagation dans une expérience de diffusion Brillouin. D'autre part, Thierret et Martinoty [2] ont déterminé la partie réelle de l'impédance acoustique transverse dans la phase smectique B par une méthode d'impédométrie.

La constante élastique de cisaillement, correspondant à un vecteur d'onde perpendiculaire au plan des couches, donne des renseignements sur les longueurs de corrélation perpendiculairement aux couches. D'autre part, la modification de cette constante élastique et du coefficient de viscosité correspondant, au passage des transitions $S_m B_A \leftrightarrow S_m E_A$ et $S_m B_A \leftrightarrow S_m B_C$, donne quelques renseignements sur la nature de cette transition.

Nous avons observé une transmission des ondes ultrasonores transverses à 110 MHz sur une épaisseur de 2,5 μm dans les phases $S_m B_A$, $S_m B_C$ et $S_m E_A$. Ces mesures, complétées par des mesures impédométriques, nous ont permis de calculer les constantes élastiques et les coefficients de viscosité de cisaillement dans les différentes phases, en fonction de la température.

2. Dispositif expérimental. — L'appareillage est un système classique d'impulsions [3].

(*) Adresse permanente : Atatürk üniversitesi, Fen Fakültesi, Erzurum, Turquie.

Cet article ne recouvre qu'une partie du travail effectué par H. Ünal au laboratoire d'ultrasons, dont la totalité sera publiée en turc et en Turquie.

(**) Associé au Centre National de la Recherche Scientifique.

Pour chaque cristal liquide étudié, nous avons été amenés à faire deux types d'expériences : une expérience en transmission et une expérience en réflexion (impédométrie). L'expérience en transmission donne les variations d'atténuation et de vitesse de phase de l'onde transmise en fonction de la température, tandis que l'expérience en impédométrie donne, à une température donnée, les variations du coefficient de réflexion r et du déphasage φ à l'extrémité d'un quartz avec ou sans cristal liquide. r et φ sont reliés à la partie réelle et à la partie imaginaire de l'impédance acoustique par la relation

$$R = Z_s \frac{1 - r^2}{1 + r^2 + 2r \cos \varphi} \quad (1)$$

et

$$X = Z_s \frac{2r \sin \varphi}{1 + r^2 + 2r \cos \varphi}$$

Z_s est l'impédance acoustique du quartz en coupe AC ($Z_s = 9,94 \times 10^5 \text{ dyn.s.cm}^{-3}$).

Toutes les expériences ont été faites en faisant décroître la température.

Les expressions de la constante élastique

$$G = G' + iG''$$

et de la viscosité $\eta = \eta' - i\eta''$ sont les suivantes :

$$\begin{aligned} G' &= \frac{R^2 - X^2}{\rho}, & \eta' &= \frac{2RX}{\rho\omega} \\ G'' &= \frac{2RX}{\rho}, & \eta'' &= \frac{R^2 - X^2}{\rho\omega} \end{aligned} \quad (2)$$

et celles de la vitesse et de l'atténuation

$$v = \frac{R^2 + X^2}{\rho R}, \quad \alpha = \frac{\omega X \rho}{R^2 + X^2}. \quad (3)$$

Pour améliorer la précision, nous mesurons la variation de l'intensité et de la phase des échos réfléchis du 7^e au 21^e écho. L'erreur sur R est de $\pm 3\%$ et sur X de $\pm 7\%$. Dans nos deux expériences, la température est réglée au 1/100 de °C. Les transducteurs sont des quartz en coupe AC [3]. Dans l'expérience en transmission, le cristal liquide est déposé entre deux quartz séparés par une cale annulaire en or d'épaisseur 2,5 μm . Le vecteur d'onde est perpendiculaire à la face de sortie du quartz et perpendiculaire aux plans des couches dans les smectiques. Dans les smectiques E_A et B_A , la constante élastique mesurée est équivalente à un C_{44} et dans le smectique B_C à une combinaison complexe des C_{44} , C_{55} et C_{46} .

Le second corps étudié est le PBAMHC* [5] (p-phényl-benzylidène-p-amino-méthyl-1-heptylcinnamate)

R. Meyer [6] a montré, en utilisant une théorie moléculaire décrite par des interactions phényl-phényl ajoutées à des interactions dipôle-dipôle, que la transition $\text{S}_m B_A \leftrightarrow \text{S}_m E_A$ était du second ordre. Mais, si on fait intervenir un couplage entre le paramètre d'ordre orientationnel et le tenseur élastique du réseau, R. Meyer [7] a montré récemment que la transition est alors du premier ordre.

L'expérience en transmission nous a donné les variations d'atténuation et de phase. Ensuite nous avons fait une mesure impédométrique dans le PBAPC à 96,15 °C

$$R = 3,1 \times 10^4 \text{ dyn. s./cm}^3,$$

$$X = 2,46 \times 10^4 \text{ dyn. s./cm}^3$$

et dans le PBAMHC* à 85,88 °C

$$R = 3,07 \times 10^4 \text{ dyn. s./cm}^3,$$

$$X = 2,46 \times 10^4 \text{ dyn. s./cm}^3.$$

En utilisant les expressions (3), nous avons pu calibrer les courses de vitesse et d'atténuation.

Les valeurs absolues de vitesse et d'atténuation en fonction de la température sont portées sur les figures 1 et 2. Dans le PBAPC, la vitesse varie de 150 à 200 m/s dans la phase $\text{S}_m B_A$ et de 430 à 650 m/s dans la phase $\text{S}_m E_A$. Dans le PBAMHC*, elle varie de 290 à 360 m/s dans la phase $\text{S}_m B_A$ et de 345 à 350 m/s dans la phase $\text{S}_m E_A$.

Dans la phase smectique B, on trouve une vitesse

3. **Transition $\text{S}_m E_A \leftrightarrow \text{S}_m B_A$.** — La phase smectique E_A , comme la phase smectique B_A , est caractérisée par un empilement de molécules en couches équidistantes [4, 5] tel que les grands axes des molécules sont parallèles entre eux, les molécules restant perpendiculaires aux couches. Dans le premier cas, les positions des molécules dans un plan sont sur les nœuds d'un réseau orthorhombique, dans le second cas, sur les nœuds d'un réseau hexagonal. La transition de phase smectique E_A -smectique B_A apparaît liée à la mise en mouvement des molécules autour de leur grand axe, ce mouvement conférant à la molécule une symétrie apparente uniaxiale.

Nous avons étudié deux corps présentant des transitions de phase $\text{S}_m E_A \leftrightarrow \text{S}_m B_A$. C'est le cas du PBAPC [5] (p-phénylbenzylidène-p-amino-n-pentyl-cinnamate). Ce cristal donne, par fusion, une phase smectique E_A qui se transforme ensuite en phase smectique B_A ; nous indiquons ci-dessous les domaines d'existence des différentes mésophases.

Fig. 1. — Variation de l'atténuation et de la vitesse en fonction de la température dans le PBAPC.

[Variation of absorption coefficient and velocity as a function of temperature for PBAPC.]

FIG. 2. — Variation de l'atténuation et de la vitesse en fonction de la température dans le PBAMHC*.

[Variation of absorption coefficient and velocity as a function of temperature for PBAMHC*.]

du même ordre de grandeur que celle mesurée par effet Brillouin dans le β -méthyl-butyl-P [(p-methoxy benzylidene) amino] cinnamate [1].

Dans les deux corps, on observe un effet prétransitionnel qui se traduit par une augmentation de l'atténuation et de la vitesse.

Une combinaison des relations (2) et (3) donne

$$G' = \omega \eta'' = \rho \omega^2 \frac{K'^2 - K''^2}{(K'^2 + K''^2)^2} = \rho \omega^2 \frac{1 - b^2}{(1 + b^2)^2} \quad (4)$$

$$G'' = \omega \eta' = \rho \omega^2 \frac{2 K' K''}{(K'^2 + K''^2)^2} = \rho \omega^2 \frac{2 b}{(1 + b^2)^2}$$

où le vecteur

$$K = K' - iK'', \quad K' = \frac{\omega}{v}, \quad K'' = \alpha \quad \text{et} \quad b = \frac{\alpha \lambda}{2\pi}.$$

Utilisant l'expression (4), nous avons tracé, sur les figures 3 et 4, G' et η' en fonction de la température. G' , la constante élastique de cisaillement, qui dans notre cas est équivalente à un C_{44} , varie de 1 à $3,6 \times 10^8$ dyn./cm², est cent fois plus petite que la constante élastique de compression (C_{33} ou C_{11}) [1].

FIG. 3. — Variation de la constante élastique de cisaillement et du coefficient de viscosité en fonction de la température dans le PBAPC.

[Variation of the real part of the shear modulus and shear viscosity as a function of temperature for PBAPC.]

FIG. 4. — Variation de la constante élastique de cisaillement et du coefficient de viscosité en fonction de la température dans le PBAMHC*.

[Variation of the real part of the shear modulus and shear viscosity as a function of temperature for PBAMHC*.]

Nous remarquons un comportement différent du PBAPC et du PBAMHC* au voisinage de la transition $S_m E_A \leftrightarrow S_m B_A$: le premier corps donne des discontinuités de α et de v à la transition, tandis que le second donne des variations lentes. On peut en conclure que si dans le PBAPC la transition est

franchement du premier ordre, dans le PBAMHC* la transition est soit faiblement du premier ordre, soit du second ordre.

4. Transition $S_m B_C \leftrightarrow S_m B_A$. — La phase smectique B_A est caractérisée dans un plan par un ordre hexagonal à deux dimensions, les moments dipolaires sont orientés au hasard dans ce plan. La phase smectique B_C est caractérisée par un ordre bidimensionnel pseudo-hexagonal, mais le directeur est incliné par rapport à la normale aux plans.

Meyer et McMillan [8] ont étendu aux phases smectiques B_A et B_C leur théorie moléculaire des

phases A et C. Dans leur théorie, les interactions dipôle-dipôle jouent un rôle essentiel et l'ordre orientationnel des dipôles est responsable de l'angle entre les molécules et la normale aux plans. Les expériences de diffusions de rayons X [9] et de neutrons [10] ont montré qu'il n'y avait pas d'ordre orientationnel des dipôles à l'intérieur des plans des smectiques B_C . D'autre part, Meyer et McMillan ont prédit que la transition $S_m B_A \leftrightarrow S_m B_C$ était toujours du second ordre.

Nous avons étudié le HOBHA [11] (heptyl-oxybenzylidène-heptyl-aniline) qui comporte les phases suivantes :

La mesure d'impédométrie a été faite à $62,65^\circ C$ dans la phase $S_m B_A$

$$R = 2,03 \times 10^4 \text{ dyn. s./cm}^3,$$

$$X = 0,89 \times 10^4 \text{ dyn. s./cm}^3.$$

La figure 5 représente les valeurs absolues de la vitesse et de l'atténuation obtenues après calibration

FIG. 5. — Variation de l'atténuation et de la vitesse en fonction de la température dans le HOBHA.

[Variation of absorption coefficient and velocity as a function of temperature for HOBHA.]

dans les phases $S_m B_A$ et $S_m B_C$. On remarque que l'atténuation ultrasonore est plus grande dans la phase $S_m B_C$ que dans la phase $S_m B_A$. Cette augmentation de α peut s'expliquer par l'apparition de petits domaines visibles au microscope (de l'ordre de quelques microns) : l'onde ultrasonore est donc diffusée par ces domaines.

En utilisant les valeurs de α et v et les expressions (4), nous en avons déduit les courbes de G' et η' en fonction de la température (Fig. 6).

On observe des effets prétransitionnels sur α , v , G' et η' et leurs variations sont lentes à la transition.

5. Interprétation des résultats. — Dans le cas des smectiques B, le problème important est de savoir si les couches smectiques glissent librement les unes sur les autres ou si ces couches sont fortement corrélées. Le premier cas serait plutôt équivalent à un fluide visqueux, le second cas à un cristal plastique. Le problème est donc de savoir si la constante élastique de cisaillement G' (ou C_{44}) existe quand $\omega \rightarrow 0$. L'expérience de diffusion Brillouin de Liao *et al.* [1] donne une valeur de $G'(\omega) \neq 0$, mais ne prouve pas que $G(0) \neq 0$.

Si on considère que la constante élastique ne dépend que d'un seul temps de relaxation τ , on peut écrire :

$$\begin{aligned} G'(\omega) &= \frac{G(0) + \omega^2 \tau^2 G(\infty)}{1 + \omega^2 \tau^2} \\ &= G(0) + \frac{\omega^2 \tau^2 [G(\infty) - G(0)]}{1 + \omega^2 \tau^2} \end{aligned} \quad (5)$$

$$\eta'(\omega) = \frac{\tau [G(\infty) - G(0)]}{1 + \omega^2 \tau^2}$$

si

$$\begin{aligned} \omega\tau \ll 1 \quad G'(\omega) &= G(0) + \omega^2 \tau^2 G(\infty) \\ \eta'(\omega) &= \tau [G(\infty) - G(0)] \end{aligned} \quad (6)$$

FIG. 6. — Variation de la constante élastique de cisaillement et du coefficient de viscosité en fonction de la température dans le HOBHA.

[Variation of the real part of the shear modulus and shear viscosity as a function of temperature for HOBHA.]

FIG. 7. — Variation des coefficients de viscosité en échelle logarithmique en fonction de 1/T pour le PBAPC, le PBAMHC* et le HOBHA.

[Variation of Log η_s versus 1/T for PBAPC, PBAMHC* and HOBHA.]

et si

$$\omega \tau \gg 1 \quad G'(\omega) = G(\infty)$$
$$\eta'(\omega) = \frac{G(\infty) - G(0)}{\omega^2 \tau}.$$

(7)

L'hypothèse $\omega \tau \gg 1$ est incompatible avec les

résultats trouvés expérimentalement pour G' et η' : en effet on trouve toujours que

$$\omega \tau < \frac{G'(\omega)}{\omega \eta'(\omega)} < 1.$$

A la transition, le fait qu'une forte discontinuité soit observée sur la constante élastique du PBAMHC* et du HOBHA alors que la viscosité a un comportement monotone, montre d'après les relations (6) que si $G(\infty)$ a une discontinuité, $G(0)$ doit avoir la même de façon que $G(\infty) - G(0)$ soit continue, ce qui implique que la viscosité a un comportement monotone dans le cas où $\omega \tau < 1$.

L'hypothèse plausible reste donc $\omega \tau < 1$ et $G(0) \neq 0$ au moins dans la phase basse température ($S_m B_C$ et $S_m E_A$). Ces conclusions ne sont valables que dans l'hypothèse où on considère un seul temps de relaxation, mais l'existence d'un temps de relaxation basse fréquence n'est pas exclue.

Il est bien évident que seule l'étude de G' en fonction de ω nous permettra de donner la valeur de $G(0)$.

Nous avons voulu vérifier si la viscosité suivait la loi classique d'Arrhénius

$$\eta \sim \exp W/kT$$

où W est l'énergie d'activation. Nous avons porté sur la figure 7 $\log \eta$ en fonction de $1/T$. Loin de la transition, la pente donne la valeur de l'énergie d'activation en kcal/mole.K

PPAPC	$S_m E_A$	$W = 10 \pm 2,$
	$S_m B_A$	$W = 2,5 \pm 0,4$
PBAMHC*	$S_m E_A$	$W = 5,5 \pm 0,2,$
	$S_m B_A$	$W = 5,5 \pm 0,2$
HOBHA	$S_m B_C$	$W = 2,8 \pm 0,2,$
	$S_m B_A$	$W = 2,8 \pm 0,2.$

Nous avons trouvé des résultats similaires dans le TBBA [12].

6. Conclusion. — Nous avons fait propager des ondes ultrasonores transverses à la fréquence de 110 MHz dans les phases $S_m B_A$, $S_m B_C$, $S_m E_A$ de trois cristaux liquides. En combinant ces expériences impédométriques, nous en avons déduit les valeurs de la vitesse, de l'atténuation, de la constante élastique de cisaillement et de la viscosité correspondant au mode acoustique excité. Nous avons remarqué que les transitions $S_m E_A \leftrightarrow S_m B_A$ et $S_m B_C \leftrightarrow S_m B_A$ donnaient lieu à des effets prétransitionnels sur la vitesse et l'atténuation.

Dans l'hypothèse où il n'y a qu'un seul temps de relaxation, nos résultats sont cohérents avec $\omega \tau < 1$ et $G(0) \neq 0$, au moins dans la phase basse température.

Remerciements. — Nous remercions L. Liebert et L. Strezelecki (Laboratoire de Physique des Solides d'Orsay) d'avoir synthétisé le PBAPC et le PBAMHC*, et J. C. Dubois (Thomson-CSF) pour le HOBHA.

Bibliographie

- [1] LIAO, Y., CLARK, N. and PERSHAN, P. S., *Phys. Rev. Lett.* **30** (1973) 639.
 - [2] THIERET, Y. et MARTINOTY, P., *J. Physique Lett.* **36** (1975) L-125.
 - [3] BACRI, J. C., Thèse. Paris (1976).
 - [4] LEVELUT, A. M., DOUCET, J. et LAMBERT, M., *J. Physique* **35** (1974) 773.
 - [5] DOUCET, J., LEVELUT, A. M., LAMBERT, M., LIEBERT, L., STREZELECKI, L., *J. Physique Colloq.* **36** (1975) C1-13.
 - [6] MEYER, R. J., *Phys. Rev.* **12A** (1975) 1066.
 - [7] MEYER, R. J., *Phys. Rev.* **13A** (1976) 1613.
 - [8] MEYER, R. J. and MC MILLAN, W. L., *Phys. Rev.* **9A** (1974) 899.
 - [9] DOUCET, J., LEVELUT, A. M. and LAMBERT, M. *Phys. Rev. Lett.* **32** (1974) 301.
 - [10] HERVET, H., VOLINO, F., DIANOUX, A. J. and LECHNER, R. E. *Phys. Rev. Lett.* **34** (1975) 451.
 - [11] RIBOTTA, R., *Phys. Lett.* **56** (1976) 130.
 - [12] ÜNAL, H., à paraître.
-