



HAL
open science

Ondes évanescentes et ondes électromagnétiques de surface dans un milieu anisotrope et inhomogene : applications a l'étude d'une interface solide-nématique .

Denis Rivière

► To cite this version:

Denis Rivière. Ondes évanescentes et ondes électromagnétiques de surface dans un milieu anisotrope et inhomogene : applications a l'étude d'une interface solide-nématique .. Optique [physics.optics]. Université Paris Sud - Paris XI, 1984. Français. NNT: . pastel-00714230

HAL Id: pastel-00714230

<https://pastel.hal.science/pastel-00714230>

Submitted on 3 Jul 2012

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.

ORSAY
n° d'ordre :
2852

*A Nelly,
bien amicalement et en
souvenir de tous les moments
que je lui ai fait subir...*

UNIVERSITÉ DE PARIS-SUD
CENTRE D'ORSAY

Denis

THESE

présentée
pour obtenir

Le GRADE de DOCTEUR ES SCIENCES PHYSIQUES

PAR

Denis RIVIERE

SUJET : ONDES EVANESCENTES ET ONDES ELECTROMAGNETIQUES DE SURFACE
DANS UN MILIEU ANISOTROPE ET INHOMOGENE : APPLICATIONS A
L'ETUDE D'UNE INTERFACE SOLIDE-NEMATIQUE

soutenue le

25 avril 1984

devant la Commission d'examen

MM. P. G. de GENNES

Président

J. P. BUDIN

E. GUYON

C. IMBERT

Y. LEVY

P. SIXOU

ABSTRACT

Optical methods proposed in this work use evanescent waves (total internal reflection) and electromagnetic surface waves (surface plasmon optical excitation) in anisotropic, inhomogeneous and absorbing media. They are applied to a nematic liquid crystal in which the director distortion is induced by a plane Poiseuille flow or an electric field (Freedericksz transition) ; in the latter case, the determination of anchoring energies is possible.

The optical properties of inhomogeneous films (anchoring layers) are investigated and the ability for an electromagnetic wave to probe an inhomogeneous and anisotropic medium near a solid surface is proved, for layer thicknesses between 10 and 1000 angströms about.

To conclude, a prospective study shows possible applications in interfacial physical phenomena : wall effects (polymers, critical binary mixtures) and wetting transition.

En guise de prologue, il m'est particulièrement agréable de remercier toutes les personnes qui ont contribué à la réalisation de cette thèse.

Monsieur le Professeur de Gennes m'a fait l'honneur d'en présider le jury ; qu'il trouve ici l'expression de mes très sincères remerciements.

Monsieur le Professeur Guyon a toujours suivi mon travail avec attention ; les discussions que nous avons pu avoir ensemble ont été aussi stimulantes qu'enrichissantes sur le plan scientifique et je suis heureux de lui exprimer ici ma profonde gratitude.

Monsieur Jean-Pierre Budin et Monsieur Pierre Sixou ont accepté de faire partie du jury de cette thèse ; j'en suis particulièrement reconnaissant.

Monsieur le Professeur Maréchal m'a accueilli lorsque je suis entré à l'Institut d'Optique, et je voudrais le remercier de la confiance qu'il m'a toujours témoignée.

Monsieur le Professeur Imbert a dirigé mes travaux de recherche dès leur commencement ; il m'a aidé à résoudre les nombreux problèmes auxquels je me suis heurté et ses encouragements m'ont été précieux. Je lui dois beaucoup et c'est avec plaisir que je tiens à lui exprimer ici toute ma gratitude.

Monsieur Yves Levy a suivi avec attention la progression de ce travail et les nombreuses et fructueuses discussions que nous avons pu avoir ensemble montrent à quel point notre collaboration fut étroite. Témoin de mes découragements comme de mon enthousiasme, il n'a ménagé ni son temps, ni ses conseils, pour me faire profiter de ses compétences et de son expérience. Qu'il trouve ici l'expression de ma très sincère reconnaissance.

Pour la partie expérimentale de ce travail, j'ai beaucoup apprécié l'aide de Gisèle Roger ; joignant une efficacité et un soin remarquable dans la préparation et la réalisation des "manips", elle n'a pas manqué d'initiative, que ce soit pour améliorer un montage ou pour aborder les problèmes inhérents au dépôt des couches minces.

Lorsque j'ai eu besoin d'un "coup de main" sur le plan de l'électronique, André Villing et Alain Aide m'ont assuré de leur aide, aussi sympathique que compétente.

Je tiens également à remercier Madame Valiergue et Madame Morilhat qui ont, avec beaucoup de gentillesse, réalisé les dépôts métalliques dont j'ai souvent eu besoin, ainsi que Madame Boix, du Laboratoire de Physique des Solides, pour les dépôts de monoxyde de silicium.

De telles expériences n'ont évidemment pu être réalisées sans les services techniques de l'Institut d'Optique, aussi bien le bureau d'étude que les ateliers de mécanique et d'optique ; la qualité de leurs réalisations fut toujours à la hauteur de nos exigences expérimentales.

Monsieur Clerc, du LETI-CENG à Grenoble, m'a été d'une aide précieuse en me fournissant des couches minces de qualité et je lui en suis très reconnaissant.

Ce mémoire a matériellement vu le jour, grâce à Nelly Bonavent, qui en a assuré la frappe avec beaucoup d'efficacité et de gentillesse, et à Madame Delmotte, qui s'est occupé du tirage définitif.

Je ne saurais terminer sans penser à toutes les personnes qui m'ont aidé au cours de ce travail et que je n'aurais pas citées. Qu'elles sachent bien que leur contribution, si modeste soit-elle, s'est souvent révélée indispensable et je les en remercie très cordialement.

TABLE DES MATIERES

<u>CHAPITRE I - LES METHODES OPTIQUES UTILISEES DANS L'ETUDE DES COUCHES MINCES ANISOTROPES ET INHOMOGENES</u>	5
I A - <u>ETUDE DE LA PROPAGATION D'UNE ONDE ELECTROMAGNETIQUE PLANE A TRAVERS UN MILIEU ANISOTROPE, INHOMOGENE ET ABSORBANT</u>	5
I A 1 - Les résultats de la théorie électromagnétique dans le cas d'un empilement de couches minces	5
I A 2 - Etude en incidence oblique d'un milieu anisotrope uniaxe et inhomogène	12
I B - <u>ETUDE D'UNE COUCHE MINCE ANISOTROPE ET INHOMOGENE PAR EXCITATION OPTIQUE DE PLASMONS DE SURFACE</u>	22
I B 1 - Introduction aux plasmons de surface : les deux niveaux d'approche possibles	22
I B 2 - Ondes électromagnétiques de surface : conditions d'existence et relation de dispersion	26
I B 3 - Excitation optique de plasmons de surface : prismes et réseaux	31
I B 4 - Effets d'anisotropie et d'inhomogénéité : étude d'une couche de SiO _x en réflexion totale atténuée	36
<u>CHAPITRE II - LA PHASE MESOMORPHE COMME MATERIAU D'ETUDE</u>	47
II A - <u>INTRODUCTION</u>	47
II B - <u>LA PHASE NEMATIQUE</u>	48
II B 1 - Principes de la théorie continue	48
II B 2 - Propriétés optiques	52
II B 3 - Le problème de l'ancrage	54
II B 4 - Les nématiques utilisés	63

<u>CHAPITRE III</u>	- <u>ÉCOULEMENT DE POISEUILLE DANS UN FILM MINCE NEMATIQUE : ÉTUDE THÉORIQUE ET EXPÉRIMENTALE</u>	69
III A	- <u>FORMULATION HYDRODYNAMIQUE DE L'ÉCOULEMENT DE POISEUILLE PLAN D'UN CRISTAL LIQUIDE EN PHASE NEMATIQUE</u>	69
III B	- <u>ANALYSE OPTIQUE DE LA DÉFORMATION DU DIRECTEUR</u>	74
III C	- <u>REALISATION EXPERIMENTALE</u>	84
	III C 1 - Dispositif hydrodynamique et réalisation de la cellule d'écoulement	84
	III C 2 - Dispositif optique et mesure des coefficients de réflexion	86
III D	- <u>RESULTATS EXPERIMENTAUX ET DISCUSSION</u>	88
<u>CHAPITRE IV</u>	- <u>LA MESURE DES ENERGIES D'ANCRAGE</u>	97
IV A	- <u>ANCRAGE OPTIQUE FAIBLE</u>	97
	IV A 1 - Principe de la méthode	97
	IV A 2 - Dispositif expérimental	101
	IV A 3 - Résultats expérimentaux et discussion	103
IV B	- <u>ANCRAGE PLANAIRE FORT</u>	105
	IV B 1 - La désorientation du directeur sous l'influence d'un champ électrique : le problème de la transition de Freedericksz	105
	IV B 2 - L'excitation optique de plasmons de surface à l'interface or/cristal liquide	115
	IV B 3 - La mesure de l'énergie d'ancrage : possibilités expérimentales et discussion	131
<u>CHAPITRE V</u>	- <u>ONDES EVANESCENTES ET ONDES ELECTROMAGNETIQUES DE SURFACE : LIMITATIONS ET PERSPECTIVES DANS LE CADRE DE L'ETUDE D'UNE INTERFACE SOLIDE-FLUIDE</u>	141
V A	- <u>INTRODUCTION</u>	141
V B	- <u>ONDES EVANESCENTES ET ONDES ELECTROMAGNETIQUES DE SURFACE : SIMILITUDES ET DIFFERENCES</u>	142

V C	- <u>MISE EN EVIDENCE D'UNE COUCHE MINCE SUPERFICIELLE</u>	146
V C 1	- Faible variation superficielle de l'indice de réfraction	146
V C 2	- Faible variation de l'épaisseur d'une couche superficielle d'indice 1,33	147
V C 3	- Introduction d'une couche superficielle absorbante	151
V C 4	- Quelques exemples d'application	155
V D	- <u>DETERMINATION D'UN PROFIL D'INHOMOGENEITE AU NIVEAU D'UNE INTERFACE SOLIDE-FLUIDE</u>	156
V D 1	- Gradient d'indice de réfraction	158
V D 2	- Gradient d'absorption	160
V D 3	- Conclusion de l'étude	164

CONCLUSION

<u>ANNEXE A 1</u>	- Calcul des coefficients de réflexion et de transmission d'une onde électromagnétique plane et monochromatique à travers un empilement de couches minces uniaxes dont les axes optiques sont dans le plan d'incidence.	171
<u>ANNEXE A 2</u>	- Calcul de la relation de dispersion d'une onde électromagnétique de surface dans le cas d'un métal en contact avec un milieu uniaxe	183
<u>ANNEXE A 3</u>	- Calcul des paramètres hydrodynamiques dans le cas d'un écoulement de Poiseuille plan.	187
<u>ANNEXE A 4</u>	- Calcul du profil de déformation dans le cas de la transition de Fredericksz ; ancrage fini aux parois, $\Delta \epsilon$ et ΔK quelconques.	191
<u>BIBLIOGRAPHIE</u>		201

INTRODUCTION

Si la découverte des cristaux liquides remonte à plusieurs décennies, l'étude de leurs propriétés physiques continue de faire l'objet d'importants travaux de recherche, essentiellement motivés par des applications industrielles toujours plus nombreuses dans le domaine de l'électro-optique. Ces propriétés sont, désormais, bien connues des physiciens, mais il n'en reste pas moins des phénomènes mal compris et pourtant fondamentaux, comme les mécanismes de l'orientation des molécules d'un cristal liquide au contact d'une paroi solide. Toutes les fois que l'on doit réaliser un échantillon homogène, il faut en effet déposer sur cette paroi une couche d'ancrage qui assure l'orientation correcte du cristal liquide. Nous rejoignons ainsi des problèmes liés à la physicochimie des surfaces, et plus généralement aux interfaces solide-fluide.

Dans ce contexte très actuel, il nous est apparu que certaines méthodes optiques présentaient un intérêt particulier dans l'étude des matériaux au voisinage d'une surface, et tout spécialement des cristaux liquides. Ces méthodes qui nécessitent un dispositif expérimental relativement simple, ont en commun une caractéristique fondamentale : l'existence d'une onde électromagnétique qui se propage au voisinage de l'interface, et dont la profondeur de pénétration dans le milieu analysé est de quelques milliers d'angströms.

Nous avons essayé, dans ce travail, de montrer la sensibilité et l'efficacité de ces sondes électromagnétiques de surface dans l'analyse de milieux inhomogènes et anisotropes ; l'application à l'étude d'un cristal liquide en phase nématique en est un exemple, qui nous semble significatif et que nous allons décrire dans les lignes qui vont suivre.

Il nous a semblé utile, dans un premier chapitre, de rappeler quelques résultats importants concernant la propagation d'une onde plane électromagnétique dans un milieu anisotrope et absorbant, et de les étendre à un milieu uniaxe dans lequel existe une dépendance spatiale de l'orientation de l'axe optique ; une étude en incidence oblique au voisinage de l'angle d'incidence limite a permis de dégager quelques propriétés qui serviront dans l'interprétation d'expériences relatives aux cristaux liquides. Nous avons ensuite introduit la méthode qui

utilise l'excitation optique de plasmons de surface : son application aux milieux anisotropes et inhomogènes se révèle particulièrement fructueuse, nous en montrerons un exemple dans l'étude d'une couche de SiO_x évaporée obliquement.

Dans le second chapitre, nous présenterons la phase nématique comme matériau d'étude, en soulignant l'originalité de ses propriétés optiques et en insistant sur les difficultés expérimentales liées à la mesure des énergies d'ancrage.

Le troisième chapitre contient une analyse théorique et expérimentale de l'écoulement de Poiseuille plan d'un cristal liquide en phase nématique, fondée sur une étude des courbes de réflectivité en incidence oblique : on montre en effet que ces courbes traduisent la forme du profil de désorientation de l'axe optique du milieu uniaxe, permettant ainsi de vérifier la validité du modèle hydrodynamique et de constater la sensibilité de la méthode proposée.

Nous aborderons ensuite le quatrième chapitre, où nous traiterons le délicat problème de la mesure des énergies d'ancrage par une technique utilisant l'excitation optique de plasmons de surface. Après une étude théorique rigoureuse de la déformation du milieu sous l'influence d'un champ électrique, compte tenu des conditions d'ancrage aux parois, nous essaierons d'interpréter les résultats expérimentaux obtenus en mettant en évidence l'influence de la couche d'ancrage sur les courbes de réflectivité. Nous donnerons également dans ce chapitre les résultats d'une expérience très simple qui a permis de mesurer avec une bonne précision l'énergie de surface associée à un ancrage oblique faible.

C'est dans le cinquième et dernier chapitre que nous donnerons les limitations des deux méthodes optiques utilisées dans ce travail, en comparant les effets respectifs de l'onde évanescente et de l'onde électromagnétique de surface, dans la perspective d'une étude plus vaste et aussi plus ambitieuse des interfaces solide-fluide.

CHAPITRE I

LES METHODES OPTIQUES UTILISEES DANS L'ETUDE DES COUCHES MINCES ANISOTROPES ET INHOMOGENES

Ce chapitre introductif est consacré aux méthodes optiques mises en oeuvre dans ce travail, et qui exploitent largement les propriétés des ondes évanescentes et des ondes électromagnétiques de surface. La théorie qui est à l'origine de ces méthodes repose sur les équations de Maxwell, dans le cadre de l'électromagnétisme classique. Nous étudierons tout d'abord la propagation d'une onde plane à travers un empilement de couches minces anisotropes et absorbantes, et nous étendrons cette étude à un film uniaxe dont l'orientation de l'axe optique varie continûment dans une direction normale à la couche, la rendant ainsi inhomogène ; nous montrerons, dans ces conditions, que l'on peut définir un gradient d'indice effectif du milieu, en soulignant l'importance du signe de ce gradient lorsqu'on approche les conditions de réflexion totale (au sens strict ou atténuée). Les résultats obtenus seront mis à profit dans le chapitre III consacré à l'écoulement de Poiseuille plan d'un cristal liquide en phase nématique. Nous aborderons ensuite une méthode qui utilise l'excitation optique de plasmons de surface, et dont l'application aux milieux anisotropes, inhomogènes et absorbants s'avèrera particulièrement utile dans la suite de ce travail (interfaces solide-nématique ou solide-fluide). Après quelques rappels théoriques nécessaires à la bonne compréhension de l'exposé, nous montrerons sur un exemple concret que de faibles effets d'anisotropie ou d'inhomogénéité peuvent être observés, mettant en évidence l'aptitude de l'onde électromagnétique de surface à sonder une couche superficielle très mince.

I A - ETUDE DE LA PROPAGATION D'UNE ONDE ELECTROMAGNETIQUE PLANE A TRAVERS UN MILIEU ANISOTROPE, INHOMOGENE ET ABSORBANT

I A 1 - Les résultats de la théorie électromagnétique dans le cas d'un empilement de couches minces anisotropes

I A 1 a - hypothèses de départ et notations

Nous envisageons la propagation d'une onde plane, homogène et monochromatique en réflexion sur des dioptries plans et parallèles. Cette onde,

de pulsation ω et dont la longueur d'onde dans le vide est λ ($\omega = 2\pi c / \lambda$), a initialement une polarisation rectiligne. Entre deux dioptrés consécutifs, le milieu anisotrope est supposé uniaxe et son axe optique reste dans le plan d'incidence xOz (Figure I 1). Par rapport à ce plan, nous définissons pour le champ électrique, deux polarisations rectilignes orthogonales :

- polarisation parallèle au plan d'incidence (onde TM) : $E_y = H_x = H_z = 0$
- polarisation perpendiculaire au plan d'incidence (onde TE) : $E_z = E_x = H_y = 0$.

(E_i et H_i , où $i = x, y, z$, représentent les composantes des champs électriques et magnétiques).

Une couche mince particulière est caractérisée par les paramètres suivants :

- épaisseur e
- indice extraordinaire principal n_e
- indice ordinaire principal n_o
- orientation de l'axe optique α (définie par rapport à l'interface).

Le nombre de couches est quelconque et nous supposons l'ensemble bordé par deux milieux isotropes et semi-infinis d'indices n_i et n_t . Une onde plane incidente \sum_i donne naissance à une onde plane réfléchie \sum_r et à une onde plane transmise \sum_t (polarisation initiale TM ou TE).

La présence d'absorption dans le milieu anisotrope, ou plus généralement d'une perte dans la propagation de l'onde, s'introduit mathématiquement par un indice de réfraction complexe {101, 102} . Les programmes de calcul que nous avons mis au point tiennent compte de cette possibilité. Dans un souci de simplification et pour ne pas alourdir la formulation théorique, nous n'utiliserons cette notation complexe que lorsque cela sera vraiment nécessaire, par exemple dans le cas de milieux métalliques (excitation optique de plasmons de surface). Il est d'ailleurs plus commode, dans certains cas, de raisonner en terme de permittivité (ou constante diélectrique) et nous adopterons, dans le cas d'un milieu isotrope, la notation suivante :

$$\tilde{\epsilon} = \epsilon' + i\epsilon'' \qquad \tilde{n} = n + i\chi \qquad (1.1)$$

avec les relations de correspondance : $\epsilon' = n^2 - \chi^2$ et $\epsilon'' = + 2 n\chi$; $(\tilde{n})^2 = \tilde{\epsilon}$.

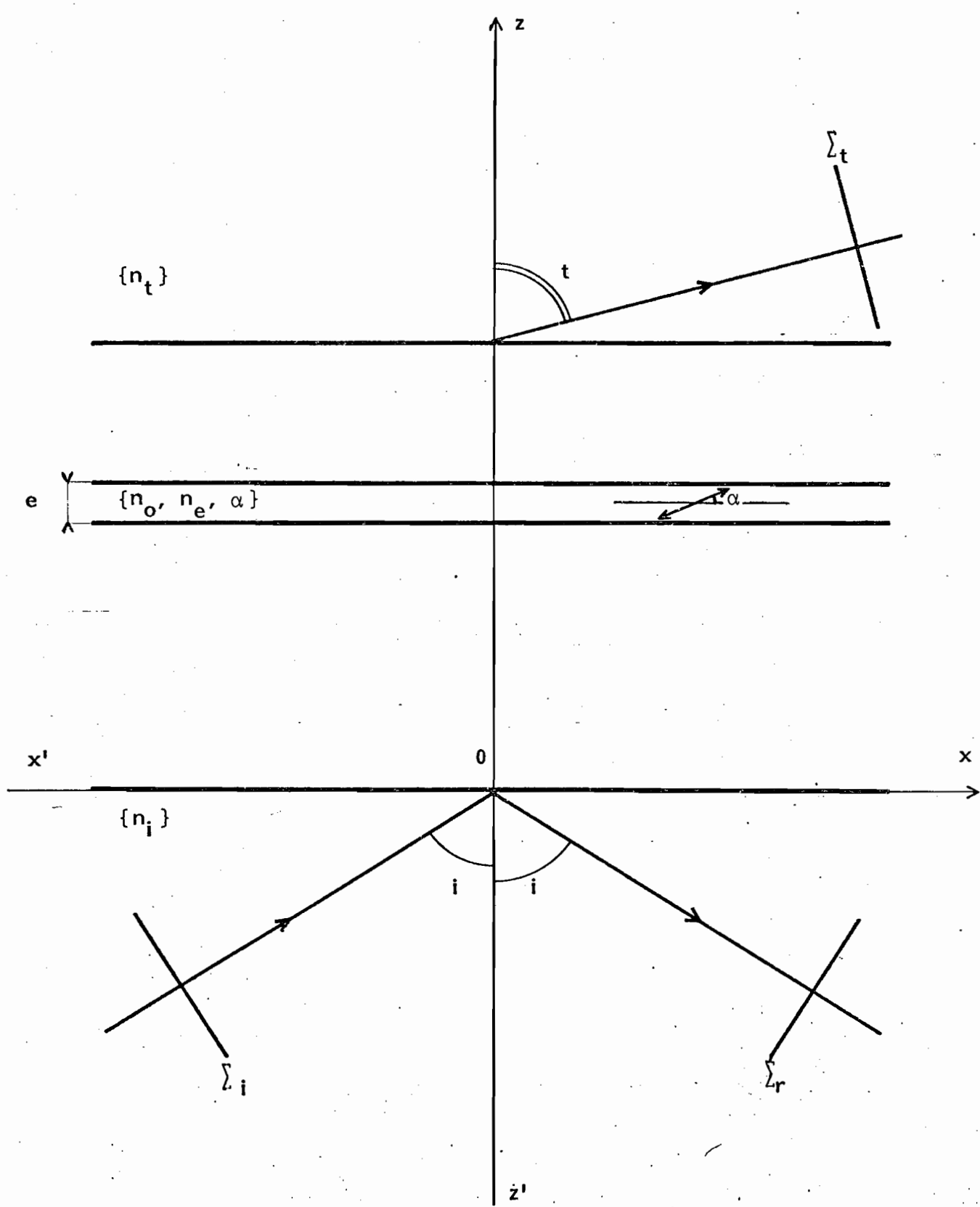


Figure I 1 : Empilement de couches minces anisotropes

Le modèle que nous avons choisi pour étudier la propagation de l'onde électromagnétique est le modèle théorique classique basé sur les équations de Maxwell :

$$\left\{ \begin{array}{l} \text{rot } \mathcal{E} = - \frac{\partial}{\partial t} \mathcal{B} \\ \text{rot } \mathcal{H} = \frac{\partial}{\partial t} \mathcal{D} + \mathcal{J} \\ \text{div } \mathcal{D} = \rho \\ \text{div } \mathcal{B} = 0 \end{array} \right. \quad (1.2)$$

auxquelles s'ajoutent les relations constitutives suivantes :

$$\left\{ \begin{array}{l} \mathcal{D} = \epsilon \mathcal{E} \\ \mathcal{B} = \mu \mathcal{H} \\ \mathcal{J} = \sigma \mathcal{E} \end{array} \right. \quad (1.3)$$

Les grandeurs qui apparaissent dans ces formules sont définies de la manière suivante :

$$\left\{ \begin{array}{l} \mathcal{D} \text{ induction électrique} \\ \mathcal{E} \text{ champ électrique} \\ \epsilon \text{ permittivité} \end{array} \right. \quad \left\{ \begin{array}{l} \mathcal{B} \text{ induction magnétique} \\ \mathcal{H} \text{ champ magnétique} \\ \mu \text{ perméabilité magnétique} \end{array} \right.$$

$$\left\{ \begin{array}{l} \mathcal{J} \text{ vecteur densité de courant} \\ \sigma \text{ conductivité du milieu} \end{array} \right.$$

Nous considérerons toujours des milieux non magnétiques ($\mu = \mu_0$) ; par contre, l'orientation quelconque de l'axe optique dans le plan d'incidence nous conduit à adopter une représentation tensorielle de la constante diélectrique [103] : $\mathcal{D} = \overline{\epsilon} \mathcal{E}$

$$\overline{\epsilon} = \epsilon_0 \left\| \begin{array}{cc} n_e^2 \cos^2 \alpha + n_o^2 \sin^2 \alpha & 0 \\ 0 & n_o^2 \\ (n_e^2 - n_o^2) \sin \alpha \cos \alpha & 0 \end{array} \right\| \left\| \begin{array}{cc} (n_e^2 - n_o^2) \sin \alpha \cos \alpha & 0 \\ 0 & n_o^2 \\ n_e^2 \sin^2 \alpha + n_o^2 \cos^2 \alpha & 0 \end{array} \right\| \quad (1.4)$$

où ϵ_0 est la permittivité du vide.

Les champs précédemment définis sont représentés comme fonctions harmoniques du temps et de l'espace sous la forme :

$$\mathcal{E}^o(\vec{r}, t) = \vec{E} \exp-i(\omega t - \vec{k} \vec{r}) \quad (1.5)$$

où \vec{r} est le point courant de coordonnées x , y et z , et \vec{k} le vecteur d'onde de composantes k_x , k_y et k_z . Compte tenu de la géométrie du système, la composante k_y est toujours nulle. Pour une incidence i fixée, la composante k_x est l'invariant de Descartes du système de couches minces et s'écrit :

$$k_x = k_o n_i \sin i \quad (1.6)$$

où

$$k_o = 2\pi / \lambda = \omega / c$$

La résolution des équations de Maxwell conduit à une équation différentielle de la forme :

$$\text{grad}(\text{div } \vec{E}) - \Delta \vec{E} = (k_o^2 / \epsilon_o) \overline{\epsilon} \vec{E} \quad (1.7)$$

Cette équation, associée à la condition de continuité des composantes tangentielles des champs, permet notamment de calculer le coefficient de réflexion en intensité de l'onde plane électromagnétique sur un empilement quelconque de couches anisotropes.

I A 1 b Solution de l'équation de propagation dans le cas d'un milieu uniaxe et homogène

Nous ne donnerons ici que les principaux résultats du calcul, qui a été largement abordé dans un précédent travail [103] :

- Les solutions TE et TM sont découplées, ce qui signifie qu'une onde polarisée rectilignement, parallèlement ou perpendiculairement au plan d'incidence, conservera cette polarisation après traversée du milieu anisotrope.

- La solution TE est triviale et correspond à la propagation d'une onde plane dans un milieu isotrope d'indice n_o .

- La solution TM dépend de l'orientation de l'axe optique et l'on peut montrer que la composante suivant Oz du vecteur d'onde dans la couche anisotrope s'écrit :

$$k_z = k_o \left\{ (n_o^2 - n_e^2) n_i \sin i \sin \alpha \cos \alpha + n_o n_e (n_{\text{eff}}^2 - n_i^2 \sin^2 i)^{1/2} \right\} / n_{\text{eff}}^2$$

$$\text{si } n_i \sin i < n_{\text{eff}} ,$$

et :
$$k_z = k_o \left\{ (n_o^2 - n_e^2) n_i \sin i \sin \alpha \cos \alpha + i n_o n_e (n_i^2 \sin^2 i - n_{\text{eff}}^2)^{1/2} \right\} / n_{\text{eff}}^2$$

$$\text{si } n_i \sin i > n_{\text{eff}} , \quad (1.8)$$

où n_{eff} est défini comme l'indice effectif du milieu uniaxe considéré :

$$n_{\text{eff}} = (n_o^2 \cos^2 \alpha + n_e^2 \sin^2 \alpha)^{1/2} \quad (1.9)$$

Notons que la définition de cet indice effectif va au-delà d'une simple commodité d'écriture : on peut considérer que le milieu anisotrope est, en première approximation, optiquement équivalent à un milieu homogène et isotrope d'indice n_{eff} . En se gardant, bien évidemment, de la généraliser, une telle notion apparaîtra plus clairement lorsque nous examinerons le cas du milieu anisotrope devenu inhomogène par une désorientation continue de l'axe optique (paragraphe I A 2 b).

- L'angle d'incidence limite sur le milieu anisotrope pour l'onde TM est donné par la formule :

$$i_l = \text{Arc sin}(n_{\text{eff}}/n_i) \quad (1.10)$$

- Si l'on connaît l'angle d'incidence limite sur le milieu anisotrope, l'orientation de l'axe optique est parfaitement déterminée :

$$\alpha = \text{Arc sin} \left\{ (n_i^2 \sin^2 i - n_o^2) / (n_e^2 - n_o^2) \right\}^{1/2} \quad (1.11)$$

Nous avons utilisé ces deux dernières formules avec profit pour la mesure des indices de réfraction ordinaire et extraordinaire d'un cristal liquide en phase nématique {251} , ainsi que pour la mesure de l'orientation des molécules au voisinage d'une surface {104}.

I A 1 c Extension au cas d'un empilement de couches minces anisotropes et homogènes

La résolution théorique des équations de Maxwell dans le cas d'un système de couches minces isotropes, homogènes et absorbantes est un problème classique qui ne présente pas de difficulté majeure. On trouve dans la littérature de nombreux articles sur ce sujet {102, 105, 106, 107, 108, 109} ; ainsi que des ouvrages de référence {110, 111, 112, 154} . La différence essentielle entre ces travaux tient davantage dans la formulation de la théorie que dans son principe même. A ce niveau, il est nécessaire d'utiliser des méthodes numériques, les calculs analytiques s'avèrent très lourds au delà de 2 couches ; il revient alors à l'utilisateur de choisir la méthode (l'algorithme) la mieux adaptée à son propre problème ; notons que la puissance et la rapidité des ordinateurs actuels permettent la synthèse et la réalisation de multicouches de grande qualité {113, 114} .

Dans le cas des couches optiquement anisotropes, les recherches sont beaucoup moins nombreuses et supposent, la plupart du temps, que les axes optiques du milieu coïncident avec les axes de symétrie de la couche {115}. D'importants travaux ont été autrefois consacrés aux milieux anisotropes, pour les besoins de la cristallographie et de l'optique cristalline, dans le cadre de l'optique géométrique traditionnelle {116}.

Pour représenter l'évolution de l'état de polarisation d'une onde se propageant à travers un milieu anisotrope, on introduit souvent un formalisme mathématique très élégant dû à R.C. Jones {117} . Malheureusement, cette description ne convient qu'en incidence normale (on trouvera dans un récent article de H.G. Jerrard une revue complète des méthodes matricielles utilisées pour décrire l'évolution de la lumière polarisée {118}). Dans le cas d'une incidence oblique, S. Teitler et D.W. Berreman ont traité le problème général de la réflexion et de la transmission d'une onde plane monochromatique à travers un empilement de couches minces anisotropes {119, 120} ; la méthode qui utilise des matrices 4×4 , a été appliquée en particulier au calcul de la propagation d'une onde à travers une cellule de cristal liquide cholestérique {121}.

Pour notre part, il nous a paru plus simple d'adopter un formalisme proposé par D.A. Holmes et D.L. Feucht {122} : ces auteurs ont en effet traité un cas très semblable à celui qui nous intéresse en résolvant le problème du calcul des coefficients de réflexion et de transmission à travers une pile de couches optiquement uniaxes, l'orientation de l'axe optique étant quelconque d'une couche à l'autre, mais la direction de cette orientation restant dans le plan d'incidence. On trouvera dans l'annexe I le principe du calcul ainsi qu'un exemple type effectué sur les ordinateurs du C.I.R.C.E. à Orsay (programme écrit en langage FORTRAN V).

I A 2 - Etude en incidence oblique d'un milieu anisotrope uniaxe et inhomogène

I A 2 a - Le problème du milieu isotrope et inhomogène

Une couche mince déposée sur un substrat quelconque est rarement homogène : du fait des conditions d'évaporation et du type de matériau déposé, il se forme des couches de transition (oxydes, sulfures, impuretés, ...), qui influent sur les propriétés optiques du système, en particulier au voisinage des interfaces où existent de forts gradients d'indice de réfraction ; ceci est d'autant plus vrai lorsqu'on dépose plusieurs couches de nature différente, nous en verrons un exemple avec le système (or + monoxyde de silicium + cristal liquide). Nous supposerons par la suite l'invariance des propriétés optiques du milieu dans le plan xOy , en ne considérant qu'une dépendance en z de l'indice de réfraction.

Dans la plupart des cas, il est impossible de résoudre analytiquement les équations de Maxwell lorsque le profil d'indice $n(z)$ est quelconque {123} ; il faut alors avoir recours à des méthodes numériques ou approchées. La solution la plus simple, pour une couche inhomogène d'indice continûment variable, consiste à découper cette couche en une série de N films très minces et homogènes, chaque film étant affecté d'une épaisseur e_i et d'un indice n_i . Cette méthode a été utilisée pour la première fois par Lord Rayleigh en 1912 {124}. Le passage à la limite de films infiniment minces ($N \rightarrow \infty$ et $e_i \rightarrow 0$) est mathématiquement équivalent au traitement rigoureux de la propagation d'une onde plane dans le milieu inhomogène. Si l'on s'intéresse au coefficient de

réflexion en intensité R (rapport du flux réfléchi au flux incident), ou à tout autre résultat du calcul de la propagation, il faut atteindre un nombre de couches optimal N_{opt} qui correspond au critère de précision que l'on s'est fixé à l'avance ; on peut raisonnablement estimer qu'un tel calcul converge et qu'à partir d'une augmentation du nombre de couche ΔN , la variation du coefficient de réflexion ΔR reste inférieure au critère précédemment fixé (le plus souvent dans les limites des conditions expérimentales, par exemple $\Delta R = 0,001$).

Dans les calculs que nous avons effectués et qui reposent sur ce dernier principe, nous avons appelé "solution asymptotique" la solution qui correspond au nombre optimal de couches N_{opt} . Notons que cette valeur optimale dépend essentiellement du gradient d'indice dn/dz et de l'angle d'incidence i , en particulier lorsque des conditions de réflexion totale se trouvent réunies sur certaines couches, comme nous le verrons dans le paragraphe suivant.

D'autres méthodes peuvent être utilisées dans certains cas particuliers {111}, notamment l'approximation WKBJ (Wentzel, Kramers, Brillouin et Jeffries) ; nous n'emploierons pas cette méthode car elle suppose une variation lente de l'indice de réfraction et se prête mal à l'étude du milieu par excitation optique des plasmons de surface (cf. § 1B) ; en raison de la présence d'une couche métallique et de l'anisotropie du matériau étudié.

I A 2 b - Extension au milieu anisotrope uniaxe et inhomogène

Dans les expériences qui sont relatives à un cristal liquide en phase nématique et que nous décrirons dans les chapitres suivants, la perturbation apportée au milieu anisotrope et uniaxe se traduit par une désorientation de l'axe optique, le rendant ainsi inhomogène : écoulement de Poiseuille plan, transition de Fredericksz en champ électrique, ... Nous sommes donc amenés à étudier la propagation d'une onde électromagnétique plane dans une couche anisotrope et uniaxe, dans laquelle l'orientation de l'axe optique varie continûment dans le plan d'incidence (figure I 2). La couche inhomogène obtenue est caractérisée par les paramètres suivants :

couche inhomogène $\left\{ \begin{array}{l} \text{épaisseur totale } e \\ \text{indice extraordinaire principal } n_e(z) \\ \text{indice ordinaire principal } n_o(z) \\ \text{profil de désorientation } \alpha(z) \end{array} \right.$

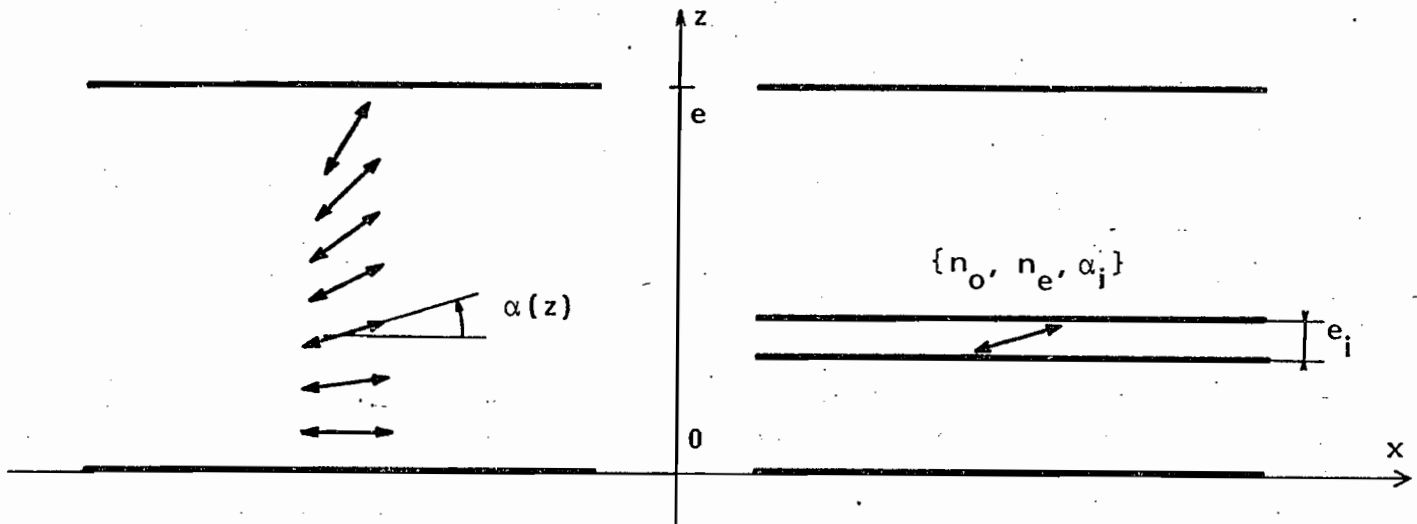


Figure 1.2 : Modélisation d'une couche anisotrope uniaxe et inhomogène

Nous pouvons appliquer le même raisonnement que pour une couche mince isotrope et inhomogène et découper le milieu en une série de films minces anisotropes et homogènes, chaque film étant alors caractérisé par les paramètres optiques suivants :

couche homogène $n^{\circ} i$ $\left\{ \begin{array}{l} \text{épaisseur } e_i \\ \text{indice extraordinaire principal } n_e \\ \text{indice ordinaire principal } n_o \\ \text{orientation de l'axe optique } \alpha_i \end{array} \right.$

La notion d'indice effectif, définie au § I A 1 b (expression 1.9), se révèle alors très utile : elle caractérise l'indice extraordinaire moyen du milieu déformé à la cote z , $n_{\text{eff}}(z)$, ou de la couche homogène $n^{\circ} i$, $n_{\text{eff}, i}$. En fait, on se gardera bien, dans le calcul rigoureux de la propagation de l'onde dans le milieu ainsi stratifié, de remplacer la couche homogène anisotrope par une couche homogène isotrope d'indice $n_{\text{eff}, i}$. Néanmoins, cette notion d'indice effectif est utile sur le plan qualitatif en incidence oblique, lorsqu'il existe des phénomènes de réflexion totale sur certaines couches.

Ainsi, nous utiliserons dans nos calculs le formalisme décrit au § I A 1 c et dans l'annexe I, en modélisant la couche anisotrope et inhomogène par un empilement de couches fictives très minces, anisotropes et homogènes, l'orientation de l'axe optique variant faiblement et de manière continue d'une couche à l'autre. On obtient alors un *gradient d'indice effectif* dn_{eff}/dz , qui peut être relié au *gradient de désorientation* $d\alpha/dz$ par l'expression :

$$\frac{dn_{\text{eff}}}{dz} = \frac{(n_e^2 - n_o^2)}{2n_{\text{eff}}} \sin 2\alpha \frac{d\alpha}{dz} \quad (I.12)$$

Nous pouvons tirer de cette dernière formule deux conséquences importantes :

1. le gradient d'indice est maximal pour $\alpha \sim \pi/4$; il est alors proportionnel au gradient de désorientation $d\alpha/dz$.
2. le gradient d'indice est nul pour $\alpha = 0$ et $\alpha = \pi/2$, quelle que soit la valeur du gradient de désorientation $d\alpha/dz$.

Cette dernière conséquence est importante dans le cas de la réflexion totale : elle montre qu'une variation de α autour de $\alpha = 0$ (ou $\alpha = \pi/2$) modifie peu l'angle d'incidence limite.

I A 2 c - Importance du signe du gradient d'indice dans le cas de la réflexion totale

Nous allons maintenant étudier l'influence du signe du gradient d'indice sur la propagation de l'onde électromagnétique dans le milieu anisotrope inhomogène. Nous supposerons, pour simplifier le raisonnement, une variation linéaire de l'indice de réfraction effectif n_{eff} (la variation correspondante de l'orientation de l'axe optique s'obtient alors par intégration de la formule I.12). La couche est comprise entre deux milieux semi-infinis isotropes et homogènes et nous prendrons : $n_o = 1,5$; $n_e = 1,7$; $n_i = 1,9$ (figure I 3 a et I 3 b). Nous distinguerons alors deux cas, suivant le signe du gradient de désorientation $d\alpha/dz$, ou ce qui revient au même, du gradient d'indice effectif dn_{eff}/dz :

cas I : $dn_{\text{eff}}/dz > 0$; $(d\alpha/dz) > 0$

Une désorientation de l'axe optique de $\alpha = 0$ à $\alpha = \pi/2$ équivaut à une variation de l'indice effectif allant de n_o à n_e . Si cette désorientation est spatialement lente (épaisseur e de plusieurs longueurs d'onde), l'onde est en réflexion totale pour les incidences supérieures à $i_{\ell 0} = \text{Arc sin}(n_o/n_i)$. Les calculs numériques confirment cette valeur de l'angle d'incidence limite $i_{\ell 0}$. Si le gradient devient important, par exemple lorsque $e \sim \lambda$, on retrouve le cas de la réflexion totale frustrée et l'onde peut se propager dans le dernier milieu, par couplage avec les ondes inhomogènes qui existent dans la couche. Entre ces deux cas limites, le résultat du calcul dépend de la forme et de la valeur du gradient de désorientation.

Il est essentiel de comprendre qu'à chaque angle d'incidence i_ℓ , on peut associer un indice effectif $n_{\text{eff}}(z)$ défini par la relation $i_\ell = \text{Arc sin}(n_{\text{eff}}/n_i)$ (cf. formule I.10) et qui correspond à une interface fictive (II) située à la cote z ; cette interface sépare la couche en deux zones : l'une où la propagation est théoriquement possible, (P) et l'autre où elle est impossible (I) en raison des conditions de réflexion totale. Lorsque e est supérieur à λ , la profondeur de pénétration de l'onde inhomogène dans la zone (I) n'est en général pas suffisante pour qu'une onde puisse tout de même se propager dans la zone (P).

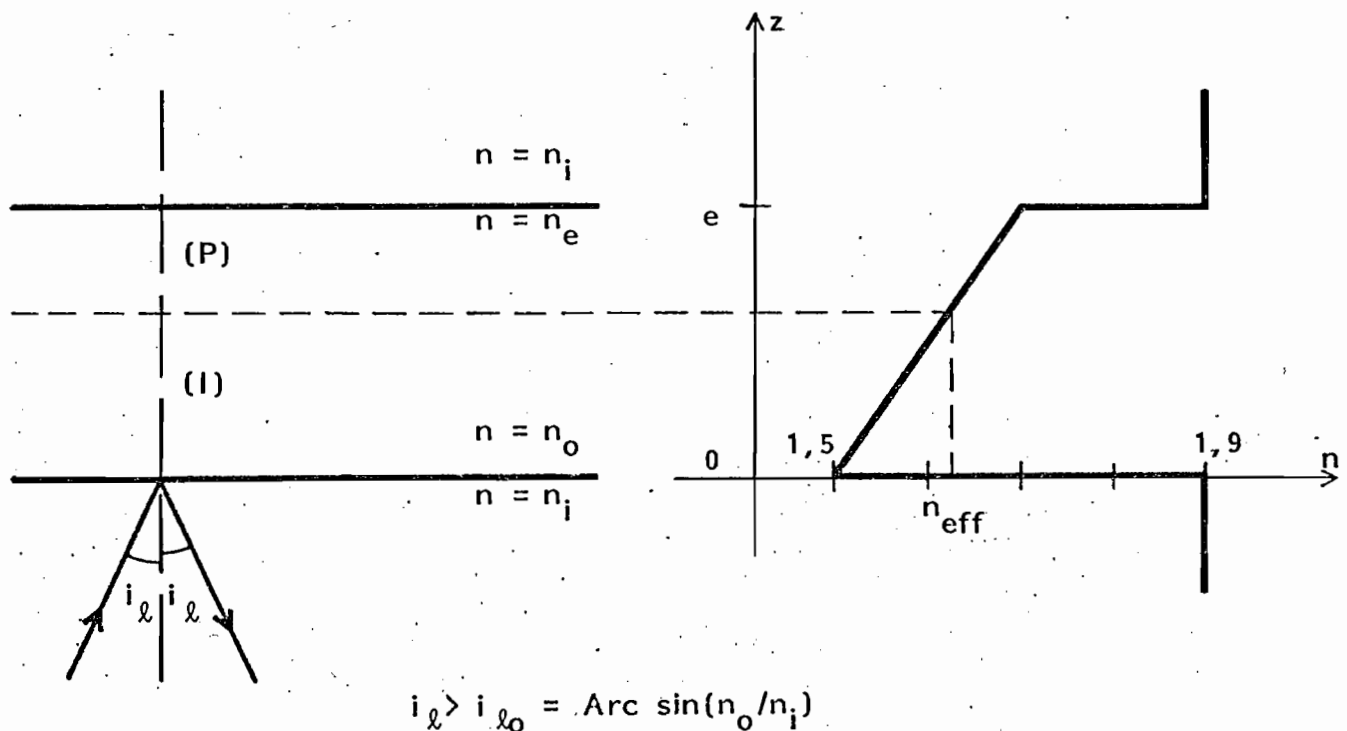


Figure I 3 a

cas II : $dn_{\text{eff}}/dz < 0$; $(d\alpha/dz) < 0$

Ce cas est très différent puisque l'indice effectif diminue de n_e à n_o . Si l'on fait varier l'angle d'incidence entre $i_{\ell o}$ et $i_{\ell e}$ (défini par : $i_{\ell e} = \text{Arc sin}(n_e/n_i)$) on définit de nouveau deux régions distinctes : une région (P) où la propagation de l'onde est possible et une région (I) où l'onde incidente est en réflexion totale sur tous les milieux dont l'indice est inférieur à n_{eff} (interface fictive II). La limite entre ces 2 zones définit un indice effectif n_{eff} et un angle d'incidence limite qui sont liés par la même relation que précédemment : $i_{\ell} = \text{Arc sin}(n_{\text{eff}}/n_i)$. De même, lorsque $e \sim \lambda$, le phénomène est plus complexe et ne peut être analysé en toute généralité. Notons que dans ce cas, la propagation d'une onde dans le milieu inhomogène est toujours possible, du moins lorsque $i < i_{\ell e}$.

Le coefficient de réflexion en intensité en fonction de l'angle d'incidence, que nous appellerons aussi "réflectance", est identique dans les deux cas exposés ci-dessus, bien que les amplitudes des champs électromagnétique

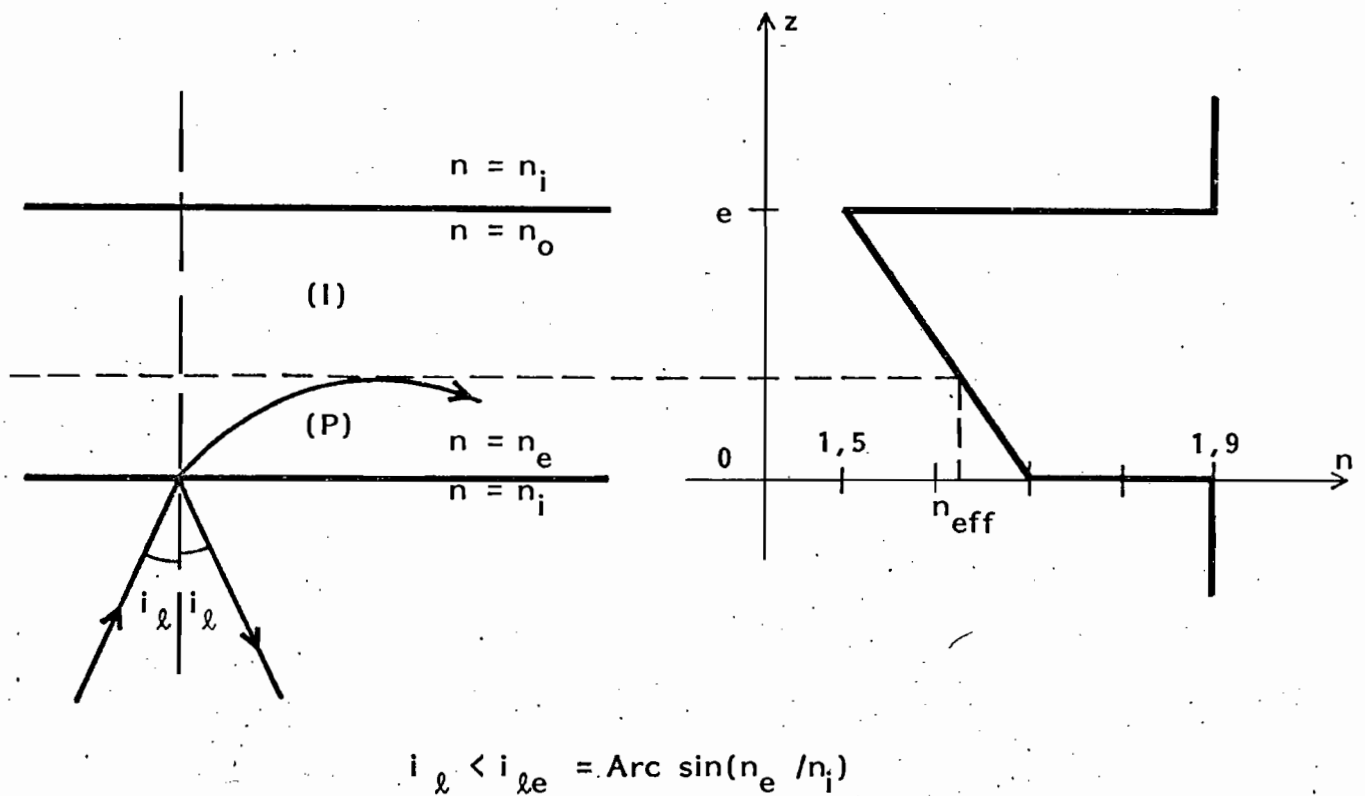


Figure 1 3 b

soient différentes pour une cote z fixée. Ce résultat remarquable, qui n'est valable que lorsque les milieux ne sont pas absorbants, a été démontré clairement par F. Abelès : "Le facteur de transmission d'un milieu stratifié quelconque (absorbant ou non) est indépendant du sens de propagation des ondes. Ceci n'est pas vrai pour le facteur de réflexion" [108]. Nous avons vérifié numériquement l'identité des courbes $R = f(i)$ pour une désorientation linéaire et angulaire de la forme $\alpha(z) = \pi z/2e$, la couche inhomogène étant découpée en 100 couches homogènes, et pour des valeurs différentes de l'épaisseur ; la similitude des courbes dans les cas I et II est une confirmation supplémentaire de la validité des calculs numériques (figure 14).

I A 2 d Introduction d'un coefficient d'atténuation

Ce qui vient d'être dit ci-dessus n'est valable que pour un milieu sans pertes. Si la couche inhomogène présente de l'absorption à la longueur d'onde choisie, cela se traduit par un indice de réfraction complexe, la partie imaginaire de cet indice (χ) étant reliée au coefficient d'atténuation de l'onde se propageant dans le milieu (κ) par l'expression : $\kappa = 4\pi\chi/\lambda$. Pour un milieu anisotrope, il faut alors introduire 2 paramètres supplémentaires en écrivant :

$$\tilde{n}_o = n_o + i\chi_o \quad \text{et} \quad \tilde{n}_e = n_e + i\chi_e \quad (1.13)$$

Nous supposons, dans tout ce qui suit, que χ_o et χ_e ont la même valeur (ce qui revient, pour un milieu absorbant, à l'isotropie de la conductibilité du milieu) ; de plus, χ_o et χ_e sont positifs avec la convention adoptée au paragraphe I A 1 a.

Les calculs numériques montrent que l'épaisseur de la couche et la constante d'atténuation agissent simultanément sur la valeur du coefficient de réflexion en intensité R , ce qui est logique puisque l'intensité est proportionnelle à la quantité : $\exp(-2\chi z)$. Reprenons les 2 cas précédents et une désorientation angulaire et linéaire du même type, pour une épaisseur de 20λ (environ 12 microns, dans le domaine visible) : en l'absence d'atténuation ($\chi_o = \chi_e = 0$), les 2 courbes sont identiques (figures 15 et 16), mais en introduisant une assez faible atténuation ($\chi_o = \chi_e = 10^{-3}$), elles sont totalement différentes, notamment au voisinage des angles d'incidence limite.

Figure 1 4 : Coefficient de réflexion en intensité en fonction de l'angle d'incidence pour une couche mince anisotrope et inhomogène ; la désorientation angulaire est linéaire et de la forme : $\alpha(z) = \pi z/2e$, où e est l'épaisseur de la couche ($N = 100$; $n_o = 1,5$; $n_e = 1,7$; $n_i = n_t = 1,9$).

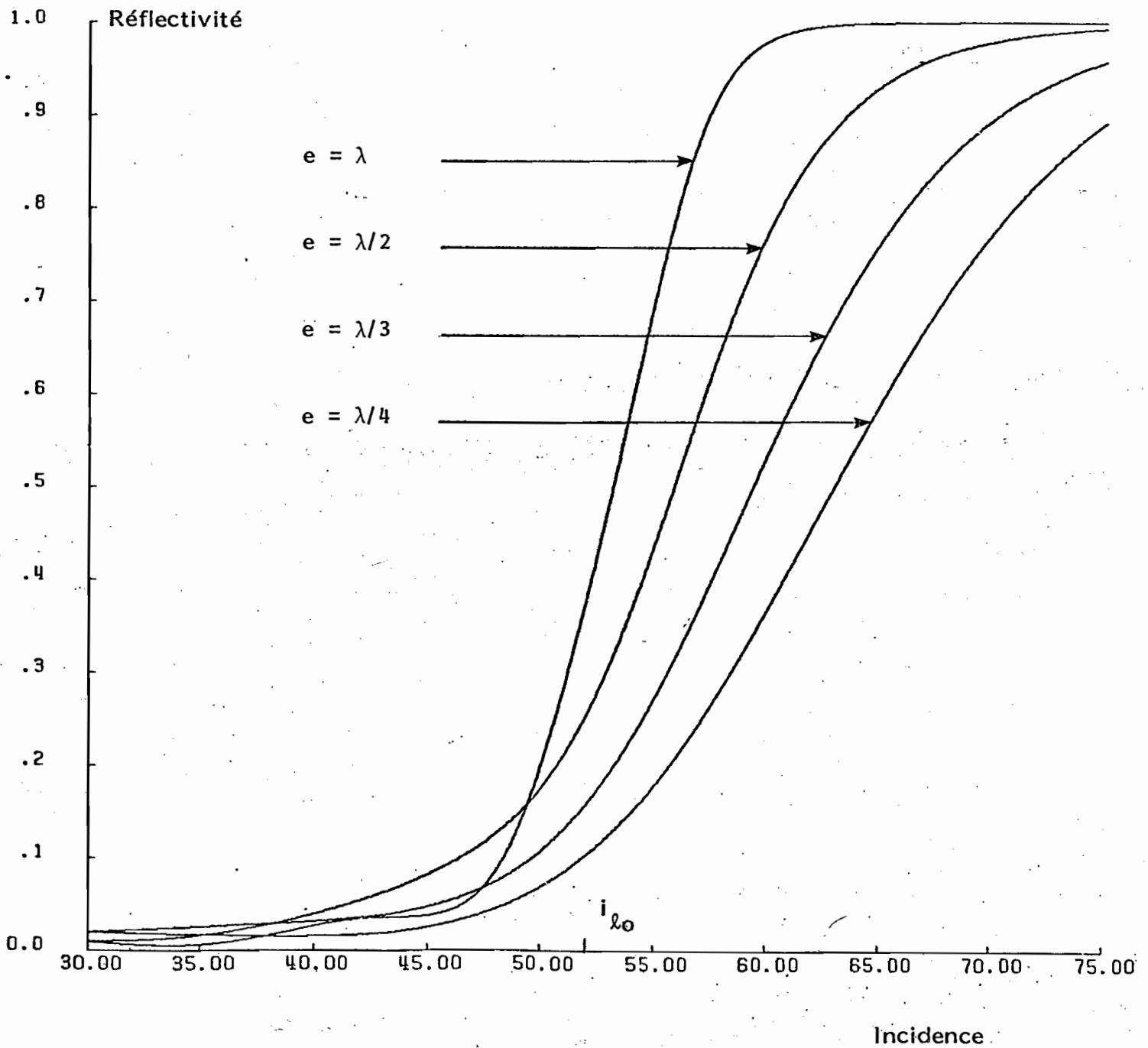


Figure I 5 : Coefficient de réflexion en intensité en fonction de l'angle d'incidence pour une couche mince anisotrope et inhomogène ; la désorientation angulaire est linéaire et de la forme : $\alpha(z) = \pi z/2e$, où e est l'épaisseur de la couche ($N = 100$; $n_o = 1,5$; $n_e = 1,7$; $n_i = n_t = 1,9$; $e = 20\lambda$)

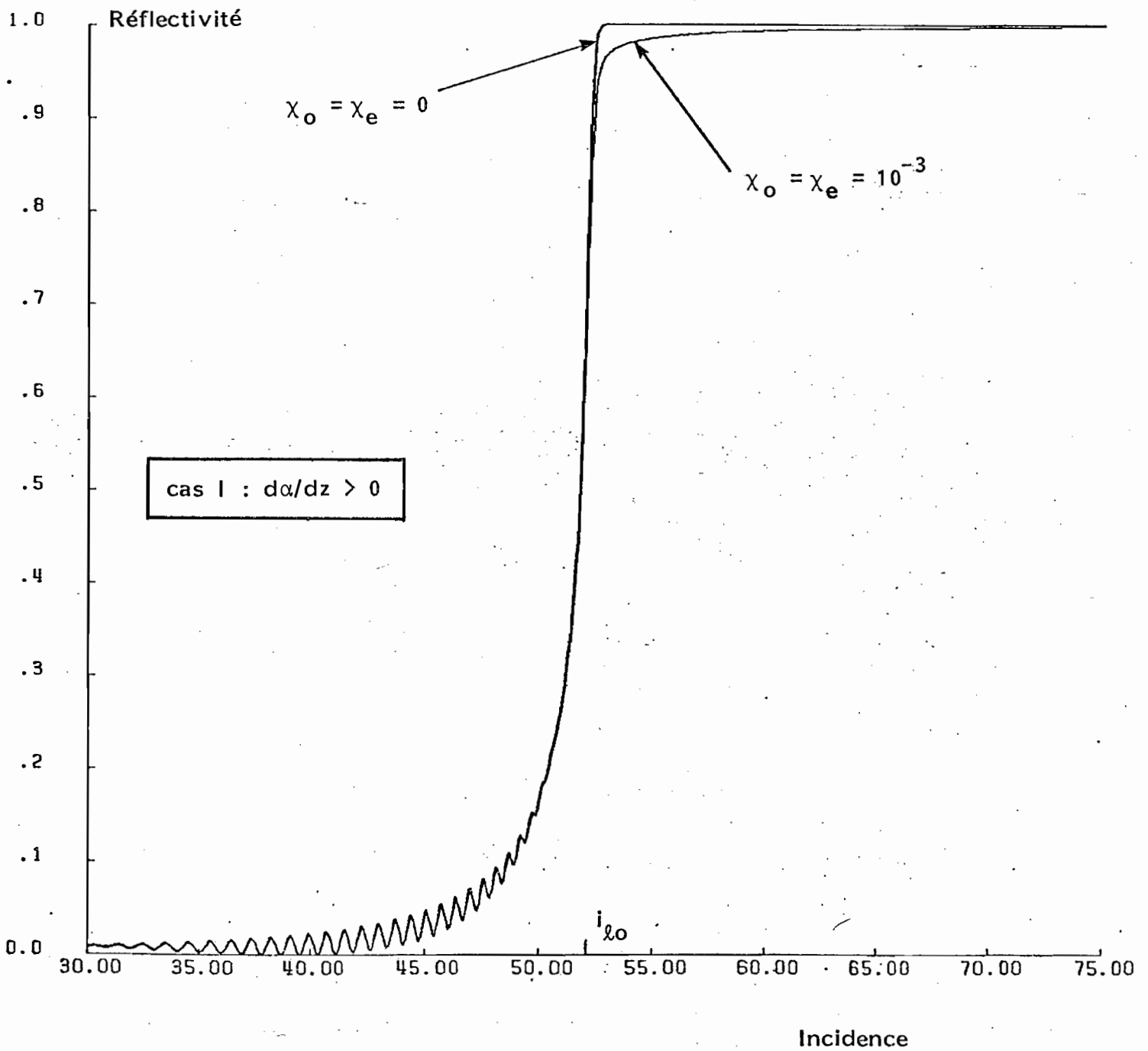
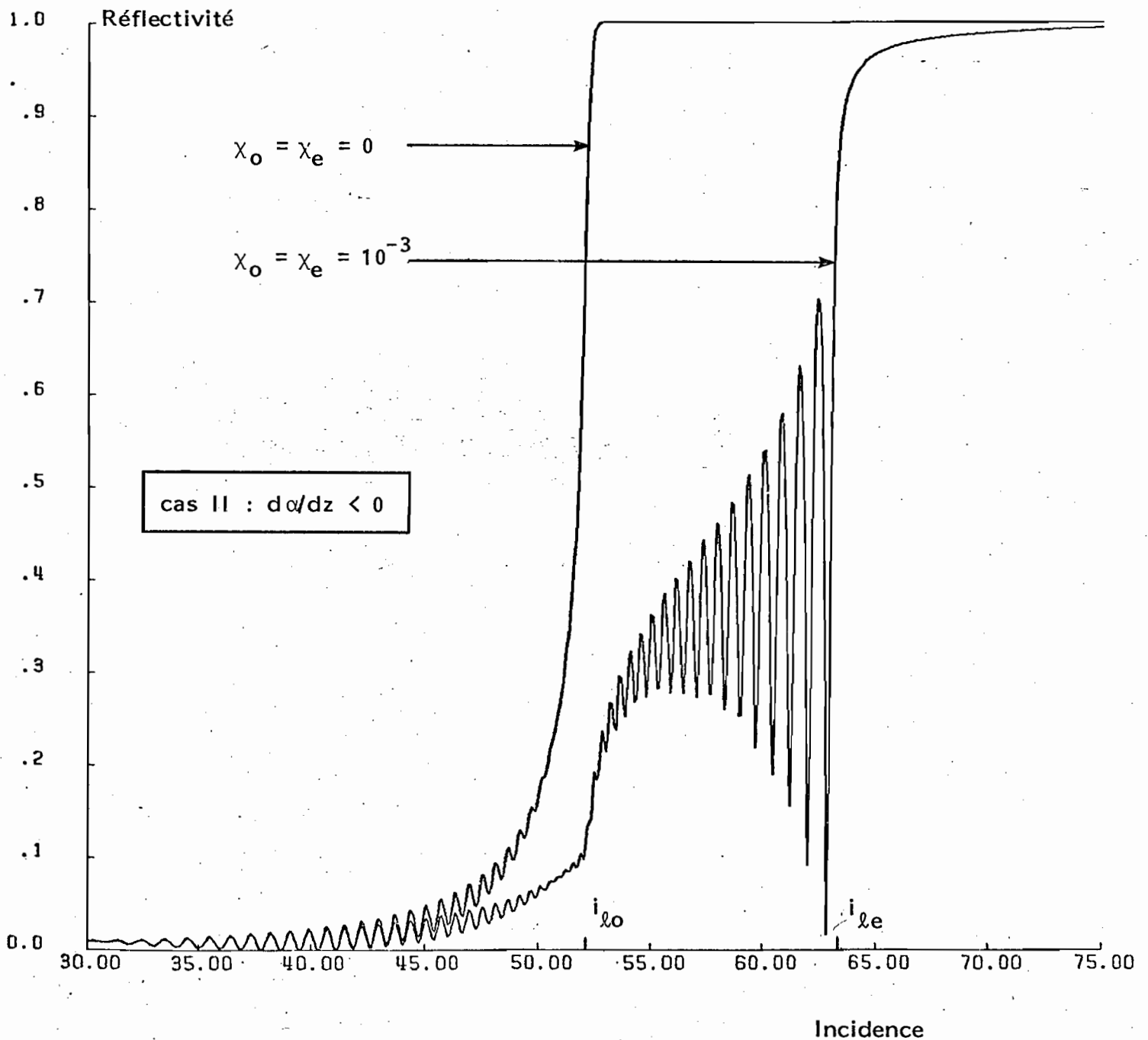


Figure 1 6 : Coefficient de réflexion en intensité en fonction de l'angle d'incidence pour une couche mince anisotrope et inhomogène ; la désorientation angulaire est linéaire et de la forme : $\alpha(z) = (\pi/2) (1-z/e)$, où e est l'épaisseur de la couche ($N = 100$; $n_o = 1,5$; $n_e = 1,7$; $n_i = n_t = 1,9$; $e = 20\lambda$)



Lorsque le gradient d'indice est négatif (cas II), on observe l'apparition de franges très contrastées et qui résultent de l'interférence d'ondes se propageant dans la région (P) ; on voit aussi très nettement les 2 angles d'incidence limite $i_{\ell o}$ et $i_{\ell e}$. Par contre dans le cas I, la réflexion est quasi-totale et n'est pratiquement pas affectée par la présence d'une atténuation qui reste, malgré tout, assez faible compte-tenu de l'épaisseur de la couche.

Cette étude n'est pas une pure spéculation théorique, car les valeurs numériques qui ont été choisies pour les calculs, correspondent à celles que l'on peut trouver lorsqu'on étudie un cristal liquide nématique dont le directeur a subi une désorientation ; l'exemple nous sera fourni dans le chapitre III où l'on examinera la perturbation induite par un écoulement de Poiseuille dans une cellule contenant un nématique. Le cas I correspond au passage d'un ancrage planaire à un ancrage homéotrope et le cas II au cas inverse. La valeur de la constante χ est également en accord avec les données expérimentales.

Nous avons ainsi montré que l'étude d'un milieu anisotrope et inhomogène, en incidence oblique et au voisinage des conditions de réflexion totale, pouvait mettre en relief certaines propriétés d'un matériau en couche mince, et en particulier *l'influence d'un gradient d'indice effectif et d'un faible coefficient d'atténuation sur les courbes de réflectivité*. La mise en évidence de ces propriétés, que l'on ne peut révéler en incidence normale, traduit l'aptitude de l'onde électromagnétique à sonder un matériau au voisinage d'une interface.

Nous allons à présent nous intéresser à un type un peu différent d'onde électromagnétique inhomogène, et qui est l'onde électromagnétique de surface engendrée par l'excitation optique de plasmons de surface.

I B - ETUDE D'UNE COUCHE MINCE ANISOTROPE ET INHOMOGENE PAR EXCITATION OPTIQUE DE PLASMONS DE SURFACE

I B 1 - Introduction aux plasmons de surface : les deux niveaux d'approche possibles.

Si l'on considère un métal sous sa définition la plus simple, on peut dire que c'est un milieu dans lequel des charges électriques négatives (électrons de conduction) se déplacent librement parmi des charges électriques positives et

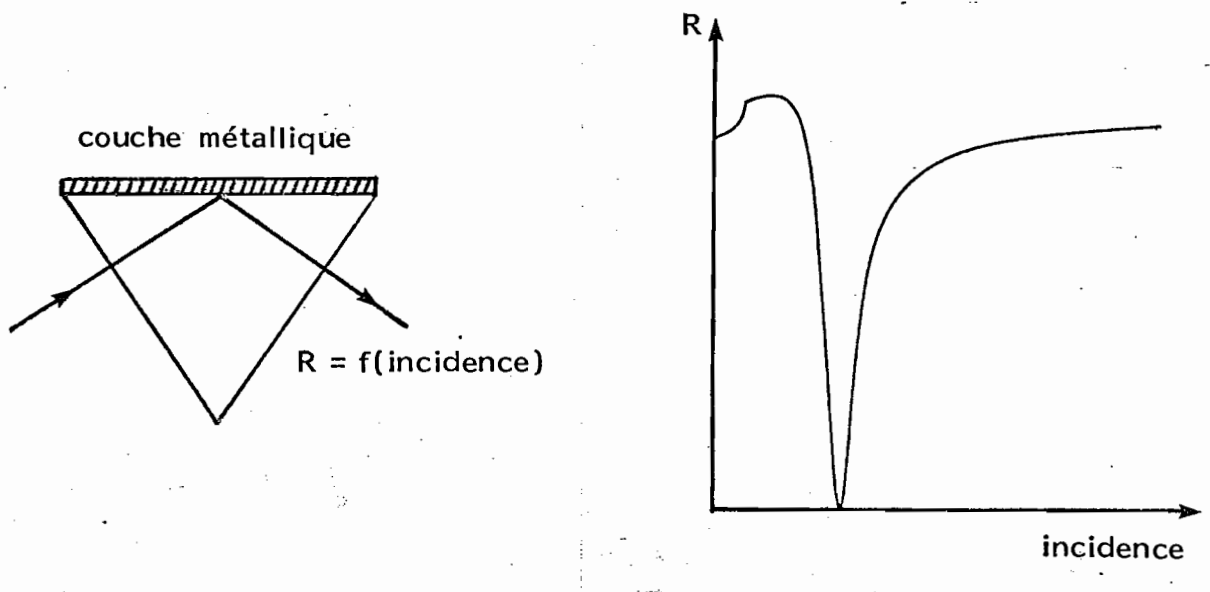
fixes (ions) : c'est un plasma, et "une oscillation de plasma dans un métal est une excitation collective longitudinale du gaz des électrons de conduction" {125}. Un plasmon est une oscillation de plasma quantifiée ; il existe des plasmons de volume et des plasmons de surface, mais nous ne nous intéressons qu'aux plasmons de surface dont l'existence est liée à la présence d'interfaces ou surfaces de séparation entre le métal et le milieu extérieur. Supposons en effet qu'un champ électrique agisse au niveau de cette interface : il produit des charges superficielles liées à la discontinuité de la composante normale du champ entre les deux milieux. Dans le cas d'un champ électromagnétique, on peut montrer que, dans certaines conditions, une onde se propage en surface et qu'elle résulte du couplage entre le champ électromagnétique et l'oscillation de plasma {126}.

En fait, un plasmon de surface est un cas particulier de polariton de surface (il faudrait dire : plasmon-polariton de surface). Un polariton résulte en effet du couplage entre un champ électromagnétique et des excitations polaires de grande longueur d'onde dans le solide (grande par rapport à la dimension de l'atome). Ces excitations peuvent être des vibrations du réseau cristallin (phonons), des ondes excitoniques (excitons) ou, comme dans notre cas, des oscillations de plasma (plasmons).

Après ces définitions préliminaires, nous devons envisager deux niveaux d'approche possibles des plasmons de surface. Le premier niveau est *purement optique* et il faut le comprendre comme un cas particulier de la propagation d'une onde électromagnétique à travers une couche mince métallique. Le second niveau est plus fondamental et s'intéresse à *l'origine physique* du phénomène, par l'intermédiaire de la constante diélectrique du métal ($\tilde{\epsilon}$) qui dépend de la fréquence angulaire de l'onde (ω). Le couplage avec l'onde électromagnétique est introduit au niveau de la relation de dispersion. Nous allons examiner un peu plus en détail ces deux niveaux.

Considérons une couche mince métallique comprise entre deux milieux diélectriques semi-infinis et cherchons les conditions d'existence d'ondes électromagnétiques de surface. Ce problème est essentiellement un problème d'électromagnétisme : les milieux étant définis par leur indice de réfraction, réel ou complexe, quelle est la répartition des champs à l'intérieur et à l'extérieur de la couche ? Les équations de Maxwell donnent une réponse

classique à cette question et l'on constate que, pour certaines valeurs de la constante de propagation k_x , existent des modes résonnants : en faisant varier l'angle d'incidence ou la longueur d'onde, le coefficient de réflexion en intensité R , rapport du flux réfléchi au flux incident, passe par un minimum et la courbe de résonance ainsi obtenue présente une forme qui dépend étroitement des paramètres optiques au voisinage des interfaces ; c'est cette dernière caractéristique qui permet une analyse très fine d'un matériau en contact avec le métal.



Lorsqu'on aborde le second niveau, le paramètre essentiel est la constante diélectrique $\tilde{\epsilon}(\omega)$, reflet fidèle de la réponse du milieu métallique à l'excitation électromagnétique, suivant ainsi la théorie classique de la réponse linéaire : $D(\omega) = \tilde{\epsilon}(\omega) E(\omega)$. Là interviennent les différents modèles proposés pour rendre compte des propriétés du métal. Dans le modèle le plus simple du gaz d'électrons libres, où le métal est considéré comme un plasma, la réponse électronique du milieu est caractérisée par une constante diélectrique de la forme :

$$\tilde{\epsilon}(\omega) = 1 - \omega_p^2 / \omega^2 \quad (1.14)$$

où ω_p est la fréquence de plasma définie par l'expression : $\omega_p^2 = 4\pi n e^2 / m$; en unités C.G.S. (n = concentration électronique, m = masse de l'électron et e la charge de l'électron). Cette fréquence ω_p est un zéro de la fonction

diélectrique ; c'est donc la fréquence de coupure d'une onde électromagnétique se propageant dans le milieu. On montre qu'il existe un mode d'oscillation longitudinal pour cette fréquence de plasma {125}.

Un modèle plus élaboré tient compte de l'existence d'un temps de relaxation τ , ce qui conduit à une expression de la forme :

$$\tilde{\epsilon}(\omega) = 1 - \omega_p^2 / \omega(\omega + i/\tau) \quad (1.15)$$

De là viennent les formules de Drude qui donnent les expressions de la partie réelle et de la partie imaginaire de $\tilde{\epsilon}(\omega)$:

$$\epsilon' = 1 - \frac{\omega_p^2}{(\omega^2 + 1/\tau^2)} \sim 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2} \quad \text{pour } \omega\tau \gg 1$$

$$\epsilon'' = \frac{\omega_p^2}{\omega\tau(\omega^2 + 1/\tau^2)} \sim \frac{\omega_p^2}{\omega^3\tau} \quad \text{pour } \omega\tau \gg 1$$

On trouvera dans un article de synthèse très complet, écrit par F. Abelès, l'essentiel de la théorie et des propriétés optiques des métaux {127} .

Dans le paragraphe suivant, nous montrerons que l'existence de plasmons de surface est liée aux conditions : $\epsilon' < 0$ et $0 < \epsilon'' \ll |\epsilon'|$. Cela revient à prendre $\omega\tau \gg 1$ et $\omega < \omega_p$, ou encore : $\chi > 0$ et $0 < n \ll \chi$. Dans le domaine de l'optique visible, quelques métaux pouvant se déposer en couches minces (quelques centaines d'angströms) répondent à ces conditions : or, argent et aluminium. Le tableau ci-dessous indique les valeurs, données dans la littérature, des constantes optiques de ces métaux, pour la longueur d'onde $\lambda = 6328 \text{ \AA}$:

métal	n	χ	ϵ'	ϵ''	référence
Al	1,21	6,92	- 46,4	+ 16,7	{128}
Au	0,16	3,21	- 10,3	+ 1,04	{129}
	0,18	3,43	- 11,7	+ 1,23	{130}
Ag	0,067	4,05	- 16,4	+ 0,53	{131}
	0,056	4,28	- 18,3	+ 0,48	{130}

On peut remarquer à partir de ce tableau, que la longueur d'onde choisie n'est pas très favorable à l'excitation optique de plasmons de surface dans l'aluminium, à cause de la valeur élevée de la partie imaginaire de la permittivité.

I B 2 - Ondes électromagnétiques de surface ; conditions d'existence et relation de dispersion

I B 2 a - Rappels concernant les milieux isotropes

Nous n'indiquerons dans ce paragraphe que les résultats qui nous ont paru essentiels pour la bonne compréhension de la suite de ce travail. La littérature sur les plasmons de surface est relativement abondante ; citons, pour mémoire, deux ouvrages très complets [132, 133] ainsi que des articles de synthèse où l'on trouvera une description détaillée des plasmons de surface [126, 134, 135, 136].

Considérons l'interface plane séparant 2 milieux isotropes, semi-infinis et non magnétiques ($\mu = \mu_0$). Une onde électromagnétique de surface doit présenter les caractéristiques suivantes :

1. les champs électriques et magnétiques décroissent exponentiellement à partir de l'interface ; dans chaque milieu existe une onde unique qui est inhomogène (évanescence dans le cas d'un diélectrique sans pertes).
2. l'onde se propage sans atténuation le long de l'interface.

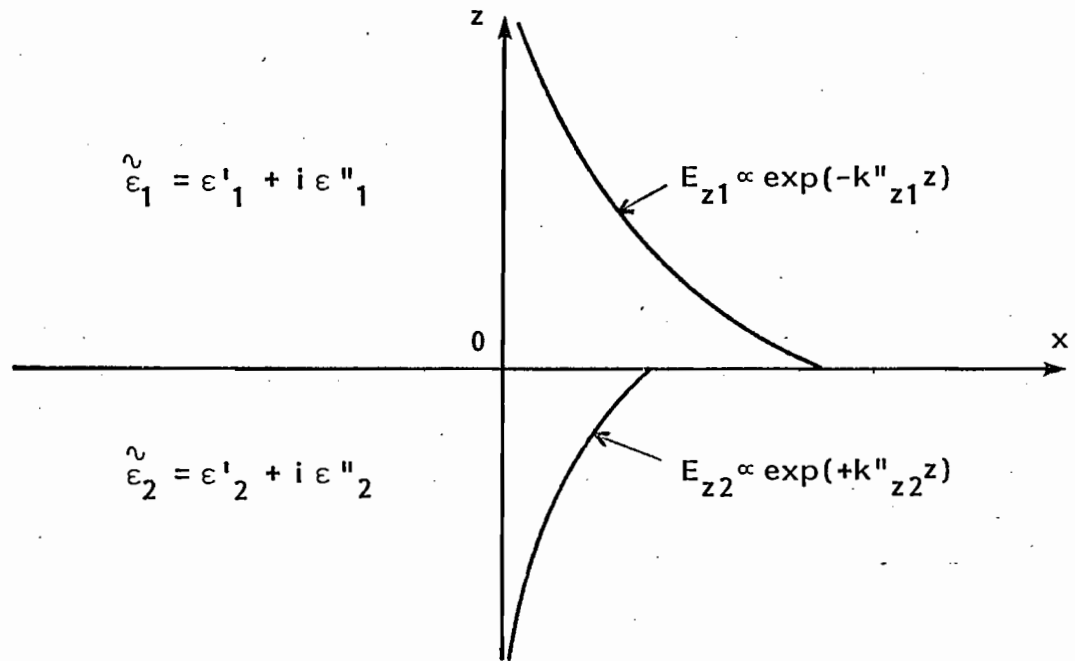
La résolution des équations de Maxwell en tenant compte des conditions de continuité en surface montre que seule l'onde TM est solution de l'équation d'onde. Ceci s'explique par le fait qu'une densité superficielle de charges ne peut être créée par une onde TE dont le champ électrique associé est parallèle à la surface. Pour l'onde TM au contraire, il existe une oscillation de la densité superficielle de charges de la forme :

$$\rho(x, t) = (E_{z2} - E_{z1}) \exp-i(\omega t - k_{xp}x) \quad (I.16)$$

La relation de dispersion des plasmons de surface, tirée des conditions de continuité, s'écrit sous deux formes équivalentes :

$$\tilde{\epsilon}_2 k_{z1} = \tilde{\epsilon}_1 k_{z2} \quad \text{ou} \quad k_{xp}^2 = \left(\frac{\tilde{\epsilon}_1 \tilde{\epsilon}_2}{\tilde{\epsilon}_1 + \tilde{\epsilon}_2} \right) k_0^2 \quad (I.17)$$

.../...



où nous avons posé :

$$k_{zi}^2 = \epsilon_i^{\sim} k_0^2 - k_{xp}^2, \quad i = 1, 2 \quad (I.18)$$

Supposons pour simplifier la discussion que le premier milieu soit diélectrique et sans pertes :

$$\epsilon'_1 > 0 \quad \text{et} \quad \epsilon''_1 = 0$$

1er cas : $\epsilon''_2 = 0$ (milieux sans absorption)

	k_{xp}	k_{z1} et k_{z2}	désignation du mode
$\epsilon'_2 > 0$	réel	réels et de même signe	mode de Brewster
$\epsilon'_2 < -\epsilon'_1 < 0$	réel	imaginaires et de signe opposé	mode de Fano
$-\epsilon'_1 < \epsilon'_2 < 0$	imaginaire	réels et de signe opposé	mode normal

Seul le mode de Fano correspond à la définition précédente : c'est une onde électromagnétique de surface "vraie".

2ème cas : $\epsilon''_2 \ll |\epsilon'_2|$ (milieu 2 faiblement absorbant)

En pratique, les milieux sont toujours plus ou moins absorbants ; il en résulte qu'une onde électromagnétique de surface, si elle existe, s'amortit progressivement en se propageant le long de l'interface. Le vecteur d'onde devient complexe et ses composantes s'écrivent :

$$k_{xp} = k'_{xp} + ik''_{xp}$$

$$k_z = k'_z + ik''_z$$

k'_{xp} (k'_z) représente la propagation suivant Ox(Oz)

k''_{xp} (k''_z) représente l'amortissement suivant Ox(Oz)

Si le second milieu est un métal considéré comme un gaz d'électrons (modèle de Drude), on peut obtenir une onde électromagnétique de surface "presque vraie" comme le montre le tableau ci-dessous :

	k_{xp}	k_{zc} (c = 1, 2)	désignation du mode
$\epsilon'_2 > 0$	$k'_{xp} \gg k''_{xp}$	$k'_{zi} \gg k''_{zi}$	mode de Brewster
$\epsilon'_2 < -\epsilon'_1 < 0$	$k'_{xp} \gg k''_{xp}$	$k''_{zi} \gg k'_{zi}$	mode de Fano
$-\epsilon'_1 < \epsilon'_2 < 0$	$k''_{xp} \gg k'_{xp}$	$k'_{zi} \gg k''_{zi}$	mode normal

Dans les expériences que nous avons réalisées, nous nous sommes toujours trouvés dans le cas correspondant au mode de Fano. L'approximation du milieu faiblement absorbant ($|\epsilon'_2| \gg \epsilon''_2$) conduit aux formules suivantes :

$$k'_{xp} = \left(\frac{\epsilon'_1 \epsilon'_2}{\epsilon'_1 + \epsilon'_2} \right)^{1/2} k_0 \quad ; \quad k''_{xp} = \frac{\epsilon''_2}{2 \epsilon'^2_2} \left(\frac{\epsilon'_1 \epsilon'_2}{\epsilon'_1 + \epsilon'_2} \right)^{3/2} k_0 \quad ;$$

$$k^2_{z1} = \frac{\epsilon'_1}{\epsilon'_2} k'^2_{xp} \quad ; \quad k^2_{z2} = \frac{\epsilon'_2}{\epsilon'_1} k'^2_{xp} \quad (1.19)$$

Notons que la longueur de propagation, qui est la distance sur laquelle l'onde s'atténue de 1/e en intensité et suivant Ox, s'écrit :

$L = (2 k''_{xp})^{-1}$. De même, la profondeur de pénétration de l'onde dans chacun

des milieux se définit par la relation : $\delta_j = (2 |k''_{zj}|)^{-1}$. Pour donner un ordre de grandeur, prenons l'exemple de l'or en contact avec l'air (limite de validité de l'approximation ci-dessus). Si $\lambda = 6328 \text{ \AA}$, $\epsilon''_2 = 1$, $\epsilon'_2 = -10$; on obtient alors :

$$L \sim 10 \text{ \mu m}, \quad \delta_1(\text{air}) \sim 1500 \text{ \AA}, \quad \delta_2(\text{or}) \sim 150 \text{ \AA}$$

Ces deux dernières valeurs sont significatives : elles indiquent que *l'onde est confinée au voisinage de l'interface*, et cette propriété fondamentale est utilisée pour analyser les propriétés superficielles de certains matériaux. Il en résulte que *toute modification des paramètres optiques au niveau de l'interface se traduit par une modification des conditions de propagation de l'onde électromagnétique de surface* ; la conséquence la plus facilement observable en est la modification du coefficient de réflexion : déplacement et élargissement angulaire de la courbe de résonance.

I B 2 b - Extension aux milieux anisotropes uniaxes

L'étude théorique des polaritons de surface dans le cas des milieux diélectriques anisotropes a été menée en 1973 par R. F. Wallis, J.J. Brion, E. Burstein et A. Hartstein [137, 138]. Ces auteurs ont étudié les conditions de propagation d'une onde électromagnétique de surface pour un milieu caractérisé par un tenseur diélectrique de la forme : $\bar{\epsilon} = \epsilon_0 \parallel \epsilon_{ij} \parallel$, où $i, j = x, y, z$. Dans ce cas très général, les calculs sont analytiquement compliqués. Il a été démontré l'existence d'une excitation de surface virtuelle, qui intervient lorsque : $\epsilon_{xx} < 0$ et $\epsilon_{yy} > 0$ [139]. La théorie s'applique aux milieux gyrodélectriques et gyromagnétiques, aux biaxes (magnétoplasmons dans un semi-conducteur), et naturellement aux uniaxes (plasmons de surface sur des cristaux liquides en phase nématique). Ce qui a été dit précédemment sur les milieux isotropes est valable pour les milieux anisotropes, mais la formulation analytique est plus complexe. On trouvera dans l'annexe A 2, le calcul de la relation de dispersion dans le cas d'un métal, de constante diélectrique réelle et négative ϵ' , en contact avec un milieu uniaxe et non absorbant, l'orientation de l'axe optique étant arbitraire dans le plan d'incidence. L'onde se propage sans atténuation le long de l'interface et la relation de dispersion

s'écrit :

$$k_{xp}^2 = \frac{\epsilon'(\epsilon' \epsilon_z - \gamma)}{\epsilon'^2 - \gamma} k_o^2 \quad (1.20)$$

où γ est une constante indépendante de α (orientation de l'axe optique) :

$$\gamma = \epsilon_x \epsilon_z - \epsilon_{xz}^2 = n_o^2 n_e^2$$

avec :

$$\left\{ \begin{array}{l} \epsilon_x = n_e^2 \cos^2 \alpha + n_o^2 \sin^2 \alpha \\ \epsilon_z = n_e^2 \sin^2 \alpha + n_o^2 \cos^2 \alpha \\ \epsilon_{xz} = (n_e^2 - n_o^2) \sin \alpha \cos \alpha \end{array} \right.$$

En général, $|\epsilon'| \gg n_{e,o}^2$, et l'on obtient la formule approchée suivante :

$$k_{xp}^2 \sim (\epsilon_z - \frac{\gamma}{\epsilon'}) k_o^2 \quad (1.21)$$

La relation de dispersion (1.20) correspond à l'excitation maximale (résonnante) du plasmon de surface ; nous écrirons aussi : $k_x = k_{xp}$. D'autre part, l'angle d'incidence limite est défini par la relation (1.10) :

$$k_o^2 n_{eff}^2 = (n_i \sin i_l k_o)^2 = k_{xl}^2 = \epsilon_z k_o^2$$

En première approximation, le décalage entre k_{xp} et k_{xl} (ou encore entre i_p et i_l) ne dépend donc pas de l'orientation de l'axe optique :

$$k_{xp}^2 - k_{xl}^2 \sim - \frac{\gamma}{\epsilon'} k_o^2 \quad (1.22)$$

On peut donc s'attendre, dans le cas d'une désorientation de l'axe optique, à une "sensibilité angulaire" identique dans les 2 méthodes : réflexion totale et excitation résonnante de plasmons de surface. L'exemple

.../...

suisant indique sous forme de tableau l'évolution de l'angle d'incidence i_p correspondant au minimum du coefficient de réflexion dans une expérience de réflexion totale atténuée - voir § II B 3) pour une couche d'argent ($\epsilon' = -16,4$) déposée sur un prisme d'indice 1,9078 et en contact avec un cristal liquide nématique ($n_o = 1,55$ et $n_e = 1,75$) ; la différence entre la valeur calculée ($[k_{xp}^2 - k_{xl}^2] / k_o^2$) et la valeur de $(-\gamma / \epsilon' = 0,4486)$ s'explique par le fait que le métal est en couche mince et n'est donc pas un milieu semi-infini, comme nous le verrons dans le paragraphe qui va suivre (de plus, la constante diélectrique ϵ' n'est pas réelle mais complexe).

α (degrés)	k_{xp} / k_o	k_{xl} / k_o	i_p (degrés)	i_l (degrés)	$(k_{xp}^2 - k_{xl}^2) / k_o^2$
0	1,7115	1,5500	63,78	54,34	0,5269
1	1,7115	1,5501	63,78	54,34	0,5270
5	1,7130	1,5516	63,88	54,42	0,5270
10	1,7174	1,5564	64,18	54,67	0,5274
20	1,7342	1,5747	65,37	55,63	0,5277

I B 3 - Excitation optique de plasmons de surface : prismes et réseaux

Il s'agit maintenant d'examiner les différentes possibilités d'excitation des ondes électromagnétiques de surface : un plasmon de surface ne peut être excité que par un électron ou un photon, provenant d'un champ électrique extérieur, et dont l'énergie ($\hbar\omega$) et la quantité de mouvement ($\hbar k_{xp}$) satisfont la relation de dispersion. Nous ne nous intéresserons ici qu'aux excitations induites par des photons. D'un point de vue électromagnétique, cela signifie que la vitesse de phase de l'onde excitatrice doit être égale à celle de l'onde de plasma (V_ϕ) ; dans le milieu (1), avec les notations du paragraphe I B 2 a :

$$V_1 = C(\epsilon_1)^{-1/2}$$

$$V_\phi = C(\epsilon_1)^{-1/2} (\epsilon_1 / \epsilon_2 + 1)^{1/2} \text{ où } \epsilon_2 < 0, \epsilon_2 \text{ réel}$$

Soit : $V_\phi < V_1$. On ne peut donc exciter directement un plasmon de surface par une onde électromagnétique se propageant dans le milieu diélectrique. Il existe cependant un moyen d'exciter ce plasmon de surface non-radiatif : il suffit d'augmenter la composante (k_x) du vecteur d'onde le long de l'interface métal/diélectrique, et cela peut se faire de deux manières différentes : couplage par *prisme* ou couplage par *réseau*. En fait, la constante diélectrique du métal étant complexe, l'accord de phase ($k_x = k_{xp}$) ne peut jamais se produire puisque la composante k_x du vecteur d'onde de l'onde excitatrice est réelle. D'où la relation approchée :

$$k_x = k'_{xp} \quad (1.23)$$

Il en résulte que l'onde ne peut s'atténuer le long de l'interface. Par contre, la composante k_{z2} du vecteur d'onde dans le métal est complexe. :

$$k_{z2}^2 = \tilde{\epsilon}_2 k_0^2 - k_x^2 \quad (k_x \text{ réel, et } \tilde{\epsilon}_2 \text{ complexe})$$

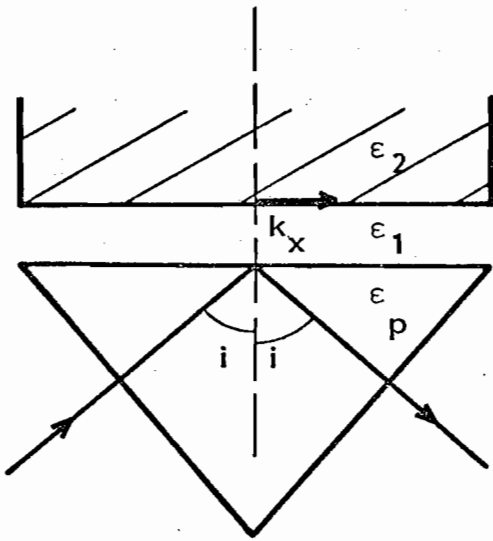
Cela signifie que l'onde est inhomogène dans le métal et s'atténue perpendiculairement à la surface.

I B 3 a - couplage par prisme - réflexion totale atténuée

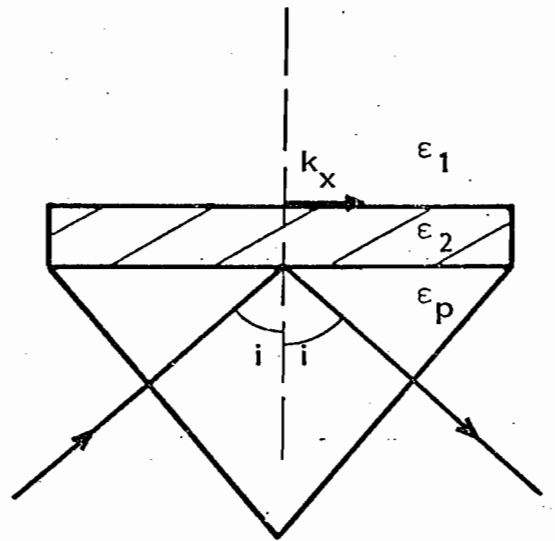
Suggérée par A. Otto en 1968 [140], la méthode consiste à utiliser un prisme à réflexion totale de permittivité ϵ_p (figure 17) : il existe un angle supérieur à l'angle d'incidence limite i_ℓ par rapport au milieu extérieur, pour lequel la composante tangentielle du vecteur d'onde vérifie la relation de dispersion approchée (1.23) ; soit i_p cet angle :

$$k_x = (\epsilon_p)^{1/2} \sin i_p k_0$$

Un couplage s'effectue alors entre l'onde électromagnétique incidente et l'onde de surface par l'intermédiaire de l'onde évanescente créée à la surface du prisme ; cette dernière s'atténuant rapidement lorsqu'on s'éloigne du prisme, l'épaisseur de la couche diélectrique doit être inférieure à la longueur d'onde. Une autre configuration légèrement différente, découverte par E. Kretschmann



OTTO



KRETSCHMANN

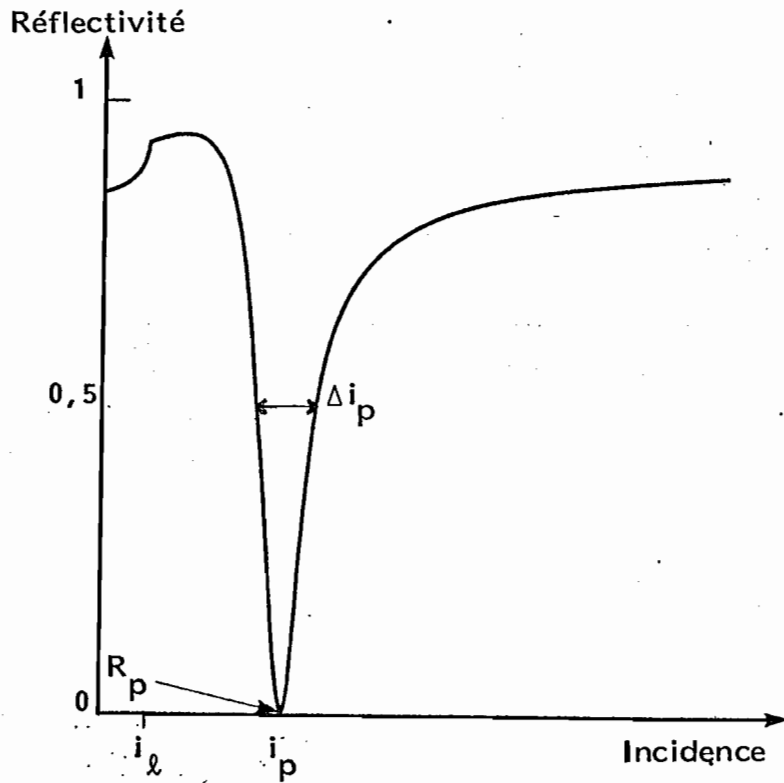


Figure I 7 : Excitation optique de plasmons de surface par réflexion totale atténuée - configurations OTTO et KRETSCHMANN - courbe de réflectivité

en 1971 [141] et plus pratique sur le plan expérimental, consiste à déposer une couche mince métallique sur un prisme à réflexion totale. Nous n'utiliserons dans nos expériences que cette dernière configuration.

Dans les deux cas, la mesure du coefficient de réflexion en intensité pour une onde polarisée TM, en fonction de l'incidence ou de la longueur d'onde, met en évidence l'excitation résonnante du plasmon de surface. Nous avons représenté sur la figure 17 une courbe de réflectivité typique du phénomène d'absorption résonnante et qui se caractérise par les 3 paramètres suivants : i_p , Δi_p et $R_p = R(i_p)$. Rappelons maintenant quelques propriétés qui nous seront utiles dans les discussions qui vont suivre :

1. la présence du prisme et l'épaisseur finie du métal modifie la position du minimum de réflectivité par rapport au cas formel de l'interface métal/diélectrique.
2. la courbe est d'autant plus asymétrique que ϵ''_2 est grand, mais pour $\epsilon''_2 \ll |\epsilon'_2|$, c'est une lorentzienne.
3. la largeur à mi-hauteur de la résonance Δi_p est liée à ϵ''_2 ; à ϵ'_2 constant, c'est une fonction croissante de ϵ''_2 .
4. dans la configuration Kretschmann, il existe une épaisseur optimale de métal pour laquelle $R_p = 0$. Dans ce cas d'excitation maximale, l'énergie de l'onde électromagnétique incidente est totalement absorbée dans la couche (d'où un échauffement de la couche métallique).
5. le champ électrique est maximal à l'interface métal-diélectrique, et se trouve amplifié par rapport au champ incident.
6. toute modification de l'interface métal-diélectrique (couches adsorbées, oxydes, rugosités) se traduit par une évolution de la courbe de réflectivité.

Les propriétés qui viennent d'être énoncées conduisent à de nombreuses expériences dans lesquelles on sonde un matériau en surface ou sous la forme d'un film mince ; citons pour mémoire quelques domaines d'étude : constantes optiques de films minces, rugosités, effets non linéaires, spectroscopie I.R. et Raman dans des couches très minces, propriétés de couches superficielles :

sulfures, oxydes, molécules adsorbées, interface métal/électrolyte, ... Un exemple typique est la cinétique d'oxydation d'une couche mince d'aluminium : nous avons déterminé, par excitation optique de plasmons de surface sur l'aluminium (réflexion totale atténuée), les paramètres cinétiques et l'épaisseur limite de l'alumine formée (40 Å), par oxydation de l'aluminium à pression et température ambiantes [142]. Nous avons également utilisé cette méthode pour étudier la désorientation en surface d'un cristal liquide nématique induite par champ électrique et son application à la détermination des énergies d'ancrage, ce qui fera l'objet du chapitre IV.

I B 3 b - couplage par réseau - influence de la rugosité

Considérons un réseau métallique de pas a , modulé sinusoidalement et dont les traits sont parallèles à l'axe Oy ; pour une amplitude de modulation h petite devant la longueur d'onde et le pas du réseau, la composante du vecteur d'onde parallèle à la surface (k_1) est modifiée de la quantité $2\pi m/a$ où $m = 0, \pm 1, \pm 2, \dots$:

$$k_m = k_1 + 2\pi m/a \quad (1.24)$$

avec $k_1 = k_0 (\epsilon_1)^{1/2} \sin\theta$, θ étant l'angle d'incidence sur le réseau (figure I 8). C'est en 1941 que U. Fano montra que cette propriété pouvait être utilisée pour exciter optiquement un plasmon de surface [143]. En faisant varier l'angle d'incidence sur le réseau, on observe un minimum dans la courbe de réflectivité analogue à celui observé en réflexion totale atténuée [144, 145]. Les expériences réalisées jusqu'à maintenant portaient sur des films minces d'argent ou d'or déposés sur des réseaux holographiques [146, 147].

Une conséquence importante de ce couplage par réseau est *l'influence de la rugosité* sur la courbe de dispersion des plasmons de surface : le profil d'une surface rugueuse peut être représenté, en analyse de Fourier, par une fonction de distribution sous forme d'intégrale, dont chaque composante agit comme un réseau sinusoidal élémentaire. Il en résulte que la rugosité de la surface métallique joue un rôle important dans l'excitation optique des plasmons

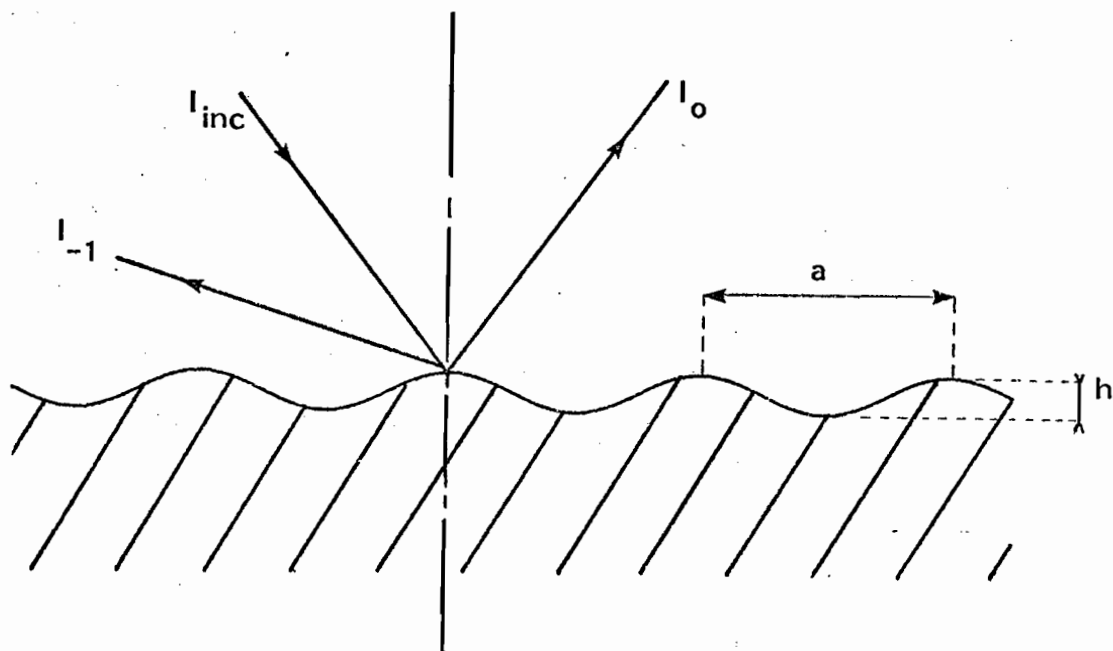
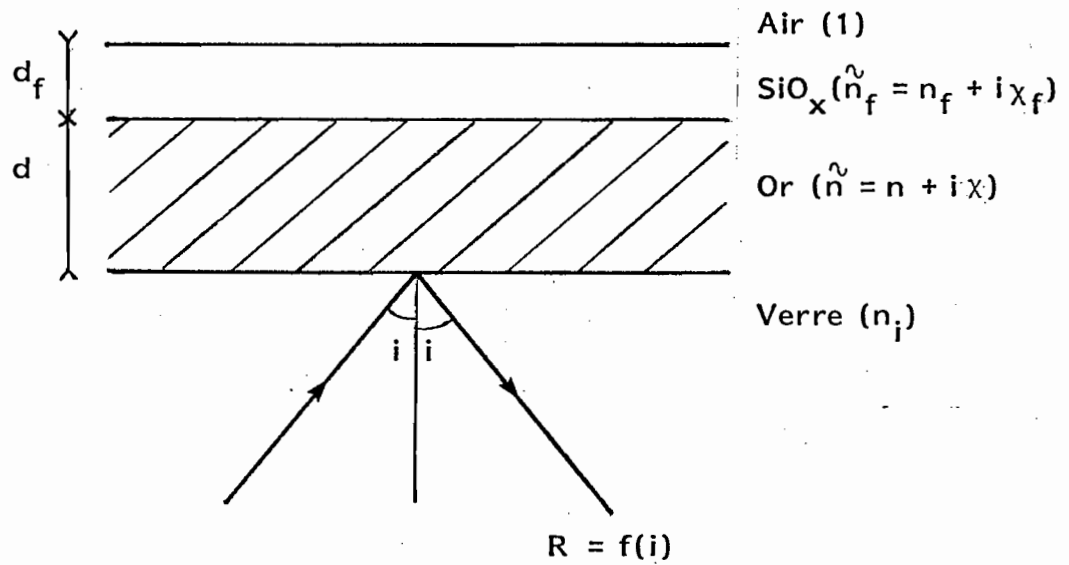


Figure I-8 : excitation optique de plasmons de surface à l'aide d'un réseau.

de surface par réflexion totale atténuée ; une augmentation des paramètres de rugosité (rugosité moyenne δ et longueur de corrélation ξ) se traduit par une évolution des courbes de réflectivité : déplacement angulaire et relèvement du minimum d'intensité. Des études ont été menées sur le sujet, aussi bien sur le plan théorique [148] que sur le plan expérimental [149].

I B 4 - Effets d'anisotropie et d'inhomogénéité : étude d'une couche de SiO_x en réflexion totale atténuée

Cette étude a pour but de comparer les résultats théoriques et expérimentaux obtenus lorsqu'on excite des plasmons de surface, en réflexion totale atténuée, sur l'interface or/SiO_x . Elle doit être replacée dans le cadre plus vaste de la détermination des énergies d'ancrage d'un cristal liquide sur un substrat, le matériau choisi dans notre expérience étant fréquemment utilisé pour assurer une orientation convenable des molécules au contact d'une paroi solide [153]. Nous nous sommes placés dans la configuration Kretschmann comme le montre le schéma ci-après :



La démarche expérimentale consiste à procéder par étapes successives dans la détermination des paramètres optiques des couches minces à partir des courbes de réflectivité : $R = f(i)$; l'épaisseur d'or étant supposée connue, on détermine ainsi :

pour le système verre/or/air : (n, χ)

pour le système verre/or/SiO_x/air : (n_f, χ_f)

→ discussion sur d_f et les effets d'anisotropie et d'inhomogénéité

1. Etude théorique

L'épaisseur de la couche d'or étant connue, la détermination des constantes optiques n et χ du matériau ne pose pas de difficultés. Les calculs sont effectués numériquement par ordinateur, les formules analytiques approchées supposant $\epsilon'' \ll |\epsilon'|$ ne convenant pas pour une détermination précise des constantes. Dans tout ce qui suit, la longueur d'onde est fixée à 6328 Å et l'indice du prisme en verre à 1,9078. A titre d'exemple, le tableau

.../...

suivant indique l'évolution de la courbe de réflectivité lorsqu'on fait varier n et χ , pour une épaisseur d'or de 530 \AA :

$\chi = 3,39$				$n = 0,20$			
n	i_p	Δi_p	R_p	χ	i_p	Δi_p	R_p
0,17	$33^\circ 21'$	$48'$	0,010	3,25	$33^\circ 31'$	$1^\circ 7'$	0,015
0,19	$33^\circ 21'$	$50'$	0,023	3,35	$33^\circ 24'$	$57'$	0,026
0,21	$33^\circ 21''$	$52'$	0,039	3,45	$33^\circ 17'$	$50'$	0,040

Supposons maintenant que l'on dépose une couche superficielle de faible épaisseur (inférieure à 500 \AA) sur le film d'or. On observe 3 principaux effets sur la courbe de réflectivité :

- déplacement de la position angulaire du minimum : δi_p
- élargissement de la courbe : $\delta(\Delta i_p)$
- augmentation de l'intensité minimale : δR_p

Si l'épaisseur est connue et le matériau supposé isotrope, homogène et non absorbant, le principal effet reste le déplacement angulaire δi_p . La figure 19 montre le déplacement correspondant à plusieurs valeurs de l'indice et pour plusieurs épaisseurs. En introduisant une faible absorption dans la couche, on observe une légère évolution dans la courbe de réflectivité ; avec les données suivantes $\{n = 0,17 ; \chi = 3,395 ; d = 525 \text{ \AA}\}$ et $\{n_f = 1,29 ; d_f = 380 \text{ \AA}\}$, on obtient :

pour $\chi_f = 0$: $i_p = 36^\circ 7'$ $\Delta i_p = 1^\circ 36'$ $R_p = 0,009$
 pour $\chi_f = 6.10^{-3}$: $i_p = 36^\circ 7'$ $\Delta i_p = 1^\circ 41'$ $R_p = 0,028$

Considérons maintenant une couche identique à la précédente mais anisotrope et homogène, l'axe optique restant dans le plan d'incidence et parallèle à la surface. Pour $\chi = 0$ et en prenant : $n_{of} = 1,29 ; n_{ef} = 1,45$,

d_f (en angströms)

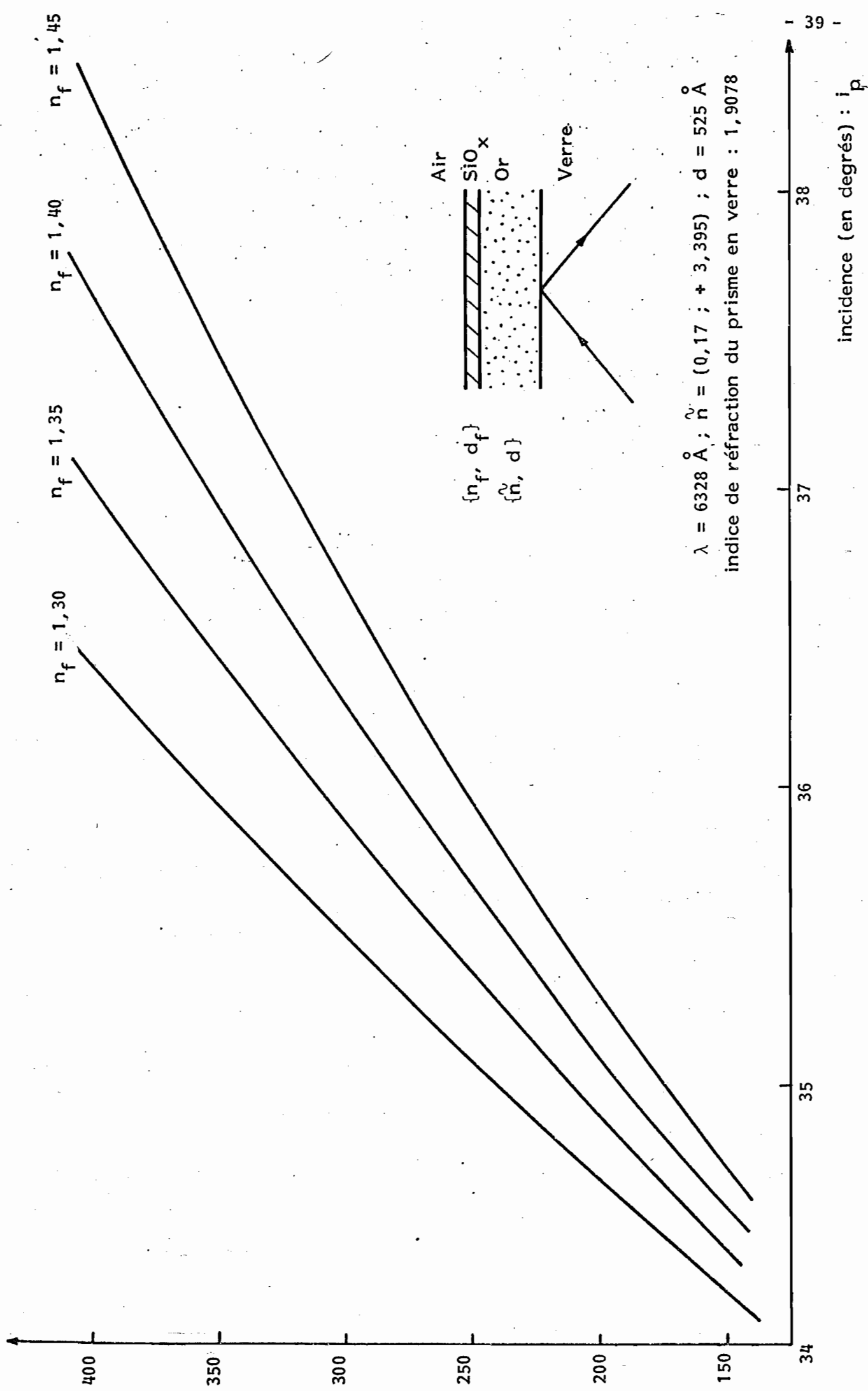


Figure 19 : Evolution de la position du minimum de réflectivité i_p en fonction de l'épaisseur de la couche d_f et pour quelques valeurs de son indice de réfraction n_f .

on obtient :

$$i_p = 36^{\circ}37' \quad \text{et} \quad \Delta i_p = 1^{\circ}58'$$

La valeur de R_p reste inchangée et ces résultats comparés aux précédents montrent une influence très importante de l'anisotropie sur la courbe de réflectivité, même lorsque l'épaisseur du film est mince.

De tels résultats montrent à l'évidence la sensibilité de la méthode pour la détermination des paramètres optiques d'un film mince, anisotrope et absorbant. Les valeurs numériques utilisées dans les calculs ne sont d'ailleurs pas fortuites et correspondent à l'étude d'une couche de SiO_x inhomogène, comme nous allons le voir maintenant.

2. étude expérimentale et discussion

Le montage de réflexion totale atténuée comprend un laser hélium-néon ($\lambda = 6328 \text{ \AA}$) et une platine goniométrique de précision. L'onde monochromatique incidente sur la couche métallique et quasi-plane : il est en effet possible de conjuguer optiquement le "waist" objet à l'intérieur de la cavité laser et le "waist" image placé au niveau de l'hypothénuse du prisme {103} ; la divergence angulaire intrinsèque du faisceau (3') peut être alors considérablement réduite. La précision angulaire sur les mesures est estimée à 1'. Le coefficient de réflexion en intensité est mesuré à l'aide d'une photodiode, dont le photocourant est amplifié, converti en tension, et éventuellement enregistré. Dans le domaine de réflectivité compris entre 0 et 1, la précision absolue sur la mesure de R est estimée à : $\Delta R = 0,005$.

La couche d'or et la couche de SiO_x ont été évaporées sous un vide de 10^{-6} Torr. Les épaisseurs sont mesurées à l'aide d'une balance à quartz soigneusement étalonnée par une méthode d'interférométrie par rayons X. La précision sur l'épaisseur est alors : $\Delta d = 5 \text{ \AA}$. Dans le cas de l'or, un étalonnage correct conduit à des résultats bien reproductibles. De plus, la très faible rugosité du substrat ($\delta \sim 10 \text{ \AA}$) due à la qualité de poli des verres utilisés conduit à des couches métalliques, bien homogènes et de faible rugosité superficielle. Des mesures de diffusion sur une couche d'or déposée sur un substrat de verre Schott LaSFN 18 (utilisé dans nos expériences) ont conduit à une rugosité voisine de 10 \AA . Les considérations

- (1) Au
- (2) Au + SiO_x

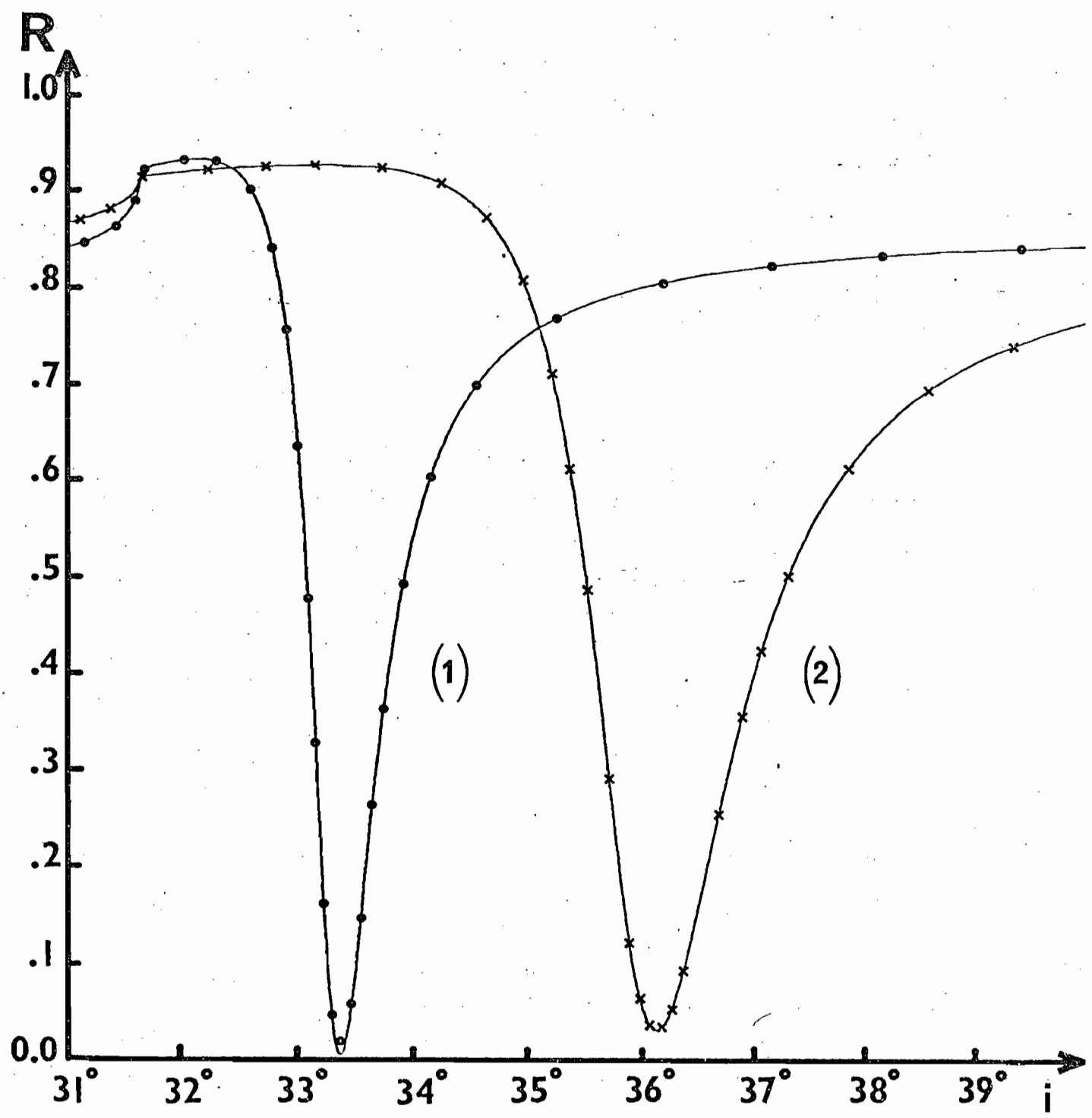


Figure I 10 : Courbes théoriques et expérimentales de la réflectivité R en fonction de l'incidence i.

précédentes nous permettent d'affirmer qu'il n'y a pas lieu d'en tenir compte dans l'excitation optique des plasmons de surface. Pour la couche de SiO_x , le problème est plus complexe : le monoxyde de silicium utilisé pour l'évaporation ne se retrouve pas intégralement sur le substrat ; les conditions d'évaporation influent énormément sur la structure et la composition du matériau déposé, et l'on obtient en fait un mélange de SiO et de SiO_2 {150, 151, 152} . De plus, en vue de l'utilisation aux cristaux liquides (voir chapitre IV), le matériau est évaporé sous incidence rasante (65° ou 70°) pour les raisons qui seront exposées au chapitre II consacré aux phases mésomorphes. Il en résulte une structure granulaire et inhomogène, visible sur des photographies effectuées au microscope électronique.

Les résultats théoriques et expérimentaux sont résumés sur la figure I 10 et ci-après : $n = 0,17$; $\chi = + 3,395$; $d = 525 \text{ \AA}$

$$(\Delta n = 0,01 ; \Delta \chi = 0,005 ; \Delta d = 5 \text{ \AA})$$

Ces valeurs sont en accord avec celles obtenues dans la littérature (cf. IB1). L'épaisseur de la couche d'oxyde est : $d_f = 380 \text{ \AA}$. Nous avons alors :

$$i_p = 36^\circ 10' \pm 1' \quad \text{et} \quad \Delta i_p = 1^\circ 47' \pm 2'$$

ce qui conduit à une valeur très faible de l'indice de réfraction, la couche étant initialement supposée isotrope et non-absorbante : $n = 1,291 \pm 0,002$.

Notons que pour un matériau massif, l'indice doit varier de 1,46 (SiO_2 pur) à 2,00 (SiO pur). Le résultat s'explique alors par la présence de lacunes dans la couche, reconnue par ailleurs comme poreuse. En conséquence, l'indice mesuré est en fait un indice effectif qui rend compte de l'inhomogénéité de la couche.

D'autre part, il existe un désaccord entre la largeur théorique de la courbe $(\Delta i_p)_{th}$ et la largeur expérimentale $(\Delta i_p)_{exp}$: $(\Delta i_p)_{th} = 1^\circ 41'$ et $(\Delta i_p)_{exp} = 1^\circ 47'$.

L'incertitude expérimentale ne pouvant être invoquée, nous avons obtenu un excellent accord entre les courbes théoriques et expérimentales par deux moyens différents :

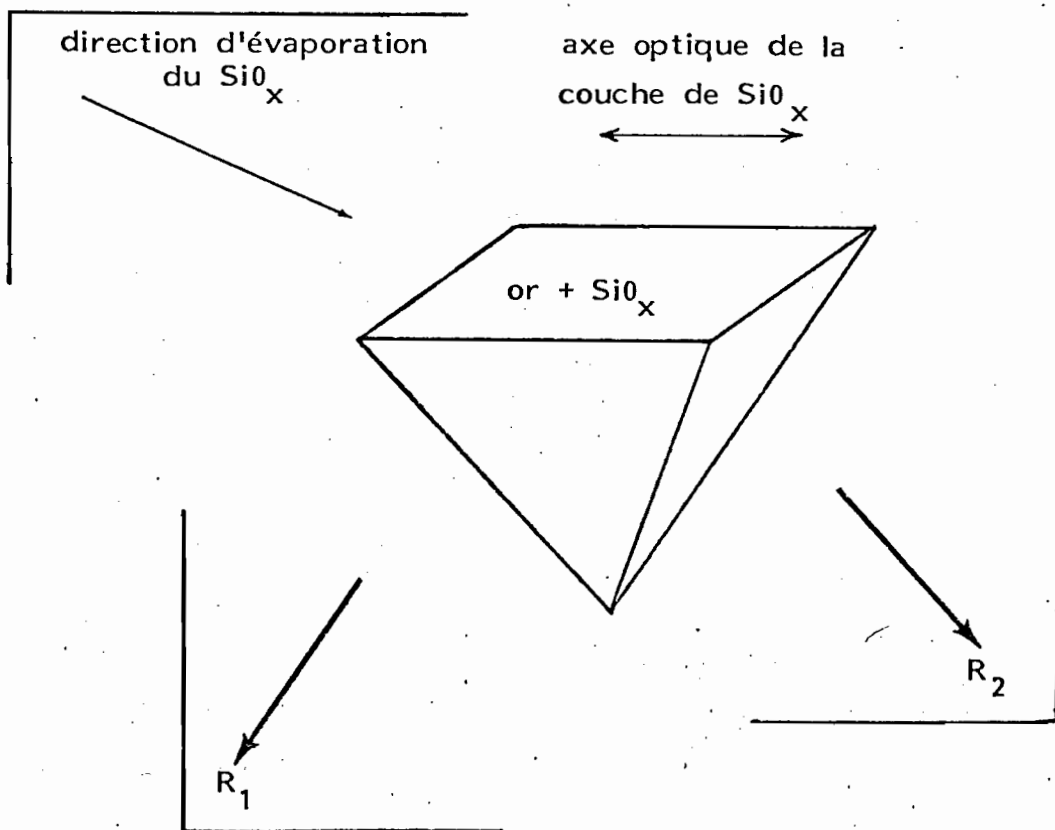
- couche anisotrope uniaxe et non absorbante, l'axe optique étant parallèle à l'interface : $n_o = 1,260 \pm 0,005$
 $n_e = 1,390 \pm 0,005$

(cette hypothèse est induite par les conditions d'évaporation : incidence fortement oblique).

- couche isotrope absorbante : $\tilde{n}_f = 1,291 + i 0,007$

(le coefficient d'absorption correspondant est : $\alpha_f = 0,14 \mu\text{m}^{-1}$).

Afin de lever l'ambiguïté, nous avons réalisé une expérience identique à l'aide d'un prisme en forme de pyramide à base carrée : si la couche est optiquement anisotrope, les coefficients de réflexion R_1 et R_2 correspondant aux directions perpendiculaires définies sur le schéma ne sont pas identiques ; en particulier : $i_{p1} \neq i_{p2}$. Au contraire, nous avons obtenu des résultats expérimentaux identiques dans les deux géométries $i_{p1} = i_{p2}$, ce qui signifie que la



seconde hypothèse serait valable. En fait, la valeur du coefficient d'atténuation obtenue ($\chi_f = 7.10^{-3}$) peut venir de 2 phénomènes très différents :

- la présence d'une légère absorption du matériau (la valeur de α_f trouvée est en accord avec d'autres résultats expérimentaux [152])
- l'influence de la rugosité de la couche, vraisemblablement très supérieure à celle de la couche d'or, compte tenu des conditions d'évaporation.

Il serait nécessaire pour conclure d'effectuer des mesures de diffusion très précises afin de déterminer la contribution de chaque paramètre à l'augmentation du coefficient d'atténuation.

Cette étude nous a permis ainsi de mettre en évidence sur un exemple concret la sensibilité des méthodes utilisant l'excitation optique des plasmons de surface ; elle sert de prélude à une étude plus importante sur la désorientation en surface d'un cristal liquide nématique, qui nous mènera à la détermination des énergies d'ancrage et qui fera l'objet du chapitre IV.

CHAPITRE II

LA PHASE MESOMORPHE COMME MATERIAU D'ETUDE

II A - INTRODUCTION AUX PHASES MESOMORPHES

De leur découverte en 1888 par F. Reinitzer {201} jusqu'aux applications les plus récentes et les plus sophistiquées de l'optoélectronique, les phases mésomorphes n'ont cessé d'attirer l'attention des scientifiques, qu'ils soient physiciens, chimistes, ou biologistes. En 1922, G. Friedel fut le premier à classer ces mésophases à partir d'observations optiques {202}, et cette classification, encore en vigueur aujourd'hui, s'est vue complétée par l'apparition récente des phases discotiques {203}. L'application la plus spectaculaire de ces "cristaux liquides" est certainement la réalisation d'affichages et d'écrans plats, où ces matériaux se révèlent très performants par la faiblesse de leur consommation d'énergie et la possibilité de les utiliser dans des conditions difficiles : tableaux de bord des automobiles, télévision portable, ... {204}

Intermédiaire entre la phase solide cristalline et la phase liquide isotrope, une phase mésomorphe se caractérise par une structure partiellement ordonnée : les molécules qui la constituent présentent un ordre partiel de translation, ou d'orientation, ou les deux simultanément {205}. Dans le domaine de température qui correspond à l'existence des mésophases thermotropes, les propriétés physiques du cristal liquide sont fortement anisotropes et l'ensemble de ces propriétés, largement étudiées durant ces vingt dernières années, a fait l'objet de nombreuses recherches, tant d'un point de vue fondamental que sur le plan des applications. Notons qu'il existe des mésophases lyotropes, où la variation de la concentration d'un soluté dans son solvant fait apparaître une structure partiellement ordonnée, mais nous ne les étudierons pas dans ce travail.

Les cristaux liquides thermotropes se subdivisent en trois classes principales, nématique, cholestérique et smectique, auxquelles viennent s'ajouter les discotiques. Dans le travail qui suit, nous nous intéresserons à la phase nématique qui est largement utilisée en optoélectronique et dont les

propriétés, bien connues dans leur ensemble, ne sont pas toujours à même d'expliquer des effets importants, et notamment des effets de surface. C'est dans cet esprit que nous avons utilisé les méthodes optiques décrites dans le chapitre précédent en vue de réaliser des expériences qui mettent en évidence ces effets de surface, et en particulier les effets de l'ancrage d'un cristal liquide sur un substrat, qui restent, à l'heure actuelle, encore mal compris et très discutés {206}.

II B - LA PHASE NEMATIQUE

II B 1 - Principes de la théorie continue

En passant de la phase isotrope (fluide) à la phase anisotrope (nématique) les molécules du cristal liquide, allongées en forme de bâtonnets, s'orientent mutuellement et tendent à prendre une orientation commune parallèle à un vecteur unitaire \vec{n} appelé "directeur" (figure II 1) ; l'orientation ainsi définie est une orientation *moyenne* qui correspond à une position d'équilibre autour de laquelle



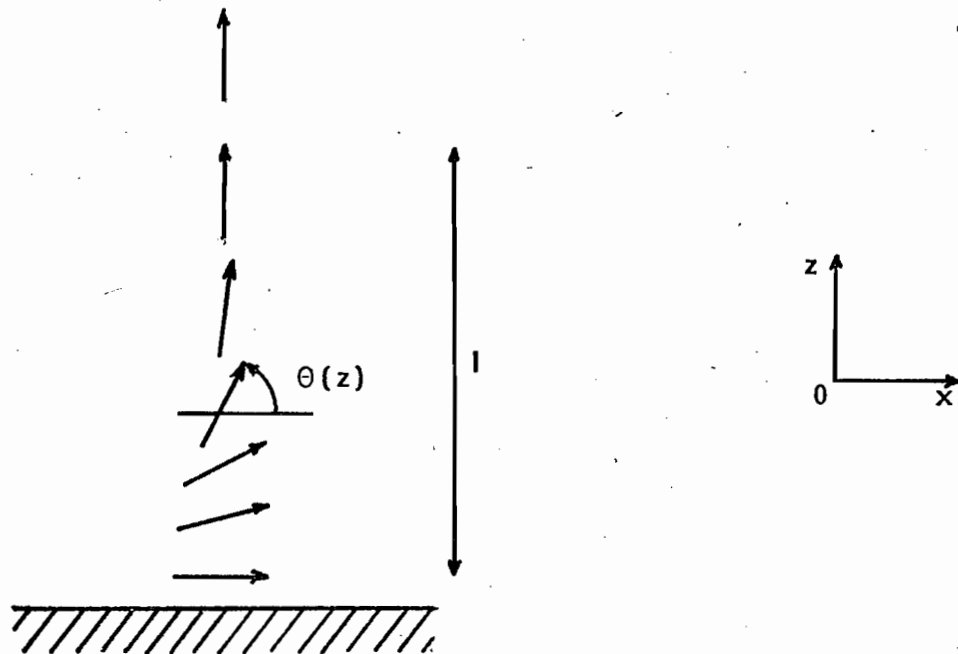
Figure II 1 : Représentation schématique de l'ordre orientationnel d'un cristal liquide en phase nématique.

existent des fluctuations d'orientation d'origine thermique [205]. En pratique, le milieu se voit imposer des contraintes d'origine externe qui influent sur l'orientation des molécules : surfaces en contact avec le cristal liquide, champ extérieur appliqué (magnétique ou électrique), ... Tant que la longueur l caractéristique de la déformation associée à la contrainte est grande devant une dimension moléculaire a , l'ensemble de ces déformations est correctement décrit par une théorie continue qui ne prend pas en compte les fluctuations d'alignement à l'échelle microscopique. Ceci peut s'exprimer sous la forme mathématique suivante [205] :

$$l \gg a \quad \longleftrightarrow \quad a \cdot \nabla \vec{n} \ll 1$$

ou encore

$$a \frac{\partial \theta}{\partial z} \ll 1$$



En prenant : $a = 10 \text{ \AA}$, et en admettant comme limite de validité de cette formule : $a \frac{\partial \theta}{\partial z} \sim 10^{-2}$, on obtient un gradient de déformation maximal :

$$\frac{\partial \theta}{\partial z} \sim 1 \text{ radian} / 1000 \text{ \AA} \quad (II.1)$$

Nous verrons plus loin l'importance de cette valeur qui conditionne la validité de certains de nos résultats expérimentaux et qui trouve une équivalence optique dans la valeur du gradient d'indice de réfraction.

Dans cette limite, l'orientation des molécules du cristal liquide est décrite en tout point \vec{r} de l'espace par le champ de vecteur $\vec{n}(\vec{r})$. La théorie qui en résulte, appelée théorie continue, a été élaborée initialement par C. N. Oseen {207} , H. Zocher {208} et F. C. Frank {209} , puis complétée sur le plan hydrodynamique par J.L. Eriksen {210} , F.M. Leslie{211}et O. Parodi {212}. Nous reviendrons, au cours de ce travail, sur quelques aspects particuliers de cette théorie. Rappelons néanmoins qu'un cristal liquide en phase nématique, soumis à un ensemble de forces extérieures, forme un système dont la densité d'énergie libre par unité de volume F s'écrit :

$$F = F_d + F_{ext} \tag{II.2}$$

F_d représente la contribution des forces d'origine élastique responsables de la distorsion du milieu :

$$F_d = \frac{1}{2} \left[K_1 (\text{div } \vec{n})^2 + K_2 (\vec{n} \cdot \text{rot } \vec{n})^2 + K_3 (\vec{n} \wedge \text{rot } \vec{n})^2 \right] \tag{II.3}$$

où K_1 , K_2 et K_3 sont les constantes élastiques de Frank :

- $\left\{ \begin{array}{l} K_1 \rightarrow \text{éventail (splay)} \\ K_2 \rightarrow \text{torsion (twist)} \\ K_3 \rightarrow \text{flexion (bend)} \end{array} \right.$

L'ordre de grandeur de ces constantes est de 10^{-6} dynes (10^{-11} N). Une représentation schématique de la déformation du milieu dans ces trois cas est donnée sur la figure II 2.

F_{ext} représente la contribution des forces extérieures appliquées au cristal liquide. En fait, la position d'équilibre (statique) du milieu s'obtient en minimisant l'énergie libre totale du système par rapport à toutes les variations

angulaires possibles du directeur \vec{n} , compte tenu des conditions d'ancrage aux parois. On peut montrer que, dans ce cas, seule la contribution anisotrope doit être prise en compte, ce qui donne par exemple pour un champ électrique :

$$F_{\text{ext}} = - \frac{\Delta \epsilon}{8 \pi} E^2 \quad (11.4)$$

où E est le champ électrique appliqué et $\Delta \epsilon = \epsilon_{//} - \epsilon_{\perp}$ représente l'anisotropie diélectrique du cristal liquide {205}.

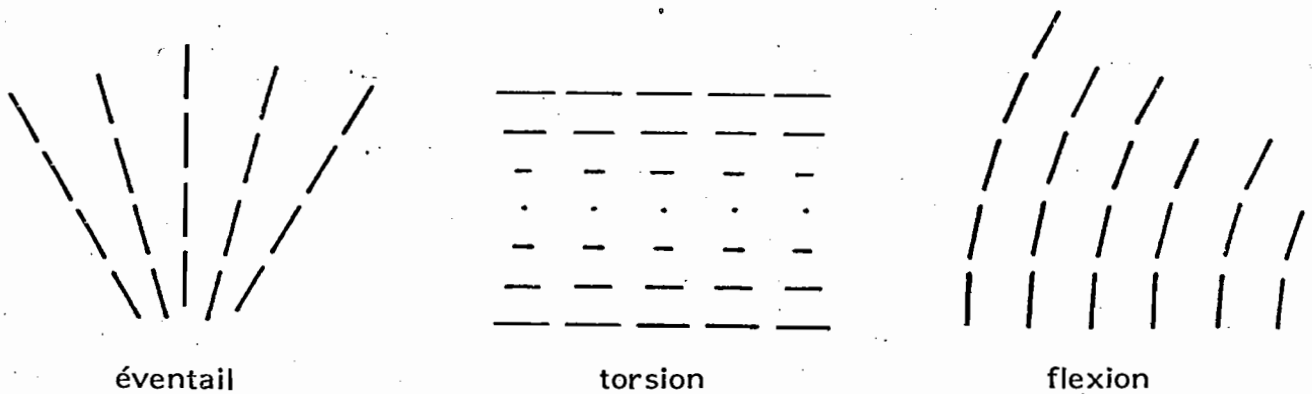


Figure II 2 : Déformations élémentaires du milieu nématique.

Envisageons maintenant les effets de surface ; le cristal liquide nématique étant contenu dans un récipient de volume V comportant des parois, deux cas peuvent se présenter :

- l'ancrage aux parois est infiniment fort : cela revient à imposer une orientation des molécules au contact des parois qui est indépendante de toute

contrainte interne ou externe ; cela se traduit mathématiquement par des conditions aux limites fixes et la position d'équilibre du système s'obtient en minimisant la quantité :

$$\mathcal{F}_{\text{vol}} = \int_V F \, dv \quad (11.5)$$

- l'ancrage aux parois a une valeur finie : on doit alors considérer des termes de surface et écrire l'énergie totale sous la forme :

$$\mathcal{F} = \mathcal{F}_{\text{vol}} + \mathcal{F}_{\text{surf}} \quad (11.6)$$

Ce dernier terme représente l'énergie de surface et doit être pris en compte dans la détermination des énergies d'ancrage ; nous y reviendrons en détail dans la suite de notre travail, en particulier au chapitre IV.

Les expressions ci-dessus se rapportent à un équilibre statique du système ; il convient de les compléter, lorsque le fluide est en mouvement, par les équations de l'hydrodynamique des cristaux liquides. Il est exclu de donner ici le formalisme détaillé de cette "nématodynamique", que l'on trouvera dans l'ouvrage fondamental de P.G. De Gennes {205} . Nous l'utiliserons néanmoins dans le chapitre suivant où l'on analyse optiquement la déformation du directeur produite par un écoulement de Poiseuille entre deux parois.

II B 2 - Propriétés optiques

Les premières observations sur les phases mésomorphes, effectuées au microscope polarisant, ont révélé leur forte biréfringence optique ; l'analyse des textures obtenues a permis une classification encore en vigueur aujourd'hui {202}.

La biréfringence optique d'un nématique provient d'une part du caractère allongé des molécules qui le constituent, et d'autre part de l'ordre orientationnel dont nous avons parlé précédemment. Aux fréquences optiques, la direction de polarisabilité maximale correspond en général à la direction d'élongation de la molécule ; les polarisabilités associées aux directions transverses sont moyennées car l'orientation de la molécule autour de la direction

d'élongation est aléatoire. Si l'on passe de l'échelle microscopique (polarisabilité) à l'échelle macroscopique (constante diélectrique), on obtient un milieu optiquement anisotrope : c'est un uniaxe positif, caractérisé par un axe optique parallèle au directeur \vec{n} , et par une biréfringence optique définie par : $\Delta n = n_e - n_o$ (n_e est l'indice extraordinaire principal et n_o l'indice ordinaire principal du milieu uniaxe). Cette biréfringence dépend de la température, et d'autant plus fortement que l'on se rapproche du point de clarification T_{NI} (température de transition entre la phase nématique et la phase isotrope). Nous donnerons dans le paragraphe II B 4 un exemple de mesure des indices de réfraction n_o et n_e , en fonction de la température et de la longueur d'onde, par la méthode de l'angle d'incidence limite décrite dans le chapitre précédent.

Nous devons également aborder un problème qui a son importance dans les expériences que nous avons réalisées, où l'orientation de l'axe optique peut varier sur de très courtes distances. La théorie que nous avons développée est une théorie *électromagnétique* où la constante diélectrique ϵ est définie dans un certain volume $V = L^3$. Il semble raisonnable d'estimer la limite de cette approche macroscopique à $L = 100 \text{ \AA}$ [213]. En restant dans le cadre de la théorie continue, la relation (II.1) nous montre que sur 100 \AA , la variation de l'angle θ correspondante est de 0,1 radian. Pour une biréfringence optique de 0,2 ($n_o = 1,5$ et $n_e = 1,7$), on obtient une variation d'indice locale inférieure à 0,02. Compte tenu du fait que cette variation est continue, *il n'y a pas incompatibilité entre la théorie électromagnétique et la théorie continue*. Cette hypothèse est d'ailleurs corroborée par les études des couches minces, où les problèmes surviennent pour des épaisseurs inférieures à 100 \AA , et lorsqu'il existe des discontinuités entre les milieux. Le gradient maximal de déformation sera donc fixé par la relation (II.1) ; au delà de ce critère limite, des précautions supplémentaires doivent être prises.

Un autre problème se trouve lié à la nature même du milieu : la turbidité apparente de la phase nématique qui provient des fluctuations de l'alignement des molécules autour de leur position d'équilibre. Il en résulte une diffusion de la lumière, parfaitement visible à l'oeil nu, et qui est environ un million de fois plus importante que la diffusion de la phase isotrope [205]. Une onde électromagnétique se propageant dans un tel milieu, même homogène, subit alors une faible atténuation. Des guides d'onde optiques, réalisés à l'aide d'une mince couche de nématique (10 microns), ont montré une atténuation de

quelques dizaines de dB/cm {214, 215, 216} . Dans ces expériences, l'absence de pertes significatives lorsqu'on chauffe le cristal liquide au delà de la température de transition T_{NI} indique que les pertes par absorption sont faibles devant les pertes par diffusion (du moins dans le domaine spectral visible). Il convient donc de tenir compte, dans les calculs électromagnétiques, de cette perte par diffusion, en introduisant une partie imaginaire très faible dans l'indice de réfraction (ordinaire et extraordinaire), comme nous l'avons fait dans l'expérience de l'écoulement de Poiseuille décrite dans le chapitre III. L'hypothèse que nous faisons dès à présent doit être comprise comme une tentative d'expliquer certains résultats expérimentaux. Il faudra donc se rappeler la signification d'un tel modèle, en évitant toute confusion avec une perte ohmique liée à la conductibilité du matériau.

II B 3. - Le problème de l'ancrage

II B 3 a - historique et position du problème

Dès l'apparition des cristaux liquides, les expérimentateurs ont cherché à obtenir des échantillons homogènes destinés à l'étude des propriétés physiques de ces nouvelles phases ; le caractère liquide du matériau ainsi que sa bonne transparence optique le rendait particulièrement apte à le disposer en couche mince, de quelques dizaines de microns d'épaisseur. Malheureusement, au contact d'une simple lame de verre, un cristal liquide en phase nématique montre des défauts de structure qui sont révélateurs du caractère aléatoire de l'orientation des molécules sur le substrat. Deux questions se posent alors : comment obtenir un échantillon bien orienté ("monocristallin"), et quelles sont les forces qui déterminent cette orientation ?

Avant de poursuivre, donnons quelques définitions nécessaires à la compréhension de ce qui va suivre. Comme nous l'avons souligné dans le paragraphe précédent, le directeur \vec{n} caractérise l'orientation macroscopique du cristal liquide, ainsi que l'orientation de l'axe optique de ce milieu uniaxe. En contact avec un substrat P que nous supposerons toujours solide et parfaitement plan, le vecteur unitaire \vec{n} est défini en coordonnées polaires par les relations :

$$\left\{ \begin{array}{l} n_x = \cos \alpha \cos \phi \\ n_y = \cos \alpha \sin \phi \\ n_z = \sin \alpha \end{array} \right. \quad (11.7)$$

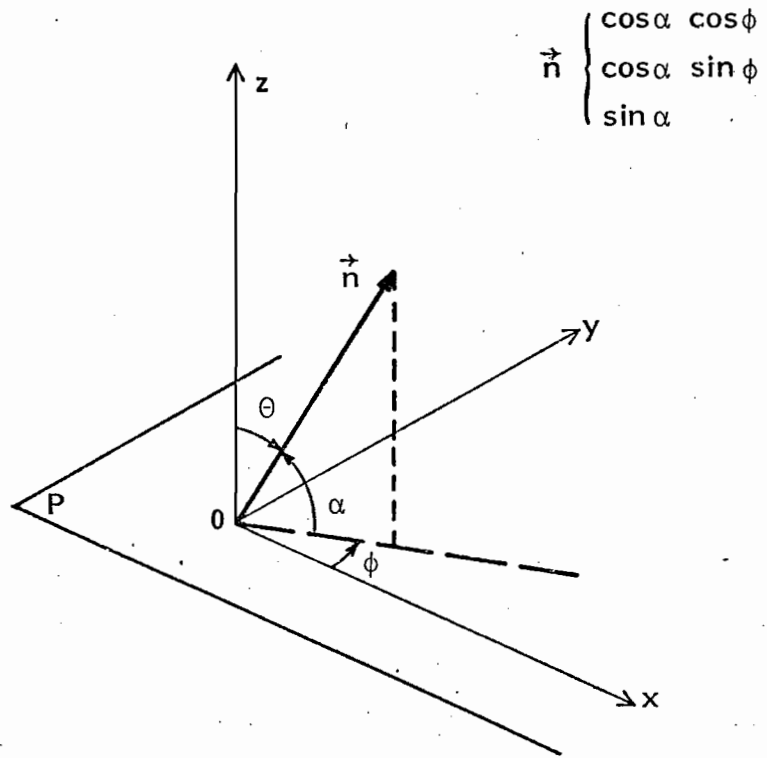


Figure II 3 : Représentation du directeur \vec{n} dans un repère orthonormé (Oxyz).



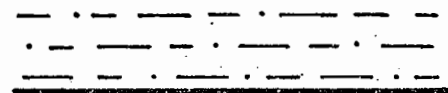
HOMEOTROPE



OBLIQUE



PLANAIRE



PLANAIRE DEGENEREE

Figure II 4 : Types d'ancrage possibles.

A l'aide de cette notation, définie sur la figure (II 3), nous adopterons la terminologie classique pour représenter les différents types d'ancrage possible, schématisés sur la figure (II 4) et dans le tableau qui suit :

ancrage	homéotrope	planaire	oblique	dégénéré
α	$\pi/2$	0	fixé	0
ϕ	indéterminé	0	0	indéterminé

D'après la théorie continue, les configurations \vec{n} et $-\vec{n}$ sont équivalentes ; par contre, les configurations (α) et $(\pi - \alpha)$ ne le sont pas, en particulier du point de vue optique. Par la suite, nous n'envisagerons que des ancrages homéotropes, plans ou obliques ($0 \leq \alpha < \pi$).

Le premier alignement planaire homogène a été réalisé au début de ce siècle par C. Mauguin [217] : l'action de frotter une lame de verre lui a permis d'orienter les molécules du nématique parallèlement à la direction de frottement. P. Chatelain a suggéré que les ondulations produites à la surface du verre par un tel frottement créent une anisotropie superficielle qui oriente mécaniquement les molécules [218]. Dans un célèbre article [219], D.W. Berreman a aussi montré, par un calcul de minimisation de l'énergie élastique du cristal liquide en contact avec un réseau de profil sinusoïdal, que les molécules s'orientaient de manière préférentielle parallèlement à la direction des sillons créés par le réseau.

C'est en 1972 que J. L. Janning découvrit une méthode très efficace et reproductible pour obtenir un ancrage planaire homogène : cette technique consiste à évaporer sous vide et sous incidence rasante une couche mince (quelques centaines d'angströms) d'un matériau approprié : aluminium, or, monoxyde de silicium, ... [220]. Peu de temps après, E. Guyon a montré que certaines conditions d'évaporation permettaient d'obtenir un ancrage oblique, et étudié l'influence de l'angle d'évaporation sur l'orientation du cristal liquide [221, 222]. La technique de la double évaporation permet également d'obtenir des ancrages obliques parfaitement reproductibles [223]. Plus récemment, G. J. Spokel a obtenu l'ancrage planaire de plusieurs cristaux liquides en déposant, sous incidence oblique, un film de silice amorphe : ce film est formé par l'oxydation d'un organosilane dans un plasma d'argon et d'oxygène créé

par une diode r.f. {224} . Ces deux techniques, évaporation thermique et plasma réactif, ne conduisent pas à des microstructures identiques de la couche d'ancrage et il en résulte des propriétés physiques différentes de cette couche, que ce soient des propriétés optiques (anisotropie, homogénéité, rugosité de surface) ou des propriétés d'ancrages (homogénéité de l'orientation du directeur, valeur des forces d'ancrage).

Un autre procédé permet d'obtenir un ancrage planaire de bonne qualité : on dépose sur le substrat un réseau de silice amorphe par une technique issue de la microélectronique {226} ; avec un pas de 3200 Å et une profondeur de modulation de 250 Å, le réseau ainsi formé est parfaitement reproductible et oriente convenablement le matériau. Des réseaux de pas plus importants ont également été utilisés {227, 228} .

Il est relativement plus facile d'obtenir un ancrage homéotrope homogène et de bonne qualité ; à cet égard, l'utilisation de surfactants appropriés s'est révélée efficace. En 1972, J. E. Proust fut le premier à montrer qu'une couche monomoléculaire de bromure d'hexadécyltriméthylammonium (HTAB) adsorbé à la surface du verre orientait un cristal liquide en phase nématique {229} . Des études plus fines ont souligné l'importance de la concentration de HTAB en solution aqueuse sur l'orientation des molécules (ancrage homéotrope ou dégénéré) {230} . La méthode la plus employée à l'heure actuelle consiste à prendre comme surfactants des organosilanes de la forme $RSiX_3$, où R est une chaîne aliphatique très longue et X un groupe facilement hydrolysable ; c'est en 1973 que F.J. Kahn découvrit cet effet et réalisa des ancrages homéotropes sur des substrats très différents {231} . Les meilleurs résultats ont été obtenus à l'aide d'un organosilane de formule assez complexe que nous appellerons sous sa forme abrégée DMOAP (chlorure de diméthyl-octadécyl-aminopropyltriméthoxysilane) et que nous utiliserons dans les expériences nécessitant un ancrage homéotrope de bonne qualité.

Ce bref rappel historique nous permet de constater *l'extrême diversité des méthodes d'ancrage*. Certains auteurs ont tenté d'expliquer les mécanismes de l'orientation des molécules du nématique sur un substrat déterminé (nous en donnerons un aperçu dans les lignes qui suivent) ; malheureusement, il faut bien reconnaître qu'aucune explication n'est totalement satisfaisante et qu'un empirisme certain règne dans ce domaine. La nature des interactions cristal liquide/substrat est encore mal comprise et cette incompréhension résulte du

nombre de facteurs qui influent sur l'ancrage final :

- nature et état physicochimique du substrat avant le dépôt de la couche d'ancrage (topographie, rugosité, ...).
- nature de la couche d'ancrage (type de dépôt, interactions avec le substrat, évolution au cours du temps, ...).
- type de cristal liquide utilisé (méthode de remplissage des cellules, influence des impuretés, ...).

Nous allons néanmoins montrer qu'il est possible, indépendamment des conditions de réalisation de l'ancrage, de donner une formulation théorique des forces d'ancrage qui puisse être utilisée de manière pratique et significative dans la plupart des cas.

II B 3 b - Formulation théorique du phénomène de l'ancrage

De notre connaissance actuelle des phénomènes de l'ancrage semblent ressortir deux mécanismes d'origine assez différente : l'un d'origine *géométrique*, qui amène le nématique à orienter ses molécules parallèlement aux traits d'un réseau (minimisation de l'énergie libre du système dans le cadre de la théorie continue), et l'autre d'origine *physicochimique*, plus "microscopique", où interviennent des forces de nature très différente : liaisons hydrogène, forces de Van der Waals, interactions dipolaires, ... L'effet cumulatif de ces deux mécanismes rend délicate toute interprétation des phénomènes.

Une approche physicochimique, basée sur les valeurs relatives des tensions de surface des milieux en présence, a été proposée par L. T. Creagh et A. R. Kmetz en 1973. D'après ces auteurs, si l'on considère la tension de surface critique du substrat γ_c et la tension de surface du cristal liquide γ_L , l'orientation des molécules est déterminée par le signe de $\Delta\gamma = \gamma_L - \gamma_c$ {232} :

$$\left\{ \begin{array}{ll} \Delta\gamma > 0 & \text{alignement } \perp \text{ (homéotrope)} \\ \Delta\gamma < 0 & \text{alignement } // \text{ (planaire ou dégénéré)} \end{array} \right.$$

En faisant dépendre la tension de surface du cristal liquide de l'angle d'obliquité θ (appelé aussi angle de tilt), et suivant l'hypothèse de L. T. Creagh

et A. R. Kmetz, G. Porte a défini la tension interfaciale de la manière suivante {233} :

$$\gamma_{LS}(\theta) = \gamma_S + \gamma_L(\theta) - W(\theta) \quad (11.8)$$

où γ_S est la tension de surface du substrat et $W(\theta)$ l'énergie d'adhésion (Figure II 5). Si les forces de dispersion sont les seules à être prises en compte, on a {234} :

$$W(\theta) = 2 \left[\gamma_L(\theta) \gamma_S \right]^{1/2} \quad (11.9)$$

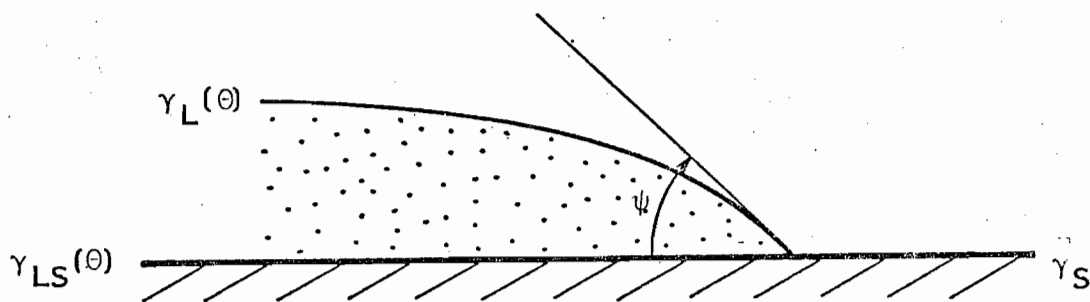


Figure II 5 : Equilibre d'une goutte de cristal liquide sur un substrat - définition des tensions de surface.

En minimisant l'énergie interfaciale par rapport à l'angle θ , on obtient 3 cas correspondant aux 3 types d'ancrage homogène :

- $\gamma_S < \gamma_L(\theta)$ alignement perpendiculaire
- $\gamma_L(0) < \gamma_S < \gamma_L(\pi/2)$ alignement oblique
- $\gamma_L(\pi/2) < \gamma_S$ alignement parallèle

Malheureusement, des mesures expérimentales effectuées avec des substrats et des cristaux liquides différents ne permettent pas de conclure à la validité des hypothèses émises. Si les prédictions se trouvent réalisées dans certains cas {233, 235}, des contradictions apparaissent dans d'autres {236, 237, 238}. En fait, les forces provenant des interactions dipolaires s'ajoutent aux forces de dispersion, en particulier dans le cas des cristaux liquides polaires tels que les biphényles. Les mesures de tension de surface et leurs interprétations dans les phénomènes d'ancrage, malgré leur intérêt fondamental dû au caractère microscopique des théories physicochimiques, nous semblent donc mal adaptées aux mesures des forces d'ancrage, dans un contexte essentiellement tourné vers les applications électro-optiques.

De ce fait, il apparaît plus commode d'introduire, comme l'a fait M. Kléman, une définition de l'ancrage *plus phénoménologique* {239}; on définit ainsi l'énergie d'ancrage comme l'énergie nécessaire pour faire tourner le directeur \vec{n} d'un certain angle à partir de sa position d'équilibre. Si (α_0, ϕ_0) représente la position d'équilibre et (α, ϕ) la position finale, l'énergie de surface associée à la rotation de l'ensemble des molécules s'écrit :

$$W = W_\alpha \sin^2(\alpha - \alpha_0) + W_\phi \sin^2(\phi - \phi_0) \quad (11.10)$$

Par définition, W_α et W_ϕ représentent les énergies d'ancrage associées aux deux rotations possibles du directeur. Elles s'exprimeront en dynes/cm ou en erg/cm^2 (unités C.G.S.) ou encore en J/m^2 (unité S.I.). Notons dès maintenant que ces énergies de surface correspondent à une notion MACROSCOPIQUE du phénomène de l'ancrage; une telle notion présente un intérêt pratique évident dans les expériences où se produit une modification de l'orientation du directeur sous l'action d'une perturbation extérieure (écoulement de Poiseuille, transition de Fredericksz, ...), et s'inscrit logiquement dans le cadre de la théorie continue.

II B 3 c Résultats expérimentaux concernant les énergies d'ancrage

Il existe à l'heure actuelle 3 méthodes qui permettent la détermination des énergies d'ancrage; aucune n'est universelle et chacune s'applique à un type d'ancrage particulier. Différentes par les mesures physiques qui leur sont

associées, elles se basent sur des théories distinctes du phénomène de l'ancrage :

- étude des défauts de structure
- mesures de tensions interfaciales
- étude des déformations du nématique sous l'influence d'un champ magnétique ou électrique.

1) Etude des défauts de structure

Considérons un cristal liquide nématique placé entre deux lames de verre et examinons-le au microscope polarisant : il apparaît des défauts de structure qui peuvent être des parois (de type Bloch ou Néel) ou des lignes de disinclinaison en surface. M. Kléman a montré que l'existence de ces objets "topologiques" était liée aux forces d'ancrage en surface {239, 240, 241} : si l'on définit une longueur d'extrapolation $b = 2K/W$ (K étant l'une des constantes élastiques de Frank et W l'énergie d'ancrage), deux cas peuvent se produire suivant la valeur de l'épaisseur de l'échantillon e :

* $b > e$ formation de parois de largeur p : $W \sim \pi^2 Ke/2 p^2$

* $b < e$ formation de lignes de disinclinaison en surface, de
 largeur d : $W \sim \pi^2 Ke/2 d^2$

Dans le cas d'ancrages faibles ($W \sim 10^{-4}$ dynes/cm), on a : $b \sim 100 \mu\text{m}$, et des cellules de faible épaisseur permettent de mettre en évidence des parois. C'est ainsi que G. Ryschenkow a estimé une énergie d'ancrage sur un substrat recouvert d'un film de carbone {242} :

$$10^{-4} < W < 5 \cdot 10^{-4} \text{ dynes/cm}$$

Dans le cas d'ancrages forts ($W \sim 1$ dyne/cm), on a : $b \sim 10 \text{ \AA}$. Il peut se former des lignes de disinclinaison en surface mais l'épaisseur de la cellule nématique doit être supérieure à $100 \mu\text{m}$ pour obtenir une précision suffisante sur la mesure de l'énergie d'ancrage ($d = 2 \mu\text{m}$ pour $e = 100 \mu\text{m}$ et $W = 1$ dyne/cm).

G. Porte a utilisé cette méthode pour mesurer l'énergie d'ancrage du MBBA (méthoxybenzylidène-butylaniline) sur un substrat recouvert d'un film monomoléculaire d'une monoamine aliphatique ($C_7 H_{15} - NH_2$) et a obtenu, pour $\alpha \sim 55^\circ$ et $\phi \sim 0^\circ$:

$W_{\alpha} \sim 2.10^{-4}$ dynes/cm et $W_{\phi} \sim 5.10^{-2}$ dynes/cm. En résumé, nous pouvons dire que l'étude des défauts de structure ne permet qu'une estimation des énergies d'ancrage, et presque exclusivement pour des ancrages faibles.

2) Mesures de tensions interfaciales

Comme nous l'avons souligné dans le paragraphe précédent, la mesure des énergies d'ancrage par des méthodes physicochimiques s'avère délicate et les résultats expérimentaux sont souvent en contradiction avec les modèles proposés. Bien que cette approche soit la plus satisfaisante, car fondée sur un aspect microscopique des phénomènes, elle comporte trop d'inconnues pour pouvoir être exploitée sur le plan pratique.

3) Etude des déformations du nématique sous l'influence d'un champ magnétique ou électrique :

Il s'agit d'étudier l'influence des conditions d'ancrage aux parois sur la désorientation du directeur lorsqu'on applique un champ électrique ou magnétique à un nématique en couche mince. C'est en fait une étude plus complète de la transition de Freedericksz {225}, car elle inclut les effets de surface. Nous allons simplement rappeler ici quelques résultats expérimentaux, étant entendu que le sujet sera traité en détail au chapitre IV.

En 1969, A. Rapini a montré, par un calcul théorique, que l'influence des conditions d'ancrage pouvait se traduire par une diminution apparente des constantes d'élasticité, mais aucune expérience n'est venue alors corroborer cette hypothèse {243}. Ce n'est qu'en 1976 que J. Sicart détermina expérimentalement une énergie d'ancrage de torsion W_{ϕ} dans le cas d'un ancrage très faible (lame non traitée) {244} : on impose une torsion de $\pi/2$ au nématique et l'on applique un champ magnétique parallèlement à la direction de frottement ; un analyseur circulaire à pénombre permet alors de mesurer la rotation du directeur à travers l'échantillon.

D'autres expériences ont été réalisées sur le MBBA par S. Naemura {245, 246} : elles ont consisté à mesurer le seuil de la transition de Freedericksz en champ magnétique pour différents ancrages homéotropes ; là encore, la méthode n'est précise que pour des ancrages faibles ($W_{\alpha} \leq 10^{-2}$ dynes/cm). De plus, l'auteur détecte le seuil de la transition en mesurant l'angle d'incidence limite sur la couche nématique : nous pensons que, le milieu étant devenu fortement inhomogène par l'application du champ, il n'y a plus lieu de parler

de réflexion totale et que par conséquent, une analyse optique est nécessaire pour conclure.

Par comparaison, l'application d'un champ électrique se fait aisément par l'utilisation d'électrodes semi-transparentes, les tensions nécessaires pour désorienter le nématique n'excédant pas quelques dizaines de volts, même pour des ancrages forts. Une expérience similaire à la nôtre et simultanée a été réalisée par G. J. Sprokel dans les laboratoires de recherche d' I.B.M. à San José (Californie) {247} , puis analysée en détail par K. H. Yang {248} ; la méthode utilise l'excitation optique des plasmons de surface et nous l'étudierons en détail dans le chapitre IV.

Pour terminer ce paragraphe consacré aux ancrages, il nous faut souligner le peu de résultats acquis dans ce domaine à l'heure actuelle. Cela tient d'une part à la complexité et à la diversité des traitements de surface utilisés (problèmes de reproductibilité), et d'autre part à l'absence de techniques permettant la mesure des désorientations en surface. Nous montrerons au chapitre IV que, grâce à ses propriétés de confinement, une onde électromagnétique de surface se révèle une sonde efficace pour l'analyse du cristal liquide en contact avec son substrat, permettant ainsi une détermination précise des énergies d'ancrage.

II B 4 - Les nématiques utilisés

Les expériences que nous avons réalisées utilisaient des cristaux liquides qui sont en phase nématique à la température ambiante. Il s'agit de deux composés organiques synthétisés et commercialisés par le groupe BDH :

- un biphényl pur : hexylcyanobiphényl {249} , encore appelé 6CB ou K18 ;

- un mélange eutectique de biphényles et terphényles dénommé E7.

La structure des molécules composant ces produits est schématisée sur la figure II 6, ainsi que le domaine d'existence en température de la phase nématique et la composition du E7 {250} .

La très grande stabilité thermique et chimique de ce type de produit est nécessaire dans les dispositifs d'affichage ; les constantes physiques des biphényles ont été rapidement mesurées, et en particulier les constantes électro-optiques. Il nous a paru souhaitable d'utiliser ces cristaux liquides plutôt que

le MBBA qui, bien que très employé dans les expériences de physique, et encore maintenant, est chimiquement trop instable.

On trouvera dans les tableaux I et II les principales valeurs des constantes physiques du K18. La référence {251} concerne nos propres mesures, effectuées par la technique de l'angle d'incidence limite décrite dans le chapitre précédent.

De même, le tableau III met en évidence les constantes physiques du E7, telle qu'on peut les trouver dans la littérature. La disparité observée sur les valeurs des constantes élastiques souligne la difficulté à mesurer de telles constantes.

$T_{CN} (^{\circ}C)$	$T_{NI} (^{\circ}C)$	$T (^{\circ}C)$	ρ	$\epsilon_{//}$	ϵ_{\perp}	référence
14,5	29,4	22	1,015	16,7	6,9	{252}
13,5	29	20		16	6	{253}
13,8	28,8	25	1,012			{254}
	28,6	22,5	1,015			{251}

Tableau I : Constantes physiques du K 18

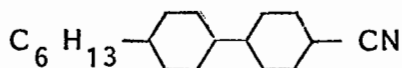
$T (^{\circ}C)$	n_o	n_e	$T (^{\circ}C)$	n_o	n_e
20,4	1,531	1,684	19,7	1,5314	1,6870
20,7	1,531	1,684	20,4	1,5321	1,6850
22,5	1,533	1,679	21,4	1,5328	1,6822
23,4	1,534	1,675	22,5	1,5338	1,6786
25,4	1,537	1,666	23,6	1,5347	1,6750
26,3	1,538	1,663	24,6	1,5357	1,6707
26,9	1,539	1,659	26,2	1,5384	1,6629
27,5	1,541	1,654	27,2	1,5428	1,6555
référence {254}			référence {251}		

Tableau II : Indices de réfraction du K 18 en fonction de la température et pour $\lambda = 6328 \text{ \AA}$

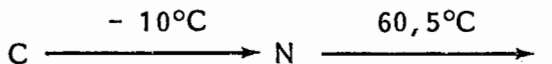
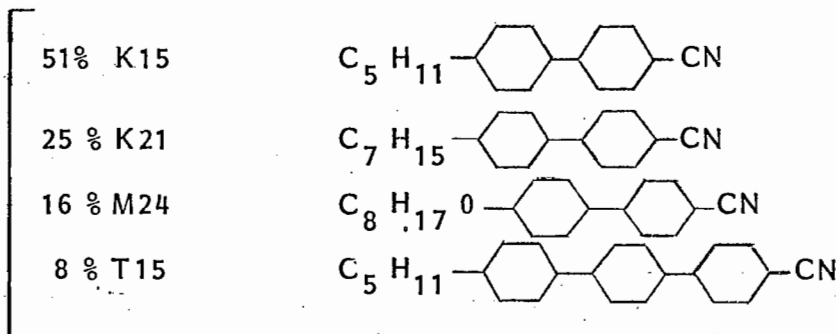
T(°C)	$\epsilon_{//}$	ϵ_{\perp}	K_1 ($\times 10^{-7}$ dynes)	K_2 ($\times 10^{-7}$ dynes)	K_3 ($\times 10^{-7}$ dynes)	référence
20	19,54	5,17	11,7	8,8	19,5	{250}
30	18,98	5,43	10,1	7,3	16,2	
20	19,7	5,3	10,7	5	14	{255}
			10,7	10	20,7	{256}

Tableau III : Constantes physiques du E7

K18



E7



K 15 = 5 CB = 4- cyano- 4' - n pentylbiphényl
 K 18 = 6 CB = 4- cyano- 4' - n hexylbiphényl
 K 21 = 7 CB = 4- cyano- 4' - n heptylbiphényl
 M 24 = 80CB = 4- cyano- 4' - n octoxybiphényl
 T 15 = 5 CT = 4- cyano- 4'' - n pentyl-p terphényl

Figure II 6 : Cristaux liquides utilisés (données BDH)

CHAPITRE III

ÉCOULEMENT DE POISEUILLE DANS UN FILM MINCE NEMATIQUE :
ÉTUDE THÉORIQUE ET EXPÉRIMENTALE

Ce chapitre est consacré à l'étude de l'écoulement de Poiseuille plan d'un cristal liquide en phase nématique, par une méthode optique qui utilise les propriétés d'une onde plane électromagnétique se propageant dans un milieu anisotrope, inhomogène et légèrement diffusant. Après le calcul théorique de la déformation du directeur, basé sur les équations de la "nématodynamique", et la modélisation optique de cette déformation, nous analyserons les résultats expérimentaux et les comparerons au modèle proposé, en essayant de dégager l'originalité de la méthode, dans le cadre plus général de l'étude des milieux inhomogènes.

III A - FORMULATION HYDRODYNAMIQUE DE L'ÉCOULEMENT DE POISEUILLE
PLAN D'UN CRISTAL LIQUIDE EN PHASE NEMATIQUE

Un écoulement de Poiseuille plan est l'écoulement laminaire d'un fluide visqueux entre deux parois planes et parallèles. Il est tel que l'on peut définir en chaque point un gradient de vitesses et n'est donc pas turbulent. Pour un fluide visqueux classique, l'équation de Navier-Stokes associée aux conditions aux limites permet de déterminer la vitesse de ce fluide en tout point de l'espace [301].

Pour un cristal liquide en phase nématique, les équations sont beaucoup plus compliquées et il faut faire intervenir les équations de la "nématodynamique". Cette difficulté provient du fait que l'écoulement perturbe l'alignement du directeur et qu'il existe un couplage entre orientation du directeur et écoulement. Pour la résolution de notre problème, nous avons adopté le formalisme classique décrit par P.G. de Gennes [205] à partir des travaux effectués par J.L. Eriksen [210], F.M. Leslie [211] et O. Parodi [212] (théorie ELP). Sans entrer dans le détail, de cette théorie, rappelons quelques résultats importants et spécifiques de l'hydrodynamique des nématiques.

En plus de la pression hydrostatique p et de la vitesse du fluide $\vec{V}(v_x, v_y, v_z)$, on doit tenir compte de l'orientation du directeur $\vec{n}(n_x, n_y, n_z)$.

Les équations de l'hydrodynamique conduisent à définir un tenseur des contraintes $||\sigma'_{\alpha\beta}||$ ($\alpha, \beta = x, y, z$), assez compliqué et de forme asymétrique, ainsi qu'un champ moléculaire \vec{h}_V , définis par des relations de la forme :

$$\sigma'_{\alpha\beta} = f(\alpha_i, n_j, A_{k\ell}, N_m) \quad (III.1)$$

$$k_{V\mu} = g(\alpha_i, n_j, A_{k\ell}, N_m) \quad , \mu = x, y, z \quad (III.2)$$

Donnons la signification de ces nouveaux paramètres :

- α_i ($i = 1, 2, 3, 4, 5, 6$) sont les coefficients de Leslie ; ils ont la dimension d'une viscosité et peuvent être réduits à 5 coefficients indépendants grâce à la relation de Parodi : $\alpha_2 + \alpha_3 = \alpha_6 - \alpha_5$.

- n_j ($j = x, y, z$) sont les composantes du directeur, liées par la relation : $n_x^2 + n_y^2 + n_z^2 = 1$.

- $A_{k\ell} = \frac{1}{2} (\partial_k V_\ell + \partial_\ell V_k)$ avec : $k, \ell = x, y, z$

- N_m ($m = x, y, z$) sont les composantes du vecteur : $\vec{N} = \frac{d\vec{n}}{dt} - \frac{1}{2} (\vec{\text{rot}}V \wedge \vec{n})$.

Les termes $A_{k\ell}$ et N_m proviennent de la décomposition du tenseur des gradients de vitesse $||\partial_\alpha V_\beta||$ ($\alpha, \beta = x, y, z$) en partie symétrique (écoulement irrotationnel) et antisymétrique (écoulement rotationnel).

A l'équilibre, \vec{n} et \vec{h}_V sont colinéaires. Hors d'équilibre, il existe un couple $\vec{\Gamma}_V$ d'origine visqueuse qui s'exerce en tout point du fluide :

$$\vec{\Gamma}_V = \vec{n} \wedge \vec{h}_V$$

Par définition, la composante $\sigma'_{\alpha\beta}$ du tenseur des contraintes représente la force visqueuse, par unité de surface, exercée suivant β sur un plan perpendiculaire à α . La viscosité effective η est alors :

$$\eta = \frac{\sigma'_{\alpha\beta}}{2A_{\alpha\beta}} \quad (III.3)$$

Considérons maintenant l'écoulement de Poiseuille plan d'un cristal liquide en phase nématique (figure III 1). La géométrie du système étant relativement simple, on peut calculer les différentes composantes du tenseur des contraintes ainsi que les couples qui s'exercent sur les molécules en chaque point du fluide (Annexe A 3). L'équilibre dynamique est obtenu lorsque les forces d'origine visqueuse compensent exactement les forces d'origine élastique, ce qui se traduit par la relation :

$$\vec{\Gamma}_v + \vec{\Gamma}_e = \vec{0} \quad (III.4)$$

ou encore :

$$\begin{aligned} (\alpha_2 \cos^2 \theta - \alpha_3 \sin^2 \theta) \partial_z v_x + (K_1 \sin^2 \theta + K_3 \cos^2 \theta) \partial_z^2 \theta \\ + (K_1 - K_3) \sin \theta \cos \theta (\partial_z \theta)^2 = 0 \end{aligned} \quad (III.5)$$

$\vec{\Gamma}_e$ représente ici le couple d'origine élastique qui s'exerce sur les molécules et s'exprime en fonction de la désorientation et des constantes élastiques de Frank (Annexe A 3).

D'autre part, l'équation de Navier-Stokes, projetée sur l'axe Ox, donne la relation suivante :

$$\nabla_x p = \eta \Delta v_x \quad (III.6)$$

La viscosité dépend ici de l'orientation des molécules dans l'écoulement ; pour simplifier, nous supposerons que le nématique est initialement homéotrope et que les désorientations restent faibles, ce qui conduit à négliger certains termes dans l'expression (III.5) et à écrire :

$$\alpha_2 (\partial_z v_x) + K_3 (\partial_z^2 \theta) = 0 \quad (III.7)$$

$$\nabla_x p = \eta_c (\partial_z^2 v_x) \quad (III.8)$$

où : $\eta_c = \frac{1}{2} (\alpha_4 + \alpha_5 - \alpha_2)$.

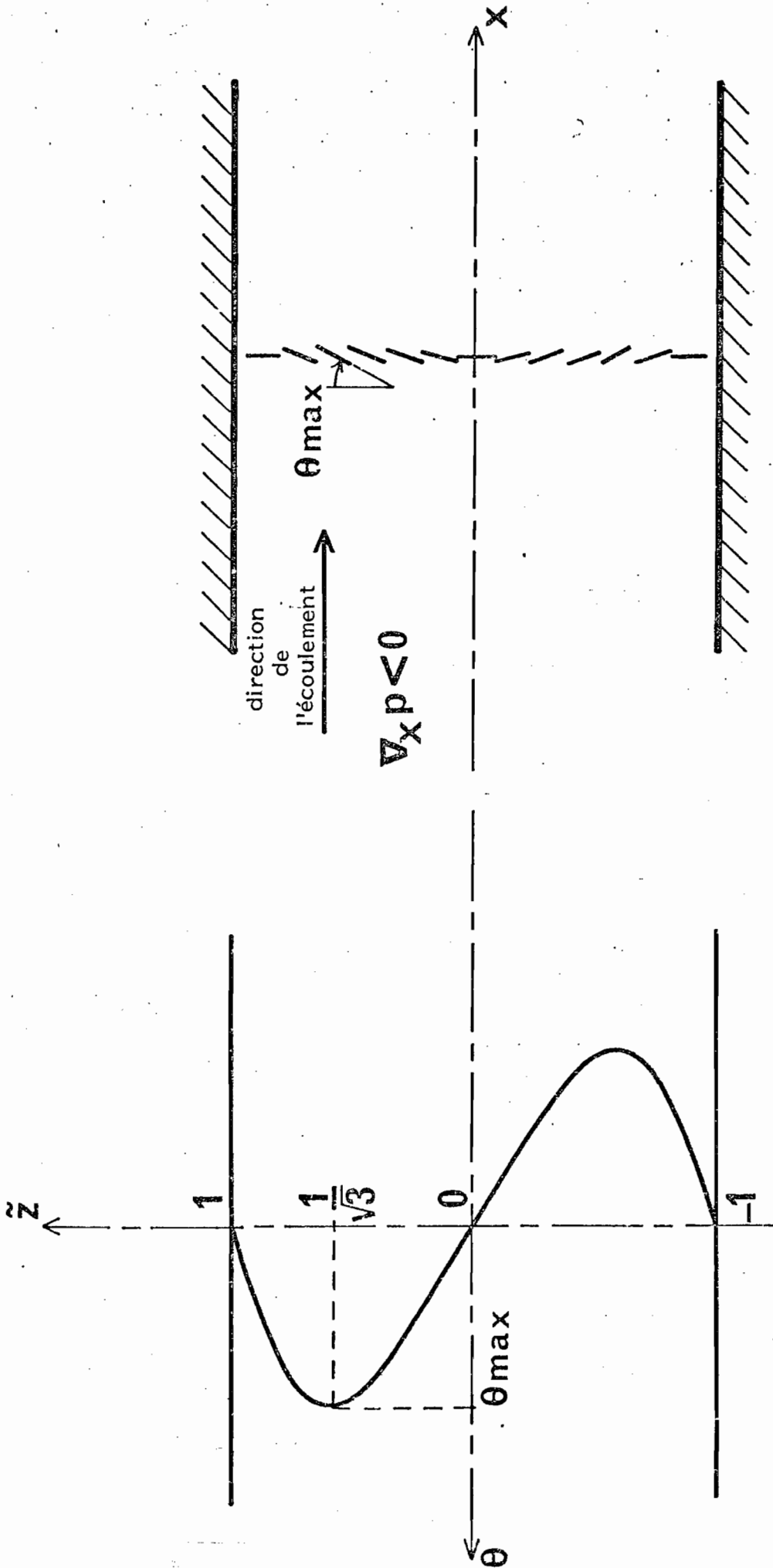


Figure III 1 : Profil de déformation du directeur dans la cellule de cristal liquide pour un écoulement de Poiseuille plan ($z = 2z/e$ représente la coordonnée réduite, où e est l'épaisseur de l'échantillon).

Nous supposons également un ancrage fort, ce qui impose les conditions aux limites suivantes :

$$\theta(\text{parois}) = 0$$

Soit e l'épaisseur de la cellule nématique et \tilde{z} la coordonnée réduite suivant Oz ($\tilde{z} = 2z/e$; $-1 \leq \tilde{z} \leq 1$). D'après (III.8) il vient :

$$v_x(\tilde{z}) = \frac{(-\nabla_x p)e^2}{8\eta_c} (1 - \tilde{z}^2) \quad (\text{III.9})$$

Et d'après (III.7) et (III.9) :

$$\theta(\tilde{z}) = -\frac{3\sqrt{3}}{2} \theta_{\max} \tilde{z} (\tilde{z}^2 - 1) \quad (\text{III.10})$$

où $\theta_{\max} = \frac{(\nabla_x p) \alpha_2 e^3}{72\sqrt{3} \eta_c K_3}$, qui est l'angle de déformation maximale. Soit

maintenant L la longueur de la cellule ; à chaque extrémité de cette cellule se trouve un réservoir contenant le cristal liquide, la différence de niveau Δh entre ces deux réservoirs fixant ainsi le gradient de pression vertical ; le fluide étant incompressible, c'est aussi le gradient de pression horizontal et nous pouvons écrire :

$$\nabla_x p = \nabla_z p = -\frac{\rho g}{L} \Delta h \quad (\text{III.11})$$

où ρ est la masse volumique du cristal liquide et g la constante de gravitation. D'après cette dernière relation, on obtient aussi :

$$\theta_{\max} = -\frac{\rho g e^3 \alpha_2 \Delta h}{72 \sqrt{3} \eta_c K_3 L} \quad (\text{III.12})$$

Pour $\alpha_2 < 0$ et $\nabla_x p < 0$, on obtient $\theta_{\max} > 0$; la géométrie de la déformation est ainsi schématisée sur la figure III 1 . En prenant : $e = 100 \mu\text{m}$, $K \sim 10^{-6}$ dynes, $\rho \sim 1 \text{ g/cm}^3$, $L = 4 \text{ cm}$, $\Delta h = 1 \text{ mm}$ H_2O et $|\alpha_2/\eta_c| \sim 1$, on obtient :

$$\theta_{\max} \sim 11^\circ$$

Nous verrons dans la suite de ce chapitre que les désorientations peuvent atteindre plusieurs dizaines de degrés. L'équation approchée (III.7) reste néanmoins valable si l'on suppose les constantes élastiques très voisines : $K_1 \sim K_3 = K$ (approximation à une constante). Pour le premier terme de l'équation (III.5), on peut considérer le terme en α_3 comme négligeable, des expériences ayant montré que $|\alpha_2/\alpha_3| \gg 1$ {302, 303}. L'hypothèse la plus contestable concerne la valeur de la viscosité effective η , qui oscille entre deux valeurs correspondant à $\theta = 0$ (viscosité η_c) et $\theta = \frac{\pi}{2}$ (viscosité η_b) ; on montre en effet que pour le M.B.B.A., $\eta_b/\eta_c \sim 1/4$. Nous discuterons dans le paragraphe III D la validité d'une telle approximation.

III B - ANALYSE OPTIQUE DE LA DEFORMATION DU DIRECTEUR

Nous avons vu dans le premier chapitre que l'étude d'un matériau anisotrope et inhomogène, en incidence oblique et au voisinage des conditions de réflexion totale, permettrait une analyse très fine de la désorientation de l'axe optique, en particulier dans le cas où le gradient d'indice effectif était négatif. L'écoulement de Poiseuille d'un nématique nous fournit ici l'exemple typique d'une telle analyse. Prenons en effet le modèle décrit dans le paragraphe précédent, qui aboutit à une désorientation schématisée sur la figure III 1 ; notons que la cote correspondant à la déformation maximale ne dépend que de l'épaisseur de l'échantillon :

$$\gamma(\theta_{\max}) = \pm 1/\sqrt{3}$$

Si l'on examine les conditions de propagation d'une onde plane électromagnétique à travers le milieu déformé on constate, comme dans le paragraphe I A 2 c, que l'existence de cette propagation dépend de l'angle d'incidence sur la couche. On peut ainsi distinguer 3 cas, schématisés sur la figure III 2, suivant les valeurs de l'angle d'incidence i par rapport aux angles limites i_ℓ et i_m définis par les relations suivantes :

$$n_i \sin i_\ell = n_e$$

$$n_i \sin i_m = (n_o^2 \sin^2 \theta_{\max} + n_e^2 \cos^2 \theta_{\max})^{1/2}$$

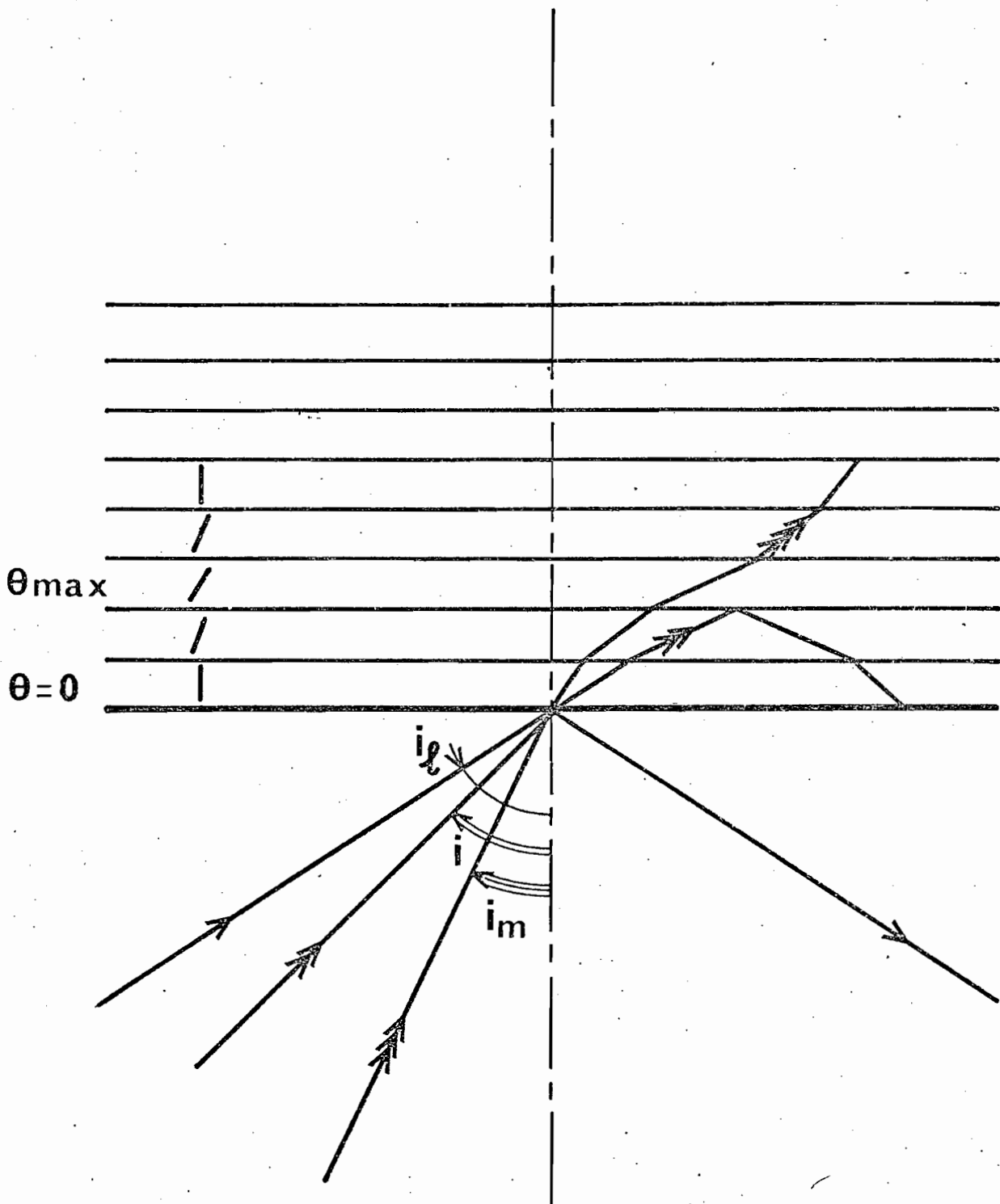


Figure III 2 : Représentation schématique des angles d'incidence limite i_l et i_m .

- (1) $i > i_{\lambda e}$: réflexion totale sur toute la couche.
- (2) $i_{\lambda e} > i > i_m$: si l'on découpe le milieu en une série de couches très minces, comme nous l'avons suggéré dans le premier chapitre, l'onde peut se propager dans les premières couches mais se trouvera en réflexion totale sur les couches situées immédiatement au-dessus, et dont l'indice effectif est inférieur à $n_i \sin i$ défini par la relation

$$n_i \sin i = (n_o^2 \sin^2 \theta + n_e^2 \cos^2 \theta)^{1/2}$$

- (3) $i < i_m$: propagation et transmission de l'onde dans l'ensemble de la couche anisotrope.

Remarquons que le cas (2) correspond tout à fait à un *effet mirage*, le gradient d'indice étant ici induit par la désorientation de l'axe optique du milieu. D'autre part, il existe une correspondance étroite entre i , θ et z , qui suggère la *possibilité de sonder le milieu à des cotes différentes par un simple balayage angulaire*.

Comme nous l'avons déjà montré, la mise en évidence de cet effet mirage par les courbes de réflectivité n'est possible que si l'on introduit une légère *atténuation* dans la propagation de l'onde par l'intermédiaire du coefficient χ , qui est la partie imaginaire de l'indice de réfraction complexe du milieu. Prenons typiquement une couche anisotrope d'épaisseur $e = 100 \lambda$ comprise entre 2 milieux semi-infinis d'indice 1,9 ; pour $n_o = 1,5$ et $n_e = 1,7$ nous avons : $i_{\lambda o} = 52,14$ degrés et $i_{\lambda e} = 63,47$ degrés. La cote correspondant à θ_{\max} se trouve à une distance de l'interface égale à $21,13 \lambda$ (environ $12 \mu\text{m}$). Le tableau suivant donne les valeurs de l'angle i_m ainsi que l'indice effectif n_{eff} en fonction de la désorientation maximale θ_{\max} :

θ_{\max}	0	10	20	30	40	50	60	70	80	90
n_{eff}	1,7	1,6943	1,6778	1,6523	1,6204	1,5857	1,5524	1,5248	1,5064	1,5
i_m (degrés)	63,47	63,09	62,02	60,41	58,52	56,57	54,79	53,37	52,45	52,14

Les courbes de réflectivité des figures III 3 , III 4 et III 5 ont été tracées en fonction de l'angle d'incidence pour 3 valeurs du coefficient χ (10^{-4} , 10^{-3} et 10^{-2}), pour des valeurs de θ_{\max} respectivement égales à 10 degrés, 30 degrés et 50 degrés. Les résultats obtenus nous suggèrent les commentaires suivants :

- la distinction entre les 3 zones précédemment décrites est particulièrement nette (sauf lorsque $\chi = 10^{-2}$).
- la position des franges observées dans la zone $i_m < i < i_{\ell e}$ ne dépend pas de χ .
- l'intensité des maxima et minima de ces franges dépend de χ ; il apparaît une valeur critique de χ (χ_c , voisine de 10^{-3}) pour laquelle la profondeur de modulation γ est maximale, où γ peut être défini localement par une relation de la forme : $\gamma = (R_{\max} - R_{\min}) / (R_{\max} + R_{\min})$.
- lorsqu'on se rapproche de $i_{\ell e}$, γ augmente, l'effet étant particulièrement visible pour $\theta_{\max} = 50$ degrés ; cela correspond au fait que l'épaisseur de la zone intermédiaire, où la propagation de l'onde est possible, est de plus en plus faible ; le trajet optique est alors plus court, et l'onde moins atténuée.

Il est remarquable de constater que la présence d'une atténuation dans la propagation de l'onde, ni trop forte, ni trop faible, "révèle" le profil de désorientation, ou, ce qui revient au même, le gradient d'indice effectif du milieu. On peut donc tester la validité du modèle décrivant ce profil en comparant la courbe de réflectivité expérimentale et celle, toute théorique, obtenue en injectant ce modèle dans le calcul.

D'une manière plus générale, il est intéressant de remonter au profil théorique à partir d'une courbe expérimentale ; le problème peut malheureusement comporter plusieurs solutions, car c'est un exemple typique de problème inverse. La méthode ne se révélera donc utile que dans des cas simples, où le nombre de paramètres définissant le profil n'est pas trop élevé, comme par exemple l'écoulement de Poiseuille décrit par la relation (III.10).

D'autre part, il nous a semblé instructif de comparer deux profils de déformation voisins, afin de se rendre compte des limitations de la méthode.

Figure III 3 : Courbes théoriques de la réflectivité en fonction de l'incidence pour un écoulement de Poiseuille plan ($\theta_{\max} = 10$ degrés) pour différentes valeurs du coefficient d'atténuation χ ; paramètres expérimentaux : $e = 100 \lambda$; $n_i = 1,9$; $n_o = 1,5$; $n_e = 1,7$

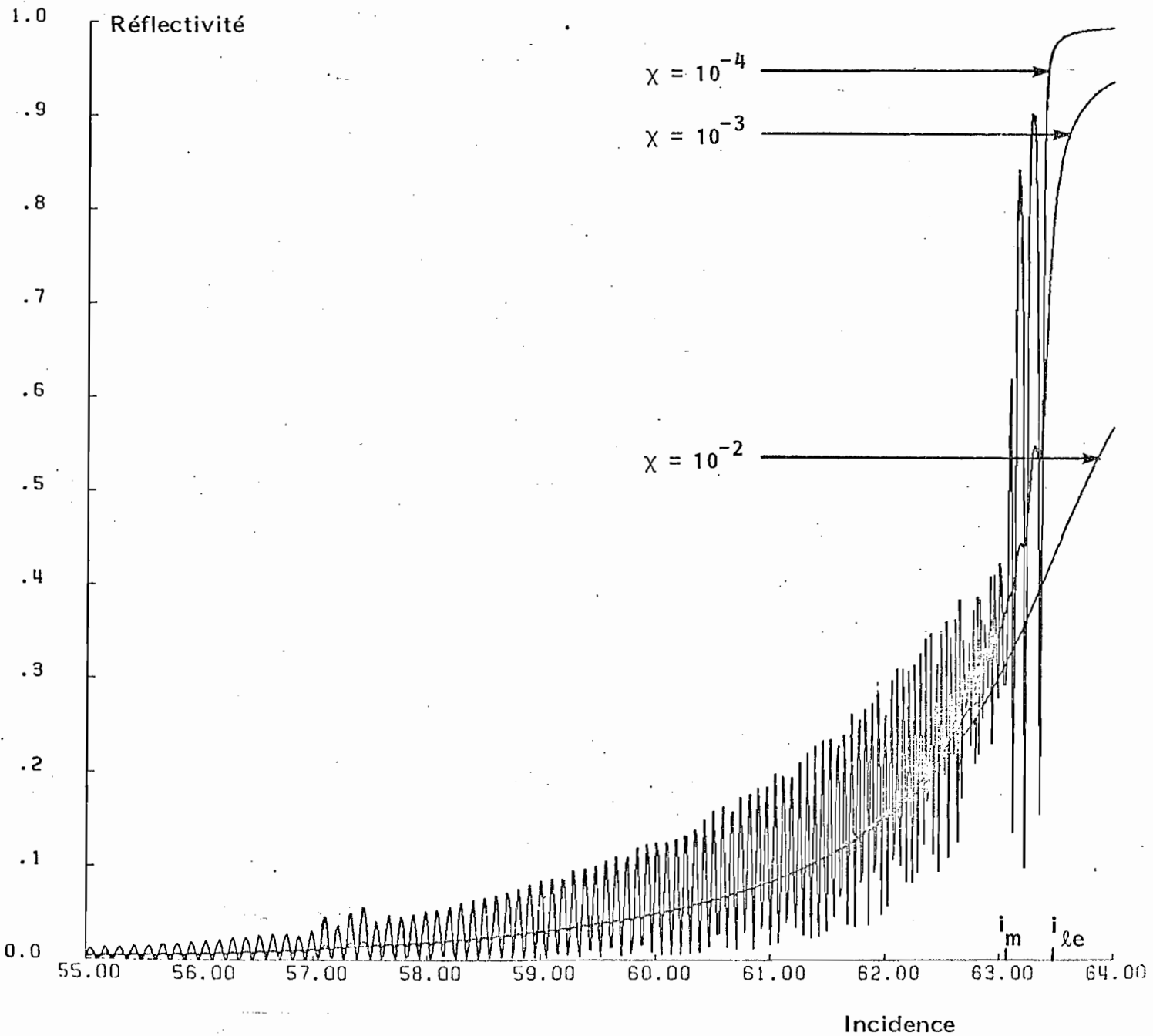


Figure III 4 : Courbes théoriques de la réflectivité en fonction de l'incidence pour un écoulement de Poiseuille plan ($\theta_{\max} = 30$ degrés) pour différentes valeurs du coefficient d'atténuation χ ; paramètres expérimentaux : $e = 100\lambda$; $n_i = 1,9$; $n_o = 1,5$; $n_e = 1,7$

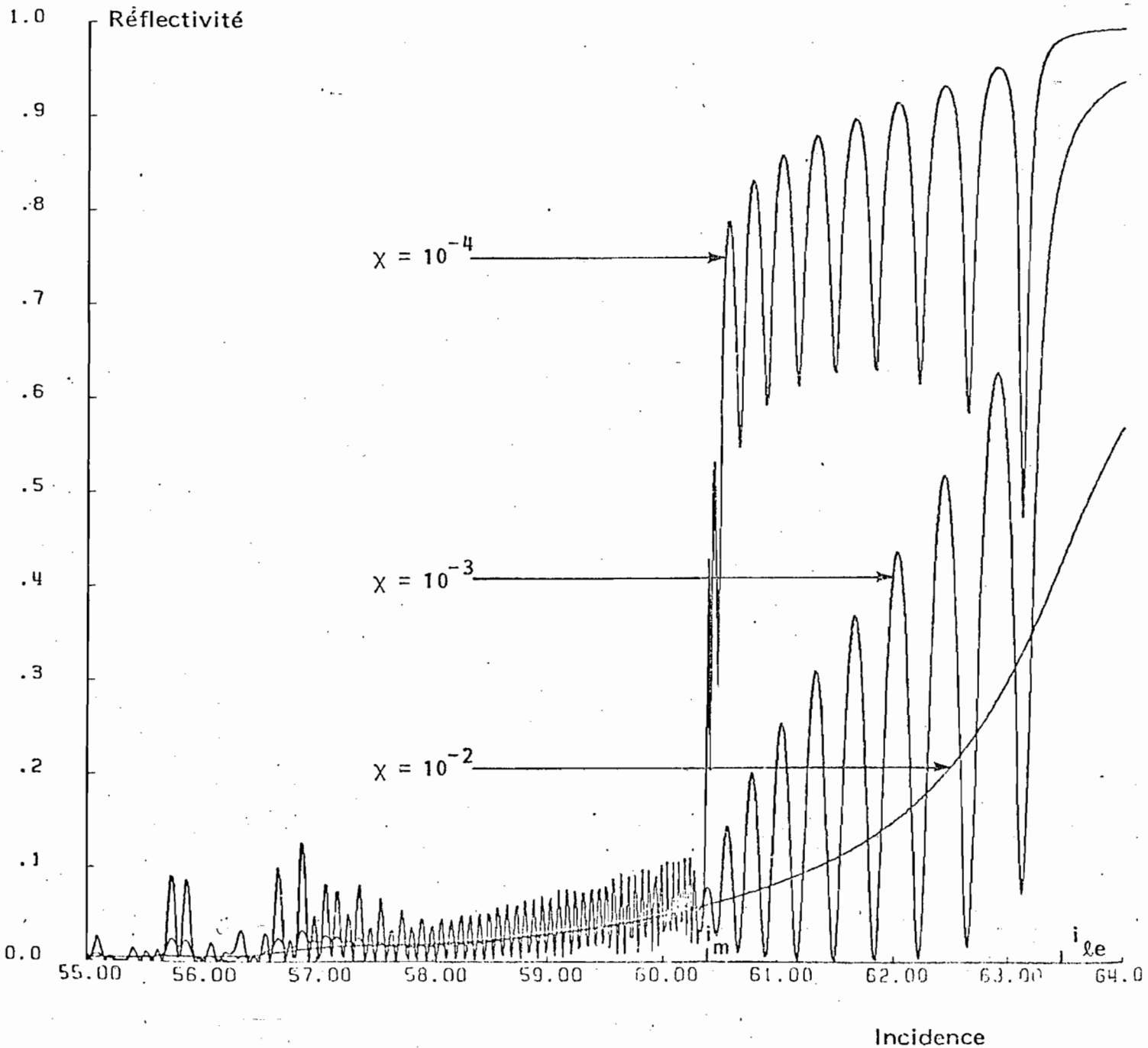
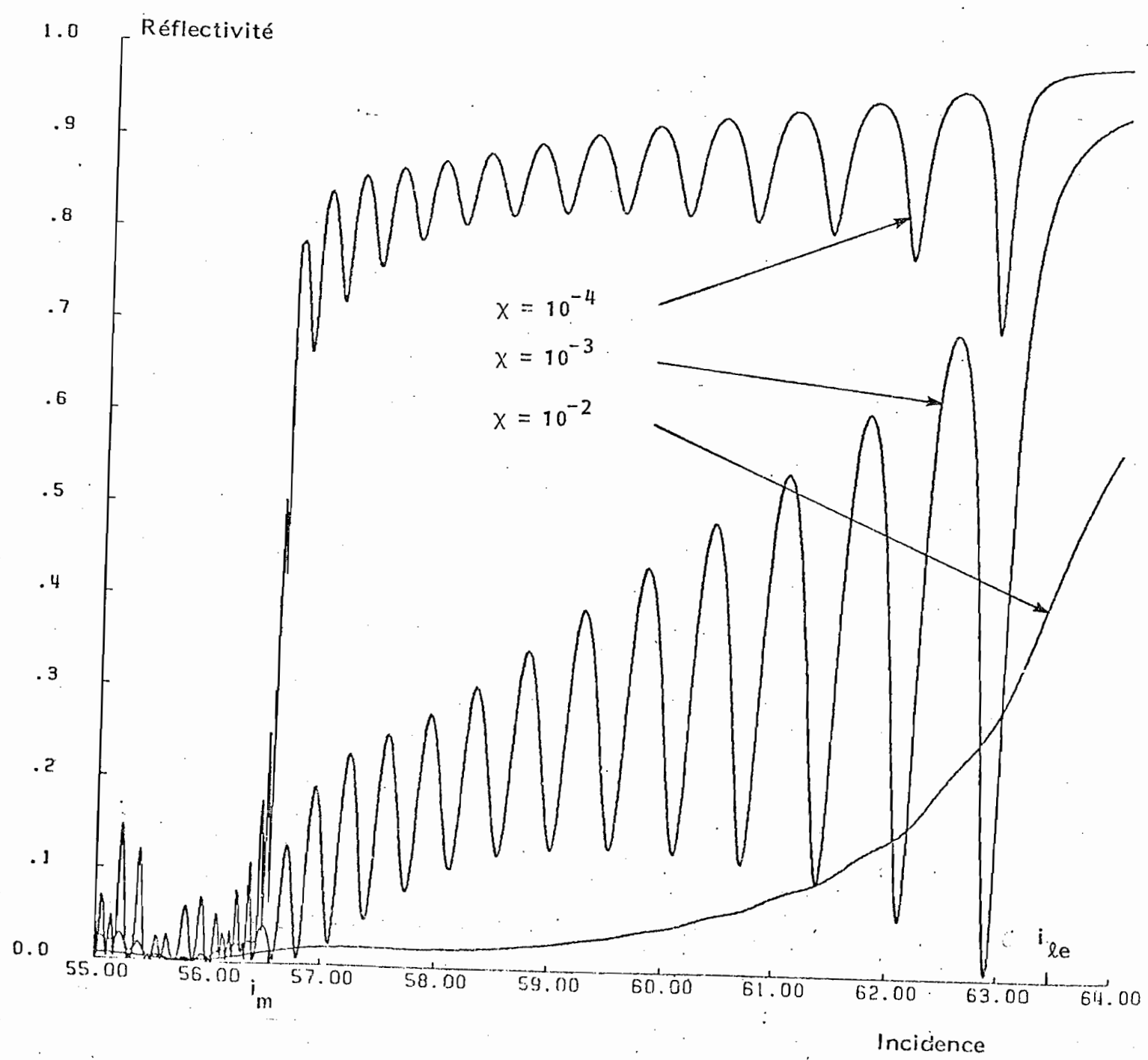
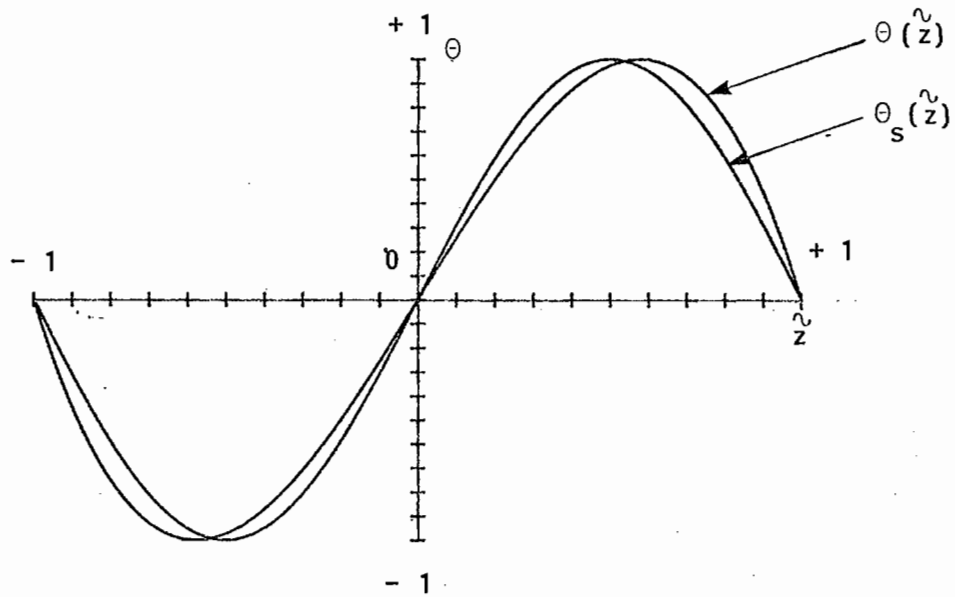


Figure III 5 : Courbes théoriques de la réflectivité en fonction de l'incidence pour un écoulement de Poiseuille plan ($\theta_{\max} = 50$ degrés) pour différentes valeurs du coefficient d'atténuation χ ; paramètres expérimentaux : $e = 100\lambda$; $n_i = 1,9$; $n_o = 1,5$; $n_e = 1,7$



C'est ainsi que nous avons choisi le profil défini par la relation (III.10) et un profil sinusoïdal de la forme :

$$\theta_s(\tilde{z}) = \theta_{\max} \sin(\pi \tilde{z}) \quad (III.13)$$



Nous avons résumé dans le tableau suivant les valeurs de l'angle θ et de la pente θ' pour quelques valeurs particulières de la coordonnée réduite \tilde{z} et pour les deux profils étudiés ; on observe que les différences sont surtout sensibles près des maxima de θ et θ_s , et que le gradient de désorientation est plus faible dans le cas sinusoïdal au voisinage des interfaces ($\tilde{z} = \pm 1$).

\tilde{z}	0	1/4	1/2	1/√3	3/4	1
$\theta(\tilde{z})/\theta_{\max}$	0	0,61	0,97	0	0,85	0
$\theta_s(\tilde{z})/\theta_{\max}$	0	0,71	1	0,97	0,71	0
$\theta'(\tilde{z})/\theta_{\max}$	2,60	2,11	0,65	0	-1,79	-5,20
$\theta'_s(\tilde{z})/\theta_{\max}$	3,14	2,22	0	-0,76	-2,22	-3,14

Figure III 6 : Courbes théoriques de la réflectivité en fonction de l'incidence pour différentes valeurs du coefficient d'atténuation χ ; profil de déformation du directeur de la forme :

$$\theta = - \theta_{\max} \frac{3\sqrt{3}}{2} \frac{z^{\sqrt{2}} - 1}{z^{\sqrt{2}} + 1}$$

($\theta_{\max} = 30$ degrés)

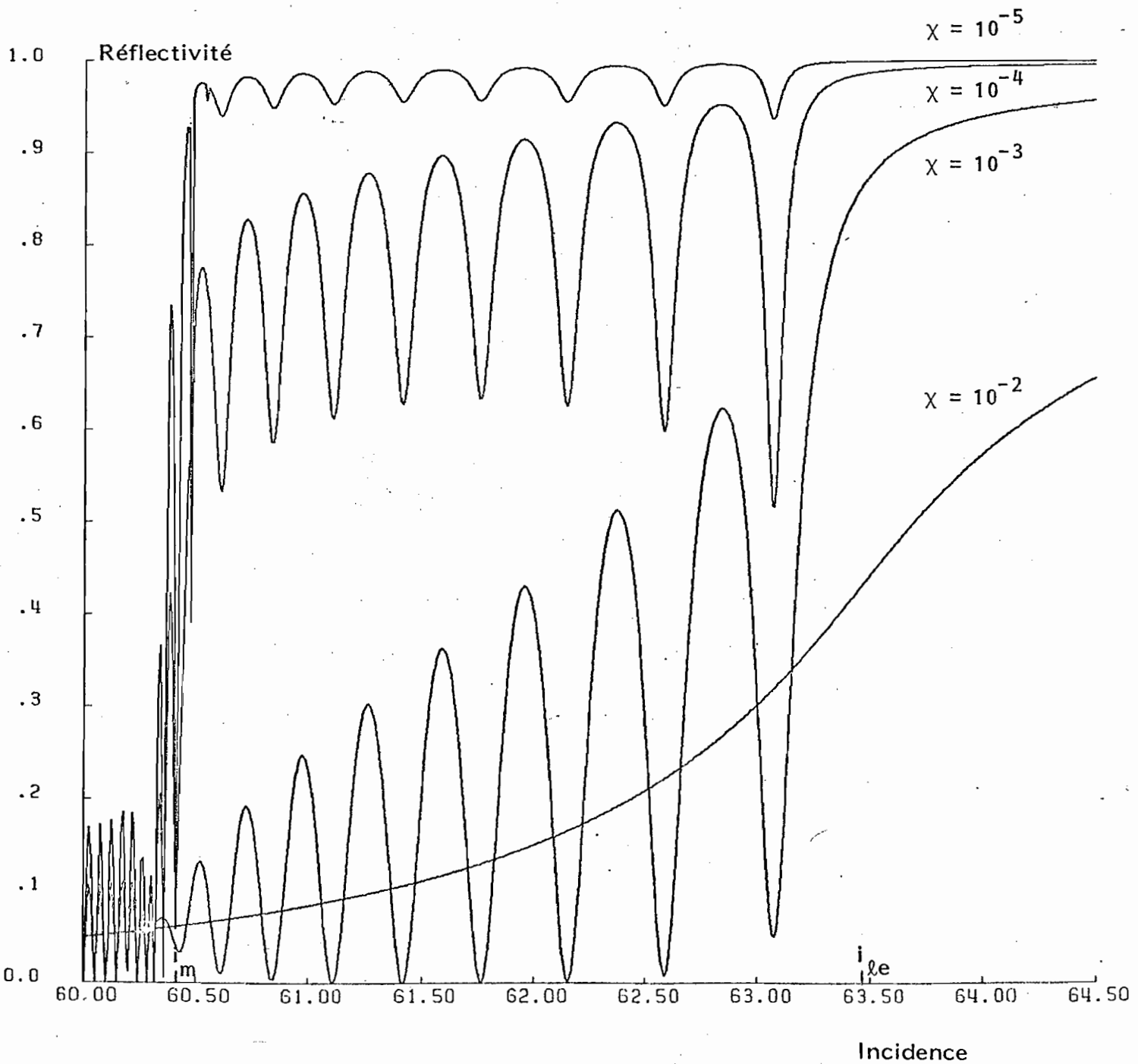
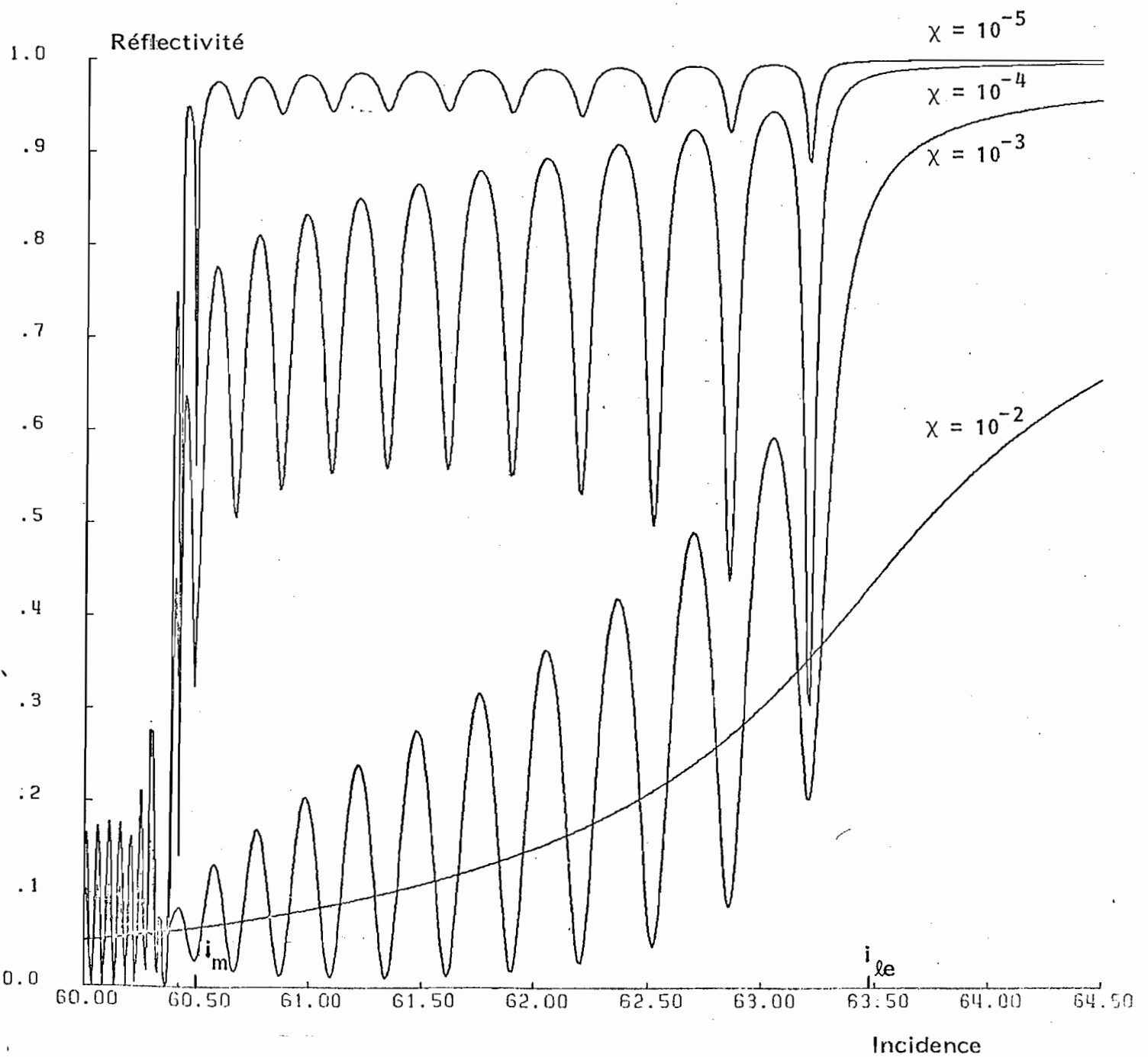


Figure III 7 : Courbes théoriques de la réflectivité en fonction de l'incidence pour différentes valeurs du coefficient d'atténuation χ ; profil de déformation du directeur de la forme :

$$\theta = \theta_{\max} \sin(\pi \frac{z}{\lambda})$$

($\theta_{\max} = 30$ degrés)



L'allure du coefficient de réflexion en fonction de l'angle d'incidence obtenu dans les deux cas montre bien que la position angulaire des minima et des maxima d'intensité dépend du profil de désorientation (figures III 6 et III 7). Le nombre, la position et l'écartement des franges sont autant de paramètres qui traduisent la forme du profil analysé.

Il nous reste maintenant à aborder la partie expérimentale de ce travail, où nous montrerons que les courbes expérimentales sont en conformité avec les courbes théoriques, testant ainsi la validité du modèle proposé pour la déformation du directeur lors d'un écoulement de Poiseuille plan.

III C - REALISATION EXPERIMENTALE

III C 1 - Dispositif hydrodynamique et réalisation de la cellule d'écoulemen

La cellule de Poiseuille est constituée d'un prisme à réflexion totale et d'une lame, taillés dans un verre de haut indice (SCHOTT LaSFN 18), et séparés par des fils de tungstène calibrés qui délimitent la largeur de la cellule (figure III 8). Les surfaces optiques ont une planéité de $\lambda/10$ et une rugosité moyenne très faible, voisine de 7 \AA {304}. Elles ont été traitées à l'aide d'une solution de lécithine dans l'éthanol pur, assurant ainsi un ancrage homéotrope correct et bien reproductible. L'ensemble est scellé par une colle époxy dont la résistance aux attaques chimiques procure à la cellule une étanchéité durable. Une machine à ultrasons a été utilisée pour creuser, à chaque extrémité de la lame, un réservoir dont le volume est très supérieur à celui de la cellule elle-même (environ 10 fois) ; on délimite ainsi la longueur de la cellule L . Les dimensions du réservoir ont été choisies de manière à assurer un gradient de pression constant pendant la durée des mesures.

Le cristal liquide utilisé est le 6CB (cf. chapitre II) et le remplissage de la cellule s'effectue en phase isotrope. La bonne orientation du nématique se vérifie en observant les figures conoscopiques de la lame anisotrope ainsi formée (croix de Malte et anneaux concentriques) {305} . La conoscopie permet également de vérifier que l'écoulement s'effectue symétriquement par rapport au plan d'incidence : dans le cas contraire, il apparaît une dissymétrie dans la figure conoscopique qui peut être due à un léger coin d'épaisseur dont l'arête serait parallèle à l'axe $x'Ox$.

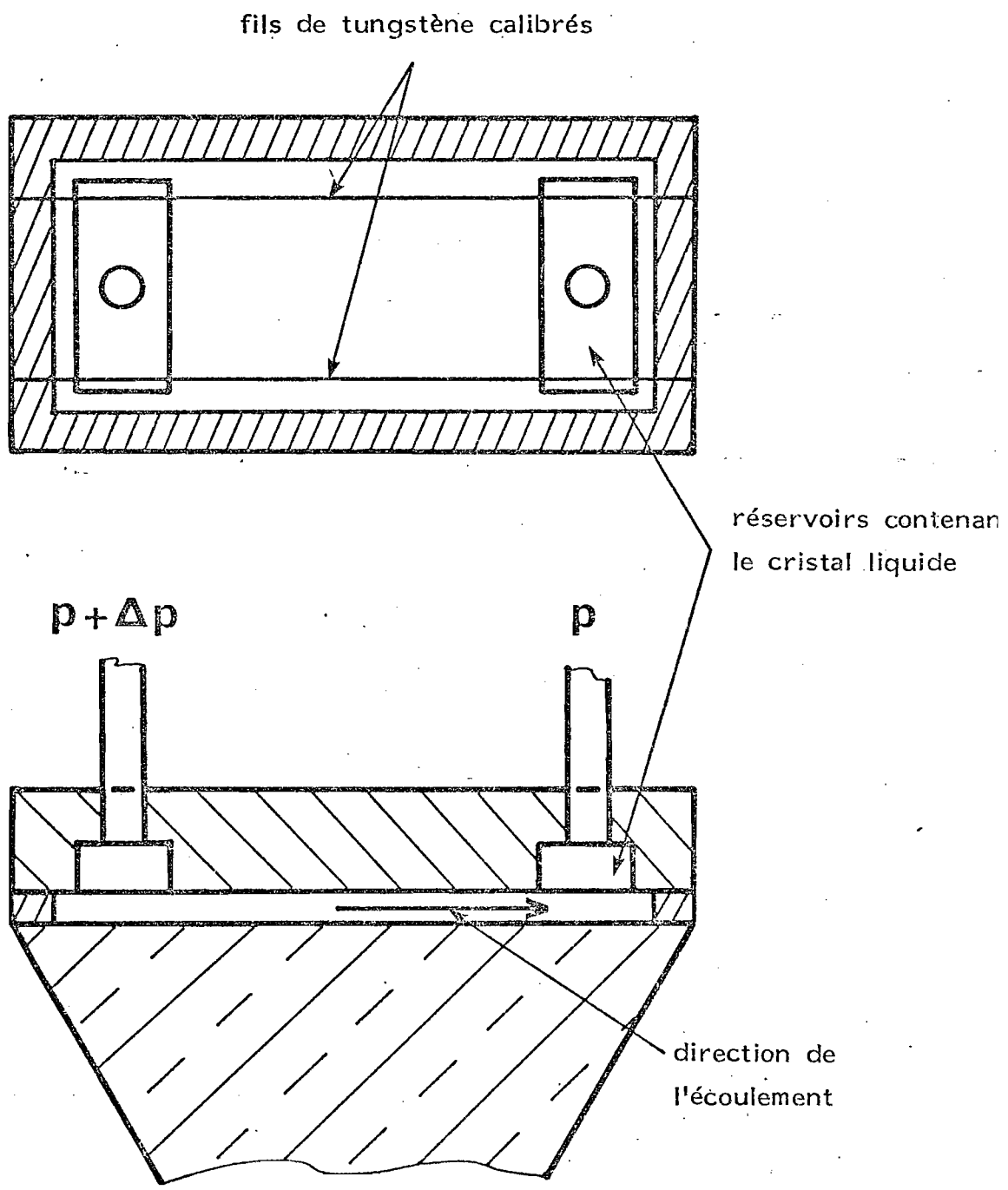


Figure III 8 : Schéma de la cellule d'écoulement
(Δp représente l'excédent de pression).

Pour réaliser l'excédent de pression Δp qui favorise l'écoulement du cristal liquide, nous avons mis en place un dispositif de régulation très semblable à celui utilisé par I. Janóssy, P. Pieranski et E. Guyon pour l'étude expérimentale des instabilités dans les nématiques [306] ; nous ne décrivons pas ce dispositif, qui est analysé en détail dans la thèse de P. Pieranski [307] . Dans les conditions de notre expérience, nous avons estimé l'incertitude sur la mesure de Δh égale à 0,25 mm d'eau, cette mesure étant effectuée à l'aide d'un manomètre à tube incliné Birkholz.

III C 2 - Dispositif optique et mesure des coefficients de réflexion

La partie optique du dispositif expérimental comprend tout d'abord un laser à argon ionisé Spectra-Physics (modèle 162-03), travaillant à la longueur d'onde $\lambda = 5145 \text{ \AA}$ et suivant le mode TEM_{00} (puissance maximale : 5 mW) ; le faisceau issu de ce laser a une structure gaussienne et sa divergence angulaire est de 3 minutes d'arc. Afin de réduire cette divergence au niveau de l'échantillon, il convient d'interposer une lentille convergente de focale convenable entre le laser et le prisme [103] ; le waist objet, confondu avec le miroir plan arrière de la cavité laser, et le waist image, situé au niveau de la cellule d'écoulement, sont ainsi conjugués. Au niveau de ces waists, l'onde est rigoureusement plane et sa polarisation parfaitement rectiligne ; en pratique, et malgré l'inclinaison du faisceau incident sur la couche nématique, on peut considérer que l'onde est quasi-plane et sa polarisation rectiligne sur tout l'échantillon. La divergence résiduelle est ainsi inférieure à une minute d'arc. Une lame demi-onde placée à la sortie du laser sur le faisceau permet d'obtenir la polarisation souhaitée (TE ou TM). Les mesures angulaires sont effectuées à l'aide d'un berceau goniométrique dont la précision absolue est d'une minute d'arc. L'intensité réfléchie par la couche nématique est mesurée à l'aide d'une PIN-photodiode UDT (modèle 10 DP) dont le photocourant, préalablement amplifié, est converti en tension puis lu sur un voltmètre. La précision absolue sur la mesure du coefficient de réflexion $R(i)$ est, dans cette expérience, égale à 0,01, sur toute la gamme s'étendant de 0 à 1.

Les mesures des indices de réfraction ordinaire et extraordinaire du 6CB ont été effectuées directement sur la cellule échantillon, en l'absence

d'écoulement et suivant la méthode de l'angle d'incidence limite ; à la température ambiante ($T = 20 \pm 0,5^\circ\text{C}$), nous avons obtenu pour $\lambda = 5145 \text{ \AA}$:

$$n_o = 1,544 \pm 0,001 \quad \text{et} \quad n_e = 1,709 \pm 0,001$$

Nous avons vérifié que ces valeurs étaient constantes pendant la durée des mesures. Malgré les fluctuations de la température ambiante et compte tenu de l'inertie thermique du système, on peut estimer que la variation de la température du cristal liquide reste inférieure à $0,3^\circ\text{C}$:

$$\Delta n / \Delta T \leq 3 \cdot 10^{-3} / ^\circ\text{C} \quad \rightarrow \quad \Delta n \leq 10^{-3} \quad \text{pour} \quad \Delta T \sim 0,3^\circ\text{C}$$

Pour la mesure de l'épaisseur de la couche, nous nous sommes placés en polarisation TE ; le milieu anisotrope se comporte alors comme un milieu isotrope d'indice n_o . Si l'on mesure le coefficient de réflexion quelques degrés avant l'angle d'incidence limite i_{lo} , on observe des franges d'interférence dont le nombre et l'espacement angulaire dépendent de l'épaisseur de la couche. On peut écrire pour chaque maximum d'intensité une relation de la forme :

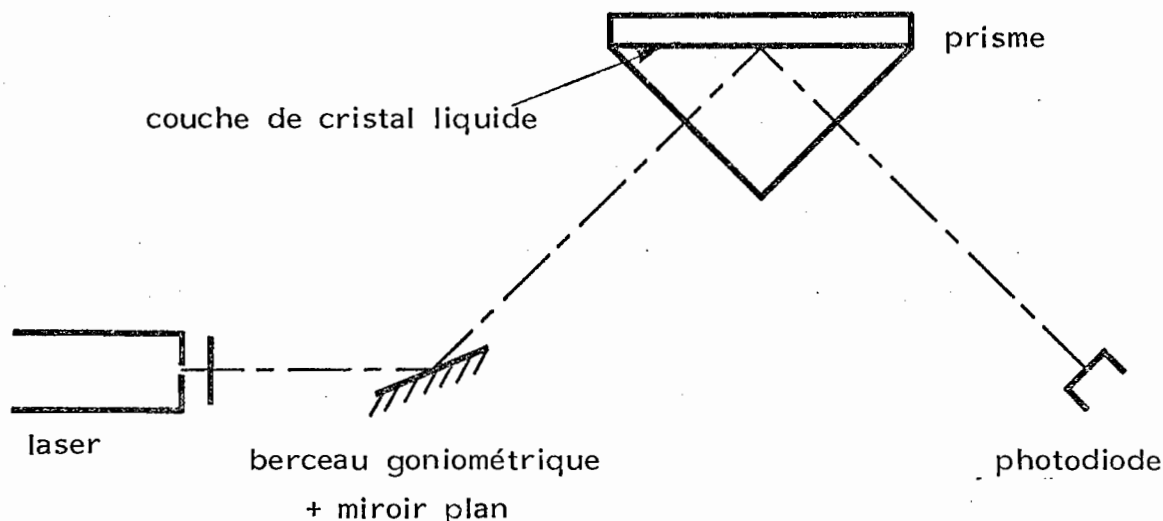
$$2n_i e \cos r_m = m \lambda + \phi \lambda / 2 \pi$$

où m est un entier relatif, ϕ la phase à la réflexion qui dépend des réfractions à chaque interface, et r_m l'angle de réfraction dans la couche. Pour une épaisseur d'une centaine de microns, les franges sont très serrées mais il est possible de les compter (au moins une vingtaine sont visibles). La variation angulaire étant très faible, on peut supposer ϕ constant ; si N_f désigne le nombre de franges on obtient alors :

$$e = \frac{N_f \lambda}{2n_i (\cos r_1 - \cos r_N)}$$

Pour la cellule correspondant à l'expérience décrite, nous avons obtenu :

$$e = 97 \pm 1 \text{ \mu m}$$



III D - RESULTATS EXPERIMENTAUX ET DISCUSSION

Nous avons mesuré le coefficient de réflexion en intensité en fonction de l'angle d'incidence pour différentes valeurs de l'excédent de pression Δh ; les résultats expérimentaux apparaissent sur la figure III 9 et pour quelques valeurs de Δh (0,1 et 2 mm d'eau). On remarquera la précision avec laquelle a pu être déterminé i_m , puis i_{le} , pour $\Delta h = 1$ mm d'eau :

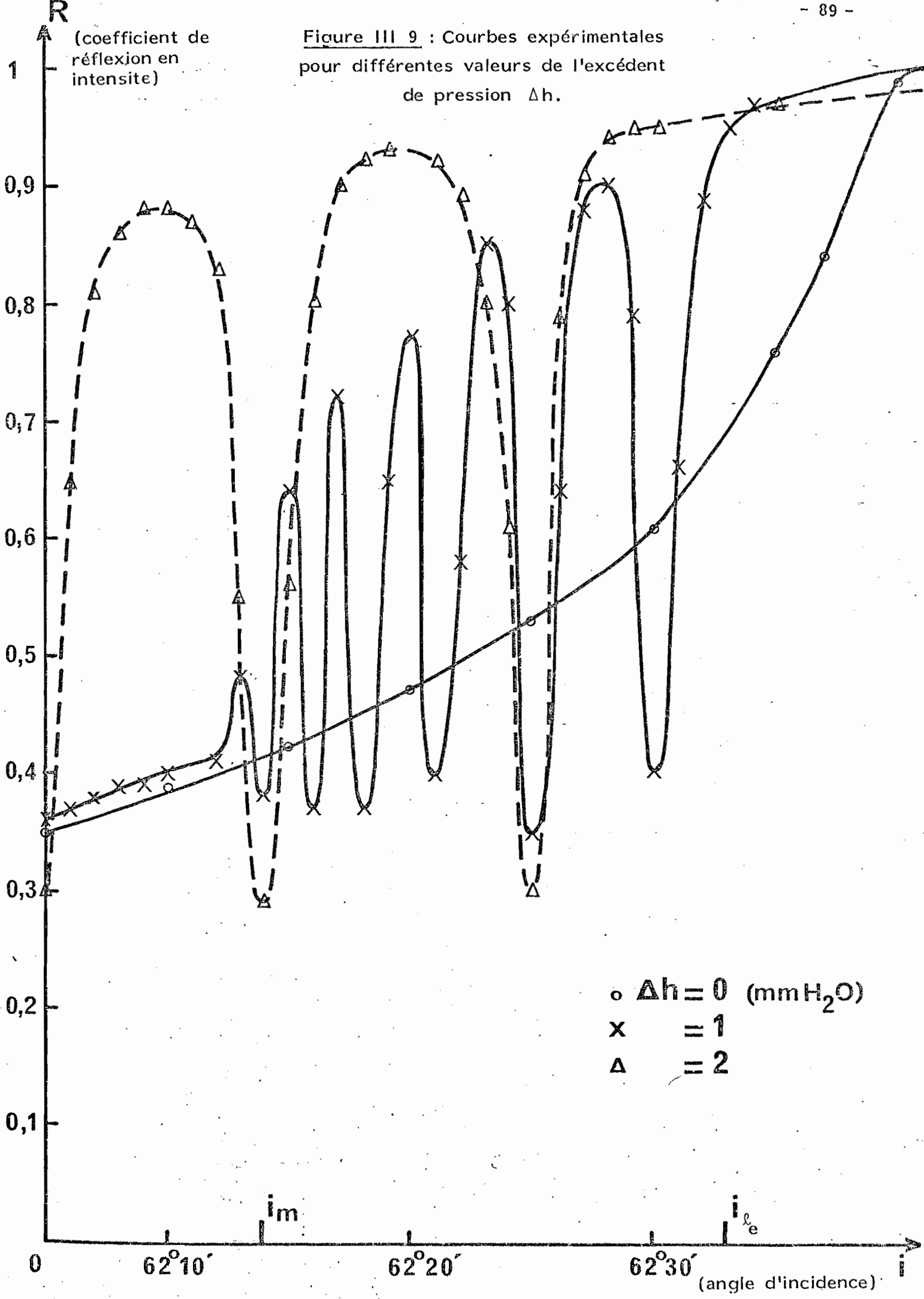
$$i_m = 62^\circ 14' \pm 1'$$

$$i_{le} = 62^\circ 33' \pm 1'$$

D'autre part, on observe qu'il n'apparaît aucune modulation sur la courbe de réflectivité lorsque $\Delta h = 0$; ceci est dû au fait que les franges, dont l'existence est prouvée par les calculs théoriques (cf. figure III 3), sont trop serrées pour être visibles sur la courbe, l'épaisseur de la couche nématique étant de $97 \mu\text{m}$.

Nous avons confronté ces résultats expérimentaux avec les calculs théoriques effectués d'après le modèle de déformation décrit dans le premier

Figure III 9 : Courbes expérimentales pour différentes valeurs de l'excédent de pression Δh .



chapitre. Dans notre exemple, la cote correspondant à la valeur maximale de la déformation (θ_{\max}) se trouve être égale à 20,5 μm . Pour $\Delta h = 1$ mm d'eau, nous avons ainsi obtenu un excellent accord en prenant les valeurs suivantes (figure III 10) :

$$\left\{ \begin{array}{l} n_o = 1,5442 \quad ; \quad \chi_o = 10^{-4} \\ n_e = 1,7084 \quad ; \quad \chi_e = 10^{-4} \\ e = 97 \mu\text{m} \\ n_i = 1,925 \\ \theta_{\max} = 10,3 \text{ degrés.} \end{array} \right.$$

On remarquera que les intensités minimales $R_{\min 1}$, $R_{\min 2}$, ... sont plus faibles en théorie qu'en pratique ; ceci est également un problème de "résolution" de franges, les conditions expérimentales ne permettant pas de séparer deux points dont la distance angulaire serait inférieure à une minute d'arc.

Dans le cas présent, nous pouvons estimer l'incertitude sur la valeur θ_{\max} égale à 0,3 degrés : $\theta_{\max} = 10,3 \pm 0,3$ degrés ; cette incertitude correspond à une variation d'indice effectif de $3 \cdot 10^{-4}$ et à une variation de l'angle d'incidence de deux minutes d'arc. Ces valeurs sont en mesure de rendre compte de la précision de la méthode utilisée pour analyser optiquement la distorsion du directeur induite par un écoulement de Poiseuille.

La conformité entre les résultats théoriques et expérimentaux concernant la position angulaire des franges observées prouve la validité du modèle proposé ; un profil sinusoïdal bien que très voisin, ne saurait convenir, comme nous l'avons montré dans le paragraphe II B.

Nous avons pu ainsi déterminer la variation θ_{\max} en fonction de l'excédent de pression Δh ; les résultats sont résumés dans le tableau ci-dessous et sur la figure III 11 :

$\Delta h(\text{mm H}_2\text{O})$	0,5	1	1,5	2	2,5	3	3,5
θ_{\max} (degrés)	$7,1 \pm 0,4$	$14,4 \pm 0,3$	$19,3 \pm 0,2$	$26,6 \pm 0,2$	$33,9 \pm 0,2$	$41,1 \pm 0,2$	$47,8 \pm 0,2$

Figure III 10 : Courbe théorique pour $\Delta h = 1 \text{ mm d'eau.}$

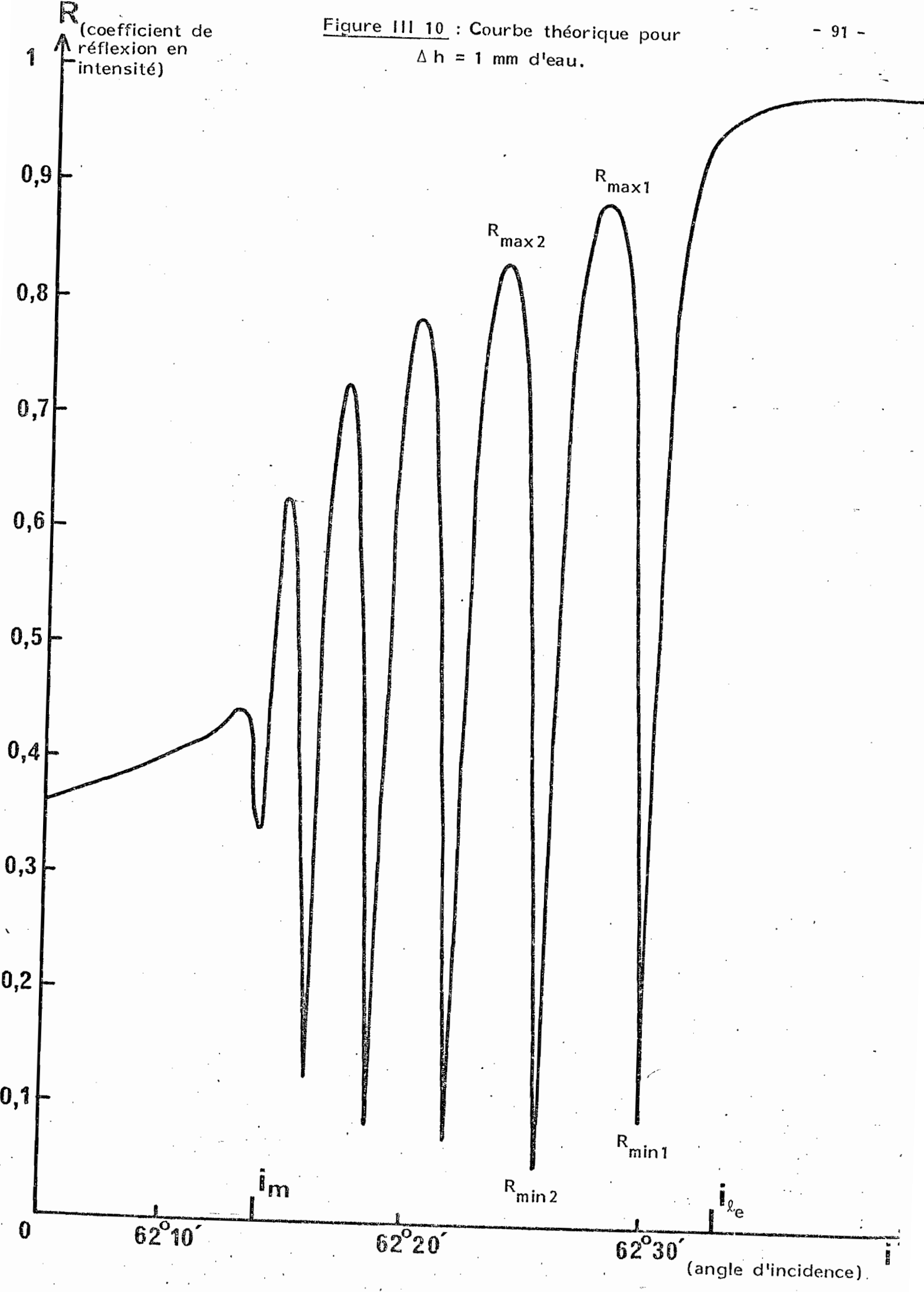
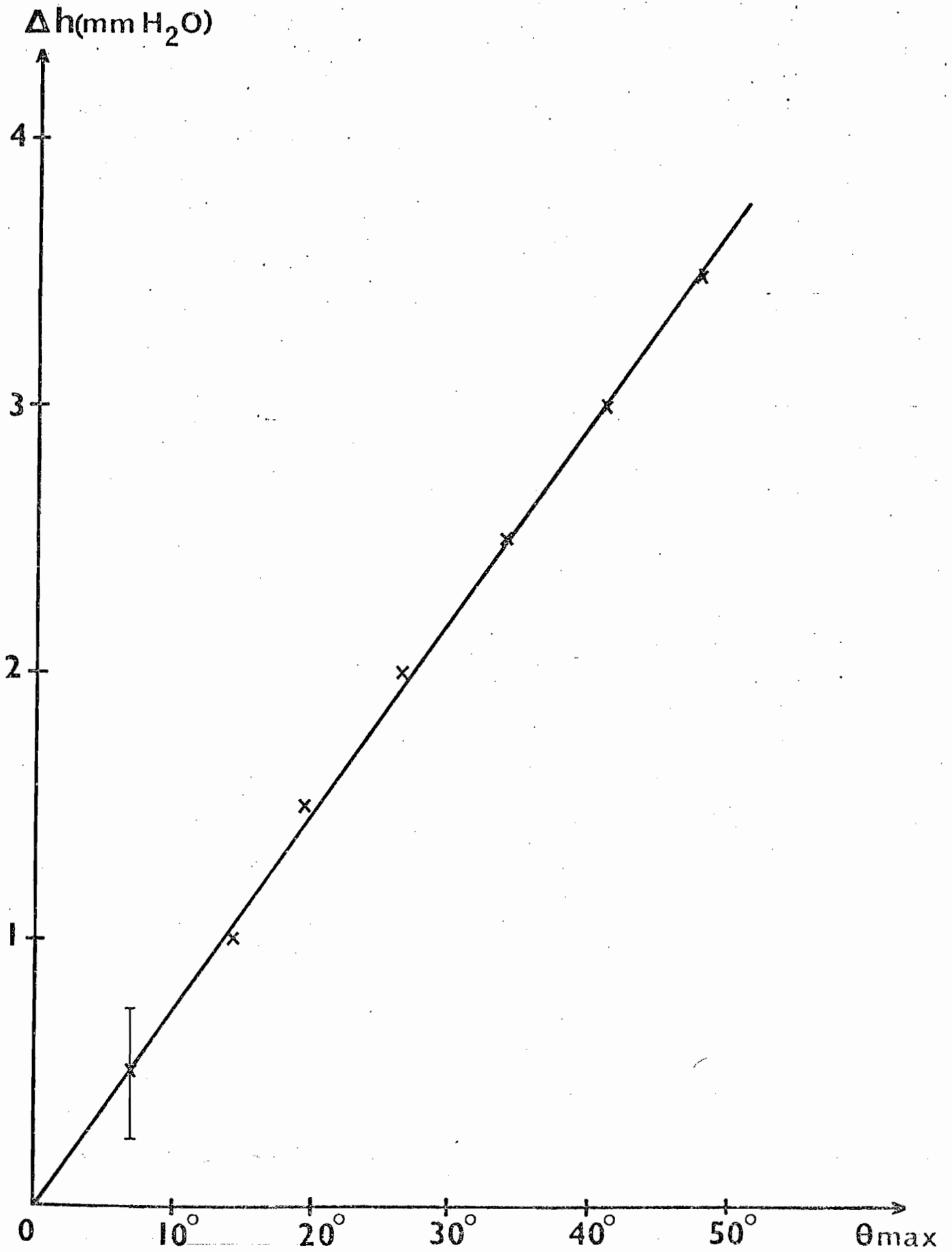


Figure III 11 : Représentation de la désorientation maximale θ_{max} en fonction de l'excédent de pression Δh (donnée expérimentale)



La valeur de θ_{\max} obtenue dans cette seconde expérience est différente de celle trouvée précédemment (10,3 degrés) ; ceci provient de l'imprécision sur la mesure de Δh , ainsi que d'une différence de température entre les deux expériences (influence sur les paramètres hydrodynamiques). D'autre part, l'hypothèse de linéarité entre Δh et θ_{\max} (relation III.12) est correcte dans le domaine considéré ($\theta_{\max} < 50$ degrés), et les résultats expérimentaux obtenus prouvent la validité du modèle hydrodynamique exposé au premier chapitre ; il ne semble pas qu'il y ait, comme on aurait pu le craindre, de variation importante de la viscosité effective η . Une expérience permettant de mesurer les viscosités effectives η_b et η_c du cristal liquide utilisé pourrait corroborer une telle hypothèse. Il est par ailleurs possible de déterminer le rapport $|\alpha_2/\eta_c|$ à partir de la pente de la droite tracée sur la figure III.11. On obtient ainsi :

$$|\alpha_2/\eta_c| = 1,23 \pm 0,07$$

Lorsqu'on augmente Δh , le modèle n'est plus valable, comme le montrent les résultats d'une troisième expérience où nous avons atteint un excédent de pression de 20 mm d'eau :

Δh (mm H ₂ O)	2,5	5	7,5	10	12,5	15	17,5	20
θ_{\max} (degrés)	35,3	64,5	71	73,9	75,6	77,9	78,1	78,7

Nous pouvons néanmoins, au delà d'une limite critique $\Delta h_c \sim 5$ mm d'eau, mesurer l'angle maximal de déformation et ceci, même si le profil de déformation $\theta(z)$ n'est pas connu de manière exacte. Nous mettons ainsi en évidence une valeur maximale de θ_{\max} voisine de 79 degrés ; ceci est tout à fait conforme à la théorie hydrodynamique qui postule l'annulation du couple visqueux pour une valeur de θ satisfaisant la relation (cf. relation III.5) :

$$\text{tg}^2 \theta = \alpha_2/\alpha_3$$

On peut donc en déduire une valeur approchée du rapport (α_2/α_3) :

$$(\theta_{\max})_{\text{maximal}} = 79,0 \pm 0,5 \text{ degrés} \rightarrow \alpha_2/\alpha_3 = 26,5 \pm 2,5$$

Cet angle maximal a été mesuré pour la première fois par C. Gahwiller sur le M.B.B.A., et il a été trouvé que le rapport (α_2/α_3) dépendait fortement de la température {308}.

Jusqu'à maintenant, nous n'avons pas tenu compte des effets de surface et nous avons toujours supposé des conditions d'ancrage fort. En fait, des disinclinaisons peuvent se produire en surface et modifier le profil de désorientation pendant l'écoulement ; le phénomène étant très localisé, il nous a semblé raisonnable de le négliger (la qualité de l'ancrage est, à ce point de vue, déterminant : un traitement de surface engendrera d'autant moins de défauts qu'il a été correctement effectué).

Pour ce qui est des conditions d'ancrage, les désorientations au voisinage de la surface restent très faibles : lorsque $\theta_{\max} = 60$ degrés, un calcul simple donne un gradient angulaire $d\theta/dz$ d'environ 6 degrés/ μm en surface ; cette valeur faible est à comparer aux gradients que l'on obtient lorsqu'on applique un champ électrique en transition de Freedericksz et qui peuvent être de 10 à 100 fois plus élevés, nous aurons l'occasion d'en parler plus longuement dans le chapitre IV. Dans ces conditions et pour un ancrage supposé fort, *il n'y a pas lieu de tenir compte d'une énergie d'ancrage finie dans le calcul du profil de désorientation.*

L'étude que nous avons menée sur l'écoulement de Poiseuille plan d'un cristal liquide en phase nématique a montré l'originalité, mais aussi les limitations de notre méthode : purement optique et ne nécessitant pas un appareillage expérimental très lourd, elle permet de vérifier optiquement la forme théorique du profil d'indice d'un matériau anisotrope et uniaxe, l'orientation de l'axe optique variant dans le plan d'incidence {309}. Son extension aux milieux isotropes et inhomogènes, dont le gradient d'indice est perpendiculaire à l'interface, se fait tout naturellement. La présence nécessaire d'une atténuation dans la propagation de l'onde électromagnétique, si elle peut paraître artificielle et non conforme à l'optique traditionnelle, se révélera intéressante dans l'étude en couche mince de matériaux nouveaux et optiquement moins "propres" : milieux biologiques, polymères, liquides organiques complexes, ... *Contrairement aux autres méthodes optiques qui intègrent le profil de déformation sur l'ensemble de l'échantillon, notre méthode permet de sonder le milieu plan par plan, à différents niveaux, grâce aux propriétés des ondes électromagnétiques en réflexion totale.*

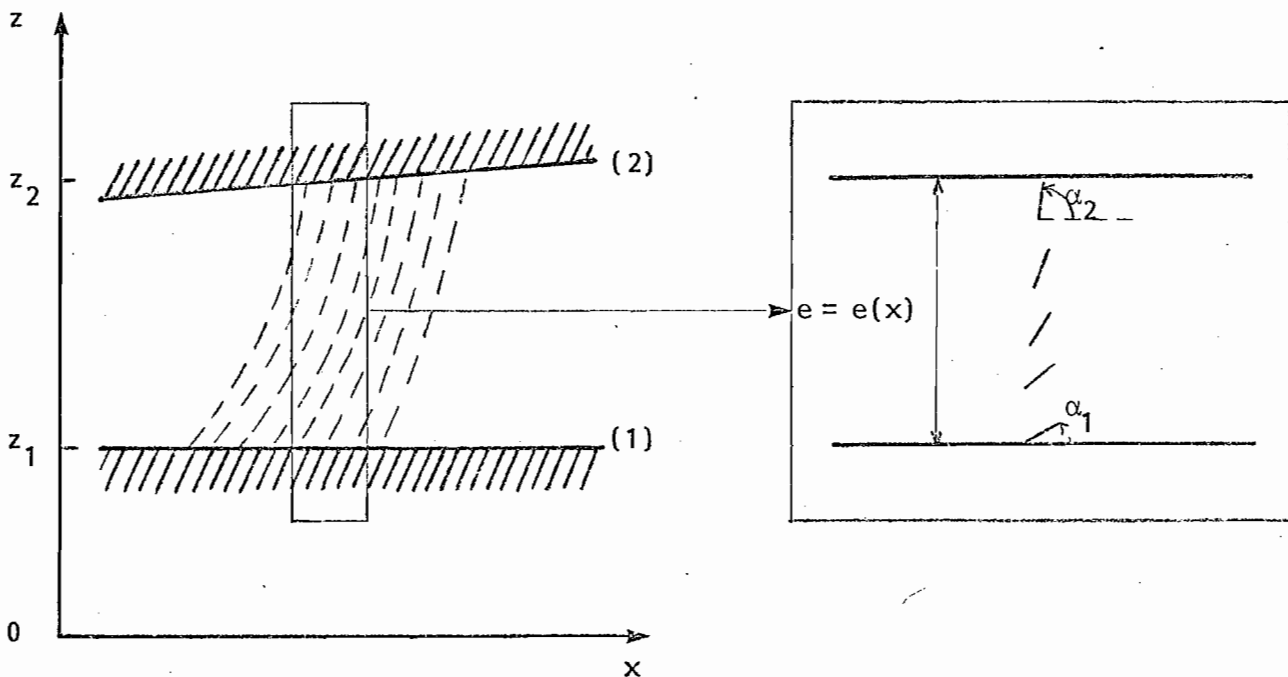
Comme nous l'avons annoncé dans le premier chapitre, nous allons maintenant aborder une autre méthode qui utilise l'excitation optique des plasmons de surface ; parfois complémentaire de la précédente, elle peut nous permettre de déterminer l'énergie d'ancrage d'un cristal liquide nématique sur un substrat, la mesure d'une telle énergie restant à ce jour très problématique.

CHAPITRE IV
LA MESURE DES ENERGIES D'ANCRAGE

IV A - ANCRAGE OBLIQUE FAIBLE

IV A 1 - Principe de la méthode

Le but de l'expérience est de mesurer l'énergie d'ancrage d'un nématique sur un substrat de SiO_x déposé sur du verre, dans le cas où les conditions d'évaporation induisent un ancrage oblique ($\alpha \sim 30^\circ$). Pour ce faire, nous avons réalisé un coin de cristal liquide suivant le schéma ci-dessous. En l'absence de contraintes extérieures, l'équilibre statique du milieu résulte de la compétition entre les forces élastiques et les forces d'ancrage en surface. On peut ainsi montrer que l'orientation du directeur aux interfaces dépend de l'épaisseur de l'échantillon. Une mesure précise de cette orientation par la méthode optique décrite au premier chapitre (§ I A 1 b) permet une bonne évaluation de l'énergie d'ancrage [401].



Considérons donc la géométrie ci-dessus ; les caractéristiques des ancrages étudiés peuvent se résumer dans le tableau suivant :

	axe facile	orientation réelle	type d'ancrage
interface(1) $z = z_1$	$\alpha_{10} \sim 30^\circ$	α_1	oblique
interface(2) $z = z_2$	$\alpha_{20} = 90^\circ$	α_2	homéotrope

Cherchons maintenant le profil de désorientation dans l'échantillon, $\alpha(z)$. La densité d'énergie libre (relation II.3) s'écrit :

$$F_d = \frac{1}{2} \{ K_1 (\text{div } \vec{n})^2 + K_3 (\vec{n} \wedge \text{rot } \vec{n})^2 \}$$

Soit :

$$F_d = \frac{1}{2} (K_1 \cos^2 \alpha + K_3 \sin^2 \alpha) \left(\frac{d\alpha}{dz} \right)^2 \quad (\text{IV.1})$$

L'absence de torsion dans l'échantillon supprime le terme en K_2 et le directeur reste toujours dans le plan xOz . Nous supposons aussi l'approximation à une constante : $K_1 = K_3 = K$, ce qui conduit à l'expression simplifiée :

$$F_d = \frac{1}{2} K (\nabla \alpha)^2 \quad (\text{IV.2})$$

La minimisation de l'énergie libre conduit à une équation d'Euler-Lagrange qui est en fait l'équation de Laplace :

$$(\nabla^2 \alpha) = 0 \quad (\text{IV.3})$$

La résolution de cette équation est triviale car α ne dépend que de z ; elle conduit à une distorsion de type linéaire caractérisée par un coefficient a :

$$\alpha = az + \alpha_0 \quad (\text{IV.4})$$

Ecrivons maintenant l'équilibre des forces qui agissent au niveau des

molécules à l'interface :

$$\frac{dW_{si}}{d\alpha_i} = K \left[\frac{d\alpha}{dz} \right]_{z = z_i} \quad (i = 1, 2) \quad (IV.5)$$

où W_{si} est l'énergie de surface définie au second chapitre par la relation (II.10) :

$$W_{si} = W_i \sin^2 (\alpha_i - \alpha_{i0}) \quad (IV.6)$$

W_i étant l'énergie d'ancrage associée au cristal liquide en contact avec le substrat au niveau de l'interface i . Pour des variations de l'orientation du directeur faibles par rapport à l'orientation d'équilibre, nous aurons donc :

$$\begin{aligned} Ka &= 2 W_i \sin(\alpha_i - \alpha_{i0}) \cos(\alpha_i - \alpha_{i0}) \\ &\sim 2 W_i (\alpha_i - \alpha_{i0}) \end{aligned} \quad (IV.7)$$

Cette expression conduit à la détermination des énergies d'ancrage suivant la formule :

$$W_i = \frac{Ka}{2(\alpha_i - \alpha_{i0})} \quad (IV.8)$$

Pour obtenir le coefficient a , et compte tenu de l'hypothèse précédente (faibles désorientations au niveau de l'interface), il suffit d'écrire :

$$a = \frac{\alpha_2 - \alpha_1}{e} \sim \frac{\alpha_{20} - \alpha_{10}}{e} = \frac{\Delta\alpha}{e}$$

où e représente l'épaisseur de l'échantillon. Notons que l'existence d'un faible coin fait dépendre cette épaisseur de la coordonnée x , comme le montre le schéma précédent. Nous obtenons finalement :

$$W_i \sim \frac{K\Delta\alpha}{2e(\alpha_i - \alpha_{i0})} \quad (IV.9)$$

Prenons typiquement : $K = 10^{-6}$ dynes, $e = 50 \mu\text{m}$; si l'ancrage est oblique sur la première interface ($\alpha_{10} = 30^\circ$) et homéotrope sur la seconde

($\alpha_{20} = 90^\circ$), nous aurons $\Delta\alpha = 60^\circ$, ce qui donne :

$$W_i(\alpha_i - \alpha_{i0}) \sim 0,006 \text{ degrés} \times \text{erg/cm}^2$$

Si l'ancrage est fort ($W_i \sim 1 \text{ erg/cm}^2$), la détection sera difficile par les méthodes optiques suggérées dans le premier chapitre (mesure de l'orientation du directeur en surface par la méthode de l'angle d'incidence limite {104}) :

$$\alpha_i - \alpha_{i0} \sim 0,4'$$

Par contre, si l'ancrage est faible ($W_i \sim 10^{-3} \text{ erg/cm}^2$), la variation de l'orientation en surface est sensible, tout en restant dans les limites de l'hypothèse faite précédemment :

$$\alpha_i - \alpha_{i0} \sim 6^\circ$$

Cette méthode n'est donc valable que pour la détermination des ancrages moyens ou faibles. Supposons maintenant que l'épaisseur de l'échantillon varie lentement (un moyen commode d'y parvenir est de créer un léger coin de cristal liquide) ; l'orientation en surface va également varier et nous obtiendrons, pour 2 valeurs de l'épaisseur :

$$\alpha_1(x_1) = \alpha_{10} + \frac{K\Delta\alpha}{2 e(x_1) W_1}$$

$$\alpha_1(x_2) = \alpha_{10} + \frac{K\Delta\alpha}{2 e(x_2) W_1}$$

Soit finalement :

$$W_1 = \frac{K\Delta\alpha}{2 \alpha_1(x_2) - \alpha_1(x_1)} \left\{ \frac{1}{e(x_2)} - \frac{1}{e(x_1)} \right\} \quad (\text{IV.10})$$

La connaissance de α_{10} n'est pas nécessaire pour calculer W_1 ; les seules approximations sont donc l'approximation à une constante ($K_1 = K_3$) et celle concernant $\Delta\alpha$ (d'autant plus valable que les désorientations en surface restent faibles).

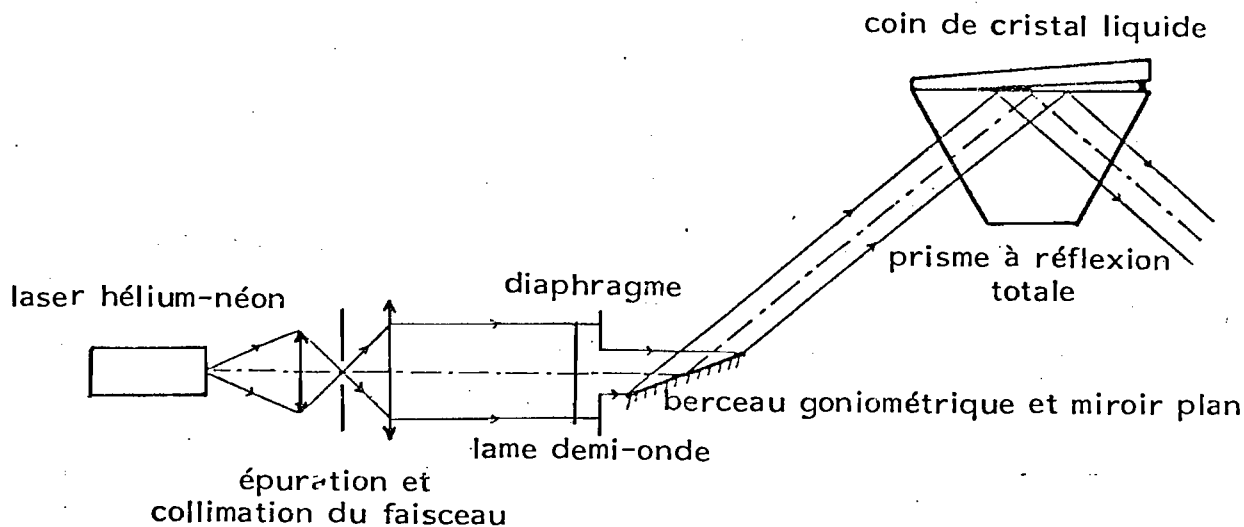
Dans les paragraphes suivants, nous montrerons que l'expérience peut être réalisée simplement en formant un coin de cristal liquide compris entre une lame de verre et un prisme à réflexion totale ; l'interprétation des courbes de réflectivité en fonction de l'angle d'incidence, à partir des résultats théoriques obtenus dans le premier chapitre, nous conduira à une mesure précise des désorientations en surface, mesure essentielle pour la détermination de l'énergie d'ancrage.

IV A 2 - Dispositif expérimental

Le dispositif expérimental optique est très voisin de celui utilisé dans l'expérience de l'écoulement de Poiseuille, comme le montre la figure ci-dessous. Le faisceau lumineux issu d'un laser Hélium-Néon Spectra Physics, travaillant à la longueur d'onde $\lambda = 6328 \text{ \AA}$ et suivant le mode TEM_{00} (puissance maximale 6 mW), subit un filtrage spatial avant d'être collimaté, puis renvoyé sur le prisme échantillon à l'aide d'un miroir solidaire d'un berceau goniométrique de précision. La divergence du faisceau au niveau de l'échantillon est réduite à 1 minute d'arc et la taille du faisceau est voisine de 1 mm. En se plaçant en polarisation TM par une rotation convenable de la lame demi-onde, on peut mesurer le coefficient de réflexion en intensité en fonction de l'angle d'incidence, $R = f(i)$, sur la couche de cristal liquide et en différents points de l'échantillon.

La réalisation de la cellule de cristal liquide comprend tout d'abord le traitement des deux surfaces en contact avec le nématique :

- la lame supérieure : c'est une lame à faces planes mais non parallèles afin d'éviter les réflexions parasites nuisibles à une mesure correcte du coefficient de réflexion sur la couche ; de haute qualité optique, cette lame a été traitée à l'aide d'un surfactant, le DMOAP (cf. § II B 3.a), qui lui assure un ancrage homéotrope et très reproductible des molécules de cristal liquide à son contact {231}. Après un nettoyage très soigneux, l'échantillon est trempé



dans une solution de DMOAP à 10^{-3} en volume dans un mélange 1/1 d'éthanol et de méthanol purs pendant une dizaine de minutes, puis étuvée à $110\text{ }^{\circ}\text{C}$ en atmosphère inerte (azote), cette dernière étape assurant la polymérisation des molécules du surfactant. L'ancrage obtenu est fort { 246}, ce qui signifie que l'orientation en surface du directeur sera peu affectée par les distorsions en volume.

- le prisme à réflexion totale : taillé dans un verre de haut indice (Schott LaSFN 18 ; $n_D = 1,9074$ à $\lambda = 6328\text{ \AA}$), ce prisme est de haute qualité optique, aussi bien au niveau de la planéité des surfaces que de la qualité du poli (très faible rugosité). Sur la plus grande face du prisme a été déposée une couche de SiO_x , de structure microscopique complexe, suivant la méthode de la double évaporation { 223, 402, 403} : un premier film est évaporé en incidence oblique ($\sim 70^\circ$) et le second en incidence rasante ($\sim 85^\circ$) perpendiculairement au premier, l'épaisseur de l'ensemble atteignant 350 \AA . Un tel dépôt produit un ancrage oblique, homogène et reproductible, l'orientation du directeur en surface étant proche de 30° (cette orientation dépend en fait du cristal liquide utilisé, comme l'a montré J.H. Morrissy, W.A. Crossland et B. Needham {418}).

Les pièces optiques que nous venons de décrire sont séparées par deux cales en téflon d'épaisseurs différentes en vue de former un léger coin dont l'arête est perpendiculaire au plan d'incidence ; l'angle du dièdre ainsi formé est de 18' d'arc.

Le cristal liquide utilisé est le 6CB et les mesures sont effectuées à la température ambiante ($T = 18,0 \pm 0,2^\circ\text{C}$). A cette température et pour la longueur d'onde $\lambda = 6328 \text{ \AA}$, les indices de réfraction ordinaire et extraordinaire ont pour valeurs :

$$n_o = 1,531 \pm 0,001 \quad ; \quad n_e = 1,691 \pm 0,001$$

IV A 3 - Résultats expérimentaux et discussion

Nous avons mesuré le coefficient de réflexion en intensité en fonction de l'angle d'incidence pour des valeurs de l'épaisseur s'échelonnant entre 28 et 58 μm ; les résultats expérimentaux sont donnés sur la figure IV 1 ainsi que dans le tableau suivant :

épaisseur a (μm)	1/e (μm^{-1})	α_1 (degrés)	gradient d'indice effectif dn_{eff}/dz (μm^{-1})	gradient de désorientation $d\alpha/dz$ (μm^{-1})
28 \pm 3	0,0357	32,3 \pm 0,3	0,0040	12'
38 \pm 3	0,0263	31,1 \pm 0,3	0,0030	9'
48 \pm 3	0,0208	30,3 \pm 0,3	0,0025	7,5'
58 \pm 3	0,0172	29,6 \pm 0,3	0,0021	6'

Pour calculer l'angle d'orientation en surface α_1 , nous avons choisi la valeur de l'incidence correspondant à $R = 0,85$. Notre choix a été guidé par les résultats théoriques obtenus en calculant le coefficient de réflexion sur un milieu anisotrope et inhomogène par la méthode décrite dans le paragraphe IA. En fait, le quasi-parallélisme des courbes de la figure IV 1 montre que 0,85 n'est pas une valeur critique : 0,80 ou 0,90 conviendrait aussi bien, car la grandeur importante pour la détermination de l'énergie d'ancrage est $(\alpha_1 \{x_2\} - \alpha_1 \{x_1\})$, qui est un écart angulaire caractéristique de la désorientation. La mesure est donc différentielle.

Réfectivité

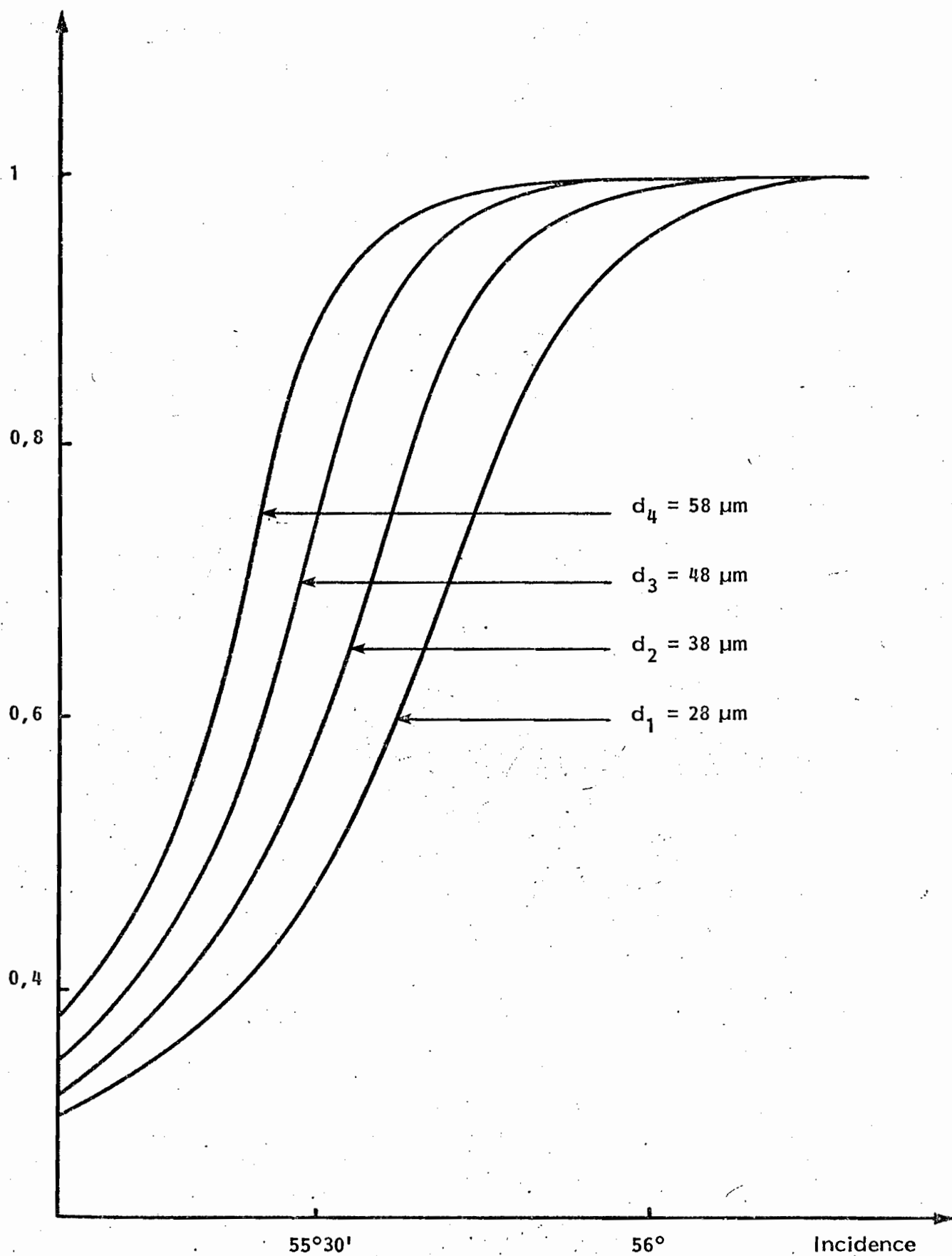


Figure IV 1 : Réfectivité en fonction de l'angle d'incidence pour différentes valeurs de l'épaisseur de l'échantillon.

De plus, nous sommes dans le cas prévu au premier chapitre (§ I A 2 c) où $d\alpha/dz > 0$ et $dn_{\text{eff}}/dz > 0$ (cas I). Le gradient d'indice étant faible comme le montre le tableau ci-dessus, on peut considérer que le milieu est homogène sur la longueur de pénétration de l'onde évanescente, c.a.d. quelques milliers d'angströms, et que la courbe de réflectivité sera peu affectée par la distorsion du milieu. Les seules difficultés dans l'interprétation des courbes proviennent de l'atténuation de l'onde qui se propage dans la couche de cristal liquide (existence du coefficient χ - cf. chapitre III) et de la présence d'une couche de SiO_x , probablement inhomogène et lacunaire. Il en résulte un arrondissement de la courbe de réflectivité au voisinage de l'angle d'incidence limite, ceci ne nuisant pas à la mesure précise de l'énergie d'ancrage.

Notons que la variation de α_1 est linéaire en $1/e$, confirmant ainsi la validité de notre méthode ; par extrapolation de la droite de régression obtenue à partir des résultats expérimentaux, nous avons accès à l'angle d'orientation en surface en l'absence de toute distorsion (figure IV 2) :

$$\alpha_{10} = 27,2 \pm 0,3^\circ$$

La désorientation maximale est ainsi de $5,1^\circ$, ce qui confirme l'hypothèse faite dans le premier paragraphe : $(\alpha_{10} - \alpha_1) \ll 1$. Nous pouvons écrire, compte tenu de cette variation :

$$\begin{aligned} \Delta\alpha &= 60 \pm 3^\circ \\ \alpha_1(x_2) - \alpha_1(x_1) &= 2,7 \pm 0,6^\circ \\ e(x_2) &= 58 \mu\text{m} \\ e(x_1) &= 28 \mu\text{m} \end{aligned}$$

En prenant : $K = 10^{-6}$ dynes, on obtient le résultat final :

$$W_1 = (2,1 \pm 0,8) \times 10^{-3} \text{ erg/cm}^2$$

Ce résultat est bien en accord avec l'hypothèse d'un ancrage oblique faible faite dans la partie théorique de ce travail.

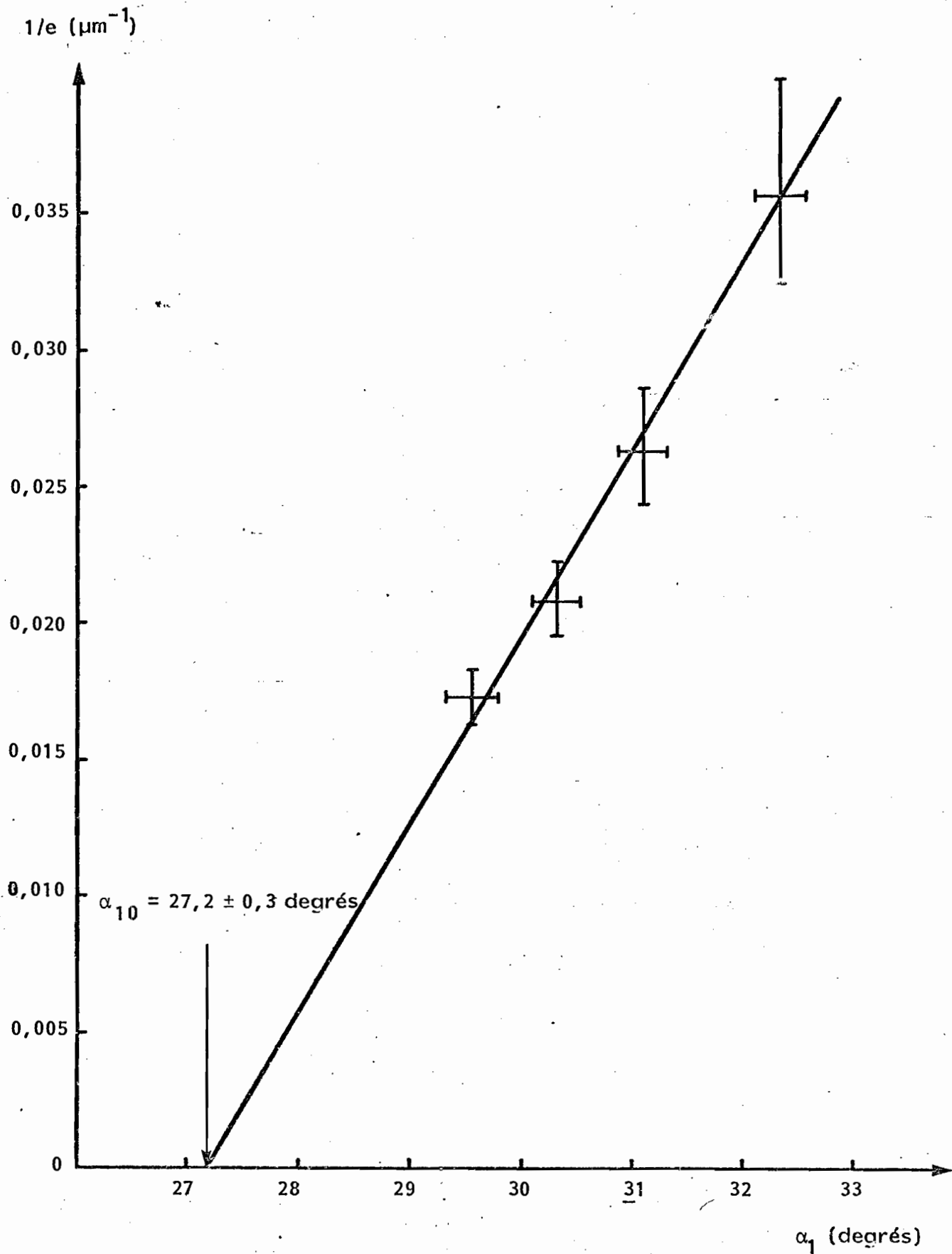


Figure IV 2 : Variations de l'angle d'orientation en surface (α_1) en fonction de l'inverse de l'épaisseur de l'échantillon ($1/e$).

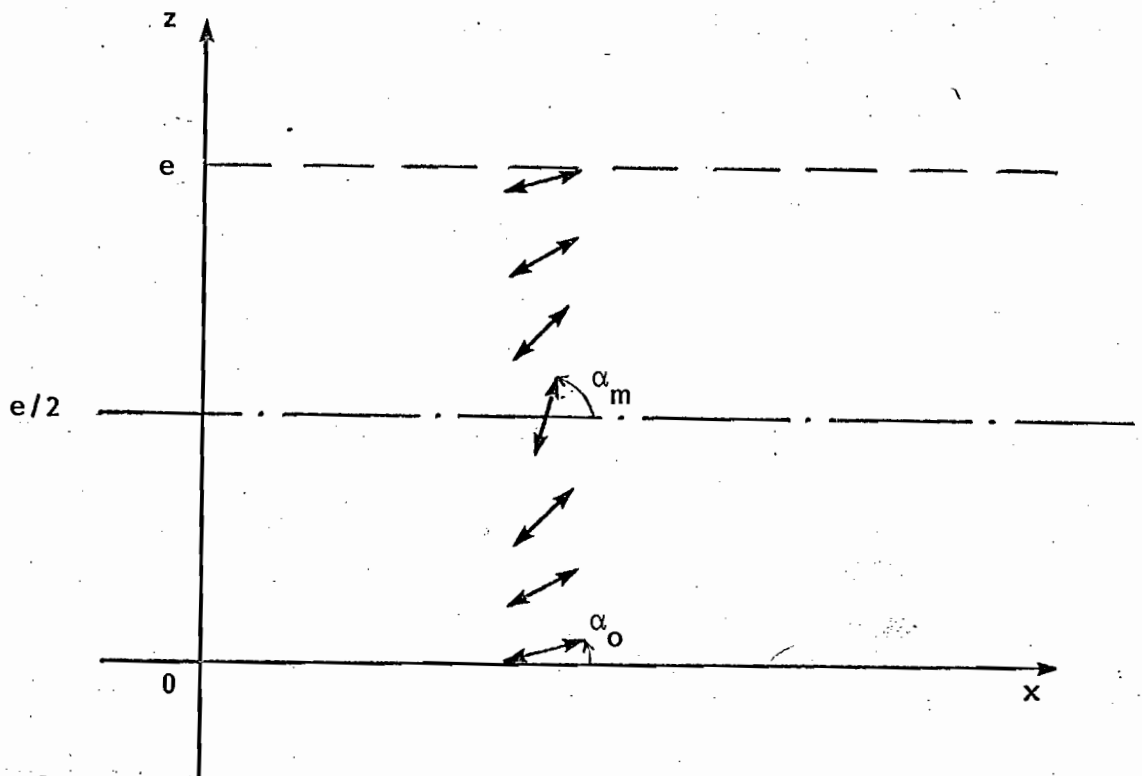
A titre de vérification, nous avons effectué une expérience similaire dans laquelle la lame et le prisme ont subi le même traitement de surface, produisant un ancrage oblique ($\alpha_{10} = \alpha_{20} \sim 30^\circ$) : dans ces conditions, nous n'avons pas observé de variation notable de α_1 en fonction de e ; ceci prouve que les résultats expérimentaux ne peuvent s'expliquer par une anisotropie dans l'évaporation du SiO_x , qui induirait une variation locale de α_1 .

Il nous a semblé, d'autre part, intéressant de réaliser la même expérience en échangeant les interfaces (1) et (2) ; nous avons ainsi vérifié que l'ancrage homéotrope induit par la couche d'organosilane était fort, aucune variation de l'orientation du directeur en surface n'ayant pu être détectée.

Comme nous l'avons souligné dans le second chapitre, la mesure de l'énergie d'ancrage est très délicate ; l'ordre de grandeur de l'énergie que nous avons trouvée est réaliste et conforme aux mesures effectuées par d'autres procédés, bien qu'aucune de ces mesures n'ait été, jusqu'à ce jour, réalisée sur un ancrage oblique. *La méthode que nous proposons présente l'intérêt de ne pas intégrer les distorsions en volume et de donner une valeur précise de l'orientation du directeur sur quelques milliers d'angströms au voisinage de l'interface.* Il serait néanmoins souhaitable, pour conclure sur le plan de la physique, ou plutôt de la physico-chimie de l'ancrage, que d'autres expériences systématiques soient menées à partir de cette méthode, incluant aussi bien les variations des conditions d'évaporation que le changement éventuel de cristal liquide ou l'influence de la température.

produire dans n'importe quel plan contenant la normale à l'échantillon, créant ainsi des défauts de structure appelés "ombilics" {405}. Pour cette raison, nous avons choisi la géométrie plane pour laquelle la désorientation s'effectue dans un plan bien déterminé. Notons que la méthode pourra également s'appliquer aux ancrages homéotropes forts, à condition d'utiliser un champ magnétique de forte intensité.

Considérons donc une couche de cristal liquide en phase nématique d'épaisseur e comprise entre 2 lames de verre revêtues d'électrodes transparentes et traitées de façon à induire une orientation plane des molécules. Nous supposons que le directeur reste dans le plan xOz ; le milieu est caractérisé par deux de ses constantes élastiques, K_1 et K_3 (la constante K_2 , comme dans l'expérience précédente, ne jouant ici aucun rôle), par ses deux constantes diélectriques, $\epsilon_{//}$ et ϵ_{\perp} ($\Delta\epsilon = \epsilon_{//} - \epsilon_{\perp} > 0$), et par le profil de déformation $\alpha(z)$. Nous y ajouterons l'énergie d'ancrage des molécules aux parois, W , qui donne lieu à une énergie de surface introduite phénoménologiquement sous la forme : $W(\alpha) = W \sin^2 \alpha$ (cf. relation II.10 et chapitre II).



Le système est parfaitement symétrique par rapport au plan médian ($z = e/2$) et la déformation maximale, α_m , se produit dans ce plan, où l'influence des parois se fait le moins sentir.

Le calcul exact et complet du profil de déformation est donné dans l'annexe A4 ; dans le cas le plus général, les solutions sont compliquées car elles font intervenir des intégrales elliptiques sous une forme peu pratique. On obtient ainsi un ensemble de relations qui permettent la résolution intégrale du problème :

$$* V = \frac{2}{\pi} V_0 (1 + \gamma \sin^2 \alpha_m)^{1/2} \int_{\alpha_0}^{\alpha_m} \left\{ \frac{(1 + \xi \sin^2 \alpha)}{(\sin^2 \alpha_m - \sin^2 \alpha) (1 + \gamma \sin^2 \alpha)} \right\}^{1/2} d\alpha \quad (IV.11)$$

$$* \sin \alpha_0 \cos \alpha_0 = \frac{2}{\pi} a \left\{ \frac{(1 + \xi \sin^2 \alpha_0) (\sin^2 \alpha_m - \sin^2 \alpha_0)}{(1 + \gamma \sin^2 \alpha_0)} \right\}^{1/2} I(\alpha_m, \alpha_0) \quad (IV.12)$$

$$* \frac{2z}{e} = \frac{I(\alpha, \alpha_0)}{I(\alpha_m, \alpha_0)} \quad (IV.13)$$

$$* I(\alpha, \alpha_0) = \int_{\alpha_0}^{\alpha} \left\{ \frac{(1 + \gamma \sin^2 \alpha) (1 + \xi \sin^2 \alpha)}{(\sin^2 \alpha_m - \sin^2 \alpha)} \right\}^{1/2} d\alpha \quad (IV.14)$$

Dans ces expressions, nous avons utilisé les notations suivantes :

$$\left\{ \begin{array}{l} V = \text{tension appliquée aux bornes de la cellule} \\ V_0 = \text{tension de seuil} = \pi \{4\pi K_1 / \Delta \epsilon\}^{1/2} \\ \alpha_0 = \text{désorientation en surface (} z = 0 \text{)} \\ \alpha_m = \text{désorientation maximale (} z = e/2 \text{)} \\ a = \text{paramètre d'ancrage} = (\pi K_1 / We) \\ \gamma = (\epsilon_{//} - \epsilon_{\perp}) / \epsilon_{\perp} \\ \xi = (K_3 - K_1) / K_1 \end{array} \right.$$

A ce niveau, différentes approximations peuvent être faites en fonction de l'expérience réalisée et des valeurs prises par les paramètres du système. En ancrage infiniment fort, $\alpha_0 = 0$ car $a = 0$ (W_{∞}) ; on retrouve alors les résultats

obtenus par H. J. Deuling [406]. Si l'on suppose $\gamma \ll 1$ et $\xi \ll 1$, mais dans le cas d'un ancrage fini, on retrouve l'analyse faite par J. Nehring [407], mais qui n'est malheureusement suivie d'aucun résultat expérimental. Notons que la première étude expérimentale de ce genre a été réalisée par A. Rapini [243] en champ magnétique.

Dans l'expérience décrite ici, l'ancrage est supposé fort, ce qui signifie que les tensions appliquées devront être importantes pour provoquer une variation sensible et détectable de l'orientation du directeur en surface. Dans ces conditions, et en se rapportant aux résultats connus en ancrage infiniment fort, on pourra supposer que α_m est très voisin de $\pi/2$ (pour $V/V_0 = 5$, $\alpha_m > 89,9$ degrés). Comme on l'a montré dans l'annexe A 4, l'expression (IV.12) se simplifie pour donner :

$$a v = 2 \left\{ \frac{\epsilon_{\perp}}{\epsilon_{\parallel}} \right\}^{1/2} \left\{ \frac{1 + \gamma \sin^2 \alpha_0}{1 + \xi \sin^2 \alpha_0} \right\}^{1/2} \sin \alpha_0 \quad (IV.15)$$

où v est la tension réduite : $v = V/V_0$.

Cette relation est très utile car elle relie directement la désorientation en surface (α_0) et le paramètre d'ancrage (a). Le tableau suivant indique les valeurs du coefficient sans dimension av en fonction de α_0 , pour les valeurs des paramètres qui correspondent au cristal liquide utilisé dans l'expérience (E7 - référence [256]) :

$$\epsilon_{\parallel} = 19,7 \quad ; \quad \epsilon_{\perp} = 5,3 \quad ; \quad K_1 = 10,7 \times 10^{-7} \text{ dynes} \quad ; \quad K_3 = 20,7 \times 10^{-7} \text{ dynes}$$

$$\gamma = 2,72 \quad ; \quad \xi = 0,935$$

α_0 (degrés)	0	5	10	15	20	25	30
av	0	0,091	0,185	0,283	0,387	0,495	0,605

Pour fixer un ordre de grandeur, prenons : $K \sim 10^{-6}$ dynes, $e = 10 \mu\text{m}$, $W = 0,1 \text{ erg/cm}^2$. Si l'on souhaite obtenir une désorientation angulaire de 10

degrés en surface, la tension réduite devra être égale à : $v = 6$ ($a = 0,03$).

Un autre paramètre intéressant est le gradient de déformation angulaire à l'origine :

$$\alpha'_0 = \left[d\alpha/dz \right]_{z=0}$$

Il nous renseigne en effet sur le *gradient d'indice effectif* du milieu (cf. chapitre I) et conditionne sa modélisation optique. Sa valeur nous est donnée par la relation (6) de l'annexe A4 :

$$\alpha'_0 = \frac{W \sin 2\alpha_0}{K_1 (1 + \xi \sin^2 \alpha_0)} = \frac{\pi \sin 2\alpha_0}{ae (1 + \xi \sin^2 \alpha_0)} \quad (IV.16)$$

Le tableau ci-dessous indique les résultats du calcul effectué pour différentes valeurs de α_0 , en prenant : $W = 0,1 \text{ erg/cm}^2$; $K_1 = 10^{-6} \text{ dynes}$; $\xi = 0,935$.

α_0 (degrés)	0	5	10	15	20	25	30
α'_0 (degrés/1000 Å)	0	9,9	19,1	27,0	33,2	37,6	40,2

Les courbes de la figure IV 3 représentent les variations théoriques de α_0 et α'_0 en fonction de v pour deux valeurs assez voisines de l'énergie d'ancrage ($0,1$ et $0,2 \text{ erg/cm}^2$). Pour $v < 5$, les hypothèses faites ci-dessus ne sont plus valables ($\alpha_m \neq \pi/2$). Notons enfin qu'il existe une valeur de v au delà de laquelle l'ensemble de la cellule est homéotrope ($\alpha_0 = \alpha_m = \pi/2$) et qui est donnée par la relation :

$$v_{\max} = \frac{2}{a(1 + \xi)^{1/2}} \quad (IV.17)$$

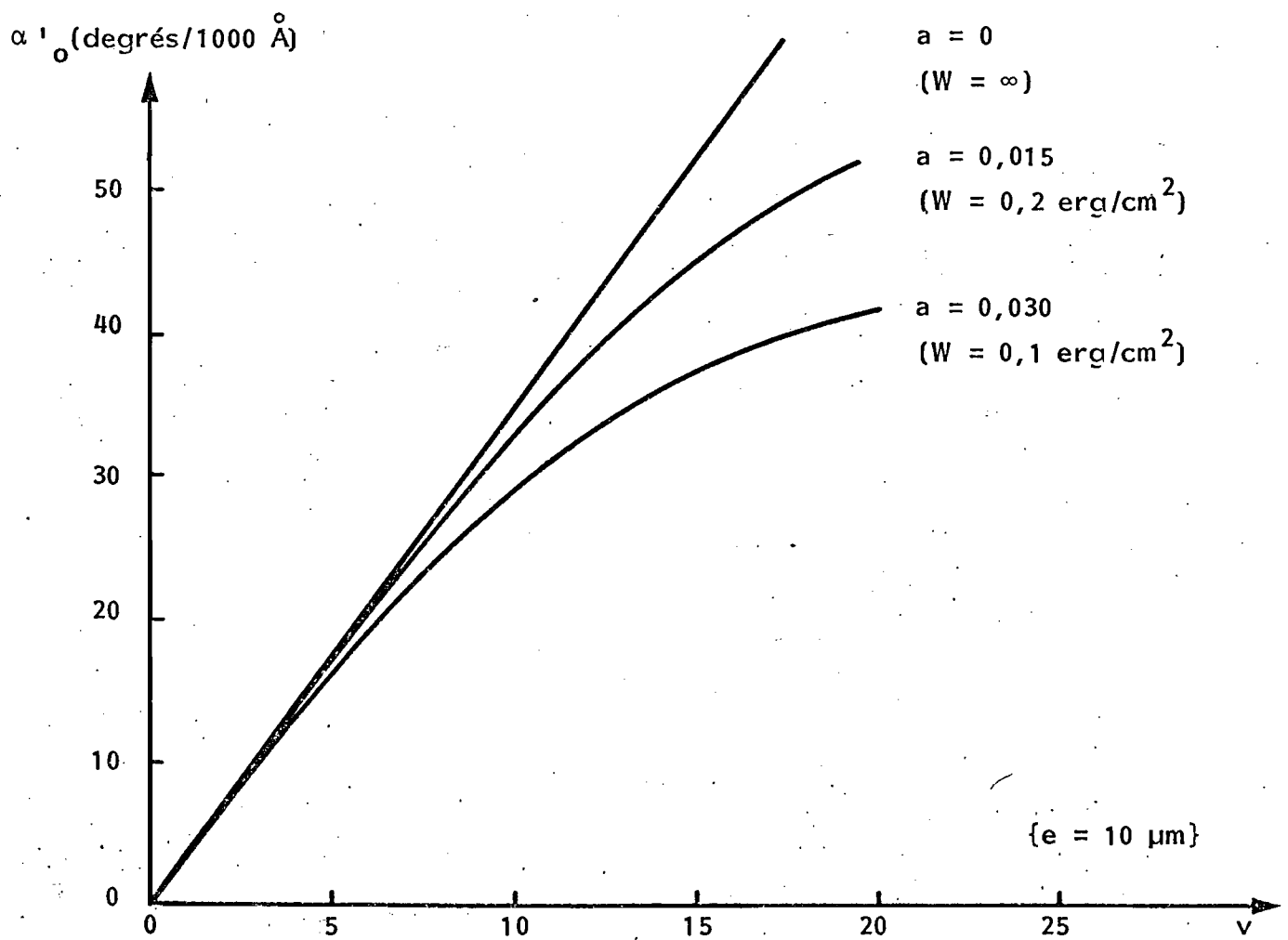
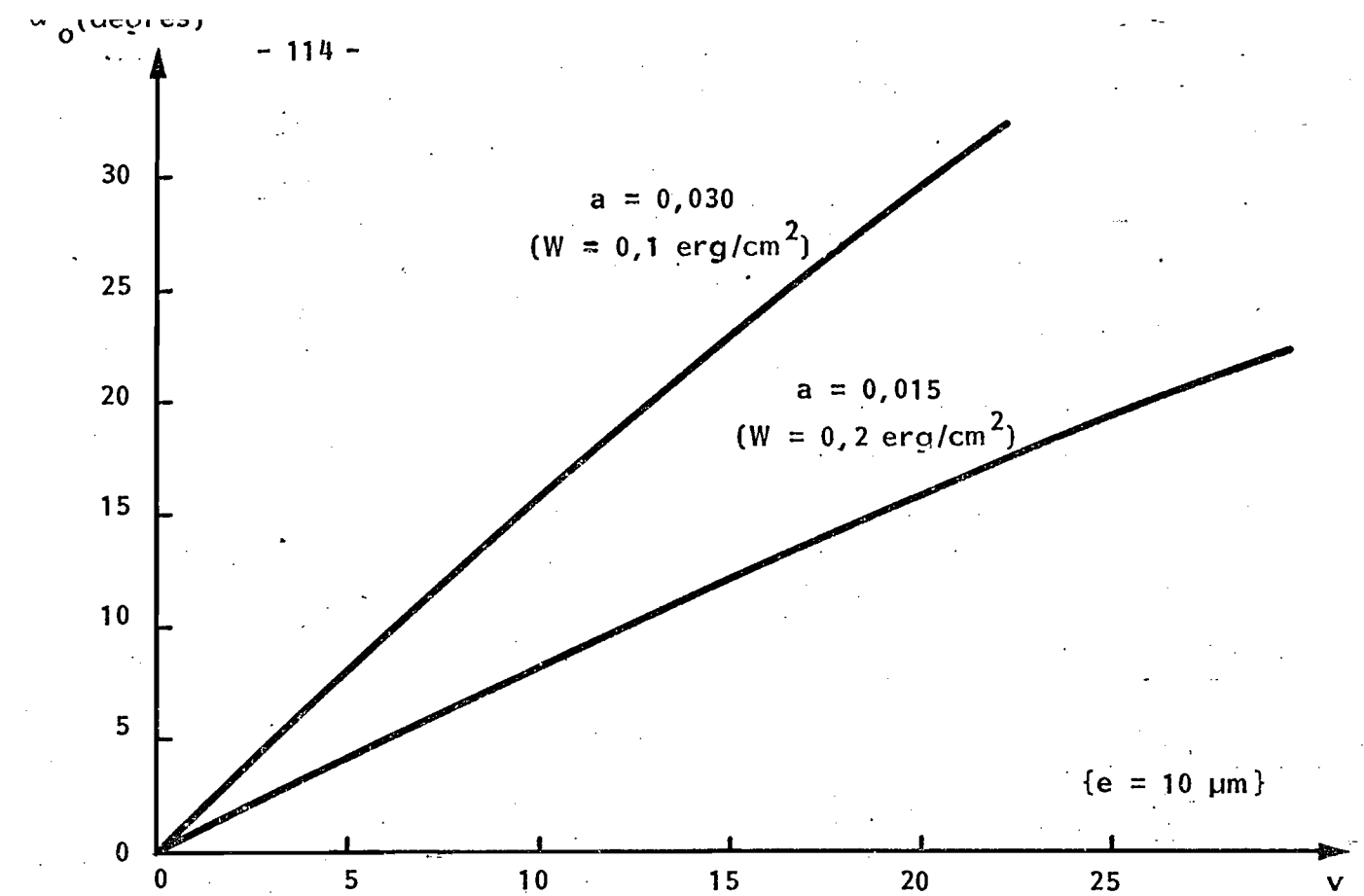


Figure IV 3 : Variations théoriques de α_0 et α'_0 en fonction du champ réduit v pour quelques valeurs du paramètre d'ancrage a .

Pour un ancrage infiniment fort ($a = 0$), on obtient les valeurs suivantes :

$$\begin{cases} \alpha_o = 0 \\ \alpha'_o = \frac{\pi V}{e} (\epsilon_{//} / \epsilon_{\perp})^{1/2} \end{cases} \quad (IV.18)$$

En conclusion de cette étude théorique, nous dirons qu'il est possible, connaissant α_o , de mesurer l'énergie d'ancrage W à partir de la relation (IV.15) ; la détermination simultanée du gradient de déformation à l'origine, α'_o , sera une vérification supplémentaire de la validité du modèle proposé.

IV B 2 - L'excitation optique de plasmons de surface à l'interface or/cristal liquide

IV B 2 a - Introduction : difficultés posées par la couche d'ancrage intermédiaire.

Une étude préliminaire nous a permis de déterminer les paramètres optiques d'une couche de SiO_x évaporée sur un substrat d'or (paragraphe I B 4). Bien que des difficultés d'interprétation subsistent quant à la nature microscopique de ce dépôt, notamment en ce qui concerne la présence de lacunes dans la couche et l'importance de sa rugosité, il est apparu clairement que l'on pouvait traduire les résultats expérimentaux obtenus en terme d'indice effectif, caractérisant ainsi une couche *optiquement équivalente* à la couche réelle. De cette manière, nous avons associé à ce dépôt de 380 Å d'épaisseur (évaporation de monoxyde de silicium sous une incidence de 65° par rapport à la normale à l'échantillon), un indice complexe effectif de valeur :

$$\tilde{n}_f = 1,291 + i 0,007$$

Comme nous l'avons souligné précédemment, la couche de SiO_x obtenue par évaporation thermique est fragile et chimiquement instable ; elle est sensible aux traces de vapeur d'eau qui existent dans l'air ambiant, du fait de sa très grande porosité. L'évolution de sa structure au cours du temps est un

phénomène physico-chimique relativement complexe { 408, 409 } ; vraisemblablement très rapide au cours des premiers instants qui suivent la mise à l'air libre de l'échantillon, cette évolution se poursuit lentement comme le montre l'expérience suivante : nous avons suivi la modification au cours du temps de la courbe de réflectivité associée au système { prisme/or/SiO_x/air } sur un échantillon soigneusement conservé à l'abri de la poussière et de l'humidité. Le tableau suivant traduit cette évolution, qu'il nous est actuellement impossible d'interpréter en l'absence de données physico-chimiques précises et d'études systématiques effectuées dans des conditions différentes mais reproductibles : variation de l'épaisseur, de l'angle d'évaporation, ... En pratique, on a même pu constater que des couches laissées trop longtemps à l'air libre n'étaient plus à même d'orienter convenablement un cristal liquide en phase nématique, ce qui montre à l'évidence *une évolution irréversible de la structure superficielle du dépôt de SiO_x*.

temps écoulé	i _p	R _p	Δ i _p
1 jour	36°10'	0,03	1°47'
5 jours	36°15'	0,03	1°50'
2 mois	36°37'	0,04	2°10'
5 mois	36°40'	0,04	2°8'

Ces dernières mesures, si elles rendent compte de la sensibilité de la méthode qui utilise l'excitation optique de plasmons de surface, doivent également nous inciter à être prudent dans l'interprétation des résultats expérimentaux ; matériau poreux et fragile, le SiO_x présente une inhomogénéité de structure qui permet d'orienter les molécules d'un cristal liquide en phase nématique parallèlement au substrat. L'anisotropie optique, que nous n'avons pas décelée, a été effectivement mise en évidence, de manière qualitative, pour des épaisseurs supérieures à 3000 Å {409}.

Tout ceci nous conduit à penser que, lorsque le cristal liquide est mis au contact du SiO_x, les propriétés optiques de la couche d'ancrage intermédiaire peuvent être modifiées de manière importante. Autrement dit, le modèle utilisé pour décrire cette couche au contact de l'air n'est plus valable ; on obtiendra un indice effectif différent, se rapprochant de l'indice moyen du cristal liquide,

en raison du "remplissage" de la couche par les molécules de nématique (le SiO_x est, dans ce cas, semblable à une éponge qui absorberait le liquide dans lequel elle a été plongée) {410} :

$$\tilde{n}_f(\text{SiO}_x/\text{air}) \neq \tilde{n}_f(\text{SiO}_x/\text{nématique})$$

Dans ces conditions, le cristal liquide joue, en quelque sorte, le rôle d'un "révéléateur" des propriétés de surface d'un matériau déposé en couche mince sur un substrat. Nous allons maintenant nous assurer de la validité des hypothèses émises, en analysant les courbes de réflectivité obtenues sur le système {prisme/or/ SiO_x /cristal liquide planaire}.

IV B 2 b - Analyse des résultats expérimentaux et discussion

Le dispositif expérimental est très semblable à celui utilisé dans l'expérience de l'écoulement de Poiseuille d'un cristal liquide en phase nématique (chapitre III) ; le schéma de la figure IV 4 montre la géométrie de la cellule, que nous avons adoptée dans nos expériences. Sur un prisme à réflexion totale d'indice de réfraction élevé ($n_j = 1,9078$) et une lame à faces planes et parallèles, de haute qualité optique (réalisation I.O.T.A.), ont été successivement déposées :

- 1 - une couche d'or de 525 \AA d'épaisseur
- 2 - une couche de SiO_x obtenue par évaporation thermique de SiO sous incidence oblique (60°) ; chauffé de 20°C à 200°C en 30 minutes, l'échantillon est ensuite maintenu à cette dernière température pendant 3 heures, puis refroidi lentement ; la pression résiduelle de gaz dans l'enceinte n'excède pas 3×10^{-6} Torr. La distance entre la source d'évaporation et l'échantillon est égale à 50 cm et l'épaisseur nominale de la couche, mesurée à l'aide d'un talystep est :

$$d_f = 275 \pm 25 \text{ \AA}$$

Les deux pièces ainsi obtenues, mises en regard l'une de l'autre, constituent une cellule dont l'épaisseur est déterminée par des cales en mylar (épaisseur nominale $12 \mu\text{m}$) ; l'ensemble est partiellement scellé à l'aide d'une colle époxy, afin de permettre l'introduction du cristal liquide par capillarité.

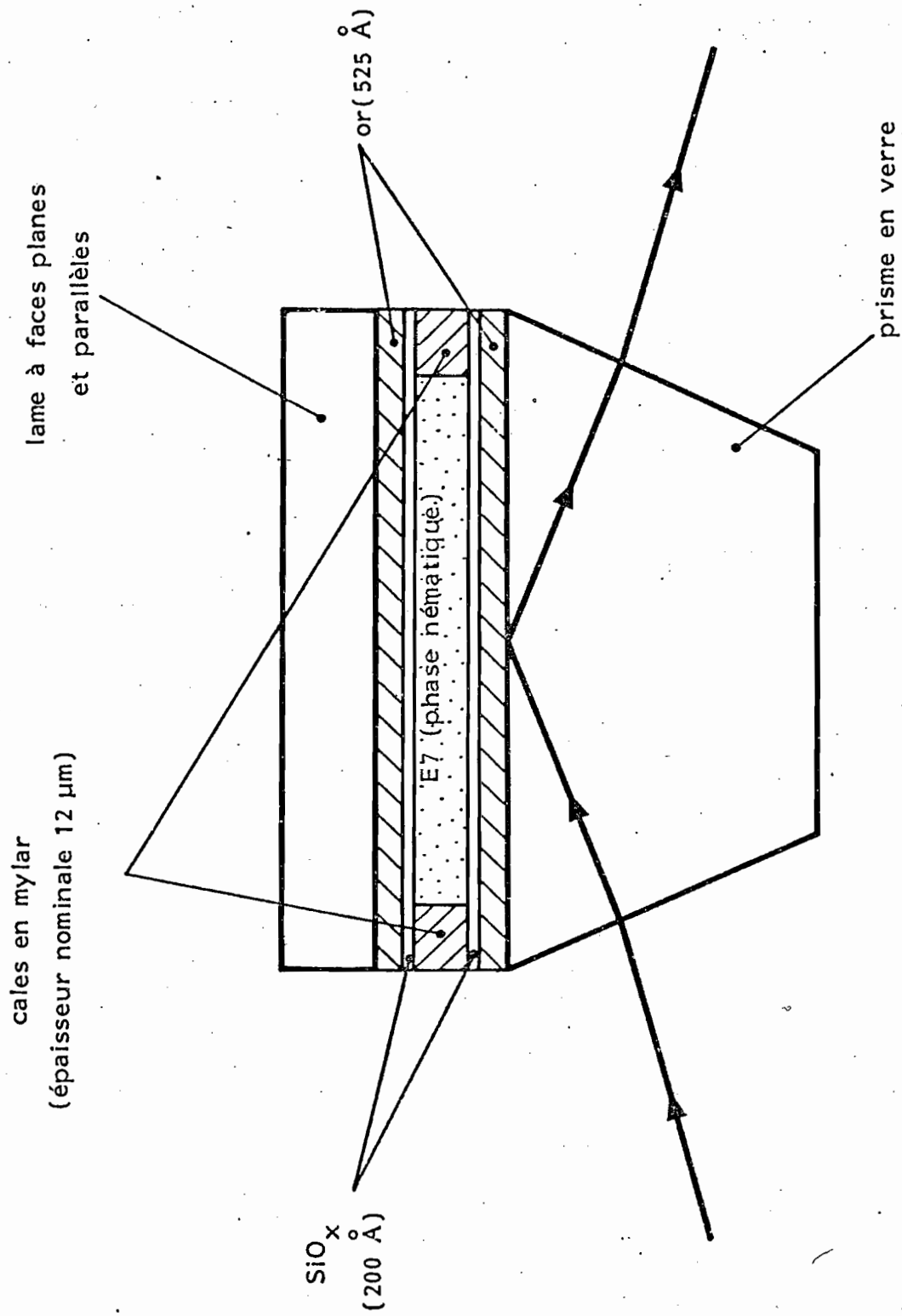
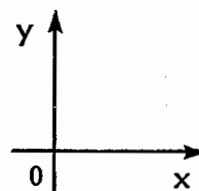
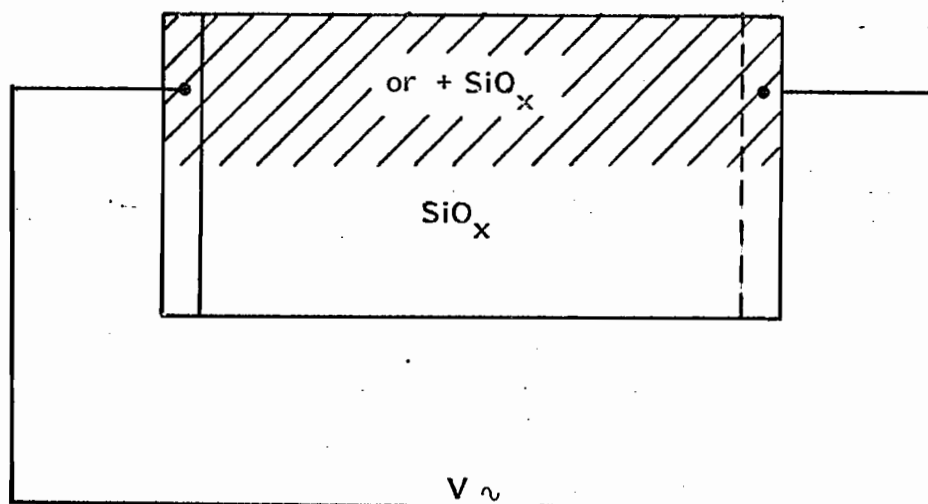


Figure IV 4 : Dispositif expérimental utilisé dans la mesure des énergies d'ancrage par la méthode d'excitation optique de plasmons de surface.

La couche métallique ne recouvre qu'une moitié du prisme, ce qui permet de contrôler, après introduction du nématique, que celui-ci a bien acquis une configuration planaire et homogène (égalité des indices de réfraction en TE et TM - cf. chapitre I).



La constante optique de cette couche d'or ($\hat{n} = n + i\chi$) a été déterminée en l'absence de tout autre dépôt, au contact de l'air, par l'analyse des courbes de réflectivité (cf. § I B). Nous avons obtenu (courbe de la figure IV 5) :

$$\begin{cases} n = 0,17 \pm 0,01 \\ \chi = 3,41 \pm 0,01 \end{cases}$$

.../...

LAMBDA = .6328 microns

PRISME

1.9078 / 0

COUCHE 1

.17 / -3.41

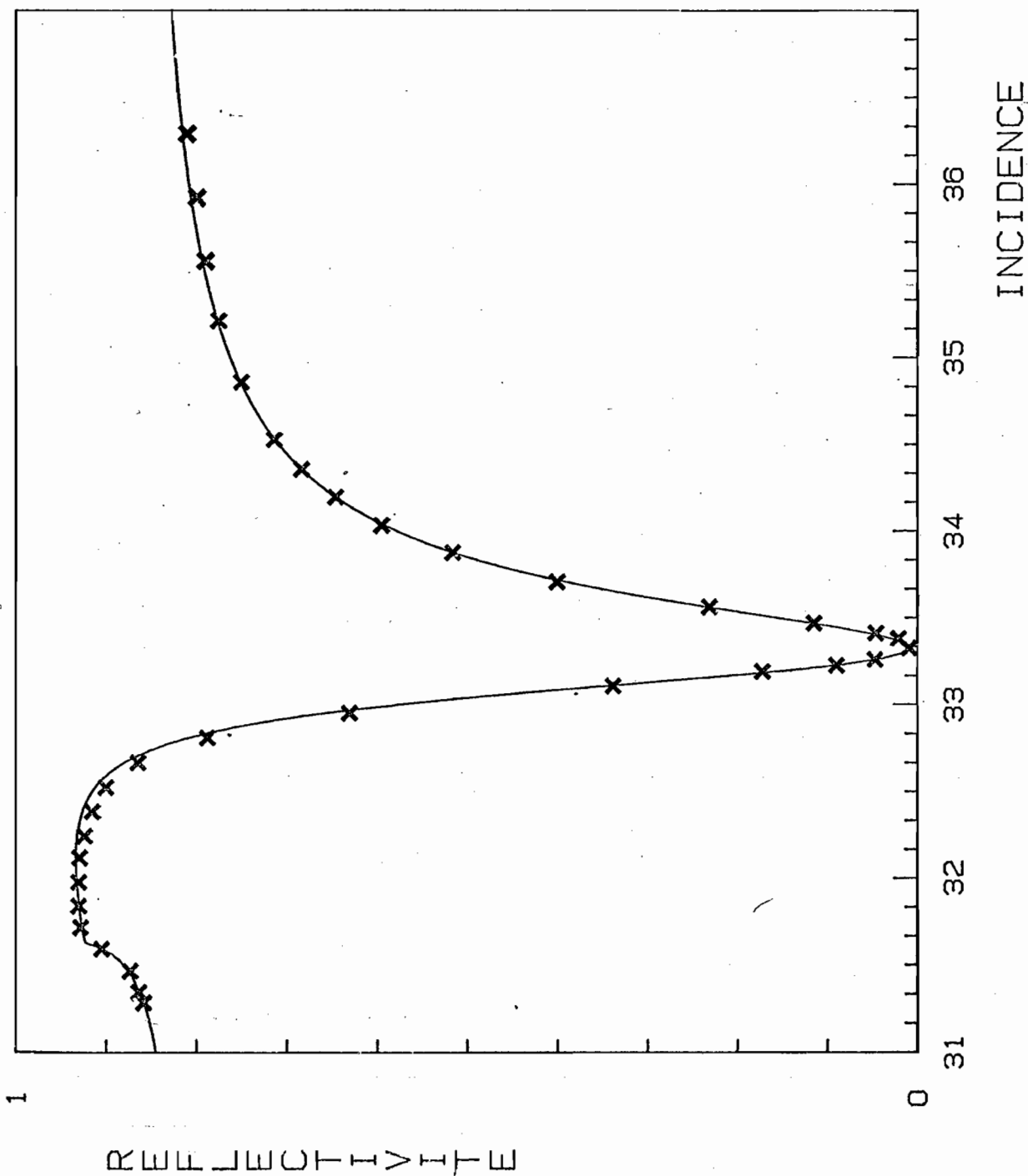
EPAISSEUR = .0525 microns

DERNIER MILIEU

1 / 0

Figure IV 5 : Résultats théoriques

(traits pleins) et expérimentaux (croix).



Ces valeurs, très peu différentes de celles indiquées en IB4, montrent une bonne reproductibilité des couches d'or sur le plan expérimental ; on notera également l'accord entre les courbes théoriques et expérimentales pour une excursion angulaire de 7 degrés. Une mesure de la rugosité de la couche métallique déposée sur le prisme, obtenue par une analyse de la lumière diffusée, a donné : $\sigma \sim 10 \text{ \AA}$; ce résultat souligne ainsi la qualité du dépôt effectué ; notons qu'en pratique, la lame et le prisme sont légèrement décalés, dans le sens longitudinal, afin de permettre l'arrivée de fils métalliques qui seront soudés sur les couches d'or, cette géométrie étant rendue nécessaire si l'on veut appliquer un champ électrique à l'échantillon.

A la température de la pièce au moment des expériences ($T = 19,0 \pm 0,5^\circ\text{C}$) les indices de réfraction du cristal liquide utilisé (E7) sont les suivants :

$$\left. \begin{array}{l} n_o = 1,518 \pm 0,001 \\ n_e = 1,740 \pm 0,001 \end{array} \right\} \text{ pour } \lambda = 6328 \text{ \AA}$$

L'épaisseur de la cellule, mesurée "in situ" suivant la méthode décrite en III C 2, a pour valeur :

$$e = 13,5 \pm 0,5 \text{ }\mu\text{m}$$

Les paramètres de l'expérience ayant été décrits avec précision, nous allons maintenant analyser les courbes de réflectivité obtenues en fonction de l'angle d'incidence. Comme nous l'avons vu précédemment, ces courbes peuvent se caractériser par 3 paramètres :

- la position de minimum de réflectivité : i_p
- la valeur de ce minimum : $R_p = R(i_p)$
- la largeur à mi-hauteur : Δi_p

Résumons les résultats expérimentaux dans le tableau suivant :

	i_p	R_p	Δi_p
Prisme/Or/SiO _x /Air (I)	$47^\circ 20' \pm 3'$	$0,03 \pm 0,01$	$4^\circ 30' \pm 6'$
Prisme/Or/SiO _x /E7 planaire (II)	$70^\circ \pm 3'$	$0,06 \pm 0,01$	$5^\circ 35' \pm 6'$

Considérons l'expérience (I) : si l'on suppose que les caractéristiques optiques (\hat{n} et d) de la couche d'or n'ont pas été modifiées par le dépôt de SiO_x , la seule connaissance de la position angulaire du minimum de réflectivité permet de déterminer une infinité de couples (n_f, d_f) , comme le montre la figure IV 6. Les courbes de réflectivité associées montrent nettement, suivant les valeurs de ces couples, des variations de la largeur à mi-hauteur Δi_p (figure IV 7). On peut ainsi espérer lever l'indétermination et trouver les caractéristiques optiques de la couche mesurée. Compte-tenu des incertitudes expérimentales, on obtient la détermination unique suivante :

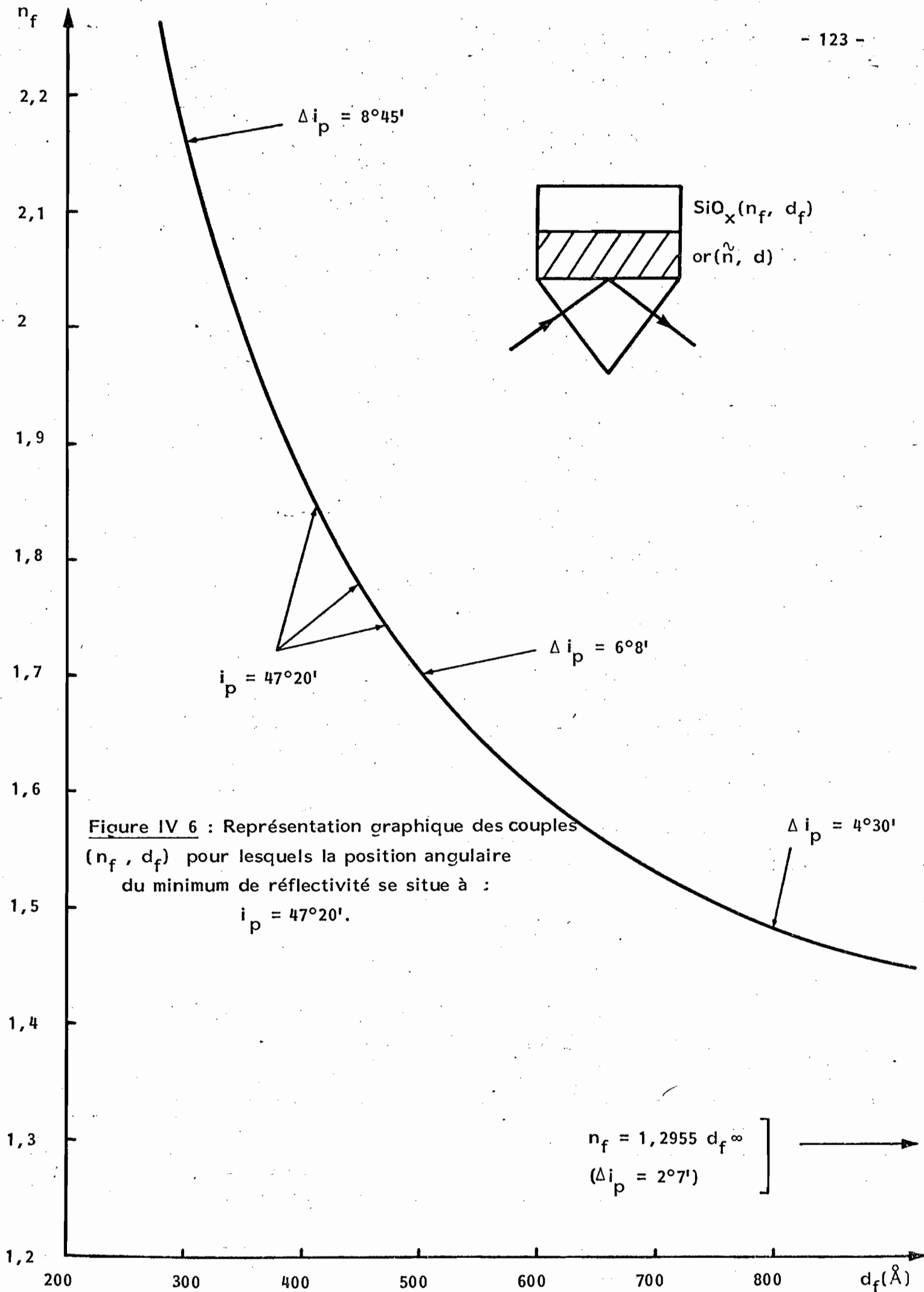
$$n_f = 1,480 \pm 0,005$$

$$d_f = 800 \pm 10 \text{ \AA}$$

On remarquera sur la figure IV 8 le bon accord entre les résultats expérimentaux et les prévisions théoriques, pour une excursion angulaire de 10 degrés, confirmant ainsi la validité du modèle proposé.

Il reste néanmoins une contradiction importante entre l'épaisseur nominale ou supposée (275 Å) et l'épaisseur trouvée ci-dessus (800 Å) ; elle ne peut s'expliquer par une erreur expérimentale ; nous devons admettre que la couche réelle est optiquement équivalente à une couche mince isotrope et non absorbante, d'indice de réfraction 1,48 et d'épaisseur 800 Å. Cette assertion nous semble fondée sur les remarques suivantes :

- une variation des constantes optiques de l'or est envisageable, compte tenu du traitement thermique imposé par le dépôt du SiO_x ; ce "recuit" donne lieu à une recristallisation du métal, qui devient alors plus massif {411}. D'après P. B. Johnson {130} , un recuit à 150 °C pendant 9 heures ne modifie pas la valeur des constantes optiques de l'or ; d'autre part, les mesures effectuées par d'autres expérimentateurs, si elles montrent une certaine dispersion, donnent des résultats très proches de ceux que nous avons obtenus {412} . Une variation de 5 % en valeur relative sur n ou χ donne lieu à des faibles modifications des courbes de réflectivité qui ne peuvent, en aucun cas, expliquer le désaccord trouvé sur l'épaisseur de la couche.



LAMBDA = .6328 microns

PRISME

1.9078 / 0

COUCHE 1

.17 / -3.41

EPAISSEUR = .0525 microns

COUCHE 2 (SiO_x)

	n_f	d_f	Δi_p
(1)	1,296	∞	2°7'
(2)	1,481	800 Å	4°30'
(3)	1,701	500 Å	6°8'
(4)	2,158	300 Å	8°45'

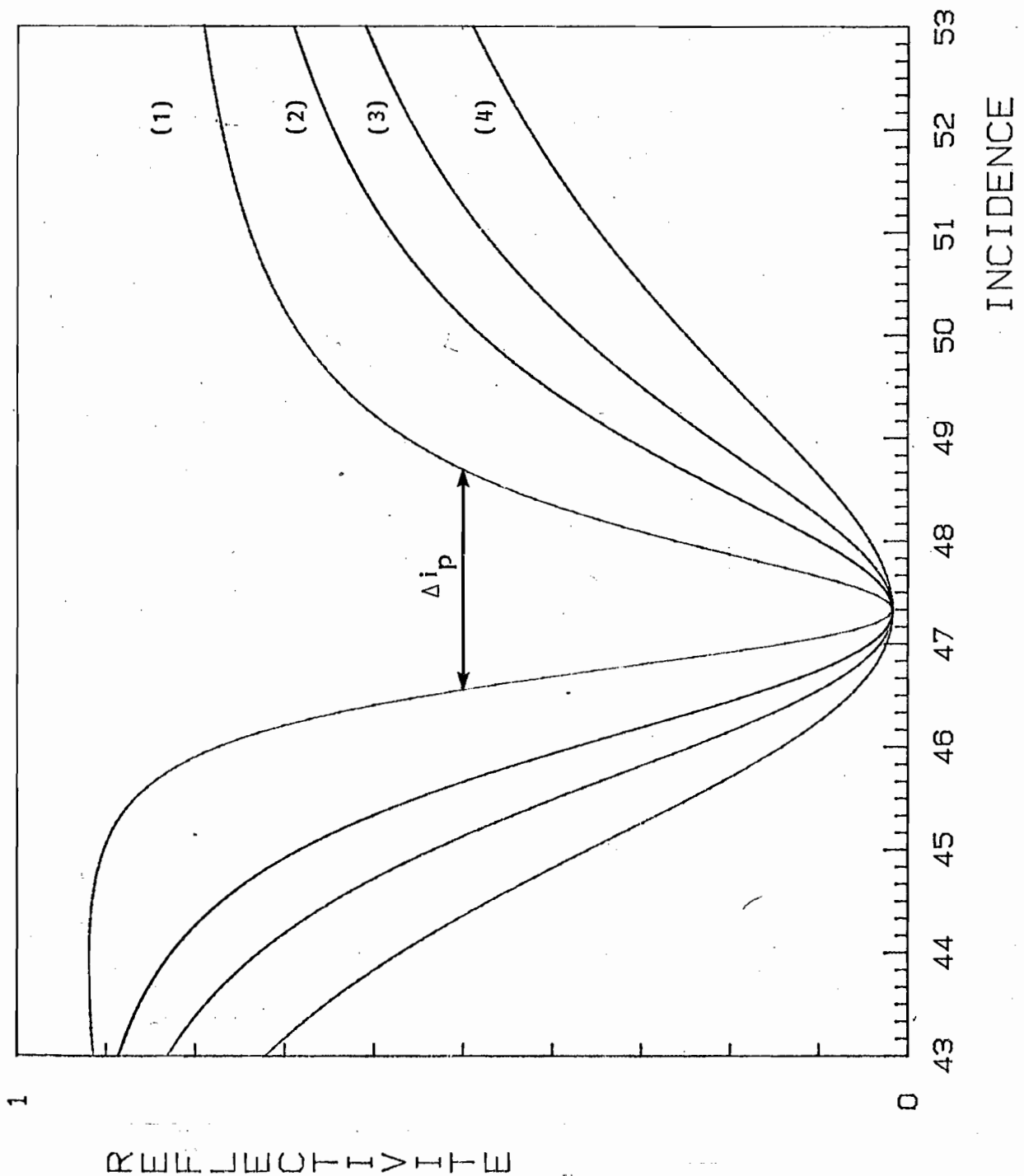
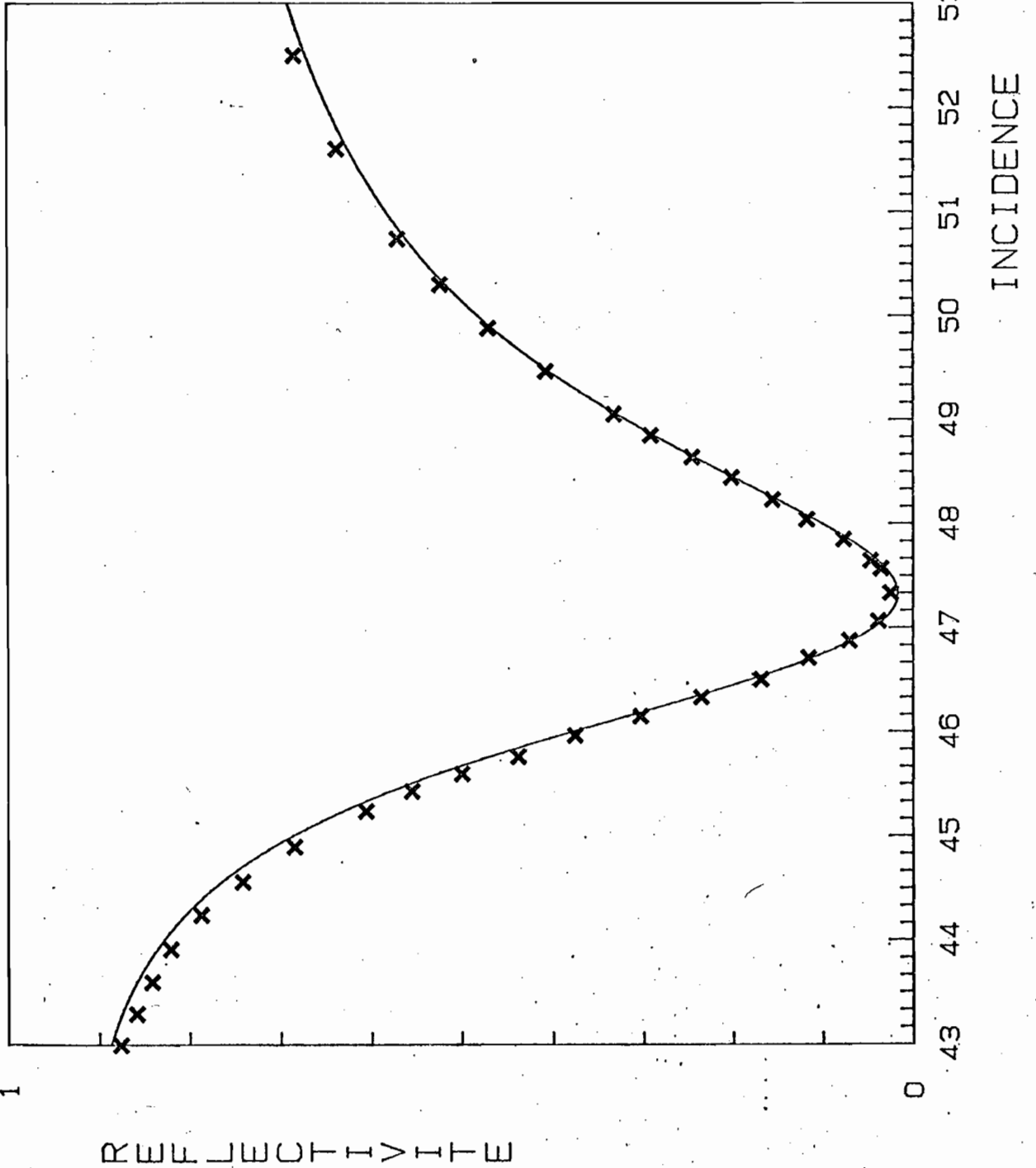


Figure IV 7 : Evolution de la largeur à mi-hauteur (Δi_p) de la courbe de réflectivité en fonction de l'indice de la couche de SiO_x (n_f).



LAMBDA = .6328 microns

PRISME

1.9078 / 0

COUCHE 1

.17 / -3.41

EPAISSEUR = .0525 microns

COUCHE 2

1.477 / 0

EPAISSEUR = .081 microns

DERNIER MILIEU

1 / 0

Figure IV 8 : Résultats théoriques (traits pleins) et expérimentaux (croix).

- on peut songer à une couche de SiO_x légèrement *absorbante* (cf. § IB4), mais ceci conduit en général à une remontée du minimum de réflectivité que nous n'observons pas expérimentalement, et surtout à un élargissement de cette courbe (augmentation de Δi_p) qui va à l'encontre du résultat escompté si l'on suppose, à l'origine, une épaisseur voisine de 300 \AA . De même, une rugosité superficielle de la couche se traduirait par une évolution de la courbe de réflectivité dans le sens d'un élargissement de cette courbe [148, 149], ce que nous n'observons pas non plus dans notre expérience. A ce niveau, le modèle constitué d'un film mince unique est sans doute imparfait, et il conviendrait peut-être d'envisager un système de couches stratifiées optiquement différentes. Une telle modélisation a été suggérée dans une expérience relative à l'excitation optique de plasmons de surface sur un film rugueux d'argent, dans le but d'induire un effet Raman géant sur des molécules de pyridine adsorbées sur ce film [419].

- une autre hypothèse consiste à introduire une *anisotropie* dans la couche, conduisant à une évolution de la forme de la courbe de réflectivité. Malheureusement, les calculs théoriques montrent qu'il faut donner aux indices de réfraction n_o et n_e des valeurs élevées (supérieures à 2), ce que la connaissance du SiO pur rend peu probable ; de plus, on obtient un élargissement sensible des courbes de réflectivité, quelle que soit l'orientation de l'axe optique du matériau supposé uniaxe, ce qui est incompatible avec le résultat expérimental.

- l'indice obtenu (1,48) est inférieur à celui du SiO pur (voisin de 2), ce qui semble indiquer une *inhomogénéité de structure* conforme à ce que l'on sait de la porosité du matériau (présence de lacunes) ; par ailleurs, comme nous l'avons déjà souligné, l'obliquité de l'évaporation du SiO contribue à rendre la couche inhomogène : nous avons obtenu, dans des conditions expérimentales différentes, un indice égal à 1,29 qui correspondait à une couche de 380 \AA d'épaisseur.

En conclusion de cette première expérience, il nous semble qu'une étude systématique serait nécessaire, incluant à la fois la variation de l'épaisseur et des conditions d'évaporation du dépôt. Néanmoins, il est clair, à partir des résultats obtenus, que les expériences qui utilisent l'excitation optique des plasmons de surface sont riches d'enseignement, même si elles conduisent à la remise en cause de notions habituelles telles que l'épaisseur ou l'indice de réfraction d'un matériau en couche mince.

Nous allons maintenant analyser les résultats de l'expérience (II) : le cristal liquide en phase nématique est maintenu en contact direct avec la couche de SiO_x que nous venons d'analyser. Nous nous sommes tout d'abord assuré que l'orientation était planaire et bien homogène sur tout l'échantillon : sur la partie non recouverte d'or (schéma décrit au début du § IVB2b), nous avons mesuré en plusieurs points de la couche un indice effectif de 1,518, égal à l'indice ordinaire du milieu ; un cristal liquide mal orienté présente des défauts de surface, particulièrement visibles au voisinage de l'angle d'incidence limite, et que nous avons quelquefois observé sur certains échantillons. De plus, sur la partie recouverte d'or et qui concerne notre étude, l'application d'un champ électrique a prouvé l'existence d'un seuil caractéristique d'une transition de Fredericksz en ancrage planaire (nous y reviendrons plus loin). Nous avons également étudié les variations de R_p et i_p lorsqu'on déplace l'échantillon suivant Ox et Oy , en plusieurs points de l'échantillon : ces variations locales restent dans les limites des incertitudes expérimentales et nous les considérerons comme négligeables. Pour toutes ces raisons, nous affirmons que *l'orientation initiale du cristal liquide était planaire et homogène sur l'ensemble de l'échantillon*. Dans ces conditions et en l'absence de toute désorientation, nous supposerons toujours qu'il existe au dessus de la couche d'ancrage un milieu optiquement anisotrope, uniaxe et homogène, l'axe optique demeurant parallèle à l'interface.

En l'absence de toute couche intermédiaire, le calcul montre que la position angulaire du minimum de réflectivité se situe à $66^\circ 7'$ ($R_p = 0,06$). Si l'on prend maintenant les valeurs de n_f et d_f obtenues précédemment ($n_f = 1,48$ et $d_f = 800 \text{ \AA}$), nous avons : $i_p = 60^\circ 55'$ ($R_p = 0,04$). Il est clair qu'aucune de ces hypothèses ne peut valablement être retenue, et qu'il faut admettre une modification des constantes optiques de la couche d'ancrage, en particulier de son indice de réfraction, comme nous l'avons annoncé dans le paragraphe introductif. Nous sommes donc amenés, comme précédemment, à rechercher les couples (n_f, d_f) qui sont associés à une même valeur du minimum de réflectivité ($i_p = 70^\circ$). Le tableau ci-dessous et la courbe de la figure IV 9 montrent le résultat des calculs théoriques.

n_f	1,5915	1,5921	1,5945	1,6030	1,610	1,6409
d_f (Å)	∞	3000	1500	800	600	300

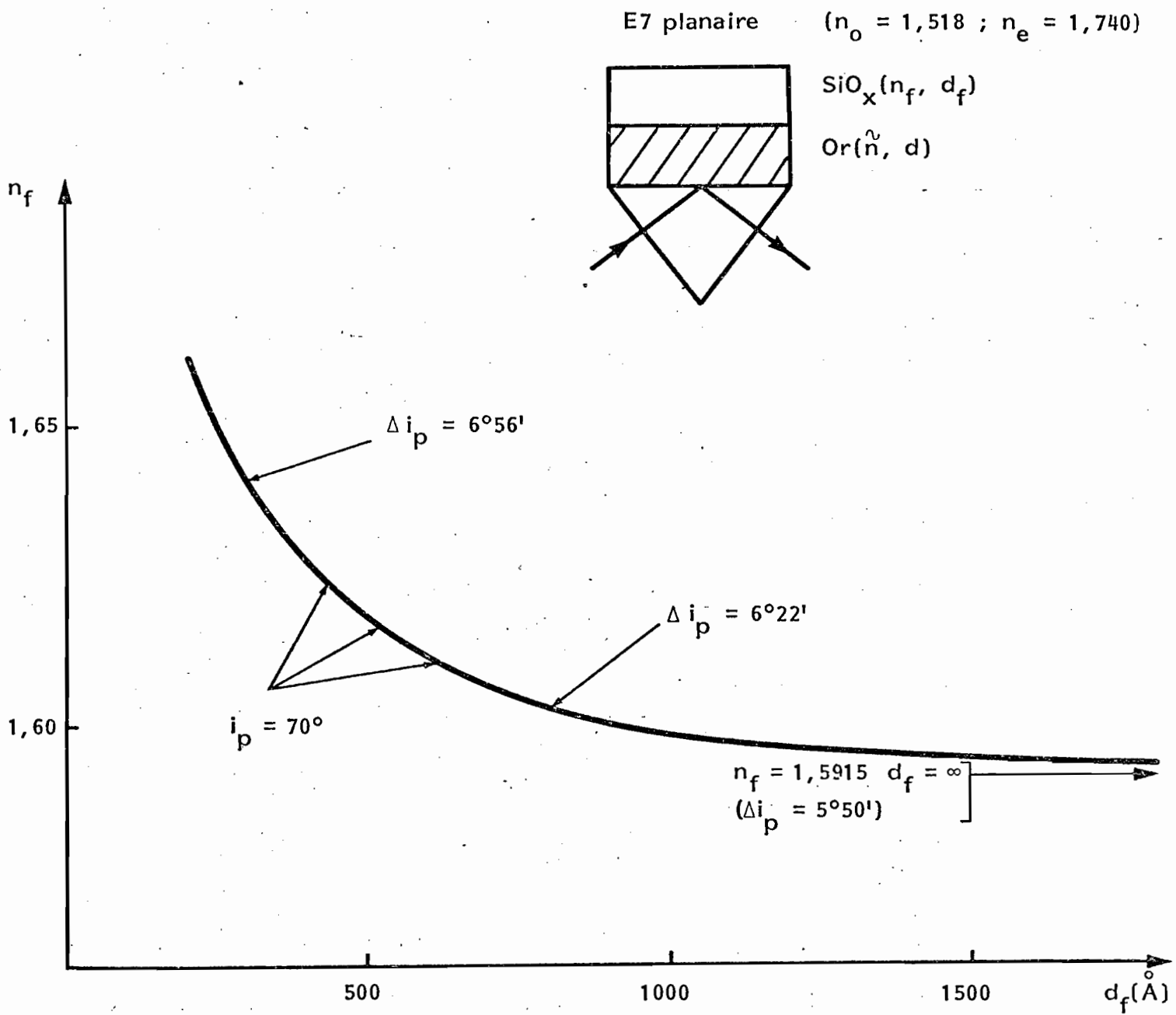


Figure IV 9 : Evolution de la largeur à mi-hauteur (Δi_p) de la courbe de réflectivité en fonction de l'indice de la couche de SiO_x (n_f).

Là encore, la largeur à mi-hauteur Δi_p dépend du couple choisi, mais les variations sont moins importantes, comme en témoignent les courbes de réflectivité de la figure IV 10, où nous avons également indiqué les résultats expérimentaux. L'accord n'est pas très satisfaisant, même si l'on tient compte des incertitudes expérimentales ; nous pouvons en donner plusieurs raisons :

- une légère diminution de la partie réelle de la constante optique de l'or ($n = 0,165$ au lieu de $0,17$) permet de diminuer simultanément R_p et Δi_p , ce qui donne un meilleur accord entre les courbes théoriques et expérimentales. Mais, il convient de noter le caractère *artificiel* d'un tel changement, qui ne conduit pas à une amélioration de la précision dans la détermination du couple (n_f, d_f).

- *le modèle en couches minces stratifiées que nous avons adopté jusqu'à présent peut être remis en cause, compte-tenu du caractère particulièrement inhomogène des milieux en présence.* Néanmoins, la position angulaire du minimum de réflectivité, correspondant à l'excitation maximale des plasmons de surface, nous semble être le critère le moins discutable ; l'adaptation entre les courbes théoriques et expérimentales sur plusieurs degrés d'incidence autour de cette position est plus aléatoire, d'autant plus que le nombre de paramètres ajustables augmente avec la complexité du système.

Suivant ces remarques et en s'appuyant sur les résultats obtenus dans l'expérience (1), on peut estimer l'épaisseur de la couche d'ancrage voisine de 800 \AA , ce qui conduit à la valeur de son indice de réfraction en présence de cristal liquide :

$$n_f = 1,60 \pm 0,01$$

Cette dernière valeur corrobore ainsi l'hypothèse d'une couche *poreuse*, qui "absorberait" le cristal liquide comme une éponge, lui conférant une structure très complexe, au niveau microscopique comme au niveau macroscopique. Il est intéressant de noter que, si l'on suppose une orientation aléatoire des molécules constituant la phase nématique, l'indice

LAMBDA = .6328 microns

PRISME
1.9078 / 0

COUCHE 1
.17 / -3.41

EPAISSEUR = .0525 microns
COUCHE 2

	n_f	d_f	Δi_p
(1)	1,5915	∞	5°50'
(2)	1,6030	800 Å	6°22'
(3)	1,6409	300 Å	6°56'

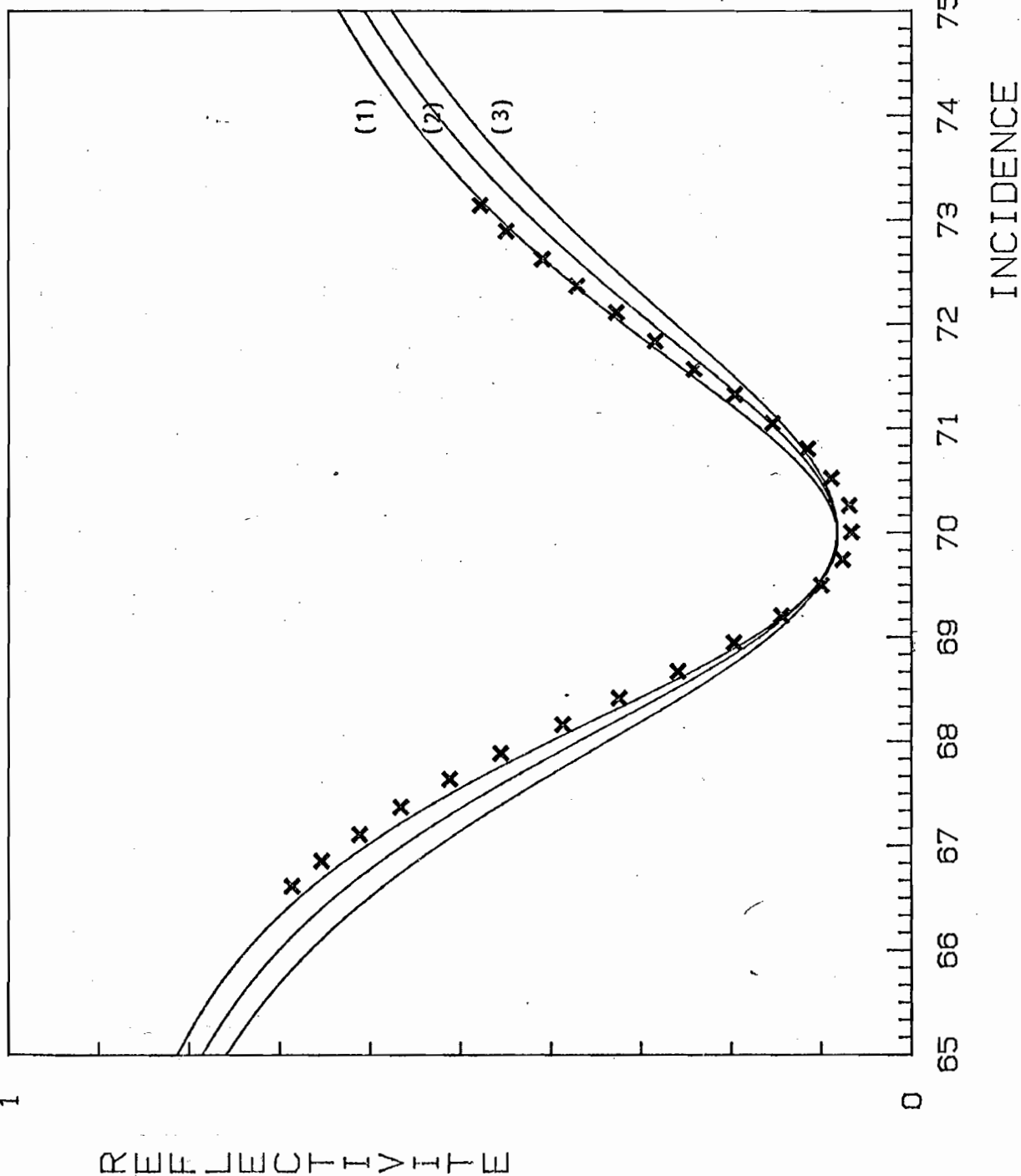


Figure IV 10 : Résultats théoriques (traits pleins) et expérimentaux (croix).

moyen de cette phase est approximativement donné par une relation de la forme :

$$n_{\text{moyen}}^2 = \frac{1}{3} (2 n_o^2 + n_e^2) \quad (\text{IV.19})$$

Soit, en prenant : $n_o = 1,518$ et $n_e = 1,740$: $n_{\text{moyen}} = 1,595$.

Les mesures que nous avons effectuées ne permettent malheureusement pas d'aller plus loin dans la compréhension des phénomènes physico-chimiques qui se produisent au sein de matériaux de structure fort complexe, mais nous allons voir, dans le prochain et dernier paragraphe de ce chapitre, que l'application d'un champ électrique à l'échantillon apporte des éléments nouveaux au problème des interactions entre le cristal liquide et son substrat.

IV B 3 - La mesure de l'énergie d'ancrage : possibilités expérimentales et discussion

Dans le premier paragraphe, nous avons calculé les effets d'une force d'ancrage finie sur la désorientation du directeur au voisinage de l'interface, lorsque l'échantillon est soumis à un champ électrique : pour une valeur du paramètre d'ancrage a et de la tension réduite v , les relations (IV.15) et (IV.16) permettent de déterminer l'orientation du directeur en surface α_o ainsi que le gradient de déformation à l'origine α'_o . L'étude précédente a montré l'influence considérable de la couche d'ancrage sur les courbes de réflectivité qui traduisent l'excitation optique des plasmons de surface à l'interface or/nématique. Nous allons maintenant étudier l'évolution de ces courbes en fonction du champ électrique appliqué, en essayant d'interpréter les résultats expérimentaux qui doivent nous conduire à la détermination de l'énergie d'ancrage.

IV B 3 a - Conditions expérimentales et résultats des mesures

Le dispositif d'étude a été décrit en détail dans les paragraphes précédents ; nous avons utilisé les couches d'or comme électrodes en vue d'appliquer une tension alternative aux deux plaques du condensateur ainsi formé. Il faut, en effet, éviter d'appliquer une tension continue qui risque de créer des charges d'espace, induisant des instabilités électrohydrodynamiques indésirables dans l'expérience présente {205, 413, 414}. La fréquence de la tension sinusoïdale utilisée se situe à 1 kHz. Le choix de cette valeur est

un bon compromis entre une fréquence trop élevée (supérieure à 100 kHz) où les effets de dispersion interviennent (en particulier la diminution de $\epsilon_{//}$ {415, 416}) et une fréquence trop basse qui peut induire une réorientation macroscopique du milieu. Par ailleurs, nous n'avons décelé aucun changement dans les courbes de réflectivité dans une gamme de fréquences s'étendant de 1 à 10 kHz. Dans ces conditions, nous avons relevé les valeurs efficaces des tensions appliquées à l'échantillon ; c'est ainsi que nous avons obtenu la valeur suivante de la tension de seuil :

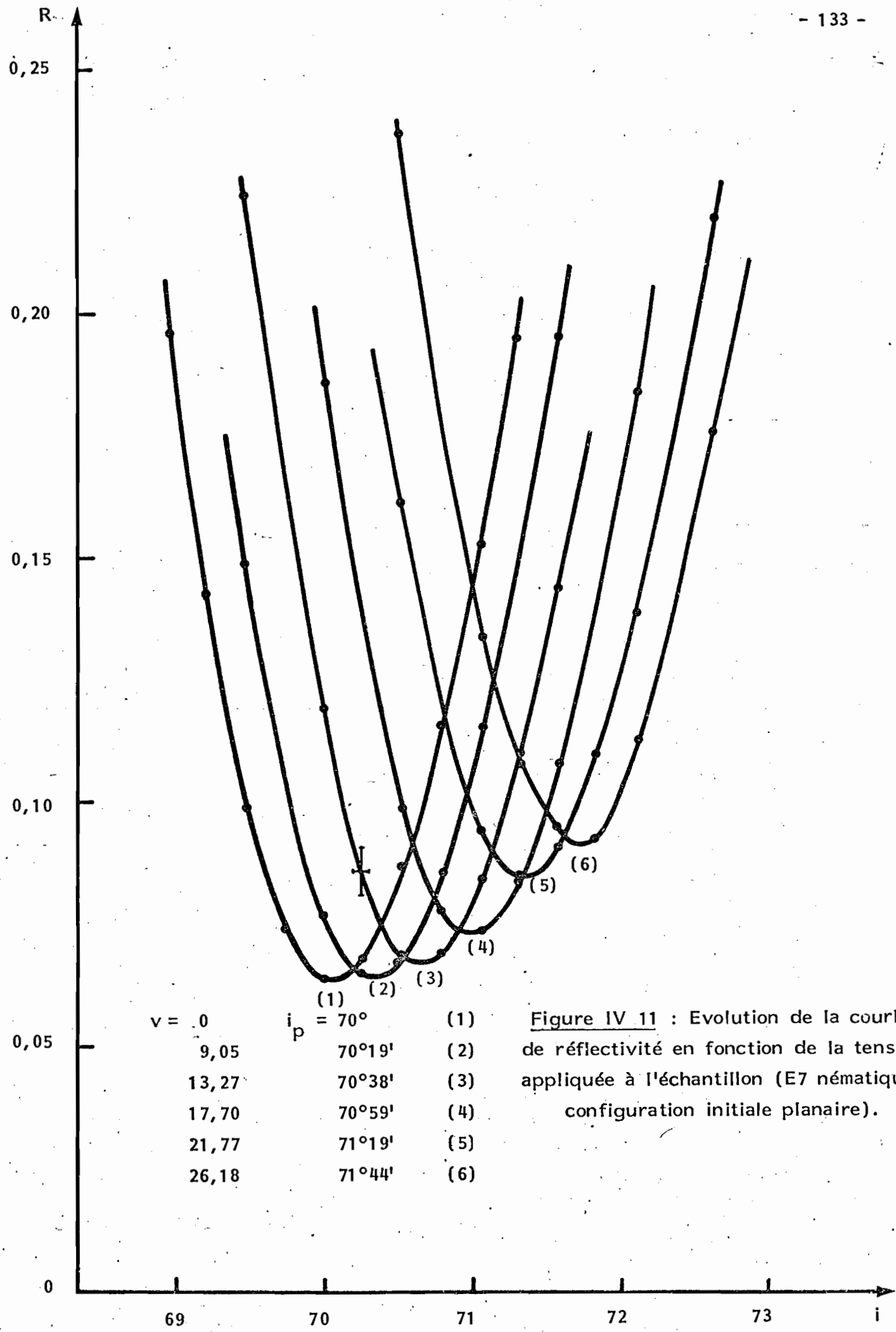
$$V_0 = 0,93 \pm 0,01 \text{ volts}$$

Si l'on calcule cette tension à partir des valeurs données dans les références {255} et {256}, on obtient (pour $\Delta\epsilon = 14,4$ et $K_1 = 10,7 \times 10^{-7}$ dynes) : $V_0 = 0,91$ volts . Notons qu'à la température ambiante, la variation thermique de cette tension de seuil est négligeable (environ 10 mV/°C).

Nous avons donc suivi l'évolution de la courbe de réflectivité tracée en fonction de l'angle d'incidence pour quelques valeurs de la tension appliquée V ; les résultats expérimentaux sont indiqués sur la figure IV 11 ainsi que dans le tableau suivant, dans lequel nous avons également fait figurer le gradient de déformation à l'origine α'_0 en fonction de la tension réduite v , dans le cas d'un ancrage infiniment fort :

V(volts)	v	i_p	R_p	α'_0 (a = 0) en degrés/1000 Å
0	0	70°	0,06	0
8,42	9,05	70°19'	0,07	23,3
12,34	13,27	70°38'	0,07	34,1
16,46	17,70	70°59'	0,07	45,5
20,25	21,77	71°19'	0,08	56,0
24,35	26,18	71°44'	0,09	67,3

La dernière valeur obtenue se situe à la limite de validité de notre approximation, qui suppose un gradient de déformation n'excédant pas 1 radian/1000 Å (relation II.1) ; nous atteignons la tension limite de claquage,



$v =$	$i_p =$	
9,05	$70^\circ 19'$	(1)
13,27	$70^\circ 38'$	(2)
17,70	$70^\circ 59'$	(3)
21,77	$71^\circ 19'$	(4)
26,18	$71^\circ 44'$	(5)
		(6)

Figure IV 11 : Evolution de la courbe de réflectivité en fonction de la tension appliquée à l'échantillon (E7 nématique ; configuration initiale planaire).

compte tenu des champs très intenses qui règnent au sein de la couche de cristal liquide (jusqu'à 20 kV/cm). Néanmoins, l'expression brute des résultats expérimentaux traduit deux phénomènes caractéristiques :

- la valeur de R_p est peu modifiée par l'application du champ électrique.
- le déplacement angulaire de i_p nécessite des tensions élevées.

Notons par ailleurs que nous n'avons pas observé d'évolution importante dans les courbes de réflectivité, en particulier dans leur forme. Nous allons à présent essayer d'interpréter ces résultats à partir des modèles théoriques proposés précédemment.

IV B 3 b - Interprétation des résultats et discussion

Si l'on suppose, bien que cela puisse être "à priori" contestable, que la couche d'ancrage n'est pas modifiée par l'action du champ électrique, on est amené à étudier l'évolution de la courbe de réflectivité en faisant varier indépendamment trois groupes de paramètres :

- l'indice de réfraction et l'épaisseur de la couche d'ancrage (n_f et d_f), comme nous l'avons fait auparavant.
- l'orientation de l'axe optique en surface α'_0 .
- le gradient de déformation à l'origine α''_0 .

Nous avons ainsi calculé l'évolution de la position du minimum de réflectivité en fonction de ces différents paramètres, en supposant une désorientation linéaire de l'axe optique suivant l'axe Oz ; le gradient de déformation est ainsi égal au gradient de déformation à l'origine α''_0 . Une telle approximation se justifie par la faible valeur de la profondeur de pénétration de l'onde électromagnétique de surface dans le milieu anisotrope (de l'ordre de 1500 Å) : la désorientation de l'axe optique est d'autant moins sensible que l'on s'éloigne de l'interface métal/cristal liquide, la présence d'une couche intermédiaire ne faisant qu'amplifier le phénomène. Le tableau I indique les résultats de ce calcul théorique. Nous n'y avons pas fait figurer

couche d'ancrage		α'_o : gradient de déformation angu- laire (degrés/1000 Å)	$\alpha_o = 0$	$\alpha_o = 5^\circ$	$\alpha_o = 10^\circ$	$\alpha_o = 15^\circ$
n_f	$d_f(\text{Å})$					
1,668	200	0	70°	70°6'	70°22'	70°49'
		2,4	70°15'	70°9'	70°27'	70°56'
		7,5	70°9'	70°19,5'	70°42'	71°15'
		24	71°11'	71°35,5'	72°8,5'	72°50,5'
1,622	400	0	70°	70°4'	70°15'	70°34'
		2,4	70°	70°6'	70°18,5'	70°38'
		7,5	70°5'	70°13'	70°28,5'	70°51,5'
		24	70°49,5'	71°6,5'	71°29,5'	71°58,5'
1,610	600	0	70°	70°1'	70°9'	70°22'
		2,4	70°	70°3,5'	70°12'	70°25,5'
		7,5	70°2,5'	70°8,5'	70°19'	70°35'
		24	70°33,5'	70°46'	71°2'	71°22,5'
		75	72°58'			
1,603	800	0	70°	70°2'	70°8'	70°17'
		2,4	70°1'	70°3'	70°9'	70°18,5'
		7,5	70°2,5'	70°6,5'	70°14'	70°24,5'
		24	70°24,5'	70°33'	70°44,5'	70°59'
		75	72°9'	72°19'	72°30'	72°43'

Tableau I : Evolution angulaire de la position du minimum de réflectivité (i_p) en fonction de la couche d'ancrage (n_f , d_f), de l'angle d'orientation en surface (α_o) et de du gradient de déformation (α'_o).

les valeurs de R_p , qui ne dépendent que de i_p , et sont comprises entre $0,08$ ($i_p = 70^\circ$) et $0,11$ ($i_p = 73^\circ$). Il est intéressant de remarquer que l'on peut obtenir des valeurs identiques de i_p et R_p dans deux cas différents, comme le montre l'exemple suivant :

$$\left. \begin{array}{l} n_f = 1,603 \\ i_p = 70^\circ 24,5' \end{array} \right\} \text{ et } \left. \begin{array}{l} d_f = 800 \text{ \AA} \\ R_p = 0,0842 \end{array} \right\} \begin{array}{l} \rightarrow \alpha_o = 0 \\ \rightarrow \alpha_o = 15^\circ \end{array} \quad \begin{array}{l} \alpha'_o = 24 \text{ degrés}/1000 \text{ \AA} \\ \alpha'_o = 7,5 \text{ degrés}/1000 \text{ \AA} \end{array}$$

Nous avons déjà souligné les difficultés d'une adaptation complète entre les courbes théoriques et expérimentales, ce qui signifie qu'en l'absence d'autres informations sur le système, on ne saurait lever l'indétermination ; néanmoins, l'application d'un champ électrique à l'échantillon détermine des valeurs particulières de α_o et α' qui dépendent de l'énergie d'ancrage, et cela nous permet de lever une telle indétermination.

En comparant les valeurs du tableau I et les mesures que nous avons effectuées, on voit apparaître deux résultats fondamentaux :

- l'épaisseur de la couche d'ancrage est bien voisine de 800 \AA , comme nous l'avons démontré dans une étude antérieure ; une épaisseur plus faible conduirait manifestement à des variations de i_p très supérieures à celles que nous avons observées. D'autre part, l'indice de réfraction de cette couche ne semble pas avoir varié par l'application du champ électrique, ce qui confirmerait l'hypothèse faite à priori.

- l'ancrage est fort ($W \geq 1 \text{ erg/cm}^2$) ; si l'on compare en effet les valeurs expérimentales et celles obtenues dans le cas théorique où $a = 0$, on constate un très bon accord (courbe de la figure IV 12). Pour $W = 1 \text{ erg/cm}^2$, les relations (IV.15) et (IV.16) nous donnent ($\alpha_o \ll 1$) :

$$\alpha_o = \frac{av}{2} (\epsilon_{//} / \epsilon_{\perp})^{1/2} \quad \text{(IV.20)}$$

$$\alpha'_o = \frac{2\pi}{ae} \alpha_o = \frac{\pi v}{e} (\epsilon_{//} / \epsilon_{\perp})^{1/2} \quad \text{(IV.21)}$$

La relation (IV.21) correspond aussi à un ancrage infiniment fort ($a = 0$). En prenant les valeurs numériques déjà utilisées, on obtient :

$$\alpha_o = 0,13 \text{ v (en degrés)}$$

$$\alpha'_o = 2,57 \text{ v (en degrés}/1000 \text{ \AA)}$$

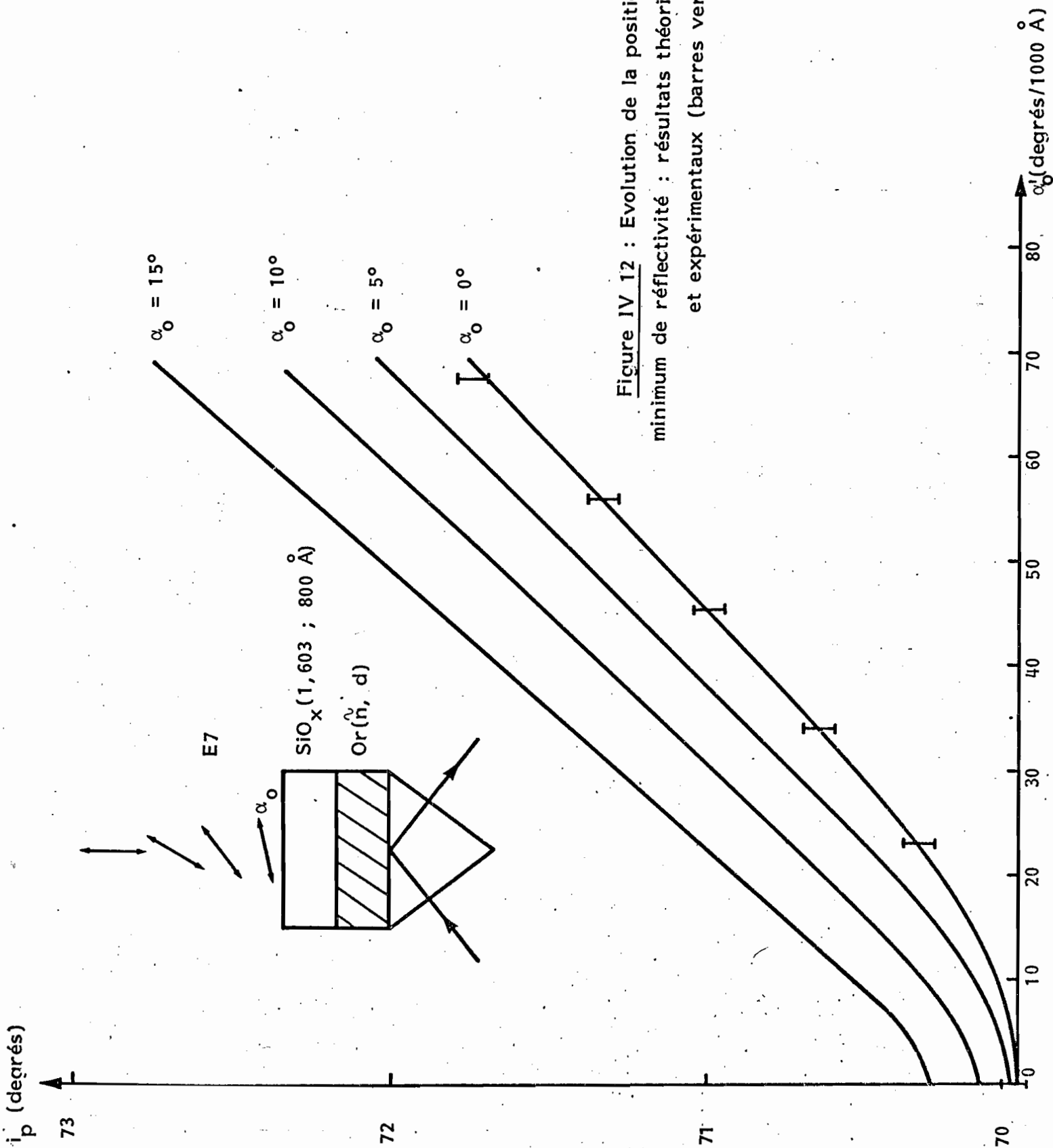


Figure IV 12 : Evolution de la position angulaire du minimum de réflectivité : résultats théoriques (traits pleins) et expérimentaux (barres verticales)

A ce niveau, la seule information utilisable est la variation (linéaire) de α_0 en fonction de la tension réduite v ; malheureusement, l'incertitude sur la mesure de i_p (± 3 minutes d'arc) ne permet pas de déterminer avec précision la valeur de l'énergie d'ancrage du système que nous avons analysé en détail, car la désorientation en surface ne peut excéder deux ou trois degrés ($\alpha_0 = 2,6$ pour $v = 20$), en supposant $W \geq 1 \text{ erg/cm}^2$.

D'après ce qui vient d'être dit, le problème essentiel réside dans la *perturbation apportée par la couche d'ancrage*. L'évaporation thermique de SiO_2 , si elle s'avère très efficace pour induire l'orientation planaire d'un cristal liquide en phase nématique, laisse un doute quant au mécanisme d'orientation des molécules par cette méthode. A ce jour, aucune expérience n'a apporté d'éléments précis sur le sujet. Néanmoins, *notre étude montre que les interactions entre le cristal liquide et la couche de SiO_x sont très fortes*, comme en témoigne une évolution relativement faible des courbes de réflectivité malgré l'intensité du champ électrique appliqué à l'échantillon. *On peut estimer l'énergie d'ancrage du système analysé à une valeur supérieure ou égale à 1 erg/cm^2 .*

Bien qu'il y ait fort peu de mesures de l'énergie d'ancrage, comme nous l'avons souligné au chapitre II, il nous faut citer une expérience très similaire à la nôtre, menée récemment par des chercheurs des laboratoires IBM (San José et New-York) ; les premiers résultats, publiés par G. J. Sprokel, R. Santo et J.D. Swalen {417} ont été repris par K. H. Yang {248}, qui a introduit l'énergie d'ancrage dans le calcul de la déformation du cristal liquide sous champ électrique. La différence essentielle réside dans la méthode de dépôt de la couche d'ancrage : par l'utilisation de la pulvérisation réactive (cf. chapitre II et référence {224}), le matériau déposé est de la silice amorphe, de structure beaucoup plus compacte que celle du SiO_x évaporé thermiquement. A partir d'une couche de 215 \AA d'épaisseur et d'indice de réfraction égal à $1,457$, l'énergie d'ancrage a été trouvée égale à $0,11 \pm 0,05 \text{ erg/cm}^2$.

En conclusion de cette analyse, il est clair que l'épaisseur de la couche d'ancrage, supérieure à celle initialement prévue, a diminué la sensibilité de notre méthode : les effets de désorientation induits par le champ électrique ont été *écrantés* par cette couche de SiO_x . Il reste également le caractère très complexe de la structure du matériau évaporé sous incidence

oblique : la porosité de la couche a été mise en évidence dans l'expérience que nous avons réalisée et qui montre, une fois encore, l'intérêt de l'excitation optique de plasmons de surface pour l'étude de matériaux inhomogènes et anisotropes.

Il serait intéressant, dans le cadre de la détermination des forces d'ancrage, de poursuivre nos investigations de manière plus systématique et sur d'autres échantillons. Nous pensons en particulier à de nouveaux matériaux que l'on peut déposer en couches minces (polyimides) et que l'on sait orienter un cristal liquide en phase nématique {410}. Du fait de la très grande sophistication des procédés utilisés dans la réalisation de cellules nématiques homogènes (application industrielle aux afficheurs), ce type d'étude ne peut être mené qu'en collaboration étroite avec un laboratoire de recherche disposant d'un important support technologique ; dans ces conditions, nous sommes persuadés que la méthode que nous proposons est susceptible d'apporter des éléments nouveaux dans la compréhension de ces difficiles problèmes d'ancrage.

CHAPITRE V

ONDES EVANESCENTES ET ONDES ELECTROMAGNETIQUES DE SURFACE :
LIMITATIONS ET PERSPECTIVES DANS LE CADRE DE
L'ETUDE D'UNE INTERFACE SOLIDE-FLUIDEV A - INTRODUCTION

L'essentiel de ce travail a été consacré à l'étude d'un cristal liquide en phase nématique par deux méthodes souvent complémentaires : la première de ces méthodes utilise les propriétés de propagation d'une onde électromagnétique dans des conditions proches de la réflexion totale, et la seconde met en jeu l'excitation optique de plasmons de surface au niveau d'une interface métal-diélectrique. Leur point commun réside dans le fait qu'une onde électromagnétique se propage le long de l'interface et que sa profondeur de pénétration dans le milieu étudié reste faible, inférieure à la longueur d'onde de la lumière. L'énergie transportée par l'onde incidente se trouve ainsi confinée dans une couche superficielle très mince, ce qui rend la propagation de l'onde évanescente ou de l'onde de surface très sensible à toute perturbation se produisant au voisinage de l'interface.

Le matériau que nous avons utilisé présente la particularité d'être diffusant et fortement anisotrope ; ses propriétés d'orientation au contact d'un substrat sont conditionnées par la présence d'une couche d'ancrage de nature complexe et dont nous avons eu l'occasion d'analyser un exemple dans le chapitre précédent. Malgré la difficulté d'une analyse précise de ces milieux, nos méthodes optiques ont permis d'apporter quelques éléments nouveaux à l'étude des phases nématiques, mettant en évidence des propriétés qui ne peuvent être révélées par les techniques habituelles, qui prennent en compte, sans les discerner, les phénomènes de surface et les phénomènes de volume.

Comme nous l'avons dit, il resterait encore beaucoup de travail à effectuer sur les ancrages, et notamment sur les ancrages faibles ; en ce domaine, les limitations semblent venir d'une connaissance imparfaite de la physico-chimie des surfaces et des interactions entre le cristal liquide et son substrat. L'étude de ces phénomènes très complexes souffre d'un manque de reproductibilité comme en témoignent les résultats obtenus dans la littérature (cf. chapitre II). Par ailleurs, il faut remarquer que le cristal liquide joue

le rôle d'un "révélateur" pour les couches d'ancrage et à cet égard, nous avons montré que les méthodes que nous préconisons s'avèrent efficaces. Cette sensibilité aux phénomènes superficiels nous amène à déborder le cadre spécifique des phases mésomorphes et à nous demander s'il n'existe pas des applications intéressantes dans d'autres domaines de la physique.

L'utilisation des ondes électromagnétiques de surface a permis des études approfondies dans des domaines aussi différents que l'électrochimie {501}, l'étude des rugosités de surface {502}, la spectroscopie {503} ou l'étude des effets non linéaires en surface {504}. Il reste néanmoins beaucoup d'autres perspectives dans le cadre des interfaces solide-fluide, concernant des milieux "optiquement difficiles" : absorbants, inhomogènes, diffusants, ces milieux font partie de la physique moderne et méritent des études toujours plus approfondies.

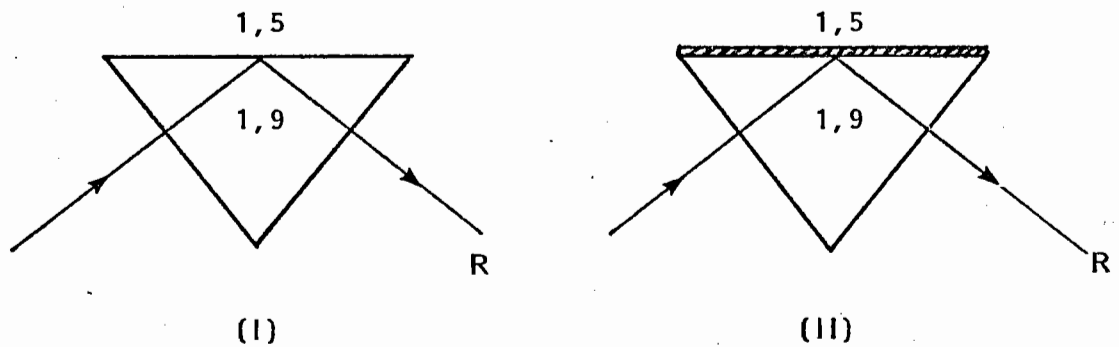
Le but de ce chapitre n'est pas de faire un inventaire exhaustif de toutes les possibilités d'application de nos méthodes, mais d'en montrer les limitations sur quelques exemples typiques : ondes évanescentes et ondes électromagnétiques de surface seront ainsi comparées, chacune des techniques qui leur sont associées devant être adaptée aux expériences futures. C'est dans cet esprit prospectif que nous allons poursuivre ce chapitre, en espérant qu'il contribuera modestement à faire naître de nouvelles études.

V B - ONDES EVANESCENTES ET ONDES ELECTROMAGNETIQUES DE SURFACE : SIMILITUDES ET DIFFERENCES.

Nous allons maintenant comparer nos deux méthodes d'investigation en examinant les différentes propriétés des ondes électromagnétiques qui nous servent à sonder un milieu au voisinage d'une interface : ondes évanescentes et ondes électromagnétiques de surface possèdent en effet des points communs et des différences qu'il convient de rappeler brièvement ici.

Les géométries adoptées seront identiques dans tout ce qui va suivre : dans les deux cas, un prisme à réflexion totale d'indice de réfraction égal à 1,9 sera surmonté du milieu à analyser d'indice de réfraction égal à 1,5 ; le choix de ces indices a un caractère très général, mais une adaptation à une

expérience particulière est toujours envisageable.



- cas (I) : onde évanescente

L'onde incidente est en réflexion totale sur le dernier milieu ; au delà de l'angle d'incidence limite ($i_\ell = \text{Arc sin } (1,5 / 1,9) = 52^\circ 8'$) existe une onde évanescente dont l'amplitude décroît exponentiellement lorsqu'on s'éloigne de l'interface ; la profondeur de pénétration de cette onde, théoriquement infinie à l'angle d'incidence limite, décroît très rapidement comme le montre le tableau ci-après {505} :

$i - i_\ell$	3'	15'	30'	1°	5°
profondeur de pénétration en unités de longueur d'onde	2,88	1,29	0,91	0,65	0,29

En faisant varier l'angle d'incidence, il est donc possible de sonder le milieu sur des profondeurs différentes.

- cas (II) : onde électromagnétique de surface

Cette géométrie diffère de la précédente par la présence d'une couche intermédiaire métallique nécessaire à l'excitation de plasmons de surface. Nous ne donnerons pas de détails sur le sujet, que nous avons traité dans le premier chapitre. L'or a été choisi comme métal, sous une épaisseur de 520 Å. Pour la

longueur d'onde utilisée ($\lambda = 6328 \text{ \AA}$), la constante optique complexe a pour valeur : $\tilde{n} = 0,17 - i 3,4$.

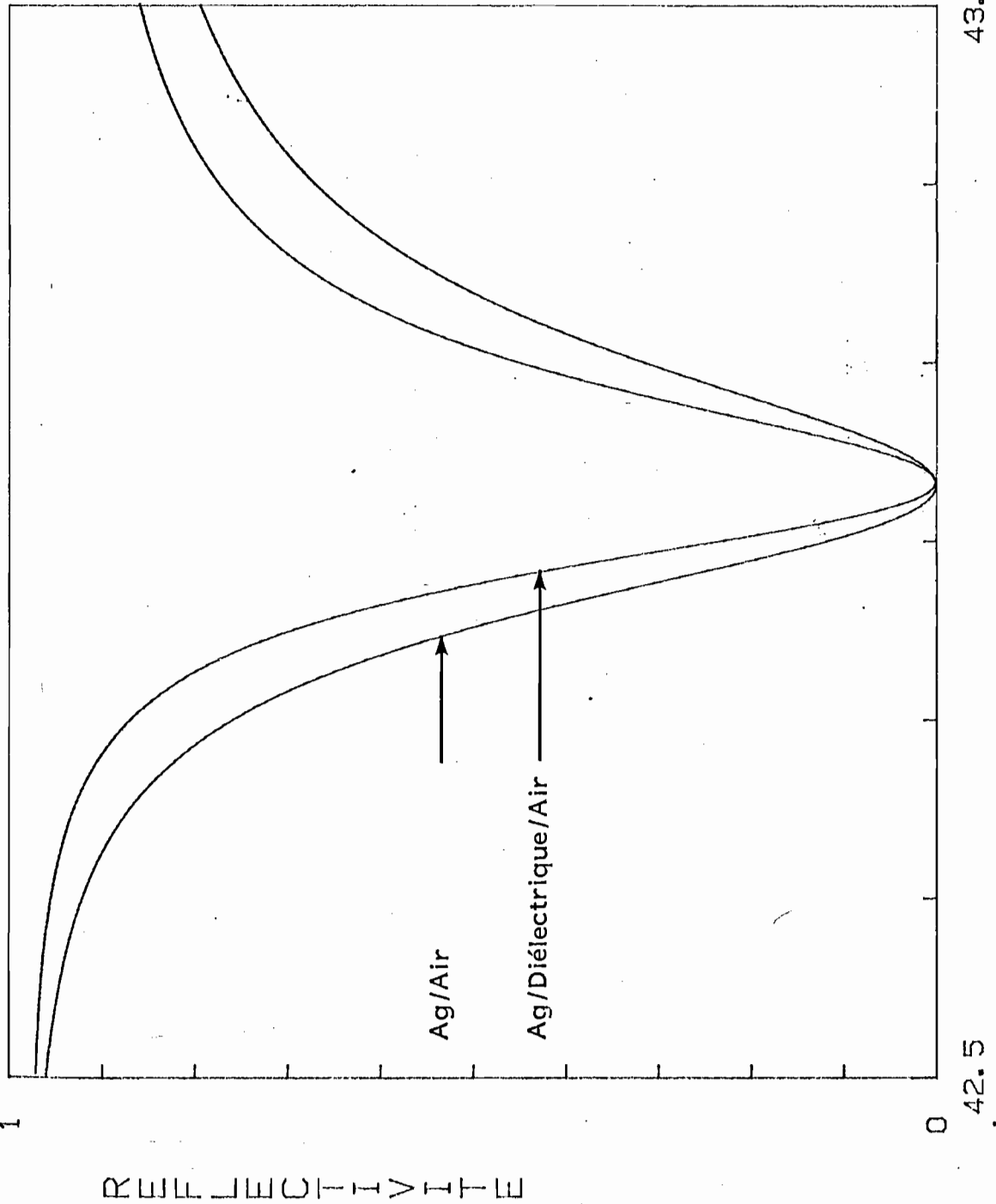
Nous avons montré précédemment et nous considérerons donc par la suite que de faibles variations autour de ces valeurs nominales sont négligeables par rapport aux effets observés.

Si l'on effectue une exploration angulaire autour de la position du minimum de réflectivité i_p , on peut montrer que la profondeur de pénétration de l'onde de surface est pratiquement constante et voisine de 1000 \AA ; par contre, l'amplitude du champ électromagnétique dans le milieu analysé est maximale pour une incidence égale à i_p , et son intensité est plus importante que dans le cas de l'onde évanescente (amplification dépendant essentiellement de la permittivité diélectrique du métal choisi). Il en résulte une plus grande sensibilité de cette méthode aux perturbations se produisant très près de l'interface, sur une profondeur de l'ordre de 500 \AA .

Avant de faire une comparaison théorique basée sur quelques exemples, il convient de noter les *contraintes technologiques* imposées par chacune des méthodes.

L'utilisation de l'onde évanescente est la plus simple : elle ne nécessite qu'un prisme à réflexion totale. Les seules contraintes se situent au niveau de la qualité de la surface en contact avec le fluide étudié. La propreté "physico-chimique" du verre doit être soigneusement contrôlée : absence de contaminants d'origine diverse, de poussières, de traces d'oxyde, ... A cela s'ajoute la propreté "optique" du verre, qui se traduit par une très faible rugosité de la surface ($\sigma < 10 \text{ \AA}$), une interface rugueuse provoquant une diffusion de la lumière dans le milieu étudié.

Le premier obstacle à l'utilisation de la méthode par excitation de plasmons de surface est la présence du métal en contact direct avec l'échantillon ; ce dernier doit présenter le moins d'affinités chimiques possible avec le métal, afin de ne pas modifier la structure des premières couches atomiques situées au voisinage de l'interface. A cet égard, l'or est plus favorable que l'argent ou l'aluminium, qui peuvent réagir violemment dès qu'on les met en contact avec certains liquides organiques.



LAMBDA = .6328 microns

PRISME
1.51 / 0

COUCHE 1
.088 / -4.195
EPAISSEUR = .0493 microns

DERNIER MILIEU
1 / 0

Figure V 1 : Modification apportée sur la courbe de réflectivité par une couche diélectrique d'indice 1,5 et de 0,29 μm d'épaisseur.

43.5

INCIDENCE

42.5

REFLECTIVITE

D'autre part, la structure de la couche métallique, qui dépend des conditions dans lesquelles elle a été déposée sur son substrat de verre, a une influence considérable sur les résultats expérimentaux ; là encore, on ne saurait se contenter d'une surface rugueuse au profil tourmenté. Il est toutefois possible de protéger le métal en y déposant une couche diélectrique convenablement choisie ; semblable aux couches anti-reflet utilisées pour les traitements de surface des verres d'optique, ce film protecteur préserve le métal d'une éventuelle détérioration. En choisissant une épaisseur et un indice appropriés, on peut montrer que la présence de cette couche, ne modifie pas la position du minimum de réflectivité, comme le montre l'exemple de la figure V1 relatif à une couche d'argent en contact avec l'air (on observe par contre un rétrécissement de la courbe de résonance).

Dans tous les cas, on ne peut prétendre mettre en évidence des modifications qui se produiraient à une échelle "microscopique" ou atomique : ces propriétés locales doivent être étudiées par d'autres techniques d'analyse (microscopie électronique à haute résolution, diffraction de rayons X, ...). Par contre, il est possible d'envisager la recherche d'effets "macroscopiques", ou semi-locaux, sur des dimensions allant de quelques dizaines à quelques milliers d'angströms. C'est dans ce domaine que nous allons prendre deux exemples d'étude, assez significatifs des limitations de notre méthode : la caractérisation optique d'une couche mince superficielle et la détermination d'un profil d'inhomogénéité au voisinage de l'interface.

V C - MISE EN EVIDENCE D'UNE COUCHE MINCE SUPERFICIELLE

Nous allons maintenant étudier les modifications apportées sur les courbes de réflectivité par une couche superficielle très mince interposée entre le prisme à réflexion totale et le milieu semi-infini afin de bien cerner les possibilités et les limitations de nos méthodes dans le cas de faibles perturbations au voisinage d'une interface solide-fluide. Nous montrerons ensuite que les résultats théoriques obtenus peuvent suggérer quelques expériences intéressantes dans des domaines liés à la physique et à la physico-chimie des interfaces.

V C 1 - Faible variation superficielle de l'indice de réfraction

Reprenons les deux géométries envisagées précédemment et supposons qu'il se forme, au voisinage de l'interface, une couche intermédiaire dont

l'épaisseur sera fixée à 500 \AA et qui présente une variation Δn de son indice de réfraction par rapport au dernier milieu supposé semi-infini ; ce film est supposé isotrope et non-absorbant, et son indice de réfraction a pour valeur :

$$n = 1,5 + \Delta n$$

Dans le cas de l'onde évanescente (I) et pour $\Delta n = \pm 0,01$, les courbes de réflectivité sont inchangées : l'influence de cette perturbation est donc négligeable et l'on ne peut espérer détecter une si faible variation d'indice par cette méthode. En particulier pour $\Delta n = \pm 0,01$, le couplage par onde évanescente est très fort, compte-tenu de l'épaisseur de la couche (500 \AA). Notons aussi que pour des milieux semi-infinis d'indice n , on observerait une variation de l'angle d'incidence limite égale à $29'$ pour $\Delta n = \pm 0,01$ ($i_g = 52^\circ 8'$ quand $n = 1,5$).

Dans le cas de l'excitation optique de plasmons de surface, il en va tout autrement : on constate que la couche perturbatrice induit un déplacement de $26'$ de la position angulaire du minimum de réflectivité (figure V 2). Si l'on admet qu'une variation angulaire de $3'$ est expérimentalement détectable, on obtient une variation équivalente d'indice égale à $0,0012$.

Ces résultats montrent donc que la méthode qui utilise les ondes électromagnétiques de surface pour sonder le milieu est très sensible à une variation d'indice se produisant au niveau de l'interface solide-fluide.

V C 2 - Faible variation de l'épaisseur d'une couche superficielle d'indice 1,33

Considérons maintenant une couche superficielle dont l'indice est inférieur à celui du dernier milieu ($1,33$ au lieu de $1,5$), et essayons de déterminer son influence sur les courbes de réflectivité.

Dans le cas de l'onde évanescente (I), on retrouve une expérience triviale de réflexion totale frustrée (figure V 3) ; en se plaçant par exemple 2 ou 3 degrés avant l'angle d'incidence limite i_g , on observe que le coefficient de réflexion R dépend de l'épaisseur de la couche intermédiaire. Il faut donc, en fonction de l'expérience réalisée, choisir un point de fonctionnement convenable, c.a.d. un angle d'incidence susceptible de donner la meilleure

LAMBDA = .6328 microns

PRISME
1.9 / 0

COUCHE 1
.17 / -3.4

EPAISSEUR = .052 microns

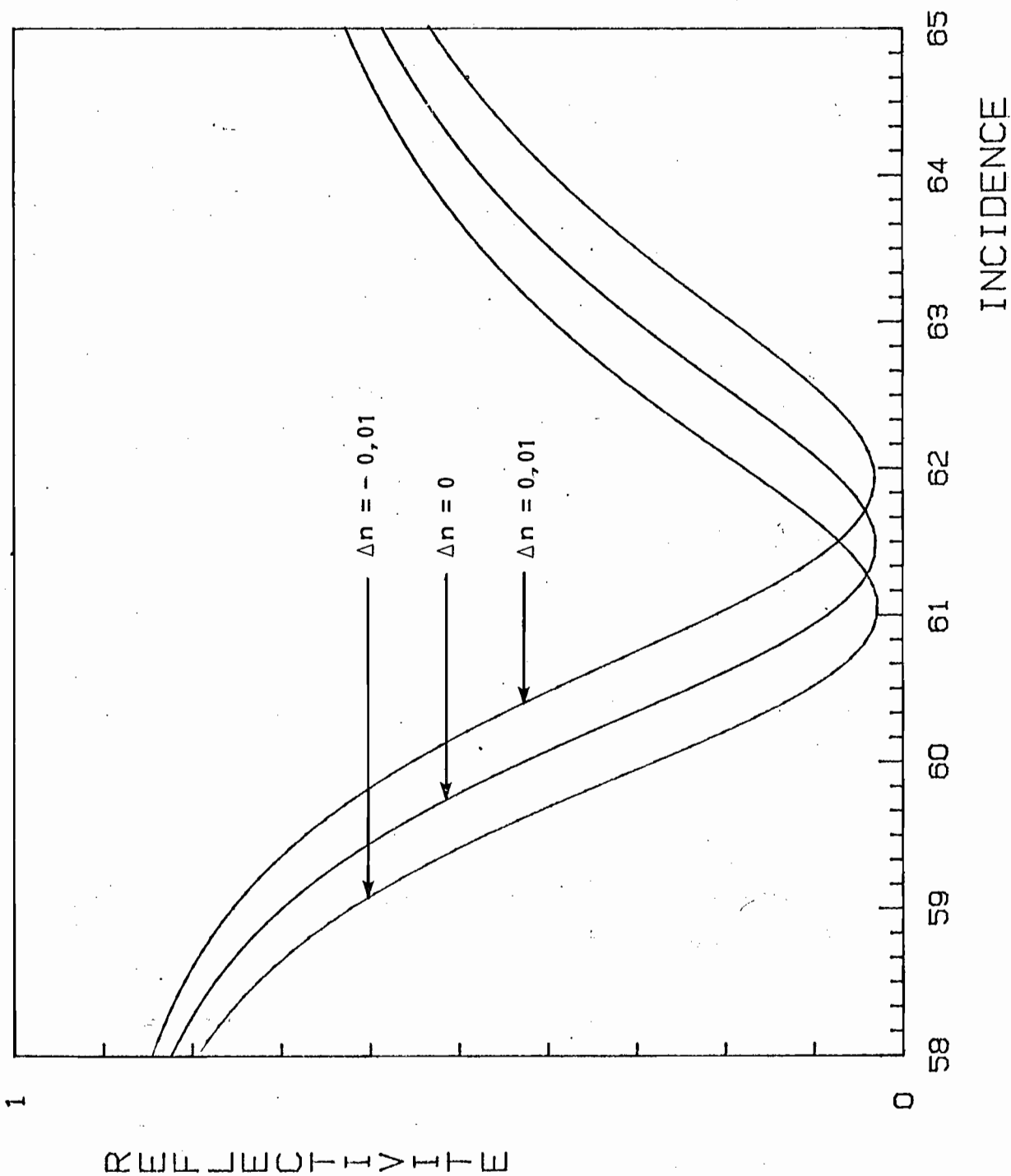
DERNIER MILIEU
1.5 / 0

Figure V 2 : Influence d'une couche intermédiaire de 500 Å d'épaisseur et d'indice $n = 1,5 + \Delta n$; on obtient :

$$i_p (\Delta n = -0,01) = 61^{\circ}3'$$

$$i_p (\Delta n = 0) = 61^{\circ}29'$$

$$i_p (\Delta n = 0,01) = 61^{\circ}55'$$

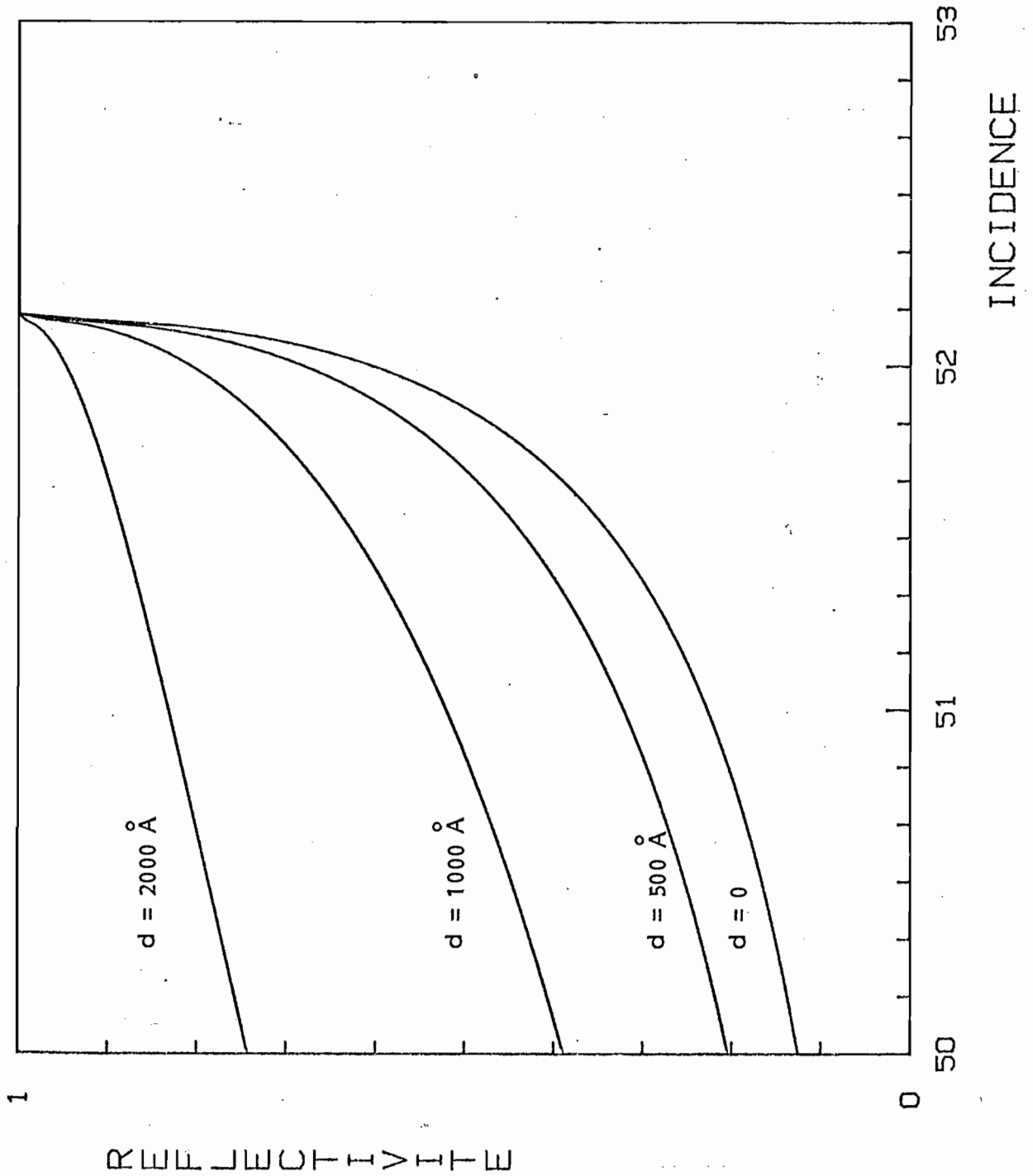


LAMBDA = .6328 microns

PRISME
1.9 / 0

DERNIER MILIEU
1.5 / 0

Figure V 3 : Influence d'une couche intermédiaire d'indice $n = 1,33$ pour différentes valeurs de son épaisseur d , s'étendant de 0 à 2000 Å.



REFLECTIVITE

INCIDENCE

LAMBDA = .6328 microns

PRISME
1.9 / 0

COUCHE 1
.17 / -3.4

EPAISSEUR = .052 microns

DERNIER MILIEU
1.5 / 0

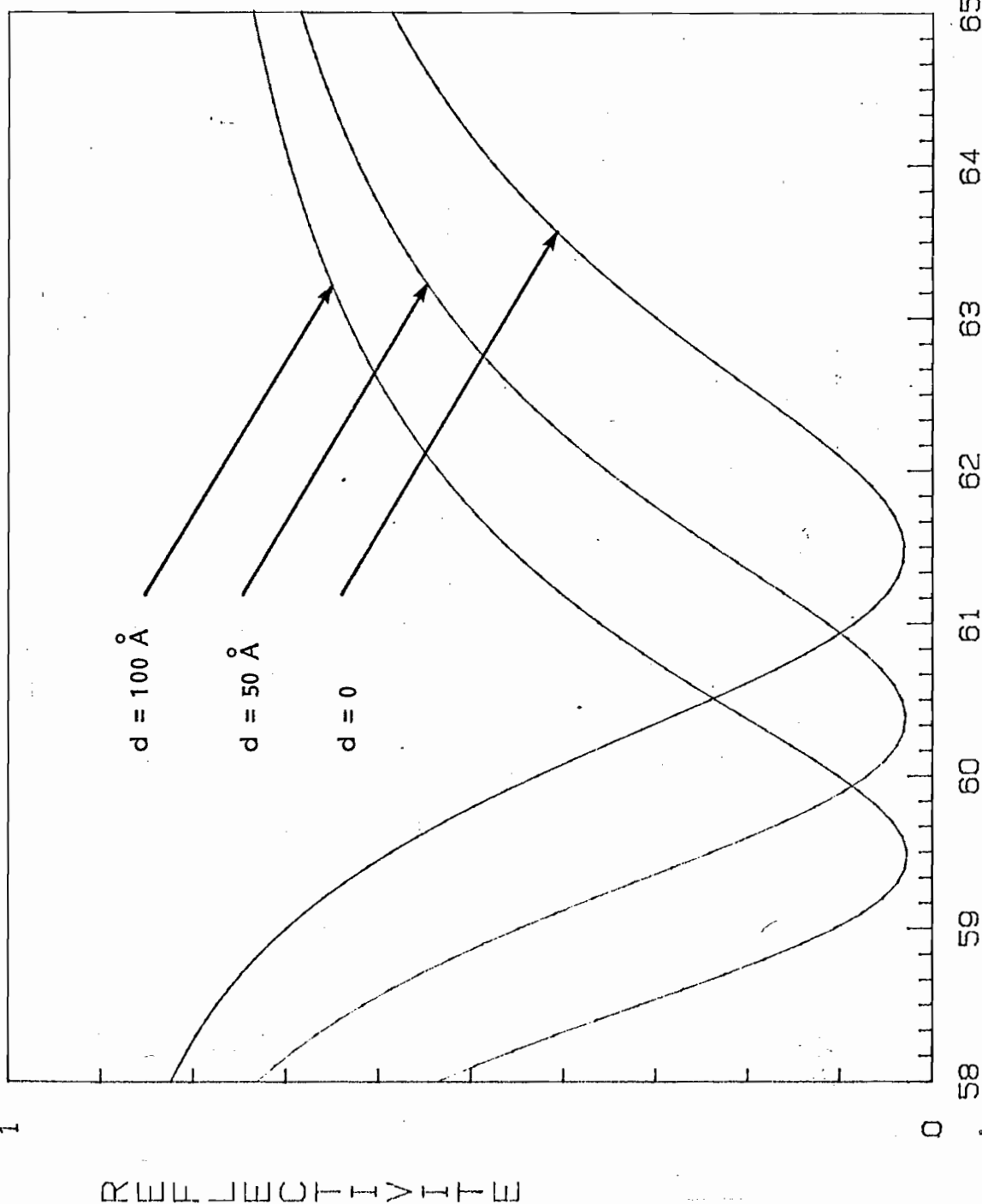


Figure V 4 : Influence d'une couche intermédiaire d'indice 1,33 pour différentes valeurs de son épaisseur d :

$d = 0$:	$i_p = 61^{\circ}29'$
$d = 50 \text{ \AA}$:	$i_p = 60^{\circ}23'$
$d = 100 \text{ \AA}$:	$i_p = 59^{\circ}28'$

INCIDENCE

REFLECTIVITE

précision possible sur la mesure de l'épaisseur, dans une gamme que l'on peut estimer s'étendre de 100 Å à 1 µm.

Si l'on considère maintenant l'excitation optique de plasmons de surface, *les variations angulaires de la position du minimum de réflectivité sont très importantes* puisqu'un film de 100 Å d'épaisseur (indice égal à 1,33) suffit à déplacer ce minimum de deux degrés (figure V 4). On observe également une modification de la largeur à mi-hauteur de la courbe de réflectivité, Δi_p , que l'on peut utiliser dans certains cas pour déterminer simultanément l'épaisseur et l'indice de la couche intermédiaire (cf. chapitre IV).

Les résultats obtenus ne montrent pas la prédominance d'une méthode sur l'autre, et le choix devra être fait en fonction de critères qui dépendent de l'expérience à réaliser. Notons tout de même qu'une variation de quelques centaines d'angströms est aisément détectable dans la géométrie (II), dans laquelle on constate une sensibilité remarquable mais toute théorique de 1' (de déplacement angulaire) par angström (d'épaisseur)...

V C 3 - Introduction d'une couche superficielle absorbante

Nous avons eu l'occasion, au cours de ce travail, d'introduire un coefficient d'atténuation dans la propagation d'une onde plane électromagnétique à travers un milieu anisotrope et légèrement diffusant (chapitre III). On peut se placer dans une situation plus simple et supposer qu'il existe, au niveau de l'interface solide-fluide, un film mince qui absorbe la lumière à certaines fréquences optiques. Le choix de la fréquence d'utilisation va dépendre de l'existence et de la proximité de bandes d'absorption pour le matériau et, si l'on envisage l'excitation optique de plasmons de surface, des constantes optiques du métal à cette fréquence particulière. L'hypothèse faite ici n'est pas le résultat d'une pure spéculation théorique, surtout si l'on remarque que certains matériaux (solutions de polymères, matériaux biologiques, mélanges binaires près d'un point critique,...) sont loin de présenter la transparence des milieux optiques habituels.

Reprenons donc les géométries (I) et (II) décrites précédemment et supposons l'existence d'un film légèrement absorbant de 500 Å d'épaisseur. La partie réelle de son indice de réfraction sera identique à l'indice du milieu semi-

infini (1,5), mais la partie imaginaire, χ , définie comme le coefficient d'atténuation du milieu, pourra prendre des valeurs s'étendant de 0 à 5×10^{-2} . Examinons maintenant l'influence de ce film sur les courbes de réflectivité.

Dans le cas (I), la réflexion totale est atténuée et l'on observe une baisse du maximum de réflectivité R_{\max} lorsqu'on augmente le coefficient d'atténuation (Figure V 5). A l'angle d'incidence limite ($i_{\ell} = 52^{\circ}8'$), on obtient les valeurs suivantes du coefficient de réflexion en intensité :

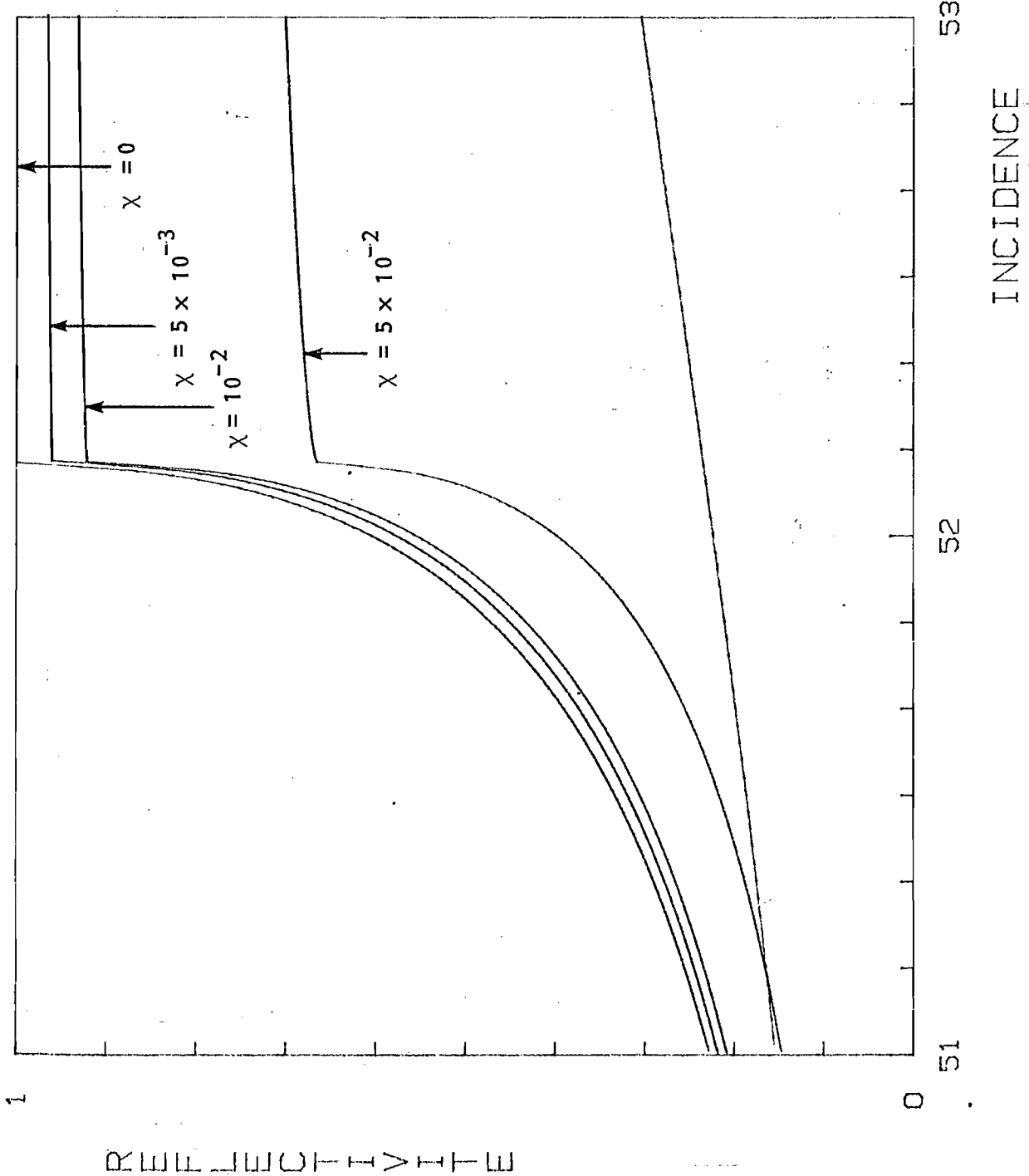
χ	0	5×10^{-3}	10^{-2}	5×10^{-2}
R	1	0,96	0,92	0,66

On peut donc estimer une modification sensible de la courbe de réflectivité au voisinage de l'angle d'incidence limite pour des valeurs du coefficient χ comprises entre 10^{-3} et 10^{-1} .

Dans le cas (II), on observe une remontée du minimum de réflectivité associée à un élargissement de la courbe de résonance, qui traduisent la présence d'un amortissement dans la propagation de l'onde électromagnétique de surface (figure V 6). Notons également le déplacement de la position angulaire du minimum de réflectivité pour $\chi > 10^{-2}$, comme le montre le tableau suivant :

χ	0	5×10^{-3}	10^{-2}	5×10^{-2}
R_p	0,03	0,06	0,10	0,34
i_p	$61^{\circ}29'$	$61^{\circ}29'$	$61^{\circ}30'$	$61^{\circ}39'$

Les résultats obtenus nous semblent significatifs des performances atteintes par chacune de ces méthodes ; bien que leurs limitations soient du même ordre de grandeur, nous avons une préférence pour l'excitation optique des plasmons de surface, car il est expérimentalement plus facile de voir évoluer la forme d'une courbe de résonance sur plusieurs degrés d'incidence, que de suivre l'évolution de la courbe de réflectivité autour de l'angle d'incidence limite. Dans ce dernier cas, il ne faut pas oublier le caractère abrupt de



LAMBDA = .6328 microns
 PRISME
 1.9 / 0
 DERNIER MILIEU
 1.5 / 0

Figure V 5 : Influence d'un film absorbant de 500 Å d'épaisseur et d'indice de réfraction complexe : $\tilde{n} = n + i\chi$, où $n = 1,5$, pour les valeurs suivantes de χ : $0, 5 \times 10^{-3}, 10^{-2}, 5 \times 10^{-2}$ (la dernière courbe se réfère au cas d'un milieu semi-infini, en prenant $\chi = 5 \times 10^{-2}$).

LAMBDA = .6328 microns

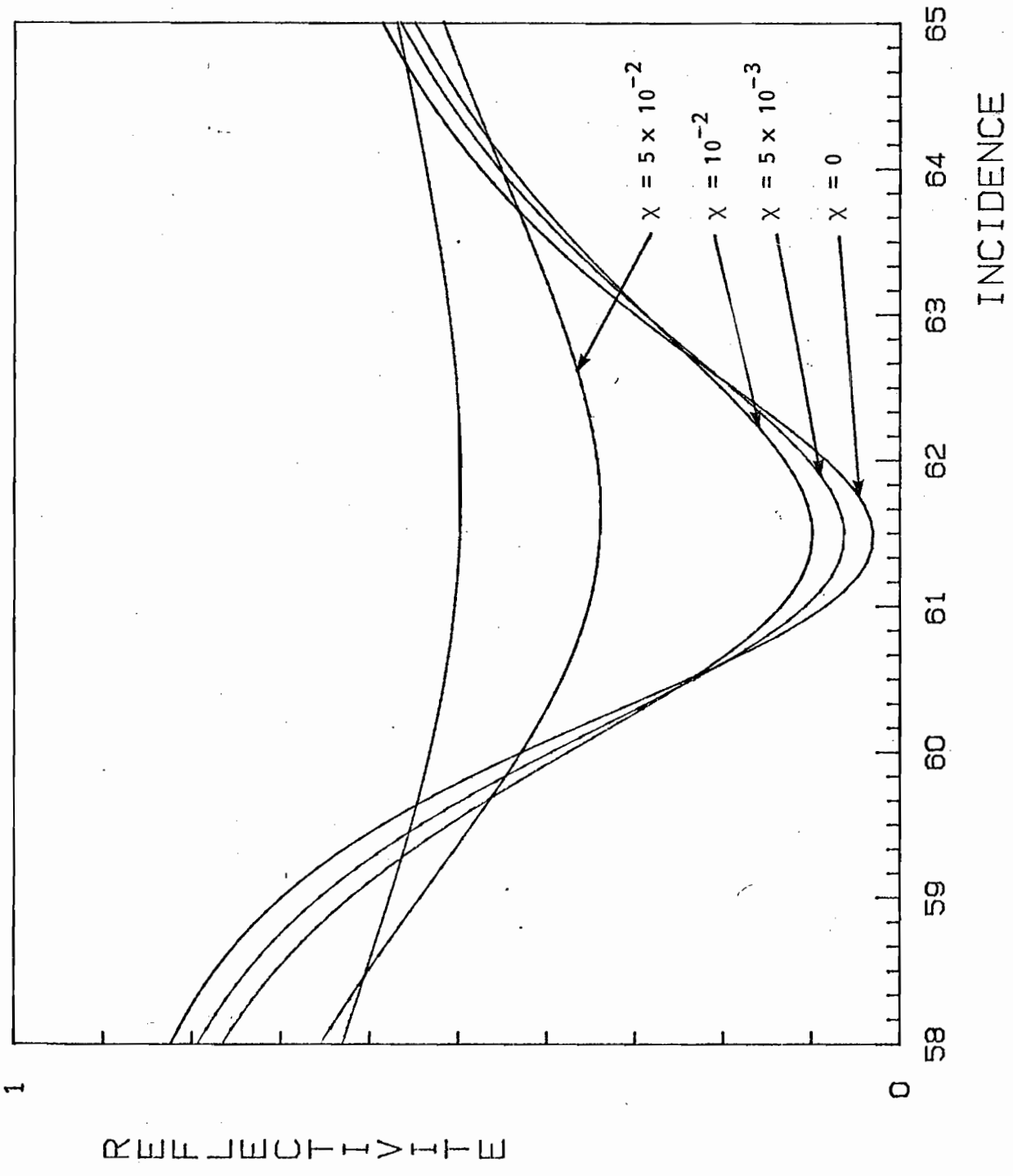
PRISME
1.9 / 0

COUCHE 1
.17 / -3.4

EPAISSEUR = .052 microns

DERNIER MILIEU
1.5 / 0

Figure V 6 : Influence d'un film absorbant de 500 Å d'épaisseur et d'indice de réfraction complexe : $n = 1,5 + i\chi$, pour les valeurs suivantes de χ : $0,5 \times 10^{-3}$, 10^{-2} , 5×10^{-2} (la courbe supérieure se réfère au cas d'un milieu semi-infini, en prenant $\chi = 5 \times 10^{-2}$)



REFLECTIVITE

INCIDENCE

cette courbe (pente infinie pour $i = i_{\lambda}$), dont la forme est déjà modifiée si l'on tient compte de la divergence, si faible soit-elle, du faisceau d'analyse.

V C 4 - Quelques exemples d'application

Après avoir envisagé les possibilités et les limitations des méthodes qui utilisent la réflexion totale et l'excitation optique de plasmons de surface, nous allons prendre quelques exemples dans le très vaste domaine de la physicochimie des interfaces, en étudiant plus particulièrement le problème de la *mouillabilité d'un substrat solide par un liquide*.

Les théories classiques de la capillarité {506, 507} montrent que trois phases en équilibre thermodynamique se raccordent matériellement suivant une ligne triple ; les angles de contact sont alors donnés par la loi d'Young qui traduit l'équilibre des tensions superficielles (cf. chapitre II). Un liquide peut se déposer sur un substrat solide plan sous la forme de gouttes isolées (mouillage partiel) ou d'un film continu très mince (mouillage total). Entre ces deux situations existe un cas intermédiaire d'approche théorique délicate et qui concerne la transition de mouillage ; il convient alors d'ajouter aux forces capillaires classiques des forces de Van der Waals à longue portée qui modifient le profil d'équilibre. Il existe, à l'heure actuelle, très peu d'expériences relatives à ce phénomène, et une approche expérimentale à l'aide des méthodes optiques proposées pourrait être enrichissante si elle permettait de mettre en évidence et éventuellement de déterminer l'épaisseur de films mouillants superficiels.

Si l'on reprend l'exemple donné dans le paragraphe V C 2, on constate qu'il correspond tout-à-fait à un problème lié à l'étude des interfaces eau-huile-solide {508} ; certaines expériences amènent à penser qu'il existe, entre un substrat solide et une goutte d'huile, un film d'eau dont l'existence modifie la mouillabilité du substrat, pouvant même remettre en cause les notions habituelles d'angles de contact. Les méthodes que nous proposons sont susceptibles d'apporter une réponse à ce problème, comme en témoignent les courbes de réflectivité tracées sur les figures V 3 et V 4. On peut aussi envisager la dynamique d'un tel système, en étudiant l'évolution de l'épaisseur du film au cours du temps.

Un problème intéressant concerne également l'étalement d'une goutte de liquide sur une surface solide ; des expériences ont montré l'existence d'un film primaire qui "précéderait" la goutte elle-même {509, 510, 511} . Dans ce domaine, l'excitation optique de plasmons de surface dans une couche métallique peut être mise à profit pour mesurer l'épaisseur de ce film précurseur ; bien que très peu de mesures expérimentales aient été réalisées jusqu'à présent, il semble que le film précurseur ait une épaisseur inférieure à 1000 Å et qu'il s'étende sur plusieurs dizaines de millimètres {509}, ce qui rend possible l'utilisation d'une méthode optique.

Un autre point digne d'intérêt concerne la forme exacte du profil de la goutte au voisinage de son raccord avec le substrat solide {512} ; malheureusement, si les épaisseurs supposées sont de quelques centaines d'angströms, l'étendue du phénomène ne peut dépasser quelques microns {513} ; compte tenu des limites imposées par la diffraction, une expérimentation à l'aide de méthodes optiques est donc à exclure.

En conclusion de cette étude, il apparaît clairement qu'un phénomène physique ou physico-chimique, dans lequel on suppose l'existence d'un film superficiel de liquide, est susceptible d'être étudié par l'une au moins des méthodes optiques que nous proposons ; la raison essentielle en est l'aptitude de l'onde évanescente et de l'onde électromagnétique de surface à détecter une faible perturbation au voisinage d'une interface solide-fluide.

V D - DETERMINATION D'UN PROFIL D'INHOMOGENEITE AU NIVEAU D'UNE INTERFACE SOLIDE-FLUIDE

Pour conclure ce chapitre, nous aborderons un problème fondamental et très actuel qui est celui de la détermination d'un profil d'inhomogénéité au niveau d'une interface solide-fluide. Un tel problème se rencontre par exemple dans l'étude de *solutions de polymères en contact avec une surface solide* {514, 515, 516} , ou encore dans des expériences relatives à un *mélange binaire au voisinage d'une paroi et près d'un point critique* {517, 518, 519, 520, 521} . La discussion qui va suivre n'a pour but que de donner un aperçu de ce que nos méthodes optiques peuvent apporter à la résolution de ces difficiles problèmes ; de telles méthodes ne sont pas universelles, et nous verrons qu'il faut être prudent dans l'interprétation des courbes de réflectivité. Néanmoins, associées à l'ellipsométrie, méthode difficile mais prometteuse {522} , elles

peuvent contribuer à la vérification expérimentale des modèles théoriques proposés pour l'explication des phénomènes concernés.

Nous allons maintenant supposer qu'un mélange homogène, constitué de deux composants différents, est approché d'une paroi solide. Si l'un des constituants est attiré préférentiellement par cette paroi, il en résulte un gradient de concentration au niveau de l'interface ; ce gradient peut se traduire optiquement, soit par un gradient d'indice de réfraction, soit par un gradient d'absorption, ou même par les deux simultanément. Nous envisagerons successivement les deux premiers cas, en étudiant l'évolution des courbes de réflectivité associées. Comme auparavant, la variation maximale d'indice Δn sera égale à 10^{-2} et le coefficient d'atténuation χ n'excédera pas 5×10^{-2} .

Dans les cas mentionnés ci-dessus, les profils de concentration sont supposés suivre des lois de puissance :

- pour une solution de polymères semi-diluée (dans un bon solvant), le profil de concentration $\Phi(z)$ dépend en particulier de la longueur de corrélation de cette solution ξ_b {516} ; au delà d'une région de très faible épaisseur au niveau de la paroi, un calcul théorique nous donne :

* si $z \ll \xi_b$: $\Phi(z) = (a/z)^{4/3}$
où a représente la longueur caractéristique du monomère.

* si $z \gg \xi_b$: $\Phi(z) = \Phi_b (1 + \exp \{-z/\xi_b\})$
où Φ_b représente la concentration du polymère en volume (il s'agit du cas "attractif").

- pour un mélange binaire critique au voisinage d'une paroi, la concentration de l'un des composants, $C(z)$, suit une loi du type {518, 519} :

$$C(z) = C(\infty) + \Delta C (a/z)^{\beta/\nu}$$

où ΔC est une constante, a une longueur moléculaire et β/ν un exposant critique voisin de 0,5.

Dans la plupart des cas, il s'agit donc de vérifier expérimentalement certaines lois, en déterminant la longueur caractéristique ξ associée à un profil le plus souvent exponentiel ; c'est pour cette raison que nous avons choisi dans la suite de notre étude des gradients d'indice et d'absorption de forme exponentielle.

V D 1 - Gradient d'indice de réfraction

Dans le modèle choisi, l'indice de réfraction du milieu analysé décroît exponentiellement à partir d'une valeur initiale fixée à 1,5 pour atteindre, à l'infini, une valeur égale à 1,49 :

$$n = 1,49 + 0,01 \exp(-z/\xi)$$

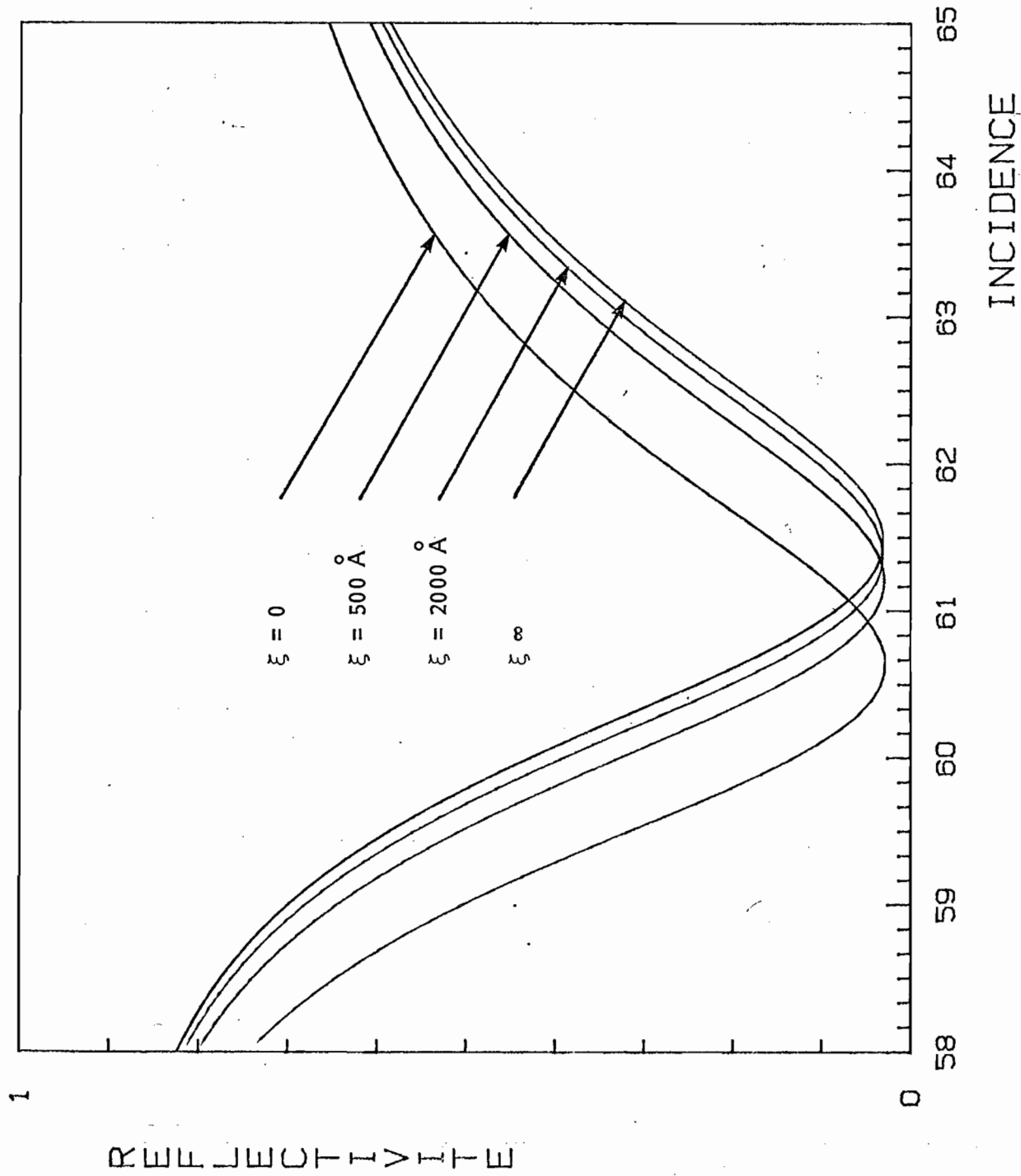
La quantité ξ est une longueur qui caractérise le gradient d'indice (par exemple une longueur de corrélation) et que nous prendrons inférieure au micron, afin de rester dans un domaine interfacial (échelle semi-locale).

En l'absence de couche métallique (cas I), l'onde incidente est en réflexion totale sur le milieu d'indice 1,49 et la perturbation apportée par un faible gradient ne modifie pas la courbe de réflectivité, comme on pouvait d'ailleurs s'y attendre d'après les résultats obtenus dans le paragraphe V C 1.

Dans le cas II, les résultats sont plus positifs (figure V 7) : on remarque un déplacement du minimum de réflectivité d'autant plus important, en valeur relative, que la longueur caractéristique est faible. Le tableau suivant indique, pour quelques valeurs de ξ , la valeur de i_p correspondante ainsi que l'indice de réfraction d'un milieu semi-infini pour lequel on obtiendrait une valeur identique de i_p (n_{eq}) :

ξ (Å)	0	500	1000	2000	∞
i_p	60°39'	61°13'	61°18'	61°23'	61°29'
n_{eq}	1,49	1,4968	1,4978	1,4988	1,50

De plus, on constate, d'après la forme des courbes, qu'il est impossible de distinguer le milieu à gradient d'indice d'un milieu semi-infini dont l'indice de réfraction est égal à n_{eq} . Cela signifie clairement que l'onde électromagnétique de surface intègre le profil d'indice sur une profondeur voisine de la profondeur de pénétration de l'onde dans le milieu (environ 1000 Å). Autrement dit, et pour



LAMBDA = .6328 microns

PRISME
1.9 / 0

COUCHE 1
.17 / -3.4
EPAISSEUR = .052 microns

DERNIER MILIEU
1.5 / 0

Figure V 7 : Influence d'un gradient d'indice de réfraction de la forme :
 $n = 1,49 + 0,01 \exp(-z/\xi)$;

- $\xi = 0$: $i_p = 60^{\circ}39'$
- $\xi = 500 \text{ \AA}$: $i_p = 61^{\circ}13'$
- $\xi = 2000 \text{ \AA}$: $i_p = 61^{\circ}23'$
- $\xi = \infty$: $i_p = 61^{\circ}29'$

la méthode qui utilise l'excitation optique de plasmons de surface, le milieu inhomogène est équivalent à un milieu homogène d'indice n_{eq} . Il est néanmoins possible, lorsque le profil est exponentiel, de déterminer la longueur caractéristique ξ comme nous venons de le montrer.

Il faut noter que le résultat obtenu ne concerne qu'une faible perturbation au niveau de l'interface, et que le seul paramètre mesurable reste la position du minimum de réflectivité, la largeur à mi-hauteur Δi_p restant inchangée compte tenu de la précision supposée des mesures.

En l'absence d'une hypothèse sur la forme du profil d'indice, il est clair que la méthode ne permet pas de déterminer ce profil avec exactitude ; nous sommes dans le cas typique d'un problème inverse qui comporte plusieurs solutions, entre lesquelles notre méthode ne permet pas de choisir.

V D 2 - Gradient d'absorption

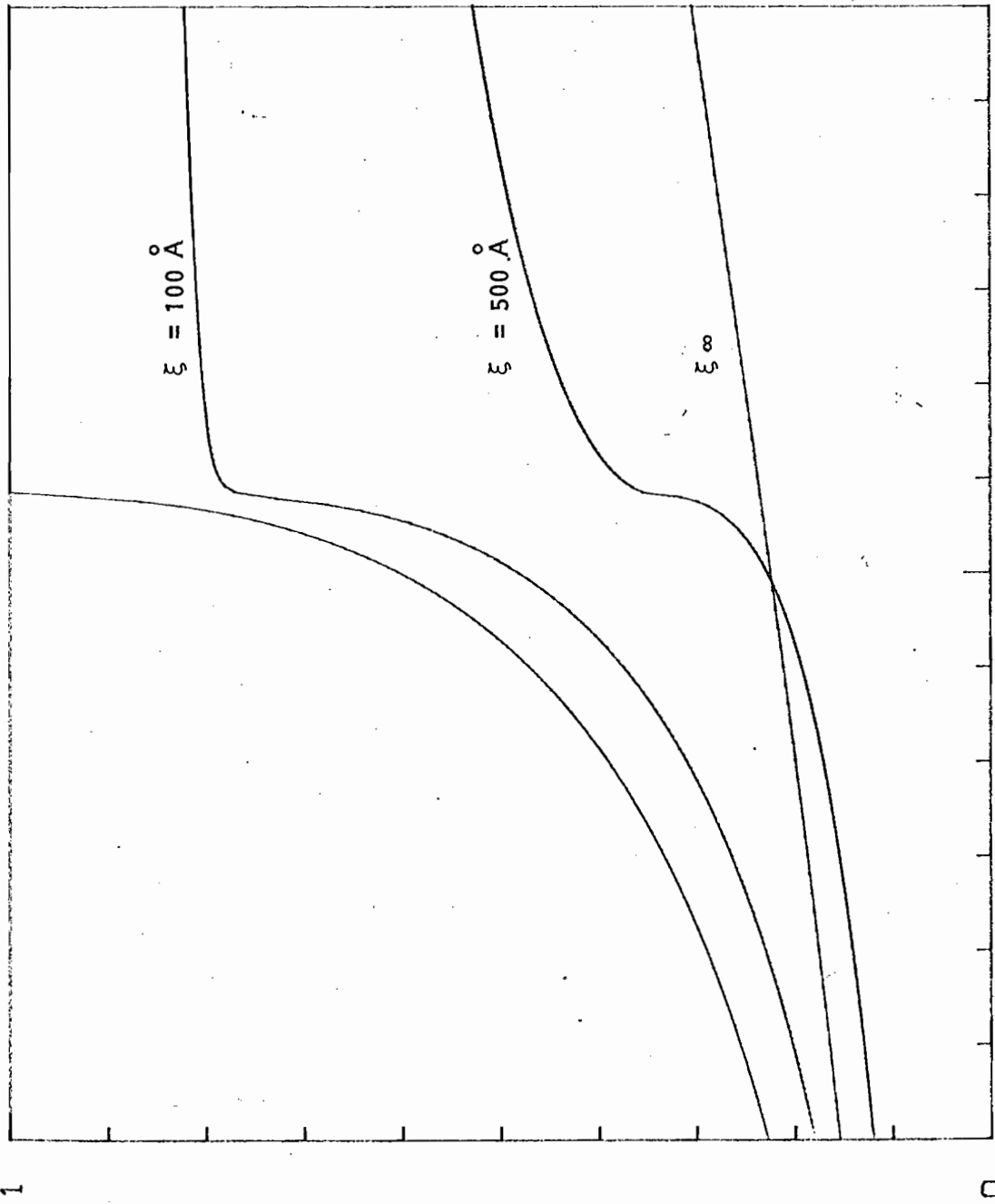
Nous considérons à présent un milieu semi-infini dont l'indice de réfraction, de valeur complexe \tilde{n} , possède une partie réelle n égale à 1,5 et une partie imaginaire χ donnée par la relation :

$$\chi = \Delta\chi \exp(-z/\xi)$$

La quantité ξ est une longueur qui caractérise le gradient d'absorption, ou encore le gradient de concentration du milieu inhomogène au voisinage de l'interface ; pour $\Delta\chi$ (absorption maximale au niveau de l'interface solide-fluide), nous avons choisi une valeur intermédiaire entre un coefficient d'atténuation important, relatif à un milieu opaque, et un coefficient trop faible, dont l'effet serait moins perceptible sur la réflectivité : $\Delta\chi = 5 \times 10^{-2}$.

Dans le cas (I), les résultats montrent une nette évolution de la courbe de réflectivité en fonction de la longueur caractéristique (figure V 8), mais différente de celle observée pour un film absorbant d'épaisseur constante (figure V 5) ; la réflexion totale est atténuée et l'angle d'incidence limite perd peu à peu sa signification. De plus, une comparaison entre les courbes tracées sur les figures V 5 et V 8 montre qu'il n'y a pas équivalence entre une couche mince absorbante et un milieu semi-infini à gradient d'absorption superficiel. En effet, dans le premier cas, l'épaisseur de la couche absorbante (500 Å) est faible, et l'atténuation qui en résulte pour la propagation de l'onde électro-

$\xi = 0$



53

INCIDENCE

52

51

REFLECTIVITE

LAMBDA = .6328 microns

PRISME
1.9 / 0

DERNIER MILIEU
1.5 / 0

Figure V 8 : Influence d'un gradient d'absorption de la forme $\chi = \Delta \chi \exp(-z/\xi)$, où l'indice de réfraction complexe du dernier milieu est donné par la relation :

$$\tilde{n} = 1,5 + i\chi$$

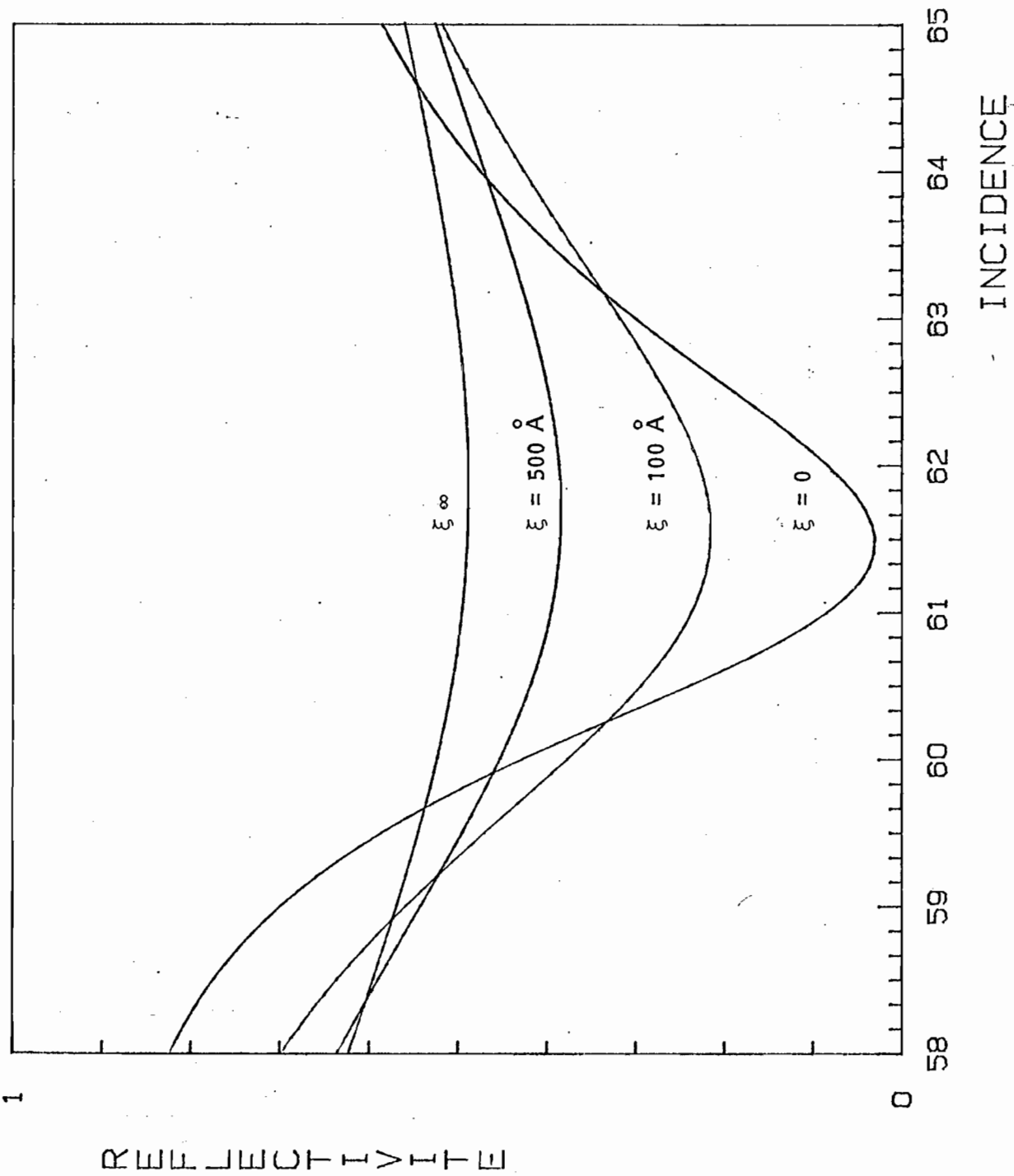
pour les valeurs suivantes de la longueur caractéristique ξ : 0, 100 Å, 500 Å, ∞ ($\Delta \chi = 5 \times 10^{-2}$).

magnétique dépend peu de l'incidence, même autour de l'angle d'incidence limite, car le dernier milieu n'est pas absorbant ; dans le cas du gradient, cette atténuation est progressive, ce qui explique la forme arrondie de la courbe de réflectivité peu après l'angle d'incidence limite. On peut donc estimer que cette forme particulière traduit l'existence d'un gradient d'absorption qui pourrait être analysé de manière plus quantitative.

La méthode qui utilise l'excitation optique de plasmons de surface, lorsque le milieu étudié est absorbant au voisinage de l'interface solide-fluide, donne un résultat analogue à celui obtenu pour un film absorbant (figures V 9 et V 6) : augmentation du minimum de réflectivité, élargissement de la courbe de résonance associée et faible déplacement angulaire de la position du minimum d'intensité. Comme dans le cas du gradient d'indice, le coefficient d'atténuation subit une intégration sur une certaine profondeur, voisine de la profondeur de pénétration de l'onde électromagnétique de surface dans le milieu ; on relève en effet les résultats numériques suivants, à comparer à ceux obtenus dans le paragraphe V C 3 :

ξ (Å)	0	100	500	∞
i_p	61°29'	61°33'	61°41'	61°48'
R_p	0,03	0,22	0,38	0,49
χ_{eq}	0	$1,4 \times 10^{-2}$	$3,2 \times 10^{-2}$	5×10^{-2}

Dans ces conditions, un milieu semi-infini de coefficient d'atténuation χ_{eq} donnera la même courbe de réflectivité qu'un milieu à gradient d'absorption superficiel, de forme exponentielle et de longueur caractéristique ξ ; comme dans le paragraphe précédent et pour la méthode qui utilise l'excitation optique de plasmons de surface, ces deux milieux sont *optiquement équivalents*. Là encore, en l'absence de toute hypothèse sur la forme du profil d'atténuation, la détermination exacte de ce profil reste incertaine.



LAMBDA = .6328 microns

PRISME
1.9 / 0

COUCHE 1
.17 / -3.4

EPAISSEUR = .052 microns

DERNIER MILIEU
1.5 / 0

Figure V 9 : Influence d'un gradient d'absorption de la forme : $\chi = \Delta\chi \exp(-z/\xi)$ où l'indice de réfraction complexe du dernier milieu est donné par la relation :

$$\tilde{n} = 1,5 + i\chi$$

pour les valeurs suivantes de la longueur caractéristique ξ : 0, 100 Å, 500 Å, ∞ ($\Delta\chi = 5 \times 10^{-2}$).

0 58 59 60 61 62 63 64 65

INCIDENCE

V D 3 - Conclusion de l'étude

Indépendamment de toute contrainte d'ordre technologique, l'étude que nous venons de faire laisse un avantage certain à la méthode qui utilise l'excitation optique de plasmons de surface. Techniquement plus faciles à réaliser, les expériences qui mettent à profit les propriétés des ondes évanescentes sont délicates à interpréter, même si elles se révèlent riches d'enseignements comme dans l'exemple de l'absorption au voisinage d'une interface. Généralement moins sensible que la méthode des plasmons de surface à une perturbation très localisée apparaissant au niveau de l'interface, la méthode de l'onde évanescente voit son domaine d'action s'étendre jusqu'au micron dans le milieu analysé. Pour des phénomènes se produisant dans une couche mince superficielle d'environ 1000 Å d'épaisseur, l'onde électromagnétique de surface se révèle être une sonde remarquablement efficace, comme en témoignent les résultats de notre étude. Sensible à toute modification interfaciale, que ce soit une variation de l'indice de réfraction ou la présence d'une absorption, cette onde permet de détecter de faibles inhomogénéités au voisinage d'une paroi. *Si dans le cas d'un profil exponentiel, on peut directement relier la longueur caractéristique et la forme de la courbe de réflectivité, il sera néanmoins difficile de discriminer deux profils voisins par cette méthode ; la raison essentielle en est l'intégration globale de la forme du profil sur la profondeur de pénétration de l'onde électromagnétique de surface dans le milieu analysé.*

Il convient toutefois d'être raisonnablement optimiste, car les profils de concentration rencontrés en pratique, que ce soit pour un mélange binaire critique ou une solution de polymères, sont supposés suivre des lois de puissance. Nous pensons donc qu'une expérimentation soignée devrait permettre, malgré d'inévitables difficultés d'interprétation, d'apporter des éléments nouveaux au difficile problème de la détermination d'un profil d'inhomogénéité au voisinage d'une interface solide-fluide.

CONCLUSION

Les expériences que nous avons réalisées, et qui ont été décrites tout au long de ce travail, ont été principalement consacrées à l'étude d'une interface solide-nématique, par des méthodes qui possèdent une caractéristique fondamentale commune : l'utilisation d'une onde évanescente ou d'une onde électromagnétique de surface, dans le but de sonder le cristal liquide au contact de sa couche d'ancrage. La propagation de ces ondes électromagnétiques le long d'une interface est en effet sensible à toute perturbation se produisant dans une couche mince superficielle, dont l'épaisseur est égale à la profondeur de pénétration de l'onde dans le milieu analysé (environ 1000 Å). L'intérêt de ces méthodes est de pouvoir mettre en évidence des phénomènes de surface, les distinguant ainsi des phénomènes de volume.

Nous avons démontré, et ceci nous semble être le point le plus fondamental, que nos méthodes d'analyse, qui présentent en outre l'avantage de n'être pas destructives, étaient applicables à des milieux "optiquement difficiles" : cristal liquide anisotrope et diffusant, couches d'ancrage inhomogènes, milieux absorbants et inhomogènes. Leur domaine de prédilection s'étend de quelques dizaines d'angströms au micron, et ce domaine correspond à des phénomènes "semi-locaux" qui se produisent au niveau des interfaces solide-fluide. De telles méthodes ne sont évidemment pas universelles, en ce sens qu'elles fournissent des résultats purement "optiques", qu'il convient d'analyser et d'interpréter en fonction des connaissances déjà acquises sur le matériau étudié, en particulier dans le domaine de la physico-chimie des surfaces.

Dans ce dernier domaine, nous avons suggéré quelques expériences relatives en particulier à la mouillabilité d'un substrat solide par un liquide ; la mesure précise de l'épaisseur de films mouillants superficiels est en effet envisageable, que ce soit par une méthode de réflexion totale frustrée dans le cas d'une interface eau-huile-solide, ou par une méthode qui utilise l'excitation optique de plasmons de surface, lorsqu'il s'agit de mettre en évidence le film primaire précédant l'étalement d'une goutte de liquide.

Pour ce qui concerne la détermination du profil d'inhomogénéité consécutif à un gradient de concentration au voisinage d'une interface, problème qui se

retrouve à la fois dans l'étude d'une solution de polymères et dans celle d'un mélange binaire critique près d'une paroi solide, les applications des méthodes proposées sont plus délicates ; il est néanmoins possible, dans certaines conditions, de déterminer la longueur caractéristique d'un profil supposé exponentiel.

Il est clair que de telles études ne peuvent être menées qu'en collaboration étroite avec les spécialistes concernés, en particulier les physico-chimistes. Nous pensons ainsi que l'apport de l'Optique reste fondamental dans le cadre de ces recherches interdisciplinaires, que nous espérons voir se réaliser de manière concrète dans un très proche avenir.

ANNEXE A 1

Calcul des coefficients de réflexion et de transmission d'une onde électromagnétique plane et monochromatique à travers un empilement de couches minces uniaxes dont les axes optiques sont dans le plan d'incidence

Nous allons décrire très brièvement la méthode utilisée dans nos calculs, qui est adaptée de celle de D.A. Holmes et D. L. Feucht {122} ; son principe consiste, à partir des équations de Maxwell, à écrire la continuité des composantes tangentielles des champs électriques et magnétiques au niveau de chaque interface, puis les réflectances et transmittances tangentielles séquentiellement d'une couche à l'autre.

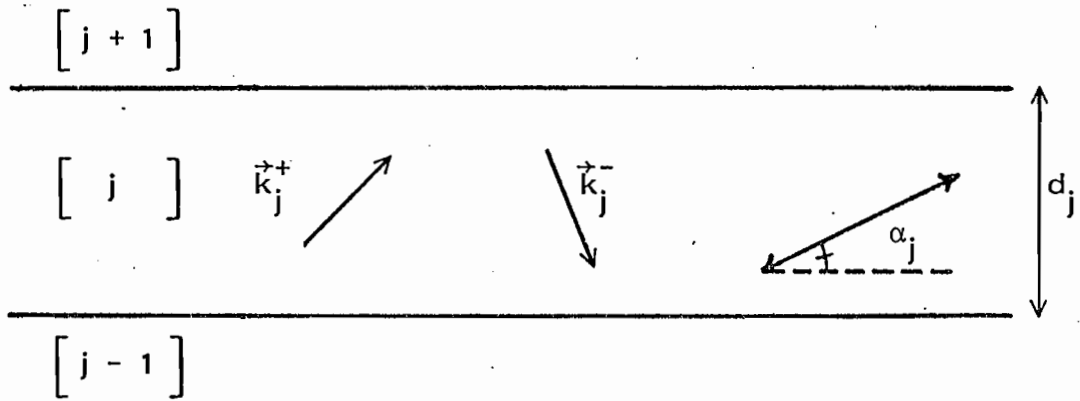
Seule l'onde TM nous intéressera, le cas de l'onde TE étant trivial et semblable au cas isotrope (milieu d'indice n_0). Les notations sont identiques à celles du paragraphe IA1a, mais nous y avons ajouté les indices qui correspondent au numéro d'ordre des couches ($j = 1$ à p). Les milieux extrêmes ont pour indices $j = 0$ et $j = p + 1$. Considérons alors l'interface séparant les milieux j et $j + 1$; les conditions aux limites s'écrivent :

$$\left\{ \begin{array}{l} E_{x,j}^+ B_j^+ + E_{x,j}^- B_j^- = E_{x,j+1}^+ + E_{x,j+1}^- \\ H_{y,j}^+ B_j^+ + H_{y,j}^- B_j^- = H_{y,j+1}^+ + H_{y,j+1}^- \end{array} \right.$$

Le signe + [-] correspond à une onde se propageant dans le sens positif [négatif], suivant Oz et dans la couche. B_j^{+-} représente le facteur de phase ainsi défini :

$$B_j^{+-} = \exp(-k_{z,j}^{+-} d_j)$$

où $k_{z,j}^{+-}$ est la composante suivant Oz du vecteur d'onde et d_j l'épaisseur de la couche ; cette composante est donnée par une expression similaire à celle donnée en (I.8), le signe de l'expression entre crochets dépendant alors du sens de propagation (+ ou -).



Les coefficients de réflexion et de transmission en amplitude sur chaque interface ont une expression de la forme :

$$r_{j, j+1} = \frac{h_j^+ - h_{j+1}^+}{h_j^+ + h_{j+1}^+}$$

$$t_{j, j+1} = 1 + r_{j, j+1}$$

où $h_j^+ = H_{y,j}^+ / E_{x,j}^+$, qui s'exprime très simplement en fonction des paramètres de la couche :

$$h_j^+ = n_o n_e / (n_{eff}^2 - n_i^2 \sin^2 i)^{1/2}$$

(quantité pouvant être complexe dans les conditions de réflexion totale).

Nous définissons alors les réflectances et transmittances tangentielles (en amplitude) de la manière suivante :

$$R_{j,p+1} = \frac{r_{j,j+1} B_{j+1}^+ + R_{j+1,p+1} B_{j+1}^-}{B_{j+1}^+ + r_{j,j+1} R_{j+1,p+1} B_{j+1}^-} = f(R_{j+1,p+1})$$

$$T_{j,p+1} = \frac{t_{j,j+1} T_{j+1,p+1}}{B_{j+1}^+ + r_{j,j+1} R_{j+1,p+1} B_{j+1}^-} = g(T_{j+1,p+1})$$

La méthode consiste à calculer séquentiellement :

$$\begin{bmatrix} R_{p,p+1} \\ T_{p,p+1} \end{bmatrix} \rightarrow \begin{bmatrix} R_{p-1,p+1} \\ T_{p-1,p+1} \end{bmatrix} \rightarrow \dots \rightarrow \begin{bmatrix} R_{o,p+1} \\ T_{o,p+1} \end{bmatrix}$$

Les termes initiaux de la séquence sont : $R_{p,p+1} = r_{p,p+1}$ et $T_{p,p+1} = t_{p,p+1}$.

On obtient ainsi les quantités : $R_{o,p+1} = E_{x,o}^- / E_{x,o}^+$

$$T_{o,p+1} = E_{x,p+1}^+ / E_{x,o}^+$$

En supposant les milieux extrêmes isotropes, $R_{o,p+1}$ et $T_{o,p+1}$ représentent les coefficients de réflexion et de transmission en amplitude à travers l'empilement des couches anisotropes ; si les indices de ces milieux extrêmes sont différents ($n_i \neq n_t$), le calcul du coefficient de transmission en intensité devra tenir compte de la réfraction.

.....1.....2.....3.....4.....5.....6.....7......8

```

15 ISN      IMPLICIT COMPLEX (B,K,H,R,T,Z)
16 ISN      PARAMETER (MM=100)
17 ISN      COMPLEX N1,N2,N3,N4,NO,NE,EO,EE,NEFF,NOA,NEA,
18 ISN      COMPLEX J,Q,X,Y
19 ISN      COMPLEX NOO(MM),NEE(MM)
20 ISN      REAL XX(541,5),XY(541,5)
21 ISN      REAL NI,NF,INCID,A(MM),D(MM)
22 ISN      REAL MODREF,MODTRA
23 ISN      INTEGER DEG
24 ISN      DIMENSION BP(MM),BM(MM),HP(MM+1),HM(MM+1)
25 ISN      DIMENSION RO1(MM),TO1(MM),RR(MM),TT(MM),RN(MM),RD(MM)
26 ISN      DIMENSION OZ(MM)
27 ISN      DIMENSION IBUF(100)
28 ISN      COMMON/BUF/NBRE,IBUF
29
30 ISN      DATA J/(0.,1.)/
31 ISN      PJ=4.*ATAN2(1.,1.)
32 ISN      ENRAD=PI/180.
33 ISN      ENDEG=180./PI
34 ISN      NBRE=100
35
36 ISN      READ 103,NCOURB
37 ISN      READ 102,DTOT
38 ISN      READ 102,GRAD
39 ISN      READ 100,N1,D1
40 ISN      READ 100,N2,D2
41 ISN      READ 100,N3,D3
42 ISN      READ 100,N4,D4
43 ISN      READ 101,NO
44 ISN      READ 101,NE
45 ISN      READ 101,NOA
46 ISN      READ 101,NEA
47 ISN      READ 101,AA,DA
48 ISN      READ 102,NI
49 ISN      READ 102,NF
50 ISN      READ 102,ORIG
51 ISN      READ 103,NC
52 ISN      READ 103,NINC
53 ISN      READ 102,PASMIN
54 ISN      READ 103,ICOORB
55
56 ISN      C
57 ISN      C ICOURB=1 = IMPRESSION UNIQUEMENT
58 ISN      C ICOURB=2 = VERSATEC UNIQUEMENT
59 ISN      C ICOURB=3 = IMPRESSION + VERSATEC
60
61 ISN      100 FORMAT (3F10.4)
62 ISN      101 FORMAT (2F10.4)
63 ISN      102 FORMAT (F10.6)
64 ISN      103 FORMAT (15)
65 ISN      200 FORMAT (10X,'INCIDENCE',15X,'MODREF',7X,'CREF',7X,'MODTRA',
66 ISN      17X,'CTRA',7X,'PHASE',5X,'ABSORPTION',///)
67 ISN      201 FORMAT (3X,12,1X,'DEGRES',2X,12,1X,'MINUTES',7X,6(F9.4,3X))
68 ISN      202 FORMAT (' INDICE DU VERRE =',F7.4,/)

```

```
*.....1.....2.....3.....4.....5.....6.....7.....8
```

```

46 ISN 203 FORMAT (' PREMIERE COUCHE : INDICE = (',F7.4,2X,F7.4,
12X,') EPAISSEUR OPTIQUE = ',F9.4,/)
47 ISN 204 FORMAT (' DEUXIEME COUCHE : INDICE = (',F7.4,2X,F7.4,
12X,') EPAISSEUR OPTIQUE = ',F9.4,/)
48 ISN 205 FORMAT (' COUCHES ANISOTROPES : INDICE ORDINAIRE = (',
1F7.4,2X,F7.4,2X,')',/)
49 ISN 206 FORMAT (' 23X, INDICE EXTRAORDINAIRE = (',F7.4,2X,F7.4,2X,')',/)
50 ISN 207 FORMAT (' INDICE DU DERNIER MILIEU = ',F7.4,/////)
51 ISN 208 FORMAT (' INCIDENCE ORIGINE = ',F10.6,////)
52 ISN 209 FORMAT (' CARACTERISTIQUES DES COUCHES ANISOTROPES',////)
53 ISN 210 FORMAT (' NUMERO',7X,'ORIENTATION',7X,'EPAISSEUR',
18X,'INDICE ORDINAIRE',8X,'INDICE EXTRAORDINAIRE',
17X,'INDICE EFFECTIF',//)
54 ISN 211 FORMAT ('15,10X,F8.4,9X,F8.4,8X,6(F7.4,6X))
55 ISN 212 FORMAT (//////)
56 ISN 213 FORMAT (' NC+1IEME COUCHE : INDICE = (',F7.4,2X,F7.4,
12X,') EPAISSEUR OPTIQUE = ',F9.4,/)
57 ISN 214 FORMAT (' NC+2IEME COUCHE : INDICE = (',F7.4,2X,F7.4,
12X,') EPAISSEUR OPTIQUE = ',F9.4,/)
C
58 ISN PRINT 208,ORIG
59 ISN PRINT 202,NI
60 ISN PRINT 203,N1,D1
61 ISN PRINT 204,N2,D2
62 ISN PRINT 205,NO
63 ISN PRINT 206,NE
64 ISN PRINT 213,N3,D3
65 ISN PRINT 214,N4,D4
66 ISN PRINT 207,NF
C
67 ISN L=NC-1
68 ISN NNC=(NC-3)/2
69 ISN LNC=NNC+1
70 ISN LLC=NNC+3
C
71 ISN NOO(1)=NOA
72 ISN NEE(1)=NEA
73 ISN A(1)=AA
74 ISN D(1)=DA
75 ISN NOO(NC)=NOA
76 ISN NEE(NC)=NEA
77 ISN A(NC)=AA
78 ISN D(NC)=DA
C
79 ISN DO 1000 III=1,NCOURB
C
80 ISN PRINT 209
81 ISN PRINT 210
82 ISN DO 4 I=1,NC
83 ISN NOO(I)=NO
84 ISN NEE(I)=NE
85 ISN A(I)=(I-1.)/GRAD
86 ISN D(I)=(DTOT/NC)/(5.*III)
87 ISN A(I)=A(I)*ENRAD
88 ISN Q=(NOO(I)+COS(A(I)))**2+(NEE(I)*SIN(A(I)))**2
89 ISN NEFF=CSQRT(Q)

```

.....1.....2.....3.....4.....5.....6.....7.....8

```

90 A(I)=A(I)*ENDEG
91 PRINT 211,I,A(I),D(I),NOO(I),NEE(I),NEFF
92 A(I)=A(I)*ENRAD
93 4 CONTINUE
C
94 PRINT 212
95 IF (ICOURB-2) 61,62,61
96 61 PRINT 200
97 62 CONTINUE
C
98 DO 5 M=1,NINC
99 INCID=ORIG+(M-1)*PASMIN/60.
100 DEG=INT(INCID)
101 MIN=FIX((INCID-DEG)*60.+0.1)
102 INCID=INCID*ENRAD
103 HPO=CMPLEX(NI/COS(INCID),O.)
104 KX=CMPLEX(NI*SIN(INCID),O.)
105 ZF=NF**2-KX**2
106 KZPF=CSORT(ZF)
107 KZPF=CMPLEX(REAL(KZPF),-ABS(AIMAG(KZPF)))
108 HPF=KZPF*(NF**2)/ZF
109 Z1=N1**2-KX**2
110 KZP1=CSORT(Z1)
111 KZM1=-CSORT(Z1)
112 KZP1=CMPLEX(REAL(KZP1),-ABS(AIMAG(KZP1)))
113 KZM1=CMPLEX(REAL(KZM1),+ABS(AIMAG(KZM1)))
114 HP1=KZP1*(N1**2)/Z1
115 BP1=CEXP(J*2.*PI*KZP1*D1)
116 BM1=CEXP(J*2.*PI*KZM1*D1)
117 Z2=N2**2-KX**2
118 KZP2=CSORT(Z2)
119 KZM2=-CSORT(Z2)
120 KZP2=CMPLEX(REAL(KZP2),-ABS(AIMAG(KZP2)))
121 KZM2=CMPLEX(REAL(KZM2),+ABS(AIMAG(KZM2)))
122 HP2=KZP2*(N2**2)/Z2
123 BP2=CEXP(J*2.*PI*KZP2*D2)
124 BM2=CEXP(J*2.*PI*KZM2*D2)
125 Z3=N3**2-KX**2
126 KZP3=CSORT(Z3)
127 KZM3=-CSORT(Z3)
128 KZP3=CMPLEX(REAL(KZP3),-ABS(AIMAG(KZP3)))
129 KZM3=CMPLEX(REAL(KZM3),+ABS(AIMAG(KZM3)))
130 HP3=KZP3*(N3**2)/Z3
131 BP3=CEXP(J*2.*PI*KZP3*D3)
132 BM3=CEXP(J*2.*PI*KZM3*D3)
133 Z4=N4**2-KX**2
134 KZP4=CSORT(Z4)
135 KZM4=-CSORT(Z4)
136 KZP4=CMPLEX(REAL(KZP4),-ABS(AIMAG(KZP4)))
137 KZM4=CMPLEX(REAL(KZM4),+ABS(AIMAG(KZM4)))
138 HP4=KZP4*(N4**2)/Z4
139 BP4=CEXP(J*2.*PI*KZP4*D4)
140 BM4=CEXP(J*2.*PI*KZM4*D4)
141 RO14=(HP4-HPF)/(HP4+HPF)
142 TO14=1.+RO14
143 RR4=RO14

```

*.....1.....2.....3.....4.....5.....6.....7.....8

```

144  TT4=TO14
145  RO13=(HP3-HP4)/(HP3+HP4)
146  TO13=1.+RO13
147  RN3=RO13*BP4+RR4*BM4
148  RD3=BP4+RO13*RR4*BM4
149  RR3=RN3/RD3
150  TT3=(TO13*TT4)/RD3
151  DO 1 I=1,NC
152  Q=(NOO(I)*COS(A(I)))*2+(NEE(I)*SIN(A(I)))*2
153  EO=NOO(I)*2
154  EE=NEE(I)*2
155  X=(EE-EO)*SIN(A(I))*COS(A(I))
156  Y=-KX*X
157  Z=Q-KX*2
158  RZ=CSQRT(Z)
159  KZP=(Y+NO*NE*RZ)/Q
160  KZM=(Y-NO*NE*RZ)/Q
161  KZP=CMPLX(REAL(KZP),-ABS(AIMAG(KZP)))
162  KZM=CMPLX(REAL(KZM),+ABS(AIMAG(KZM)))
163  HP(I)=(KZP*Q-Y)/Z
164  HM(I)=(KZM*Q-Y)/Z
165  BP(I)=CEXP(J*2.*PI*KZP*D(I))
166  BM(I)=CEXP(J*2.*PI*KZM*D(I))
167  1 CONTINUE
168  HP(NC+1)=HP3
169  DO 2 I=1,NC
170  RO1(I)=(HP(I)-HP(I+1))/(HP(I)+HP(I+1))
171  TO1(I)=1.+RO1(I)
172  2 CONTINUE
173  RN(NC)=RO1(NC)*BP3+RR3*BM3
174  RD(NC)=BP3+RO1(NC)*RR3*BM3
175  RR(NC)=RN(NC)/RD(NC)
176  TT(NC)=(TO1(NC)*TT3)/RD(NC)
177  DO 3 JJ=1,L
178  I=NC-JJ
179  RN(I)=RO1(I)*BP(I+1)+RR(I+1)*BM(I+1)
180  RD(I)=BP(I+1)+RO1(I)*RR(I+1)*BM(I+1)
181  RR(I)=RN(I)/RD(I)
182  TT(I)=(TO1(I)*TT(I+1))/RD(I)
183  3 CONTINUE
184  RO12=(HP2-HP(1))/(HP2+HP(1))
185  TO12=1.+RO12
186  RN2=RO12*BP(1)+RR(1)*BM(1)
187  RD2=BP(1)+RO12*RR(1)*BM(1)
188  RR2=RN2/RD2
189  TT2=(TO12*TT(1))/RD2
190  RO11=(HP1-HP2)/(HP1+HP2)
191  TO11=1.+RO11
192  RN1=RO11*BP2+RR2*BM2
193  RD1=BP2+RO11*RR2*BM2
194  RR1=RN1/RD1
195  TT1=(TO11*TT2)/RD1
196  RO10=(HPO-HP1)/(HPO+HP1)
197  TO10=1.+RO10
198  RNO=RO10*BP1+RR1*BM1
199  RDO=BP1+RO10*RR1*BM1

```

LEVEL 1.2.0 (SEPT 82) VS FORTRAN DATE: AUG 24, 1983 TIME: 16:02:51 NAME: MAIN
.....1.....2.....3.....4.....5.....6.....7......8

```

ISN 200 RRO=RNO/RDO
ISN 201 TTO=(TO10*TT1)/RDO
ISN 202 REF=RRO*CONJG(RRO)
ISN 203 TRA=TTO*CONJG(TTO)
ISN 204 MODREF=CABS(RRO)
ISN 205 TTOAMP=TTO*COS( INCID)*NF*KZPF/ZF
ISN 206 MODTRA=CABS(TTOAMP)
ISN 207 PHI=ATAN2(AIMAG(RRO), REAL(RRO))
ISN 208 PHI=PHI*ENDEG
ISN 209 IF (PHI) 50,51,51
ISN 210 50 PHI=PHI+360.
ISN 211 51 CONTINUE
ISN 212 CREF=REAL(REF)
ISN 213 XY(M,III)=CREF
ISN 214 DELTA=NF-NI*SIN( INCID)
ISN 215 IF (DELTA) 52,52,53
ISN 216 52 CTRA=0.
ISN 217 53 GOTO 54
ISN 218 53 EMERG=ARSIN(NI*SIN( INCID)/NF)
ISN 219 CTRA=REAL(TRA)*NF*COS( INCID)/COS(EMERG)/NI
ISN 220 54 CONTINUE
ISN 221 ABSORP=1.-CREF-CTRA
ISN 222 IF (ICOURB-2) 21,22,21
ISN 223 21 PRINT 201.DEG,MIN,MODREF,CREF,MODTRA,CTRA,PHI,ABSORP
ISN 224 22 CONTINUE
ISN 225 INCID=INCID*ENDEG
ISN 226 XX(M,III)=INCID
ISN 227 5 CONTINUE
C
ISN 228 PRINT 212
ISN 229 1000 CONTINUE
C
ISN 230 IF (ICOURB-2) 11,13,13
ISN 231 13 CALL COURBZ(NCOURB,XX(1,1),XY(1,1),NINC,'REFLECTANCE*')
ISN 232 CALL RLSDEV(1)
ISN 233 11 CONTINUE
C
ISN 234 STOP
ISN 235 END

```

OPTIONS IN EFFECT: NOLIST NOMAP NOXREF GOSTMT NODECK SOURCE NOTERM OBJECT FIXED NOTEST
 OPTIMIZE(3) LANGVL(77) FIPS(F) FLAG(I) NAME(MAIN) LINECOUNT(60)

*.....1.....2.....3.....4.....5.....6.....7.....8

```

1 ISN 1 SUBROUTINE COURBZ(NCOURB,TX,TY,NVAL,TEXT)
2 ISN 2 C TRACE DE COURBES AVEC GPGS
3 ISN 3 COMMON /BUF/NBRE,BUF(1)
4 ISN 4 DATA NSEG/1/
5 ISN 5 REAL TX(NVAL,NCOURB),TY(NVAL,NCOURB),W(4),W2(4)
6 ISN 6 INTEGER TEXT(1)
7 ISN 7 REAL VP(4)
8 ISN 8 DATA VP/O.,O.95,O.,O.95/
9 ISN 9 C VERIFICATION DU COMMON
10 ISN 10 IF(NBRE.GE.24) GOTO 555
11 ISN 11 WRITE(6,5550)
12 ISN 12 5550 FORMAT(' ERREUR DANS COURBF : NBRE MAL DEFINI')
13 ISN 13 STOP 16
14 ISN 14 555 CONTINUE
15 ISN 15 IF (NSEG.EQ.1) GOTO 1
16 ISN 16 CALL CLRDEV(1)
17 ISN 17 GOTO 2
18 ISN 18 1 CALL NITDEV(1)
19 ISN 19 CALL NITBUF(BUF(1),NBRE)
20 ISN 20 C VPORT POUR CADRER SUR VERSATEC
21 ISN 21 CALL VPORT(VP)
22 ISN 22 C RECHERCHE DES MIN ET MAX
23 ISN 23 W(1)=TX(1,1)
24 ISN 24 W(2)=TX(1,1)
25 ISN 25 DO 3 J=1,NCOURB
26 ISN 26 DO 3 I=1,NVAL
27 ISN 27 W(1)=AMIN1(TX(I,J),W(1))
28 ISN 28 W(2)=AMAX1(TX(I,J),W(2))
29 ISN 29 3 CONTINUE
30 ISN 30 W(3)=O.
31 ISN 31 W(4)=1.
32 ISN 32 C ETABLISSEMENT DE LA FENETRE
33 ISN 33 AX=(W(2)-W(1))
34 ISN 34 AY=W(4)-W(3)
35 ISN 35 C XNEW * POSITION DE L'AXE DES Y
36 ISN 36 XNEW=W(1)-AX/15.
37 ISN 37 XC=9*(AX/100.)
38 ISN 38 YC=10*(AY/100.)
39 ISN 39 W2(1)=XNEW-XC
40 ISN 40 W2(2)=W(2)+XC
41 ISN 41 W2(3)=W(3)-AY/15.-YC
42 ISN 42 W2(4)=W(4)+YC
43 ISN 43 CALL WINDOW(W2(1))
44 ISN 44 CALL CSIZES(AX/80.,AY/80.)
45 ISN 45 C TRACE
46 ISN 46 CALL BGNPIC(NSEG)
47 ISN 47 C AXE Y
48 ISN 48 CALL LINE(XNEW,W(3),O)
49 ISN 49 CALL LINE(XNEW,W(4),1)
50 ISN 50 YY=(AY)/10.
51 ISN 51 YI=W(4)
52 ISN 52 WW=XNEW+(AX/150.)
53 ISN 53 DO 20 I=1,11

```

*.....1.....2.....3.....4.....5.....6.....7.....8

```

46 ISH CALL LINE(XNEW,YI,O)
47 ISN CALL LINE(WW,YI,1)
48 ISH CALL LINE(W2(1),YI,O)
49 ISH CALL CHARF(YI,4,1)
50 ISN YI=YI-YY
51 ISN 20 CONTINUE
    C AXE X
52 ISN CALL LINE(W(1),W(3),O)
53 ISH CALL LINE(W(2),W(3),1)
54 ISH YY=(AX)/9.
55 ISH YI=W(2)
56 ISN WW=W(3)+(AY/150.)
57 ISH WWW=W(3)-(AY/50.)
58 ISN DO 21 I=1,10
59 ISH CALL LINE(YI,W(3),O)
60 ISN CALL LINE(YI,WW,1)
61 ISH CALL LINE((YI-3*(AX/80.)),WWW,O)
62 ISH CALL CHARF(YI,6,2)
63 ISN YI=YI-YY
64 ISH 21 CONTINUE
65 ISN CALL INTENS(O,3)
66 ISN DO 4 I=1,NCOURB
67 ISH CALL LINE(TX(1,I),TY(1,I),O)
68 ISH NT=1
69 ISH CALL TABL(TX(1,I),TY(1,I),NVAL,NT)
70 ISN 4 CONTINUE
    C TITRE
71 ISN CALL LINE(W2(1)+AX/2.,W2(3)+AY/20.,O)
72 ISN CALL CSIZES(AX/50.,AY/50.)
73 ISH CALL CHAR(TEXT)
74 ISH CALL ENDPIC
75 ISN NSEG=NSEG+1
76 ISN RETURN
77 ISN END

```

STATISTICS SOURCE STATEMENTS = 77, PROGRAM SIZE = 2254 BYTES, PROGRAM NAME = COURBZ PAGE: 6.

STATISTICS NO DIAGNOSTICS GENERATED.

***** END OF COMPILATION 2 *****

ANNEXE A 2

Calcul de la relation de dispersion d'une onde électromagnétique de surface dans le cas d'un métal en contact avec un milieu uniaxe

Considérons un métal, de constante diélectrique ϵ' réelle et négative, et un milieu anisotrope uniaxe et homogène, dont l'axe optique a une orientation quelconque dans le plan d'incidence. Nous allons calculer la relation de dispersion d'une onde électromagnétique de surface "vraie" se propageant sans atténuation le long de l'interface. Cette onde est TM et nous supposons que la dépendance spatio-temporelle du champ électromagnétique est de la forme :

$$\begin{aligned} \exp i \{ \omega t - (k_x x + k_z z) \} & \text{ dans le milieu anisotrope} \\ \exp i \{ \omega t - (k_x x + k'_z z) \} & \text{ dans le métal} \end{aligned}$$

Nous prendrons la relation tensorielle (1.4) indiquée au paragraphe IA1a :

$$\underline{\underline{\epsilon}} = \epsilon_0 \begin{vmatrix} \epsilon_x & 0 & \epsilon_{xz} \\ 0 & \epsilon_y & 0 \\ \epsilon_{xz} & 0 & \epsilon_z \end{vmatrix}$$

avec :

$$\begin{cases} \epsilon_x = n_e^2 \cos^2 \alpha + n_o^2 \sin^2 \alpha \\ \epsilon_y = n_o^2 \\ \epsilon_z = n_e^2 \sin^2 \alpha + n_o^2 \cos^2 \alpha \\ \epsilon_{xz} = (n_e^2 - n_o^2) \sin \alpha \cos \alpha \end{cases}$$

Des équations de Maxwell, nous tirons les relations suivantes :

$$\begin{aligned} -ik_x \partial_z E_z - \partial_z^2 E_x &= k_0^2 (\epsilon_x E_x + \epsilon_{xz} E_z) \\ -ik_x \partial_z E_x + k_x^2 E_z &= k_0^2 (\epsilon_{xz} E_x + \epsilon_z E_z) \end{aligned}$$

ou encore :

$$E_x (k_z^2 - \epsilon_x k_0^2) = E_z (k_x k_z + \epsilon_{xz} k_0^2)$$

$$E_x (k_x k_z + \epsilon_{xz} k_0^2) = E_z (k_x^2 - \epsilon_z k_0^2)$$

soit :

$$\epsilon_z k_z^2 + 2 \epsilon_{xz} k_x k_z + \epsilon_x k_x^2 + k_0^2 (\epsilon_{xz}^2 - \epsilon_x \epsilon_z) = 0 \quad (1)$$

Pour le métal, on obtient simplement : $k_z'^2 = \epsilon' k_0^2 - k_x^2$ (2)

D'autre part, la continuité des composantes tangentes des champs électriques et magnétiques s'écrit :

$$E_x = E'_x \quad \text{et} \quad H_y = H'_y$$

avec :

$$H_y = -\frac{\omega}{k_x} (\epsilon_{xz} E_x + \epsilon_z E_z) = \frac{\omega}{k_z} (\epsilon_x E_x + \epsilon_{xz} E_z)$$

$$H'_y = -\frac{\omega}{k_x} \epsilon' E'_z = \frac{\omega}{k_z'} \epsilon' E'_x$$

En combinant ces 2 relations, il vient :

$$\gamma k_z' = \epsilon' (\epsilon_z k_z + \epsilon_{xz} k_x) \quad (3)$$

où γ est une constante ne dépendant pas de l'orientation de l'axe optique :

$$\gamma = \epsilon_x \epsilon_z - \epsilon_{xz}^2 = n_o^2 n_e^2$$

En utilisant la relation (3), on parvient à éliminer k_x et k_z des relations (1) et (2) et on obtient enfin la relation de dispersion cherchée :

$$k_x^2 = \frac{\epsilon' (\epsilon' \epsilon_z - \gamma)}{\epsilon'^2 - \gamma} k_0^2$$

.../...

Dans le cas où l'axe optique est parallèle ($\alpha = 0$) ou perpendiculaire ($\alpha = \pi/2$) à l'interface : $\gamma = \epsilon_x \epsilon_z$ ($\epsilon_{xz} = 0$)

Soit :

$$k_x^2 = \frac{\epsilon' \epsilon_z (\epsilon' - \epsilon_x)}{\epsilon'^2 - \epsilon_x \epsilon_z} k_0^2$$

Si $\alpha = 0$: $\epsilon_x = n_e^2$ et $\epsilon_z = n_o^2$

$$k_x^2 = \frac{\epsilon' n_o^2 (\epsilon' - n_e^2)}{\epsilon'^2 - n_o^2 n_e^2} k_0^2$$

Si $\alpha = \pi/2$: $\epsilon_x = n_o^2$ et $\epsilon_z = n_e^2$

$$k_x^2 = \frac{\epsilon' n_e^2 (\epsilon' - n_o^2)}{\epsilon'^2 - n_o^2 n_e^2} k_0^2$$

A titre d'exemple, prenant un cristal liquide nématique ($n_o = 1,5$; $n_e = 1,7$) déposé sur une couche d'or ($\epsilon' = -10$), on obtient :

$$k_x(\alpha = 0) = 1,7612 k_0$$

$$k_x(\alpha = \pi/2) = 1,9459 k_0$$

Cette dernière valeur nous montre que, en prenant un prisme à réflexion totale dont l'indice de réfraction est 1,9, l'excitation optique d'un plasmon de surface ne peut être réalisée pour un cristal liquide homéotrope.

ANNEXE A 3

Calcul des paramètres hydrodynamiques dans
le cas d'un écoulement de Poiseuille plan

Nous supposons dans tout ce qui suit que l'écoulement du nématique est laminaire ; cela signifie que les phénomènes de turbulence ainsi que les instabilités d'origine convective sont exclus. Une telle hypothèse n'est évidemment valable que lorsque l'écoulement est lent, conduisant ainsi à des orientations angulaires qui n'excéderont pas quelques dizaines de degrés.

Dans ces conditions, seule la composante suivant Ox de la vitesse du fluide n'est pas nulle : elle correspond à la direction de l'écoulement (figure III 1). Le tenseur des gradients de vitesse ne comprend qu'un seul terme : $\partial_z v_x$, qui est aussi le taux de cisaillement s . En posant arbitrairement $s = 1$, on obtient : $A_{zx} = A_{xz} = \frac{1}{2}$

D'autre part :

$$\left\{ \begin{array}{l} n_x = \sin \theta \\ N_x = -\frac{1}{2} \cos \theta \end{array} \right. \quad \left\{ \begin{array}{l} n_y = 0 \\ N_y = 0 \end{array} \right. \quad \left\{ \begin{array}{l} n_z = \cos \theta \\ N_z = +\frac{1}{2} \sin \theta \end{array} \right.$$

A partir de ces données, nous pouvons calculer les composantes du tenseur des contraintes $\|\sigma'_{\alpha\beta}\|$; on obtient, tous calculs faits :

$$\left\{ \begin{array}{l} \sigma'_{xx} = \sin \theta \cos \theta (\alpha_1 \sin^2 \theta + \alpha_5) \\ \sigma'_{yy} = 0 \\ \sigma'_{zz} = \sin \theta \cos \theta (\alpha_1 \cos^2 \theta + \alpha_6) \\ \sigma'_{xy} = \sigma'_{yx} = \sigma'_{yz} = \sigma'_{zy} = 0 \\ \sigma'_{xz} = \alpha_1 (\sin \theta \cos \theta)^2 + \frac{1}{2} (\alpha_2 + \alpha_4 + \alpha_5) \\ \sigma'_{zx} = \alpha_1 (\sin \theta \cos \theta)^2 + \frac{1}{2} (\alpha_4 + [\alpha_5 - \alpha_2] \cos^2 \theta + [\alpha_6 + \alpha_3] \sin^2 \theta) \end{array} \right.$$

La viscosité effective s'exprime alors de manière simple :

$$\eta = \frac{\sigma'_{zx}}{2A_{zx}} = \sigma'_{zx}$$

Les 2 cas particuliers, $\theta = 0$ et $\theta = \frac{\pi}{2}$, correspondent aux géométries de Miesowicz {310, 311} :

$$\theta = 0 \quad : \quad \eta = \frac{1}{2} (\alpha_4 + \alpha_5 - \alpha_2) = \eta_c$$

$$\theta = \frac{\pi}{2} \quad : \quad \eta = \frac{1}{2} (\alpha_4 + \alpha_6 + \alpha_3) = \eta_b$$

D'autre part, la relation (III.3) permet de calculer le couple visqueux $\vec{\Gamma}_v$ exercé sur les molécules ; en prenant :

$$\vec{h}_v = \{\alpha_2 \cos \theta, 0, \alpha_3 \sin \theta\} \partial_z v_x$$

On obtient :

$$\Gamma_{vy} = (\alpha_2 \cos^2 \theta - \alpha_3 \sin^2 \theta) \partial_z v_x$$

Pour le couple élastique, on peut utiliser une relation du même type que la relation (III.3), soit :

$$\vec{\Gamma}_e = \vec{n} \wedge \vec{h}_e \quad \text{où} \quad \vec{h}_e = \vec{h}_S + \vec{h}_T + \vec{h}_B$$

avec :

$$\left\{ \begin{array}{l} \vec{h}_S = K_1 \vec{\nabla} (\text{div } \vec{n}) \\ \vec{h}_T = -K_2 \{ (\vec{n} \cdot \overrightarrow{\text{rot}} \vec{n}) \overrightarrow{\text{rot}} \vec{n} + \overrightarrow{\text{rot}} [(\vec{n} \cdot \overrightarrow{\text{rot}} \vec{n}) \vec{n}] \} \\ \vec{h}_B = K_3 \{ (\vec{n} \wedge \overrightarrow{\text{rot}} \vec{n}) \wedge \overrightarrow{\text{rot}} \vec{n} + \overrightarrow{\text{rot}} [\vec{n} \wedge (\vec{n} \wedge \overrightarrow{\text{rot}} \vec{n})] \} \end{array} \right.$$

On obtient ainsi :

$$\vec{h}_S \{ 0, 0, -K_1 [\sin \theta \partial_z^2 \theta + \cos \theta (\partial_z \theta)^2] \}$$

$$\vec{h}_T \{ 0, 0, 0 \}$$

$$\vec{h}_B \{ K_3 [\cos \theta \partial_z^2 \theta - \sin \theta (\partial_z \theta)^2 - \sin \theta \cos^2 \theta (\partial_z \theta)^2], 0, -K_3 \cos^3 \theta (\partial_z \theta)^2 \}$$

Soit finalement

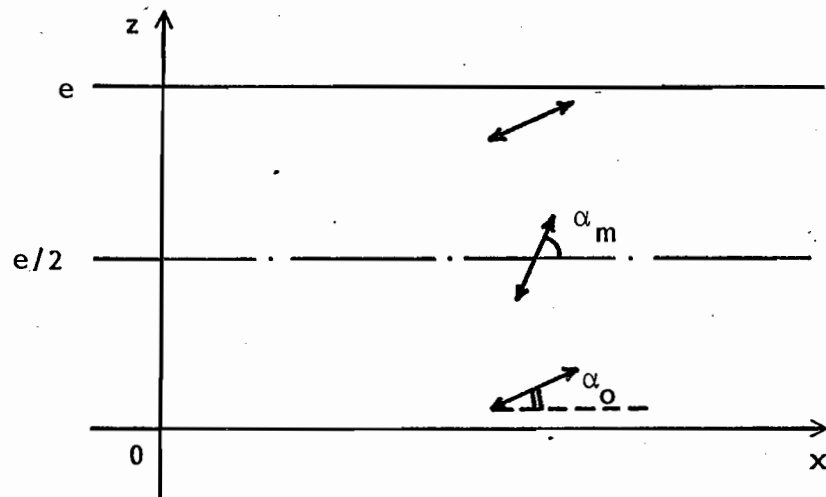
$$\Gamma_{ey} = (K_1 \sin^2 \theta + K_3 \cos^2 \theta) \partial_z^2 \theta + (K_1 - K_3) \sin \theta \cos \theta (\partial_z \theta)^2$$

Seules les composantes suivant Oy des couples visqueux et élastiques ne sont pas nulles.

ANNEXE A 4

Calcul du profil de déformation dans le cas de la transition de Fredericksz ; ancrage fini aux parois, $\Delta\epsilon$ et ΔK quelconques

Nous nous proposons de calculer le profil de déformation du directeur $\alpha(z)$ dans le cas très général d'une transition de Fredericksz incluant une énergie finie aux parois, une anisotropie des constantes diélectriques $\Delta\epsilon$ quelconque, ainsi qu'une anisotropie des constantes élastiques ΔK quelconque. Nous supposerons une configuration initiale planaire et des conditions d'ancrage identiques aux deux interfaces ; ceci implique alors que la déformation est parfaitement symétrique par rapport au plan médian défini par $z = e/2$, comme le montre le schéma ci-dessous. Si l'on applique une tension V aux bornes de la cellule de cristal liquide, le champ électrique \vec{E} ainsi créé désoriente les molécules ($\Delta\epsilon > 0$) et la configuration d'équilibre est obtenue en minimisant l'énergie libre du système.



Pour simplifier les notations nous poserons :

$$\alpha(z=0) = \alpha_0 = \alpha(z=e)$$

$$\alpha(z=e/2) = \alpha_m \text{ (angle de déformation maximal)}$$

$$\gamma = (\epsilon_{//} - \epsilon_{\perp}) / \epsilon_{\perp} = \Delta\epsilon / \epsilon_{\perp}$$

$$\xi = (K_3 - K_1) / K_1 = \Delta K / K_1$$

Examinons maintenant les différents termes qui contribuent à la densité d'énergie libre totale ; nous avons :

$$F_d = \frac{1}{2} (K_1 \cos^2 \alpha + K_3 \sin^2 \alpha) \alpha'^2 = \frac{1}{2} K_1 (1 + \xi \sin^2 \alpha) \alpha'^2$$

où $\alpha' = d\alpha/dz$,

et
$$F_e = -\frac{1}{8\pi} \vec{E} \cdot \vec{D}$$

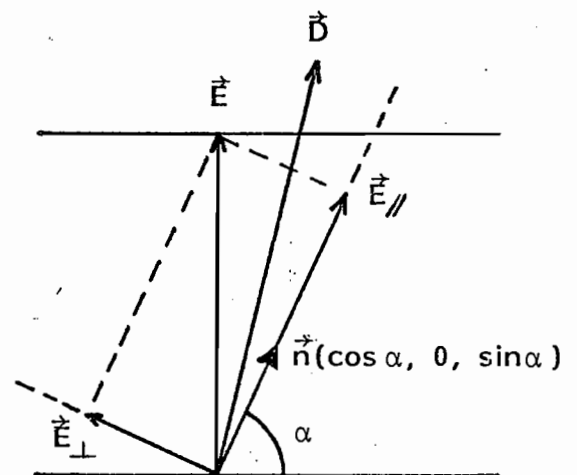
Ce terme mérite une attention particulière de notre part ; du fait de l'anisotropie de la permittivité, le champ électrique et le déplacement ne sont pas colinéaires.

$$\vec{E} = \vec{E}_{//} + \vec{E}_{\perp}$$

Seule la composante E_z de \vec{E} n'est pas nulle, car $\overrightarrow{\text{rot}} \vec{E} = \vec{0}$. D'autre part, $\text{div} \vec{D} = 0$ implique que D_z est une constante. Nous pouvons écrire :

$$\vec{D} = \epsilon_{//} \vec{E}_{//} + \epsilon_{\perp} \vec{E}_{\perp}$$

$$\vec{D} = \epsilon_{\perp} \vec{E} + (\epsilon_{//} - \epsilon_{\perp}) (\vec{n} \cdot \vec{E}) \vec{n}$$



Soit en projetant sur l'axe Oz :

$$D_z = \epsilon_{\perp} E_z + \Delta \epsilon (\sin \alpha \cdot E_z) \sin \alpha$$

$$D_z = (\epsilon_{\perp} + \Delta \epsilon \sin^2 \alpha) E_z$$

$$D_z = (\epsilon_{//} \sin^2 \alpha + \epsilon_{\perp} \cos^2 \alpha) E_z$$

De plus, l'intégration de ce terme sur l'épaisseur de la cellule e se fait très simplement :

$$\mathcal{F}_e = \int_0^e F_e dz = -\frac{1}{8\pi} \int_0^e E_z D_z dz = -\frac{V \cdot D_z}{8\pi}$$

D'autre part :

$$\int_0^e E_z dz = V = D_z \int_0^e (\epsilon_{//} \sin^2 \alpha + \epsilon_{\perp} \cos^2 \alpha)^{-1} dz \quad (1)$$

Soit finalement :

$$\mathcal{F}_e = - \frac{V^2}{8\pi} \int_0^e (\epsilon_{//} \sin^2 \alpha + \epsilon_{\perp} \cos^2 \alpha)^{-1} dz$$

Nous avons également :

$$F_e = - \frac{1}{8\pi} (\epsilon_{//} \sin^2 \alpha + \epsilon_{\perp} \cos^2 \alpha)^{-1} D_z^2$$

$$F_e = - \frac{1}{8\pi \epsilon_{\perp}} (1 + \gamma \sin^2 \alpha)^{-1} D_z^2$$

Le dernier terme qui contribue à la densité d'énergie libre est un terme de surface et peut s'écrire :

$$F_s = W \sin^2 \alpha \{ \delta(z) + \delta(z-e) \}$$

où $\delta(z)$ est la fonction delta.

L'énergie libre par unité de surface est donc :

$$\begin{aligned} \mathcal{F} = \frac{1}{2} \int_0^e \left\{ K_1 (1 + \xi \sin^2 \alpha) \alpha'^2 - \frac{1}{4\pi \epsilon_{\perp}} (1 + \gamma \sin^2 \alpha)^{-1} D_z^2 \right\} dz \\ + W \left\{ \sin^2 \alpha (0) + \sin^2 \alpha (e) \right\} \end{aligned} \quad (2)$$

La minimisation de cette quantité en tenant compte des conditions aux limites est une application du calcul variationnel et conduit aux expressions suivantes :

$$\frac{d}{dz} \left\{ K_1 (1 + \xi \sin^2 \alpha) \alpha' \right\} = K_1 \xi \sin \alpha \cos \alpha \alpha'^2 - \frac{\gamma D_z^2}{4\pi \epsilon_{\perp}} \sin \alpha \cos \alpha (1 + \gamma \sin^2 \alpha)^{-2}$$

(3)

.../...

$$\left[K_1 (1 + \xi \sin^2 \alpha) \alpha' \right]_{z=0} = 2 \sin \alpha (0) \cos \alpha (0) W \quad (4)$$

$$\left[K_1 (1 + \xi \sin^2 \alpha) \alpha' \right]_{z=e} = 2 \sin \alpha (e) \cos \alpha (e) W \quad (5)$$

Les expressions (4) et (5) sont identiques du fait de la symétrie du problème :

$$K_1 (1 + \xi \sin^2 \alpha_0) \alpha'_0 = 2 W \sin \alpha_0 \cos \alpha_0 \quad (6)$$

$$\text{où } \alpha'_0 = \left[d\alpha/dz \right]_{z=0}$$

L'expression (3) s'écrit également :

$$K_1 (1 + \xi \sin^2 \alpha) \alpha'' + K_1 \xi \sin \alpha \cos \alpha \alpha'^2 = - \frac{\gamma D_z^2}{4\pi \epsilon_{\perp}} \sin \alpha \cos \alpha (1 + \gamma \sin^2 \alpha)^{-2}$$

En multipliant les deux membres de cette expression par $2\alpha'$ et en intégrant une fois par rapport à z , il vient :

$$K_1 (1 + \xi \sin^2 \alpha) \alpha'^2 = \text{cte} + \frac{D_z^2}{4\pi \epsilon_{\perp}} (1 + \gamma \sin^2 \alpha)^{-1}$$

Pour $\alpha = \alpha_m, \alpha' = 0$, ce qui détermine la constante d'intégration :

$$\text{cte} = - \frac{D_z^2}{4\pi \epsilon_{\perp}} (1 + \gamma \sin^2 \alpha_m)$$

Soit :

$$K_1 (1 + \xi \sin^2 \alpha) \alpha'^2 = \frac{D_z^2 \gamma}{4\pi \epsilon_{\perp}} (\sin^2 \alpha_m - \sin^2 \alpha) (1 + \gamma \sin^2 \alpha)^{-1} (1 + \gamma \sin^2 \alpha_m)^{-1}$$

$$\alpha' = D_z \left\{ \frac{\gamma}{4\pi K_1 \epsilon_{\perp}} \right\}^{1/2} \left\{ \frac{(\sin^2 \alpha_m - \sin^2 \alpha)}{(1 + \xi \sin^2 \alpha) (1 + \gamma \sin^2 \alpha) (1 + \gamma \sin^2 \alpha_m)} \right\}^{1/2} \quad (7)$$

Intégrons par rapport à z et α :

$$z = \frac{1}{D_z} \left\{ \frac{4\pi K_1 \epsilon_{\perp}}{\gamma} (1 + \gamma \sin^2 \alpha_m) \right\}^{1/2} \int_{\alpha_0}^{\alpha} \left\{ \frac{(1 + \gamma \sin^2 \alpha) (1 + \xi \sin^2 \alpha)}{(\sin^2 \alpha_m - \sin^2 \alpha)} \right\}^{1/2} d\alpha \quad (8)$$

Pour $\alpha = \alpha_m$, on obtient alors la valeur de D_z suivante :

$$D_z = \frac{2}{e} \left\{ \frac{4\pi K_1 \epsilon_{\perp}}{\gamma} (1 + \gamma \sin^2 \alpha_m) \right\}^{1/2} \int_{\alpha_0}^{\alpha_m} \left\{ \frac{(1 + \gamma \sin^2 \alpha) (1 + \xi \sin^2 \alpha)}{(\sin^2 \alpha_m - \sin^2 \alpha)} \right\}^{1/2} d\alpha \quad (9)$$

De la relation (7) nous tirons également :

$$\frac{D_z}{\epsilon_{\perp} (1 + \gamma \sin^2 \alpha)} dz = \left\{ \frac{4\pi K_1}{\gamma \epsilon_{\perp}} (1 + \gamma \sin^2 \alpha_m) \right\}^{1/2} \frac{(1 + \xi \sin^2 \alpha)^{1/2}}{(\sin^2 \alpha_m - \sin^2 \alpha) (1 + \gamma \sin^2 \alpha)} d\alpha$$

Soit finalement, en utilisant (1) :

$$V = \frac{2}{\pi} V_0 (1 + \gamma \sin^2 \alpha_m)^{1/2} \int_{\alpha_0}^{\alpha_m} \left\{ \frac{(1 + \xi \sin^2 \alpha)}{(\sin^2 \alpha_m - \sin^2 \alpha) (1 + \gamma \sin^2 \alpha)} \right\}^{1/2} d\alpha \quad (10)$$

où $V_0 = \pi \left(\frac{4\pi K_1}{\gamma \epsilon_{\perp}} \right)^{1/2}$ est une tension de seuil caractéristique.

De plus, d'après (8) et (9), il vient :

$$I(\alpha, \alpha_0) = \frac{2z}{e} I(\alpha_m, \alpha_0) \quad (11)$$

où

$$I(\alpha, \alpha_0) = \int_{\alpha_0}^{\alpha} \left\{ \frac{(1 + \gamma \sin^2 \alpha) (1 + \xi \sin^2 \alpha)}{(\sin^2 \alpha_m - \sin^2 \alpha)} \right\}^{1/2} d\alpha \quad (12)$$

Connaissant α_o et α_m , il est donc possible de calculer la tension V correspondante ainsi que la cote z à laquelle se produit une désorientation d'angle α .

D'autre part, en combinant les relations (6) et (7) nous pouvons écrire :

$$2W \sin \alpha_o \cos \alpha_o = D_z \left\{ \frac{\gamma K_1}{4\pi \epsilon_1} \right\}^{1/2} \left\{ \frac{(1 + \xi \sin^2 \alpha_o)(\sin^2 \alpha_m - \sin^2 \alpha_o)}{(1 + \gamma \sin^2 \alpha_o)(1 + \gamma \sin^2 \alpha_m)} \right\}^{1/2} \quad (13)$$

$$= \frac{2K_1}{e} \left\{ \frac{(1 + \xi \sin^2 \alpha_o)(\sin^2 \alpha_m - \sin^2 \alpha_o)}{(1 + \gamma \sin^2 \alpha_o)} \right\}^{1/2} I(\alpha_m, \alpha_o)$$

Soit finalement :

$$\sin \alpha_o \cos \alpha_o = \frac{2}{\pi} a \left\{ \frac{(1 + \xi \sin^2 \alpha_o)(\sin^2 \alpha_m - \sin^2 \alpha_o)}{(1 + \gamma \sin^2 \alpha_o)} \right\}^{1/2} I(\alpha_m, \alpha_o) \quad (14)$$

où a est une grandeur sans dimension caractéristique de l'ancrage :

$$a = \pi K_1 / We$$

L'ensemble des relations (10), (11), (12) et (14) répond rigoureusement à la question posée. Notons que pour un ancrage infiniment fort, $a = 0$, ce qui implique : $\alpha_o = 0$. Si, en plus, on suppose $\xi \ll 1$ et $\gamma \ll 1$, on retrouve les formules classiques sous la forme :

$$V = \frac{2}{\pi} V_o \int_0^{\alpha_m} \frac{d\alpha}{(\sin^2 \alpha_m - \sin^2 \alpha)^{1/2}} = \frac{2}{\pi} V_o \int_0^{\pi/2} \frac{du}{(1 - \sin^2 \alpha_m \sin^2 u)^{1/2}}$$

où $\sin u = \sin \alpha / \sin \alpha_m$

Soit :

$$V = \frac{2}{\pi} V_o I(\alpha_m, 0)$$

$I(\alpha_m, 0)$ étant alors une intégrale elliptique de première espèce [420] :

$$I(\alpha_m, 0) = F\left(\frac{\pi}{2}, k\right) \quad \text{avec } k = \sin \alpha_m$$

D'autre part, si l'on suppose $\alpha_m \sim \frac{\pi}{2}$, qui est un cas intéressant sur le plan expérimental (cf. § IV B 1), on obtient une simplification de l'expression (13) sous la forme :

$$2W \sin \alpha_o = D_z \left\{ \frac{\gamma K_1}{4\pi \epsilon_{\perp}} \right\}^{1/2} \left\{ \frac{(1 + \xi \sin^2 \alpha_o)}{(1 + \gamma \sin^2 \alpha_o)(1 + \gamma)} \right\}^{1/2} \quad (15)$$

De plus, lorsque la tension appliquée V est largement supérieure à la tension de seuil ($V \geq 5V_o$ par exemple), la quasi-totalité de la cellule est homéotrope, à l'exception de deux couches limites au niveau des parois, dont l'épaisseur diminue quand V augmente. On obtient alors une expression approchée de D_z :

$$D_z \sim \epsilon_{\parallel} \frac{V}{e} \quad (16)$$

En combinant (15) et (16) :

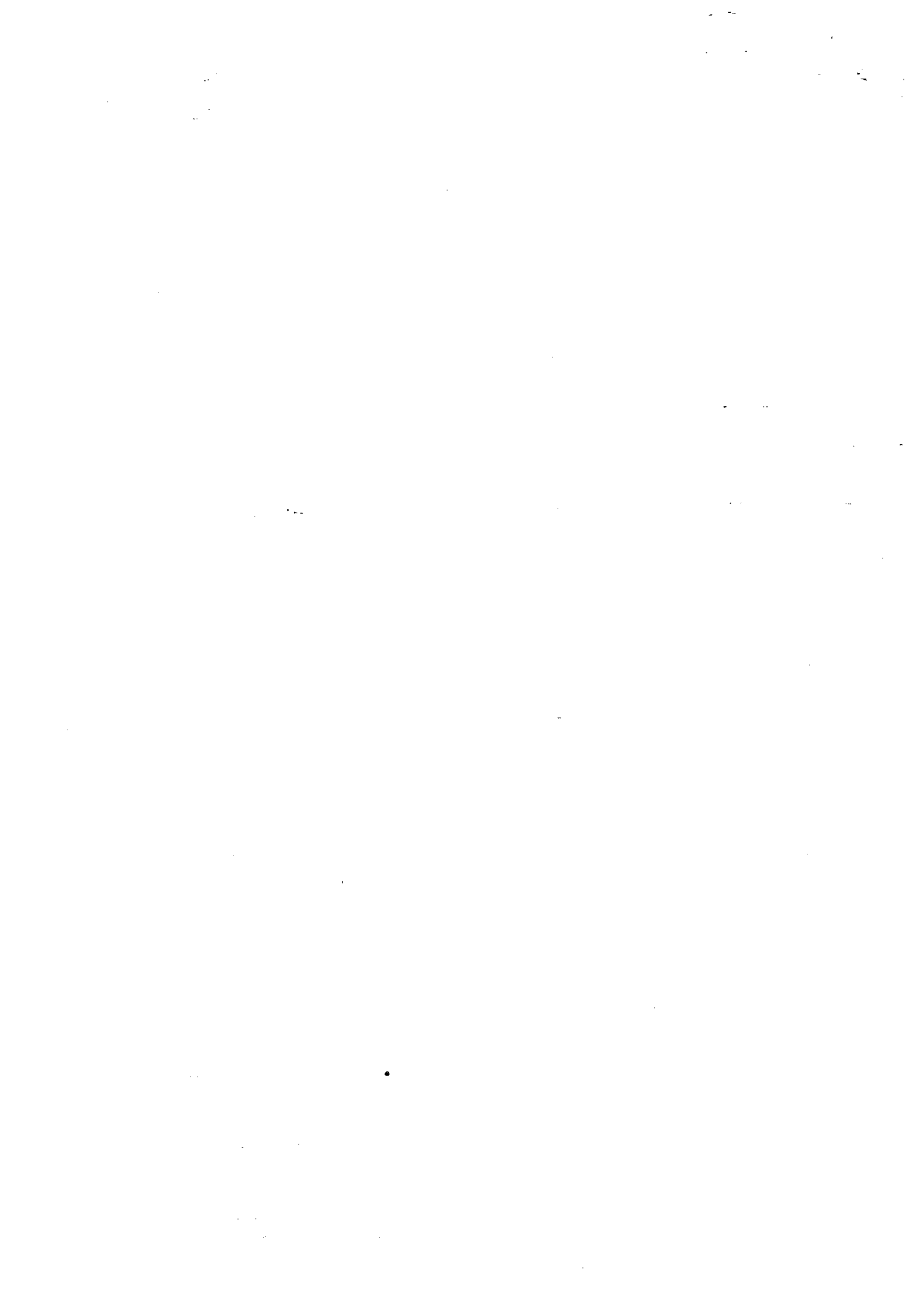
$$\sin \alpha_o = \frac{V}{2We} \left(\frac{\gamma K_1 \epsilon_{\parallel}}{4\pi} \right)^{1/2} \left(\frac{1 + \xi \sin^2 \alpha_o}{1 + \gamma \sin^2 \alpha_o} \right)^{1/2}$$

Soit finalement :

$$\sin \alpha_o = \frac{a}{2} \left(\frac{\epsilon_{\parallel}}{\epsilon_{\perp}} \right)^{1/2} \left(\frac{1 + \xi \sin^2 \alpha_o}{1 + \gamma \sin^2 \alpha_o} \right)^{1/2} v \quad (17)$$

où $v = \frac{V}{V_o}$ représente le champ réduit.

On obtient ainsi une expression analytique approchée de α_o , en fonction des différents paramètres du système, et qui nous sera très utile dans l'interprétation des résultats expérimentaux.



BIBLIOGRAPHIE

CHAPITRE I

- 101 M. BORN, E. WOLF
Principles of Optics, Pergamon Press, New-York, 1975.
- 102 P. ROUARD
Ann. Phys., 7, 291 (1937).
- 103 D. RIVIERE
Thèse Doct. Ing., Orsay, 1978.
- 104 Y. LEVY, D. RIVIERE, C. IMBERT, M. BOIX
Opt. Comm., 26, 225 (1978).
- 105 F. ABELES
Ann. Phys., 3, 504 (1948).
- 106 A. W. CROOK
J.O.S.A., 38, 954 (1948).
- 107 A. VASICEK
J. Phys., 11, 342 (1950).
- 108 F. ABELES
Ann. Phys., 5, 596 (1950).
- 109 F. ABELES
Ann. Phys., 5, 706 (1950).
- 110 O.S. HEAVENS
Optical Properties of Thin Solid Films, Dover Publications, New-York, 1965.
- 111 L.M. BREKHOVSKIKH
Waves in Layered Media, Academic Press, New-York, 1980.
- 112 J. R. WAIT
Electromagnetic Waves in Stratified Media, Pergamon Press, Oxford, 1970.
- 113 P. BOUSQUET, E. PELLETIER
Thin Solid Films, 77, 165 (1981).
- 114 E. PELLETIER, P. ROCHE, B. VIDAL
Nouv. Rev. Opt., 7, 353 (1976).
- 115 H. SCHOPPER
Z. Phys., 132, 146 (1952).
- 116 H. BOUASSE
Optique Cristalline, Delagrave Ed., Paris, 1925.
- 117 R. C. JONES
Polarized Light (Benchmarks Papers in Optics), vol. 1
W. Swindell Ed., Dowden, Hutchinson & Ross, New-York, 1975.

- 118 H.G. JERRARD
Optics & Laser Technology, 309 (1982).
- 119 S. TEITLER, B.W. HENVIS
J.O.S.A., 60, 830 (1970).
- 120 D. W. BERREMAN, T. J. SCHEFFER
Phys. Rev. Lett., 25, 577 (1970).
- 121 D. W. BERREMAN
J.O.S.A., 63, 1374 (1973).
- 122 D.A. HOLMES, D. L. FEUCHT
J.O.S.A., 56, 1763 (1966).
- 123 R. JACOBSSON
"Light reflection from films of continuously varying refractive index",
Progress in Optics, Vol. 5, North-Holland Publishing Company,
Amsterdam, 1966.
- 124 LORD RAYLEIGH
Proc. Roy. Soc., A 86, 207 (1912).
- 125 C. KITTEL
Introduction à la Physique de l'Etat Solide, Dunod Ed., Paris, 1971.
- 126 H. RAETHER
"Surface Plasma Oscillations and Their Applications", Physics of thin
films, vol. 9, Academic Press, New-York, 1977.
- 127 F. ABELES
"Optical Properties of Metals", Optical Properties of Solids, chap. 3,
North-Holland Publishing Company, Amsterdam, 1972.
- 128 G. HASS, J. E. WAYLONIS
J.O.S.A., 50, 1133 (1960).
- 129 K. WEISS
Z. Naturforscher, 3 a, 143 (1948).
- 130 P. B. JOHNSON, R.W. CHRISTY
Phys. Rev. B, 6, 4370 (1972).
- 131 L. G. SCHULZ
J.O.S.A., 44, 357 (1954).
- 132 V. M. AGRANOVICH, D. L. MILLS
Surface Polaritons, North-Holland Publishing Company, Amsterdam, 1982.
- 133 A. D. BOARDMAN
Electromagnetic Surface Modes, John Wiley and Sons, New-York, 1982.
- 134 F. ABELES
J. Phys., 38, C5-67 (1977).

- 135 W. STEINMANN
Phys. Stat. Solidi, 28, 437 (1968).
- 136 E. BURSTEIN, W. P. CHEN, Y. J. CHEN, A. HARTSTEIN
J. Vac. Sci. Technol., 11, 1004 (1974).
- 137 A. HARTSTEIN, E. BURSTEIN, J. J. BRION, R. F. WALLIS
Surf. Sci, 34, 81 (1973).
- 138 R.F. WALLIS, J.J. BRION, E. BURSTEIN, A. HARTSTEIN
Phys. Rev. B, 9, 3424 (1973).
- 139 A. HARTSTEIN, E. BURSTEIN, J. J. BRION, R. F. WALLIS
Solid. State Commun., 12, 1083 (1973).
- 140 A. OTTO
Z. Physik, 216, 398 (1968).
- 141 E. KRETSCHMANN
Z. Physik, 241, 313 (1971).
- 142 P. DUMAS, J.P. DUBARRY-BARBE, D. RIVIERE, Y. LEVY, J. CORSET
J. Phys., 44, C10-205 (1983).
- 143 U. FANO
J.C.S.A., 31, 213 (1941).
- 144 Y. Y. TENG, E. A. STERN
Phys. Rev. Lett., 19, 511 (1967).
- 145 R.H. RITCHIE, E. T. ARAKAWA, J. J. COWAN, R. N. HAMM
Phys. Rev. Lett, 21, 1530 (1968).
- 146 H. RAETHER
Opt. Comm., 42, 217 (1982).
- 147 I. POCKRAND, H. RAETHER
Opt. Comm., 18, 395 (1976).
- 148 E. KROGER, E. KRETSCHMANN
Phys. Stat. Solidi, 76 b, 515 (1976).
- 149 E. KRETSCHMANN
Opt. Comm., 6, 185 (1972).
- 150 G. HASS, C. D. SALZBERG
J.O.S.A., 44, 181 (1954).
- 151 R. P. HOWSON, A. TAYLOR,
Thin Solid Films, 9, 109 (1971):
- 152 A. HJORTSBERG, C. G. GRANQVIST
Appl. Opt., 19, 1694 (1980).

153 D. RIVIERE, G. R. ROGER
J. Phys., 44, C10-113 (1983).

154 A. VASICEK
Optics of Thin Films, North-Holland Publishing Company, Amsterdam, 1960.

CHAPITRE II

- 201 F. REINITZER
Monatsch, 9, 421 (1888).
- 202 G. FRIEDEL
Ann. Phys., 18, 273 (1922).
- 203 S. CHANDRASEKHAR, B. K. SADASHIVA, D. A. SURESH
Pramana, 9, 471 (1977).
- 204 W. E. HAAS
Mol. Cryst. Liq. Cryst., 94, 1 (1983).
- 205 P. G. DE GENNES
The Physics of Liquid Crystals, Oxford University Press, London, 1976.
- 206 J. A. CASTELLANO
Mol. Cryst. Liq. Cryst., 94, 33 (1983).
- 207 C. N. OSEEN
Trans. Faraday Soc., 29, 833 (1933).
- 208 H. ZOCHER
Trans. Faraday Soc., 29, 945 (1933).
- 209 F. C. FRANK
Discuss. Faraday Soc., 25, 19 (1958).
- 210 J. L. ERIKSEN
Arch. Ration. Mech. Anal., 4, 231 (1960).
- 211 F. M. LESLIE
Quart. J. Mech. appl. Math., 19, 357 (1966).
- 212 O. PARODI
J. Phys., 31, 581 (1970).
- 213 J. D. JACKSON
Classical Electrodynamics, John Wiley and Sons, New-York, 1975.
- 214 D. J. CHANNIN
Appl. Phys. Lett., 22, 365 (1973).
- 215 J. P. SHERIDAN, J. M. SCHNUR, T. G. GIALLORENZI
Appl. Phys. Lett., 22, 560 (1973).
- 216 CHENMING HU, J. R. WHINNERY, N. M. AMER
IEEE J. Quantum Electronics, 10, 218 (1974).
- 217 C. MAUGUIN
Bull. Soc. Franç. Minér. Crist., 34, 71 (1911).

- 218 P. CHATELAIN
Bull. Soc. Franç. Minér. Crist., 66, 105 (1943).
- 219 D. W. BERREMAN
Phys. Rev. Lett., 28, 1683 (1972).
- 220 J. L. JANNING
Appl. Phys. Lett., 21, 173 (1972).
- 221 E. GUYON, P. PIERANSKI, M. BOIX
Lett. Appl. Eng. Sci, 1, 19 (1973).
- 222 W. URBACH, M. BOIX, E. GUYON
Appl. Phys. Lett., 25, 479 (1974).
- 223 D. MEYERHOFER
Appl. Phys. Lett., 29, 691 (1976).
- 224 G.J. SPROKEL
The Physics and Chemistry of Liquid Crystal Devices, Plenum Press,
New-York, 1980.
- 225 V. FREEDERICKSZ, V. ZOLINA
Trans. Faraday Soc., 29, 919 (1933).
- 226 D. C. FLANDERS, D. C. SHAVER, H. I. SMITH
Appl. Phys. Lett., 32, 597 (1978).
- 227 J. CHENG, G.D. BOYD
Appl. Phys. Lett., 35, 444 (1979).
- 228 M. NAKAMURA, M. URA
J. Appl. Phys., 52, 210 (1981).
- 229 J. E. PROUST, L. TER-MINASSIAN-SARAGA, E. GUYON
Solid State Commun., 11, 1227 (1972).
- 230 J. E. PROUST, L. TER-MINASSIAN-SARAGA
J. phys., 36, C1-77 (1975).
- 231 F. J. KAHN
Appl. Phys. Lett., 22, 386 (1973).
- 232 L. T. CREAGH, A. R. KMETZ
Mol. Cryst. Liq. Cryst., 24, 59 (1973).
- 233 G. PORTE
J. Phys., 37, 1245 (1976).
- 234 F. R. FOWKES
Adv. Chem. Series, vol. 43.
- 235 J. C. DUBOIS, M. GAZARD, A. ZANN
J. Appl. Phys., 47, 1270 (1976).
- 236 I. HALLER
Appl. Phys. Lett., 24, 349 (1974).

- 237 T. UCHIDA, K. ISHIKAWA, M. WADA
Mol. Cryst. Liq. Cryst., 60, 37 (1980).
- 238 T. UCHIDA, H. WATANABE, M. WADA
Jap. J. Appl. Phys., 11, 1559 (1972).
- 239 M. KLEMAN, C. WILLIAMS
Phil. Mag., 28, 725 (1973).
- 240 C. WILLIAMS, V. VITEK, M. KLEMAN
Solid State Commun., 12, 581 (1973).
- 241 C. WILLIAMS, M. KLEMAN
Phil. Mag., 23, 721 (1973).
- 242 G. RYSCHENKOW, M. KLEMAN
J. Chem. Phys., 64, 404 (1976).
- 243 A. RAPINI, M. PAPOULAR
J. Phys., 30, C4-54 (1969).
- 244 J. SICART
J. Phys. Lett., 37, 25 (1976).
- 245 S. NAEMURA
J. Phys., 40, C3-514 (1979).
- 246 S. NAEMURA
Appl. Phys. Lett., 33, 1 (1978).
- 247 G. J. SPROKEL
Mol. Cryst. Liq. Cryst., 68, 29 (1981).
- 248 K. H. YANG
J. Appl. Phys., 53, 6742 (1982).
- 249 G. W. GRAY, K. J. HARRISON, J. A. NASH
Electron. Lett., 9, 130 (1973).
- 250 E. P. RAYNES, R. J. A. TOUGH, K. A. DAVIES
Mol. Cryst. Liq. Cryst. Lett., 56, 63 (1979).
- 251 D. RIVIERE, Y. LEVY, C. IMBERT
Opt. Comm., 25, 206 (1978).
- 252 D. A. DUNMUR, M.R. MANTERFIELD, W. H. MILLER, J. K. DUNLEAVY
Mol. Cryst. Liq. Cryst., 45, 127 (1978).
- 253 B. R. RATNA, R. SASHIDAR
Mol. Cryst. Liq. Cryst., 42, 113 (1977).
- 254 P. P. KARAT, N. V. MADHUSUDANA
Mol. Cryst. Liq. Cryst., 36, 51 (1976).

- 255 G. P. MONTGOMERY
J.O.S.A., 70, 843 (1980).
- 256 M. SCHADT, F. MULLER
IEEE, Trans. Electr. Der., 25, 1125 (1978).

CHAPITRE III

- 301 L. D. LANDAU, E. M. LIFSHITZ
Fluid Mechanics, Oxford University Press, London, 1959.
- 302 C. GAHWILLER
Phys. Lett., 36 A, 311 (1971).
- 303 J. WAHL, F. FISHER
Opt. Comm., 5, 314 (1972).
- 304 L. NEVOT
Communication privée.
- 305 G. BRUHAT
Optique, Masson Ed., Paris, 1965.
- 306 I. JANOSSY, P. PIERANSKI, E. GUYON
J. Phys., 37, 1105 (1976).
- 307 P. PIERANSKI
Thèse de Doctorat d'Etat, Orsay, 1976.
- 308 C. GAHWILLER
Phys. Rev. Lett., 28, 1554 (1972).
- 309 D. RIVIERE, Y. LEVY
Mol. Cryst. Liq. Cryst. Lett., 64, 177 (1981).
- 310 M. MIESOWICZ
Nature, 17, 265 (1935).
- 311 M. MIESOWICZ
Nature, 158, 27 (1946).

CHAPITRE IV

- 401 D. RIVIERE, Y. LEVY
J. Phys. Lett., 40, L215 (1979).
- 402 E. GUYON, P. PIERANSKI, M. BOIX
J. Phys., 39, 99 (1978).
- 403 E. RAYNES, D.K. ROWELL, I.A. SHANKS
Mol. Cryst. Liq. Cryst., 34, 105 (1976).
- 404 V. FREEDERICKSZ, V. ZWETKOFF
Sov. Phys., 6, 490 (1934).
- 405 A. RAPINI
J. Phys., 34, 629 (1973).
- 406 H.J. DEULING
"Elasticity of Nematic Liquid Crystals", Liquid Crystals, L. Liébert Ed.,
Solid State Phys., Advances in Research and Applications, supp. n° 14,
Academic Press, New-York, 1978.
- 407 J. NEHRING, A.R. KMETZ, T.J. SCHEFFER
J. Appl. Phys., 47, 850 (1976).
- 408 J. PRIEST, H.L. CASWELL, Y. BUDO
J. Appl. Phys., 34, 347 (1963).
- 409 W.A. CROSSLAND
Appl. Phys. Lett., 26, 598 (1975).
- 410 M. CLERC
Communication privée
- 411 J.P. CHAUVINEAU
Communication privée
- 412 M.L. THEYE
Proceedings of the Colloquium on Thin Films, Budapest, 1965.
- 413 A. SUSSMAN
Appl. Phys. Lett., 29, 633 (1976).
- 414 L.M. BLINOV, M.I. BARNIK, A.N. TRUFANOV
Mol. Cryst. Liq. Cryst., 89, 47 (1982).
- 415 M. SCHADT, C. VON PLANTA
J. Chem. Phys., 63, 4379 (1975).
- 416 W.H. DE JEU
The Dielectric Permittivity of Liquid Crystals, Liquid Crystals, L. Liébert
Ed., Solid State Phys., Advances in Research and Applications,
supp. n° 14, Academic Press, New-York, 1978.

- 417 G. J. SPROKEL, R. SANTO, J. D. SWALEN
Mol. Cryst. Liq. Cryst., 68, 29 (1981).
- 418 J. H. MORRISSY, W. A. CROSSLAND, B. NEEDHAM
J. Phys. D, 10, L175 (1977).
- 419 K. W. K. TOM, C. K. CHEN, A.R.B. DE CASTRO, Y. R. SHEN
Solid State Commun., 41, 259 (1982).
- 420 M. ABRAMOWITZ, I.A. STEGUN
Handbook of Mathematical Functions, Dover Publications, New-York, 1970.

CHAPITRE V

- 501 D. M. KOLB
"The study of solid-liquid interfaces by surface plasmon polariton excitation", in "Surface Polaritons", V. M. AGRANOVICH et D. L. MILLS Ed. (North Holland - Amsterdam 1982).
- 502 H. RAETHER
"Surface plasmons and roughness", in "Surface Polaritons", V. M. AGRANOVICH et D. L. MILLS Ed. (North Holland-Amsterdam 1982).
- 503 R. W. ALEXANDER Jr, R. J. BELL, C. A. WARD
"Two prism surface electromagnetic wave spectroscopy", in "Electromagnetic Surface Modes", A. D. BOARDMAN Ed. (John Wiley & Sons New-York 1982).
- 504 M. FUKUI, G. I. STEGEMAN
"Non linear Optics of surface polaritons", in "Electromagnetic Surface Modes", A. D. BOARDMAN Ed. (John Wiley & Sons - New-York 1982).
- 505 N. J. HARRICK
"Internal Reflection Spectroscopy" - John Wiley & Sons (New-York 1967).
- 506 J. T. DAVIES, E. K. RIDEAL
"Interfacial Phenomena" - Academic Press (New-York 1963).
- 507 A. W. ADAMSON
"Physical Chemistry of Surfaces" - John Wiley & Sons, New-York 1976).
- 508 C. JACQUIN
Communication privée
- 509 H. GHIRADELLA, W. RADIGAN, H. L. FRISCH
J. Colloid Interface Sci., 51, 522 (1975).
- 510 W. D. BASCOM, R. L. COTTINGTON, C. R. SINGLETERRY
Adv. Chem. Ser., 48, 355 (1964).
- 511 A. MARMUR
Adv. Colloid Interface Sci., 19, 75 (1983).
- 512 L. H. TANNER
J. Phys. D. : Appl. Phys., 12, 1473 (1979).
- 513 P. G. de GENNES
"Interfaces Solide-Fluide" - Cours du Collège de France (Paris- 1983/1984).
- 514 P. G. de GENNES
"Scaling concepts in polymer physics" - Cornell University Press (New-York - 1979).
- 515 C. ALLAIN, D. AUSSERRE, F. RONDELEZ
Phys. Rev. Lett., 49, 1694 (1982).

- 516 P. G. de GENNES
Macromolecules, 14, 1637 (1981).
- 517 D. BEYSENS, S. LEIBLER
J. Phys. Lett. 43, L 133 (1982).
- 518 M. E. FISHER, P. G. de GENNES
C.R.A.S., 287 B, 207 (1978).
- 519 C. FRANCK, S. E. SCHNATTERLY
Phys. Rev. Lett., 48, 763 (1982).
- 520 O'D KWON, D. BEAGLEHOLE, W. W. WEBB, B. WIDOM, J. W. SCHMIDT,
J. W. CAHN, M. R. MOLDOVER, B. STEPHENSON.
Phys. Rev. Lett., 48, 185 (1982).
- 521 M. R. MOLDOVER, J. W. CAHN
Science, 207, 1073 (1980).
- 522 J. C. CHARMET, P. G. de GENNES
J.O.S.A., 73, 1777 (1983).

