

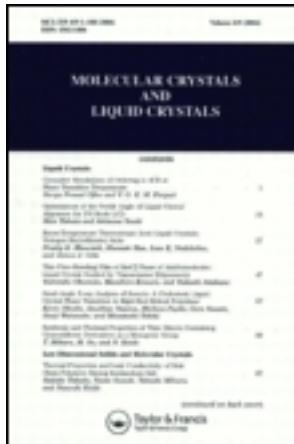
This article was downloaded by: [Tomsk State University of Control Systems and Radio]

On: 17 February 2013, At: 06:20

Publisher: Taylor & Francis

Informa Ltd Registered in England and Wales Registered Number: 1072954

Registered office: Mortimer House, 37-41 Mortimer Street, London W1T 3JH, UK



## Molecular Crystals

Publication details, including instructions for authors and subscription information:

<http://www.tandfonline.com/loi/gmcl15>

## Faciès d'une Stase Smectique

J. P. Meunier Et <sup>a</sup> & J. Billard <sup>b</sup>

<sup>a</sup> Laboratoire de Physique des Milieux cristallins. associé au C.N.R.S. No. 68 attaché à la Chaire de Physique théorique du Collège de France, II Place Marcelin Berthelot, 75, Paris Ve, France

<sup>b</sup> Laboratoire de Physique des Stases anisotropes

Département de Physique, Faculte des Sciences de Lille, B.P. No. 36, 59, Lille, France

Version of record first published: 29 Aug 2007.

To cite this article: J. P. Meunier Et & J. Billard (1969): Faciès d'une Stase Smectique, Molecular Crystals, 7:1, 421-431

To link to this article: <http://dx.doi.org/10.1080/15421406908084888>

PLEASE SCROLL DOWN FOR ARTICLE

Full terms and conditions of use: <http://www.tandfonline.com/page/terms-and-conditions>

This article may be used for research, teaching, and private study purposes. Any substantial or systematic reproduction, redistribution, reselling, loan, sub-licensing, systematic supply, or distribution in any form to anyone is expressly forbidden.

The publisher does not give any warranty express or implied or make any representation that the contents will be complete or accurate or up to date. The accuracy of any instructions, formulae, and drug doses should be independently verified with primary sources. The publisher shall not be liable for any loss, actions, claims, proceedings, demand, or costs or damages whatsoever or howsoever

caused arising directly or indirectly in connection with or arising out of the use of this material.

## Faciès d'une Stase Smectique

J. P. MEUNIER et J. BILLARD

Laboratoire de Physique des Milieux cristallins, associé au C.N.R.S. No. 68  
attaché à la Chaire de Physique théorique du Collège de France  
11 Place Marcelin Berthelot, 75 Paris Ve, France

et

Laboratoire de Physique des Stases anisotropes  
Département de Physique, Faculté des Sciences de Lille  
B.P. No. 36, 59 Lille, France

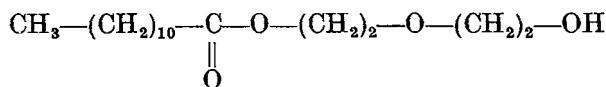
**Abstract**—The monoester of dodecanoic acid and 2,2'-dihydroxy ethyl ether (industrial mixture) is smectic at room temperature and may show particular facies.

These facies are studied with a modified microscope. Sections across the figure by planes in two zones (perpendicular axis) are approximately circular. Therefore, the general shape of these facies is a Dupin's cyclide.

A slight undulation superposes over this general form, with an amplitude inferior to one per cent of the radius of any of the circular sections.

### Introduction

Il a été constaté récemment<sup>1,2</sup> que la surface libre de la stase<sup>3</sup> smectique du monododécanoate de 2,2'-dihydroxy-éthyl éther :



(laurate de diéthylène-glycol : laurate de DEG dans la suite) présente parfois un relief particulier, de forme approximativement torique et comportant notamment des puits.

Les cristaux ont une forme polyédrique, on sait, depuis Romé de l'Isle, que leurs angles dièdres sont constants pour une espèce donnée et, depuis Haüy, que les faces obéissent à la loi des troncatures rationnelles simples. Plateau<sup>4</sup> a montré que le faciès intrinsèque d'un liquide est une sphère ce qui a été confirmé récemment par des observations en apesanteur.<sup>5</sup>

Les stases mésomorphes sont des stases intermédiaires entre l'état cristallin et l'état liquide. On peut se demander quel est leur faciès. L'étude du relief du laurate de DEG a permis de répondre à cette question en ce qui concerne une stase smectique.

L'étude a porté sur un échantillon de produit industriel.† Ce produit est une cire blanche et molle qui fond à 32,8 °C. Il contient environ 50% de monoester, 42 à 45% de diester, 4 à 7% de diéthylène-glycol libre et 1 à 2% d'acide laurique libre. En chauffant ce mélange à 90 °C pendant une heure et en le refroidissant ensuite rapidement on peut obtenir une surfusion de plusieurs degrés centigrades et conserver la stase liquide à 28 °C pendant plusieurs heures.

Examiné au microscope, en lumière polarisée, l'échantillon avant fusion ne révèle qu'une texture confuse. Le diagramme de diffusion des rayons X à la température ambiante est analogue à celui de la lécithine. Nous en déduisons que le laurate de DEG est smectique à cette température.

### **Elaboration et Description de la Préparation**

Si la stase liquide est refroidie sans précautions, des germes apparaissent en grande quantité dans la masse et en surface; les domaines obtenus sont microscopiques. La surface libre est sensiblement plane. Si la stase liquide est portée à 90 °C puis refroidie rapidement à 28 °C et si un germe est déposé à la surface de la préparation, la croissance s'effectue à partir de quelques centres seulement.

Les germes peuvent alors, soit couler au fond (la stase smectique a une masse volumique supérieure à celle de la stase liquide) soit rester en surface, retenus par la tension superficielle. En surface se forment des globules sensiblement hémisphériques en dessous, et de forme torique avec un puits au centre à la face supérieure. C'est sur cette face supérieure que l'étude topographique a porté. Le changement de stase s'accomplit dans une préparation de 100 cm<sup>3</sup> en une demi-heure environ. Il n'a pas été possible

† Ets NYCO, 159, rue de Rome, Paris XVII<sup>e</sup>me, FRANCE.

d'isoler complètement un monodomaine de grande taille dans une préparation ; lorsqu'un germe est déposé en surface, il ne tarde pas à en apparaître d'autres soit en surface soit au sein du liquide, les figures du relief se recoupent partiellement.

### Propriétés des Cyclides de Dupin

L'examen, au microscope polarisant, d'une texture particulière des stases smectiques a conduit G. Friedel<sup>6</sup> à concevoir que les strates des corps smectiques s'enroulent suivant des familles de cyclides de Dupin.<sup>7</sup> Le tore est un cas particulier de cyclide, il donne une idée de la forme générale. G. Friedel a signalé qu'un ensemble de plans parallèles constitue un cas particulier de famille de cyclides de Dupin, ces plans ont été observés par Grandjean.<sup>8</sup>

Les analogies entre le relief présenté par le laurate de DEG et les cyclides de Dupin sont frappantes. Nous avons cherché à vérifier si le relief du laurate de DEG a la forme d'une cyclide de Dupin.

La cyclide de Dupin a pour équation :

$$(x^2 + y^2 + z^2 + b^2 - k^2)^2 - 4(ax + ck)^2 - 4y^2b^2 = 0 \quad ^{9,10}$$

Elle a pour propriété caractéristique d'avoir pour lignes de courbures principales, des cercles, représentées sur la Fig. 1. Ces cercles peuvent être regroupés en deux familles. Les plans des cercles d'une même famille appartiennent à une zone.

Les deux axes de zone ( $\Delta'$ ) et ( $\Delta''$ ) sont perpendiculaires (Fig. 2). Les cercles de la zone ( $\Delta'$ ), ( $C'_1$ ) et ( $C'_2$ ), de rayons extrêmes ( $k + c$ ) et ( $k - c$ ) sont dans un même plan, la distance de leurs deux centres  $O'_1 O'_2$  est égale à  $2a$ . La connaissance des cercles ( $C'_1$ ) et ( $C'_2$ ) est suffisante pour déduire les positions des axes de zone ( $\Delta'$ ) et ( $\Delta''$ ).

On peut avoir, pour des valeurs particulières des paramètres, des cyclides de Dupin remarquables. Pour  $c = 0$ , la cyclide est de révolution : c'est un tore d'axe ( $\Delta'$ ) ; ( $\Delta''$ ) est rejeté à l'infini. Pour  $c = 0$ ,  $k - a$  fini avec  $k$  et  $a$  tendant vers l'infini, la cyclide devient un cylindre de révolution d'axe Oz. Si  $a = b = c = 0$  la cyclide est une sphère de rayon  $k$ .

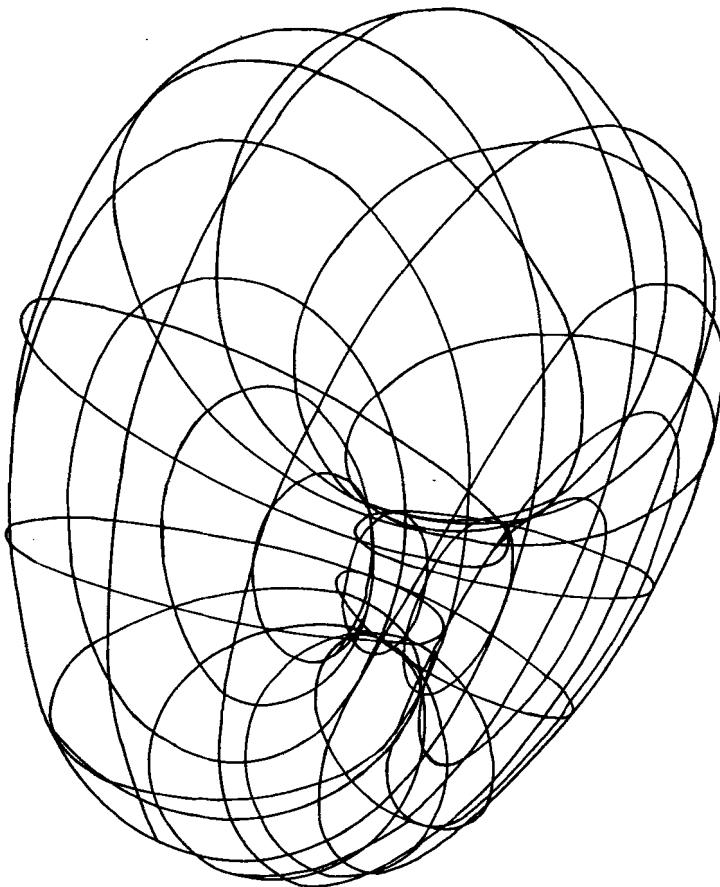


Figure 1. Cyclide de Dupin. Les deux familles de lignes de courbure principale sont représentées. D'après Maxwell, Scientific Papers.<sup>10</sup>

#### **Etude de la Topographie du Relief**

Une préparation de laurate de DEG, montrant une figure bien individualisée de plusieurs centimètres de diamètre, a été placée sur une surplatine comportant un mouvement de translation et un plateau tournant (Fig. 3). Ce dispositif a été placé sur un microscope éclairé en lumière incidente. Un objectif à grande distance frontale (6,5 mm) et à fort grossissement utilisé à pleine

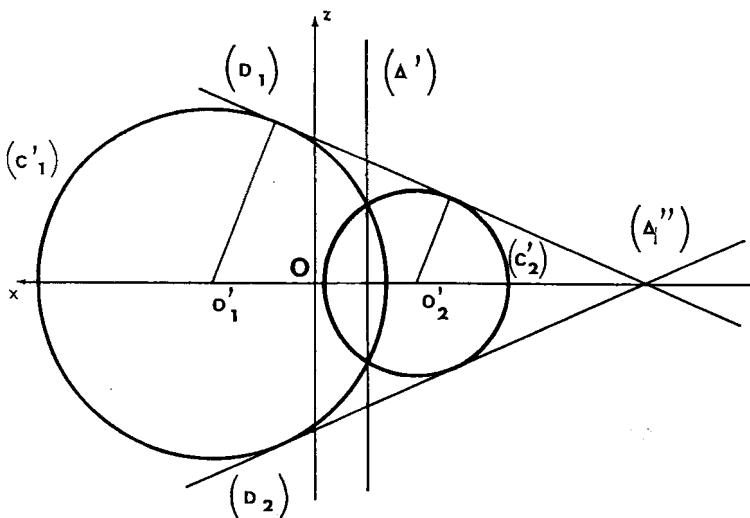


Figure 2. Cyclide de Dupin vue en coupe. L'axe de zone ( $\Delta''$ ) est perpendiculaire au plan de la figure.

ouverture permet d'apprécier la mise au point à quelques microns près.

La figure observée est sensiblement de révolution, l'erreur commise en confondant ( $\Delta'$ ) avec la perpendiculaire au plan tangent passant par le puits visible est faible. Le plan tangent est matérialisé par un miroir constitué par un film de claryl<sup>‡</sup> recouvert d'aluminium sur une face et tendu sur un cadre (pour 8 à 9 cm<sup>2</sup> de surface utile le poids du dispositif ne dépasse pas un gramme) posé sur la préparation. Si le faisceau de lumière réfléchi, observé avec une lentille de Bertrand reste immobile quand le plateau tourne, la perpendiculaire au miroir est confondue avec l'axe du microscope. Les points obtenus pour chaque section par un plan passant par ( $\Delta'$ ) s'ordonnent bien sur des cercles. Les cercles qui passent au mieux parmi ces points ont été calculés par la méthode des moindres carrés. A la forme générale circulaire se superpose une ondulation représentée

<sup>‡</sup> Société La Cellophane. 110 boulevard Hausmann, 75, Paris VIII<sup>e</sup>, FRANCE.

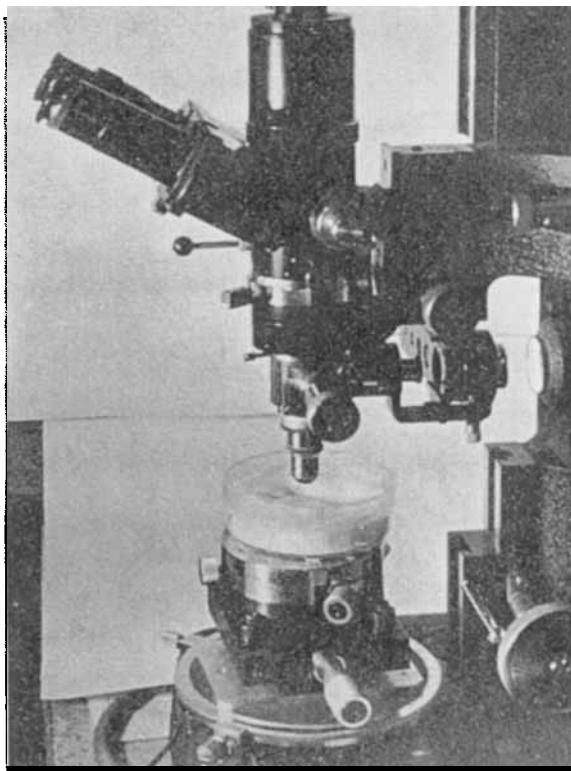


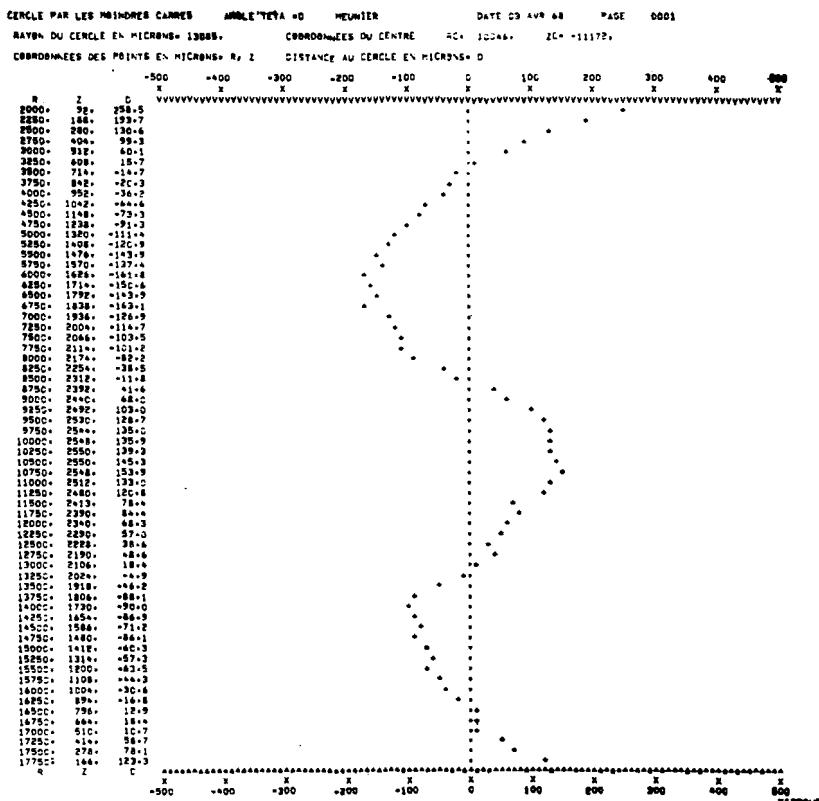
Figure 3. Surplatine pour le microscope.

Fig. 4, dont l'amplitude décroît quand on s'éloigne du puits. L'amplitude de cette ondulation est au maximum égale à 1% du rayon du cercle. Les rayons  $R$  des cercles ( $C'$ ) varient suivant l'orientation  $\theta$  du plan de section autour de ( $A'$ ) comme le montre la Fig. 5.

La connaissance des cercles de rayon maximum et minimum permet de calculer les paramètres  $k$ ,  $c$  et  $a$  de la cyclide de Dupin. Nous avons obtenu par exemple :

$$k = 13,82 \text{ mm}, \quad c = 1,145 \text{ mm}, \quad a = 9,39 \text{ mm}$$

Cette cyclide n'est pas de révolution, l'erreur commise en analysant les sections de l'échantillon par des plans passant par un axe ( $A'$ )

Figure 4. Section du relief par un plan de la zone ( $\Delta'$ ).

approximatif est inférieure aux incertitudes dues à l'existence de l'ondulation. Des cercles ( $C'_1$ ) et ( $C'_2$ ) nous déduisons la position de l'axe de zone ( $\Delta''$ ), la distance de cet axe à  $O$ , est, dans l'exemple déjà mentionné, égale à 111,8 mm.

Les intersections du relief avec des plans passant par ( $\Delta''$ ) ont été aussi étudiées (Fig. 6). Les points obtenus s'ordonnent aussi selon des cercles. Le relief du laurate de DEG a donc bien la forme générale d'une cyclide de Dupin. A cette forme générale se superpose une ondulation, telle que les intersections de la surface avec la cyclide sont des cercles dont les plans appartiennent à la zone ( $\Delta''$ ).

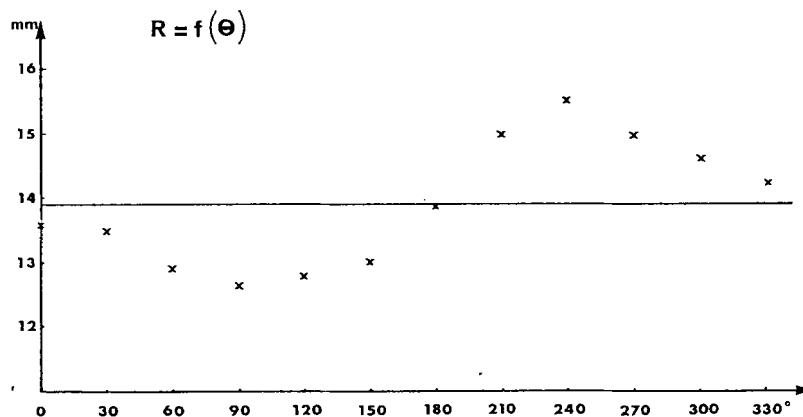


Figure 5. Rayon  $R$  des cercles ( $C'$ ) de diverses orientations. Le rayon moyen est représenté par le trait horizontal.

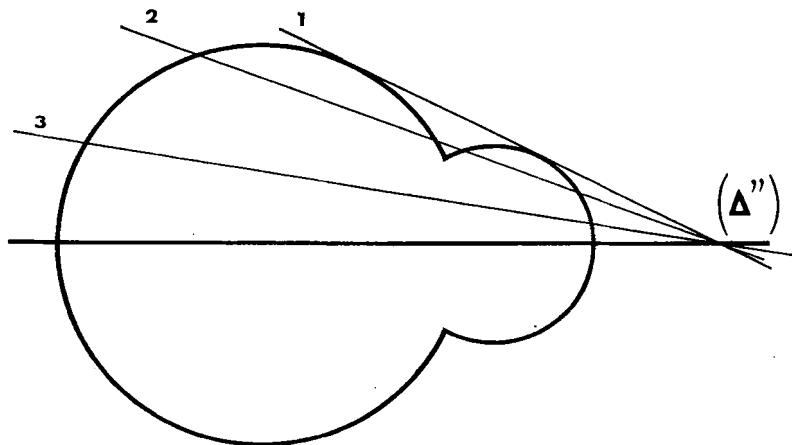


Figure 6. Coupe d'une cyclide par des plans passant par l'axe de zone ( $\Delta''$ ).

### Expériences de Croissance Perturbée

Le relief caractéristique présenté par le laurate de DEG n'a jamais été obtenu quand le germe apparaît au sein de la stase

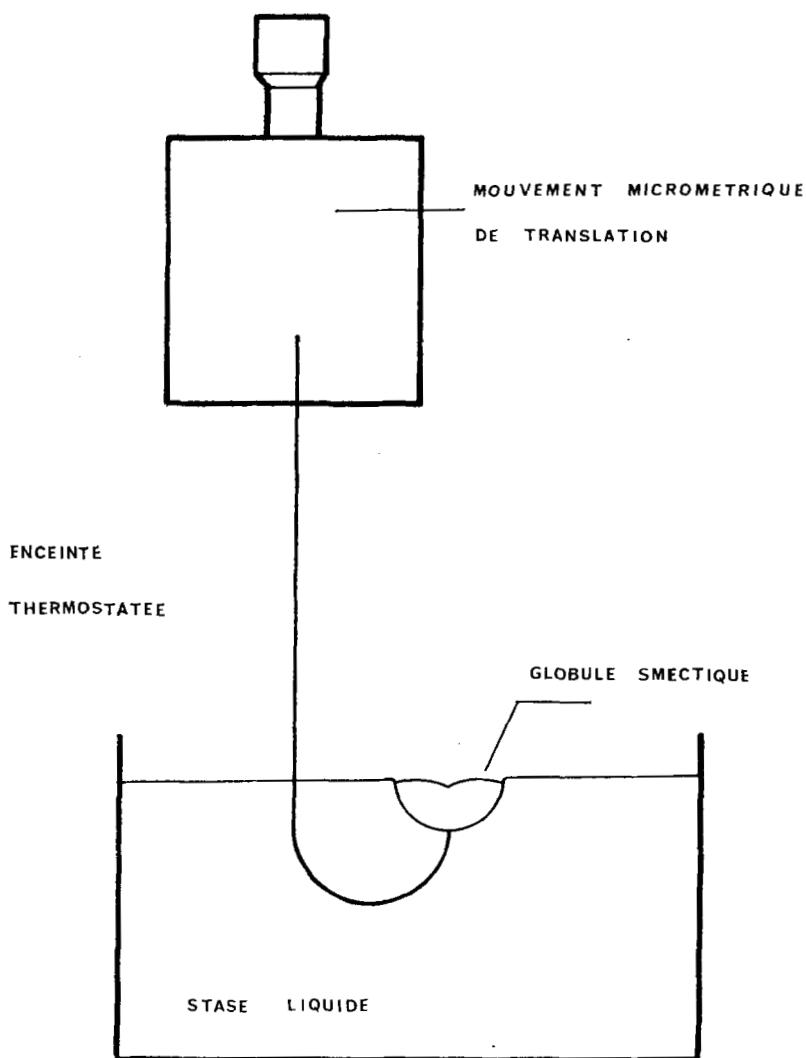


Figure 7. Expérience de croissance générée, schéma du montage.

liquide. Nous nous sommes assurés que le relief observé ne résulte pas de la flottation du globule smectique à la surface de la préparation : la topographie de la face supérieure d'un globule maintenu fixe (le montage est schématisé sur la Fig. 7) tout au long de sa croissance a été étudiée. Les points d'une section passant par ( $\Delta'$ ) s'ordonnent aussi suivant un cercle, la forme de cette surface est encore une cyclide de Dupin. L'existence d'une ondulation a pu, dans ce cas aussi, être décelée.

Un globule présentant un puits très net plongé au sein de la stase liquide voit son relief se combler rapidement s'il y a croissance, le globule prend alors une forme sensiblement sphérique. Par contre si le globule est enfoncé puis ramené en surface, le puits d'abord noyé réapparaît au fur et à mesure du changement de stase. Cette expérience menée plusieurs fois ne conduit pas toujours au même résultat. Si un globule est enfoncé dans le liquide d'une hauteur  $l$  assez faible pour que le puits initial ne soit pas comblé, le changement de stase à la face supérieure se fait le long du ménisque de raccordement et il se forme une strate horizontale d'épaisseur  $l$ . Si l'opération est répétée à des intervalles de temps égaux, les strates en retrait les unes sur les autres prennent l'aspect de marches d'escalier. A la limite si le globule est enfoncé à vitesse constante (de un millimètre en cinq minutes par exemple) le puits prend une forme conique. L'angle au sommet du cône est fonction de la vitesse d'enfoncement.

### Conclusion

La stase smectique du laurate de DEG, présente dans certains cas, un relief caractéristique dont la forme est celle d'une cyclide de Dupin. Il se superpose à la forme générale une ondulation dont l'amplitude est de l'ordre du centième du rayon des cercles de la zone ( $\Delta'$ ). Les intersections de la surface du relief avec la cyclide sont des cercles dont les plans appartiennent à la zone ( $\Delta''$ ).

Le relief observé n'est pas rigoureusement de révolution. Pour connaître la forme qui rendrait l'énergie minimum, il faudrait posséder la fonction de distribution moléculaire et le potentiel

des forces intermoléculaires dont dépend la tension superficielle.<sup>11</sup> Ces quantités ne sont pas connues. G. Friedel admet une discontinuité de la tension superficielle pour une direction, cette hypothèse est à relier au faciès observé.

G. Friedel posait le problème en 1922 :

“ A quoi correspond cette singulière tendance du liquide smectique à s'enrouler en cyclides de Dupin autour de coniques focales ? La réponse ne peut pas encore être donnée, il y a là une des nombreuses questions qui restent ouvertes dans le domaine des corps mésomorphes ”. Une famille de cyclides de Dupin définit des strates d'épaisseur constante. C'est pourquoi les feuillets des corps smectiques peuvent s'arranger suivant ces cyclides ; mais selon W. Bragg<sup>12</sup> une infinité de surfaces possèdent la même propriété. L'origine de l'ondulation observée dans le cas du laurate de DEG pourra être recherchée en faisant varier les conditions expérimentales. La présente analyse n'a porté que sur quelques échantillons d'un seul corps smectique, elle devra être étendue à d'autres corps, la méthode de Plateau<sup>4</sup> permet l'étude de stases mésomorphes plus fluides.

#### BIBLIOGRAPHIE

1. Billard, J. et Cerne, R., *Molec. Cryst.* **2**, 27–44 (1966).
2. Billard, J. et Meunier, J. P., *C.R. Acad. Sci. (France)* **266**, 937–9 (1968).
3. Friedel, G. et E., *Z. f. Krist.* **79A**, 1–60 (1931).
4. Plateau, J., *Statique expérimentale et théorique des liquides soumis aux seules forces moléculaires*. Paris, Gauthier-Villars (1873).
5. Maulard, J. et Jourdin, A., *Rech. Aérosp.* No. 110, 29–38 (1966).
6. Friedel, G., *Ann. de Phys.* **IX**, **18**, 273–474 (1922).
7. Dupin, C., *Applications de géométrie et de mécanique*. Bachelier, Paris (1822).
8. Grandjean, F., *C.R. Acad. Sci. (France)* **166**, 165–167 (1917).
9. Darboux, G., *Géométrie analytique*. Gauthier-Villars, Paris (1917).
10. Maxwell, J. C., *The Quarterly Journal of pure and applied Mathematics*, **34** (1867). On the cyclide. *Scientific Papers*. Cambridge University Press, Vol. II, 144–159 (1890).
11. Chandrasekhar, S., *Mol. Cryst.* **2**, 71–80 (1966).
12. Bragg, W., *Trans. Far. Soc.* **29**, 1056–1060 (1933).