

Rosalío F. Rodríguez, Juan A. Reyes
Electrohidrodinámica de cristales líquidos nemáticos
Ciencia Ergo Sum, vol. 8, núm. 3, noviembre, 2001
Universidad Autónoma del Estado de México
México

Available in: <http://www.redalyc.org/articulo.oa?id=10402205>



Ciencia Ergo Sum,
ISSN (Printed Version): 1405-0269
ciencia.ergosum@yahoo.com.mx
Universidad Autónoma del Estado de México
México

How to cite

| Complete issue

| More information about this article

| Journal's homepage

www.redalyc.org

Non-Profit Academic Project, developed under the Open Acces Initiative

Electrohidrodinámica de cristales líquidos nemáticos

ROSALÍO F. RODRÍGUEZ* Y JUAN A. REYES**

Resumen. *Se presenta un formalismo analítico que permite describir una amplia variedad de fenómenos ópticos no lineales que ocurren cuando una onda electromagnética se propaga en un cristal líquido. A partir de propiedades termodinámicas y de simetría, primero se construye un conjunto cerrado de ecuaciones hidrodinámicas que proporcionan una descripción completa de la dinámica de un nemático de bajo peso molecular en ausencia de campos externos. Posteriormente, se incluye la presencia de un campo electromagnético externo que se propaga en el fluido. Se discute el carácter no lineal y acoplado de las ecuaciones y, para resolverlas, se propone un método iterativo de aproximaciones sistemáticas en términos de potencias de parámetros con una interpretación física precisa. Se concluye discutiendo las ventajas y limitaciones del punto de vista adoptado en este trabajo.*

Palabras Clave: cristales líquidos, nemáticos, nematodinámica, óptica no lineal.

Electrodynamics of Nematic Liquid Crystals

Abstract. *This paper presents an analytical formalism that allows for a description of a variety of non linear optical phenomena occurring when an electromagnetic wave propagates through a nematic liquid crystal. First, by using only thermodynamic and symmetry properties, a closed set of hydrodynamic equations is constructed, which provides for a complete description of the dynamics of a low molecular weight nematic in the absence of external fields. Then these equations are generalized to include an external electromagnetic field propagating through the fluid. The coupled and non linear character of the equations is discussed, and a method of iterative and systematic approximations in powers of parameters with a well defined physical interpretation is proposed. The advantages as well as the limitations of the approach are also discussed.*

Keywords: liquid crystal, nematics, nematodinamic, non linear optics.

Recepción: 8 de noviembre de 2000

Aceptación: 28 de marzo de 2001

Introducción

Los cristales líquidos son medios ópticos activos cuyas propiedades físicas se ven significativamente afectadas cuando un haz láser se propaga a través de estos fluidos. Este fenómeno exhibe propiedades ópticas altamente no lineales y genera acoplamientos entre los campos ópticos aplicados y la orientación de estos líquidos anisotrópicos (Tabiryan *et al.*, 1986; Zel'dovich *et al.*, 1980).

Experimentalmente es un hecho bien establecido que un haz láser linealmente polarizado y con la suficiente intensidad, distorsiona la orientación inicial de una muestra líquido-cristalina y reorienta a las moléculas venciendo la acción

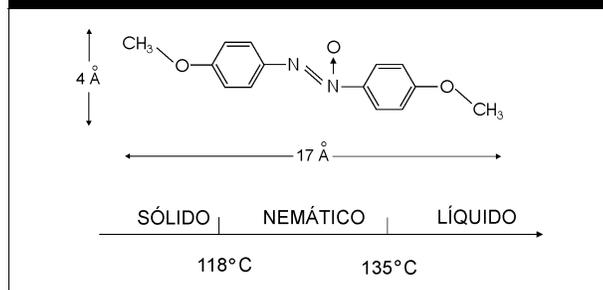
* Laboratorio de Cristales Líquidos, Departamento de Física Química, Instituto de Física, UNAM. Apartado Postal 20-364, 01000. México, D.F.

Correo electrónico: zepeda@fenix.ifisicacu.unam.mx.

** Departamento I.P.H., Universidad Autónoma Metropolitana, Iztapalapa. Apartado Postal 20-726, 09340 México, D.F.

Los autores agradecen el apoyo económico proporcionado por el Proyecto DGAPA-UNAM IN101999, México.

FIGURA 1. DIAGRAMA DE FASES Y ESTRUCTURA MOLECULAR DEL PAA (P-AZOXYANISOLE). LAS LINEAS QUE SE INTERSECTAN DENOTAN ÁTOMOS DE CARBONO.



de las torcas elásticas, hasta alcanzar una nueva configuración orientacional en un nuevo estado final de equilibrio. Esta transición orientacional de la misma mesofase, es la llamada Transición de Freedericksz Óptica (OFT) (Durbin *et al.*, 1981; Khoo, 1988; Khoo y Wu, 1993; Tabiryan *et al.*, 1986). Para cristales líquidos puros, este fenómeno también ocurre cuando el haz está circular o elípticamente polarizado y, durante el proceso de reorientación, se observa la aparición de diversos regímenes dinámicos no lineales en el sistema (Santamato *et al.*, 1990; Ciparone *et al.*, 1993). De hecho, se ha observado recientemente que el valor umbral de la OFT puede reducirse en uno o dos órdenes de magnitud cuando los cristales líquidos se dopan con tintas dicróicas; este fenómeno es conocido como el efecto Jánossy (Jánossy, 1991; Jánossy *et al.*, 1990). El entender los mecanismos físicos subyacentes al fenómeno de reorientación y predecir los diversos cambios que consecuentemente se producen en las propiedades ópticas de los cristales líquidos es un tema de investigación muy estudiado en la actualidad (Jánossy y Kósa, 1992; Santamato *et al.*, 1999).

El objetivo central de este artículo es describir los elementos fundamentales de un formalismo macroscópico y analítico que permite describir una gran variedad de fenómenos ópticos no lineales que ocurren en cristales líquidos. Utilizando las simetrías y las propiedades termodinámicas de estos sistemas, este método permite construir un sistema cerrado y muy general de ecuaciones macroscópicas, no lineales y acopladas para las variables de estado hidrodinámicas y los campos aplicados. En el artículo que se publica a continuación de éste y que en lo sucesivo denotaremos por II,¹ se aplica este método a dos situaciones específicas: en la primera se describe la propagación de una onda electromagnética plana en una celda nemática rectan-

gular. En la segunda, la situación física se generaliza y se considera la propagación de un paquete de ondas electromagnéticas a través del cristal líquido. Se muestra que en ambos casos puede existir un efecto de guía de ondas y que los modos transversos magnéticos (TM) del campo electromagnético se pueden propagar como solitones ópticos.

El artículo se ha organizado de la siguiente manera: en la sección I se describen someramente las características estructurales de las fases líquido-cristalinas más comunes. Posteriormente, en la sección II se describe el método hidrodinámico y se formulan las ecuaciones dinámicas básicas, mostrando su carácter no lineal y acoplado. En la sección III, se examina el caso particular de un proceso de reorientación isotérmico en una geometría plana. Del sistema general de ecuaciones se obtienen las ecuaciones correspondientes y se escriben en forma adimensional. Un procedimiento sistemático para resolver estas ecuaciones se discute en la sección IV en términos de parámetros adimensionales con una interpretación física bien definida. Finalmente, concluimos señalando las limitaciones y ventajas del método presentado.

I. Propiedades estructurales de los cristales líquidos

El estado líquido cristalino es un estado específico y bien definido de la materia. Estas fases se caracterizan por poseer una marcada anisotropía en muchas de sus propiedades físicas, como ocurre con los cristales sólidos; sin embargo, en contraste con éstos, los cristales líquidos fluyen como lo hacen los líquidos isotrópicos. Las fases líquido-cristalinas existen en intervalos de temperatura relativamente pequeños y comprendidos entre aquellos de los sólidos cristalinos y los líquidos isotrópicos (véase figura 1). Debido a esta posición intermedia, con frecuencia a los cristales líquidos se les llama también mesofases (Chandrasekhar, 1997; Collings, 1990; de Gennes, 1974).

Por lo general, los cristales líquidos se sintetizan a partir de moléculas orgánicas y la mayoría de ellos están formados por moléculas uniaxiales, alargadas, que pueden representarse como varillas rígidas (véase figura 1). Sin embargo, también existen mesofases que están formadas por moléculas discóticas (de Gennes, 1974). El punto importante que debe enfatizarse es que esta anisotropía molecular se manifiesta a nivel macroscópico en la anisotropía de sus propiedades macroscópicas, ópticas, de transporte, etcétera.

Los cristales líquidos se clasifican de acuerdo con su grado de simetría. Como es bien conocido, los líquidos isotrópicos con moléculas esféricamente simétricas, son invariantes frente a transformaciones de simetría rotacional, $O(3)$, y traslacional, $T(3)$; en consecuencia, el grupo total de

1. Reyes y Rodríguez (2001). "Efectos no lineales fotoinducidos en cristales líquidos", en este número.

simetrías de un líquido isotrópico es $O(3) \times T(3)$. Pero si la temperatura de este líquido disminuye, usualmente ocurre el rompimiento de la simetría traslacional $T(3)$, lo cual corresponde a la transición de líquido isotrópico a sólido. En contraste, para un líquido formado por moléculas anisotrópicas, al disminuir la temperatura se observa que primero se rompe la simetría rotacional $O(3)$, lo que resulta en la formación de un cristal líquido. A las mesofases en las que se ha roto la invarianza rotacional, pero que conservan la invarianza traslacional, se les llama *nemáticos* (véase figura 2). Como se muestra en la figura 2, los centros de masa de las moléculas de un nemático tienen posiciones espaciales arbitrarias, pero el eje principal de sus moléculas se orienta espontáneamente en una dirección preferente. Si la temperatura decrece aún más, la simetría $T(3)$ también se rompe. Sin embargo, $T(3)$ puede romperse sólo parcialmente, pues su rompimiento total implicaría la fase sólida. A las mesofases que sólo exhiben simetría traslacional $T(2)$ se les llama *esméticas* (figura 3) y las que únicamente exhiben $T(1)$ se denominan *fases columnares* (figura 4).

II. Método hidrodinámico

La descripción hidrodinámica de sistemas condensados complejos, como son superfluidos, ferromagnetos, soluciones poliméricas, etcétera, ha sido posible mediante el entendimiento más profundo del papel que juegan las simetrías y las propiedades termodinámicas de los sistemas (Kadanoff y Martin, 1963; Hohenberg y Martin, 1965; Khalatnikov, 1965; Bogoljubov, 1962). La extensión de esta descripción a la hidrodinámica lineal de los cristales líquidos se inició en los años setenta, (Martin *et al.*, 1972; Foster, 1975; Stephen y Straley, 1974), y en años más recientes se ha generalizado al caso no lineal y a fases líquido cristalinas más complejas, (Brand y Pleiner, 1980 y 1981).

La idea esencial del método hidrodinámico se basa en la observación de que en la gran mayoría de sistemas condensados complejos y en el límite de escalas temporales y espaciales muy grandes, sólo sobrevive un número muy pequeño de procesos lentos, comparado con el enorme número de grados de libertad microscópicos. La evolución de estos procesos se describe por la evolución de las variables hidrodinámicas correspondientes, las cuales describen fenómenos cooperativos que en el límite espacialmente homogéneo, no relajan en un tiempo finito. Es decir, las *variables hidrodinámicas* son tales que sus transformadas de Fourier satisfacen la relación

$$\omega(k \rightarrow 0) \rightarrow 0. \quad (1)$$

FIGURA 2. ARREGLO DE MOLÉCULAS EN UN NEMÁTICO.

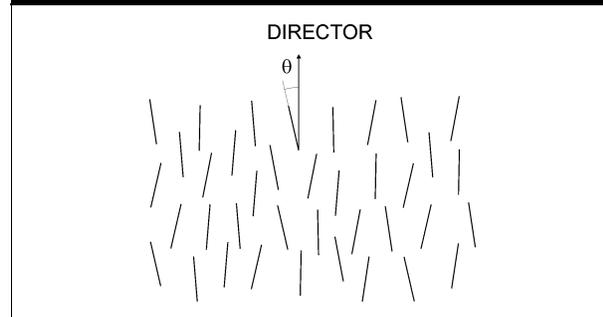


FIGURA 3. ARREGLO DE MOLÉCULAS EN LAS FASES A) ESMÉTICA A, B) ESMÉTICA C.

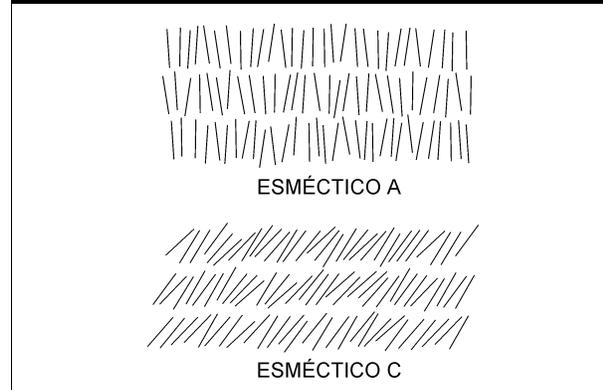
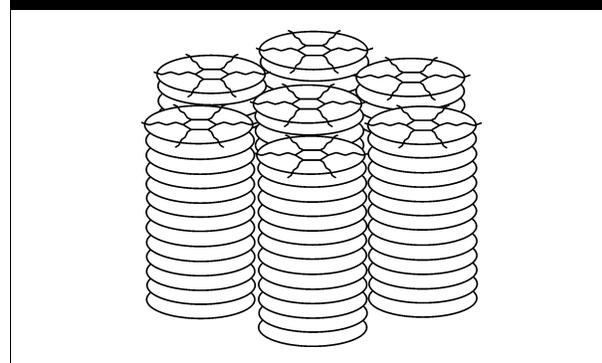


FIGURA 4. FASE COLUMNAR HEXAGONAL.



Más aún, las variables hidrodinámicas pueden identificarse unívocamente utilizando leyes de conservación (simetrías globales) y rompimiento de simetrías, para escalas espacio-temporales en las que los grados de libertad microscópicos ya han relajado. En estas escalas, la descripción hidrodinámica es exacta. Cuando los grados de libertad mi-

croscópicos alcanzan su estado de equilibrio termodinámico (equilibrio local), puede usarse la termodinámica localmente para describir la evolución de las variables lentas. Esto inmediatamente implica considerar un *potencial termodinámico*; por ejemplo la energía interna, como función de todas las variables (Pleiner, 1986 y 1988; Brand y Pleiner, 1994). En una segunda etapa la dinámica del sistema se obtiene expresando las corrientes o *flujos termodinámicos* en función de las correspondientes *fuerzas termodinámicas*, que son los gradientes de las variables termodinámicas conjugadas, y realizando un desarrollo de los flujos en potencias de las fuerzas. Esta expansión contendrá coeficientes fenomenológicos dinámicos (coeficientes de transporte), los cuales sólo pueden ser determinados a partir del experimento o de una teoría microscópica. Si, además, se separan los flujos en una parte *reversible*, que conserva la entropía, y una *irreversible*, que aumenta la entropía, la utilización de las leyes de la termodinámica clásica permite encontrar ecuaciones de evolución para las variables hidrodinámicas. Una vez obtenidas estas ecuaciones para un cristal líquido, es posible incluir en ellas el efecto de campos externos, como campos electromagnéticos, de esfuerzos, gradientes externos (térmicos, presión, velocidad, concentración, etcétera).

A continuación esbozaremos la implementación de estas etapas para nemáticos. La primera clase de variables hidrodinámicas está asociada con las leyes de conservación locales, que expresan el hecho de que cantidades como masa, momentum o energía no pueden ser destruidas localmente y sólo pueden ser transportadas. Si, $\rho(\vec{r}, t)$, $\vec{g} = \rho \vec{v}(\vec{r}, t)$ y $\epsilon(\vec{r}, t)$ siendo \vec{v} la velocidad hidrodinámica, denotan, respectivamente, las densidades de estas cantidades, las ecuaciones de conservación asociadas resultan ser (Landau y Lifshitz, 1964).

$$\frac{d}{dt}\rho + \rho \operatorname{div} \vec{v} = 0, \tag{2}$$

$$\frac{d}{dt}v_i + \frac{1}{\rho} \nabla_j \sigma_{ij} = 0, \tag{3}$$

$$\frac{d}{dt}\left(\frac{\epsilon}{\rho}\right) + \frac{1}{\rho} \operatorname{div} \vec{j}^\epsilon = 0. \tag{4}$$

El operador $\frac{d}{dt} \equiv \frac{\partial}{\partial t} + v_i \nabla_i$ denota la derivada hidrodinámica, σ_{ij} es el tensor de esfuerzos del nemático y \vec{j}^ϵ es el flujo de energía.

Cuando ocurre la transición hacia el estado líquido-cristalino al disminuir la temperatura, la simetría rotacional $O(3)$ se rompe “espontáneamente” y el número de variables

hidrodinámicas aumenta. Cualquier rotación alrededor de un eje distinto de \vec{n} lleva a un estado diferente y distinguible del estado no rotado. Este rompimiento de la simetría rotacional se llama espontáneo, porque la energía es aún un invariante rotacional y no existe una energía que favorezca una orientación de \vec{n} sobre cualquier otra. Entonces el estado del sistema se hace infinitamente degenerado. Bajo estas condiciones, una variación suave del parámetro de degeneración lleva a una relajación lenta del mismo, que aumenta a medida que $q \rightarrow 0$; este tipo de comportamiento es el contenido básico del teorema de Goldstone (Foster, 1975). Por lo tanto, el parámetro de degeneración está relacionado con el parámetro de orden del cristal líquido, el cual tiene diferentes estructuras para las diferentes mesofases. Para un nemático el parámetro de orden es de la forma

$$Q_{ij} = S \left(n_i n_j - \frac{1}{3} \delta_{ij} \right) \tag{5}$$

en donde S caracteriza el grado de orden, i. e., $S = 0$ para la fase isotrópica y $S = 1$ para moléculas perfectamente ordenadas. Nótese que de acuerdo con esto, la dinámica de Q_{ij} está determinada por la de \vec{n} . En resumen, el estado hidrodinámico macroscópico de un nemático se describe mediante dos variables escalares, que pueden escogerse como $\rho(\vec{r}, t)$, $\epsilon(\vec{r}, t)$, una variable vectorial, $\vec{g} = \rho \vec{v}(\vec{r}, t)$ y una variable tensorial Q_{ij} , que puede elegirse, por ejemplo, como la parte anisotrópica del tensor dieléctrico.

Puesto que \vec{n} no está relacionado con una ley de conservación, su ecuación dinámica es una ecuación de balance de la forma

$$\left(\frac{\partial}{\partial t} + v_j \nabla_j \right) n_i + Y_i = 0, \tag{6}$$

en donde Y_i no es una corriente, pues su integral superficial no es un flujo, sino una cuasi-corriente. Esta cantidad debe ser ortogonal a \vec{n} para satisfacer la simetría nemática $\vec{n} \rightarrow -\vec{n}$.

Dada una situación física específica, el estado del sistema se describe en términos del potencial termodinámico más apropiado. Este puede escogerse, por ejemplo, como la energía total E (Callen, 1985).

$$E = \epsilon V = E \left(V, \rho V, \vec{g} V, \rho V \nabla_j n_i, \rho V \vec{n}, \sigma V \right) \tag{7}$$

En donde V denota el volumen del sistema y σ la entropía por unidad de volumen. A partir de esta suposición y usando

la relación de Euler, se obtiene la relación de Gibbs

$$d\epsilon = \mu dp + T d\sigma + \vec{v} \cdot d\vec{g} + \Phi_{ij} d\nabla_j n_i + h_i' dn_i \quad (8)$$

y la relación de Gibbs-Duhem

$$p = -\epsilon + \mu p + T\sigma + \vec{v} \cdot \vec{g} \quad (9)$$

Aquí μ es el potencial químico, Φ_{ij} y h_i' son los llamados *campos moleculares*, que se definen como derivadas parciales del potencial termodinámico respecto a la variable conjugada correspondiente. Ya que en equilibrio las variables de estado son constantes, cualquier distribución inhomogénea de ellas sacará al sistema de equilibrio; por esta razón los gradientes de estas cantidades se escogen como fuerzas termodinámicas. Entonces la presencia de $\nabla\mu$, ∇T , $\nabla_j v_i$, y $\nabla_j \Phi_{ij}$ generará procesos irreversibles en el sistema. La parte dinámica de las ecuaciones hidrodinámicas se obtiene al expresar las corrientes σ_{ij} , j_i^ϵ , Y_i en términos de las variables termodinámicas T , μ , v , Φ_{ij} . Si, además, estas expresiones se separan en una parte reversible, que no genera incremento de entropía y que es invariante bajo una inversión temporal, y una parte irreversible, que aumenta la entropía y que no es invariante ante la transformación $t \rightarrow -t$, se obtienen las siguientes expresiones para los flujos (Landau y Lifshitz, 1974, Brand y Pleiner, 1994)

$$\sigma_{ij} = \sigma_{ij}^R + \sigma_{ij}^D = p\delta_{ij} + \Phi_{ij} \nabla_l n_l - \frac{1}{2} \lambda_{kji} h_k - v_{ijkl} \nabla_l v_k, \quad (10)$$

$$Y_i = Y_i^R + Y_i^D = -\frac{1}{2} \lambda_{kji} \nabla_j v_k + \frac{1}{\gamma_1} \delta_{ik}^\perp h_k, \quad (11)$$

$$\vec{j}^\epsilon = T \vec{j}_i^{\sigma D} + v_j \sigma_{ij}^D, \quad (12)$$

en donde γ_1 es la viscosidad rotacional.

En estas ecuaciones los superíndices R y D denotan, respectivamente, las partes reversible e irreversible o disipativa, y

$$\Phi_{li} = K_{limn} \nabla_n n_m \quad (13)$$

con K_{limn} dado por

$$K_{limn} = K_1 \delta_{li}^\perp \delta_{mn}^\perp + K_2 n_p \epsilon_{pli} n_q \epsilon_{qmn} + K_3 n_i n_n \delta_{lm}^\perp. \quad (14)$$

Aquí K_1 , K_2 y K_3 son las constantes elásticas del nemático y ϵ_{ijk} es el tensor totalmente antisimétrico de Levy-Civitta.

El tensor δ_{ik}^\perp se define como

$$\delta_{ik}^\perp = \delta_{ik} - n_i n_k \quad (15)$$

y λ_{kij} está dada por:

$$\lambda_{kij} = (\lambda - 1) \delta_{kj}^\perp n_i + (\lambda + 1) \delta_{ki}^\perp n_j. \quad (16)$$

En esta expresión, el parámetro de alineación por flujo, $\lambda \equiv \frac{v_1}{v_2}$, es un parámetro reversible, donde v_1 , v_2 son dos de las cinco viscosidades independientes de un nemático. El campo molecular h_k , que ya hemos definido como $h_k \equiv h_i' - \nabla_j \Phi_{ij}$, explícitamente resulta ser:

$$h_k = -K_{kjml} \nabla_j \nabla_l n_n + \delta_{kj}^\perp \left(\frac{\partial}{\partial nq} K_{pjkl} - \frac{\partial}{\partial nq} K_{qjkl} \right) \nabla_l n_k \nabla_j n_p. \quad (17)$$

Finalmente, el tensor viscoso contiene v_{ijkl} cinco viscosidades independientes del nemático v_i , $i=1, 2, \dots, 5$, y está dado por

$$\begin{aligned} v_{ijkl} = & v_2 (\delta_{jl} \delta_{ik} + \delta_{il} \delta_{jk}) + 2(v_1 + v_2 - 2v_3) n_i n_j n_k n_l \\ & + (v_3 - v_2) (n_j n_i \delta_{ik} + n_j n_k \delta_{il} + n_i n_k \delta_{jl}) \\ & + n_i n_l \delta_{jk} + (v_4 - v_2) \delta_{ij} \delta_{kl} \\ & + (v_5 - v_4 + v_2) (\delta_{ij} n_k n_l + \delta_{kl} n_i n_j) \end{aligned} \quad (18)$$

La segunda ley de la termodinámica establece que cualquier proceso irreversible que ocurra en el sistema debe aumentar su entropía. Entonces, la entropía obedece a la ecuación de balance

$$\frac{\partial}{\partial t} \sigma + \vec{\nabla} \cdot (\vec{v} \sigma) + \text{div} (j_i^{\sigma R} + j_i^{\sigma D}) \equiv \frac{R}{T}, \quad (19)$$

donde R es la función de disipación para procesos irreversibles. Esta cantidad puede interpretarse como la energía por unidad de volumen disipada hacia los grados de libertad microscópicos; dividida por la temperatura R/T representa la producción de entropía del nemático. Si como se hizo previamente, (19) se relaciona con las ecuaciones (2), (3), (4), (6), a través de la relación de Gibbs (8) y las expresiones (10)-(18), se obtiene una expresión explícita para R , a saber:

$$\begin{aligned} R = & -\nabla_i (j_i^{\epsilon D} - T j_i^{\sigma D} - v_j \sigma_{ij}^D) - j_i^{\sigma D} \nabla_i T - \sigma_{ij}^D \nabla_j v_i + h_i \delta_{ij}^\perp Y_j^D \\ = & \frac{1}{2\gamma_1} h_i \delta_{ij}^\perp h_j + \frac{1}{2} v_{ijkl} (\nabla_j v_i) (\nabla_l v_k) + \frac{1}{2} k_{ij} (\nabla_i T) (\nabla_j T), \end{aligned} \quad (20)$$

el tensor k_{ij} describe la conducción de calor (conductividad térmica). La segunda ley de la termodinámica requiere que R sea una cantidad positiva definida, lo cual implica necesariamente la positividad de los coeficientes que aparecen en la expresión anterior. Nótese también que (20) implica que las corrientes y cuasi-corrientes disipativas están dadas por derivadas parciales de la función de disipación, o sea:

$$j_i^{\sigma D} \equiv -\frac{\partial R}{\partial \nabla_j T} = -k_{ij} \nabla_j T, \quad (21)$$

$$\sigma_{ij}^D \equiv -\frac{\partial R}{\partial \nabla_j v_i} = -v_{ijkl} \nabla_l v_k, \quad (22)$$

$$Y_k^D = \frac{\partial R}{\partial h_k} = \frac{1}{\gamma_1} \delta_{ik}^\perp h_i. \quad (23)$$

En conclusión, las ecuaciones (2), (3), (4), (6) y (20) constituyen un conjunto completo que describe la dinámica irreversible de un nemático de bajo peso molecular (termotrópico) en ausencia de campos externos.

1. Electrohidrodinámica

A menudo se utilizan campos externos y diversos, como son campos eléctricos y magnéticos, gravedad, gradientes externos, para llevar a un nemático a un nuevo estado de equilibrio y, por ello, estos campos deben ser incluidos en las ecuaciones hidrodinámicas. Sabemos que en un medio polarizable, un campo eléctrico externo \vec{E} induce una polarización $\vec{P} = \frac{1}{4\pi} (D_i - E_i)$, que se reorienta con el campo, en donde \vec{D} es el vector desplazamiento eléctrico. Ahora bien, en un nemático los momentos dipolares moleculares inducidos están orientados más o menos rígidamente con respecto al eje largo de las moléculas, por lo tanto, la reorientación de la polarización inducida da lugar a una reorientación del director. En contraste con los campos eléctricos, la influencia de los campos magnéticos en un nemático es más bien débil y, en general, la magnetización inducida puede despreciarse. Es decir, un nemático es un medio no magnético en buena aproximación. Por otra parte, es un resultado bien establecido que usando argumentos termodinámicos convencionales, el trabajo asociado a la presencia de un campo eléctrico $\vec{E} = -\vec{\nabla} \Phi$ está dado por:

$$dw_{el} = -\frac{1}{4\pi} \vec{E} \cdot \vec{D}, \quad (24)$$

y es el término que debe sumarse a la relación de Gibbs (8) y a la relación de Gibbs-Duhem (9). Si se modifican estas relaciones y utilizando un procedimiento enteramente análogo de la sección anterior, es posible mostrar que en pre-

sencia de un campo eléctrico la ecuación de movimiento (3) se modifica como

$$\frac{d}{dt} v_i + \frac{1}{\rho} \nabla_j \sigma_{ij} = \rho_e E_i + P_j \nabla_j E_i \quad (25)$$

con la densidad de carga dada por $\rho_e = \frac{1}{4\pi} \text{div } \vec{D}$. A orden lineal en las fuerzas termodinámicas la expresión de σ_{ij} ya no está dada por (10), sino por

$$\sigma_{ij} = \sigma_{ij}^R + \sigma_{ij}^D = \tilde{p} \delta_{ij} + \Phi_{ij} \tilde{\nabla}_i n_l - \frac{1}{2} \lambda_{kji} h_k - v_{ijkl} \tilde{\nabla}_l v_k \quad (26)$$

con

$$\tilde{p} = p - \frac{1}{8\pi} E^2. \quad (27)$$

Análogamente, las corrientes (11) ahora son

$$Y_i = Y_i^R + Y_i^D = -\frac{1}{2} \lambda_{kji} \nabla_j v_k + \frac{1}{\gamma_1} \delta_{ik}^\perp h_k - \zeta_{ijk}^E \nabla_j E_k, \quad (28)$$

$$j_i^e = \sigma_{ij}^e E_j + k_{ij}^E \nabla_j T + \nabla_j (\zeta_{kji}^E h_k), \quad (29)$$

en donde σ_{ij}^E es la conductividad eléctrica; en consecuencia, la corriente de entropía es:

$$j_i^s = -k_{ij} \nabla_j T - k_{ij}^E E_j. \quad (30)$$

Aquí los tensores materiales de segundo orden

$$k_{ij}, \quad k_{ij}^E \quad \text{y} \quad \sigma_{ij}^E \quad (31)$$

$$\alpha_{ij} = \alpha_\perp \delta_{ij}^\perp + \alpha_\parallel n_i n_j,$$

tienen una forma uniaxial y cada uno contiene dos coeficientes de transporte disipativos.

Por otra parte, el tensor de tercer orden ζ_{kji}^E es irreversible y contiene un coeficiente dinámico, el coeficiente flexoelectrico ζ^E ,

$$\zeta_{ijk}^E = \zeta^E (\delta_{ij}^\perp n_k + \delta_{ik}^\perp n_j); \quad (32)$$

mientras que el tensor de cuarto orden v_{ijkl} sigue definido por (18).

Procediendo de la misma manera que nos llevó a (20), la función de disipación R tiene en este caso términos adicionales que involucran al campo eléctrico:

$$R = \frac{1}{2} h_i \delta_{ij}^\perp h_j + \frac{1}{2} v_{ijkl} (\nabla_j v_i) (\nabla_l v_k) + \frac{1}{2} k_{ij} (\nabla_i T) (\nabla_j T) + \frac{1}{2} \sigma_{ij}^E E_i E_j + k_{ij}^E E_i \nabla_j T - \zeta_{ijk}^E h_i \nabla_j E_k. \quad (33)$$

La mayor parte de los parámetros que intervienen en las ecuaciones hidrodinámicas y electrodinámicas para un nemático han sido medidos para diferentes sustancias que muestran la fase nemática uniaxial. Entre éstos se incluyen las constantes elásticas (Blinov y Chigrinov, 1994), el calor específico, el parámetro de alineación por flujo λ y las viscosidades ν_i , $i = 1, 2 \dots 5$ (de Gennes, 1974), el inverso de la constante de difusión del director γ_i ; la conductividad térmica, la anisotropía del tensor dieléctrico $\epsilon_a = \epsilon_{\perp} - \epsilon_{\parallel}$, así como la conductividad eléctrica σ_{ij}^E (Chandrasekhar, 1977; de Gennes, 1974; Blinov y Chigrinov, 1994).

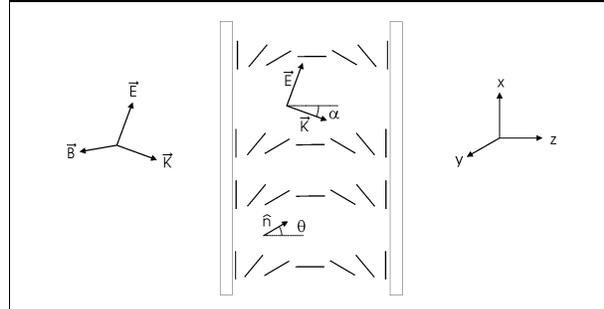
III. Modelo de reorientación planar

Como es usual en termodinámica, la elección del potencial termodinámico es arbitraria. Cualquier otro potencial obtenido a partir de la energía (7) mediante una transformada de Legendre es igualmente apropiado. Así, por ejemplo, podría escogerse la energía libre de Helmholtz como potencial y la densidad de entropía se sustituiría por la temperatura como variable termodinámica, cuando los procesos son isotérmicos. De hecho, esta situación se presenta con frecuencia en los procesos de reorientación en celdas nemáticas delgadas, en las cuales existe evidencia experimental de que la reorientación puede considerarse como isotérmica y que ocurre en un plano (de Gennes, 1974). Con el objeto de implementar explícitamente esta descripción simplificada, pero que es un caso particular de la discusión de la sección anterior, introduciremos el siguiente modelo.

Considérese una celda nemática plana, de espesor l medido a lo largo del eje z y contenida entre dos placas paralelas y conductoras, como se muestra en la figura 5. Las dimensiones transversales L de la celda en las direcciones x y y son grandes comparadas con l , $L \gg l$, de modo que el volumen de la celda $V = L^2 l$ sea infinito. Supondremos una configuración inicial del director en la que \vec{n} sea paralelo a las placas de modo que $n^0 = (1, 0, 0)$. Supondremos condiciones de anclaje fuerte sobre n^0 para que las distorsiones elásticas de la orientación sean nulas en las placas. En la ausencia de un campo externo el nemático conservará la configuración dada por n^0 ; pero si el nemático se excita por la presencia de un haz láser oblicuo en la celda, la orientación del director cambiará con la posición y el tiempo, es decir, se producirá un proceso de reorientación. Si la polarización del haz permanece en el plano de incidencia x - z , y no existen retroflujos, la reorientación también ocurrirá en el mismo plano y

$$\vec{H} = [\text{sen } \theta(x, z, t), 0, \cos \theta(x, z, t)], \quad (34)$$

FIGURA 5. REPRESENTACIÓN ESQUEMÁTICA DE UN HAZ LÁSER LINEALMENTE POLARIZADO PROPAGÁNDOSE A TRAVÉS DE UNA CELDA NEMÁTICA PLANAR.



en donde θ es el ángulo de reorientación. Más aún, por simplicidad supondremos que $\vec{n} = \vec{n}[\theta(z, t)]$.

La contribución a la energía libre de Helmholtz que proviene de las deformaciones elásticas fue calculada por Frank (1958) y está dada por (Landau *et al.*, 1984):

$$f_{elas} = K_1 (\nabla \cdot \vec{n})^2 + K_2 (\vec{n} \cdot \nabla \times \vec{n})^2 + K_3 (\vec{n} \times \nabla \times \vec{n})^2 \quad (35)$$

Las tres constantes elásticas K_1 , K_2 y K_3 están asociadas, respectivamente, con las deformaciones *splay*, *twist* y *bend*.

En presencia de un campo óptico existe una densidad de energía libre adicional dada por:

$$f_{em} = \frac{1}{8\pi} \vec{E} \cdot \vec{D} \quad (36)$$

Para la geometría del modelo y en la aproximación de constantes elásticas iguales, $K = K_1 = K_2 = K_3$, la energía libre de Helmholtz resulta ser:

$$F = \int_V dV (f_{elas} + f_{em}) = \frac{K}{2} \left(\frac{d\theta}{dz} \right)^2 - \frac{1}{8\pi} \left\{ \epsilon_{\perp} |\vec{E}|^2 + \epsilon_a [E_x]^2 \text{sen}^2 \theta + (E_x^* E_z + E_x E_z^*) \text{sen} \theta \cos \theta + |E_z|^2 \cos^2 \theta \right\} + H \quad (37)$$

en donde * denota complejo conjugado. Las configuraciones estacionarias se determinan minimizando esta energía libre sujeta a la restricción de que $\vec{n} \cdot \vec{n} = 1$, *i. e.*,

$$\frac{\delta F}{\delta \theta} = 0 \quad (38)$$

en donde $\frac{\delta F}{\delta \theta}$ denota la derivada funcional. Utilizando el método de coeficientes indeterminados de Lagrange, este procedimiento genera la ecuación de Euler-Lagrange correspondiente, que escrita en forma adimensional resulta ser

$$\frac{d^2 \theta}{d\zeta^2} + q \left[\sin 2\theta \left(|\bar{E}_x|^2 - |\bar{E}_z|^2 \right) + \left(\bar{E}_x \bar{E}_z^* + \bar{E}_z \bar{E}_x^* \right) \cos 2\theta \right] = 0 \quad (39)$$

Aquí se han utilizado las siguientes variables adimensionales, $\zeta \equiv \frac{x}{l}$, $\bar{E}_x \equiv \frac{E_x}{E_0}$, $\bar{E}_z \equiv \frac{E_z}{E_0}$; $I = \frac{cE_0^2}{8\pi}$ es la intensidad del campo incidente. El parámetro $q \equiv \frac{cE_0^2 l^2}{8\pi K}$ tiene una interpretación física clara: es proporcional a la razón entre la energía eléctrica y la energía elástica del haz y, por lo tanto, mide la intensidad del acoplamiento entre el campo óptico y la configuración orientacional del nemático.

Es importante señalar que esta misma ecuación (39) se obtiene del sistema general de ecuaciones hidrodinámicas de la sección anterior imponiendo las condiciones isotérmicas y geométricas del modelo en discusión (Rodríguez y Reyes, 1996).

1. Dinámica del campo óptico

Para determinar la configuración orientacional $\vec{n} = \vec{n}[\theta(z,t)]$ es necesario conocer la dinámica del campo electromagnético dentro de la celda. La ecuación que gobierna la propagación del campo óptico a través del nemático se obtiene de las ecuaciones de Maxwell con fuentes (Landau *et al.*). Siguiendo el procedimiento usual, de estas ecuaciones se obtiene que:

$$\nabla^2 \vec{E} - \nabla \left(\nabla \cdot \vec{E} \right) - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{D}}{\partial t^2} = 0 \quad (40)$$

y

$$\nabla^2 \vec{B} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{H}}{\partial t^2} = 0, \quad (41)$$

donde c es la velocidad de la luz en el vacío. El vector desplazamiento eléctrico \vec{D} y \vec{E} están relacionados por la relación constitutiva no lineal:

$$D_i = \epsilon_{ij} [\theta(z)] E_j, \quad (42)$$

en donde $\epsilon_{ij}(z, t)$ es el tensor dieléctrico. Para un nemático uniaxial este tensor tiene la forma:

$$\epsilon_{ij}(z, t) = \epsilon_{\perp} \delta_{ij} + \epsilon_a n_i(z, t) n_j(z, t) \quad (43)$$

Como lo sugiere la geometría del modelo, supondremos que el campo óptico incidente es monocromático, propagándose en la dirección x y con una amplitud que depende de z , es decir, es de la forma:

$$\begin{aligned} E_j(x, z, t) &= E_j(z) \exp[i(\beta x - \omega t)], \\ H_j(x, z, t) &= H_j(z) \exp[i(\beta x - \omega t)], \quad j = x, y, z \end{aligned} \quad (44)$$

Aquí β es la constante de propagación y ω es la frecuencia angular de la onda. Para cada valor específico de β hay una distribución específica de las amplitudes $E_j(z)$ o $H_j(z)$ y la naturaleza de estas distribuciones no se altera cuando el campo se propaga en el interior de la celda y representa los modos de la guía. Sustituyendo las formas anteriores en las ecuaciones de Maxwell sin fuentes, y utilizando la representación completa del campo electromagnético en términos de los modos transversos eléctricos (TE) y magnéticos (TM), se obtienen las siguientes expresiones adimensionales para estos últimos modos, a saber:

$$\begin{aligned} \epsilon_{zz} \frac{d^2 H_y}{d\zeta^2} + \left[2ik_0 l p \epsilon_{xz} + \frac{d\epsilon_{zz}}{d\zeta} \right] \frac{dH_y}{d\zeta} + \\ k_0 l \left[k_0 l \left(\epsilon_{\perp} - p^2 \epsilon_{zz} \right) + ip \frac{d\epsilon_{zz}}{d\zeta} \right] H_y = 0, \end{aligned} \quad (45)$$

$$E_z = \frac{1}{\epsilon_{\perp}} \left\{ -\epsilon_{xz} p H_y + \frac{i}{k_0 l} \epsilon_{xz} \frac{dH_y}{d\zeta} \right\}, \quad (46)$$

$$E_x = \frac{1}{\epsilon_{\perp}} \left\{ p \epsilon_{zz} H_y - \frac{i}{k_0 l} \epsilon_{xz} \frac{dH_y}{d\zeta} \right\}, \quad (47)$$

$$\text{con } p \equiv \frac{\beta}{k_0}.$$

Para la geometría del modelo, las componentes de ϵ_{ij} son funciones explícitas de θ , $\epsilon_{zz} = \epsilon_{\perp} + \epsilon_a \cos^2 \theta(\zeta)$, $\epsilon_{xx} = \epsilon_{\perp} + \epsilon_a \sin^2 \theta(\zeta)$ y $\epsilon_{xz} = \epsilon_a \alpha$. Nótese que esta dependencia pone de manifiesto el carácter acoplado de las ecuaciones de campo; claramente, para poder conocer la dinámica de los campos es necesario sustituir primero la configuración orientacional de las ecuaciones anteriores, lo cual se obtiene al resolver la ecuación (39). Pero a su vez, determinar esta configuración implica conocer la dinámica de los campos. Claramente, para poder determinar ambas dinámicas es necesario seguir un procedimiento sistemático de aproximación que permita conocer cada una independientemente, pero a diferentes órdenes en un parámetro adecuado. En la siguiente sección describimos un método de aproximación sis-

temático que permite realizar estos cálculos. Debe mencionarse que las expresiones correspondientes a los modos *TE* no se escribirán explícitamente porque la dinámica de estos modos se desacopla de la dinámica reorientacional y, por lo tanto, puede ignorarse en la descripción dinámica.

2. Aproximaciones sistemáticas

Además del parámetro q , cuya interpretación física se dio en la sección anterior, en las ecuaciones dinámicas (39) y (45)-(47) aparece otro parámetro importante, $k_0 l$. En términos de los valores de este parámetro se define el límite de la óptica geométrica (*LO*) por la condición $k_0 l \gg 1$, mientras que el siguiente orden de aproximación, el límite *WKB*, corresponde a $k_0 l > 1$. Claramente, es posible implementar diferentes aproximaciones de las ecuaciones anteriores a órdenes diferentes en los parámetros q y $k_0 l$. A continuación describiremos un esquema de aproximación sistemática para este fin:

Primero debe determinarse el estado configuracional inicial, correspondiente al estado estacionario que minimiza la energía libre correspondiente en ausencia de campos. Esto equivale a determinar el campo de orientación y, por lo tanto $\vec{n} = \vec{n}[z, t]$ a orden cero en q . A partir de esta configuración se calcula la correspondiente expresión del tensor dieléctrico de la ecuación (10). De esta forma se obtienen los coeficientes que aparecen en las ecuaciones no lineales (45)-(47). Entonces estas ecuaciones para las amplitudes de los campos pueden resolverse al orden necesario en el parámetro $k_0 l$ y obtener así las distribuciones de los campos de los modos que se propagan en la celda.

La siguiente etapa consiste en calcular el cambio en el tensor dieléctrico producido por las torcas debidas a los campos ópticos anteriores. Para esto se calcula el campo director correspondiente a estas torcas, o equivalentemente, se resuelve la ecuación para \vec{n} , y con la expresión resultante se calculan las componentes necesarias del tensor dieléctrico. Con esta información se resuelven nuevamente las ecuaciones para las amplitudes de campo (45)-(47). Siguiendo este esquema se itera el proceso hasta los órdenes necesarios en los parámetros mencionados. En *II* se ilustra este procedimiento al utilizar explícitamente el *LO* de las ecuaciones dinámicas para los campos y calcular así las trayectorias de rayo de los campos en la celda.

Conclusiones

En resumen, en este trabajo hemos desarrollado un método macroscópico y analítico que permite describir la dinámica acoplada y altamente no lineal, tanto de los campos ópticos como del cristal líquido mismo. El carácter analítico del método proporciona una descripción física más clara de los mecanismos físicos macroscópicos involucrados en el proceso de propagación; además, permite implementar esquemas de aproximaciones sistemáticas, iterativas, en términos de potencias de parámetros con una interpretación física precisa, para resolver el sistema de ecuaciones hidrodinámicas.

Aunque el conjunto de ecuaciones hidrodinámicas es general e incluye los efectos disipativos producidos por los procesos irreversibles que ocurren en el nemático, en muchas situaciones de interés físico es conveniente y considerablemente más sencillo aproximar la reorientación del nemático como un proceso isotérmico. Este importante caso particular se describió en la sección III. Este límite importante posee una base experimental bien establecida y permite desarrollar una descripción teórica más simplificada; sin embargo, no debe olvidarse que es una aproximación. Como resultado de este análisis puede decirse que el fenómeno de reorientación molecular fotoinducida constituye el meollo de la respuesta altamente no lineal que exhiben los cristales líquidos. Por una parte, esta característica hace a los cristales líquidos sistemas físicos muy atractivos para el diseño de dispositivos ópticos; pero por otra, también muestra sus importantes limitaciones debido a la absorción de luz que muestran estos sistemas (Hu *et al.*, 1993; Vogeler *et al.*, 1992) y que para su tratamiento adecuado requiere de la descripción termohidrodinámica presentada en este trabajo. De hecho, debe enfatizarse el hecho de que el proceso de propagación de luz en un cristal líquido es, en general, un proceso irreversible, pues los procesos de absorción y disipación nunca pueden ignorarse completamente. La descripción macroscópica más apropiada de la propagación de campos ópticos debe realizarse en el contexto de una teoría termodinámica irreversible, de la misma manera que la termodinámica irreversible de Onsager se utiliza para describir los procesos disipativos en un fluido simple (de Groot y Mazur, 1962). La relación entre la función de disipación discutida aquí y su efecto e interpretación para los fenómenos ópticos generados por la propagación de un haz láser en un cristal líquido nemático está actualmente en proceso de investigación (Reyes y Rodríguez, 2001). 



BIBLIOGRAFÍA

- Ahlers, G.; D. S. Cannell; L. I. Berge; S. Sakurai (1994). *Phys. Rev. E* 49:545.
- Blinov, L. M.; V. G. Chigrinov (1994). *Electrooptic Effects in Liquid Crystal Materials*, Springer, New York, U.S.A.
- Brand, H. R.; H. Pleiner (1980). "Nonlinear Reversible Hydrodynamics of Liquid Crystals and Crystals", *J. Phys. (Paris)*, 41:553-564.
- Brand, H. R.; H. Pleiner
 _____ (1981). *Phys. Rev. A*, 24:1783.
 _____ (1982). "Light Scattering in Nematic Liquid Crystals in a Nonequilibrium Steady State", *Phys. Rev. A*, 26: 1780-1786.
 _____ (1982). "Light Scattering in Nematic Liquid Crystals in the Presence of Shear Flow", *Phys. Rev. A*, 30: 1548-1557.
 _____ (1994). *Physica A*, 208:359.
- Bogoljubov, N. N. (1962). *Phys. Abhandl.SU* 6:229.
- Callen, H. B. (1985). *Thermodynamics and an Introduction to Thermostatistics*, Wiley, 2a. Edición. New York, U.S.A.
- Chandrasekhar, S. (1977). *Liquid Crystals*. Cambridge University Press, Cambridge, U. K.
- Ciparone, G.; V. Carbone; C. Versace; C. Umeton; R. Bartolino (1993). "Optically Induced Haptic Behavior in Nematic Liquid Crystal Films", *Phys. Rev. E*, 47: 3741.
- Collings, P. J. (1990). *Liquid Crystals*. Princeton University Press, Princeton, U. S. A.
- De Gennes, P. G. (1974). *The Physics of Liquid Crystals*. Oxford University Press, Oxford, U. K.
- De Groot, S. R.; P. Mazur (1962). *Non-Equilibrium Thermodynamics*. Amsterdam, North Holland, Holland.
- Durbin, S. D.; S. M. Arakelian; Y. R. Shen (1981). *Phys. Rev. Lett.* 47: 1411-
- Forster, D. (1975). *Hydrodynamic Fluctuations, Broken Symmetry and Correlation Functions*. Benjamin. Reading, U.S.A.
- Frank, F. C. (1958). *Furaday Soc. Disc.*, 25: 19.
- Hijar, H.; J. F. Camacho; R. F. Rodríguez (2001). "Flexoelectric Effect And Light Scattering in Nematic Liquid Crystals", *Rev. Mex. Fis. México*, D. F. (en prensa).
- Hohenberg, P.; P. C. Martin (1965). *Ann. Phys.*, 34:291.
- Jánossy, I. (1991). *Optical Effects in Liquid Crystals*. Kulwer, Dordrecht. Germany.
- Jánossy, I.; A. D. Lloyd; B. S. Wherrett (1990). "Molecular Interpretation of the Absorption-induced Optical Reorientation of Nematic Liquid Crystals", *Mol. Cryst. Liq. Cryst.*, 179: 1-6.
- Jánossy, I.; Kósa T. (1992). "Influence of Anthraquinone Dyes on Optical Reorientation of Nematic Liquid Crystals", *Opt. Lett.*, 17: 236-241.
- Kadanoff, L. P.; P. C. Martin (1963). *Ann. Phys.*, 24: 419.
- Khalatnikov, I. M. (1965). *Introduction to the Theory of Superfluidity*, Benjamin, New York, U. S. A.
- Khoo, I. C. (1988). "Nonlinear Optics of Liquid Crystals", *Prog. Optics*, 26:108.
- Khoo, I. C.; S.T. Wu (1993). "Optics and Nonlinear Optics of Liquid Crystals", *World Scientific*, Singapore.
- Landau, L. D.; E. Lifshitz (1964). *Theory of Elasticity*. Pergamon, 3rd. edition. New York, U.S.A.
- Landau, L. D.; E. Lifshitz; L. P. Pitaevski. (1984). *Electrodynamics of Continuous Media*. Pergamon. New York. U.S.A.
- Martin, P. C.; O. Parodi; P. Pershan (1972). "Unified Theory For Crystals, Liquid Crystals, and Normal Fluids", *Phys. Rev. A*, 6:2401.
- Pleiner, H. (1986). *Liq. Cryst.* 1:197.
- Pleiner, H. (1988). "Nonlinear Effects in the Electrohydrodynamics of Uniaxial Nematic Liquid Crystals", *Phys. Rev. A*. 37: 3986-3991.
- Reyes, J. A. y R. F. Rodríguez (2001). "Efectos no lineales fotoinducidos en cristales líquidos", en este mismo número.
- Rodríguez, R. F. y J. A. Reyes (1996). "Propagation of Optical Fields in a Planar Liquid Crystal Wave Guide", *Mol. Cryst. Liq. Cryst.* 282: 287–296.
- Rodríguez, R. F. y J. A. Reyes (1998). "Waveguiding in a Nematic Hybrid Slab", *Mol. Cryst. Liq. Cryst.* 317: 135 – 151.
- Rodríguez, R. F. y J. A. Reyes (2001). "Absorption Effects in Liquid Crystal Waveguides", *J. Phys.* Enviado.
- Santamato, E.; G. Abatte; P. Maddalena; L. Marrucci (1990). "Laser-induced Nonlinear Dynamics in a Nematic Liquid Crystal Film", *Phys. Rev. Lett.*, 64:1377.
- Santamato, E.; G. Abatte; P. Maddalena; L. Marrucci; D. Paparo; B. Piccirillo (1999). *Mol. Cryst. Liq. Cryst.* 328:479.
- Stephen, M. J.; J. P. Straley (1974). "Physics of Liquid Crystal", *Rev. Mod. Phys.*, 46: 617.
- Tabiryan, N. V.; A. V. Sukhov; B. Ya. Zeldovich (1986). "The Orientational Optical Nonlinearity of Liquid Crystals", *Mol. Cryst. Liq. Cryst.* 136:1.
- Zel'dovich B. Y.; N. F. Pilipotskii; A. V. Sulchov; N. V. Tabiryan (1980). "Giant Optical Nonlinearity in the Mesophase of Nematic Liquid Crystals", *JEPT Lett.*, 31: 263.