

00382



UNIVERSIDAD NACIONAL AUTONOMA  
DE MEXICO

---

---

POSGRADO EN CIENCIAS FÍSICAS  
FACULTAD DE CIENCIAS

**“Estudio Teórico Experimental de Procesos  
Ópticos Lineales y No Lineales en Cristales  
Líquidos”**

**T E S I S**

QUE PARA OBTENER EL GRADO DE:

**DOCTOR EN CIENCIAS (FÍSICA)**

PRESENTA:

**JOSÉ ALBERTO OLIVARES LECONA**

DIRECTOR DE TESIS: DR. ROSALÍO FERNANDO RODRÍGUEZ ZEPEDA

COMITÉ TUTORAL: DR. EDUARDO MUÑOZ PICCONE  
DR. JOSÉ RUFINO DÍAZ URIBE

**pcf**

posgrado en ciencias físicas  
u n a m  
2004

MÉXICO, D.F.



Universidad Nacional  
Autónoma de México

Dirección General de Bibliotecas de la UNAM

**Biblioteca Central**



**UNAM – Dirección General de Bibliotecas**  
**Tesis Digitales**  
**Restricciones de uso**

**DERECHOS RESERVADOS ©**  
**PROHIBIDA SU REPRODUCCIÓN TOTAL O PARCIAL**

Todo el material contenido en esta tesis esta protegido por la Ley Federal del Derecho de Autor (LFDA) de los Estados Unidos Mexicanos (México).

El uso de imágenes, fragmentos de videos, y demás material que sea objeto de protección de los derechos de autor, será exclusivamente para fines educativos e informativos y deberá citar la fuente donde la obtuvo mencionando el autor o autores. Cualquier uso distinto como el lucro, reproducción, edición o modificación, será perseguido y sancionado por el respectivo titular de los Derechos de Autor.

PARA ANITA Y JOSE

# Agradecimientos

En primer lugar quisiera agradecer a los profesores: Dr. Eduardo Muñoz Piccone, al Dr. José Manuel Hernández Alcántara, al Dr. Marcos Ley Koo, al Dr. Eugenio Méndez Méndez, al Dr. José Rufino Díaz Uribe y al Dr. Antonio Muñoz Flores que tuvieron la amabilidad de revisar y criticar este trabajo. Gracias a todos ustedes que independientemente de este trabajo en diferentes formas y en tiempos distintos han contribuido para que este paso se diera.

Un profundo agradecimiento al Dr. Rosalío Rodríguez Zepeda por el apoyo, la confianza, las enseñanzas, la paciencia y la amistad que me ha brindado durante estos 11 años en que he tenido el placer de colaborar con él.

An special acknowledgement to Professor Peter Palfy Muhoray that has given me the support for using his laboratories, and the kindness to share his time and his deep knowledge in the Science of Liquid Crystals. Thank you very much Peter.

Al Dr. José Adrián Reyes Cervantes por las innumerables discusiones y enseñanzas sobre la física de cristales líquidos y la vida en general. Muchas gracias compadre.

A la Dra. Rocío Jauregui Renaud por el apoyo y la paciencia que como coordinadora de Posgrado en Ciencias Físicas ha tenido con un servidor.

Al IFUNAM como institución que a pesar de todo nos da albergue día y noche para poder prepararnos y sacar un mejor país.

To all the people at the LIQUID CRYSTAL INSTITUTE at KENT STATE UNIVERSITY that has given me the support and facilities to develop most of the experimental work in this thesis and has provide me with knowledge and marvelous friends.

Al CONACYT que gracias al apoyo económico a través de la beca que recibí se ha concluido este trabajo.

Finalmente quisiera agradecer a la UNIVERSIDAD NACIONAL AUTONOMA DE MEXICO por todo el apoyo que me ha dado a lo largo de mi vida como estudiante. Va un Goya !!

## Resumen

La presente tesis tiene como finalidad explorar diversos aspectos de la propagación de ondas electromagnéticas en celdas de cristal líquido. Estos estudios son de carácter teórico-experimental en donde se analizan principalmente procesos físicos que dan origen a la respuesta no lineal del cristal líquido y que se manifiestan a través del patrón de difracción. La metodología empleada consistió en estudiar la respuesta óptica del medio a diversos niveles de interacción entre el cristal líquido y el haz óptico, en donde el parámetro más importante es la intensidad del campo óptico en relación a la energía elástica del cristal líquido. Así en el Capítulo 2 se estudió la propagación de un haz en el régimen de respuesta lineal en donde la intensidad del haz no es suficiente para producir efectos de reorientación. En este capítulo se estudio la propagación del haz en una celda híbrida, se determinaron las curvas de reflectancia en condiciones de reflexión total interna y se desarrollo un modelo para interpretar los resultados obtenidos. En el Capítulo 3, se estudia el régimen de interacción debilmente no lineal, en donde el haz distorsiona ligeramente la orientación inicial del cristal líquido. Se determino la susceptibilidad dieléctrica de cristales líquidos dopados y puros por la técnica de Z-Scan y se encontró que aún para pequeñas intensidades del haz la susceptibilidad eléctrica no lineal llega a ser de orden superior al tercero. En el Capítulo 4 la intensidad del campo óptico se incrementa de tal forma que el cristal líquido llega a un régimen de saturación en donde las moléculas son reorientadas completamente por el campo óptico. Esto produce la formación de estructuras espaciales en el patrón de difracción que se manifiestan como manchas (spots). Se propone un modelo para explicar estas observaciones. En el Capítulo 5 se estudia la formación de regímenes dinámicos que aparecen en el patrón de difracción como consecuencia de la aplicación simultánea de un campo óptico y un campo eléctrico de baja frecuencia a celdas dopadas por tinta. Se estudian experimentalmente los diversos regímenes dinámicos y se propone un modelo que describe el régimen de rotación estable. El modelo reproduce la frecuencia de rotación de los dominios y modela una estructura similar a la observada experimentalmente. El trabajo de investigación realizado en esta tesis no sólo ayuda a obtener una mejor comprensión sobre los mecanismos y procesos involucrados en la interacción de cristales líquidos con campos ópticos, también aporta fenómenos novedosos susceptibles de ser aplicados en nuevas tecnologías.

## Abstract

The present thesis has the purpose of exploring diverse aspects of the propagation of electromagnetic waves in liquid crystal cells. These studies have both a theoretical and experimental aspects. In these we mainly study physical processes which give rise to a nonlinear response of the liquid crystals and its manifestation through the diffraction pattern. The used methodology consisted of studying the optical response at diverse levels of interaction between the liquid crystal and the optical beam, in where the most important parameter is the optical field's strength in relation to the elastic energy of the liquid crystal. Thus, in Chapter 2 we study the propagation of a beam in the linear response regime in which the intensity of the beam is not sufficient to produce reorientational effects. In this chapter we had study the propagation of the beam in a hybrid cell; we have determined the reflectance curves under the conditions of total internal reflection and we development a model to interpret these obtained results. In Chapter 3, the weakly interaction regime was studied. Here the beam slightly distorts the initial orientation of the liquid crystal. We determine the dielectric non linear susceptibility of pure and dye doped liquid crystal by using Z-Scan technique. The results show that even for small intensities the dielectric susceptibility has contribution higher than the third order. In Chapter 4 the optical field strength is increased in such way that the liquid crystal arrives to a saturation regime in which the molecules are reoriented completely by the optical field. This produces the formation of spatial structures in the diffraction pattern that are manifested as localized spots. A model is proposed to explain these observations. In Chapter 5 we study the formation of dynamic regimes that appear in the diffraction pattern as a result of the simultaneous application of an optical field and an electric field to dye doped cells. The diverse dynamic regimes were studies experimentally and a model is proposes to describe the stable state regime. The model reproduces the frequency of rotation of the domains and predicts a similar structure in the diffraction patter to the observed one experimentally. The research work developed in this thesis not only helps in the comprehension of basic comprehension of the mechanism and processes involved in interaction of liquid crystals with optical fields, but also contributes with novel phenomena susceptible to be applied in new technologies.

# Índice general

<b>1. Propiedades Físicas de Cristales Líquidos</b>	<b>19</b>
1.1. Cristales líquidos termotrópicos . . . . .	19
1.1.1. Mesofases termotrópicas . . . . .	20
1.2. Parámetro de orden . . . . .	26
1.3. Descripción hidrodinámica . . . . .	27
1.3.1. Condiciones de Frontera . . . . .	29
1.3.2. Propiedades ópticas de cristales líquidos . . . . .	31
1.3.3. Interacción con un campo óptico . . . . .	31
1.4. Cristales líquidos dopados . . . . .	33
1.4.1. Efecto Jánossy . . . . .	34
<b>2. Propagación Lineal de Haces en Celdas Híbridas: Estudios de Reflexión Total Interna (TIR)</b>	<b>36</b>
2.1. Introducción . . . . .	36
2.2. Determinación experimental de las curvas de reflectividad . . .	39
2.2.1. Mediciones de la reflectividad . . . . .	39
2.2.2. Preparación de la celda . . . . .	40
2.2.3. Arreglo experimental . . . . .	40
2.3. Teoría . . . . .	46
2.3.1. Modelo y ecuaciones básicas . . . . .	46
2.3.2. Trayectoria del haz . . . . .	49
2.3.3. Curvas de reflectividad . . . . .	53
2.3.4. Efectos de tunelaje . . . . .	58
2.4. Comparación entre teoría, simulación y experimento . . . . .	63
2.5. Discusión . . . . .	66
2.6. Conclusiones . . . . .	68

<b>3. Determinación Experimental de la Susceptibilidad Dieléctrica</b>	<b>70</b>
3.1. Introducción . . . . .	70
3.2. Técnica de Z-Scan . . . . .	72
3.3. Observaciones Experimentales . . . . .	74
3.3.1. Preparación de la muestra . . . . .	74
3.3.2. Arreglo experimental . . . . .	75
3.4. Análisis de los resultados . . . . .	81
3.5. Discusión . . . . .	87
<b>4. Formación de Estructuras Espaciales: Efectos de la Inestabilidad Transversal en el Patrón de Difracción</b>	<b>89</b>
4.1. Introducción . . . . .	89
4.2. Observaciones experimentales . . . . .	92
4.2.1. Preparación de muestras y arreglo experimental . . . . .	92
4.2.2. Determinación de la intensidad crítica de Freedericks . . . . .	94
4.2.3. Modulación de auto fase y formación de estructuras espaciales . . . . .	94
4.3. Modelo . . . . .	100
4.3.1. Energía umbral . . . . .	106
4.4. Discusión . . . . .	110
<b>5. Dinámica del Patrón de Difracción No Lineal</b>	<b>112</b>
5.1. Introducción . . . . .	112
5.2. Arreglo experimental. . . . .	115
5.2.1. Transición de Freedericksz óptica . . . . .	116
5.2.2. Patrón de difracción dinámico. . . . .	116
5.2.3. Régimen de rotación estable . . . . .	122
5.2.4. Diagrama de fases: el régimen rotacional estacionario . . . . .	125
5.3. Modelo. . . . .	125
5.3.1. Frecuencia de rotación de los dominios . . . . .	137
5.3.2. Contribución de los dominios al patrón de difracción . . . . .	138
5.4. Conclusiones . . . . .	139
<b>6. Conclusiones y Perspectivas</b>	<b>142</b>

# Índice de figuras

1.1. Mesofases típicas de un cristal líquido termotrópico. . . . .	20
1.2. Fase nemática. La flecha indica la orientación promedio $\vec{n}$ (eje óptico) . . . . .	21
1.3. Estructura típica general de un nematogeno y sus dimensiones típicas . . . . .	22
1.4. Estructura molecular de los cuatro constituyentes del cristal líquido E7 (EM Chemicals) . . . . .	23
1.5. Esquema de las fase colestérica. $p$ denota el paso de la hélice o "pitch". . . . .	23
1.6. Esquema de las fases esmécticas. $a)$ esméctico $A$ en donde $\vec{n}$ es perpendicular a las capas. $b)$ esméctico $C$ . $c)$ esméctico $B$ . . . . .	25
1.7. Deformaciones elásticas principales en un cristal líquido nemático. A) despleamiento (splay) B) flexión (bend) y C) torsión (twist). . . . .	29
1.8. Configuraciones usuales en celdas nemáticas. Las diferentes capas del substrato representan los componente usuales de una celda de cristal líquido típica. Los surfactantes pueden producir la configuración homeotrópica, A); Planar, B); Híbrida, C); o de Twist con ayuda de un pequeña cantidad de un material quiral. D) . . . . .	30
1.9. Dependencia de los índices de refracción para un nemático típico como función de la temperatura. $n_e$ denota el índice extraordinario y $n_o$ denota al ordinario. En este caso la birefringencia, $n_e - n_o$ es positiva. $T_c$ denota la temperatura de transición nemático-isotrópica. . . . .	32
1.10. Estructura química de la tinta R4 . . . . .	33

2.1. Esquema del sistema celda-hemisferio. Índice de refracción del hemisferio, $N_1 = 1.81$ ; índice de refracción de las placas , $N_2 = 1.81 \pm 0.005$ ; espesor $l = 100 \mu m$ . La celda se llenó con el nemático $E7$ . Un fluido refractométrico con índice de refracción de $1.81 \pm 0.005$ se utilizó para acoplar la celda y el hemisferio. . . . .	41
2.2. Arreglo experimental. El láser, $He-Ne$ descansa sobre el brazo del elipsómetro, $EA$ , $P$ es el polarizador; $A$ el analizador, $S$ , es la muestra y $PD$ , es el fotodetector. La polarización se escogió de tal forma que el campo eléctrico estuviera en el plano de incidencia. El ángulo $i$ se puede cambiar moviendo manualmente el brazo $EA$ . . . . .	42
2.3. Patrón de interferencia para $i \sim 65^\circ$ . . . . .	43
2.4. Patrón de interferencia para $i \sim 72^\circ$ . . . . .	44
2.5. Puntos experimentales para $R$ vs $i$ para una polarización $p$ . . . . .	45
2.6. Esquema del modelo. La onda tiene polarización $p$ , (modo $TM$ ). $N_t, N_b > n_e, n_o$ . $\theta(z)$ es el ángulo de reorientación del director. . . . .	47
2.7. Esquema de la propagación del haz para $p > 0$ . $\zeta_c$ denota la posición de la caústica o punto de retorno. . . . .	50
2.8. Trayectorias del haz. (—) $i = 45^\circ$ , ( $-\square-\square-$ ) $i = i_c$ , ( $-\circ-\circ-$ ) $i = i_c + 0.1$ , ( $-*-*$ ) $i = i_c + 2^\circ$ , ( $-\blacklozenge-\blacklozenge-$ ) $i = i_c + 7^\circ$ , $i_c = 56.3^\circ$ . Para $i = 45^\circ$ el haz se refleja en la placa superior. . . . .	52
2.9. Esquema del modelo para haces Gaussianos. $2w_0$ es el diámetro del haz. . . . .	54
2.10. Esquema para calcular la separación entre dos reflexiones adyacentes. . . . .	56
2.11. $R$ vs. $i$ . ( $-*-*$ ) $t = 0.01$ , ( $x-x-x$ ) $t = 0.05$ , (—) $t = 0.1$ . . . . .	59
2.12. Diagrama para los campos. En la región $I$ se tiene la onda incidente y la reflejada. La región $II$ es la onda viajando en el medio anisotrópico. La región $III$ es la region de evanescencia. La región $IV$ contiene solamente la onda transmitida. . . . .	60
2.13. Fuga por tunelaje. (—) $l = 100 \mu m$ , (.....) $l = 10 \mu m$ . . . . .	63
2.14. Comparación entre los resultados teóricos, experimentales y numéricos de las curvas de reflexión. El tamaño de las barras denota el error experimental . . . . .	65
2.15. Predicción teórica de la curva de reflectividad para $t = 0.8$ usando los parámetros dados en [36]. . . . .	68

3.1.	Esquema de la técnica de Z-Scan. . . . .	73
3.2.	Curvas de transmitancia a través de la apertura . . . . .	74
3.3.	Esquema del arreglo experimental. M,: espejos, WP: retardador $\lambda/2$ , P: polarizador, BS: divisores de haz, L1, L2, lentes convergentes, TS: platina de translación, S: muestra, PD1 fotodetector de referencia, PD2 fotodetector con apertura abierta, PD3 fotodetector con apertura cerrada, A: apertura . . . . .	76
3.4.	Curvas de transmitancia para la muestra dopada al 0.5 % wt de R4. . . . .	77
3.5.	Absorción no lineal de la muestra dopada al 0.5 % wtR4 . . . . .	78
3.6.	Curvas con apertura cerrada para la muestra de E7 puro . . . . .	78
3.7.	Comparación entre las respuestas de la muestra dopada (triángulos) y pura (círculos). . . . .	79
3.8.	Coefficiente de absorción lineal para las celdas dopadas. . . . .	80
3.9.	Absorción no lineal para la celda de E7 + 0.5 % wt R4. La potencia empleada es 4 mW. $q_0 = 0.1464$ . . . . .	82
3.10.	Dependencia del coeficiente de absorción no lineal para dos concentraciones diferentes . . . . .	83
3.11.	Ajuste de Curvas para E7+0.5%wt R4. . . . .	84
3.12.	Ajuste del cambio de fase no lineal como función de la potencia de entrada. Las líneas representan las cruvas ajustadas por la relación cuadrática, $\Delta\phi = BP + AP^2$ . . . . .	85
3.13.	Ajuste del cambio de fase no lineal como función de la potencia. En este caso se ajustó con un proceso de tercer orden . . . . .	86
4.1.	Esquema del arreglo experimental, : M : espejos, HWP: retardador $\lambda/2$ , P : polarizador, BS : divisor de haz, PD : fotodetector, S : muestra, RS : platina de rotación SR : pantalla, VC : camara de video. . . . .	93
4.2.	Patrón de difracción en el campo lejano para E7. El ángulo de incidencia es de $26^\circ$ . a) P= 11.73 mW, b) P=14.0mW, c)17.56 mW, d)20.60 mW, e) 22.6 mW, f) P= 28.89 mW . . . . .	96
4.3.	Patrón de difracción en el campo lejano para 8CB. El ángulo de incidencia es de $26^\circ$ . a) P= 10.43 mW, b) P=19.43 mW, c) 22.21 mW, d)29.13 mW, e) 33.29 mW, f) P= 40.22 mW . . . . .	97
4.4.	Número de anillos como función de la potencia de entrada. . . . .	98
4.5.	Patrón espacial para potencias altas en la celda con E7. a) $P = 32.53 \text{ mW}$ . b) $P = 41.64 \text{ mW}$ . . . . .	99

4.6.	Muestra de 8CB. $P = 22.21$ mW, $I = 2.69 \times 10^7 W/m^2$ . La distancia promedio para los puntos 1 y 2 es de 2.85 cm y de 2.1 para los puntos 3 y 4. . . . .	101
4.7.	Muestra de 8CB. $P = 29.14$ mW, $I = 3.83 \times 10^7 W/m^2$ . Se tienen 3 conjuntos de puntos: Conjunto 1 (puntos 1 y 10) $d=3.66$ cm, 2 (2,3,4,5,6,7) $d=2.76$ cm y conjunto 3 (8,9) $d=1.7$	102
4.8.	Esquema de la celda con el nemático en configuración homeotrópica. Sobre ella incide un campo óptico con dirección de propagación a lo largo de la dirección $z$ . . . . .	104
4.9.	Dependencia de la intensidad crítica como función del vector de onda $q$ asociado a la inestabilidad transversal . . . . .	109
5.1.	Esquema del arreglo experimental. $WP$ : retardador $\frac{\lambda}{2}$ , $P$ : polarizador; $BS$ : divisor de haz; $L$ : lente con $f=100$ mm; $PD$ : fotodetector; $S$ : muestra; $SCR$ : pantalla. . . . .	116
5.2.	El patrón de difracción como función de la potencia incidente. A) $P=0.3$ mW, B) Potencia ligeramente superior a la potencia crítica de Fredericksz, $P=6.45$ mW, C) $P=6.62$ D) $P=11.81$ mW. . . . .	117
5.3.	Número de anillos como función de la potencia de entrada. Incidencia normal, potencia crítica de Fredericksz= 6.45 mW.	118
5.4.	Patrón de difracción, $V_{rms} = 10$ V. La región anular oscura crece conforme $V_{rms}$ aumenta. . . . .	119
5.5.	Patrón de difracción en el régimen de rotación estable ( $RS$ ): A) $V_{rms} = 17.37$ V, B) $V_{rms} = 20.34$ V. Rotación inestable; C) $V_{rms} = 26.02$ V. Rotación compleja D) $V_{rms} = 30.2$ V . . . .	120
5.6.	Esquema de la estructura aberracional girando con velocidad angular constante. La estructura es semejante a una aspas de molino. Las líneas punteadas se agregaron con el propósito de visualizar las fronteras de las aspas. El círculo encierra la región $MCR$ . . . . .	121
5.7.	Secuencia de fotografías que muestran la rotación estable. La flecha se agregó con fines ilustrativos. El número en la parte superior derecha muestra en número de cuadro y el tiempo. . .	123

5.8.	Señal del fotodetector colocado sobre la zona por la que pasa la $MCR$ como función del tiempo. La intensidad esta normalizada con respecto al valor medio. De arriba a abajo los voltajes son: $V_{rms} = 16.03$ V ( $S$ ), $V_{rms} = 17.37$ (umbral entre $S$ and $RS$ ), $V_{rms} = 20.34$ V ( $SR$ ), $V_{rms} = 26.02$ V, (umbral entre $RS$ y $RI$ ), $V_{rms} = 30.2$ V ( $RC$ ). . . . .	124
5.9.	$V_{rms}$ como función de la frecuencia del campo $AC$ para el régimen $RS$ . La potencia se fijó a $12$ $mW$ . Las barras son una medida de la histéresis observada. . . . .	126
5.10.	Variación del voltaje aplicado, $V_{rms}$ , como función de la potencia del haz. Los diferentes puntos están parametrizados con respecto a la frecuencia del campo $AC$ . . . . .	127
5.11.	Esquema de una distribución típica de las moléculas de tinta (gris) en una celda homeotrópica. . . . .	129
5.12.	Esquema de la orientación del campo director y de las moléculas de tinta (gris), despues de la reorientación de Freedericksz. La absorción ahora es diferente a la absorción cuando no existe el campo óptico, fig 5.11. . . . .	129
5.13.	Esquema de la distribución de moléculas de tinta y del campo director para una intensidad del campo óptico mayor a la intensidad de Freedericksz. Para un dicroismo positivo la absorción es predominante a lo largo del eje largo de las moléculas por lo que la absorción es mayor en la dirección $x$ que en la $y$ . . . . .	130
5.14.	Esquema de la geometría de los campos involucrados. $\bar{E}_s$ es el campo alterno estático, $\bar{E}_0$ es el campo óptico con vector de onda $\bar{k}$ . $L$ es el espesor de la muestra y $\bar{n}$ denota al campo director. . . . .	131
5.15.	Esquema de la representación de los dominios en la región anular para la cual el campo óptico y alterno son comparables. $n_1$ y $n_2$ denotan los índices de refracción efectivos asociados a cada dominio, $LB$ es la región dominada por el campo óptico y $LF$ es la región donde predomina el campo alterno. . . . .	136
5.16.	Simulación de la contribución al patrón de difracción debido a la formación de dos dominios anulares. . . . .	140

# Introducción

Los cristales líquidos son fluidos constituidos por moléculas anisotrópicas en los que existe cierto orden orientacional en su arreglo molecular. Como consecuencia, se observa una anisotropía macroscópica en sus propiedades mecánicas, eléctricas, magnéticas y ópticas. La combinación de estas características junto con sus propiedades de fluidez, los hace materiales altamente sensibles a la acción de campos externos que permiten modificar sus propiedades macroscópicas. Gracias a su alta susceptibilidad, los cristales líquidos son materiales sumamente interesantes desde el punto de vista de la óptica no lineal existiendo una amplia fenomenología que ha sido estudiada extensamente en las dos últimas décadas.

Más específicamente, la interacción de haces ópticos con cristales líquidos ha sido estudiada ampliamente desde los años 70. Los estudios durante esta primera etapa se concentraron en la interacción de campos eléctricos de baja frecuencia con cristales líquidos. Se observó que el campo eléctrico modifica la configuración orientacional del cristal líquido y, por tanto, modifica su índice de refracción efectivo. Debido a esto surge la necesidad de entender la propagación lineal del haz óptico en un medio anisotrópico e inhomogéneo como lo es un cristal líquido, al interactuar con campos eléctricos estáticos [92],[43],[44]. Sin embargo, la gran mayoría de los trabajos teóricos sólo desarrollaron métodos que esencialmente resuelven las ecuaciones de Maxwell considerando al cristal líquido como un medio estratificado, las soluciones bajo esta aproximación se obtienen por métodos numéricos o bien en forma analítica en situaciones particulares. Los resultados encontrados tuvieron éxito y se aplicaron a diversas tecnologías, siendo los "displays" los más representativos y que ahora son ampliamente usados en la gran mayoría de dispositivos que despliegan información. Simultáneamente, se publicaron trabajos en donde se encontró que la correlación molecular que existe en los cristales líquidos cerca de la temperatura de transición podría mejorar la respuesta óptica no lineal de estos materiales [93],[94].

Más adelante, a principios de los 80's se encontró que los cristales líquidos exhiben una respuesta no lineal gigantesca asociada al efecto de reorientación colectiva de las moléculas inducida por el campo eléctrico de una onda electromagnética a frecuencias ópticas [68],[69]. Este fenómeno de reorientación por campos ópticos se conoce como la transición de Freedericksz Óptica. Para este fenómeno se observó que la susceptibilidad dieléctrica no lineal es nueve órdenes de magnitud mayor que la del fluido anisotrópico con mayor

respuesta no lineal, a saber, el  $CS_2$ . A partir de estos trabajos quedó claro que un campo óptico de potencia moderada ( $\sim 150mW$ ) puede producir efectos ópticos no lineales muy grandes. Este descubrimiento, permitió el estudio de una gran cantidad de fenómenos no lineales con campo ópticos de moderada intensidad. Fenómenos como el autoenfocamiento [75], la modulación en fase [70], generación de segundo y tercer armónico [7],[10], que se manifiestan principalmente en el patrón de difracción, fueron estudiados y se determinaron parámetros físicos como constantes elásticas o coeficientes de viscosidad. Posteriormente, se estudiaron los efectos reorientacionales en diversas configuraciones del cristal líquido y la influencia del perfil transversal del haz durante la transición de Freedericksz óptica. Sin embargo, los fenómenos asociados al perfil del haz cuando su intensidad es mayor que la intensidad crítica de Freedericksz, no fueron estudiados con gran profundidad. Para mediados de los 80's, se observó también, que existen regímenes dinámicos en el patrón de difracción que se pueden manifestar como pulsaciones, es decir, la divergencia angular del patrón de difracción no lineal cambia periódicamente [78]; o bien como rotaciones debido a la transferencia de momento angular de un haz circularmente polarizado a las moléculas de cristal líquido[26]. Por otro lado, a finales de los 80's se desarrollaron técnicas específicas para determinar la susceptibilidad dieléctrica no lineal de diversos materiales [62],[91]. En particular la técnica de Z-Scan fue exitosamente aplicada a cristales líquidos para medir su índice de refracción no lineal, así como su coeficiente de absorción no lineal con diversos tipos de haces [56].

Recientemente en los 90's, I. Janossy descubrió que la adición de pequeñas cantidades de tintas dicróicas<sup>1</sup> a cristales líquidos, introduce una torca adicional a la torca ejercida sobre los cristales líquidos por el campo óptica que refuerza el efecto de reorientación molecular. Esto trae como consecuencia que el valor de la intensidad del campo óptico para producir la reorientación decrece en dos órdenes de magnitud[18] y, consecuentemente, la respuesta no lineal del medio se incrementa. Este efecto hace posible la utilización de láseres de baja potencia, disponibles en cualquier laboratorio de enseñanza, para poder estudiar una enorme cantidad de fenómenos no lineales con una fenomenología asociada bastante amplia. Más aún, debido a la alta absorción de las tintas, es de esperarse que los efectos térmicos sean muy importantes, ya que las propiedades físicas de los cristales líquidos son

---

<sup>1</sup>Las tintas dicróicas son aquellas que presentan una anisotropía en su coeficiente de absorción. En general, estas tintas están compuestas por materiales anisotrópicos.

altamente dependientes de la temperatura y una pequeña absorción puede producir un calentamiento de la muestra que altera los índices de los índices de refracción, dando origen a efectos del tipo lente térmica. Aún más, se ha observado [17], [10] que el calentamiento inducido por el láser puede ser suficiente para producir una transición de fase en el cristal líquido, que induce un cambio en el índice de refracción no lineal dos órdenes de magnitud mayor a los observados en otros fluidos.

Los mecanismos físicos que dan origen a la respuesta no lineal de cristales líquidos pueden clasificarse como procesos electrónicos y no electrónicos. Los primeros son procesos rápidos en donde la interacción entre los electrones de las moléculas del cristal líquido con el campo óptico es casi instantánea. Ejemplos de estos son la generación de segundo y tercer armónico y procesos de suma o diferencia de frecuencias. Los procesos no electrónicos, o no radiativos, se caracterizan por presentar un valor muy grande del índice de refracción no lineal y un tiempo de respuesta lento comparado con los procesos electrónicos. Los mecanismos asociados a estos procesos pueden ser cambios en la temperatura, densidad, parámetros de orden, reorientación del campo director y procesos de isomerización del tipo cis-trans. Los fenómenos ópticos no lineales asociados a estos procesos por lo general no involucran la generación de radiación a frecuencias diferentes a las empleadas.

Si bien, en las últimas tres décadas se han estudiado extensamente las propiedades ópticas de los cristales líquidos, su fenomenología es bastante extensa y se ha incrementado aún más con el descubrimiento de la alta respuesta no lineal por efectos de dopaje. Sin embargo, a pesar de la enorme cantidad de información fenomenológica que hay de estos fenómenos, los mecanismos y procesos físicos asociados al origen de la respuesta altamente no lineal aún no han sido entendidos del todo. Su estudio no solamente ayudaría a la comprensión de los principios físicos básicos que les da origen, sino que también impulsaría la construcción de nuevos dispositivos electro-ópticos basados en estos mecanismos y ayudaría al mejoramiento de las tecnologías ya existentes.

Dentro de este panorama la presente tesis tiene como finalidad esencial explorar diversos aspectos de la propagación de ondas electromagnéticas en celdas de cristal líquido, los cuales no han sido explorados suficientemente, o bien, no han sido reportados en la literatura. Estos estudios son de carácter teórico-experimental en donde se analizan procesos físicos no radiativos<sup>2</sup>, que

---

<sup>2</sup>Esto es, procesos en donde no existe generación de nuevas frecuencias como la gen-

dan origen a la respuesta no lineal del cristal líquido y que se manifiestan principalmente a través del patrón de difracción. La metodología empleada consistió en estudiar la respuesta óptica del medio a diversos niveles de interacción entre el cristal líquido y el haz óptico.

Así, en el Capítulo 2 de este trabajo se estudió la propagación de un haz en un régimen en donde la interacción del campo óptico con el cristal líquido es despreciable, esto es, está restringido al régimen de respuesta lineal. En este caso se estudio la propagación del haz en una celda híbrida, en donde la configuración orientacional de las moléculas del director es tal que cambia en forma continua dentro de la celda por lo que el medio es anisotrópico e inhomogéneo. Como se mencionó más arriba, el problema de la propagación de un haz óptico en el régimen lineal ha sido estudiado ampliamente y se han desarrollado algunos métodos para explicarlo. Sin embargo, existen algunos problemas de interpretación como en el caso de las mediciones de la reflectancia de una celda de cristal líquido con una configuración híbrida en donde métodos bien establecidos como el de Berreman, no pueden ser aplicados [43]. Más aún, el origen físico de las curvas de reflectividad en el régimen de reflexión total interna en donde las trayectorias del haz "se doblan", no es del todo claro. En esta parte de la tesis, se llevaron a cabo experimentos para medir la reflectividad en este régimen y se propuso un modelo que explica satisfactoriamente los resultado experimentales aquí obtenidos y otros reportados en la literatura. El trabajo aporta una explicación satisfactoria del origen físico de las curvas de reflectividad en el régimen de reflexión total interna. Además, propone la existencia de un fenómeno de tunelaje, que puede ser aplicado a diversas tecnologías como válvulas electro-ópticas o filtros sintonizables [42].

Posteriormente, en el Capítulo 3, se considera el caso en el que el haz es lo suficientemente intenso como para producir cambios en el índice de refracción del cristal líquido dependientes de su intensidad. Estos cambios dan origen a procesos no lineales que son caracterizados a través de la susceptibilidad dieléctrica no lineal del medio. Las mediciones de esta susceptibilidad fueron llevadas a cabo en celdas con núcleo líquido cristalino y dopadas a diferentes concentraciones de tinta dicroica. La técnica empleada para determinarla fue la de Z-Scan. Esta técnica ha tenido éxito al ser aplicada a cristales líquidos en diversas situaciones como son; celdas con núcleo de cristal líquido puro [57] y dopados [24] o bien usando haces pulsados [55]. Existe un caso particular que se estudia en esta tesis, en donde se utilizó un haz linealmente

---

eración de segundo o tercer armónico.

polarizado de onda continua, incidiendo en forma perpendicular a las placas de una celda. La celda tiene una configuración inicial homeotrópica, esto es, el eje largo de las moléculas del cristal líquido se encuentra en promedio perpendicular a las placas. Si la polarización del campo óptico es lineal, se establece una competencia entre la torca elástica asociada al efecto de las fronteras que tiende a orientar a las moléculas en dirección perpendicular a las placas y la torca óptica que tiende a las moléculas en la dirección de la polarización. Cuando la intensidad del campo óptico sobrepasa un valor umbral la torca óptica vence a la torca elástica y se produce la reorientación. Por consiguiente el índice de refracción del medio cambia dando origen a un proceso no lineal en donde el índice de refracción depende de la intensidad del campo óptico. Este fenómeno es conocido como la transición de Freedericksz óptica. Usualmente, esta situación se evita ya que diferentes procesos que contribuyen a la susceptibilidad no lineal, como la reorientación molecular, los efectos térmicos y las contribuciones asociadas a las fluctuaciones en la orientación que ocurren antes de la transición de Freedericksz se mezclan. Aún así, esta geometría se eligió debido a que las condiciones experimentales son las mismas que se presentan en el estudio de los patrones de difracción dinámicos que se discuten en el capítulo 5. El modelo ahí desarrollado necesita de la susceptibilidad no lineal que se obtiene través de la técnica de Z-Scan. Resulta sumamente interesante que a pesar de que la intensidad del haz empleada para determinar la susceptibilidad dieléctrica está por abajo de la intensidad crítica de Freedericksz, la combinación de los mecanismos físicos que contribuyen a la no linealidad óptica en esta configuración dan origen a una susceptibilidad eléctrica no lineal de orden superior al tercero, que hasta donde se tiene conocimiento no ha sido reportada en la literatura. Esto sucede solamente para las muestras dopadas, mientras que en las celdas con cristal líquido puro se observó que la susceptibilidad es de tercer orden, como ha sido reportado en la literatura. Es posible que el origen de la susceptibilidad de orden superior sea una combinación de los efectos térmicos producidos por el láser y contribuciones debido a fluctuaciones en la reorientación de las moléculas del cristal líquido nemático que aparecen para intensidades cercanas a la transición de Freedericksz. Sin embargo, el propósito principal de este capítulo fue el de obtener el factor de amplificación que se obtiene por la contribución de la tinta dicróica y que se necesita como un parámetro en el modelo propuesto para explicar la difracción dinámica que se discute en el Capítulo 5. No obstante, los resultados obtenidos pueden ser de interés para la comprensión de los mecanismos físicos asociados al efecto de amplificación

de las tintas, por lo que es necesario aplicar un modelo que tome en cuenta la contribución de los efectos térmicos junto con la contribución de las fluctuaciones reorientacionales y así poder entender los mecanismos que dan origen a la susceptibilidad eléctrica de quinto orden. Actualmente se trabaja en este modelo, sin embargo, el análisis exhaustivo de éste sobrepasa los alcances de esta tesis.

Si bien la interacción del cristal líquido y el haz óptico en el régimen de respuesta óptica no lineal débil se discute en el Capítulo 3, en el Capítulo 4 se estudia el fenómeno de formación de estructuras espaciales en el régimen de respuesta no lineal fuerte, esto es, cuando la intensidad del campo óptico sobrepasa la intensidad crítica de Freedericksz y se llega a un régimen cercano a la saturación.

A pesar de que en la década de los 80's se estudiaron ampliamente los diversos fenómenos asociados a la reorientación por un campo óptico, los efectos del perfil transversal del haz en el caso de cristales líquidos puros y en celdas gruesas<sup>3</sup> no fueron estudiados con suficiente profundidad, centrándose sólo en los estudios sobre los aspectos relacionados con la transición de Freedericksz óptica [70]. Así el Capítulo 4 tiene como finalidad investigar experimental y teóricamente los efectos de las inestabilidades transversales en la orientación de las moléculas del cristal líquido inducidas por un haz Gaussiano con un diámetro menor al espesor de la muestra. Bajo estas condiciones, se genera un gradiente transversal en la orientación de la dirección promedio de alineación de las moléculas. Esto trae como consecuencia la aparición de regiones de máxima intensidad o manchas (Spots) en el patrón de difracción no lineal debido a un efecto de auto-retroalimentación (Self-Feedback). Las manchas aparecen a una intensidad bien definida del campo óptico y es posible, a partir de las mediciones realizadas en el patrón de difracción experimental, obtener un vector de onda característico asociado a la inestabilidad transversal. Este fenómeno pone de manifiesto la respuesta no local del medio. Adicionalmente, se propone un modelo que toma en cuenta los efectos de la inestabilidad transversal y que predice tanto la intensidad crítica del haz cuando se forma la inestabilidad y el vector de onda asociado. Los resultados obtenidos entre las mediciones experimentales y el modelo son satisfactorios. El modelo puede ser mejorado para describir modos superiores estables que aparecen a intensidades mayores. Actualmente el artículo

---

<sup>3</sup>Para estos propósitos celdas gruesas son aquellas en las que el espesor de la muestra es mayor que el diámetro del haz

respectivo se encuentra en proceso de discusión.

Cabe señalar que en los capítulos hasta ahora mencionados el patrón de difracción permanece estacionario. Sin embargo, al estudiar los sistemas dopados por tintas, se encontró que la aplicación simultánea de un campo óptico y un campo eléctrico de baja frecuencia produce diversos regímenes dinámicos que se manifiestan en el patrón de difracción. Esto es, aparecen estructuras superpuestas al patrón de difracción que pueden estar girando, al parecer, periódicamente. Si bien la existencia de regímenes dinámicos ha sido reportada desde mediados de los 80's [78],[77],[81], hasta donde se tiene conocimiento la existencia de los regímenes que se describen en el capítulo 5 no ha sido reportada en la literatura. La observación al parecer sólo ocurre en celdas de cristal líquido dopadas con tinta. Con ellas se observó que al sobrepasar un voltaje umbral del campo eléctrico de baja frecuencia, aparece una estructura en forma de aspas que gira a una velocidad constante y con una frecuencia muy por abajo de las frecuencias involucradas en el campo óptico y en el campo alterno. A medida que el voltaje se incrementa, diversos regímenes dinámicos aparecen. Incluso, es posible que a altos voltajes el comportamiento de las estructuras dinámicas en el patrón de difracción no lineal pueda ser caótico.

Para el caso específico del régimen de rotación estable, se observó que al mantener la potencia fija del haz, la rotación estable existe sólo en un cierto rango de frecuencias y voltajes del campo alterno. Se obtuvo experimentalmente un diagrama de fases dinámicas en el espacio de los parámetros de control (voltaje y frecuencia del campo AC), así como la dependencia del voltaje y la potencia del haz empleado para un frecuencia constante. Además, se propuso un modelo para describir el régimen de rotación estable que toma en cuenta tanto los efectos reorientacionales como los efectos térmicos. El modelo interpreta la rotación de la estructura superpuesta al patrón de difracción como un solitón reorientacional (Kink), en donde se generan dos dominios en una región anular para la cual los efectos del campo óptico y del campo alterno son comparables. La aberración o la estructura que se forma es consecuencia de la existencia de estos dominios y la rotación se interpreta como el movimiento de las paredes entre estos dos dominios. El modelo reproduce la frecuencia de rotación de los dominios y, además, proporciona una estructura similar a la observada experimentalmente. A pesar de que en el modelo se utilizan diversas suposiciones que lo simplifican, tiene la gran virtud de describir en forma analítica un fenómeno altamente no lineal. Actualmente el artículo correspondiente ha sido enviado para su publicación.

Sin embargo, este problema debe ser estudiado con mayor profundidad tanto experimentalmente como teóricamente y los resultados aquí obtenidos son un primer paso en la comprensión de este complicado fenómeno.

Debe mencionarse que para poder entender los sistemas con los que se trabajó en esta tesis, es necesario dar una introducción general a los cristales líquidos. Su composición química, las características físicas de las diversas fases que existen, los formalismos teóricos que se emplean para describirlos y los fenómenos básicos asociados a la interacción con campos ópticos, eléctricos y térmicos. Toda esta información se resume en el Capítulo 1 de este trabajo.

Finalmente, si bien el tema de fenómenos no lineales en cristales líquidos es muy amplio, la metodología empleada en este trabajo permitió tocar fenómenos que ocurren a diversos niveles de interacción entre el cristal líquido y el campo óptico. Como se discutirá a lo largo de esta tesis, los capítulos están interrelacionados. Así, el Capítulo 1 proporciona una visión general de los cristales líquidos, el Capítulo 2 permite entender la propagación del haz en el régimen lineal que es básica para la comprensión de los regímenes no lineales de los capítulos posteriores. En el Capítulo 3 se trabaja a intensidades ópticas tales que la respuesta no lineal del medio está en el régimen de interacción débil, en donde los cambios de fase no lineales inducidos por el haz son menores a  $\pi$ . Aquí, se determina el factor de amplificación necesario para el modelo del Capítulo 5. En el Capítulo 4 la interacción entre el cristal líquido y el haz es más intensa, por lo que se cae en el régimen de interacción fuerte. Esto además, nos permite entender la formación de estructuras en el patrón de difracción, que si bien, no son similares a las estructuras dinámicas discutidas en el Capítulo 5, permiten tener una idea más clara de los fenómenos ahí discutidos. Además, en forma independiente el material de los capítulos 3,4 y 5 es novedoso ya que los fenómenos discutidos no han sido reportados en la literatura.

Cabe hacer mención, que a lo largo de esta investigación la infraestructura experimental era prácticamente nula, contando sólo con el espacio físico (laboratorio). Por esta razón fue necesario crear la infraestructura necesaria para poder llevar a cabo varios de los experimentos aquí discutidos. Se establecieron las técnicas de Z-Scan e Intensity Scan, así como técnicas para la preparación de muestras líquido cristalinas.

# Capítulo 1

## Propiedades Físicas de Cristales Líquidos

Para tener una mejor comprensión del tipo de sistemas empleados en este trabajo, en este capítulo se describen las características generales de los cristales líquidos y sus propiedades físico-químicas. En particular, se hace énfasis en la fase nemática y sus propiedades térmicas, dieléctricas y ópticas. Por otro lado, se discute el formalismo macroscópico empleado para describir las ecuaciones dinámicas del cristal líquido cuando está sujeto a la interacción de diversos campos y se hace un breve resumen de las características principales de la interacción de los cristales líquidos con campo ópticos al ser dopados con tintas dicroicas.

### 1.1. Cristales líquidos termotrópicos

Los cristales líquidos o *compuestos mesogénicos* son sustancia orgánicas constituidos por moléculas altamente anisotrópicas que presentan fases termodinámicas intermedias entre el estado sólido y el líquido isotrópico. Estas fases intermedias son conocidas como *mesofases* o *fases líquido-cristalinas*.

Así, en los compuestos mesogénicos la transición del estado sólido al estado líquido pasa por una o más fases termodinámicas bien diferenciadas entre sí. Estas presentan orden orientacional, así como diversos grados de orden posicional que dependerá de las características químicas de las moléculas [1],[2],[3],[4],[5],[6],[7],[8].

Las propiedades mecánicas de estas mesofases son semejantes a las de un

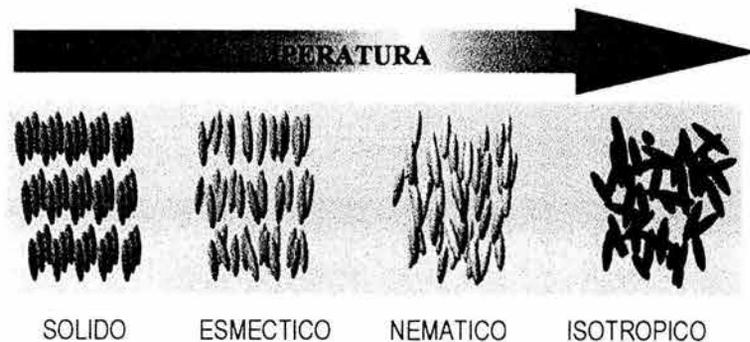


Figura 1.1: Mesofases típicas de un cristal líquido termotrópico.

líquido convencional debido a que los centros de masa de las moléculas no están fijos espacialmente. Estas sustancias fluyen, aunque su fluidez dependerá del grado de orden posicional que presente cada mesofase.

Por otro lado, al existir orden orientacional de largo alcance, presentan propiedades anisotrópicas semejantes a aquellas de cristales sólidos, como la anisotropía en la constante dieléctrica y la susceptibilidad magnética, manifestándose principalmente en las propiedades ópticas, por ejemplo, su birrefringencia [9],[10],[11].

### 1.1.1. Mesofases termotrópicas

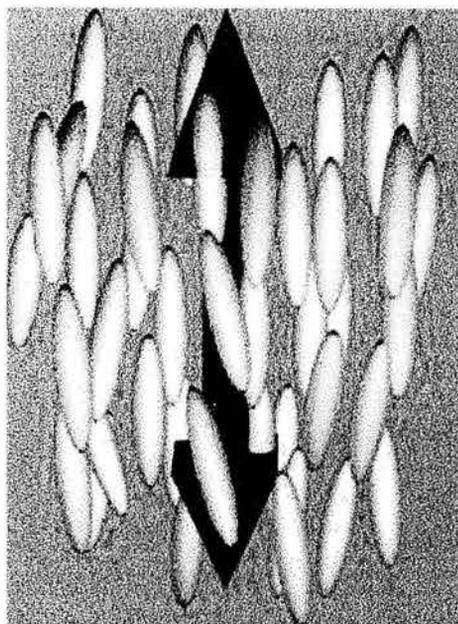
Existen dos grupos principales de cristales líquidos que se caracterizan por los parámetros a través de los cuales se inducen las transiciones de una fase a otra. Estos son:

*Cristales líquidos liotrópicos*, formados por moléculas de alto peso molecular, donde la transición se induce por cambios en la concentración p. ej. compuestos anfifílicos.

*Cristales líquidos termotrópicos*, constituidos por moléculas de bajo peso molecular y cuya transición se efectúa mediante cambios en la temperatura.

A su vez los cristales líquidos termotrópicos se clasifican estructuralmente [1] en tres mesofases principales: nemáticos, colestéricos y esmécticos (figura 1.1).

*Nemáticos*. Esta fase es la que se estudia en este trabajo y se caracteriza por presentar un orden posicional de corto alcance que les permite fluir como



## EJE OPTICO

Figura 1.2: Fase nemática. La flecha indica la orientación promedio  $\vec{n}$  (eje óptico)

un líquido convencional y, por otro lado, presentan un orden orientacional de largo alcance como un sólido cristalino. Esto es, el eje largo de las moléculas se encuentra orientado a lo largo de una dirección promedio, fijando una dirección macroscópica preferencial, caracterizada por un vector unitario,  $\vec{n}$ , denominado campo director. La polarización a largo  $\vec{n}$  es nula, debido a que el número de moléculas con momento dipolar en una dirección es igual al número de moléculas con momento dipolar en la dirección opuesta, por lo que a nivel macroscópico los estados  $\vec{n}$  y  $-\vec{n}$  son indistinguibles. Esta dirección de orientación macroscópica tiene como consecuencia que el medio tenga las propiedades ópticas de un medio uniaxial con eje óptico a lo largo de  $\vec{n}$ , figura 1.2.

La estructura química general de las moléculas típicas que presentan esta fase y que son empleadas en este trabajo se muestra en la figura 1.3. Sus dimensiones típicas son de  $20 \text{ \AA} \times 5 \text{ \AA}$ . Básicamente, están constituidas por

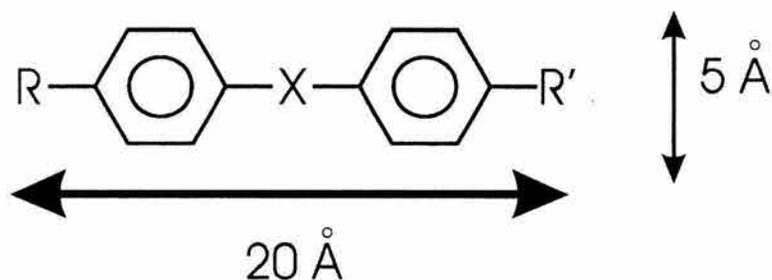


Figura 1.3: Estructura típica general de un nematogeno y sus dimensiones típicas

estructuras cíclicas como anillos benzénicos o heterocíclicas, unidos por una estructura rígida,  $-X-$  como puentes de hidrógeno y dos cadenas alifáticas  $R$  y  $R'$ . Dependiendo del número de grupos que cada cadena terminal  $R$ ,  $R'$ , contenga, se dará lugar a diferentes tipos de mesofases. Por ejemplo, si las cadenas están constituidas por un grupo simple (cadenas "cortas"), entonces las mesofases se caracterizarán por presentar un grado menor de orden posicional (fase nemática). Conforme la cadena contenga un número mayor de componentes (cadenas "largas"), se dará lugar a mesofases posicionalmente más ordenadas (esméticas), pasando por sustancias con cadenas con un número intermedio de componentes y que presenten ambos tipos de mesofases (esmética y nemática) [1].

En general es posible encontrar mezclas de diferentes mesofases puras con el fin de cambiar los rangos de temperatura de las mesofases o bien, para alterar diversas propiedades físicas como la constantes dieléctrica, la viscosidad, los índices de refracción y las anisotropías y así es posible "mejorar" el sistema líquido cristalino para una aplicación específica. Este es el caso del *E7* que es una mezcla de los 4 nematógenos que se ilustran en la figura 1.4. Las propiedades físicas resultantes en general difieren de las correspondientes a sus elementos constituyentes.

*Colestéricos.* La mesofase colestérica es un caso particular de la fase nemática formada por moléculas quirales, en las que existe un número mayor de moléculas izquierdas o derechas. El orden orientacional se preserva, pero ahora,  $\vec{n}$  varía espacialmente de tal forma que adquiere una estructura helicoidal, figura 1.5.

Para esta conformación cada plano es perpendicular al eje de la hélice

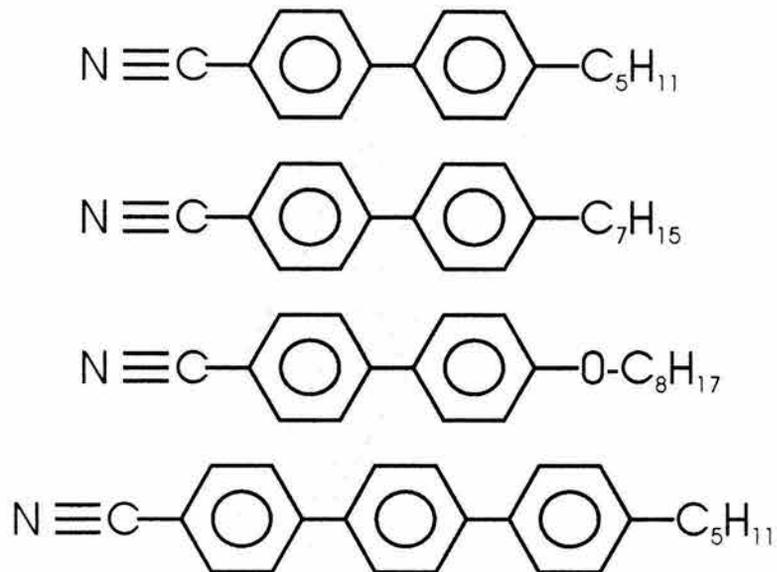


Figura 1.4: Estructura molecular de los cuatro constituyentes del cristal líquido *E7* (EM Chemicals)

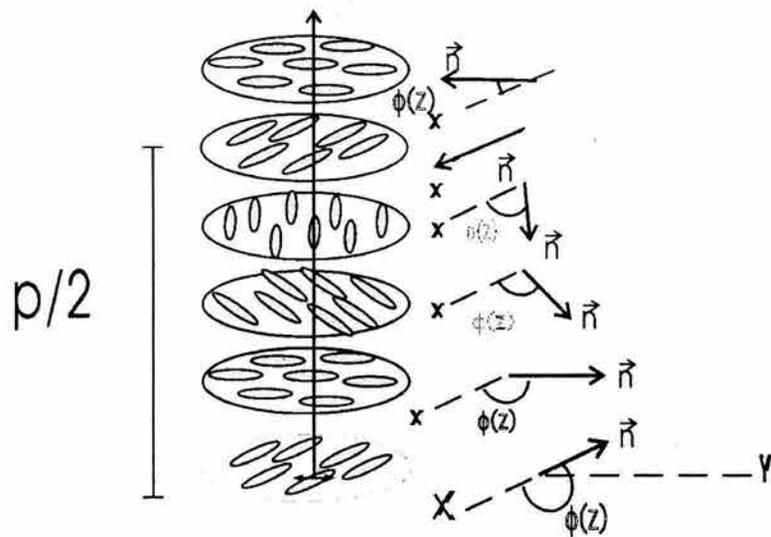


Figura 1.5: Esquema de las fase colestérica.  $p$  denota el paso de la hélice o "pitch".

y las moléculas presentan el mismo orden orientacional y posicional que la fase nemática, pero la dirección preferencial rota ligeramente en los planos adyacentes. Entonces, el vector director  $\vec{n}$  puede ser descrito en términos del ángulo de rotación  $\phi$  que es función de la distancia sobre el eje de la hélice. Si se toma el eje de la hélice a lo largo del eje z, entonces

$$n_x = \cos\phi, n_y = \sin\phi, n_z = 0, \text{ con } \phi = tz + cte.$$

La estructura es periódica a lo largo del eje de la hélice. Si  $p$  es la distancia en la que  $\vec{n}$  describe una rotación completa, entonces el período es  $\frac{p}{2}$ , debido a que los estados  $\vec{n}$  y  $-\vec{n}$  son equivalentes e indistinguibles. A  $p$  se le conoce como el *paso* de la hélice.

La estructura helicoidal da lugar a fenómenos ópticos bastante interesantes. Por ejemplo, la gigantesca actividad óptica<sup>1</sup>, el cambio del paso o pitch por la acción de la temperatura o presión y que da origen a cambios en la textura o coloración del material [8]. Recientemente se ha encontrado que la banda del espectro de reflexión asociado a estos materiales posee características que hace posible utilizarlos para producir radiación láser [12],[13]

*Esmécticos.* Esta mesofase es la más ordenada de todas. Se caracteriza por presentar al menos orden posicional en una dimensión, por lo que las moléculas forman capas bidimensionales que pueden deslizarse una sobre la otra y dentro de las cuales el orden posicional de las moléculas puede ser nulo como en el caso de los nemáticos (fase a y c) o inclusive pueden ordenarse en estructuras hexagonales (fase b).

El espaciamiento  $d$  entre cada capa está bien definido y puede obtenerse a partir del espectro de difracción de rayos X. La dirección de orientación de las moléculas puede ser perpendicular al plano de las capas o en su defecto formar un cierto ángulo con las capas. En el primer caso se tiene un compuesto uniaxial (fase a) y para el segundo caso se tendrá un medio con características de medio biaxial (fase c), aunque la desviación respecto a la uniaxialidad es, en general, pequeña, figura 1.6.

---

<sup>1</sup>El poder rotatorio de algunas fases colestéricas puede ser 3 órdenes de magnitud mayor que el de las sustancias con actividad óptica ordinaria (glucosa).

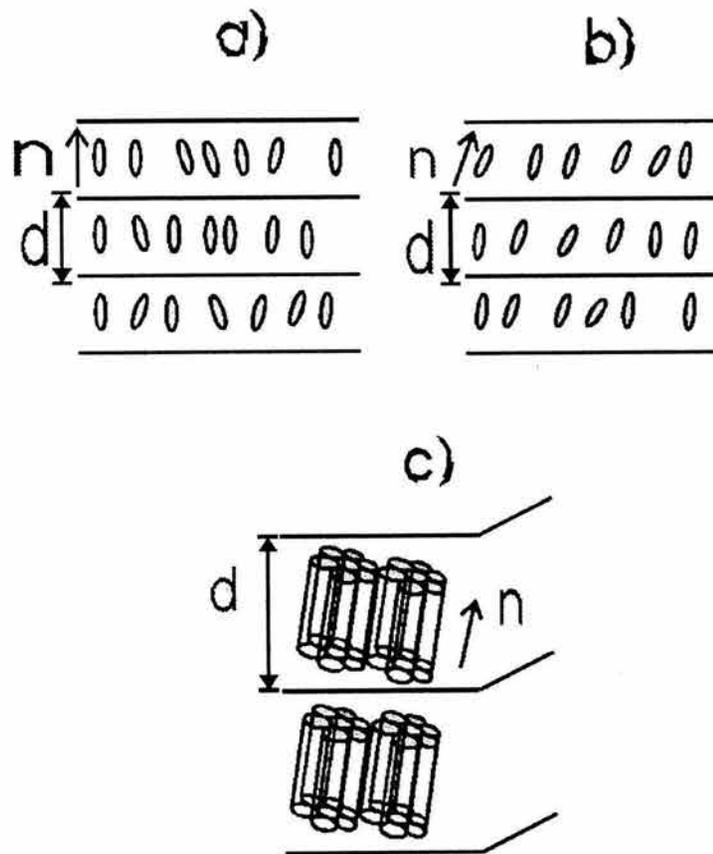


Figura 1.6: Esquema de las fases esmécticas. a) esméctico A en donde  $\vec{n}$  es perpendicular a las capas. b) esméctico C. c) esméctico B

## 1.2. Parámetro de orden

Como se mencionó más arriba, en la fase nemática las moléculas del cristal líquido tienden a orientarse u ordenarse en una dirección promedio descrita por el campo director  $\vec{n}$ . Para cuantificar el orden orientacional se define un parámetro de orden como

$$S \equiv \frac{1}{2} \langle 3 \cos^2 \psi - 1 \rangle, \quad (1.1)$$

donde  $\psi$  denota el ángulo entre el eje largo de las moléculas y el campo director  $\vec{n}$  y  $\langle \dots \rangle$  denota un promedio sobre todas las orientaciones posibles.

Esta definición sólo será válida y suficiente para describir sistemas líquido cristalinos compuestos por moléculas que posean simetría cilíndrica o rotacional alrededor de su eje largo.  $S$  no depende de la orientación local de  $\vec{n}$ , pero sí de parámetros termodinámicos y, principalmente, de la temperatura absoluta,  $T$ .

La teoría de campo medio de Maier y Saupe [3] describe las variaciones de este parámetro cerca de la temperatura de transición nemático-isotrópico. Este formalismo sale fuera del alcance de este trabajo. Sin embargo, es conveniente mencionar que diversas propiedades físicas del medio como son; constantes dieléctricas, elásticas, índices de refracción, etc., dependen fuertemente de la temperatura. Esta relación puede expresarse a través del parámetro de orden. Más aún, es conocido experimentalmente [10] que cerca de la temperatura de transición nemático-isotrópico, los cristales líquidos se vuelven altamente susceptibles a la acción de los campos externos y su respuesta tiende a *alentarse* considerablemente. Esta consideración se debe tomar en cuenta en los sistemas aquí discutidos ya que los efectos térmicos y su influencia en las propiedades ópticas y dieléctricas de los sistemas empleados no es despreciable.

Por otro lado, es posible definir a su vez un parámetro de orden tensorial macroscópico en términos de las propiedades anisotrópicas del cristal líquido, como el tensor de susceptibilidad magnética,

$$\chi_{ij} = \chi_{\perp} \delta_{ij} + \Delta\chi n_i n_j, \quad (1.2)$$

donde  $\Delta\chi = \chi_{\parallel} - \chi_{\perp}$  es la anisotropía magnética,  $\chi_{\parallel}$ ,  $\chi_{\perp}$  son las susceptibilidades magnéticas paralela y perpendicular al eje de la molécula respectivamente y  $n_i$ , son las componentes de  $\vec{n}$ . El parámetro de orden tensorial

se construye utilizando la parte anisotrópica del tensor de susceptibilidad magnética y puede escribirse como

$$Q_{ij} = S \{1/2(3n_i n_j - \delta_{ij})\}. \quad (1.3)$$

Así,  $Q_{ij}$  describirá el grado de orden de la muestra con respecto a un sistema de referencia fijo en el laboratorio. La orientación molecular está descrita por  $S$  y la orientación del director se incluye en el producto  $n_i n_j$ .

$Q_{ij}$  también puede ser construido con otras propiedades anisotrópicas del medio como el tensor dieléctrico o alguna otra.

### 1.3. Descripción hidrodinámica

En una muestra macroscópica de cristal líquido, en general,  $\vec{n}$  no es constante, ya que existen agentes externos como las fronteras que confinan al nemático, o bien campos ópticos o eléctricos que actúan sobre él produciendo variaciones espaciales de  $\vec{n}$ , que pueden ser representadas a través de su gradiente,  $|\nabla \vec{n}|$ . Estas ocurren a escalas espaciales que son muy grandes comparadas con las dimensiones moleculares,  $a \sim 20\text{Å}$ , por lo que es posible describir al sistema considerándolo como un medio continuo en donde se ignoren los detalles de la estructura molecular. Así, las propiedades colectivas del cristal líquido pueden ser descritas por una teoría del continuo en donde las propiedades macroscópicas varían en función de la orientación del director  $\vec{n}(\vec{r})$ .

El marco teórico más adecuado en este trabajo para describir la configuración del campo director cuando agentes externos interactúan con el cristal líquido, es a través de la termodinámica irreversible lineal (TIL) [3]. Esta considera que los procesos dinámicos que ocurren en los cristales líquidos son procesos irreversibles. Este será el punto de vista que se adopte a lo largo del presente trabajo.

Bajo este marco, se considera que un elemento de volumen contiene un número muy grande de moléculas para poder llevar a cabo un promedio temporal y espacial sobre todos los elementos que representen las variables macroscópicas de ese elemento de volumen en ese punto y a un tiempo dado. Sin embargo, el elemento de volumen debe ser mucho menor que las escalas macroscópicas típicas involucradas, por ejemplo, el ancho de la celda. La idea atrás de este "límite 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 comparados con el 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 no relajan en un tiempo finito en el límite espacialmente homogéneo. Así, el estado hidrodinámico del sistema está descrito mediante diversas variable hidrodinámicas a saber, la densidad de masa,  $\rho(\vec{r}, t)$ , la entropía específica,  $\sigma(\vec{r}, t)$ , la densidad de momento,  $\vec{j}(\vec{r}, t)$ , el campo de velocidades,  $\vec{v}(\vec{r}, t)$  y particularmente, para el cristal líquido, el campo director,  $\vec{n}(\vec{r}, t)$ .

Como una primera aproximación es posible considerar que los procesos de deformación por las fronteras o por agentes externos como los campos ópticos son isotérmicos. Así, bajo la hipótesis de equilibrio local es posible construir un potencial termodinámico como la energía libre de Helmholtz a partir del cual es posible extraer la información sobre la configuración del sistema minimizando la densidad de energía libre de este potencial por metodos variacionales para encontrar las ecuaciones de movimiento para las variables hidrodinámicas relevantes.

## Energía de distorsión elástica

La energía de distorsión del medio está descrita por la energía de Frank [3], que se construye en términos de los tres tipos de deformaciones elásticas principales, figura 1.7.

A segundo orden en las derivadas espaciales, la densidad de energía elástica puede escribirse como

$$f_{el} = \frac{1}{2}K_1 (\nabla \cdot \vec{n})^2 + \frac{1}{2}K_2 (\vec{n} \cdot \nabla \times \vec{n})^2 + \frac{1}{2}K_3 (\vec{n} \times \nabla \times \vec{n})^2, \quad (1.4)$$

en donde las constantes elásticas  $K_1$ ,  $K_2$  y  $K_3$  están asociadas a las defomaciones "Splay"(desplegamiento), "Twist"(torsión) y "Bend"(flexión), respectivamente. Las constantes elásticas son positivas y dependen de la temperatura del medio. Su magnitud en general es del orden de  $10^{-11}\text{N}$ .

Dado que las constantes elásticas son todas del mismo orden de magnitud, en muchos casos la expresión (1.4) se simplifica si se considera que las constantes elásticas son iguales,

$$K_1 = K_2 = K_3 = K. \quad (1.5)$$

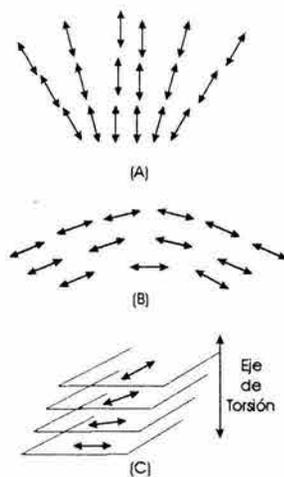


Figura 1.7: Deformaciones elásticas principales en un cristal líquido nemático. A) desplegamiento (splay) B) flexión (bend) y C) torsión (twist).

Esto permite reescribir a (1.4) como,

$$f_{el} = \frac{1}{2} K \left[ (\nabla \cdot \vec{n})^2 + (\nabla \times \vec{n})^2 \right], \quad (1.6)$$

simplificando considerablemente la expresión.

### 1.3.1. Condiciones de Frontera

Usualmente, el cristal líquido está confinado entre dos superficies sólidas que imponen una dirección preferencial de orientación en las fronteras. Esta dirección depende del tipo de interacción entre el cristal líquido y las moléculas del sustrato.

Es posible controlar esta dirección por medio de un tratamiento químico de la superficie de los sustratos que consiste en depositar una película delgada de surfactante, como lecitina o algún poliamido [9].

El surfactante interactúa con las moléculas del cristal líquido de tal forma que induce una alineación paralela o perpendicular a la celda, aunque también es posible formar un pequeño ángulo de orientación con respecto a la normal al sustrato. Las alineaciones usuales impuesto por la condiciones de frontera son: Homeotrópico, en donde  $\vec{n}$  es normal a la superficie de ambos sustratos, figura 1.8-A. Planar u Homogénea, para el cual  $\vec{n}$  es tangencial a

el sustrato, figura 1.8-B. La configuración híbrida, que es una combinación de las dos anteriores, i.e  $\vec{n}$  es normal a uno de los sustratos y tangencial al otro, figura 1.8-C. También existen alineación de torsión o "Twist", en donde  $\vec{n}$  es tangencial a ambos sustratos pero la orientación en uno de ellos es perpendicular a la orientación en el otro. El efecto se refuerza al agregar una pequeña cantidad de un material quiral. Así, el director cambia de dirección a lo largo de la celda, pero siempre se encuentra contenido en planos paralelos al sustrato. Este tipo de alineación es el usual en aplicaciones relacionadas con displays, figura 1.8-D [5].

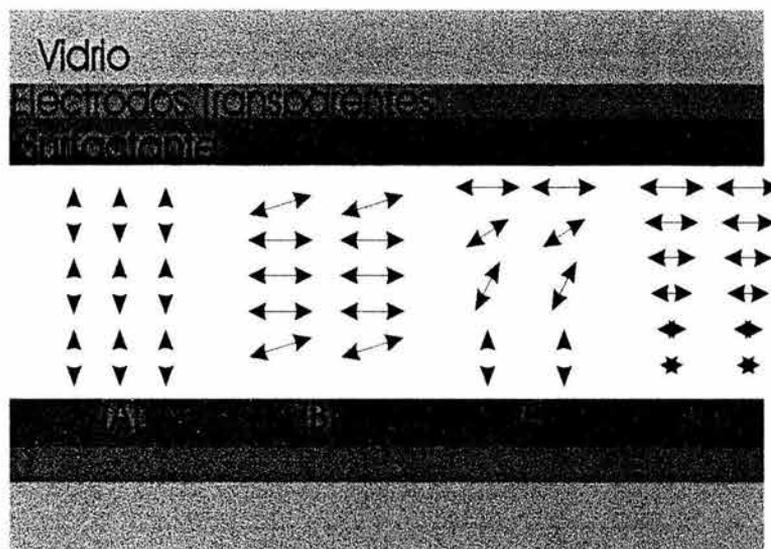


Figura 1.8: Configuraciones usuales en celdas nemáticas. Las diferentes capas del sustrato representan los componente usuales de una celda de cristal líquido típica. Los surfactantes pueden producir la configuración homeotrópica, A); Planar, B); Híbrida, C); o de Twist con ayuda de un pequeña cantidad de un material quiral. D)

Si la energía de interacción entre el sustrato y el cristal líquido es mayor que la energía de interacción en el bulto, entonces la orientación del cristal líquido en las fronteras no se ve modificada por la acción de otros campos externos como los ópticos o los eléctricos. A este tipo de condiciones de frontera se le denomina de anclaje fuerte.

### 1.3.2. Propiedades ópticas de cristales líquidos

Al existir una dirección preferencial de orientación a lo largo de  $\vec{n}$ , el medio presenta propiedades de un medio anisotrópico uniaxial. La permitividad dieléctrica,  $\overleftrightarrow{\epsilon}$  se representa a través de un tensor que depende de la frecuencia del campo aplicado, sea óptico o eléctrico. En general  $\overleftrightarrow{\epsilon}$  puede escribirse como

$$\epsilon_{ij} = \epsilon_{\perp} \delta_{ij} + \epsilon_a n_i n_j, \quad (1.7)$$

en donde  $\epsilon_{\perp}$  y  $\epsilon_{\parallel}$  son las constantes dieléctrica perpendicular y paralela al director,  $\epsilon_a = \epsilon_{\parallel} - \epsilon_{\perp}$ , es la anisotropía dieléctrica. Si  $\epsilon_a$  es positiva se dice que el medio es uniaxial positivo. En general como  $n_i$  es una función de punto, las componentes del tensor dieléctrico serán también funciones de punto.

Como es bien conocido, en un medio uniaxial, una onda se propaga con dos velocidades ó índices de refracción diferentes [14]. Si la polarización del haz es tal que su componente eléctrica es perpendicular al eje óptico (onda ordinaria) entonces el índice de refracción está dado por

$$n = n_o = \sqrt{\epsilon_{\perp}} \quad (1.8)$$

Por otra parte, si la polarización y el eje óptico están en el mismo plano se puede demostrar que el índice de refracción depende del ángulo que forman el eje óptico,  $\vec{n}$ , y el vector de onda,  $\vec{k}$ , asociado al campo electromagnético [15]. esto es,

$$n = \frac{n_o n_e}{\sqrt{n_e^2 \cos^2 \alpha + n_o^2 \sin^2 \alpha}}, \quad (1.9)$$

donde  $n_e = \sqrt{\epsilon_{\parallel}}$  y  $\alpha$  es el ángulo entre los vectores  $\vec{k}$  y  $\vec{n}$ .

Debido a que las propiedades macroscópicas de los cristales líquidos en la fase nemática dependen de un parámetro de orden que es función de la temperatura, necesariamente  $n_o$  y  $n_e$  depende fuertemente de la temperatura como se muestra en la figura, 1.9.

### 1.3.3. Interacción con un campo óptico

Como se mencionó anteriormente, es posible modificar la configuración orientacional del sistema mediante la aplicación de campos externos. En particular, el campo óptico induce una torca,  $\vec{\Gamma}_e$ , en el cristal líquido que tiende a alinear al campo director a lo largo de la componente eléctrica del campo, si  $\epsilon_a$  es positiva, o perpendicular a él si  $\epsilon_a$  es negativa. La expresión para esta

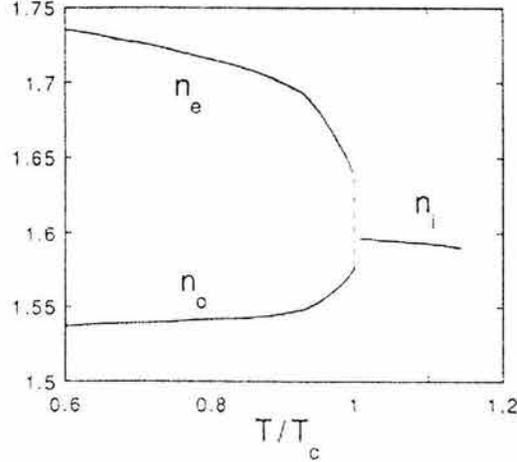


Figura 1.9: Dependencia de los índices de refracción para un nemático típico como función de la temperatura.  $n_e$  denota el índice extraordinario y  $n_o$  denota al ordinario. En este caso la birefringencia,  $n_e - n_o$  es positiva.  $T_c$  denota la temperatura de transición nemático-isotrópica.

torca puede obtenerse a través de la densidad de energía asociada al campo eléctrico [11],[17]

$$u_e = -\frac{\epsilon_a}{16\pi}(\vec{n} \cdot \vec{E})^2, \quad (1.10)$$

por lo que la torca se expresa entonces como;

$$\vec{\Gamma}_e = \frac{\epsilon_a}{8\pi}(\vec{n} \cdot \vec{E})(\vec{n} \times \vec{E}). \quad (1.11)$$

Cuando un cristal líquido en una cierta configuración inicial interacciona con un haz óptico o con un campo eléctrico o magnético, se establece una competencia entre las torcas elásticas y las torcas debidas a los campos externos. Para el caso particular de una geometría tal que la polarización del haz es perpendicular al campo director, la reorientación del director no es inmediata, i.e., la amplitud del campo eléctrico tiene que sobrepasar un valor umbral para que su torca sea mayor a las torcas elásticas y se produzca la reorientación en una dirección paralela a la polarización del haz. Sin embargo, si el campo eléctrico y el campo director forman un cierto ángulo, la



Figura 1.10: Estructura química de la tinta R4

reorientación ocurre inmediatamente por lo que los efectos de umbral desaparecen. A medida que la intensidad del haz se incrementa, las moléculas del cristal líquido se reorientan cada vez más a lo largo de la componente eléctrica del campo aplicado hasta que se alcanza la saturación [11], [16].

## 1.4. Cristales líquidos dopados

Existen diversos tipos de tintas que son susceptibles de ser disueltas en un cristal líquido. Estas tintas por lo general son anisotrópicas y dicróicas, esto es, la absorción a lo largo del eje de la molécula y perpendicular a la molécula son diferentes [9]. Si la absorción a largo del eje molecular es mayor a la absorción a lo largo de la dirección perpendicular, el dicroísmo es positivo. Las tintas dicróicas se dividen en azóicas y en antroquinonas. Las primeras contienen uno o más enlaces de la forma  $-N=N-$  y su estructura química usualmente está formada por una sola cadena lineal. En cambio, las antroquinonas contienen al compuesto carbonílico antroquinona formado por tres anillos de benzeno enlazados linealmente que incluyendo un par de oxígenos con enlaces dobles en las direcciones perpendiculares, ver figura 1.10.

Cuando la tinta se mezcla con un cristal líquido sus moléculas tienden a alinearse de tal forma que su eje largo se orienta a largo del director, por lo que en general las mezclas presenta un dicroísmo positivo [9].

Una consecuencia directa de la absorción de luz es el incremento en la temperatura del cristal líquido que puede inducir diversos efectos termo-ópticos [11], [17]. Por otro lado, existen fenómenos más sofisticados relacionados con la formación de estados metaestables durante el proceso de absorción que pueden afectar las propiedades del cristal líquido en diversas formas. Así, las constantes ópticas serán diferentes para las moléculas en el estado excitado y en el estado metaestable. En el estado metaestable las moléculas interactúan con el cristal líquido en forma diferente a cuando están en el estado base. Esto modifica el comportamiento colectivo del cristal líquido y provoca

grandes efectos ópticos .

Para el caso particular de tintas del tipo antroquinona, la distribución de las moléculas en el estado excitado se desvía de la configuración en equilibrio. En este caso, si la luz es polarizada, la probabilidad de una transición electrónica es proporcional a  $\cos^2 \psi$ , donde  $\psi$  es el ángulo entre el vector de campo eléctrico del haz y el eje largo de las moléculas de tinta. La probabilidad orientacional selectiva de excitación rompe la simetría axial de la molécula alrededor del director. Además, si el tiempo de vida del estado excitado y el tiempo de relajación rotacional son del mismo orden, entonces el movimiento Browniano reestablece la simetría axial sólo parcialmente [18].

Se ha demostrado que la distribución asimétrica de las moléculas de tinta puede contribuir grandemente al proceso de reorientación óptica cuando la interacción entre la tinta y el cristal líquido es diferente en el estado base y en el estado excitado.

### 1.4.1. Efecto Jánossy

La fuerte influencia del dopaje con tinta en el proceso de reorientación fue observado por Jánossy en celdas dopadas de cristal líquido con tintas del tipo antroquinona [19]. Jánossy observó que el umbral para la transición de Fredericksz óptica disminuyó en dos órdenes de magnitud cuando el dopaje es menor al 1% del peso total de la muestra. Se observó, además, que los parámetros básicos del material (constantes elásticas, índices de refracción) no son afectados drásticamente por la presencia de la tinta. Con base a diversas observaciones [20],[21],[22],[23],[24] se estableció que el efecto de los dopantes puede ser descrito agregando un nuevo término,  $\vec{\Gamma}_{dye}$ , a la expresión de la torca óptica (1.11). La expresión para  $\vec{\Gamma}_{dye}$  es similar a (1.11), con excepción de que el factor asociado a la birrefringencia es reemplazado por un nuevo coeficiente  $\zeta$

$$\vec{\Gamma}_{dye} = \frac{\zeta}{8\pi} (\vec{n} \cdot \vec{E}) (\vec{n} \times \vec{E}). \quad (1.12)$$

$\zeta$  se anula cuando el material no está dopado y para una concentración baja de tinta debe ser proporcional a la concentración de tinta. Definimos el coeficiente molecular,  $\xi$  como una cantidad adimensional independiente de la sección transversal de absorción

$$\xi = \frac{\zeta}{\alpha\lambda}, \quad (1.13)$$

donde  $\bar{\alpha}$  es la absorción promedio,  $\bar{\alpha} = \frac{1}{3}(n_e\alpha_e + 2n_o\alpha_o)$ . Para un cristal líquido dado (huésped),  $\xi$  depende de la estructura química del dopante.

El factor de amplificación se define como  $\zeta/\varepsilon_a$ , donde  $\varepsilon_a$  es la anisotropía dieléctrica del huésped.

La técnica típica para medir el factor de amplificación es la de Z-Scan, que se discute en el Capítulo 3.

Cabe señalar que estas relaciones han sido obtenidos a través del experimento. Actualmente diversos grupos han sugerido distintos modelos para explicar estas relaciones fenomenológicas [22],[25],[27],[26] considerando los cambios conformacionales (paso del estado Cis a Trans) que sufren las moléculas de tinta cuando interaccionan con la luz. Sin embargo, hasta ahora la discusión continúa en pos de un modelo completamente satisfactorio que explique el origen de esta torca adicional.

## Capítulo 2

# Propagación Lineal de Haces en Celdas Híbridas: Estudios de Reflexión Total Interna (TIR)

### 2.1. Introducción

La técnica de reflexión total interna (TIR) es comunmente usada para medir una gran variedad de propiedades ópticas de cristales líquidos como los coeficientes de reflectividad, índices de refracción, ángulos de inclinación en las fronteras y la energía de interacción con diferentes substratos [28],[29], [30], [32]. TIR también puede ser usada para obtener información acerca de la distribución del campo director en flujos hidrodinámicos y las configuraciones durante la transición de Freedericksz [31], [33]. Sin embargo, a pesar de que la técnica TIR es conceptualmente fácil de entender y la precisión alcanzada es usualmente alta, su implementación experimental es algo complicada ya que requiere diversos instrumentos para controlar el ángulo de incidencia  $i$  del haz [34]. Aún más, la aplicación de la técnica de TIR para estudiar propiedades ópticas de las celdas nemáticas con una distribución inhomogénea del campo director no es común y su uso para determinar la reflectividad asociada con trayectorias del haz que se curvan dentro de la muestra es aún más escasa.

Estas mediciones son de interés ya que la configuración orientacional en las celdas híbridas puede ser caracterizada e identificada en términos del comportamiento de las curvas de reflectancia,  $R$  vs. ángulo de incidencia,  $i$  [35]. Así, si la configuración del cristal líquido es tal que la orientación de

las moléculas cambia continuamente de una placa de la celda a la otra, de tal forma que el índice de refracción sea mayor en la placa de entrada del haz y en la otra placa sea menor, la trayectoria que sigue un rayo cambia continuamente curvándose hasta alcanzar un punto de retorno en donde el rayo regrese al medio original. En este sentido, este fenómeno es similar a un efecto de espejismo.

A pesar del éxito en la aplicación de esta técnica, el origen físico de las curvas  $R$  vs.  $i$  no es claro, debido al hecho de que en el régimen de reflexión total interna, esto es, cuando el ángulo de incidencia es tal que la reflexión del haz óptico ocurre en un punto intermedio dentro de la celda, es de esperarse que si no hay absorción, la energía incidente se refleje completamente y por tanto las mediciones del coeficiente de reflectancia,  $R$  sean cercanas a 1. Pero las observaciones experimentales muestran que éste no es el caso. Si bien las bases físicas del mecanismo de propagación atrás de este problema están bien establecidas es necesario aplicar un modelo adecuado para poder entender el origen físico subyacente a los resultados de la técnica de *TIR*.

He aquí la principal motivación de este capítulo. Más específicamente, en la parte teórica, se utiliza un formalismo general desarrollado en trabajos previos del grupo de cristales líquidos de IF-UNAM para modelar la propagación de un haz Gaussiano en una celda híbrida en la aproximación del límite óptico y en el régimen de reflexión total interna [37],[38],[39],[40],[41]. Como se mostrará más abajo, este modelo permite calcular analíticamente el cambio de fase, las trayectorias y las curvas de reflectividad de un haz viajando con una polarización extraordinaria dentro de la muestra. El modelo es válido para ambos regímenes, lineal y no lineal, que serán definidos más adelante. Por otro lado, desde el punto de vista experimental se diseñó y se llevaron a cabo experimentos diferentes a aquellos reportados en la literatura para medir  $R$  vs  $i$  con el propósito de compararlos con nuestras predicciones teóricas. Todo esto, con el fin de tener una visión más amplia del fenómeno de propagación de haces en cristales líquidos.

Así, el objetivo de este capítulo es el de entender el comportamiento de la reflectancia en el caso límite en donde la trayectoria del haz se refleje dentro de la celda de cristal líquido. Para este fin se llevaron a cabo las respectivas mediciones experimentales en una celda híbrida, en donde se propone un método alternativo al propuesto en la ref [36] para determinar las curvas de reflectancia. En este caso, se diseñó un arreglo experimental que utiliza un elipsómetro comercial. Este arreglo permite, por un lado, una mejor manipulación de las celdas con cristal líquido, y por otro lado, no es necesario

un arreglo óptico tan elaborado como los reportados en la literatura. Si bien las mediciones que se realizaron no tienen la resolución de los trabajos de Warenghem y su grupo [36], si nos proporcionan una visión cualitativa más amplia atrás del fenómeno de reflexión total interna.

Por otro lado, se propone un modelo que explique el comportamiento de la reflectancia en el caso límite en donde el haz se refleje dentro de la celda de cristal líquido. A pesar de que existen métodos numéricos bien establecidos para obtener la transmitancia y reflectancia en celdas nemáticas [43],[44],[45], éstos no pueden ser empleados cuando las condiciones son tales que existen puntos de retorno asociados a la trayectoria del haz generados por el gradiente continuo de índice de refracción. Este es justamente el caso de interés para poder obtener algunas de las propiedades como la configuración de la celda o energías de anclaje en los substratos.

Así, como un primer paso para el entendimiento de la propagación de campos ópticos con interacción con el medio, se tomó el caso inicial de la propagación lineal de un campo óptico en un medio inhomogéneo y anisotrópico en donde la interacción entre el campo óptico y el cristal líquido es despreciable. Se atacó el problema del origen físico del comportamiento de la reflectancia en el régimen de reflexión total interna (TIR), pero haciendo una variante de este experimento y proponiendo un modelo que explique nuestras observaciones y otras realizadas previamente por otros grupos de investigación. Los resultados de nuestro estudio teórico-experimental fueron altamente satisfactorios, ya que nuestro modelo permite tener una mejor comprensión de este fenómeno y puede ayudar a mejorar las mediciones experimentales de reflectancia que se realicen en el futuro [42]. Como se verá posteriormente, el modelo predice la existencia de un fenómeno de tunaje que puede ser susceptible de ser usado en aplicaciones tecnológicas como son filtros sintonizables, valvulas ópticas y deflección del haz o "beam steering".

Para este fin el capítulo se organiza de la siguiente forma. En la sección 2.2. se discute el procedimiento experimental, la construcción de la celda y la metodología empleada para medir el coeficiente de reflectancia  $R$  como función del ángulo de incidencia del haz,  $i$ . En la sección 2.3. se discute el modelo empleado y el formalismo para calcular la configuración orientacional, las trayectorias de rayo y las curvas de reflectividad. Dentro de este mismo formalismo en la sección 2.4. se investiga y se estiman los efectos en las curvas de reflectancia de una posible fuga de energía a través de la celda por medio de un efecto túnel. En la sección 2.5. se hace la comparación entre los resultados teóricos, las mediciones experimentales y la simulación numérica

a través del método de Berreman [43]. Primero se verifica que las condiciones experimentales sean compatibles con las suposiciones de modelo y se muestra que hay una buena concordancia entre los puntos experimentales y las curvas teóricas. En la sección 2.6. se sugiere una posible interpretación del origen físico de las curvas de reflectividad obtenidas. Finalmente, en la sección 2.7. se dan las conclusiones, enfatizando las limitaciones y ventajas del modelo y de los resultados experimentales presentados.

## 2.2. Determinación experimental de las curvas de reflectividad

### 2.2.1. Mediciones de la reflectividad

Con el propósito de comprender el comportamiento de  $R$  vs  $i$  se realizaron experimentos similares a aquellos reportados en la referencia [36]. Estos experimentos no tienen la resolución de los resultados de Warenghem y, consiguientemente, no aportan información detallada en el espectro de TIR. Sin embargo, la técnica empleada aquí permite probar y estimar la importancia de los efectos de la razón del espesor de la muestra a la cintura del haz en el comportamiento de la curva de reflectividad. La técnica utilizada introduce dos elementos que facilitan el proceso de medición. Primero, las celdas se ensamblan usando dos placas planas paralelas de alto índice de refracción,  $N > n_e > n_o$ , de tal forma que pueden manipularse más fácilmente que los prismas empleados en la Ref. [36]. Un hemisferio del mismo índice de refracción que las placas de la celda, se acopla a ella por medio de un fluido refractométrico del mismo índice de refracción y, consecuentemente, diversas celdas pueden ser usadas con el mismo hemisferio. En segundo lugar, el sistema hemisferio-celda facilita el uso de un elipsómetro comercial para medir  $R$ , en lugar de usar un arreglo que requiere diversos instrumentos para dirigir el haz sobre la muestra. Pueden realizarse estudios de elipsometría sin modificar el arreglo experimental. La poca resolución que se tiene del ángulo de incidencia ( $\sim 1^\circ$ ), se debe principalmente a la limitación técnica de que el elipsómetro empleado sólo puede girar en pasos de  $5^\circ$ , sin embargo, mediante el uso de una escala adicional fue posible obtener pasos de  $1^\circ$ . Debe recalcar que la motivación principal de los experimentos propuestos es la de entender el origen físico de las curvas de reflectividad en una forma cualitativa.

### 2.2.2. Preparación de la celda

Las mediciones experimentales se llevaron a cabo en una celda de cristal líquido nemático *E7* (Merck) sin purificación alguna. La muestra se encontraba entre dos placas de vidrio recubiertas con una película delgada (50 nm) de óxido de estaño-indio, *ITO*. Las placas tienen un alto índice de refracción,  $N = 1.81 \pm 0.05$ , y su separación fue de  $l = 100$  micrones. La longitud total de la placas fue de  $L = 2.5$  mm.

Adicionalmente a la placa superior, se le aplicó una película delgada de lecitina por medio de la técnica de "spin coated", para producir una alineación homeotrópica (moléculas perpendiculares a la placa) mientras que la placa inferior se recubrió con una película de poliamido (Nissam Chemicals 3510) y posteriormente fue frotada manualmente para conseguir una alineación planar (moléculas paralelas a la placa). La uniformidad del alineamiento fue verificada directamente por observación en un microscopio de polarización.

Como se muestra en la figura 2.1, la celda fue acoplada a un hemisferio de alto índice de refracción,  $N_2 = 1,81$  con un diámetro de 2 cm, por medio de un fluido refractométrico con el mismo índice de refracción. Cabe señalar que la placa y el hemisferio poseen las dimensiones adecuadas, de tal forma que el centro del hemisferio se encuentra en la parte inferior de la superficie de la placa.

### 2.2.3. Arreglo experimental

El sistema hemisferio-celda se colocó sobre la plataforma de un elipsómetro comercial (Gaertner, Mod 116C L2W) como se muestra en la figura 2.2. El láser (L) empleado fue un He-Ne con longitud de onda,  $\lambda = 632.8$  nm. El haz atraviesa un retardador de un cuarto de longitud de onda (DP) para generar un haz con polarización circular. Un polarizador se inserta en la trayectoria del haz que polariza linealmente al haz. Los polarizadores (P) y (A) son prismas de calcita del tipo Glan-Thompson montados sobre un tambor que puede ser ajustado para escoger la polarización lineal deseada.

El haz incide sobre la muestra a un ángulo de incidencia  $i$ . La muestra se coloca sobre una plataforma, que puede ajustarse verticalmente de tal forma que la energía del haz reflejado (centro de la primera reflexión) es máxima cuando entra en la apertura del analizador, *AA*. Este ajuste fue hecho previamente a las mediciones, con la celda colocada sobre la platafor-

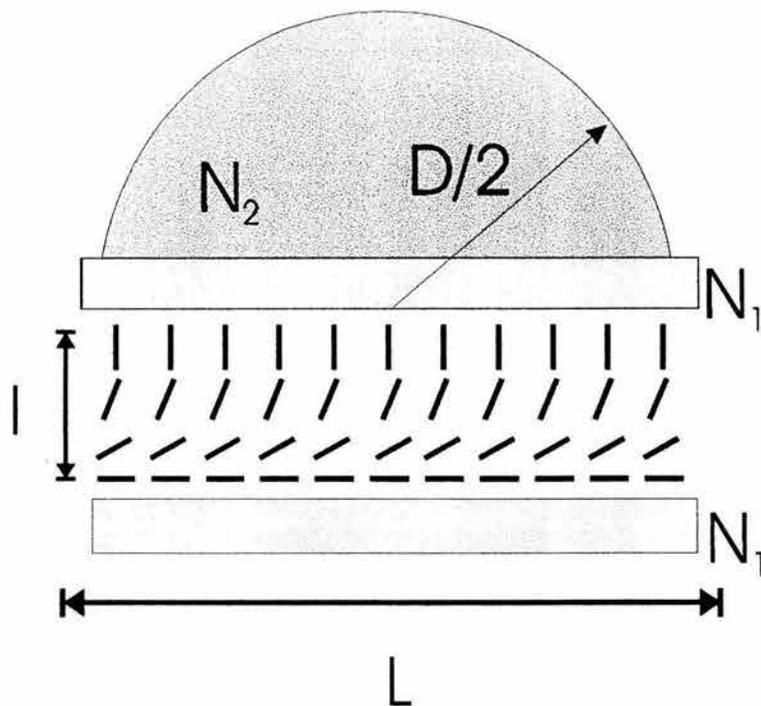


Figura 2.1: Esquema del sistema celda-hemisferio. Índice de refracción del hemisferio,  $N_1 = 1.81$ ; índice de refracción de las placas,  $N_2 = 1.81 \pm 0.005$ ; espesor  $l = 100 \mu m$ . La celda se llenó con el nemático *E7*. Un fluido refractométrico con índice de refracción de  $1.81 \pm 0.005$  se utilizó para acoplar la celda y el hemisferio.

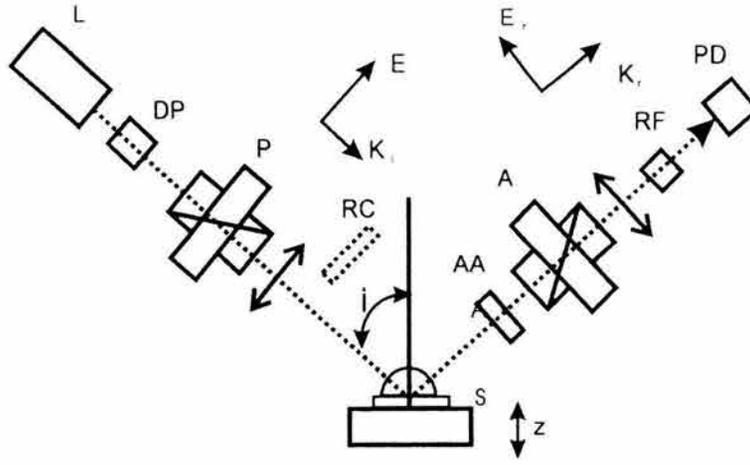


Figura 2.2: Arreglo experimental. El láser, *He-Ne* descansa sobre el brazo del elipsómetro, *EA*, *P* es el polarizador; *A* el analizador, *S*, es la muestra y *PD*, es el fotodetector. La polarización se escogió de tal forma que el campo eléctrico estuviera en el plano de incidencia. El ángulo  $i$  se puede cambiar moviendo manualmente el brazo *EA*.

ma, sin el hemisferio, con el fin de evitar efectos de divergencia en el haz introducidos por éste. Una vez realizada esta primera alineación, se procedió a alinear el sistema hemisferio- celda con respecto al centro de la plataforma. El analizador de apertura es un "pinhole" con un diámetro de  $1\text{ mm}$ . El haz reflejado atraviesa el analizador (*A*) e incide sobre el fotodetector. Un filtro interferométrico (*RF*) a la salida del analizador sólo permite el paso del haz reflejado.

La separación entre la cabeza del láser y la muestra fue de  $30\text{ cm}$ . El haz tiene un perfil Gaussiano con un radio en la cintura de  $e^{-2}$ ,  $\omega_0 = 0.5\text{ mm}$  y con una divergencia angular de  $\kappa = 0.8\text{ mrad}$ . El láser, así como todos los elementos ópticos y el fotodetector, están montados sobre brazos que pueden moverse manualmente en un rango de  $45^\circ$  a  $75^\circ$  con un paso mínimo de  $1^\circ$ .

La reflectancia  $R$  se midió como función de  $i$  por el fotodetector (*PD*) cerca de la muestra ( $\sim 10\text{ cm}$ ). Ajustando el polarizador y el analizador en los haces incidente y reflejado, se midió la reflectividad para la onda con polarización  $p$ .

Ya que el haz incide sobre el hemisferio, es necesario considerar los efectos de refracción que modifican los parámetros del haz. Así, en la interfase aire-



Figura 2.3: Patrón de interferencia para  $i \sim 65^\circ$

hemisferio se produce una refracción que vuelve al haz convergente. El ángulo de desviación de los rayos asociados a los extremos del haz con respecto al centro del haz, puede ser obtenido usando el formalismo  $ABCD$  de la óptica geométrica [54] y la estimación es de  $1,2^\circ$ . Este ángulo sólo depende de la cintura original del haz, del índice de refracción del hemisferio y su radio. Cuando el haz se refleja en la interfase placa-cristal líquido, pasa de nuevo al aire abriéndose debido a la refracción adicional en la interfase hemisferio-aire que produce un haz con un radio estimado de 4 mm en la apertura del analizador. Debe enfatizarse que las reflexiones secundarias, esto es las reflexiones de los haces que se producen dentro de la celda, se afectan más por este proceso de refracción, ya que el haz que viajando dentro del cristal líquido, emerge a una distancia lejana al centro del hemisferio. De esta manera las reflexiones secundarias experimentarán una desviación con respecto a la primera reflexión que produce un patrón localizado de franjas de interferencia. Este patrón consiste de franjas paralelas del mismos espesor. Se observó que conforme  $i$  se acerca  $73^\circ$ , el espesor de las franjas aumenta y, por tanto, el número de franjas por unidad de longitud decrece. Este efecto se muestra en las figuras 2.3 y 2.4 que corresponden al patrón de interferencia para dos ángulos diferentes de incidencia.

Gracias a que el analizador de apertura tiene una área pequeña, es posible detectar la separación entre las reflexiones primaria y secundarias. Aún más, la energía reflejada cambiará conforme las reflexiones secundarias entren o abandonen el área de la apertura del analizador. Sin embargo, las franjas



Figura 2.4: Patrón de interferencia para  $i \sim 72^\circ$ .

entran al detector en una forma diferente a como sucede en un medio homogéneo, ya que el alcance de los rayos primero aumenta hasta alcanzar un máximo para  $i \sim i_c^1$ , decreciendo conforme el ángulo incidencia se acerca al ángulo crítico,  $i_{c2}$  en donde el haz no penetra a la muestra. Esto marca una diferencia con respecto al medio homogéneo en donde el alcance de las reflexiones secundarias siempre se incrementa. La consecuencia directa es que las franjas del patrón de interferencia se vuelven más gruesas debido a que el ángulo de desviación entre la reflexión primaria y secundaria en la interfase del hemisferio-aire se vuelve más pequeño. Por tanto, es de esperarse que los efectos sobre la energía medida serán considerables solamente cuando el alcance sea pequeño y el espesor de las franjas sea comparable con el tamaño de la apertura del analizador. Por supuesto, esto limitará la precisión de las mediciones ya que el brazo del elipsómetro tiene un resolución de  $1^\circ$  y, por tanto, es posible que sólo una parte de las franjas entren a la apertura del analizador. Sin embargo, este efecto ocurrirá sólo cuando  $i$  sea cercano a  $i_{c2} \sim 73^\circ$ , en donde ocurre la reflexión total interna en la placa de incidencia y no existen reflexiones secundarias propagándose en la celda. Para el resto de los puntos el número de franjas es lo suficientemente grande para obtener un buen promedio sobre el área de la apertura y, consecuentemente, el error no será tan significativo. Cabe mencionar que aunque existen diversas capas intermedias entre la placa y el cristal líquido (ITO, lecitina, poliamido) estas

---

<sup>1</sup>Para este ángulo las reflexiones secundarias penetran la muestra, pero ya no alcanzan a tocar el sustrato inferior

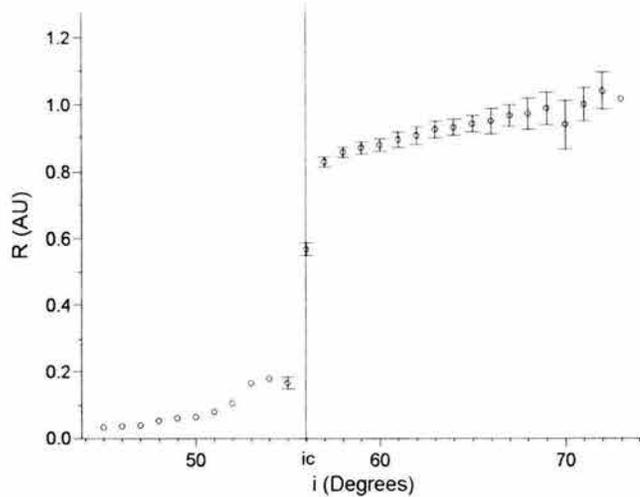


Figura 2.5: Puntos experimentales para  $R$  vs  $i$  para una polarización  $p$ .

son muy delgadas ( $\sim 50$  nm) y practicamente no modifican la transmisión del haz dentro de la muestra.

De las mediciones repetidas de  $R$  vs.  $i$  se obtuvo un valor promedio para  $R$  y su desviación estándar, que se muestra en la figura 2.5. Del análisis de esta curva es posible obtener el ángulo crítico,  $i_c \sim 56^\circ$ , en donde el haz se refleja totalmente en segunda placa de la celda. Para  $i > i_c$ ,  $R$  se incrementa, así como el error asociado a cada punto experimental. Este aumento es notorio conforme  $i$  se acerca a  $i_{c2} \sim 73^\circ$ . Debe señalarse que este comportamiento es muy diferente al de un medio isotrópico en donde  $R$  permanece constante para  $i > i_c$  [14]. En la sección 2.4 se discutirá con mayor profundidad estos efectos.

De las fotografías 2.3, 2.4 es posible obtener el número de franjas sobre el fotodetector. Para la fotografía 2.4 se tienen 4 franjas gruesas que corresponden al patrón para ángulos de incidencia grandes, la otra con franjas más delgadas que corresponden a ángulos de incidencia  $i \gtrsim i_c$ . Así, en el área del fotodetector, se estima que para estos ángulos se tiene una franja cuando  $i \sim 72^\circ$  y 25 franjas para  $i \sim 65^\circ$ . Esta observación implica que conforme  $i$  se

incrementa, el cambio de fase que sufre el haz decrece aumentando el espesor de las franjas. Además, debido a que la distancia entre los haces reflejados también decrece, la energía que llega al fotodetector aumenta, haciendo este efecto más notorio. Ahora bien, ya que la resolución en la posición del fotodetector es de  $1^\circ$ , es posible que la señal observada coincida con una zona oscura o brillante y, por consiguiente, el error asociado a la reflectancia se incrementa cuando se incrementa  $i$ .

El comportamiento de nuestras mediciones es diferente a aquellas reportadas en la ref. [36], donde se reportan curvas de reflectividad para el régimen de *TIR* ( $i > i_c$ ). Para esas mediciones,  $R$  aumenta con una curvatura positiva mientras que en las observaciones aquí reportadas lo hace con curvatura negativa. Estas diferencias serán explicadas más adelante.

## 2.3. Teoría

Esta sección tiene como objetivo presentar un modelo que explique algunas de las características de las observaciones experimentales de la sección previa. Debe señalarse que el modelo no describe todo el experimento, pero proporciona las trayectorias del haz para un medio continuo y la reflectancia asociada. Esto permite entender el origen físico del incremento en la reflectancia como función de  $i$  para  $i > i_c$  y los máximos y mínimos consecutivos de estas curvas.

### 2.3.1. Modelo y ecuaciones básicas

Sea un cristal líquido nemático termotrópico confinado entre dos substratos paralelos con índices de refracción  $N_t$  y  $N_b$ , respectivamente, como se muestra en la figura 2.6. El espesor de la celda es  $l$ , y éste se mide a lo largo del eje  $z$ , transversal a las placas de la celda. A lo largo de los ejes  $x$  y  $y$  las dimensiones  $L$  de la celda son grandes comparadas con  $l$ . La configuración inicial del director es espacialmente homogénea a lo largo del plano transversal  $x - y$  y varía con  $z$  de tal forma que en las fronteras el director,

$$\hat{n} = [\sin \theta(z), 0, \cos \theta(z)], \quad (2.1)$$

satisface las condiciones de frontera

$$\begin{aligned} \theta(z = 0) &= 0, \\ \theta(z = l) &= \frac{\pi}{2}, \end{aligned} \quad (2.2)$$

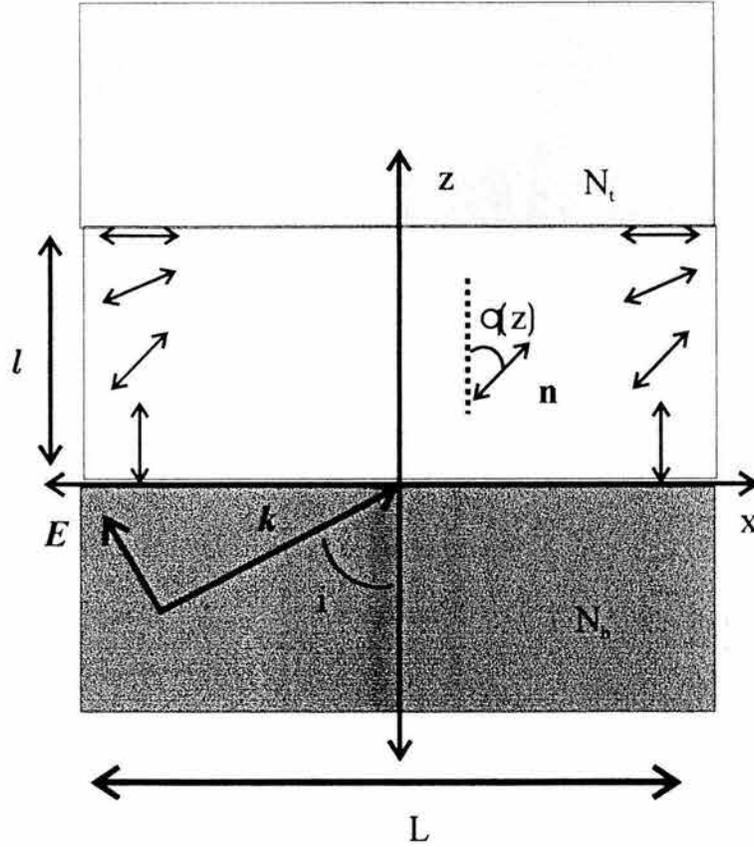


Figura 2.6: Esquema del modelo. La onda tiene polarización  $p$  (modo  $TM$ ).  $N_t, N_b > n_e, n_o$ .  $\theta(z)$  es el ángulo de reorientación del director.

donde  $\theta(z)$  es el ángulo reorientacional definido con respecto al eje  $z$ .

Sobre la muestra incide oblicuamente un haz con polarización lineal  $p$  (extraordinaria), esto es, la componente eléctrica del campo está contenida en el plano de incidencia  $x-z$  [14], que se acopla a la configuración orientacional.

Despreciando los efectos de absorción y asumiendo que el proceso es isotérmico, la configuración orientacional cuando el campo director alcanza el equilibrio se obtiene por minimización de la funcional de energía libre total de Helmholtz [3].

$$F = \int_V dV (f_{el} + f_{em}), \quad (2.3)$$

donde  $f_{el}$  y  $f_{em}$  denotan respectivamente, las densidades de energía libre

elástica y electromagnética y  $V$  es el volumen de la celda. La primera está dada por la energía libre de Frank,

$$f_{el} = K_1(\nabla \cdot \hat{n})^2 + K_2(\hat{n} \cdot \nabla \times \hat{n})^2 + K_3(\hat{n} \times \nabla \times \hat{n})^2, \quad (2.4)$$

en donde  $K_1$ ,  $K_2$  y  $K_3$  son las constantes elásticas asociadas con las deformaciones de splay, twist y bend, respectivamente, mientras que  $f_{em}$  está dada por

$$f_{em} = -\frac{1}{8\pi} \vec{D} \cdot \vec{E}. \quad (2.5)$$

El tensor dieléctrico  $\varepsilon_{ij}$  está dado por

$$\varepsilon_{ij} = \varepsilon_{\perp} \delta_{ij} + \varepsilon_a n_i[\theta(z)] n_j[\theta(z)], \quad (2.6)$$

En donde  $\varepsilon_{\perp}$  y  $\varepsilon_{\parallel}$  son las constantes dieléctricas perpendicular y paralela al director y  $\varepsilon_a \equiv \varepsilon_{\parallel} - \varepsilon_{\perp}$  es la anisotropía dieléctrica. En la aproximación de constantes elásticas iguales,  $K \equiv K_1 = K_2 = K_3$ , la funcional de energía libre se reduce a

$$F = \int_V dV \left( \frac{1}{2} K \left( \frac{d\theta}{dz} \right)^2 - \frac{1}{8\pi} \varepsilon_{\perp} |\mathbf{E}|^2 + \varepsilon_a (|E_x|^2 \sin^2 \theta(z) + |E_z|^2 \cos^2 \theta(z) + (E_x E_z^* + E_z E_x^*) \sin \theta(z) \cos \theta(z)) \right), \quad (2.7)$$

donde \* denota complejo conjugado. La configuración estacionaria se define por la correspondiente ecuación de Euler-Lagrange,

$$\frac{d^2\theta}{d\zeta^2} + q \left[ \sin 2\theta(\zeta) (|\overline{E}_x|^2 - |\overline{E}_z|^2) - (\overline{E}_x \overline{E}_z^* + \overline{E}_z \overline{E}_x^*) \cos 2\theta(\zeta) \right] = 0. \quad (2.8)$$

Al escribir esta ecuación se han usado las variables adimensionales  $\zeta \equiv \frac{z}{l}$ ,  $\overline{E}_x \equiv \frac{E_x}{E_0}$ ,  $\overline{E}_z \equiv \frac{E_z}{E_0}$  y el parámetro adimensional

$$q = \frac{\varepsilon_a E_0^2 l^2}{8\pi K}.$$

$q$  denota la razón entre la densidad de energía electromagnética y la densidad de energía elástica, y en este sentido mide el acoplamiento entre el campo óptico y el nemático. En este capítulo nos limitaremos al caso donde  $q \ll 1$ , de tal forma que el campo no produce efecto reorientacional sobre la celda.

Bajo esta hipótesis resulta que la configuración de equilibrio bajo las condiciones de frontera (2.2), (2.8) proporciona un perfil lineal para la configuración estacionaria,

$$\theta(\zeta) = \frac{\pi}{2} \zeta. \quad (2.9)$$

### 2.3.2. Trayectoria del haz

Como se muestra en la ec.(2.8), la dinámica reorientacional está acoplada con la dinámica del campo óptico. Este último se describe por las correspondientes ecuaciones de Maxwell que contienen al tensor dieléctrico,  $\varepsilon_{ij}$ , y por tanto dependen de  $\theta$ , ec(2.6). Para resolverlas primero se inserta la ec.(2.9) en (2.6) y se usa la expresión resultante en la ecuación de onda que se obtiene de las ecuaciones de Maxwell

$$\nabla \times \nabla \times \vec{E} = -\frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{D}}{\partial t^2}, \quad (2.10)$$

y en la relación constitutiva,

$$\vec{D} = \overleftarrow{\varepsilon} \cdot \vec{E}. \quad (2.11)$$

Este procedimiento se ha realizado con más detalle para una celda híbrida similar a la considerada aquí en la ref. [46], en donde se mostró que sólo los modos  $TM$ , (polarización  $p$ ),  $E_x(\mathbf{r}, t)$ ,  $E_z(\mathbf{r}, t)$  y  $H_y(\mathbf{r}, t)$ , dentro del cristal líquido se acoplan con el campo director. Con el propósito de calcular las trayectorias del haz para la presente geometría se supone que los modos  $TM$  son de la forma

$$\begin{aligned} E_j(\mathbf{r}, t) &= E_{oj}(\mathbf{r}) \exp[j(k_0 l W(\mathbf{r}) - \omega t)], \quad j = x, z \\ H_y(\mathbf{r}, t) &= H_{oy}(\mathbf{r}) \exp[j(k_0 l W(\mathbf{r}) - \omega t)], \end{aligned} \quad (2.12)$$

donde  $W(x, z)$  es la función característica de Hamilton [47] y representa la longitud de camino óptico entre dos puntos fijos dentro de la celda. Aquí  $j \equiv \sqrt{-1}$  es la unidad imaginaria. El concepto de trayectoria sólo tiene sentido en el límite óptico definido por la condición [14]

$$k_0 l \gg 1, \quad (2.13)$$

donde  $k_0$  es el número de onda en el vacío,  $k_0 \equiv \frac{\omega}{c}$ ,  $\omega$  es la frecuencia óptica y  $c$  la velocidad de la luz.

En la referencia [46] se mostró que para la configuración descrita por la ecuación (2.9), existe un régimen para el ángulo de incidencia,  $i$ , donde la trayectoria exhibe un punto de retorno, en el cual el rayo regresa hacia el sustrato de incidencia, figura 2.7. La expresión analítica para  $W(z)$  está dada por [46]

$$W(\zeta, \chi) = p\chi + \int_0^\zeta d\zeta' \frac{p\varepsilon_{xz} \pm (\varepsilon_\perp \varepsilon_\parallel (\varepsilon_{zz} - p^2))^{1/2}}{\varepsilon_{zz}} + S_0 \quad (2.14)$$

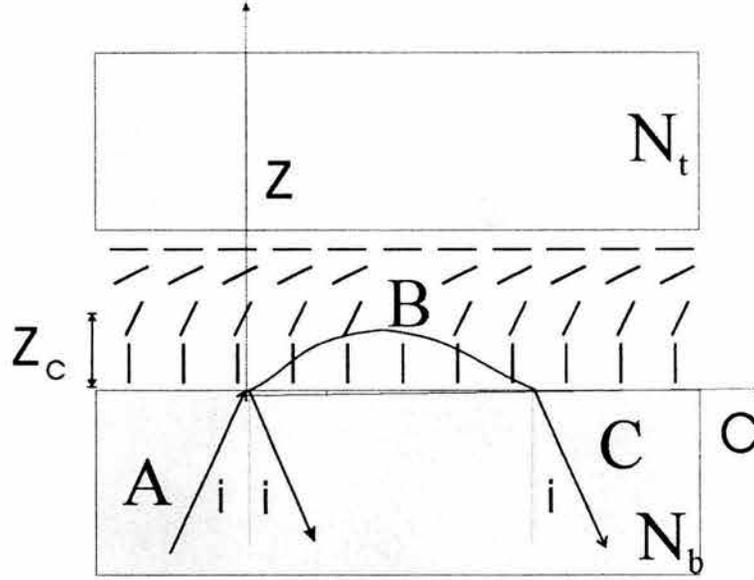


Figura 2.7: Esquema de la propagación del haz para  $p > 0$ .  $\zeta_c$  denota la posición de la caústica o punto de retorno.

y la ecuación para la trayectoria es,

$$\gamma = \chi + \int_0^\zeta d\eta \frac{\varepsilon_{xz} \mp p \sqrt{\varepsilon_\perp \varepsilon_\parallel} \sqrt{\varepsilon_{zz} - p^2}}{\varepsilon_{zz}}. \quad (2.15)$$

Aquí se ha introducido la variable adimensional  $\chi \equiv \frac{x}{l}$ ,  $p \equiv \frac{k_x}{k_0}$  es la componente de rayo en la dirección de  $x$  y  $S_0$  es una constante aditiva cuyo valor explícito no es necesario conocer, ya que sólo las diferencias en la longitud de camino óptico son relevantes.  $\gamma$  es una constante que se determina por el punto de incidencia del haz sobre la celda. Los signos  $\pm$  en (2.14) corresponden a rayos viajando con  $\vec{k}$  en la dirección  $\pm z$ , de  $A$  a  $B$  y de  $B$  a  $A$ , respectivamente, como se muestra en la figura 2.7, y en la ec. (2.15), los signos cambian para los respectivos rayos.

La componente de rayo  $p$  puede expresarse como función del ángulo de incidencia  $i$  en el substrato como (fig 2.7) [15],

$$p = N_b \sin i, \quad (2.16)$$

donde  $N_b$  es el índice de refracción correspondiente. Substituyendo (2.16) y

(2.6) en (2.15) resulta

$$\chi_{AB} = \frac{1}{\pi} \ln \left[ \frac{\varepsilon_{\parallel} - \varepsilon_a \sin^2 \theta}{\varepsilon_{\parallel}} \right] + \frac{2}{\pi} \Pi[\theta, G, H], \quad (2.17)$$

$$\chi_{BC} = \frac{1}{\pi} \ln \left[ \frac{\varepsilon_{\parallel}}{\varepsilon_{\parallel} - \varepsilon_a \sin^2 \theta} \right] + \frac{2}{\pi} F(2\Pi[\theta_c, G, H] - \Pi[\theta, G, H]), \quad (2.18)$$

donde  $\Pi[\theta, G, H]$  es la integral elíptica de tercera clase definida por [49]

$$\Pi[\theta, G, H] = \int_0^{\theta} (1 - G \sin^2 \phi)^{-1} [1 - H \sin^2 \theta]^{-\frac{1}{2}} d\phi,$$

con  $\theta \in [0, \theta_c]$ ,  $\theta_c$  es el ángulo del director en el punto de retorno,  $\zeta_c$ , y está dado por

$$\theta_c = \arccos \sqrt{\frac{p^2 - \varepsilon_{\perp}}{\varepsilon_a}}, \quad (2.19)$$

y

$$A = \frac{\varepsilon_a}{\varepsilon_{\parallel}}, \quad (2.20)$$

$$B = \frac{\varepsilon_a}{\varepsilon_{\parallel} - p^2}, \quad (2.21)$$

$$F = \sqrt{\frac{\varepsilon_{\perp}}{\varepsilon_{\parallel}}} \frac{p}{\sqrt{\varepsilon_{\parallel} - p^2}}. \quad (2.22)$$

En las ecs. (2.17), (2.18) los subíndices indican que la trayectoria se calcula entre los puntos  $A, B$  y  $B, C$ , respectivamente, figura 2.7.

El comportamiento de la trayectoria claramente depende del ángulo de incidencia,  $i$ . De hecho existen dos regímenes para  $i$ . El primero corresponde a  $i < i_c$ , para el cual todos los rayos siempre alcanzan el sustrato y parte del rayo es transmitido al sustrato superior. Para este caso se tiene que  $\theta_c = \frac{\pi}{2}$ . Por otro lado, si  $i > i_c$ , el rayo no alcanza al sustrato superior, sólo penetra una distancia máxima dentro de la celda,  $\zeta_c$  y, posteriormente, es reflejado totalmente hacia el sustrato inferior. Para este caso  $\theta_c$  deja de ser constante y pasa a ser descrita por (2.19). La figura 2.8 muestra las trayectorias de rayo calculadas con (2.17) y (2.18), para diferentes valores de  $i$  y para los parámetros,  $n_e = 1.735$ ,  $n_o = 1.51$ ,  $\lambda = 632.28 \text{ nm}$ ,  $N = 1.815$ .

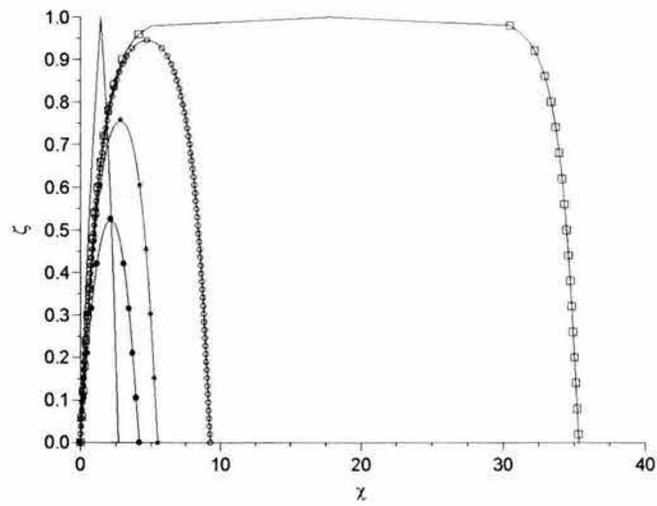


Figura 2.8: Trayectorias del haz. (—)  $i = 45^\circ$ , (-□-□-)  $i = i_c$ , (-○-○-)  $i = i_c + 0.1$ , (-\*-\*)  $i = i_c + 2^\circ$ , (-◆-◆-)  $i = i_c + 7^\circ$ ,  $i_c = 56.3^\circ$ . Para  $i = 45^\circ$  el haz se refleja en la placa superior.

El alcance (adimensional) de las trayectorias  $\chi_{\text{máx}}$  para  $i > i_c$ , puede ser calculado de la ec.(2.18) con  $\theta = 0$ . Nótese que para el intervalo  $0^\circ \leq i \leq i_c = 56.3^\circ$ , las trayectorias de rayo siempre alcanzan al substrato superior. Para  $i$  ligeramente mayor que  $i_c$ ,  $\chi_{\text{máx}}$  puede ser tan grande como 35 veces el ancho de la celda  $l$ . Conforme  $i$  aumenta, la posición de la caústica,  $\zeta_c$ , y su alcance  $\chi_{\text{máx}}$  disminuyen. Para  $i_{c_2} = 72.92^\circ$  el rayo deja de penetrar en el cristal líquido y se refleja completamente en el substrato inferior.

### 2.3.3. Curvas de reflectividad

Siguiendo los métodos de la óptica paraxil [14], es posible extender el modelo propuesto en la sección anterior y considerar un haz Gaussiano en lugar de una onda plana incidente. Para este fin, se supone que el haz incidente tiene una cintura  $\omega_0$  y divergencia angular  $\kappa$ . Si la longitud de difracción,  $l_r = \frac{k_0 \omega_0^2}{2}$ , es grande comparada con la separación entre el láser y la posición de la muestra, el radio de curvatura para el frente de onda [50] es lo suficientemente grande para considerarlo como una onda plana. Por tanto, el conjunto de rayos son casi paralelos entre sí y siguen las trayectorias calculadas en la sección anterior. Adicionalmente, si la distancia  $L - S - PD$  mostrada en la figura 2.2, es más pequeña que  $l_r$ , entonces los efectos de difracción serán despreciables, por lo que la cintura del haz no cambia apreciablemente. Esto se muestra esquemáticamente en la figura 2.9.

Si la reflectancia,  $R$ , es medida en un plano  $\Sigma$  normal a la dirección de propagación del haz reflejado, el campo eléctrico total puede ser calculado siguiendo el procedimiento estandar para reflexiones múltiples en el límite óptico en términos de los coeficientes de Fresnel y el cambio de fase entre rayos adyacentes [14]. Sin embargo, en este caso todos los haces reflejados tendrán un perfil Gaussiano,  $\exp(-r'^2/\omega_0^2)$ . Si tomamos un sistema de ejes en  $\Sigma$  con el origen en el centro de la primera reflexión, el campo total reflejado en este plano está dado por,

$$E_R = r_{12} \exp(-t^2 r^2) + (1 - r_{12})^2 \sum_{n=1}^{N_R(i)} (-r_{12})^{n-1} (r_{23})^n \exp(j n \Gamma) \exp((-t^2 (r - nd)^2), \quad (2.23)$$

donde  $r_{12}$ ,  $r_{23}$  son los coeficientes de Fresnel para las interfaces substrato-nemático (homeotrópico) y substrato-nemático (planar), respectivamente,  $\Gamma$

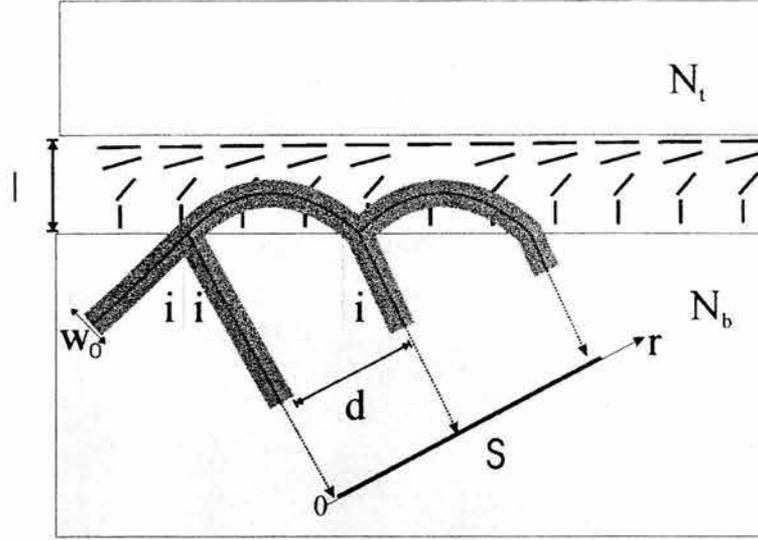


Figura 2.9: Esquema del modelo para haces Gaussianos.  $2w_0$  es el diámetro del haz.

es el cambio de fase entre dos reflexiones consecutivas,  $t$  es la razón del espesor de la muestra a la cintura del haz,  $r$  denota la coordenada radial en  $\Sigma$ ,  $N_R$  es el número total de reflexiones en la celda,  $d$  es la separación entre centros de los haces en el plano de la pantalla  $\Sigma$ .  $r_{12}$  y  $r_{23}$  fueron calculados usando las condiciones de frontera entre un medio isótropico y un medio anisotrópico [15] y están dados por

$$r_{12} = \frac{n_o n_e \cos i - N_b \sqrt{n_e^2 - N_b^2 \sin^2 i}}{n_o n_e \cos i + N_b \sqrt{n_e^2 - N_b^2 \sin^2 i}}, \quad (2.24)$$

$$r_{23} = \frac{N_t \sqrt{n_o^2 - N_b^2 \sin^2 i} - n_o n_e \sqrt{N_t^2 - N_b^2 \sin^2 i}}{N_t \sqrt{n_o^2 - N_b^2 \sin^2 i} + n_o n_e \sqrt{N_t^2 - N_b^2 \sin^2 i}}, \quad (2.25)$$

donde  $N_t$ ,  $N_b$  denotan los índices de refracción de los sustratos superior e inferior respectivamente,  $n_o, n_e$  son los índices de refracción ordinario y extraordinario del nemático.  $N_R$ , está definido por

$$N_R = \text{Integer} \left[ \frac{L}{\chi_{\text{máx}} l} \right], \quad (2.26)$$

donde  $L$  es el ancho de la celda,  $\chi_{\text{máx}}$  es el alcance del rayo y  $l$  el espesor de la muestra.

$\Gamma$  es el cambio de fase entre el primer rayo reflejado en la primera interfase y el rayo que se ha propagado dentro del cristal líquido [37]

$$\Gamma = \frac{4n_e k_0 l}{\pi n_o \sqrt{n_e^2 - N_b^2 \sin^2 i}} \left( n_e^2 F(\theta_c, B) - N_b^2 \sin^2 i \Pi(C, \theta_c, B) \right), \quad (2.27)$$

donde  $F(\theta_c, B)$  es la integral elíptica de primera clase [49] y los parámetros  $B$  y  $C$  son

$$B = \frac{\varepsilon_a}{n_e^2 - N_b^2 \sin^2 i},$$

$$C = \frac{\varepsilon_a}{n_e^2}.$$

El parámetro  $t$  se define como,

$$t = \frac{l}{\omega_0}, \quad (2.28)$$

con  $\omega_0$  la cintura del haz.

La distancia  $d$  que se muestra en la figura 2.9 está dada por

$$d = \chi_{\text{máx}} \cos(i). \quad (2.29a)$$

Es interesante hacer notar que si  $td \ll 1$ , la expresión  $\exp(-t^2(r - nd)^2)$  en (2.23) puede ser aproximada por  $\exp(-(tr)^2)$ . Para los primeros términos dominantes en la ec.(2.23) entonces resulta que

$$E_R \sim \exp(-(tr)^2) \left[ r_{12} + (1 - r_{12})^2 \sum_{n=1}^{N_R} (-r_{12})^{n-1} (r_{23})^n \exp(j n \Gamma) \right]. \quad (2.30)$$

En esta expresión se han despreciado las contribuciones de los términos con  $n$  grande ya que  $|r_{12}|$  y  $|r_{23}|$  son menores que la unidad y sus coeficientes,  $(-r_{12})^{n-1} (r_{23})^n$ , tiende a cero conforme  $n$  se incrementa. Ya que en este caso  $N_R \gg 1$ , la suma  $\sum_{n=1}^{N_R} (-r_{12})^{n-1} (r_{23})^n \exp(j n \Gamma)$  se puede aproximar por una serie geométrica y la reflectancia  $R \equiv |E_R/E_i|^2$  estará entonces dada por la expresión usual,

$$R_{i < i_c} = \left| \frac{r_{12} + r_{23} \exp[-j \Gamma]}{1 + r_{12} r_{23} \exp[-j \Gamma]} \right|^2. \quad (2.31)$$

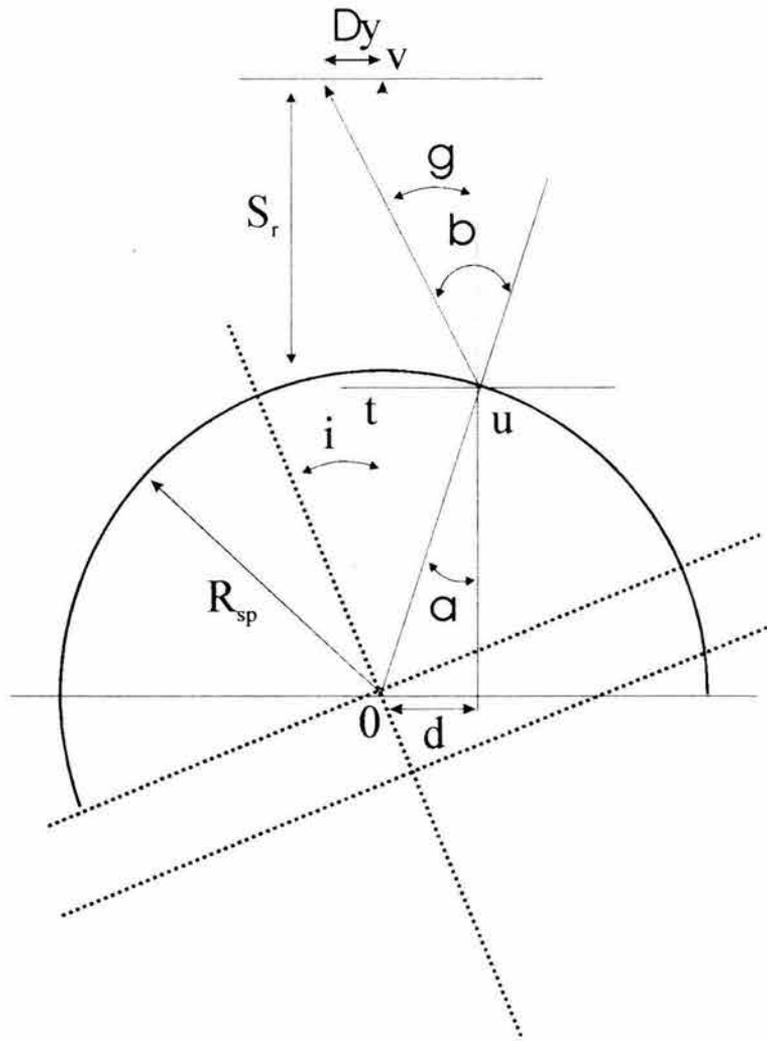


Figura 2.10: Esquema para calcular la separación entre dos reflexiones adyacentes.

Sin embargo, cuando  $i > i_c$ ,  $td$  no es despreciable ya que  $d$  puede ser mayor o igual a la cintura del haz,  $w_0$ , como se muestra en la figura 2.7. Nótese que el alcance  $\chi_{\text{máx}}$  puede ser tan grande como 35 veces el espesor de la celda,  $l$ . Por esta razón es importante tomar en consideración el perfil transversal del haz y la reflectancia estará dada por

$$R = |r_{12} + (1 - r_{12})^2 \sum_{n=1}^{N_R} (-r_{12})^{n-1} (r_{23})^n \exp(j n \Gamma) \exp((-t^2((nd)^2 - 2ndr)) |^2. \quad (2.32)$$

Es posible modificar este modelo para tomar en cuenta los efectos de refracción del hemisferio calculando la distancia entre dos reflexiones sucesivas. De acuerdo con la figura 2.10, el ángulo de desviación  $\gamma$  con respecto al rayo central está dado por

$$\gamma = \beta - \alpha, \quad (2.33)$$

donde

$$\text{sen } \alpha = \frac{d}{R_{sp}}, \quad (2.34)$$

con  $R_{sp}$  el radio del hemisferio y

$$\text{sen } \beta = \frac{d}{N_t R_{sp}}. \quad (2.35)$$

Usando las definiciones anteriores la separación entre los rayos correspondientes a las partes centrales de los haces reflejados está dada por

$$\Delta y = (S_r + R_{sp}(1 - \cos \alpha)) \tan \gamma - d, \quad (2.36)$$

donde  $d$  está definida por la ecuación (2.29a) y  $S_r$  es la distancia entre el hemisferio y el plano de la apertura del analizador

El cambio de fase adicional introducido por la esfera puede estimarse asumiendo que en la superficie del hemisferio las reflexiones primaria y secundaria están enfocadas, y entonces pueden considerarse, a primera aproximación, como fuentes puntuales en los puntos  $t$  y  $u$  de la figura 2.10. Esta suposición es razonable ya que la reflexión primaria se enfoca a 1 mm del hemisferio, mientras que la reflexión secundaria lo hace dentro del hemisferio. La diferencia de fase en el centro del fotodetector estará dada por

$$\Delta\phi_{sp} = k_0 l \left( \sqrt{(S_r + R_{sp}(1 - \cos \alpha))^2 + d^2} - (S_r + N_t(R_{sp}(1 - \cos \alpha))) \right). \quad (2.37)$$

Los valores numéricos para este cambio de fase indican que esta diferencia es dos órdenes de magnitud más pequeña que  $\Gamma$ , con excepción de la región en que  $i \sim i_{c2}$ , en donde son comparables. El cambio de fase total tomando en cuentas los efectos del hemisferio es

$$\Gamma_{sp} = \Gamma + \Delta\phi_{sp}. \quad (2.38)$$

La curva de reflectividad puede ser calculada en este caso reemplazando  $d$  por  $\Delta y$ , eqs. (2.36), (2.38) en ec. (2.23) y usando la cintura del haz modificada en el plano del fotodetector, ec.(2.28). Como resultado, la reflectividad en la parte central de la reflexión primaria resulta ser

$$R = |E_R|^2. \quad (2.39)$$

En la figura 2.11 se grafica  $R$  vs.  $i$  considerando los efectos del hemisferio para diversos valores del parámetro  $t$ .

### 2.3.4. Efectos de tunelaje

De la figura 2.8 podemos apreciar que para  $i \sim 56,3^\circ$ , la cáustica del rayo,  $\zeta_c$ , está muy cercana al substrato superior,  $\zeta = 1$ , y el rayo viaja casi paralelo a dicho substrato. Nótese que para un ángulo ligeramente mayor,  $i \sim 56,4^\circ$ , la cáustica tiene un valor de  $\zeta \sim 0,95$ , que corresponde a una distancia del substrato superior a  $\sim 10 \lambda$ . Esta distancia puede cuantificarse con mayor precisión usando la expresión para el ángulo crítico  $\theta_c$ , ec.(2.19) y la ecuación de configuración (2.9). Como es bien conocido, los efectos de tunelaje a través de una película delgada por medio de una onda evanescente son relevantes sólo para películas con espesores de unas cuantas longitudes de onda [51]. Esto implica que la pérdida de la intensidad por onda evanescente se restringe a ángulos de incidencia cercanos a  $i_c$ , esto es,  $i \in [i_c, i_c + 0,1]$ .

Para poder cuantificar estos efectos, tienen que resolverse las ecuaciones de Maxwell en el límite óptico para los campo totales reflejados y transmitidos. Como se mencionó más arriba, el rango de ángulos de incidencia y las correspondientes distancias para las cuales este efecto se espera que sea relevante es muy estrecho, por lo que es razonable resolver las ecuaciones de

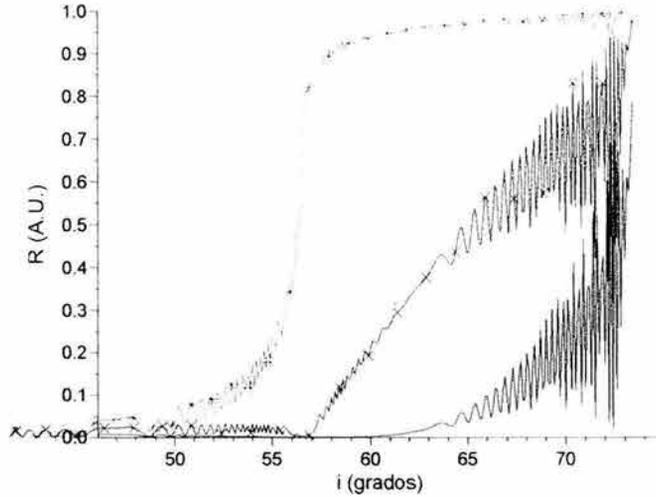


Figura 2.11:  $R$  vs.  $i$ . (-\*-\*)  $t = 0.01$ , (x-x-x)  $t = 0.05$ , (—)  $t = 0.1$

Maxwell considerando al haz incidente como una onda plana en lugar de una haz Gaussiano. Para este fin se divide al sistema completo, celda y sustrato, en las cuatro regiones que se muestra en la figura 2.12 Las regiones I y IV corresponden a los sustratos dieléctricos isotrópicos y homogéneos con índices de refracción  $N_b$  y  $N_t$ , respectivamente. La solución de las ecuaciones de Maxwell para estas regiones son bien conocidas y están dadas por [51]

$$E_{Ix} = \cos(i) \left( -A \exp(jk_o l \sqrt{N_b^2 - p^2 \zeta}) + B \exp(-jk_o l \sqrt{N_b^2 - p^2 \zeta}) \right), \quad (2.40)$$

$$E_{Iz} = \sin(i) \left( A \exp(jk_o l \sqrt{N_b^2 - p^2 \zeta}) + B \exp(-jk_o l \sqrt{N_b^2 - p^2 \zeta}) \right), \quad (2.41)$$

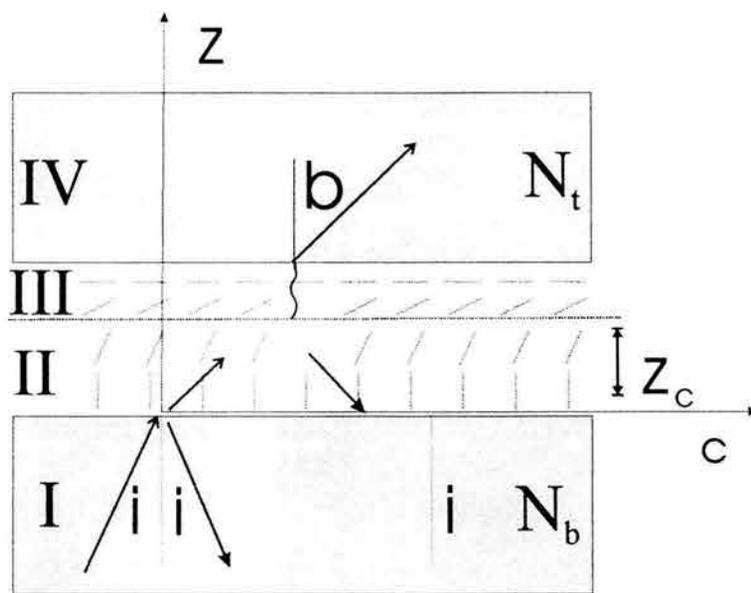


Figura 2.12: Diagrama para los campos. En la región *I* se tiene la onda incidente y la reflejada. La región *II* es la onda viajando en el medio anisotrópico. La región *III* es la region de evanescencia. La región *IV* contiene solamente la onda transmitida.

con  $\zeta \leq 0$

$$E_{IVx} = -G \cos(\beta) \exp(jk_o l \sqrt{N_t^2 - p^2} \zeta), \quad (2.42)$$

$$E_{IVz} = G \operatorname{sen}(\beta) \exp(jk_o l \sqrt{N_t^2 - p^2} \zeta). \quad \zeta \geq 1. \quad (2.43)$$

$A$ ,  $B$  y  $G$  son constantes que serán determinadas por las condiciones de frontera;  $p$  fue definido en (2.16) y  $\beta$  es el ángulo de refracción en el substrato superior y se relaciona con  $i$  a través de la ley de Snell para medios isotrópicos.

En consistencia con la aproximación del límite óptico, en la región II se desprecian las variaciones en la amplitud y sólo se tomará en cuenta las variaciones en la fase. Las correspondientes componentes del campo eléctrico se obtienen de las ecuaciones (2.12) y (2.14),

$$E_{IIx} = [-C \exp(jk_o l (\phi(\zeta) + \psi(\zeta)) \quad (2.44)$$

$$+ D \exp(jk_o l (\phi(\zeta) - \psi(\zeta)))] \cos \alpha, \quad (2.45)$$

$$E_{IIz} = [C \exp(jk_o l (\phi(\zeta) + \psi(\zeta)) \quad (2.46)$$

$$+ D \exp(jk_o l (\phi(\zeta) - \psi(\zeta)))] \operatorname{sen} \alpha, \quad (2.47)$$

donde

$$\phi(\zeta) = \int_0^\zeta \frac{\varepsilon_{xz}}{\varepsilon_{zz}} p \, d\eta, \quad (2.48)$$

$$\psi(\zeta) = \int_0^\zeta \frac{n_e n_o}{\varepsilon_{zz}} \sqrt{\varepsilon_{zz} - p^2} \, d\eta. \quad (2.49)$$

Aquí  $\alpha$  es el ángulo entre el vector de Poynting  $\vec{S}$  y el eje  $z$ , está dado por [15]

$$\tan \alpha = \frac{n_o}{n_e} \frac{p^2}{\sqrt{n_e^2 - p^2}}. \quad (2.50)$$

La región III corresponde a los puntos por arriba de la caústica,  $\zeta > \zeta_c$ , donde la onda se vuelve evanescente. En este caso (2.49) se convierte en una cantidad compleja ya que  $\varepsilon_{zz} - p^2 < 0$ ; y la amplitud del campo decae exponencialmente. En forma similar al tratamiento desarrollado para ondas evanescentes en medios isotrópicos [48], se puede extender la validez de las ecuaciones (2.44) y (2.46) para esta región como sigue.

$$E_{IIIx} = [-C \exp(jk_o l (\phi(\zeta) + \psi(\zeta_c) + \tau(i)) \quad (2.51)$$

$$+ D \exp(jk_o l (\phi(\zeta) - \psi(\zeta) - \tau(i)))] \cos \gamma. \quad (2.52)$$

$$E_{IIIz} = [C \exp(jk_o l (\phi(\zeta) + \psi(\zeta) + \tau(i)) \quad (2.53)$$

$$+ D \exp(jk_o l (\phi(\zeta) - \psi(\zeta) - \tau(i)))] \operatorname{sen} \gamma. \quad (2.54)$$

donde

$$\tau(i) = \int_{\zeta_c}^1 \frac{n_e n_o}{\varepsilon_{zz}} \sqrt{p^2 - \varepsilon_{zz}} d\eta. \quad (2.55)$$

$\gamma$  es el ángulo complejo que puede ser obtenido en forma similar a  $\alpha$ , pero considerando el eje óptico en  $\zeta = 1$  paralelo a la placa, esto es, en la dirección  $\chi$ . Este ángulo está dado por,

$$\tan \gamma = j \frac{n_e}{n_o} \frac{p^2}{\sqrt{p^2 - n_o^2}}. \quad (2.56)$$

Las relaciones entre las constantes  $A, B, C, D, G$  se obtienen a través de las condiciones de frontera usuales [51]. Resolviendo el sistema de ecuaciones que resulta de las condiciones de frontera, se encuentra que el coeficiente de reflexión  $r_{film} = B/A$  está dado por

$$r_{film} = \frac{\Omega(i)n_en_o \cos(i) - N_b \sqrt{n_e^2 - p^2}}{\Omega(i)n_en_o \cos(i) + N_b \sqrt{n_e^2 - p^2} \Upsilon(i)}, \quad (2.57)$$

donde  $\Omega(i)$  y  $\Upsilon(i)$  se definen como

$$\Omega(i) = \frac{j \Upsilon(i) n_o n_e \sqrt{p^2 - n_o^2} + N_2^2 \sqrt{p^2 - n_o^2}}{\Upsilon(i) N_2^2 \sqrt{p^2 - n_o^2} + j n_o n_e \sqrt{p^2 - n_o^2}}, \quad (2.58)$$

$$\Upsilon(i) = \frac{\exp \tau(i) - \exp(2 j \psi(\zeta_c) - \tau(i))}{\exp \tau(i) + \exp(2 j \psi(\zeta_c) - \tau(i))}. \quad (2.59)$$

Nótese que el coeficiente de reflexión de la película tiene una forma similar al coeficiente de reflexión para la interfase entre el medio con  $N_1$  y el cristal líquido. La reflectancia estará dada entonces por

$$R = |r_{film}|^2. \quad (2.60)$$

Una gráfica de  $R$  como función de  $i$  se da en la figura 2.13 para los valores de los parámetros  $n_o = 1.51$ ,  $n_e = 1.735$ ,  $N_1 = N_2 = 1.815$  y  $\lambda = 632.8$  nm. A partir de esta curva se sigue que los efectos de tunelaje pueden ser de importancia en un intervalo muy angosto,  $i_c + 0.01$  para  $l = 100 \mu m$ . Sin embargo, si la distancia entre placas se reduce a  $l = 10 \mu m$ , el intervalo puede incrementarse por un orden de magnitud, figura 2.10. Como será discutido más adelante, este efecto de fuga no alterará la forma general de las curvas de reflectividad y sólo representa una corrección muy localizada a estas curvas.

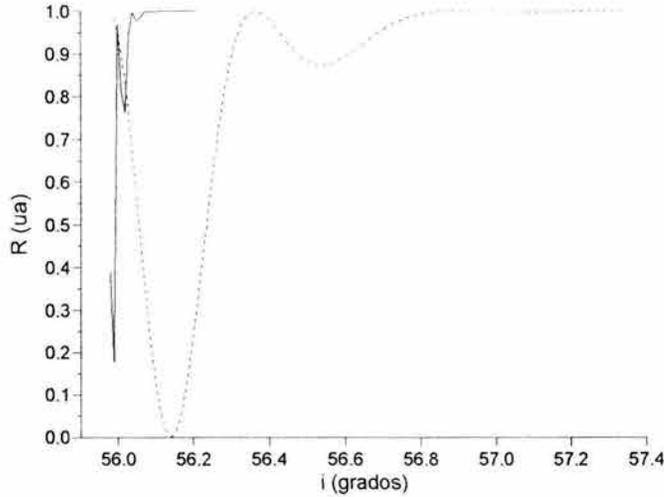


Figura 2.13: Fuga por tunelaje. (—)  $l = 100 \mu m$ , (.....)  $l = 10 \mu m$ .

## 2.4. Comparación entre teoría, simulación y experimento

Ahora se aplicarán los resultados teóricos para hacer una comparación entre los resultados numéricos y experimentales. En primer lugar es necesario verificar que las condiciones del experimento sean consistentes con las hipótesis del modelo. La longitud de difracción del haz láser puede ser estimada usando los parámetros de la sección 2.2, i.e.,  $w_0 = 1 \text{ mm}$ ,  $\kappa = 0.8 \text{ mrad}$ , por lo que  $l_r = 1.25 \text{ m}$ , y el radio de curvatura del frente de onda a  $30 \text{ cm}$  de la cabeza del láser es de  $4.76 \text{ m}$ . Si solamente se considera la región dentro de la cintura del haz, prácticamente el frente de onda es plano. Al asumir, que los rayos que componen el haz son paralelos entonces es posible utilizar la ley  $ABCD$  de la óptica geométrica para calcular el ángulo de desviación  $\zeta$  de un rayo en el extremo del haz con respecto al rayo central,

$$\zeta = \frac{\omega_0}{NR_{sp}}(N - 1), \quad (2.61)$$

donde  $R_{sp}$  es el radio de la esfera. Substituyendo los parámetros involucrados resulta que  $\varsigma = \pm 1.28^\circ$ . Esto significa que el hemisferio hace converger al haz en el plano de la celda y, por tanto, esto será una fuerte limitación a nuestro modelo en la región cercana a  $i_c$ . Esto se debe a que un pequeño cambio en el ángulo de incidencia puede afectar fuertemente la propagación dentro de la celda híbrida, ya que los rayos asociados a los extremos del haz pueden propagarse de manera diferente a la porción central del haz. Ya que este modelo no toma en cuenta estos efectos, se restringirá el análisis a la región cercana a la parte central del haz donde los rayos permanecen casi paralelos. Aún así, en una región lejos de  $i_c$ , es posible mostrar que la diferencia en alcance entre los rayos asociados al centro del haz y los rayos asociados a los extremos es menor al 5%, por lo que es de esperarse un ligero ensanchamiento de las reflexiones secundarias.

En el experimento la apertura del analizador está a 10 *cm* de la muestra. A esta distancia el radio del haz asociado a la reflexión primaria fue estimado en 4.00 *mm*. Para las reflexiones secundarias su radio fue ligeramente mayor ya que el haz secundario viaja y se propaga dentro de la muestra. Por tanto, recorre una distancia mayor que el asociado a la reflexión primaria. Sin embargo, como una primera aproximación, es razonable asumir que ambos haces tienen el mismo radio en la apertura del analizador. Este parámetro puede dejarse libre para ser ajustado con los valores experimentales.

Es posible despreciar los cambios de fase asociados al efecto de la refracción por el hemisferio,  $\Delta\phi_{sp}$ , ya que esta cantidad es dos órdenes de magnitud menor que el cambio de fase introducido por la celda híbrida,  $\Gamma$ . Por consiguiente, sólo se toma en cuenta el efecto de la separación entre los haces reflejados, ec. (2.36), y el cambio de fase asociado a la propagación en la celda híbrida,  $\Gamma$ , ec.(2.27), para calcular la energía total que entra en la apertura del analizador o en el área del fotodetector. Esto estará dado por

$$P_r = C \iint |E_R|^2 dA, \quad (2.62)$$

donde la integración es sobre la apertura y  $C$  es una constante de normalización. Los valores de los parámetros empleados que maximizaron el coeficiente de correlación entre los valores teóricos y experimentales,  $r_{cl} = 0.9459$ , fueron  $n_e = 1.735$ ,  $n_o = 1.51$ ,  $N_t = 1.81$ ,  $N_b = 1.815$ ,  $l = 100 \mu m$ ,  $L = 100 mm$ ,  $\lambda = 632.8 nm$ ,  $t = 0.016$ . El resultado se muestra en la figura 2.13.

Ya que  $t = 0.016$ , resulta que el haz tiene un radio de 6.25 *mm*, en el plano de la apertura del analizador, esto difiere en un 50% de la estimación

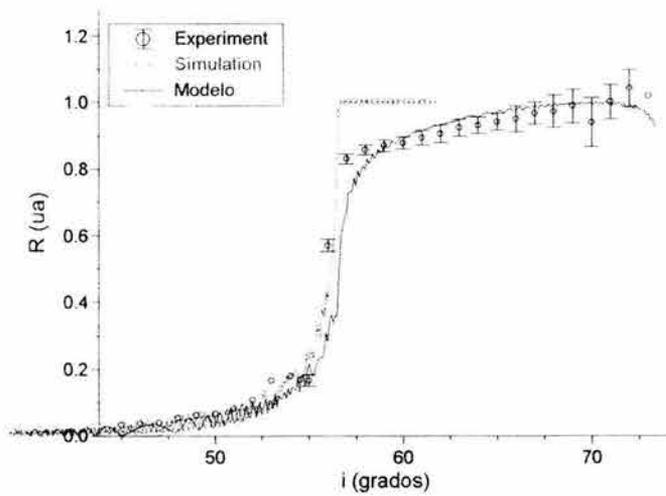


Figura 2.14: Comparación entre los resultados teóricos, experimentales y numéricos de las curvas de reflexión. El tamaño de las barras denota el error experimental

que se hizo por el método de *ABCD*. Esto quizá se deba a la suposición de que el diámetro es el mismo para todos los haces reflejados. Esta hipótesis no es del todo correcta ya que el diámetro de las reflexiones secundarias es mayor debido a que éstas se propagan dentro de la celda como se discutió más arriba. Por otro lado, las reflexiones secundarias emergen del hemisferio formando un cierto ángulo con la normal al hemisferio (radio) por lo que los efectos de refracción modifican aún más su diámetro. La descripción de estos procesos va más allá del alcance de este trabajo ya que son detalles propios de la técnica experimental empleada. Ahora bien, la muestra empleada fue *E7* con un índice de refracción ordinario  $n_o \sim 1.52$ ; sin embargo, para ajustar la curva se utilizó  $n_o = 1.51$ , ya que la resolución del arreglo experimental no tiene tanta precisión.

Las únicas mediciones de *TIR* que se tiene conocimiento son la realizadas por Warengem et al. [36]. Si se emplea este modelo para graficar sus curvas con los parámetros reportados en su trabajo, se obtiene una curva cualitativamente similar a la reportada con el parámetro ajustado  $t = 0.8$ . Esto se muestra en la figura 2.15. Este valor de  $t$  fue arbitrariamente seleccionado debido al hecho que no se reportaron estos detalles.

Para  $i \gtrsim i_c$  el modelo de reflectancia para ambos regímenes (2.24) y (2.23) falla, por lo que se utilizó la aproximación de onda evanescente, figura 2.13. De esta curva se infiere que los efectos de tunelaje serán considerables dentro de un pequeño rango de valores de  $i$ ,  $[i_c, i_c + 1]$ . Sin embargo, si la celda fuera más delgada,  $l = 10 \mu m$ , los efectos por tunelaje ahora son considerables y podrían ser observados en un rango mucho mayor de valor de  $i$ . Desafortunadamente la resolución angular del elipsómetro no permitió observar este efecto por tunelaje.

## 2.5. Discusión

Nótese de la figura 2.13 que la curva de reflectancia presenta diferentes comportamientos para cada intervalo de  $i$ , a)  $i < i_c$ , b)  $i > i_c$ . Para el primer intervalo, tenemos el comportamiento usual de la reflectancia para una película delgada, el coeficiente de reflexión en la interfase substrato-cristal líquido permanece pequeño. Para  $i \gtrsim i_c$  los rayos viajan en trayectorias casi paralelas al substrato superior por lo que su alcance llega a ser tan grande como  $35l$ , (figura 2.7). En esta región la separación entre el substrato superior y la caústica es de unas cuantas longitudes de onda por lo que los efectos

de fuga por tunelaje pueden ser considerables, como se muestra en la figura 2.12. El efecto puede ser considerable ya que para  $i \gtrsim i_c$ , el coeficiente de reflexión en el substrato inferior,  $r_{12}$ , es pequeño y, consecuentemente, la transmitancia hacia el interior de la celda aumenta, por lo que gran parte de esta energía se transmite hacia el substrato superior escapando de la celda. Sin embargo, para una celda gruesa,  $l \gg \lambda$ , este efecto está limitado a un rango de unos cuantos miligrados por arriba del ángulo crítico. Si el ancho de la celda se reduce, este efecto es más considerable. Es interesante mencionar que el efecto permite la posibilidad de ser utilizado en algún dispositivo electro-óptico como son switches ópticos, divisores de haz variables, filtros sintonizables, etc.

Conforme  $i$  se incrementa,  $\Delta y$  decrece por lo que se produce un incremento en la reflectividad ya que más energía incide sobre el fotodetector. Más aún, el contraste del patrón de interferencia se incrementa por lo que los efectos de interferencia serán más considerables conforme  $i$  se acerca a  $i_{c2}$ . Esto permite resolver los picos de interferencia y así obtener información de la configuración del nemático como se muestra en la ref.[35].

Debe notarse que en términos de la medición de la energía, el contraste en los máximos y mínimos de la curva de reflectancia se reduce si se incrementa el tamaño del fotodetector, como se aprecia de la comparación de la curvas 2.10 en donde se tomó la reflectancia en  $r = 0$  (figura 2.10) y la densidad de energía integrada sobre el área del fotodetector, figura 2.13.

Como se mencionó arriba, la razón entre el espesor de la muestra, y la cintura del haz,  $t$ , es un parámetro importante para un material inhomogéneo como lo son las celdas híbridas consideradas aquí. Para esta configuración, la posibilidad de tener trayectorias con largo alcance cambian considerablemente la forma en la que los haces interfieren. Esto es, cuando un haz de un diámetro finito es reflejado por el medio, sólo parte del haz podrá interferir por lo que el método de Berreman no es adecuado para describir esta situación. Por ejemplo, considérese que la cintura del haz es muy grande comparada con el espesor de la muestra,  $t \sim 0.01$ . En este caso los efectos de interferencia sólo podrán ser apreciados cuando los valores de  $i$  sean cercanos a  $i_{c2}$ .

Por otro lado, si el fotodetector tiene una área pequeña y se encuentra alineado con respecto a la reflexión primaria, (la que se refleja en la interfase del substrato-CL), entonces la contribución dominante a la reflectividad proviene de esta reflexión y, por tanto,  $R$  es modulada por  $|r_{12}|^2$ . Este es el caso de la curva  $R$  vs.  $i$  de la figura 2.15 en donde se utilizó  $t = 0.08$ .

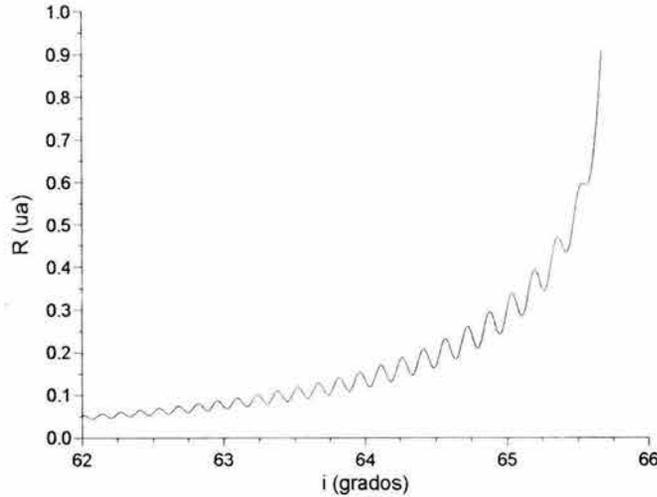


Figura 2.15: Predicción teórica de la curva de reflectividad para  $t = 0.8$  usando los parámetros dados en [36].

El parámetro experimental  $t$  estimado fue  $t = 0.016$  y como se observa, la diferencia entre ambos comportamientos es notable. En un caso (figura 2.13) la reflectancia es pequeña para  $i \gtrsim i_c$  y se incrementa drásticamente conforme  $i$  crece; sin embargo, en la figura 2.14 se aprecia que  $r$  se incrementa suavemente con  $i$ .

## 2.6. Conclusiones

En este capítulo se ha diseñado un procedimiento experimental para mostrar que un haz óptico puede propagarse en un celda híbrida para ángulos mayores que el crítico e investigar su efecto directo en las curvas de reflectancia. Además, se ha modificado un modelo [46] para la propagación del haz dentro de la celda en la aproximación de límite óptico y en el régimen de reflexión total interna para que tome en cuenta los efectos del ancho del haz. La configuración orientacional, las trayectorias de haz y las curvas de reflectancia fueron calculadas analíticamente.

Se encontró, además, que los efectos de fuga de energía por efecto túnel no son considerables cuando las celdas son gruesas  $\lambda \gg l$  y, además, es posible utilizar este fenómeno para construir dispositivos electro-ópticos como válvulas electro-ópticas o filtros sintonizables.

Existe una concordancia entre los resultados experimentales reportados por Warengem et al. [35], [36], [34] y el modelo teórico desarrollado; sin embargo, esta concordancia es cualitativa y se necesitan más detalles respecto a las características del haz para poder hacer una mejor estimación del parámetro  $t$ .

Por otro lado, debe enfatizarse que los efectos del tamaño de haz reflejados en el parámetro  $t = \frac{l}{w_0}$ , son muy relevantes cuando el medio es inhomogéneo y las trayectorias curvas existen. El valor de este parámetro modifica el carácter de las curvas de reflectancia y da una diferencia importante con respecto a la suposición de onda plana incidente, en donde las ondas reflejadas interfieren en todo el espacio. Este punto es importante debido a que se emplea frecuentemente en la interpretación de las curvas de reflectancia en el régimen de *TIR*. Con respecto a este punto, vale la pena mencionar que aunque el método de Berreman está bien establecido para medios estratificados, este no es adecuado cuando existen trayectorias con puntos de retorno como en este caso, por lo que se requiere una teoría más general como la empleada en el modelo discutido.

Finalmente, respecto a las mediciones experimentales, el experimento realizado no tiene la resolución requerida para encontrar información en el espectro de reflectancia. Sin embargo, a pesar de los efectos introducidos por el hemisferio los resultados experimentales muestran cómo la propagación del haz se manifiesta en las curvas de reflectancia y por otro lado los resultados de este análisis permiten entender con una mayor claridad los importantes resultados obtenidos por Warengem et al.

## Capítulo 3

# Determinación Experimental de la Susceptibilidad Dieléctrica

### 3.1. Introducción

En el capítulo anterior se estudio la propagación de haces en celdas híbridas donde las distorsiones en el campo director inducidas por las fronteras dan lugar a un medio altamente inhomogéneo. Para este problema, el acoplamiento de  $\vec{n}$  con el campo óptico es despreciable, esto es, el haz no modifica la configuración inicial del director.

En este capítulo se considera ahora una situación más compleja en donde la interacción del cristal líquido con el campo óptico es pequeña pero no despreciable. Esto es, el cambio de fase no lineal que sufre un haz propagándose en una celda de cristal líquido es menor a  $\pi$  [10], [17],[58]. Por abajo de este límite, la intensidad del haz óptico es menor que la intensidad crítica de Freedericksz para producir la reorientación del campo director (Capítulo 1).

Este tipo de estudios son fundamentales para conocer por un lado, la susceptibilidad eléctrica no lineal de las muestras empleadas, particularmente el factor de amplificación  $\xi$  debido al efecto Jánossy, necesario para el modelo del Capítulo 5. Por otro lado, es importante conocer los mecanismos físicos a este nivel de interacción y así tener argumentos para tomarlos en consideración o despreciarlos en situaciones más complejas como las que se estudian en los capítulos posteriores.

Si bien estudios de este tipo han sido reportado en la literatura [18], [23],[24],[55],[56],[57] las condiciones experimentales de este trabajo son difer-

entes. Mientras que en la mayoría de estos trabajos la incidencia del haz es oblicua<sup>1</sup> [24] o se utilizan haces pulsados<sup>2</sup> [57], [56], aquí se utilizarán haces continuos y a incidencia normal, que son justamente las condiciones experimentales del problema más complejo de la dinámica rotacional que se estudiará en el Capítulo 5.

Cuando la intensidad del campo óptico se incrementa, los efectos no lineales dejan de ser despreciables. La respuesta del medio al campo óptico en términos de la polarización inducida,  $\vec{P}$ , dependerá de potencias superiores de la amplitud del campo. En el caso particular de materiales centrosimétricos, la polarización puede escribirse como potencia impares de la amplitud del campo eléctrico [59],[61],[7];

$$\vec{P} = \chi^{(1)} : \vec{E} + \chi^{(3)} : \vec{E} \vec{E} \vec{E} + O(|E|^4).$$

Como se ha mencionado, los cristales líquidos en general son materiales altamente no lineales en el sentido de que sus propiedades físicas son fácilmente modificadas por campos externos. En el caso particular de la fase nemática, los mecanismos físicos principales asociados a la no linealidad son la reorientación colectiva de las moléculas y los cambios en el índice de refracción debido a cambios de temperatura inducidos por el láser [10]. Estos dos mecanismos son los principales en el experimento aquí reportado. Sin embargo, debe destacarse que pueden existir otros mecanismos físicos (electrónicos, electrostrictivos, etc) que contribuyen a la no linealidad y que dependerán principalmente del tipo de haz empleado [59],[17].

En el caso particular de cristales líquidos puros y considerando solamente mecanismos de reorientación,  $\chi^{(3)}$  es del orden de  $5 \times 10^{-2}$  ues que es 8 órdenes de magnitud mayor que un líquido anisotrópico típico ( $\text{CS}_2$ ). En el caso de efectos térmicos,  $\chi^{(3)}$  es del orden de  $2.4 \times 10^{-5}$  ues, sin embargo ésta es una estimación que depende fuertemente de la absorción del medio [57].

En años recientes se descubrió que al dopar cristales líquidos puros con pequeños porcentajes de tintas dicroicas se produce una torca adicional sobre las moléculas de cristal líquido que puede ser mayor que la torca ejercida por el campo óptico. En particular Jánossy observó que las tintas del tipo antroquinona al ser foto-excitadas refuerzan los efectos de la torca ejercida sobre las moléculas del cristal líquido por el campo óptico induciendo una torca adicional que dependerá principalmente de la concentración de la tinta.

<sup>1</sup>Esto con el fin de evitar los efectos debido al umbral de Fredericksz.

<sup>2</sup>Esto con el fin de minimizar efectos de térmicos.

La consecuencia directa de esta torca es el incremento de la respuesta no lineal del sistema en dos órdenes de magnitud con respecto a la respuesta no lineal de cristales líquidos puros.

En este capítulo se determina experimentalmente la susceptibilidad eléctrica de celdas delgadas con núcleo líquido cristalinos dopados con tintas del tipo antroquinona en el régimen de interacción de respuesta no lineal débil. La caracterización de estas celdas se llevó a cabo por medio de la técnica de Z-Scan [62] que permite obtener simultáneamente la parte real e imaginaria de la susceptibilidad eléctrica de tercer orden o de órdenes superiores. En particular, se utilizó un haz con polarización lineal de onda continua. En este caso y debido al gran valor del coeficiente de absorción, los dos mecanismos físicos fundamentales que contribuyen a la susceptibilidad no lineal son los efectos de temperatura inducidos por el haz así como las fluctuaciones en la orientación del nemático.

El capítulo se organiza de la siguiente forma: en la sección 3.2 se discute brevemente la técnica de Z-Scan empleada, así como la determinación de las cantidades físicas medidas. En la sección 3.3 se presentan los resultados experimentales de las curvas de Z-Scan para celdas dopadas con diferentes concentraciones de tinta. En la sección 3.4 se analizan los resultados de la sección previa, se determina la susceptibilidad eléctrica de las celdas y se discuten las observaciones experimentales. Finalmente, en la sección 3.5 se presenta las conclusiones y una discusión de los posibles mecanismos que contribuyen a la no-linearidad del sistema.

## 3.2. Técnica de Z-Scan

Z-Scan es una técnica común para determinar con un sólo haz el índice de refracción no lineal complejo de muestras delgadas de materiales ópticos no lineales [63]. La técnica se basa en la distorsión espacial del haz generada por el fenómeno de autoenfocamiento. Es decir, el medio no lineal puede ser considerado como una lente delgada de distancia focal dependiente de la intensidad del haz. La técnica consiste en medir la transmitancia del medio no lineal a través de una apertura finita (apertura cerrada) como función de la posición de la muestra medida con respecto al plano focal de un haz enfocado. Una descripción esquemática se muestra en la figura 3.1.

Para una muestra delgada con un espesor,  $l$ , mucho menor que la longitud de difracción del haz,  $z_R$ ,  $l \ll z_R$  y con índice de refracción no lineal positivo,

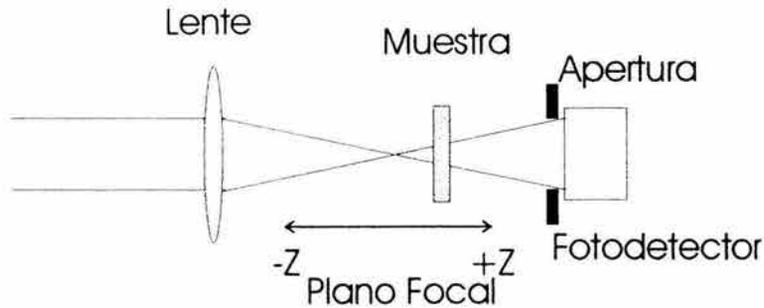


Figura 3.1: Esquema de la técnica de Z-Scan.

$n_2 > 0$ , puede ser vista como una lente delgada convergente cuya distancia focal varía con la posición de la muestra a lo largo del eje  $z$ . Si la muestra se encuentra en una posición prefocal y lejos del plano focal ( $z \ll 0$ ) los efectos no lineales serán despreciables, debido a que la intensidad del haz es pequeña, por lo que la transmitancia a través de la apertura permanece constante. A medida que la muestra se acerca al plano focal, la intensidad del haz crece significativamente y da lugar a un efecto de autoenfocamiento que cambia la posición original del foco, esto es, el haz se enfoca antes de la posición original ( $z = 0$ ) y por tanto el haz se ensancha en el plano de la apertura disminuyendo la transmitancia. Cuando la muestra se encuentra en  $z = 0$ , el foco no se modifica y por tanto la transmitancia no cambia. Para una posición post-focal, la posición de foco efectivo se mueve nuevamente a una posición postfocal y consecuentemente el diámetro del haz disminuye en el plano de la apertura y la transmitancia se incrementa. La situación inversa se da cuando  $n_2 < 0$ , figura 3.2. Si se colecta toda la luz que sale de la muestra en un fotodetector entonces es posible obtener información sobre el coeficiente de absorción no lineal de la muestra.

A partir de la curva de transmitancia versus posición de la muestra, es posible obtener inmediatamente el signo del índice de refracción no lineal, así como su magnitud, ya que la diferencia entre pico y valle es proporcional al cambio de fase no lineal. De igual forma se puede obtener información sobre la magnitud del coeficiente de absorción no lineal cuando no existe la apertura. Los detalles de las ecuaciones básicas que describen la transmitancia como función de la posición y su relación con la susceptibilidad eléctrica no lineal se pueden encontrar en la ref. [63],[64].

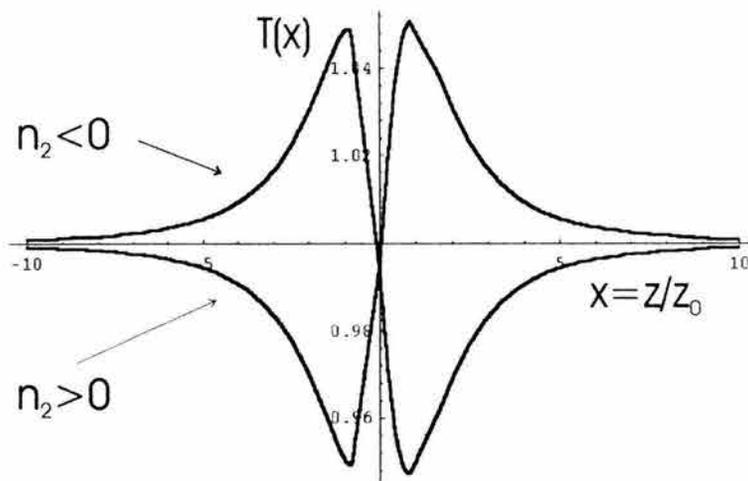


Figura 3.2: Curvas de transmitancia a través de la apertura

### 3.3. Observaciones Experimentales

#### 3.3.1. Preparación de la muestra

Se examinó la respuesta no lineal de 4 celdas con diferentes concentraciones de tinta.

El cristal líquido nemático empleado fue *E7* (Merck) y la tinta fue del tipo antroquinona *R4* (Roche) con una estructura química mostrada en la figura 1.10.

Las celdas fueron construidas con dos placas de vidrio recubierto por una película delgada de *ITO* (50nm). Sobre estas placas se depositó una solución de lecitina y cloroformo por medio del método de "spin coated" para obtener una configuración homeotrópica. Las placas de vidrio fueron separadas por *mylars* de 36 micras de espesor y pegadas en sus orillas con epóxico de 5 minutos. Las concentraciones de la tinta empleada se muestran en la Tabla 3.1.

Tabla 3.1

Muestra	Mezcla
A1	E7+0.1wt %R4
A2	E7+0.3wt %R4
A3	E7+0.5wt %R4
A4	E7

Celdas empleadas en las mediciones de Z-Scan

La homogeneidad en la alineación de la muestra se verificó entre polarizadores cruzados y con un microscopio de polarización. La alineación fue homogénea, sin embargo se detectó la existencia de algunas partículas de polvo. Estas zonas se marcaron para evitarlas.

### 3.3.2. Arreglo experimental

El arreglo experimental empleado se muestra en la figura 3.3. La celda es excitada por un haz de onda continua proveniente de un láser de  $\text{Ar}^{(+)}$  (Coherent) sintonizado a la longitud de onda  $\lambda = 514 \text{ nm}$ . La estabilidad temporal en la intensidad del láser tiene una variación del 3%. La polarización del láser es lineal y la incidencia sobre la muestra es normal.

El haz se encuentra enfocado por una lente con una distancia focal  $f = 150 \text{ mm}$ . El perfil transversal del haz se midió en el plano focal de la muestra observándose que la cintura vertical fue  $w_v = 20.9 \text{ micras}$ , mientras que la cintura horizontal es  $w_h = 28.5 \text{ micras}$ . La cintura promedio resulta ser  $\bar{w} = 24.7 \text{ micras}$  y la longitud de difracción,  $z_0 = 3.82 \text{ mm}$ .

La potencia del haz fue controlada a través de un sistema de retardador de media longitud de onda ( $WP$ ) y un polarizador ( $P$ ). La muestra fue montada sobre una platina de translación,  $TS$ , (Daedal) que se desplaza a lo largo de la trayectoria del haz a través del plano focal de la lente. Los experimentos se llevaron a cabo a temperatura ambiente.

Un divisor de haz se introdujo en la trayectoria antes de la lente para enviar la señal de referencia a un fotodetector,  $PD1$ . Un segundo divisor de haz se introdujo después de la muestra y con ayuda de una lente convergente de distancia focal pequeña, se colectó toda la intensidad del haz para ser medida por un segundo fotodetector sin apertura,  $PD2$ . La transmitancia con apertura se midió con un tercer fotodetector,  $PD3$ , colocado a  $1 \text{ m}$  de distancia de la muestra con una apertura que dejaba pasar el 5% de la luz en el régimen lineal.

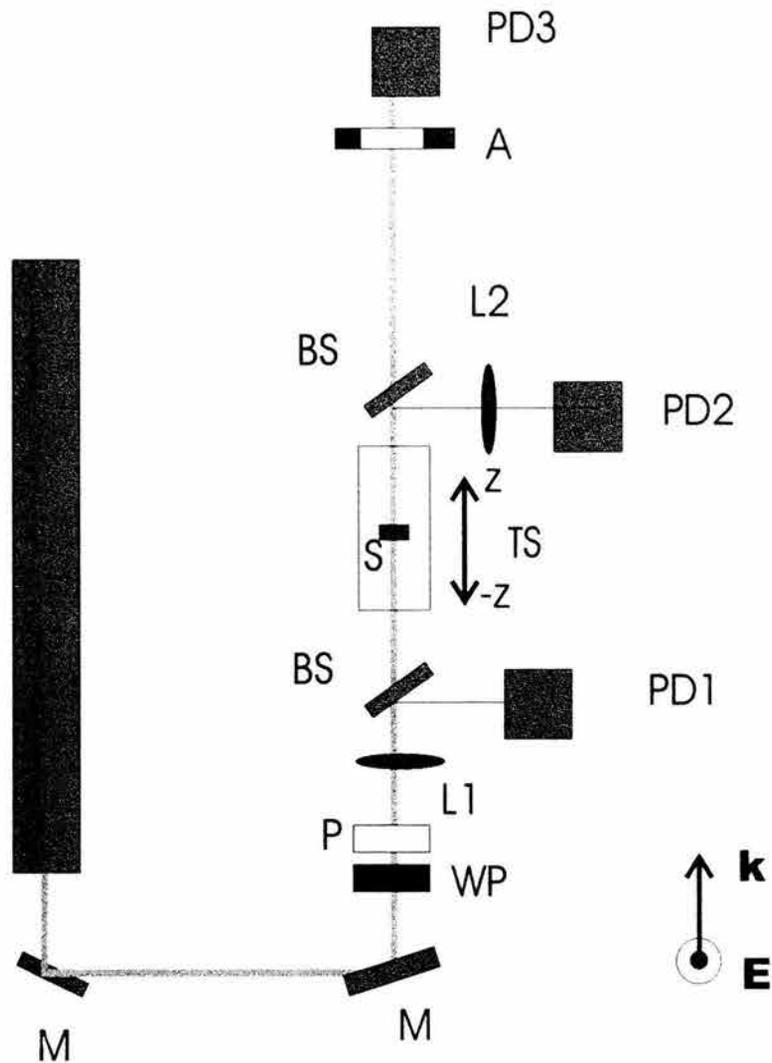


Figura 3.3: Esquema del arreglo experimental. M,: espejos, WP: retardador  $\lambda/2$ , P: polarizador, BS: divisores de haz, L1, L2, lentes convergentes, TS: platina de translaci3n, S: muestra, PD1 fotodetector de referencia, PD2 fotodetector con apertura abierta, PD3 fotodetector con apertura cerrada, A: apertura

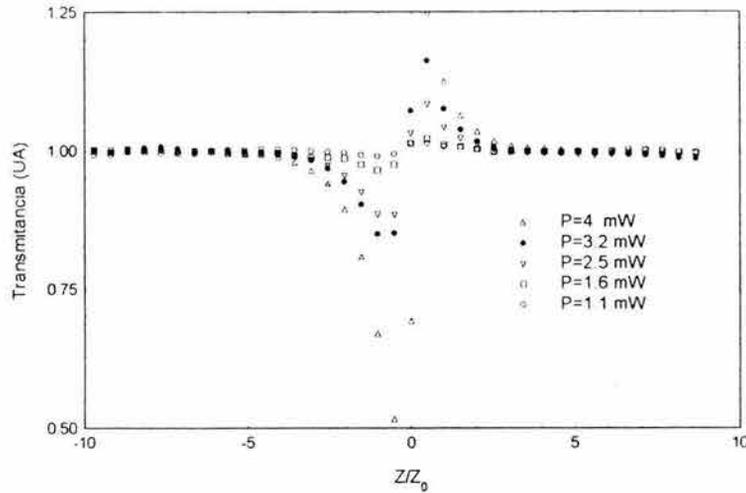


Figura 3.4: Curvas de transmitancia para la muestra dopada al 0.5% wt de RA.

Las señales de los fotodetectores fueron adquiridas con una tarjeta de adquisición de datos. Se tomaron 500 lecturas para cada punto a intervalos de  $1\text{ ms}$ . El valor representativo de cada punto se tomó como el valor promedio de las 500 lecturas. La platina, así como la adquisición de las señales de los fotodetectores fue controlada por una computadora de tal forma que el experimento se automatizo completamente. La intensidad del haz se midió como función de la posición. Al moverse la platina el programa espera 10 segundos antes de tomar cada lectura para que la muestra se estabilizara.

Para cada celda se determinaron las curvas de Z-Scan a diferentes potencias. Con el fin de detectar cambios pequeños en la la diferencia de fase no lineal, primero se obtuvieron las curvas a potencia bajas para obtener una línea base que se sustrae de las curvas de Z-scan a potencias mayores, con el fin de reducir los efectos debidos a inhomogeneidades en la muestra.

En todos los casos la incidencia fue normal, por lo que existe un valor umbral para la reorientación, sin embargo, las potencia empleadas se encuentran por abajo de la potencia umbral de Freedericks.

En las siguientes gráficas, figs.3.4- 3.7 se muestran las curvas típicas de Z-Scan y de absorción no lineal para una celda dopada y para la celda con el nemático puro E7.

De ellas es posible conocer inmediatamente el signo del índice de refrac-

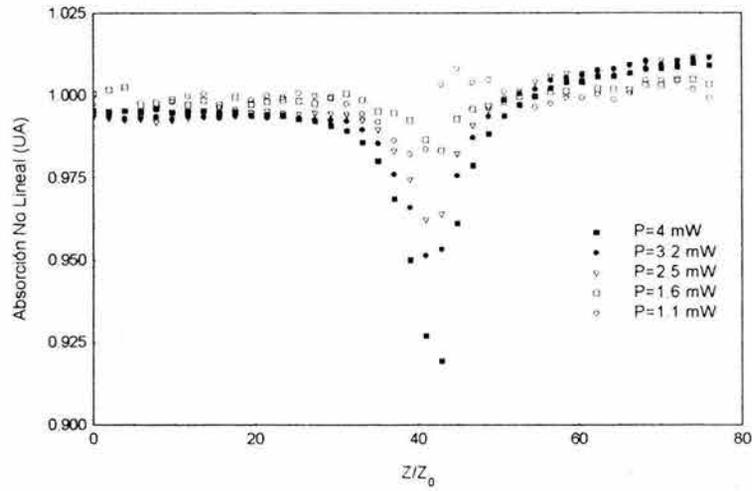


Figura 3.5: Absorción no lineal de la muestra dopada al 0.5% wtR4

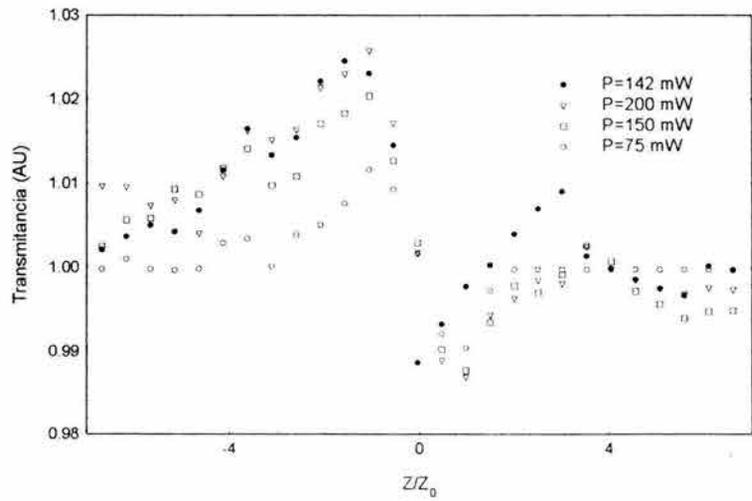


Figura 3.6: Curvas con apertura cerrada para la muestra de E7 puro

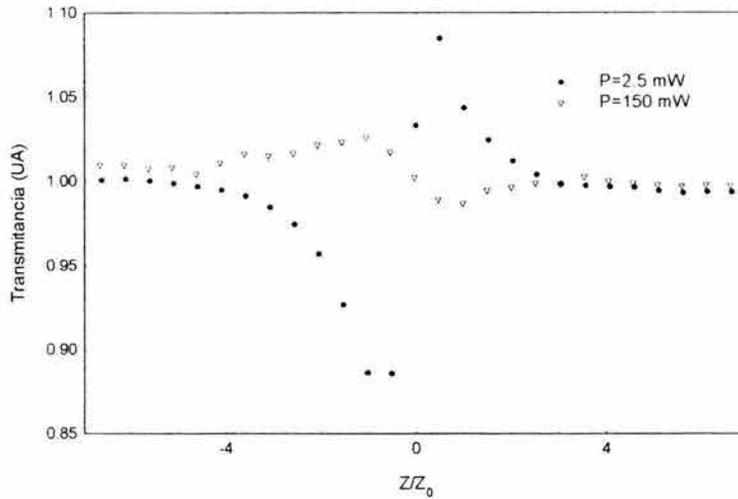


Figura 3.7: Comparación entre las respuestas de la muestra dopada (triángulos) y pura (círculos).

ción no lineal. En el caso de la muestras dopadas se tiene una configuración tipo valle-pico, por lo que se tiene que  $n_2$  es positivo para las celdas dopadas con tinta mientras que es negativo en el caso de la celda con E7.

Debido a que los efectos de absorción no lineal y los efectos de refracción no lineal están mezclados en la señal que llega al fotodetector con apertura cerrada,  $PD3$ , es necesario separarlos para determinar el índice de refracción no lineal. En la referencia [63] se muestra un procedimiento sencillo para separar estos efectos que consiste en dividir la curvas normalizadas de transmitancia con apertura ( $Z$ -Scan) entre sus correspondientes curvas de absorción. Sin embargo, de acuerdo con las aproximaciones realizadas en la ref. [63] ésto sólo es posible si se satisface que

$$\beta/2k |\gamma| \leq 1, \quad (3.1)$$

en donde  $\beta$  es el coeficiente de absorción no lineal y  $\gamma$  es coeficiente asociado al índice de refracción no lineal,  $n_2 = \gamma I$ . Al satisfacerse estas condiciones es posible obtener  $n_2$  con un error menor al 10%.

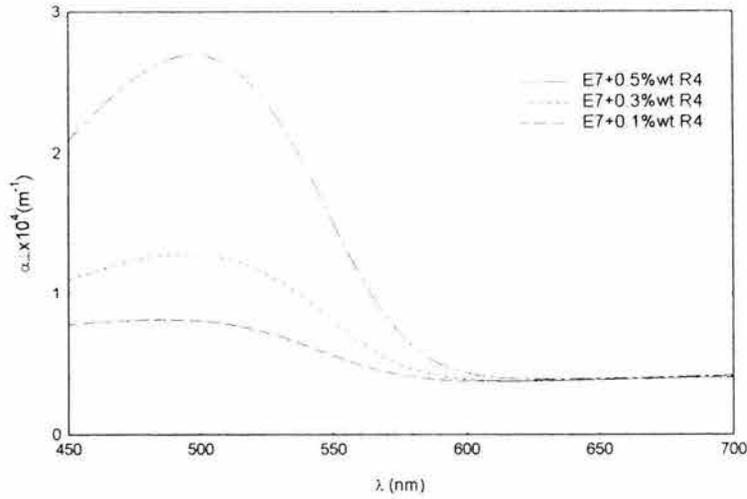


Figura 3.8: Coeficiente de absorción lineal para las celdas dopadas.

#### Determinación de los coeficientes lineales de absorción.

Estos coeficientes se determinaron usando un espectrómetro (Milton Roy) en cada una de las celdas tomando como referencia una celda vacía con el mismo espesor. Debe mencionarse que en este caso y debido a que la muestra es altamente dicróica, existen dos coeficientes de absorción  $\alpha_{\perp}$  y  $\alpha_{\parallel}$ . Con las celdas en una configuración homeotrópica, solamente fue posible obtener el coeficiente de absorción perpendicular al campo director,  $\alpha_{\perp}$ . Sin embargo, debido a que las mediciones de Z Scan se realizaron por abajo de la intensidad crítica de Frederickzs no existe una reorientación considerable por lo que este es el coeficiente que tiene mayor contribución en los resultados obtenidos.

Los coeficientes de absorción como función de la longitud de onda para cada celda se muestran en la Figura 3.8. En la Tabla 3.2 se muestran  $\alpha_{\perp}$  y el espesor efectivo

$$L_{eff} == \frac{1 - \exp(-\alpha_0 L)}{\alpha_0}, \quad (3.2)$$

para  $\lambda = 514 \text{ nm}$

Tabla 3.2

Celda	$\alpha_{\perp} \times 10^4 (m^{-1})$	$L_{eff} (\mu m)$
A1	0.7698611	31.44
A2	1.227306	29.1
A3	2.574722	23.46

Coefficientes lineales de absorción

### 3.4. Análisis de los resultados

La distancia promedio de separación entre valle-pico,  $|Z_{v-p}|$  para las curvas dopadas con tinta es de  $1.28 Z_0$  mientras que para la celda con *E7* puro es  $|Z_{v-p}| = 2.05 Z_0$ . De acuerdo con el análisis desarrollado en la ref [63] para materiales con  $\chi^{(3)}$   $|Z_{v-p}| = 1.7 Z_0$ , mientras que para un material sólo con  $\chi^{(5)}$   $|Z_{v-p}| = 1.2 Z_0$ . La razón de estas dos cantidades debe ser independiente de  $Z_0$ , así, idealmente se tiene

$$\left| Z_{v-p}^{x(5)} \right| / \left| Z_{v-p}^{x(3)} \right| = 0.705,$$

mientras que de los datos experimentales resulta que

$$\left| Z_{v-p}^{x(5)} \right| / \left| Z_{v-p}^{x(3)} \right| = 0.63.$$

Este es un fuerte indicativo de que las contribuciones no lineales de orden superior al tercero no son despreciables. Más adelante, al obtener una relación del cambio de fase no lineal con la intensidad, se demuestra que la relación no es lineal como sucede en el caso de una celda con cristal líquido puro.

Antes de hacer un ajuste es necesario analizar la absorción no lineal y su dependencia con la potencia de entrada para establecer si se cumple la condición (3.1) y poder separar los efectos de absorción de las curvas de transmitancia con apertura cerrada con el método de la ref. [63].

Para llevar a cabo este análisis se considera que el medio presenta un coeficiente de absorción no lineal dado por

$$\alpha(I) = \alpha_0 + \beta I, \quad (3.3)$$

donde  $\alpha_0$  es el coeficiente de absorción en el régimen lineal obtenido previamente y  $\beta$  es el coeficiente de absorción asociado al término no lineal.

Bajo esta hipótesis la potencia total transmitida a través de la celda es [63]

$$P_{tot} = \frac{\text{Ln}(1 + q_0(z))}{q_0(z)}, \quad (3.4)$$

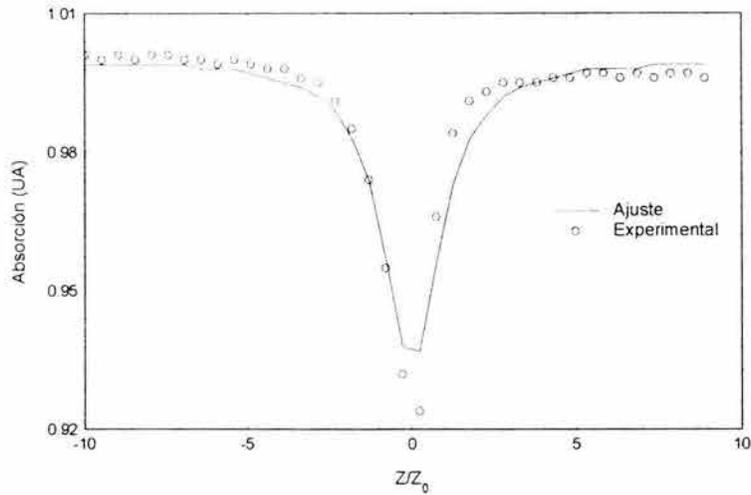


Figura 3.9: Absorción no lineal para la celda de E7+0.5 % wt R4. La potencia empleada es 4 mW.  $q_0 = 0.1464$

donde  $q_0(z) = q_0/(1 + (z/z_0)^2)$ ,  $q_0 = \beta I_0 L_{eff}$ . En esta expresión se ha normalizado con respecto a la potencia total transmitida en el régimen lineal.

Bajo esta consideración es posible ajustar las curvas de absorción no lineal con la ec. (3.4). Un ejemplo de este ajuste se muestra en la figura 3.9 La dependencia de  $q_0$  con la potencia aplicada se muestran en la figura 3.10.

Estos resultados fueron obtenidos para las muestras dopadas con 0.3% y 0.5% de R4. Los resultados para el caso particular de la celda dopada al 0.1%, las curvas de absorción no presentaron un comportamiento regular por lo que no fue posible ajustarles en forma fidedigna la curva descrita por la ec (3.4). Por otro lado, en el caso de la celda con E7 no se detecto una señal para la absorción no lineal.

Como se puede apreciar de la figura 3.10, la relación entre  $q_0$  y la potencia del haz es una relación lineal para el caso de la celda con 0.3% R4; en el caso de la celda con 0.5% R4 la relación deja de ser lineal para potencias mayores a 4mW.

Para determinar completamente  $\beta$  es necesario conocer los coeficientes de absorción lineales obtenidos previamente. Ahora bien, de las curvas de absorción no lineal se tiene que el coeficiente de la recta ajustada  $C$ , para la celda A2 (E7+0.3%wtR4) es  $C=0.00604$  y para la celda A3 (E7+0.5%wtR4)

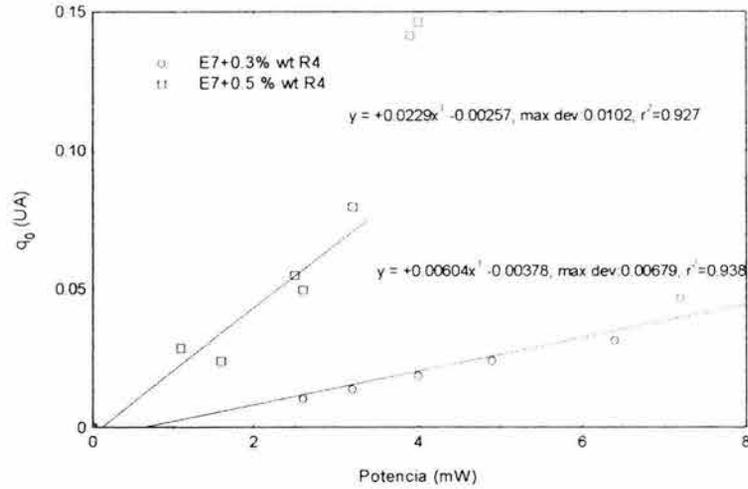


Figura 3.10: Dependencia del coeficiente de absorción no lineal para dos concentraciones diferentes

$C=0.023$ . Usando la definición de  $q$  dada arriba se tiene que  $C$  es igual a

$$C = \frac{2L_{eff}}{\pi w_0^2} \beta.$$

Usando  $w_0 = 25 \mu m$  y las respectivas longitudes efectivas dadas en la Tabla 3.2 se tiene que  $\beta = 0.02 \text{ cm/GW}$  para la celda dopada al 0.3% R4 y  $\beta = 0.9 \text{ cm/GW}$  para la celda dopada 0.5% R4.

Las curvas de  $Z$ -Scan, se ajustaron con un proceso de tercer orden para la celda con nemático puro y un proceso de quinto orden para las celdas dopadas. Esto con base a la evidencia respecto a la separación entre el pico y valle, y por otro lado, a un análisis preliminar respecto a la diferencia entre las alturas relativas de pico y valle que muestran una dependencia no lineal con respecto a la potencia aplicada, como lo es en el caso de la celda con  $E7$ . Así que se procederá a ajustar las curvas de  $Z$ -Scan sin efectos de absorción con respecto a las curvas definidas como

$$T^{X(3)}(z) = 1 + \frac{4\Delta\phi^{X(3)}x}{(x^2 + 9)(x^2 + 1)}, \quad (3.5)$$

$$\Delta\phi^{X(3)} = k\gamma L_{eff}^{X(3)} I_0. \quad (3.6)$$

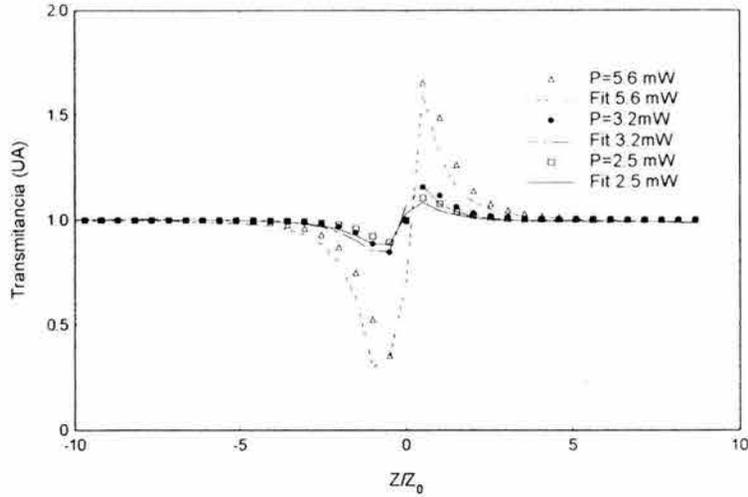


Figura 3.11: Ajuste de Curvas para E7+0.5%wt R4.

para la celda con *E7*. Para el caso de las curvas de Z-Scan dopados con tinta es posible demostrar siguiendo un procedimiento similar a la obtención de (3.5) [63], que para un material con índice de refracción no lineal dado por

$$\Delta n = \eta I^2, \quad (3.7)$$

la transmitancia estará dada por

$$T^{\chi(5)}(z) = 1 + \frac{8\Delta\phi^{\chi(5)}x}{(x^2 + 25)(x^2 + 1)^2} \quad (3.8)$$

donde

$$\Delta\phi^{\chi(5)} = k\eta L_{eff}^{\chi(5)} I_0^2. \quad (3.9)$$

Aquí  $L_{eff}^{\chi(3)}$  está dado por la ec.(3.2) y

$$L_{eff}^{\chi(5)} = \frac{1 - \exp(-2\alpha_0 L)}{2\alpha_0}, \quad (3.10)$$

con  $k = 2\pi/\lambda$  e  $I_0$  es la intensidad sobre en el centro del haz Gaussiano en el plano focal. Un ejemplo de las curvas ajustadas se muestra en la figura 3.11.

Del ajuste de la curvas es inmediato obtener una relación entre el cambio de fase  $\Delta\phi^{\chi(5)}$  y la potencia empleada. Esto se ilustra en la figura 3.12.

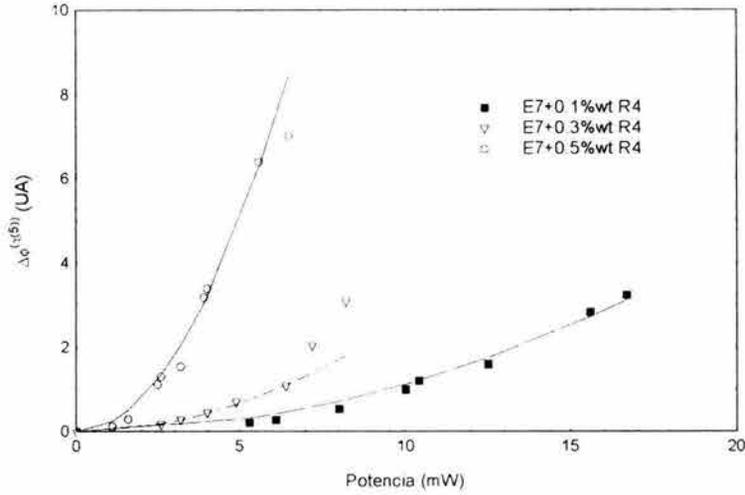


Figura 3.12: Ajuste del cambio de fase no lineal como función de la potencia de entrada. Las líneas representan las curvas ajustadas por la relación cuadrática,  $\Delta\phi = BP + AP^2$

Las curvas de esta gráfica fueron ajustadas por

$$\Delta\phi^{(5)} = BP + AP^2, \quad (3.11)$$

donde

$$A = k\eta L_{eff}^{\chi(5)} \left( \frac{4}{\pi^2 w_0^4} \right).$$

$$B = k\gamma^* L_{eff}^{\chi(3)} \left( \frac{2}{\pi w_0^2} \right).$$

Ahora bien utilizando el coeficiente de absorción se calcula  $L_{eff}^{\chi(5)}$  y de las curvas ajustadas se determina el coeficiente  $A$  y con estos datos podemos obtener  $\eta$  y  $\gamma^*$ . Los resultados se ilustran en la siguiente Tabla 3.4

Tabla 3.4

R4	$L_{eff}^{\chi(5)}$	$A$	$\delta A$	$\eta \cdot 10^{-17}$	$\% \delta \eta$	$B$	$\delta B$	$\gamma \cdot 10^{-10}$	$\% \delta \gamma$
%wt	$\mu m$	$mW^{-2}$	$mW^{-2}$	$\frac{m^4}{W^2}$		$\frac{1}{mW}$	$\frac{1}{mW}$	$\frac{m^2}{W}$	
0.1	27.64	.01406	.0005	4.0	3.76	-.04123	.007	-1.05	16.97
0.3	23.90	.04625	.0096	15.22	20.81	-.082	.057	-2.26	69.0
0.5	16.37	.2707	.032	130.32	11.79	-.2621	.1095	-8.97	41.77

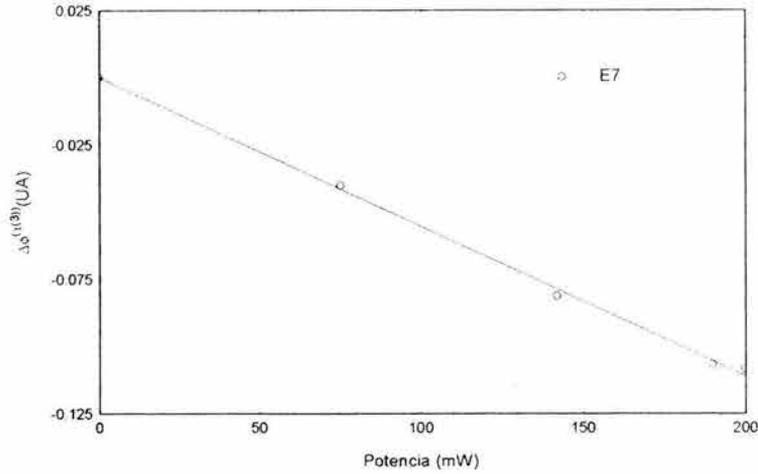


Figura 3.13: Ajuste del cambio de fase no lineal como función de la potencia. En este caso se ajustó con un proceso de tercer orden

Valores de los coeficientes no lineales de tercer y quinto orden para distintos concentraciones de tinta. Si los datos sólo se ajustaran por un proceso de quinto orden se tiene entonces los siguientes resultados

Tabla 3.5				
%R4	$A(1/(mW)^2)$	$\delta A(1/(mW)^2)$	$\eta(m^4/W^2) \times 10^{-17}$	% $\delta\eta$
0.1	0.01114	0.0003	3.17	2.69
0.3	0.0267	0.00051	12.78	1.91
0.5	0.2006	0.00566	130.3	2.82

Valores de los coeficientes no lineales considerando sólo un proceso de quinto orden.

Para la celda con *E7* se lleva a cabo el ajuste considerando que la no linealidad es de tercer orden ec (3.5). El cambio de fase,  $\Delta\phi^{(3)}$  se obtiene como función de la potencia, figura 3.13

El ajuste es lineal y la línea que mejor ajusta es

$$\Delta\phi^{(3)} = (0.284 - 5.44P)10^{-4}$$

y su pendiente tiene un error estandar de  $5.59 \cdot 10^{-6}$ .

El coeficiente de absorción del *E7* es  $a_0 = 100 \text{ m}^{-1}$  por lo que su longitud efectiva es  $L_{eff} = 35.96 \mu\text{m}$ , usando la pendiente de la recta ajustada  $m = 5.44 \times 10^{-4}$ , se tiene que  $\gamma = -1.2158 \times 10^{-12} \text{ m/W}$ .

### 3.5. Discusión

Es interesante notar que en el caso de la celda con  $E7$  puro el índice de refracción no lineal,  $n_2$ , es negativo mientras que en los sistemas dopados resulta positivo.

Para el  $E7$  puro con el haz a incidencia normal los efectos de absorción no fueron detectados, sin embargo aunque no exista evidencia de absorción no lineal, el cambio en el índice de refracción puede deberse a efectos térmicos (lente térmica). En efecto, si consideramos que el láser induce un aumento en la temperatura de la muestra, esto genera un gradiente de temperaturas y por consiguiente el índice de refracción ordinario aumenta con la temperatura mientras que el índice de refracción extraordinario disminuye (ver capítulo 1). Bajo este esquema si consideramos un cambio en el índice de refracción asociado a cambios en la temperatura el cambio en el índice de refracción debe ser proporcional a la variación del índice de refracción con la temperatura,  $dn_{(e,o)}/dT$ . Para  $n_o$ ,  $dn_o/dT > 0$  Ahora bien, resulta curioso que en el caso de incidencia normal para una celda homeotrópica  $n_2$  es negativo, cuando es de esperarse que al encontrarse la celda en una configuración homeotrópica el índice de refracción que siente la onda sea  $n_o$ , por lo que el cambio  $n_2$  en principio debe ser positivo. Sin embargo, dado que las potencia empleadas son cercanas a la potencia crítica de Freedericksz, se ha demostrado [65], [66] que las fluctuaciones en la orientación son considerables, esto implicaría que existe una componente no nula a lo largo de la dirección paralela a  $\vec{n}$ , por lo que el índice  $n_2$  en nuestro experimento siente el efecto de ambos índices de refracción  $n_{||}$  y  $n_{\perp}$ . Observaciones experimentales reportadas en la literatura [56] muestran que  $n_{2||} = -2n_{2\perp}$ , por lo que es de esperarse que exista una contribución mayor de  $n_{2||}$  en nuestras observaciones.

Así en el sistema no dopado, los efecto térmicos y de reorientación a través de fluctuaciones en la orientación contribuyen a la no linealidad de tercer orden.

Los sistemas dopados presentan una fenomenología más interesante, ya que la contribución de la susceptibilidad a quinto orden es del orden o mayor a la contribución de tercer orden. Este caso, hasta donde se tiene conocimiento, no ha sido reportado en la literatura y mediciones realizadas en otras muestras [67] bajo las mismas condiciones experimentales muestran que esta contribución está presente.

Una posible explicación puede ser que la susceptibilidad de quinto orden en realidad sea el producto de dos contribuciones de tercer orden, en donde

las fluctuaciones en la orientación del nemático sean considerables aún para intensidades por abajo de la transición de Freederickzs. Esto trae como consecuencia que el cambio en el índice de refracción sea proporcional a

$$\Delta n \approx n_o \left( \frac{1}{2} \frac{n_o^2 \varepsilon_a}{n_e^2 K} |E|^2 L^2 + O(E^4) \right), \quad (3.12)$$

Ahora bien si además se considera que  $n_o$  y  $n_e$  dependen de la temperatura entonces es posible expresar al coeficiente  $n_o$  que aparece al frente de 3.12 como una serie de potencias con respecto a la temperatura

$$n_o = n_0 + \frac{dn_o}{dT} \delta T + O(T^2) \quad (3.13)$$

De acuerdo con los resultados obtenido en [17], al resolver la ecuación de calor se obtiene que  $\delta T \sim I$  y por consiguiente al sustituir 3.13 en 3.12 resulta que el cambio en el índice de refracción depende en forma cuadrática con la potencia.

Esta propuesta es muy preliminar y actualmente se está trabajando en un modelo más elaborado para tener los coeficientes adecuados a este problema.

Sin embargo una de las características más notorias de estos resultados experimentales resulto ser que el coeficiente asociado a la contribución no lineal de tercer orden en los sistemas dopados resulta negativo y dos órdenes de magnitud menor que el coeficiente  $\gamma$  del cristal líquido sin dopar.

Si tomamos la razón de estos dos coeficientes notamos que el factor de amplificación

$$\xi = \frac{\gamma_{dye}}{\gamma_{puro}} \sim \frac{738}{\varepsilon_a} \sim 300 \quad (3.14)$$

para las celda con un mayor porcentaje de R4.

## Capítulo 4

# Formación de Estructuras Espaciales: Efectos de la Inestabilidad Transversal en el Patrón de Difracción

### 4.1. Introducción

En el capítulo anterior se determinó la susceptibilidad dieléctrica no lineal de celdas líquido cristalinas. A ese nivel de aproximación la respuesta no lineal del medio es tal que los cambios de fase no lineales,  $\Delta\phi_{nl}$  son menores a  $\pi$ . Esto implica que la intensidad del campo óptico es menor a la intensidad crítica de Freedericksz y, por consiguiente, los efectos de reorientación sólo se dan a través de las fluctuaciones en la orientación del cristal líquido cerca de la transición de Freedericksz.

Cuando se utilizan potencias mayores al umbral de Freedericksz, el campo director se reorienta en dirección paralela a la componente eléctrica del campo óptico. Esto produce un gran cambio en el índice de refracción efectivo de la muestra, de tal forma que genera cambios de fase mayores a  $\pi$ . Estos cambios se manifiestan en el patrón de difracción de campo lejano como un conjunto de anillos concéntricos cuyo número depende de la potencia del haz incidente. En este régimen de interacción la técnica de Z-Scan deja de tener utilidad ya que las hipótesis involucradas para determinar los cambios de fase no lineales dejan de tener validez. Sin embargo, es posible obtener

información sobre el cristal líquido y su interacción con el haz óptico a través del estudio del patrón de difracción no lineal que se genera y su dependencia con la intensidad del haz aplicado. Esta técnica se conoce como "Intensity Scan". El estudio de la interacción del campo óptico con cristales líquidos puros en este régimen de interacción fuerte, se llevó a cabo desde el momento mismo del descubrimiento de la transición de Freedericksz óptica, en donde se observó un patrón de anillos en el campo lejano y se establecieron los modelos teóricos que permitieron entender estos fenómenos [68],[69],[16].

En todos estos trabajos se han considerado las interacciones de campos ópticos con diferentes configuraciones orientacionales [16], y la influencia del área transversal del haz en la intensidad crítica de Freedericksz [70]. Sin embargo, los efectos transversales del tamaño del haz sobre la muestra cuando la intensidad del campo sobrepasa la intensidad crítica, son escasos [73],[55],[72]. Es de esperarse que a intensidades por arriba del campo crítico la configuración orientacional del cristal líquido sea completamente paralela a la componente eléctrica del campo óptico y, por tanto, se alcance un régimen de saturación. Esto ocurre cuando las dimensiones del haz son mucho mayores que el espesor de la muestra, por lo que el campo director siente el efecto de una onda plana y la orientación del director es homogénea a lo largo del plano transversal a la propagación del haz. Sin embargo, cuando el diámetro del es más pequeño que el espesor de la muestra, es de esperarse que la reorientación del director dependa de las direcciones transversales. En este caso los efectos del haz estarán localizados en la región en donde se encuentre incidiendo y, su efecto sobre la orientación decrece conforme la distancia al centro del haz aumenta. Esto genera una inestabilidad transversal cuyo efecto se manifiesta en la formación de estructuras espaciales en el patrón de difracción de campo lejano. El efecto se hace más prominente conforme el espesor de la muestra se incrementa, ya que al propagarse el haz dentro de la celda sufrirá un cambio de fase, y por tanto, un autoenfocamiento tal que el haz se concentra a medida que el cambio de fase no lineal se incrementa. Esto, a su vez, trae como consecuencia un cambio en la intensidad del haz, ya que ahora su diámetro es más pequeño que el diámetro a la entrada de la muestra por lo que afectará aún más su cambio de fase y la reorientación sobre las moléculas se hace más localizada. Este es un efecto de retroalimentación (Feedback), pero en este caso no es externo como en el caso en donde la señal se inserta nuevamente en el medio a través de dispositivos externos. La formación de estructuras espaciales en el patrón de difracción por efecto de Feedback es el problema que se estudiará en este capítulo. Esta es

una manifestación de los fenómenos no locales que ocurren dentro del cristal líquido a altas intensidades del campo óptico.

La formación de estructuras espaciales en el patrón de difracción no lineal de cristales líquidos por efectos de retroalimentación ha sido estudiada en cavidades de Fabry Perot [74] y en válvulas formadas por celdas líquido cristalinas [71]. En estos trabajos los efectos de retroalimentación se dan en forma externa, es decir, la respuesta de salida del campo óptico es re-introducida al sistema por agentes externos. Estos pueden ser los espejos en caso de las cavidades de Fabry Perot o reinsertarse a la celda por medio de fibra óptica, dando origen a diversos patrones espaciales que dependen de la intensidad del haz empleado. Sin embargo, en estos dos ejemplos el medio no genera al mecanismo de auto-retroalimentación.

Como ya se mencionó más arriba, la formación de estructuras espaciales en este problema se da como un efecto de auto-retroalimentación en donde el cristal líquido es el responsable de generar la retroalimentación. El mecanismo responsable en este caso es el efecto Kerr, en donde el índice de refracción depende de la intensidad del haz incidente de la siguiente manera,

$$n = n_0 + n_2 I(\vec{r}).$$

Cuando un haz Gaussiano incide sobre la celda de cristal líquido, al propagarse dentro de la celda sufre un cambio de fase no lineal (modulación de fase) que modifica el perfil transversal original, reduciendo su cintura original. Esto a su vez, modifica la distribución inicial de irradiancia a medida que se propaga en el cristal líquido (modulación de amplitud). Ya que el haz se vuelve más intenso, el campo director trata de distorsionarse aún más. Esta distorsión a su vez, modifica el índice de refracción, y por tanto, se modifica nuevamente la fase. De aquí se tiene un mecanismo de retroalimentación. Si el espesor de la celda  $l$  es menor que la cintura del haz, el efecto se hace más evidente ya que la interacción del haz láser con el medio se hace más localizada. Las torcas elásticas que ejercen las moléculas del cristal líquido fuera de la región donde se encuentra el haz generan un gradiente transversal de orientaciones que da origen a una inestabilidad transversal a partir de un valor umbral de la intensidad por arriba del umbral de Freederciksz. Su efecto en el patrón de difracción en el campo lejano se manifiesta con la aparición de estructuras espaciales, que aparecen como regiones circulares de máxima intensidad o "spots" superpuestas al patrón de difracción original.

Para discutir este problema, este capítulo está organizado de la siguiente forma. En la sección 2 se presentan los resultados experimentales; preparación

de las muestras, arreglo experimental y resultados. En la sección 3 se presenta un modelo para explicar este fenómeno. Se calculan teóricamente el valor umbral en donde crece la inestabilidad transversal, así como el vector de onda asociado a ésta. En la sección 4 se analizan los resultados experimentales y se confrontan con las predicciones teóricas. Finalmente, en la sección 5, se presentan las conclusiones generales de este análisis.

## 4.2. Observaciones experimentales

### 4.2.1. Preparación de muestras y arreglo experimental

Se prepararon 3 celdas con las siguientes muestras: *8CB* (K24) en fase nemática,  $N \in [33.5C - 40.8C]$ , *E7* con una temperatura de transición nemático - isotrópico de  $60^\circ$  y una mezcla de *E7* dopado al 0.6% del peso total, con la tinta *R4* discutida en el capítulo anterior.

Los índices de refracción para *E7* son  $n_e = 1.735$ ,  $n_o = 1.526$ , y para *8CB* son  $n_e = 1.661$ ,  $n_o = 1.524$ .

Las celdas fueron construídas usando dos placas de vidrio con una película delgada de *ITO*. Las placas se recubrieron con una película de lecitina depositada por medio de "*spin-coated*" para obtener un alineamiento homeotrópico. La separación entre placas se hizo por medio de *mylars* con un espesor,  $d$ , de 126 micrones y posteriormente se sellaron en sus orillas con epóxico. La alineación homeotrópica fue verificada utilizando un microscopio de polarización con el cual se observó una alineación homogénea.

La formación de estructuras espaciales se observó con el arreglo experimental mostrado en la figura 4.1 Sobre la celda incide un láser de onda continua con una longitud de onda,  $\lambda = 514$  nm. El perfil del haz es Gaussiano y su polarización es lineal. El haz se encuentra enfocado sobre la muestra por una lente con una distancia focal de 85 mm. El perfil transversal del haz fue medido directamente en el plano focal de la lente a lo largo de las direcciones horizontal y vertical, con lo cual se obtuvo una cintura promedio de  $\bar{\omega} = 22$   $\mu m$ . Sin embargo, el haz no presenta una simetría circular; el perfil horizontal tuvo una cintura de  $\omega_H = 30.9$   $\mu m$ , mientras que la cintura vertical fue de  $\omega_V = 13.2$   $\mu m$ .

La intensidad del haz se controla mediante un retardador de media longitud de onda, *HWP*, y un polarizador, *P*. La potencia incidente fue medida por un fotodetector previamente calibrado que recibe parte del haz gracias a

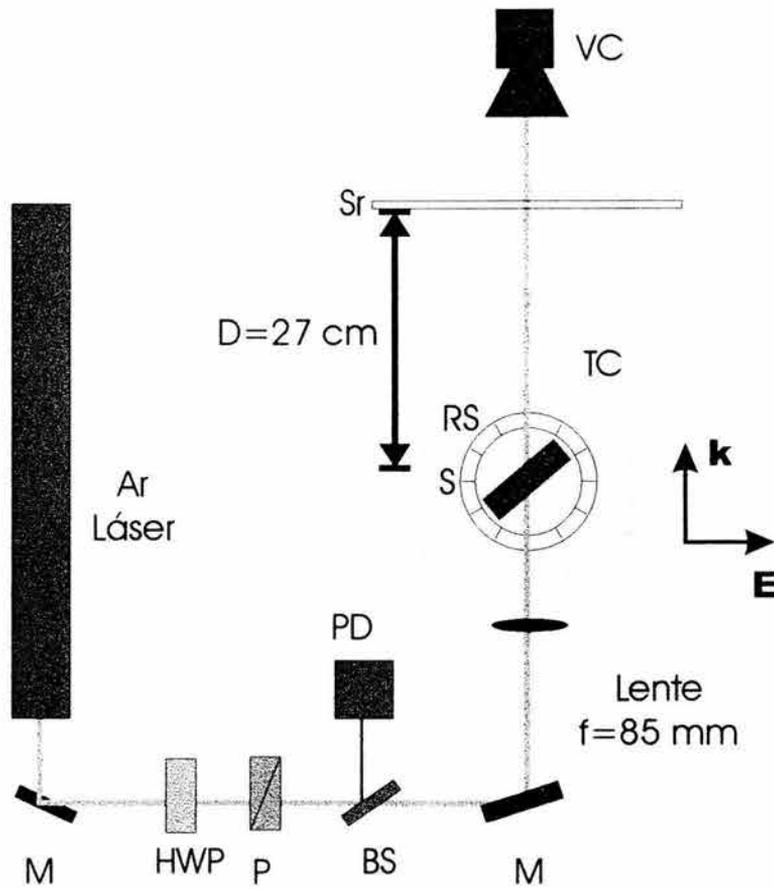


Figura 4.1: Esquema del arreglo experimental, :  $M$  : espejos, HWP: retardador  $\lambda/2$ ,  $P$  : polarizador,  $BS$  : divisor de haz,  $PD$  : fotodetector,  $S$  : muestra,  $RS$  : platina de rotación  $SR$  : pantalla,  $VC$  : camara de video.

un divisor de haz insertado antes de la lente.

El haz incide en forma oblicua sobre la muestra de tal forma que el estado de polarización es el transversal magnético, esto es, la componente del campo eléctrico es perpendicular al plano de incidencia.

Las mediciones para las celdas con *E7* y *E7+ R4* se hicieron a temperatura ambiente (23° C), mientras que en el caso de la celda con *8CB* se utilizó una platina de calentamiento (Instec MK1) que mantenía la temperatura en 40.5° C, es decir, cerca de la temperatura de transición nemático-isotrópico.

El patrón de difracción no lineal fue proyectado en una pantalla translúcida colocada a una distancia  $D = 27 \text{ cm}$ . Con la ayuda de una cámara digital, (Canon Optura) se grabó el patrón de difracción no lineal como función de la potencia de entrada para su análisis posterior.

#### 4.2.2. Determinación de la intensidad crítica de Fredericks

La potencia umbral de Fredericksz fue medida colocando la muestra en el plano focal de la lente. El estado de polarización del haz es lineal y la incidencia sobre la muestra fue normal. Bajo estas condiciones se incrementó la potencia hasta que el primer anillo de difracción aparece. Debido a que la intensidad del haz no era muy estable, se determinó el rango en el que este primer anillo aparecía y de este se obtuvo una potencia promedio. La intensidad,  $I$ , fue calculada utilizando la cintura del haz promedio en el plano focal,  $\bar{\omega} = 25 \mu\text{m}$ , y la relación  $I = \frac{2P}{\pi(\bar{\omega})^2}$ , en donde  $\bar{P}$  denota la potencia promedio medida antes de la lente. Los resultados se muestran en la Tabla 4.1

Tabla 4.1

Muestra	$[P_{\text{máx}}, P_{\text{mín}}]$ [mW]	$\bar{P}$ [mW]	$I$ [W/m <sup>2</sup> ]
8CB	23.56 - 21.38	22.47	$3.02 \times 10^7$
E7	47.97 - 53.20	49.45	$6.5 \times 10^7$
E7+ R4	8.48 - 9.66	8.96	$1.17 \times 10^7$

#### 4.2.3. Modulación de auto fase y formación de estructuras espaciales

Una vez determinada la intensidad crítica de Fredericksz, la muestra se gira a 26° con respecto al haz incidente de tal forma que el campo director

se encuentre en el plano de incidencia. En este caso, al no existir un valor umbral para la intensidad, la estructura de anillos en el patrón de difracción aparece a potencias más bajas como se muestra en las figuras 4.2 y 4.3. Como es usual, a medida que la potencia se incrementa la divergencia angular del patrón de difracción crece, así como el número de anillos. La dependencia del número de anillos con la potencia de entrada se ilustra en la figura 4.4. Conociendo el número de anillos es posible obtener el ángulo máximo de reorientación a través de la relación [75]

$$\theta_0 = \sqrt{\frac{2N_R\lambda}{dn_o\varepsilon_a}}n_e, \quad (4.1)$$

en donde  $N_R$  es el número de anillos en el patrón de difracción,  $d$  es el espesor de la muestra,  $n_e, n_o$  son sus índices de refracción ordinario y extraordinario y  $\varepsilon_a$  la anisotropía dieléctrica.

De figura 4.4 se puede apreciar que para ambos sistemas *E7* y *8CB*, el máximo número de anillos en la región de saturación,  $N_R = 13$ . Utilizando los parámetros materiales de cada celda y la ec. (4.1), se tiene que el el máximo ángulo de reorientación es  $\theta_0 = 0.56$  rad para *E7* y  $\theta_0 = 0.666$  rad para la celda con *8CB*.

Como se muestra en la figura 4.2-d, para el *E7*, la inestabilidad transversal comienza a crecer alrededor de 17.56 mW y para 20.60 mW es evidente la aparición de una estructura con 4 manchas. En el caso de la muestra de *8CB*, la inestabilidad comienza a crecer alrededor de los 19.43 mW, fig 4.3-b y para una potencia de 28.77 mW, fig 4.3-c, aparecen 4 manchas bien definidas.

Conforme se incrementa la potencia el número de manchas se incrementa, pasando de 4 a 16 para una potencia,  $P = 28.9$  mW para el *E7* y 29.13 mW para el *8CB*. Para potencias mayores en el caso particular del *8CB*, las manchas se distorsionan superponiéndose unas a otras, por lo que no es posible tener un número definido. En el caso de la muestra con *E7* el número de manchas se incrementa para potencias mayores, como se ilustra en la figura 4.5. Para  $P = 32.52$  mW se tienen, aproximadamente, 36 manchas y para  $P = 41.64$  el número de manchas es mayor a 58. Para intensidades aun mayores el patrón se vuelve inestable como en el caso del *8CB* y los bordes de las manchas ya no se pueden definir. Esto se resume en las siguientes tablas

Tabla 4.2

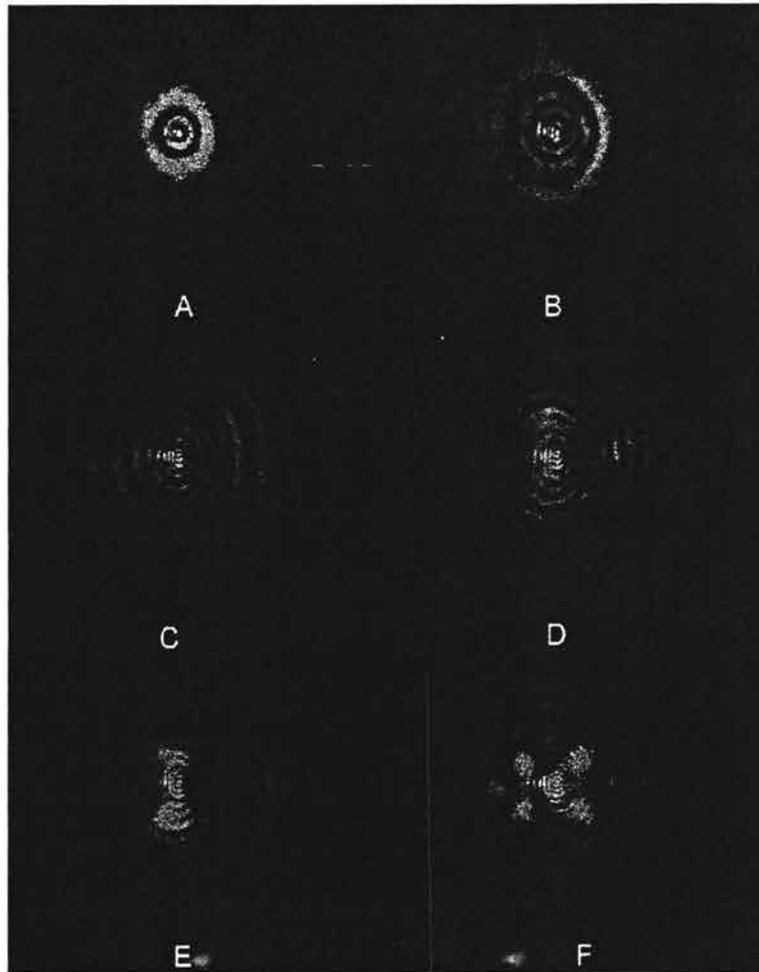


Figura 4.2: Patrón de difracción en el campo lejano para E7. El ángulo de incidencia es de  $26^\circ$ . a)  $P= 11.73 \text{ mW}$ , b)  $P=14.0\text{mW}$ , c)  $17.56 \text{ mW}$ , d)  $20.60 \text{ mW}$ , e)  $22.6 \text{ mW}$ , f)  $P= 28.89 \text{ mW}$

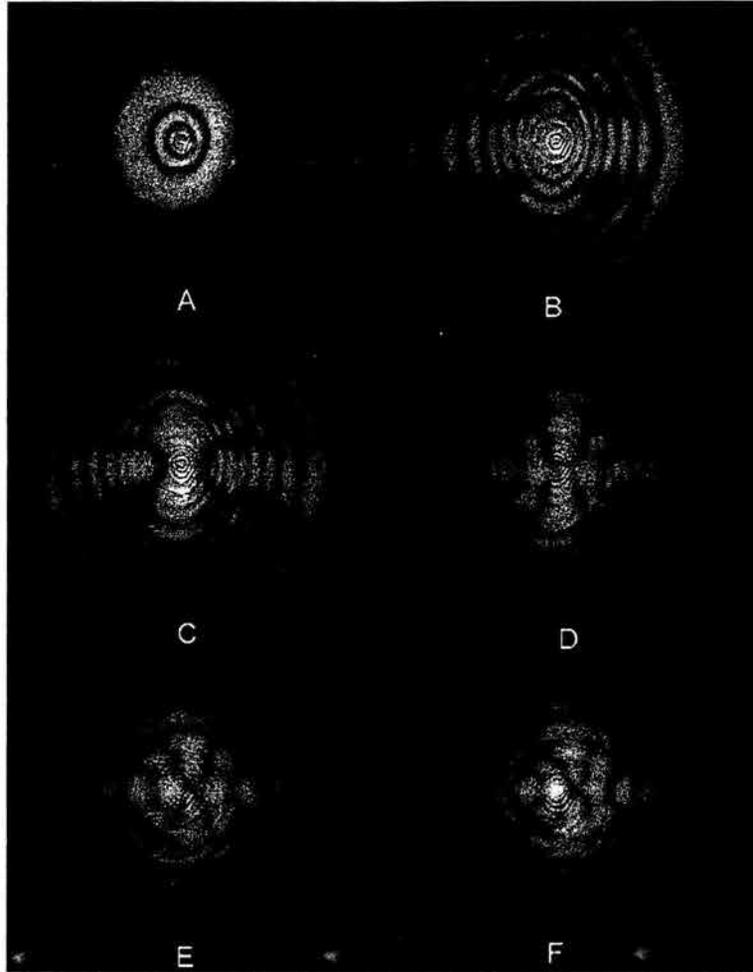


Figura 4.3: Patrón de difracción en el campo lejano para 8CB. El ángulo de incidencia es de  $26^\circ$ . a)  $P= 10.43$  mW, b)  $P=19.43$  mW, c)  $22.21$  mW, d)  $29.13$  mW, e)  $33.29$  mW, f)  $P= 40.22$  mW

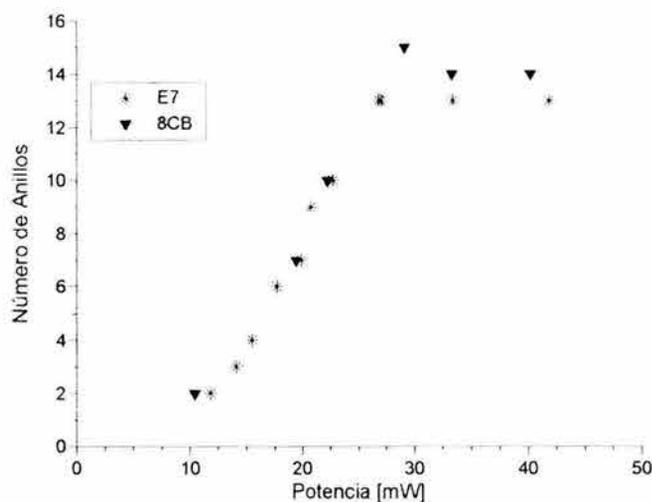


Figura 4.4: Número de anillos como función de la potencia de entrada.

$I$ (mW/m <sup>2</sup> ) $\times 10^7$	No de manchas
2.72	4
3.55	12
4.39	30-36
5.50	>64

Número de manchas como función de  $I$  para *E7*

Tabla 4.3	
$I$ (mW/m <sup>2</sup> ) $\times 10^7$	No de manchas
2.69	4
3.75	4
4.16	10
4.44	10
4.84	12-14

Número de manchas como función de  $I$  para *8CB*

En el caso de la muestra de *E7* dopada con tinta, la formación de estructuras no fue estable y sólo pudo ser apreciada como un fenómeno transitorio. El experimento se repitió utilizando luz circularmente polarizada, pero bajo estas condiciones las estructuras espaciales no aparecieron.

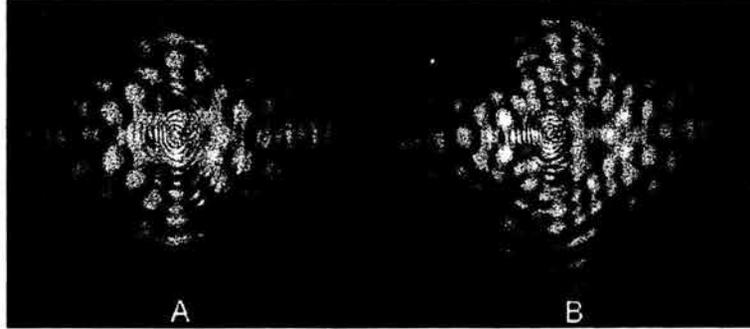


Figura 4.5: Patrón espacial para potencias altas en la celda con *E7*. a)  $P = 32.53 \text{ mW}$ . b)  $P = 41.64 \text{ mW}$

Ahora bien, si se considera que la perturbación transversal da origen a una rejilla de difracción y la aparición de manchas es una consecuencia de la existencia de esta rejilla, la teoría de difracción lineal proporciona una relación entre el ángulo de difracción,  $\vartheta$ , la longitud de onda de la luz,  $\lambda$  y el tamaño de la rejilla de difracción,  $\lambda_p$  [76], a saber

$$\lambda_p \vartheta = \lambda. \quad (4.2)$$

Entonces  $\vartheta$  puede ser estimado como

$$\vartheta = \frac{d}{D}, \quad (4.3)$$

en donde  $d$  es la distancia del centro del patrón de difracción hacia el centro del spot y  $D$  es la distancia entre la muestra y la pantalla.

Así, el vector de onda crítico asociado a la perturbación transversal,  $q_c$  está dado por

$$q_c = \frac{2\pi}{\lambda_p}. \quad (4.4)$$

En este experimento  $D = 27 \text{ cm}$ ,  $\lambda = 514 \text{ nm}$  y  $d$  se obtuvo a partir de las fotografías mediante el siguiente procedimiento: Las fotografías fueron editadas en un programa comercial para el tratamiento de imágenes. Se redujo la intensidad por abajo del 50%, para así dejar solamente las regiones más intensas. Posteriormente, se determinó la distancia máxima y mínima con respecto al centro para cada mancha. Ahora bien, debido a la asimetría

que hay en el láser se tomó la distancia promedio a lo largo de las direcciones vertical, (dspV) y horizontal (dspH). El ancho de la mancha se toma como el promedio de los anchos para cada mancha,  $\Delta sp$ . Utilizando 4.3 en 4.2 y el resultado en 4.4 se obtiene el vector de onda crítico,  $q_c$ . En la figura 4.6 se muestran los puntos y su etiqueta correspondiente.

En el caso particular de estructuras con 4 manchas para el 8CB, se observó que el umbral de potencia para la cual aparecen estas estructuras no está bien definido. Por consiguiente, se hace un análisis para obtener  $q_c$  a una intensidad  $I_{q1}$  para la cual las manchas comienzan a formarse y a una intensidad  $I_{q2}$ , cuando las manchas se encuentran bien definidas. Los resultados se ilustran en las siguientes tablas.

Tabla 4.4

$I \times 10^7$	dspH	dspV	$\Delta spH$	$\Delta spV$	$q_cH$	$q_cV$	$\delta q_{cH}$	$\delta q_{cV}$	$\langle q_c \rangle$
$W/m^2$	mm	mm	mm	mm	$10^5 m^{-1}$	$10^5 m^{-1}$	%	%	$10^5 m^{-1}$
2.69	27.46	16.83	9	7.5	12.43	7.61	32	44	9.96
3.76	15.28	14.24	5.5	5.5	6.91	6.44	36	38	6.67

Análisis para la muestra con 8CB.

Tabla 4.5

$I \times 10^7$	dspH	dspV	$\Delta spH$	$\Delta spV$	$q_cH$	$q_cV$	$\delta q_{cH}$	$\delta q_{cV}$	$\langle q_c \rangle$
$W/m^2$	mm	mm	mm	mm	$10^5 m^{-1}$	$10^5 m^{-1}$	%	%	$10^5 m^{-1}$
2.99	42.21	17.86	16.5	11.5	19	8	39	64	13.5

Análisis para la muestra con E7.

Para potencias superiores se hizo un análisis semejante para determinar la distancia de las manchas con respecto al centro del patrón.

De la figura 4.6 se obtiene que  $\bar{d} = 2.45$  cm y, por tanto,  $q_c = 1.29 \times 10^6 m^{-1}$  ó  $q_c = 9.5 \times 10^5 m^{-1}$ , si se toma una distancia de 2.1 cm. Estos resultados se confrontarán más adelante con la predicción teórica.

### 4.3. Modelo

Considérese una celda nemática con configuración inicial homeotrópica y con el campo director dado por

$$\vec{n} = (\sin \theta, 0, \cos \theta), \quad (4.5)$$

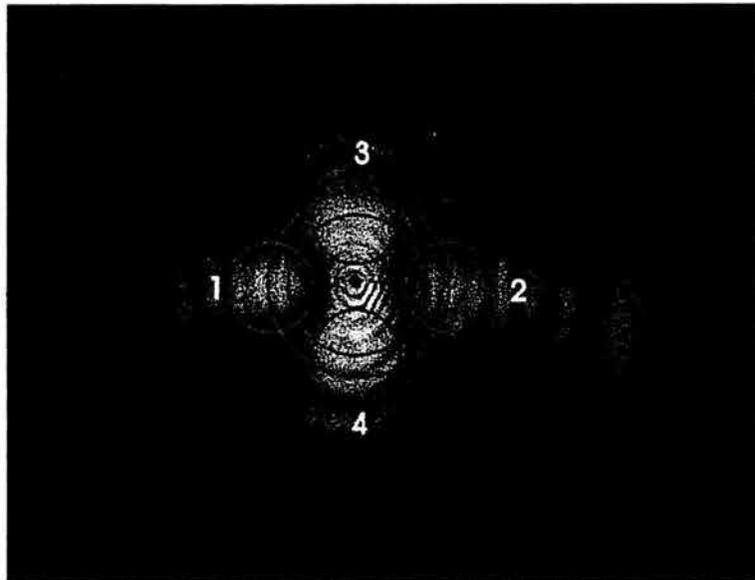


Figura 4.6: Muestra de 8CB.  $P = 22.21$  mW,  $I = 2.69 \times 10^7 W/m^2$ . La distancia promedio para los puntos 1 y 2 es de 2.85 cm y de 2.1 para los puntos 3 y 4.



donde  $\theta$  es el ángulo con respecto al eje  $z$ .

Sobre la celda incide un haz láser linealmente polarizado con componente eléctrica descrita por

$$\vec{E} = \vec{A}(\vec{r}, z) \exp(ik_0 z), \quad (4.6)$$

donde  $k_0^2 = \frac{\omega^2}{c^2} \varepsilon_{\perp}$  siendo  $\omega$  la frecuencia del láser,  $c$  la velocidad de la luz en el vacío,  $\varepsilon_{\perp}$  la componente del tensor dieléctrico perpendicular al eje de la molécula y  $|\vec{A}(\vec{r}, z)|$  es la amplitud que varía suavemente en la distancia  $1/k_0$ . Esto se ilustra en la figura 4.8.

La propagación de  $\vec{E}$  está descrita por las ecuaciones de Maxwell,

$$\nabla \times \nabla \times \vec{E} + \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{D}}{\partial t^2} = 0, \quad (4.7)$$

$$\nabla \cdot \vec{D} = 0, \quad (4.8)$$

junto con la ecuación constitutiva,

$$\vec{D} = \overleftarrow{\varepsilon} \cdot \vec{E}, \quad (4.9)$$

donde

$$\varepsilon_{ij} = \varepsilon_{\perp} \delta_{ij} + \varepsilon_a n_i n_j. \quad (4.10)$$

$n_i, n_j$  son las componentes del campo director dadas por (4.5) y  $\varepsilon_a = \varepsilon_{\parallel} - \varepsilon_{\perp}$ .

Despreciando los efectos transversales, esto es, asumiendo que  $\varepsilon_a/\varepsilon_{\perp}$  es pequeño y sustituyendo (4.6), (4.9) en (4.7) resulta que la ecuación de onda puede escribirse como

$$(\nabla_{\perp}^2 + 2ik_0 \frac{\partial}{\partial z}) A_i(\vec{r}, z) + k_0^2 \frac{\varepsilon_a}{\varepsilon_{\perp}} n_i n_j A_j(\vec{r}, z) = 0. \quad (4.11)$$

Nótese que existe una parte no lineal que depende de la reorientación del director descrita por el término  $k_0^2 \frac{\varepsilon_a}{\varepsilon_{\perp}} n_i n_j A_j$ .

Si la incidencia es normal, la componente del campo eléctrico está a lo largo de la dirección  $x$ , por lo que (4.11) se reduce a

$$(\nabla_{\perp}^2 + 2ik_0 \frac{\partial}{\partial z}) A + k_0^2 \frac{\varepsilon_a}{\varepsilon_{\perp}} \theta^2 A = 0, \quad (4.12)$$

donde se tomo el límite de  $\theta$  pequeño.

Si la intensidad del campo óptico está por arriba del valor umbral de Fredericksz, es posible escribir la amplitud como,

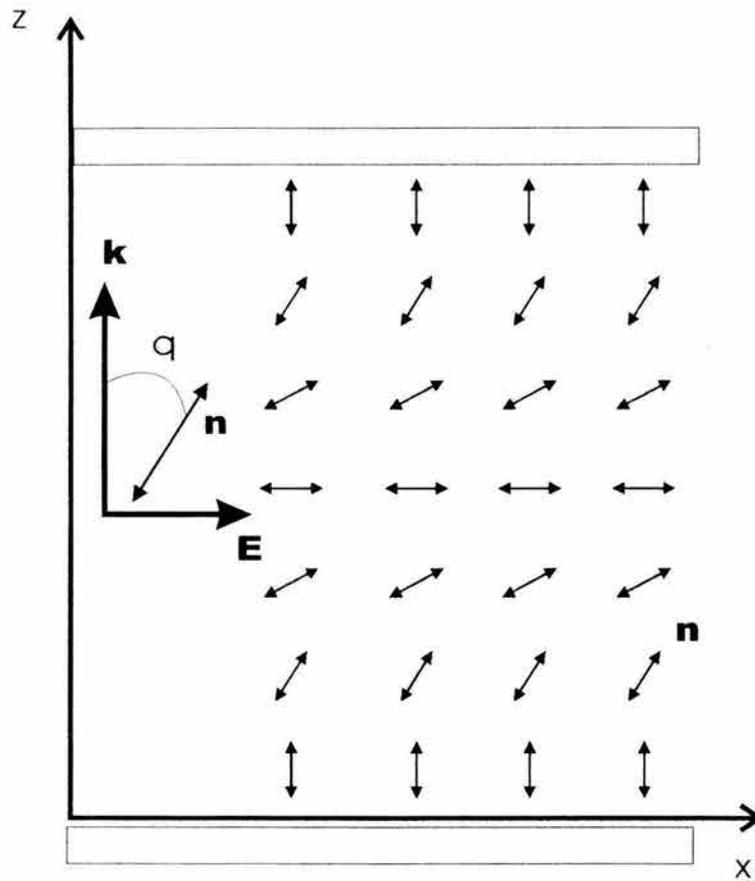


Figura 4.8: Esquema de la celda con el nemático en configuración homeotrópica. Sobre ella incide un campo óptico con dirección de propagación a lo largo de la dirección  $z$ .

$$A = A_0(z) + \delta A(z, r), \quad (4.13)$$

en donde  $A_0(z)$  es la amplitud del campo por arriba de la transición de Fredericksz,  $\delta A(z, \vec{r})$  es una perturbación transversal y  $\vec{r}$  el vector de posición en el plano  $xy$ . Ahora bien, para resolver la ec. (4.12), es necesario conocer la dependencia de  $\theta$  como función de  $z$ . Esto puede hacerse expresando a  $\theta$  en una serie de Fourier compatible con las condiciones de Frontera. Sin embargo, cuando la intensidad del campo óptico se encuentra por arriba de la intensidad crítica de Fredericksz se ha demostrado que el primer modo de Fourier es el dominante [70]. Con base a esto es posible considerar que la inestabilidad transversal crece a partir de este modo, por lo que se propone,

$$\theta = (\theta_0 + \Omega(\vec{r})) \text{sen} \frac{\pi z}{l}. \quad (4.14)$$

Aquí  $\theta_0$  es el ángulo de reorientación máximo arriba de la Transición de Fredericksz y  $\Omega(\vec{r})$  es una perturbación transversal pequeña. Insertando (4.13) y (4.14) en (4.12) se tiene que

$$\begin{aligned} 0 = & 2ik_0 \frac{\partial A_0(z)}{\partial z} + k_0^2 \frac{\varepsilon_a}{\varepsilon_\perp} \theta_0^2 \text{sen}^2 \frac{\pi z}{l} A_0(z) + \\ & + (\nabla_\perp^2 + 2ik_0 \frac{\partial}{\partial z}) \delta A(z, r) + k_0^2 \frac{\varepsilon_a}{\varepsilon_\perp} A_0(z) (2\theta_0 \Omega(\vec{r}) + \Omega^2(\vec{r})) \text{sen}^2 \frac{\pi z}{l} \\ & + k_0^2 \frac{\varepsilon_a}{\varepsilon_\perp} [\theta_0^2 + 2\theta_0 \Omega(\vec{r}) + \Omega^2(\vec{r})] \delta A(z, r) \text{sen}^2 \frac{\pi z}{l}. \end{aligned} \quad (4.15)$$

Nótese que los dos primeros términos de esta ecuación son independientes de las perturbaciones transversales, por lo que es posible escoger  $A_0(z)$  tal que,

$$2ik_0 \frac{dA_0(z)}{dz} + k_0^2 \frac{\varepsilon_a}{\varepsilon_\parallel} \theta_0^2 A_0(z) \text{sen}^2 \frac{\pi z}{l} = 0. \quad (4.16)$$

Bajo este esquema, la ecuación de onda (4.15) se reduce a

$$(\nabla_\perp^2 + 2ik_0 \frac{\partial}{\partial z} + k_0^2 \frac{\varepsilon_a}{\varepsilon_\perp} \theta_0^2 \text{sen}^2 \frac{\pi z}{l}) \delta A(z, r) + 2\theta_0 \text{sen}^2 \frac{\pi z}{l} \Omega(\vec{r}) k_0^2 \frac{\varepsilon_a}{\varepsilon_\perp} A_0(z) = 0, \quad (4.17)$$

en donde los términos  $O(\frac{\Omega(z, r)}{\theta_0(z)})$  se han despreciado.

La solución de (4.16) se encuentra despejando  $A_0(z)$  e integrando ambos lados de la igualdad. Esta indica que por arriba de la amplitud crítica de

Frederickz sólo se modifica la fase, lo que genera el autoenfocamiento usual,

$$A_0(z) = A_0(0) \exp\left[-i \frac{k_0}{2} \frac{\varepsilon_a}{\varepsilon_{\perp}} \theta_0^2 \int_0^z \text{sen}^2 \frac{\pi z'}{l} dz'\right]. \quad (4.18)$$

Por otro lado, la ecuación de onda para la perturbación puede ser resuelta transformando a  $\delta A(z, r)$  y  $\Omega(\vec{r})$  por sus correspondientes series de Fourier en donde, a primera aproximación, se tiene que

$$\delta A(z, \vec{r}) = \widetilde{\delta A}(z) \exp i \vec{q} \cdot \vec{r}, \quad (4.19)$$

$$\Omega(\vec{r}) = \widetilde{\Omega} \exp i \vec{q} \cdot \vec{r}. \quad (4.20)$$

Sustituyendo estas relaciones en (4.17) se obtiene

$$(-q^2 + 2ik_0 \frac{\partial}{\partial z} + k_0^2 \frac{\varepsilon_a}{\varepsilon_{\perp}} \theta_0^2 \text{sen}^2 \frac{\pi z}{l}) \widetilde{\delta A}(z) + 2\theta_0 \text{sen}^2 \frac{\pi z}{l} \widetilde{\Omega} k_0^2 \frac{\varepsilon_a}{\varepsilon_{\perp}} A_0(z) = 0, \quad (4.21)$$

donde  $q^2 = q_x^2 + q_y^2$ . Esta ecuación puede integrarse para  $\widetilde{\delta A}(z)$  con el resultado

$$\begin{aligned} \widetilde{\delta A}(z) = & \widetilde{\delta A}(0) \frac{A_0^*(0)}{A_0^*(z)} \exp\left[-i \frac{q^2}{2k_0} z\right] \\ & + i\theta_0 \widetilde{\Omega} k_0 \frac{\varepsilon_a}{\varepsilon_{\perp}} A_0(z) \exp\left[-i \frac{q^2}{2k_0} z\right] \int_0^z \text{sen}^2 \frac{\pi z'}{l} \exp\left[i \frac{q^2}{2k_0} z'\right] dz' \end{aligned} \quad (4.22)$$

Ahora bien, si  $A_0$  es la intensidad por arriba de Freedericksz, podemos tomar  $A_0$  de tal forma que sea el valor crítico cuando la inestabilidad comienza a crecer. Bajo esta suposición  $\widetilde{\delta A}(0) = 0$  y por tanto

$$\widetilde{\delta A}(z) = -\theta_0 \widetilde{\Omega} k_0^2 \frac{\varepsilon_a}{\varepsilon_{\perp}} A_0(z) \frac{\left[-1 + \exp\left[-i \frac{q^2 z}{2k_0}\right] + \frac{l^2 q^4}{16k_0^2 \pi^2} 2 \text{sen}^2 \frac{\pi z}{l} + i \frac{l q^2}{4k_0 \pi} \text{sen}\left(\frac{2\pi z}{l}\right)\right]}{q^2 \left(1 - \frac{l^2 q^4}{16k_0^2 \pi^2}\right)}, \quad (4.24)$$

donde

$$A_0(z) = A_0(0) \exp\left[-i \frac{k_0}{2} \frac{\varepsilon_a}{\varepsilon_{\parallel}} \theta_0^2 \left[\left(\frac{z}{2} - \frac{L}{4\pi} \text{sen} \frac{2\pi z}{L}\right)\right]\right]. \quad (4.25)$$

### 4.3.1. Energía umbral

Es posible determinar una relación para encontrar la amplitud umbral del campo eléctrico para la cual la inestabilidad transversal comienza a crecer.

Para ello se debe considerar la energía libre asociada al cristal líquido con dos contribuciones; la densidad de energía elástica de Frank,  $f_{elas}$ , que bajo la aproximación de constantes elásticas iguales se puede escribir como

$$f_{elas} = \frac{K}{2} \left( \left( \frac{\partial \theta}{\partial x} \right)^2 + \left( \frac{\partial \theta}{\partial y} \right)^2 + \left( \frac{\partial \theta}{\partial z} \right)^2 \right), \quad (4.26)$$

y la densidad de energía libre asociada a la interacción con el campo óptico

$$f_{opt} = -\frac{\varepsilon_a}{2} |A|^2 \text{sen}^2 \theta. \quad (4.27)$$

En forma consistente con las hipótesis de la sección anterior se considera que el ángulo de reorientación,  $\theta$  es pequeño, de tal forma que (4.27) se reescribe como

$$f_{opt} = -\frac{\varepsilon_a}{2} |A|^2 \theta^2. \quad (4.28)$$

Entonces la energía total del sistema estará dada por

$$F_{total} = \int \left[ \frac{K}{2} \left( \left( \frac{\partial \theta}{\partial x} \right)^2 + \left( \frac{\partial \theta}{\partial y} \right)^2 + \left( \frac{\partial \theta}{\partial z} \right)^2 \right) - \frac{\varepsilon_0 \varepsilon_a}{2} |A|^2 \theta^2 \right] dx dy dz. \quad (4.29)$$

Utilizando la relación de Parsevals se tiene que

$$F_{total} = \int \left[ \frac{K}{2} \left( \left| \frac{\widetilde{\partial \theta}}{\partial x} \right|^2 + \left| \frac{\widetilde{\partial \theta}}{\partial y} \right|^2 + \left| \frac{\widetilde{\partial \theta}}{\partial z} \right|^2 \right) - \frac{\varepsilon_0 \varepsilon_a}{2} |\widetilde{A}|^2 \widetilde{\theta}^2 \right] dq_x dq_y dz, \quad (4.30)$$

donde  $\sim$  denota la transformada de Fourier.

Si consideramos el desarrollo en series de Fourier de las diversas funciones de la integral anterior y se considera solamente la contribución del modo más bajo no nulo, la expresión anterior se puede escribir como

$$F_{total} = \int \left[ \left[ \frac{K}{2} \left( (q_x^2 + q_y^2) \widetilde{\Omega}^2 \text{sen}^2 \frac{\pi z}{l} + \widetilde{\Omega}^2 \left( \frac{\pi}{l} \right)^2 \cos^2 \frac{\pi z}{l} \right) \right] \right] \quad (4.31)$$

$$- \theta_0^2 \varepsilon_0 \varepsilon_a \widetilde{\Omega}^* \left[ A_0^* \widetilde{\delta A} + A_0 \widetilde{\delta A}^* \right] \text{sen}^2 \frac{\pi z}{l} dq_x dq_y dz. \quad (4.32)$$

Integrando sobre la celda

$$F_{total} = \int \left[ \frac{K}{4} \left( q^2 + \left( \frac{\pi}{l} \right)^2 \right) - \theta_0^2 \frac{\varepsilon_0 \varepsilon_a^2}{\varepsilon_{\perp}} |A_0|^2 \frac{k_0 l}{\pi} (1.0199\beta - 0.8321\beta^3) l \widetilde{\Omega}^2 \right] dq_x dq_y, \quad (4.33)$$

en donde se ha supuesto que  $\frac{lq^2}{4k_0\pi} \ll 1$  y

$$q^2 = q_x^2 + q_y^2. \quad (4.34)$$

Si se define el parámetro adimensional  $\beta$  como,

$$\beta \equiv \frac{lq^2}{4k_0\pi}, \quad (4.35)$$

la energía libre (4.33) se puede reescribir en términos de este parámetro. El mínimo de esta energía se obtiene cuando el integrando es nulo y bajo esta condición resulta que,

$$|A_0|^2 = \frac{K \pi^2}{\varepsilon_a l^2} \left( \beta + \frac{\pi}{4k_0 l} \right) \frac{\varepsilon_\perp}{\theta_0^2 \varepsilon_0 \varepsilon_a (1.0199\beta - 0.8321\beta^3)}. \quad (4.36)$$

Reescribiendo la expresión anterior en términos de la intensidad,

$$I = \frac{1}{2} \varepsilon_0 c \sqrt{\varepsilon_\perp} |A_0|^2$$

se obtiene,

$$I = \frac{1}{2} \frac{K \pi^2}{\varepsilon_a l^2} \left( \beta + \frac{\pi}{4k_0 l} \right) \frac{c \varepsilon_\perp^{3/2}}{\theta_0^2 \varepsilon_a (1.0199\beta - 0.8321\beta^3)}. \quad (4.37)$$

Los resultados se muestran en la figura 4.9.

Ahora bien, a través de la energía libre se obtuvo la relación de la intensidad umbral como función del vector de onda asociado a la perturbación transversal,  $q$ . Sin embargo, es posible encontrar el valor de  $q$  crítico cuando se considera la ecuación de movimiento que se obtiene a través de la minimización de la energía libre, esto es, a través de un criterio de estabilidad de la solución propuesta.

Para el caso que nos ocupa la ecuación dinámica estará dada por

$$\frac{\partial F_{trans}}{\partial \tilde{\Omega}} = -\gamma \frac{\partial \tilde{\Omega}}{\partial t}, \quad (4.38)$$

donde  $F_{trans}$  está dada por la ec.(4.33). Una posible solución de (4.38) se encuentra asumiendo que la inestabilidad crece como

$$\tilde{\Omega} = \tilde{\Omega} \exp[\alpha(q)t]. \quad (4.39)$$

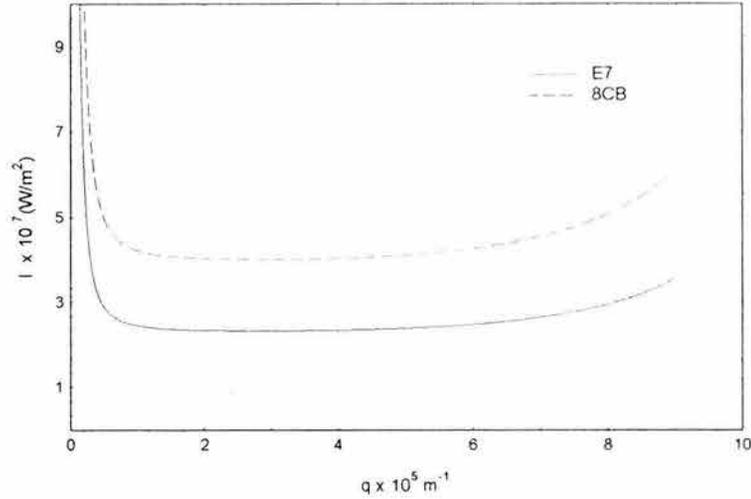


Figura 4.9: Dependencia de la intensidad crítica como función del vector de onda  $q$  asociado a la inestabilidad transversal

Insertando (4.39) en (4.38) resulta que,

$$\begin{aligned}
 -\alpha(q) = & \frac{2k_0}{\gamma} K \pi \left[ \left( \frac{lq^2}{4k_0\pi} + \frac{\pi}{4lk_0} \right) \right. \\
 & \left. - \theta_0^2 \frac{\varepsilon_0 \varepsilon_a^2}{\varepsilon_{\perp} K} |A_0|^2 \frac{k_0 l^2}{\pi^2} \left( 1.0199 \frac{lq^2}{4k_0\pi} - 0.8321 \left( \frac{lq^2}{4k_0\pi} \right)^3 \right) \right] \quad (4.40)
 \end{aligned}$$

Se sabe que para  $\alpha < 0$ , la inestabilidad transversal decae, mientras que para  $\alpha > 0$ , la perturbación crece y el sistema se vuelve inestable. En  $\alpha = 0$ , el sistema se encuentra en su punto crítico, por lo que,

$$\alpha(q_c) = 0, \quad (4.41)$$

y

$$\frac{d\alpha(q)}{dq} \Big|_{q_c} = 0. \quad (4.42)$$

Al insertar (4.40) en (4.41) y despejando el término asociado a la amplitud del campo óptico se obtiene,

$$\theta_0^2 \frac{\varepsilon_0 \varepsilon_a^2}{\varepsilon_{\perp} K} |A_0|^2 \frac{k_0 l^2}{\pi^2} = \frac{\left( \frac{lq_c^2}{4k_0\pi} + \frac{\pi}{4lk_0} \right)}{\left( 1.0199 \frac{lq_c^2}{4k_0\pi} - 0.8321 \left( \frac{lq_c^2}{4k_0\pi} \right)^3 \right)}. \quad (4.43)$$

Esta última relación junto con las ec.(4.40) y (4.42) proporcionan el valor mínimo de  $q_c$  a través de la siguiente relación,

$$q_c^6 + \frac{3\pi^2}{2l^2}q_c^4 - \frac{8\pi^4k_0^2}{l^4}1.22 = 0. \quad (4.44)$$

El término independiente de  $q$  es mucho mayor que el término cuadrático, por lo que se puede aproximar la solución de (4.44) como

$$q_c^6 \sim \frac{8\pi^4k_0^2}{l^4}(1.22). \quad (4.45)$$

Utilizando los valores de  $l$  y  $k_0$  resulta que,

$$q_c \simeq 2.89 \times 10^5 m^{-1}.$$

Nótese que esta solución es independiente de los parámetros del cristal líquido.

## 4.4. Discusión

Los resultados experimentales indican que la intensidad umbral cuando aparecen las cuatro manchas,  $I_{csp}$ , se encuentra entre 2.69 y 3.79  $W/m^2$  para la celda con *8CB* y entre 2.77 y 2.99  $W/m^2$  en el caso del *E7*. Los resultados teóricos representados en la figura 4.9 muestran que el mínimo de  $I_{csp} = 3.89 W/m^2$  para el caso de la celda con *8CB* y de  $I_{csp} = 2.3 W/m^2$  para la celda con *E7*. Esto muestra que existe una gran concordancia entre la intensidad calculada teóricamente y las encontradas experimentalmente.

Por otro lado, respecto a la posición de las manchas en el patrón de difracción de campo lejano, existe una gran diferencia respecto a la posición del centro de las manchas. Las manchas a lo largo de la dirección vertical estaban más cerca del centro y los bordes estaban más definidos en comparación con las manchas a lo largo de la dirección horizontal.

El efecto se debe probablemente a que el haz no tiene simetría circular. Como se dijo anteriormente, la cintura a lo largo de la dirección vertical es más pequeña que en la horizontal. De esta forma la intensidad del haz debe ser mayor a lo largo de la vertical y, por consiguiente, el campo director se orienta más a lo largo de esta dirección por lo que las inestabilidades transversales son diferentes a lo largo de las dos direcciones y por consiguiente la asimetría en las manchas.

Para el caso del *8CB* los resultados que más se acercan al resultado teórico corresponden a una intensidad de  $3.76 \text{ W/m}^2$ , en donde  $q_{cV} = 6.44 \times 10^5$  y  $q_{cH} = 6.91 \times 10^5$ . El  $q$  teórico está dado por (4.34), esto da como resultado que

$$q_{8CB} = \sqrt{(6.44)^2 + (6.91)^2} \times 10^5 = 9.44 \times 10^5 \pm 3.52m^{-1}.$$

Para el caso de la celda con *E7* el resultado es aún mayor,

$$q_{E7} = \sqrt{(19)^2 + (8)^2} \times 10^5 = 20 \times 10^5 \pm 3,37m^{-1}.$$

Nótese que el resultado teórico,  $q_c \simeq 2.89 \times 10^5 m^{-1}$ , es independiente en el modelo del cristal líquido particular y sólo depende del espesor de la celda.

Para el caso del *8CB* este resultado es cercano al teórico, mientras que en el caso del *E7* la diferencia es de casi un orden de magnitud. Dado que los dos experimentos se realizaron en circunstancias similares debe señalarse que el *8CB*, se acerca más a las condiciones del modelo, ya que su anisotropía dieléctrica es menor que el *E7*. Más aún, esta anisotropía decrece más a la temperatura a la que se efectuaron las mediciones, ya que ésta fue cercana a la de transición nemático-isotrópico.

En general los resultados de la comparación son satisfactorios; sin embargo, es muy posible que la elipticidad en la sección transversal del haz modifique los resultados, ya que ésta no es despreciable. El modelo debe modificarse para tomar en cuenta estos efectos, y por otra parte, para explicar los resultados de la formación de patrones a potencias mayores. Propiamente se deben de resolver las ecuaciones dinámicas del nemático acopladas a las ecuaciones de Maxwell. Sin embargo, esta extensión rebasa los alcances de este trabajo.

# Capítulo 5

## Dinámica del Patrón de Difracción No Lineal

### 5.1. Introducción

Como se ha discutido en los capítulos anteriores, la interacción del campo óptico con el cristal líquido produce un patrón de difracción no lineal que está formado por una serie de anillos concéntricos cuyo número depende de la potencia del haz incidente. El origen físico de este patrón ha sido estudiada ampliamente tanto experimental como teóricamente [68], [69], [58]. Sin embargo, en todas estas observaciones el patrón de difracción es estacionario. Recientes observaciones en cristales líquidos puros muestran que existe un conjunto de regímenes dinámicos en el patrón de difracción originados principalmente por la respuesta no local del cristal líquido cuando interactúa con el haz láser. Ejemplos de estos regímenes son las autopulsaciones producidas por un haz linealmente polarizado [77],[78],[79] la rotación del patrón de difracción producidas por un haz circular o elípticamente polarizado [80],[81] y los fenómenos de intermitencia que aparecen cuando un haz es linealmente polarizado y su incidencia es oblicua [82].

Las autopulsaciones fueron observadas en celdas homeotrópicas, que interactúan con un haz linealmente polarizado incidiendo a pequeños ángulos con respecto a la normal a la celda [68]. Las observaciones reportadas consisten en una variación periódica de la divergencia angular del patrón de difracción no lineal. Se observó además que cambiando la potencia del haz o el ángulo de incidencia es posible controlar la frecuencia temporal de las

pulsaciones. A medida que el ángulo de incidencia aumenta la dinámica de la pulsaciones se vuelve más compleja e inestable alcanzando regímenes caóticos [69], [84]. La explicación de este fenómeno, así como el paso al régimen caótico, han sido explicados a través de diversos modelos teóricos [85].

Otro ejemplo de la dinámica en el patrón de difracción no lineal se origina cuando el haz incide normalmente sobre la celda y su polarización es circular [80], [81], [83]. En este caso, el campo óptico transfiere momento angular a las moléculas del cristal líquido que las hace precesar alrededor de la dirección de propagación. Esto se manifiesta como un cambio en la polarización del haz transmitido en donde su polarización se vuelve elíptica con el eje girando a una velocidad angular constante, [80], [81].

Cuando la polarización del haz es inicialmente elíptica se origina un rompimiento de simetría con respecto a la transferencia de momento angular hacia el cristal líquido. Esto origina la aparición de diversos regímenes dinámicos para diverso valores de la intensidad del haz, así como la elipticidad en su polarización [84].

Recientes estudios llevados a cabo con técnicas más sofisticadas muestran que existen regímenes dinámicos cuando el haz es linealmente polarizado y su incidencia es oblicua. Inclusive se ha detectado que la variación del ángulo de incidencia en este caso puede llevar al sistema a regímenes dinámicos y que inclusive el sistema puede presentar fenómenos como el de intermitencia [82].

Como es de notarse en todos estos procesos, los diferentes parámetros de control, (intensidad, ángulo de incidencia, polarización) llevan al sistema a diversos regímenes dinámicos. Sin embargo, su observación en sistemas dopados no ha sido, hasta donde se tiene conocimiento, reportada en la literatura.

En este capítulo se reportan las observaciones de una serie de regímenes dinámicos en el patrón de difracción de celdas dopadas. A diferencia de los trabajos discutidos anteriormente, la dinámica aparece como una consecuencia de la superposición de haz láser linealmente polarizado a incidencia normal y un campo eléctrico alterno de baja frecuencia (kHz). Los diferentes regímenes se observan para valores bien definidos de la potencia del haz incidente, así como la frecuencia y amplitud del campo  $AC$ . Al modificar uno de estos parámetros de control, como es el voltaje, el sistema pasa por una serie de diferentes regímenes; estático ( $E$ ), rotacional estable ( $RS$ ), rotacional inestable ( $RI$ ), altamente inestable ( $AI$ ) y rotacional complejo ( $RC$ ) en donde la dinámica puede ser caótica.

Si bien es cierto que al aplicar campos eléctricos de baja frecuencia a

cristales líquidos se observa una gran variedad de patrones dinámicos por efecto de inestabilidades electrohidrodinámicas [86], el campo óptico no juega un papel preponderante en este tipo de fenómenos.

Debido a esto, las observaciones aquí presentadas tienen una gran relevancia ya que el sistema se acopla a la acción simultánea de dos campos: el óptico con una intensidad mayor a la de Fredericksz y el campo alterno. La respuesta del sistema a la acción de estos dos campos se manifiesta en una dinámica del patrón de difracción cuya frecuencia temporal es mucho menor que la de cualquiera de los dos campos aplicados. Hasta donde se tiene conocimiento, este tipo de observaciones no ha sido reportada en la literatura y abre la puerta a un gran cantidad de estudios que pueden contribuir a la comprensión de los mecanismos y procesos presentes durante la transición de Fredericks óptica en sistemas dopados. Además, la manifestación de esta dinámica en el patrón de difracción puede emplazarse en diversos dispositivos electró-ópticos como "disparadores controlados eléctricamente o imitadores de niebla [9]. Dispositivos que usan el efecto de dispersión dinámica tienen ciertas ventajas sobre los displays que usan solamente el efecto de campo, ya que no usan polarizador alguno y su brillo es mucho mayor, sin embargo estos consumen mayor energía.

Por otro lado, desde el punto de vista teórico se plantea un modelo para explicar sólo algunas de las observaciones en el régimen de rotación estable en el que se toman en cuenta las acción combinada del campo óptico y el campo alterno y su acoplamiento con el cristal líquido. La rotación que se observa se explica en términos de un solitón orientacional producto de una competencia entre las torcas ejercidas por ambos campos que se da particularmente en la región cercana a la cintura del haz. Como se verá más adelante, a pesar de que se han despreciado interacciones que indudablemente están presentes en las observaciones experimentales, tales como la presencia de flujos hidrodinámicos, transformaciones conformacionales de las moléculas de tinta etc, el modelo se establece con base a ecuaciones altamente no lineales aportando soluciones analíticas a partir de las cuales se extrae información como la frecuencia de rotación. Utilizando estas soluciones, se puede reproducir un patrón de difracción con características semejantes a las observadas en los experimentos. Este modelo es un primer paso para comprender la naturaleza de los diversos regímenes dinámicos.

Para discutir el contenido de estas observaciones hemos organizado el material de este capítulo de la siguiente forma. En la sección 5.2 se discuten las características de las celdas empleada así como el arreglo experimental .

En la sección 5.3 se presentan las observaciones realizadas y las características de cada régimen. En la sección 5.4 se analizan los resultados obtenidos. En la sección 5.5 se propone un modelo para explicar el régimen de rotación estable ( $RS$ ). Finalmente en la sección 5.6 se da la discusión y conclusiones de la comparación con el modelo teórico.

## 5.2. Arreglo experimental.

La preparación de las celdas se ha discutido en el Capítulo 3. En este caso se utilizó una mezcla de cristal líquido nemático E7 (Merck) dopado al 0.5% del peso total con tinta del tipo antroquinona, R4, 4'-dimethylaminophenyl-[1,4-phenylenebis(azo)]-3-chloro-4-heptyloxy)benzene, fabricada por Roche, cuya estructura química se representa en la figura 1.10. El espesor de la muestra fue de aproximadamente de  $24 \mu m$ . La configuración es homeotrópica y de acuerdo a las observaciones realizadas con un microscopio de polarización, la homogeneidad de la muestra fue satisfactoria.

El arreglo experimental se muestra en la figura 5.1. La celda fue iluminada por una láser  $Ar^{(+)}$  de onda continua (Omnichrom, 643) sintonizado en la línea de  $514 nm$  y cuya potencia máxima para esta línea es de  $120 mW$ . El haz es enfocado por una lente con una distancia focal,  $f = 100$ . El perfil transversal del haz es Gaussiano tiene simetría circular y una cintura del haz en el plano de  $\sigma = 31 \mu m$ . La muestra se coloca en el plano focal y el haz incide normal a las placas de la celda. La polarización es lineal y paralela al plano de la mesa óptica. Se utilizó un sistema de media longitud de onda,  $WP$ , y un polarizador para controlar la potencia con mayor precisión. Un divisor de haz se insertó antes de la lente con el fin de medir la potencia de entrada con el fotodetector,  $PD$ , previamente calibrado, de tal forma que proporciona la potencia en el plano focal. El patrón de difracción se proyectó en una pantalla colocada a  $1m$  de distancia de la muestra y fue grabado con ayuda de una cámara digital para su análisis posterior.

Debido a que las placas de la celda son conductoras, fue posible aplicar un campo alterno de baja frecuencia ( $300 - 2000 Hz$ ) producido por un generador de funciones y amplificado por un transformador. Este campo es perpendicular a las placas de la celda.

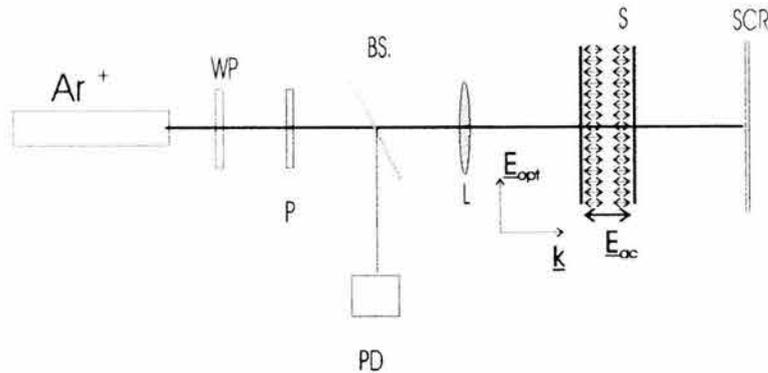


Figura 5.1: Esquema del arreglo experimental.  $WP$  : retardador  $\frac{\lambda}{2}$ ,  $P$  : polarizador;  $BS$ : divisor de haz;  $L$  : lente con  $f = 100 \text{ mm}$ ;  $PD$  : fotodetector;  $S$  : muestra;  $SCR$  : pantalla.

### 5.2.1. Transición de Freedericksz óptica

Con la muestra en el plano focal y en ausencia del campo AC, se determinó la intensidad umbral de Freedericks a una potencia de  $P = 6.45 \text{ mW}$ . Como se puede apreciar de la figura 5.2A, para potencias menores que la potencia crítica de Freedericks sólo se observa cierta dispersión alrededor del haz y autoenfocamiento, esto es, la divergencia del haz tiende a aumentar sin formar ningún patrón de anillos. Por arriba de este umbral se observa una patrón de difracción consistente de anillos gruesos 5.2B y borrosos; conforme se incrementa la potencia el número de anillos aumenta, sin aumentar significativamente la divergencia angular del patrón, pero a medida que la potencia se incrementa los anillos decrecen su espesor 5.2D. Este patrón de difracción es diferente al patrón de difracción observado en sustancias puras (Capítulo 4) en donde los anillos están bien definidos y son más gruesos que los de la sustancia dopada.

El número de anillos como función de la potencia de entrada se muestra en la figura 5.3.

### 5.2.2. Patrón de difracción dinámico.

Manteniendo constante la potencia del campo óptico a  $P = 11.93 \text{ mW}$  (figura 5.3D), se conecta el campo alterno con una señal senoidal y una frecuencia fija de  $\nu = 1 \text{ kHz}$ . El voltaje  $V_{rms}$  del campo alterno se incrementa

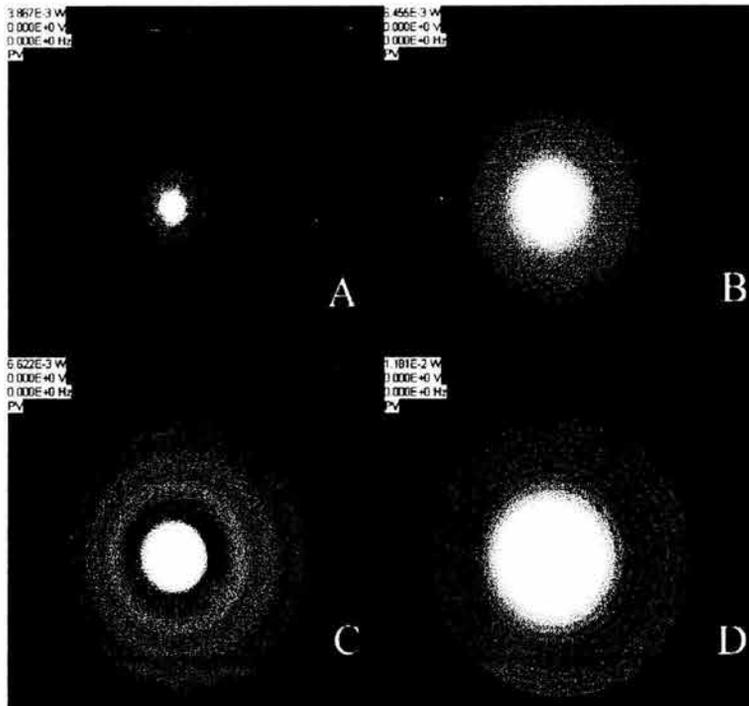


Figura 5.2: El patrón de difracción como función de la potencia incidente. A)  $P=0.3$  mW, B) Potencia ligeramente superior a la potencia crítica de Freedericksz,  $P=6.45$  mW, C)  $P=6.62$  D)  $P=11.81$  mW.

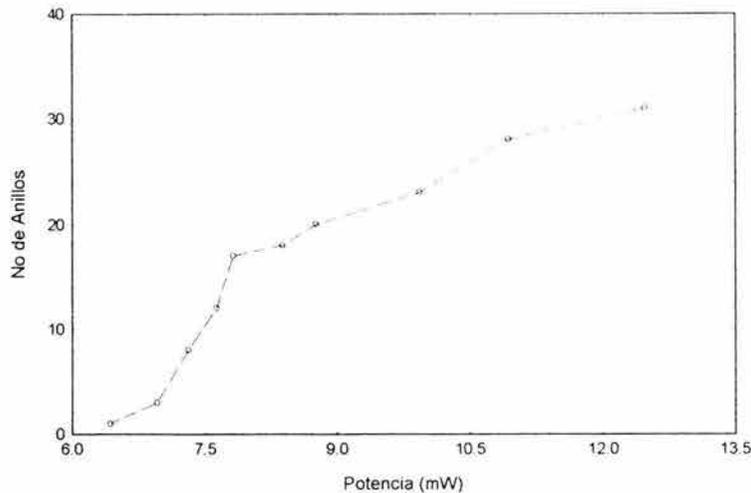


Figura 5.3: Número de anillos como función de la potencia de entrada. Incidencia normal, potencia crítica de Freedericksz= 6.45 mW.

lentamente y el patrón de difracción se graba como función del voltaje. Entre  $V_{rms} = 0$  y  $V_{rms} = 17.37 V$ , el patrón permanece estático con 31 anillos, pero los bordes de los anillos se vuelven más difusos. Se forma una región anular oscura que separa la región central con anillos gruesos, de la región externa con anillos delgados.

A  $V_{rms} = 17.37 V$ , se alcanza el régimen rotacional estable, ( $RS$ ). Se puede apreciar una sombra tenue, superpuesta al patrón de anillos y girando alrededor de la región anular oscura (figura 5.5a) con velocidad angular constante. Para  $V_{rms} = 20.34 V$ , la sombra se define más y se puede apreciar que sólo los anillos alrededor de la región anular oscura se deforman en una forma aberracional compleja, similar a las aspas de un molino de viento, figura 5.5b. La velocidad angular de estas aspas permanece constante; no se modifica apreciablemente con el incremento de voltaje y su sentido de rotación es en el sentido de las manecillas del reloj, aunque también se ha observado rotación en sentido opuesto. La rotación de estas aspas puede ser apreciada a simple vista, sin embargo, para visualizarlas mejor en la figura 5.6 se añadieron líneas punteadas para delimitar sus fronteras. Puede notarse que entre las regiones de las aspas existe una zona en donde la interferencia es máxima y puede visualizarse como una serie de máximos y mínimos en

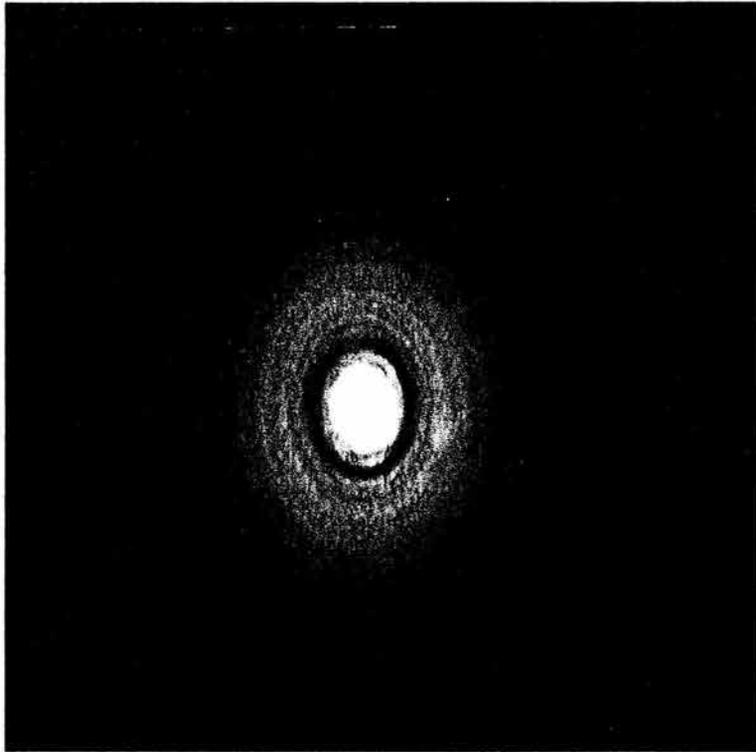


Figura 5.4: Patrón de difracción,  $V_{rms} = 10 \text{ V}$ . La región anular oscura crece conforme  $V_{rms}$  aumenta.

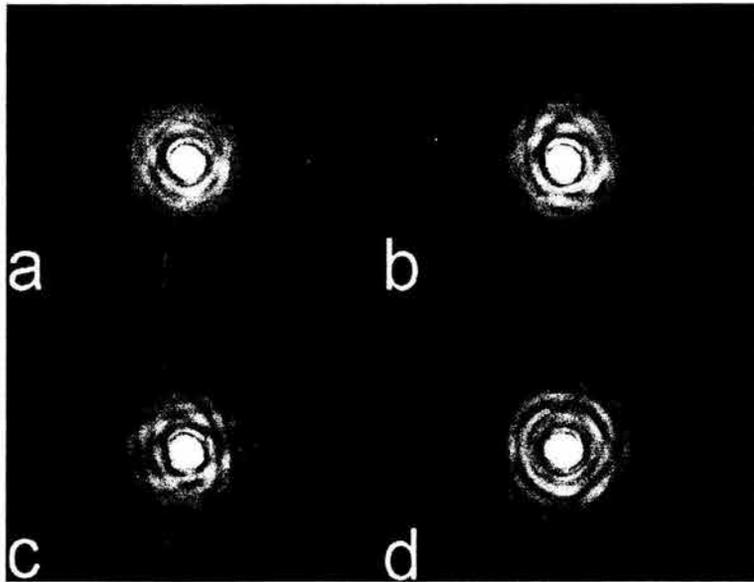


Figura 5.5: Patrón de difracción en el régimen de rotación estable ( $RS$ ): A)  $V_{rms} = 17.37 V$ , B)  $V_{rms} = 20.34 V$ . Rotación inestable; C)  $V_{rms} = 26.02 V$ . Rotación compleja D)  $V_{rms} = 30.2 V$

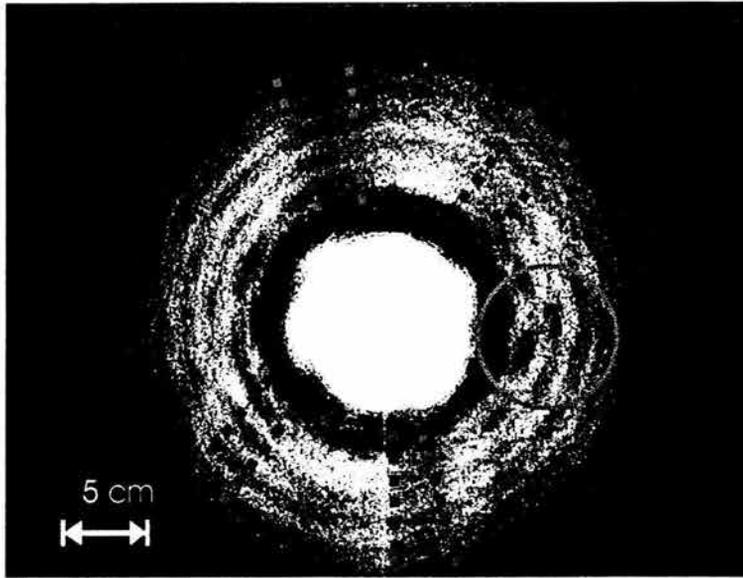


Figura 5.6: Esquema de la estructura aberracional girando con velocidad angular constante. La estructura es semejante a una aspas de molino. Las líneas punteadas se agregaron con el propósito de visualizar las fronteras de las aspas. El círculo encierra la región *MCR*.

una región muy localizada del patrón que gira con las aspas. Esta zona se ha resaltado en la figura 5.6 y se le denominará zona de máximo contraste, *MCR*. Esta región es simétrica con respecto al centro del patrón y nos ayudará a visualizar la rotación. Se ha elegido esta zona ya que en el análisis de las cinta de video se distingue más que las fronteras de las aspas, por lo que las mediciones se enfocarán en esta región del patrón.

Para  $V_{rms} = 26.02 V$  se alcanza el régimen de rotación inestable, *RI*, en donde la distorsión de los anillos se hace más prominente y su velocidad angular deja de ser constante cambiando inclusive el sentido de rotación en forma abrupta. Esta es una pequeña región de transición ya que para voltajes por arriba de este valor se alcanza el régimen altamente inestable, *AI*. Los anillos se deforma aún más 5.5c, la aspas se pierden y se puede apreciar una dinámica más compleja con una mezcla de rotaciones y pulsaciones. Sin embargo, la dinámica es lenta y sus cambios pueden apreciarse a simple vista, pero la periodicidad se ha perdido. Por arriba de  $V_{rms} = 30.6 V$ , la dinámica

se vuelve más compleja, se establece un régimen aparentemente rotacional en el que los anillos giran a una alta frecuencia. Aún más, es posible apreciar que mientras los anillos en la parte central giran en dirección de las manecillas del reloj los anillos exteriores giran en sentido opuesto. Es en este régimen la dinámica del patrón se vuelve tan irregular que es posible que pueda tener un comportamiento caótico. A este régimen se le ha denominado de rotación compleja *RC*, figura 5.5d.

En la siguiente sección se analizará el caso particular de rotación estable, *RC*.

### 5.2.3. Régimen de rotación estable

Una primera caracterización de este régimen se llevó a cabo analizando la cinta de video correspondiente a  $V_{rms} = 20.32 V$ . Se capturaron los cuadros del video y se observó la posición angular de la zona *MCR* como función del tiempo. En la figura 5.7 se muestra una secuencia de fotografías que ilustran la rotación estable. Se agregó una flecha sobre la zona *MCR* para propósitos ilustrativos. Del análisis de estas fotografías se obtiene el periodo de rotación,  $T = 2.5$  s. Por tanto, la velocidad angular en promedio es  $\omega = 2.51 \text{ s}^{-1}$ .

Sin embargo, es también posible medir la velocidad angular y el periodo de rotación colocando un fotodetector de área grande en el plano de la pantalla y sobre la zona del patrón de difracción por la que pasa la *MCR*. La señal se capturó con una tarjeta de adquisición de datos. Los resultados se muestran en la figura 5.8. Estas gráficas corresponden a la variación de la intensidad del haz sobre la zona *MCR* como función del tiempo para diferentes valores del voltaje aplicado,  $V_{rms}$  manteniendo la frecuencia del campo AC y la potencia del láser constantes. Los mínimos de esta señal corresponden al paso de *MCR* sobre el fotodetector. Ya que la *MCR* es simétrica con respecto al centro del patrón, se tiene que dos mínimos consecutivos corresponden a un periodo de rotación. Del análisis de las señales capturadas obtenemos que el periodo de rotación corresponde a  $T = 2.53$  segs. En la figura 5.8 se puede apreciar además como la estructura de la zona *MCR* se vuelve más compleja y su período de rotación decrece ligeramente conforme el voltaje aumenta.

Para voltajes mayores, la señal pierde todo tipo de periodicidad y es posible que el régimen sea caótico; sin embargo, es necesario hacer un estudio de estas series de tiempo para tener la evidencia de que el sistema es efectivamente caótico.

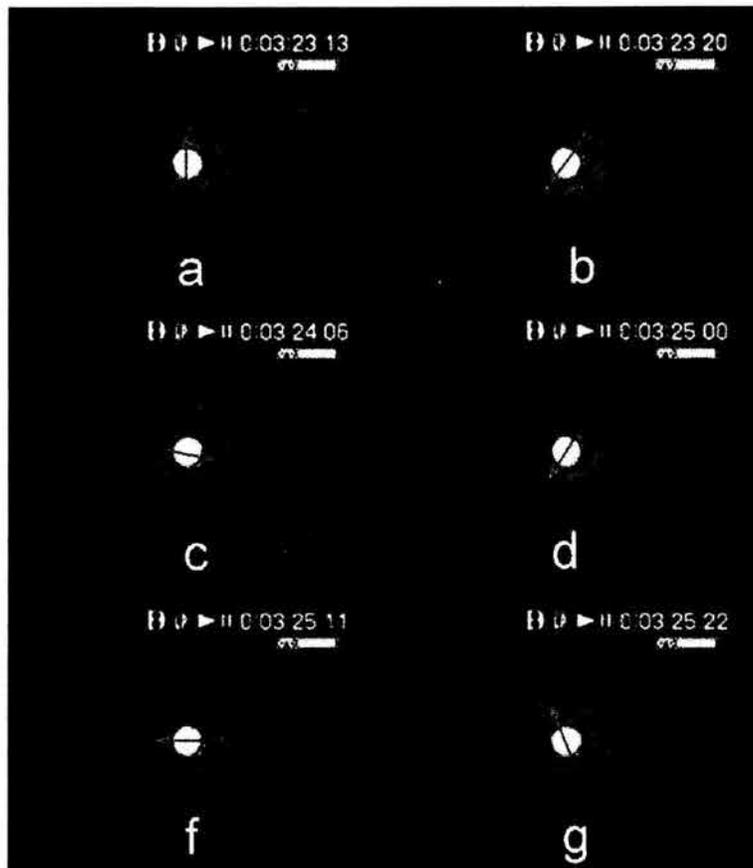


Figura 5.7: Secuencia de fotografías que muestran la rotación estable. La flecha se agregó con fines ilustrativos. El número en la parte superior derecha muestra en número de cuadro y el tiempo.

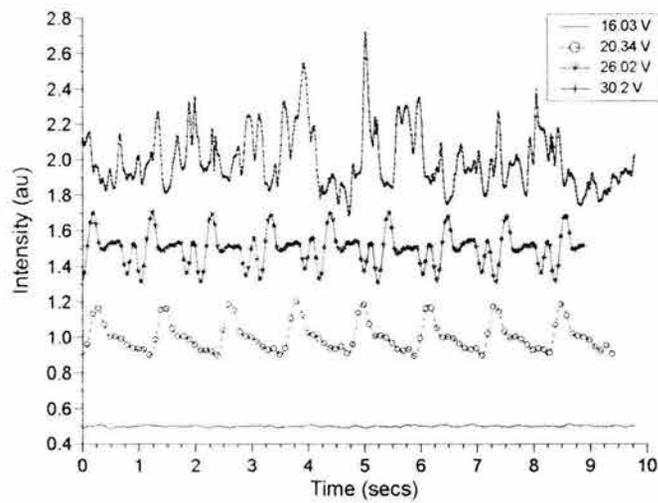


Figura 5.8: Señal del fotodetector colocado sobre la zona por la que pasa la *MCR* como función del tiempo. La intensidad esta normalizada con respecto al valor medio. De arriba a abajo los voltajes son:  $V_{rms} = 16.03$  V (*S*),  $V_{rms} = 17.37$  (umbral entre *S* and *RS*),  $V_{rms} = 20.34$  V (*SR*),  $V_{rms} = 26.02$  V, (umbral entre *RS* y *RI*),  $V_{rms} = 30.2$  V (*RC*).

#### 5.2.4. Diagrama de fases: el régimen rotacional estacionario

Para una potencia fija del láser la variación de los parámetros del campo AC da origen a diferentes regímenes dinámicos en el patrón de rotación. Para el caso particular del régimen de rotación estable, (*RS*) a una potencia fija del láser,  $P = 12mW$ , se determinó el equivalente a un diagrama de fases de los otros dos parámetros de control;  $V_{rms}$  y  $\nu$ .

La forma de proceder fue la siguiente. Manteniendo la frecuencia  $\nu$  fija, el voltaje se incrementó lentamente, hasta que la señal del fotodetector en la pantalla del patrón se volvía periódica. Este voltaje marca el mínimo de la rotación,  $V_{\min}$ . Se continúa elevando el voltaje hasta que la señal del fotodetector deja de ser periódica y el patrón se vuelve inestable,  $V_{\max}$ . Las mediciones se repiten en sentido inverso y se nota que existe cierta histéresis, ya que una vez que se pierde la rotación estable se tiene que disminuir el voltaje para alcanzar de nuevo el régimen estacionario. En la figura 5.9 se grafica el valor medio de  $V_{\max}$  y  $V_{\min}$  tomando en cuenta los efectos de histéresis denotado por el ancho de las barra de error.

Los puntos dentro de las curvas superior e inferior representan el régimen de rotación estable. La curva superior es la frontera entre el régimen *RS* y *RI*. La curva inferior separa *S* y *RS*. Para valores más grandes de  $V_{rms}$ , el patrón de difracción no permanece estable, la dinámica se vuelve más complicada y el movimiento de las franjas distorsionadas se vuelve irregular.

En la figura 5.10 se muestran las curvas de voltaje como función de la potencia del haz parametrizada por la frecuencia. Como puede apreciarse de esta relación, a medida que la potencia aumenta el voltaje decrece. Más adelante, en términos de un modelo se tratará de darle una explicación cuantitativa.

### 5.3. Modelo.

Con base a las características observadas se propone un modelo para explicar algunas características de la dinámica del patrón, como su frecuencia y origen en el régimen *RS*, en donde la influencia de ambos campos sobre el director es calculada.

Como primer punto debe considerarse que en el fenómeno intervienen dos mecanismos fundamentales. Por un lado, la torca que ejerce el campo óptico

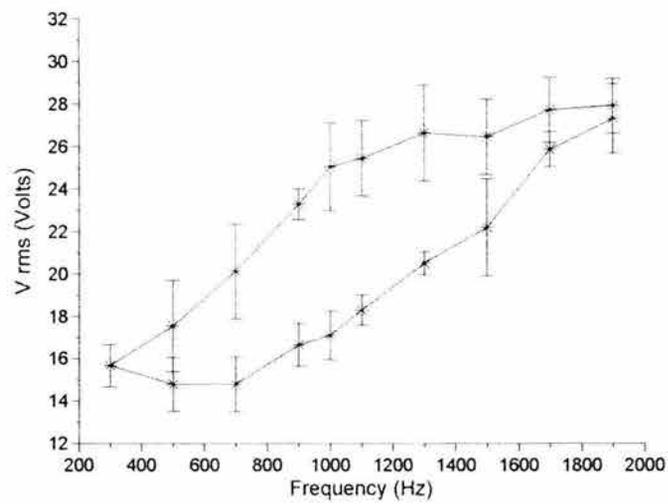


Figura 5.9:  $V_{rms}$  como función de la frecuencia del campo  $AC$  para el régimen  $RS$ . La potencia se fijó a  $12\text{ mW}$ . Las barras son una medida de la histéresis observada.

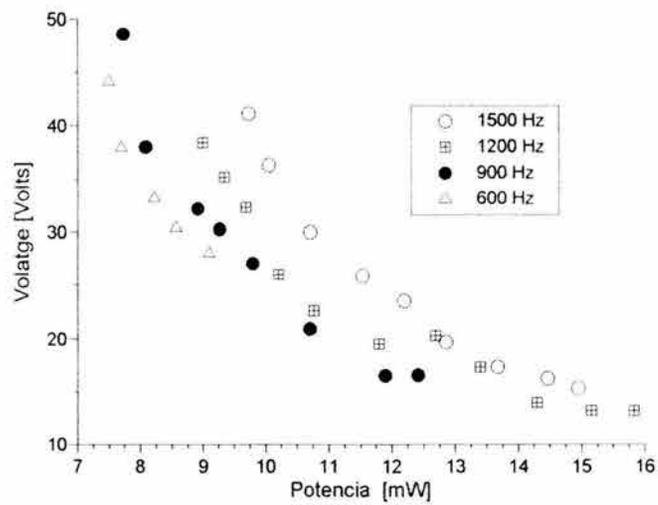


Figura 5.10: Variación del voltaje aplicado,  $V_{rms}$ , como función de la potencia del haz. Los diferentes puntos están parametrizados con respecto a la frecuencia del campo AC.

sobre las moléculas del cristal líquido, produce una reorientación a lo largo de la dirección de la componente eléctrica del campo óptico. Por otro lado, la absorción de las moléculas de tinta induce un gradiente de temperaturas y, por tanto, el parámetro de orden escalar,  $S(T)$ , del cristal líquido cambia.

Una de las consecuencias principales de la variación de  $S(T)$  es la polarización que se induce por el efecto de orden (order effect), similar al fenómeno de flexo-electricidad [55], [87].

De acuerdo con esta teoría la polarización debido al efecto de orden está dada por

$$\vec{P}_{order} = f_0 \left[ (\hat{n} \cdot \nabla S) \hat{n} - \frac{1}{3} \nabla S \right], \quad (5.1)$$

donde  $f_0$  es el coeficiente del efecto de orden que tiene el mismo orden de magnitud que los coeficientes flexoeléctricos [9], [88],[89]. En el sistema MKS sus unidades son *Coulomb/m*.

La presencia de la tinta produce dos efectos; por un lado la amplificación de la torca ejercida por el campo óptico en un factor  $\zeta$ , que depende de la concentración de la tinta, efecto Janossy. Por otro lado, aumenta considerablemente la absorción del medio. De acuerdo con la literatura, en el efecto "Guest-Host" las moléculas de tinta tienden a alinearse en forma paralela al campo director sin cambiar apreciablemente el índice de refracción o las constantes elásticas del cristal líquido.

Si inicialmente la celda se encuentra en una configuración homeotrópica, las moléculas de tinta estarán alineadas a lo largo de la dirección transversal a las placas de la celda, como se ilustra en la figura 5.11. Para un dicroísmo positivo, la absorción es mayor a lo largo de esta dirección que en las direcciones transversales. Conforme la potencia del haz se incrementa por arriba de la transición de Freedericksz, el campo director tiende a alinearse en dirección de la polarización del campo óptico. De igual forma, las moléculas de tinta en su estado base se alinearán en esta dirección por lo que la absorción ahora será mayor en la dirección de polarización del campo óptico, figura 5.12.

El campo óptico es un haz Gaussiano linealmente polarizado en la dirección  $x$  y propagándose en la dirección  $z$ ,

$$\vec{E} = E_0 \exp \left[ - \left( \frac{r}{\sqrt{2}\sigma} \right)^2 \right] \exp [i(k_z z - \omega_{opt} t)] \hat{x}, \quad (5.2)$$

donde  $E_0$  es la amplitud en el centro del haz,  $r$  denota la distancia radial

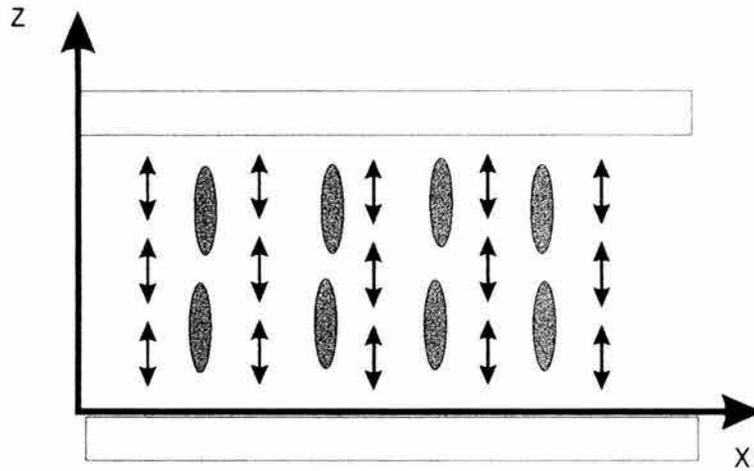


Figura 5.11: Esquema de una distribución típica de las moléculas de tinta (gris) en una celda homeotrópica.

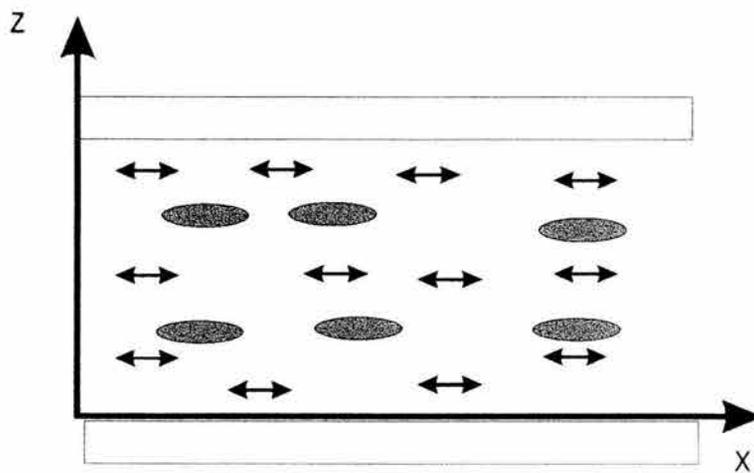


Figura 5.12: Esquema de la orientación del campo director y de las moléculas de tinta (gris), después de la reorientación de Fredericksz. La absorción ahora es diferente a la absorción cuando no existe el campo óptico, fig 5.11.

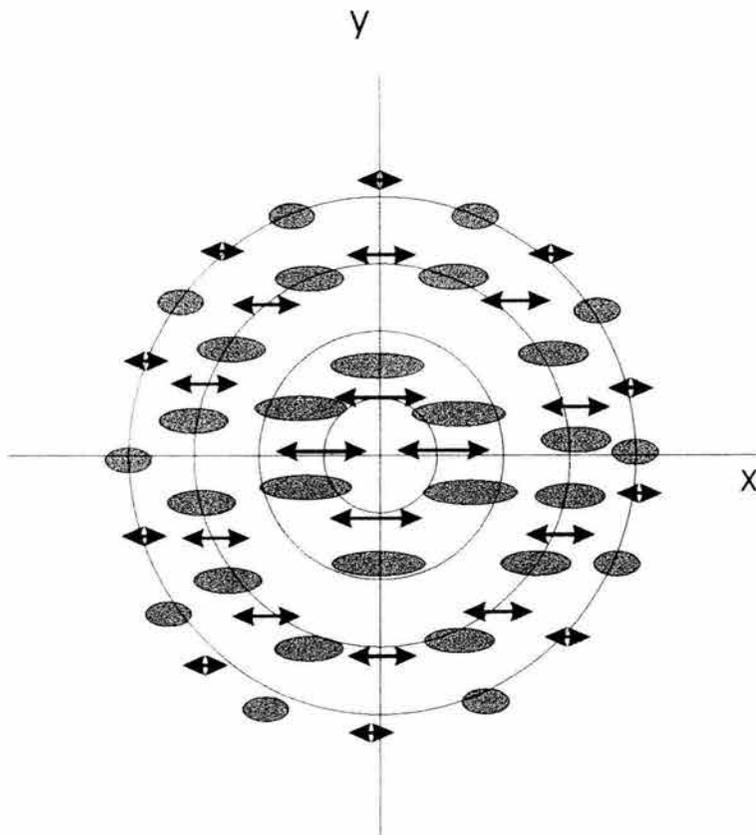


Figura 5.13: Esquema de la distribución de moléculas de tinta y del campo director para una intensidad del campo óptico mayor a la intensidad de Freedericksz. Para un dicroísmo positivo la absorción es predominante a lo largo del eje largo de las moléculas por lo que la absorción es mayor en la dirección  $x$  que en la  $y$ .

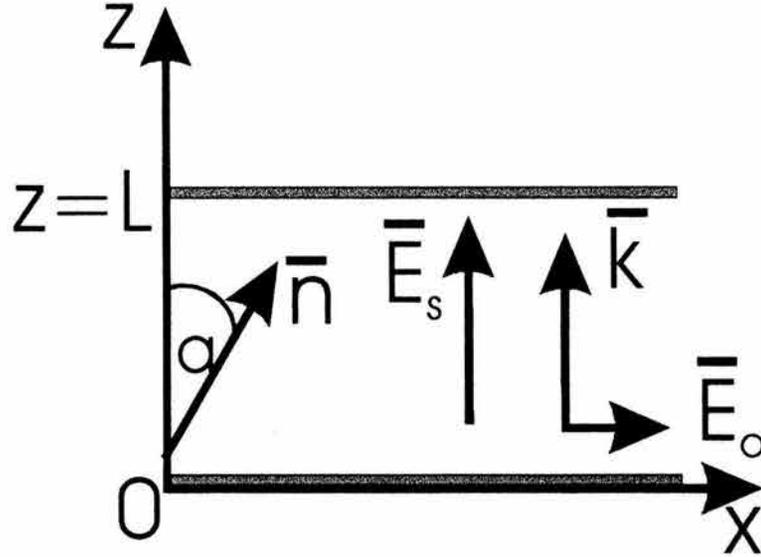


Figura 5.14: Esquema de la geometría de los campos involucrados.  $\bar{E}_s$  es el campo alterno estático,  $\bar{E}_o$  es el campo óptico con vector de onda  $\bar{k}$ .  $L$  es el espesor de la muestra y  $\bar{n}$  denota al campo director.

medida desde el centro del haz y  $\sqrt{2}\sigma$  representa el radio del haz en el plano focal de la lente.  $\omega_{opt}$  es la frecuencia del campo óptico,  $k_z$  es la componente del vector de onda a lo largo del eje  $z$ ,  $\hat{x}$  es el vector unitario en la dirección  $x$ . El campo  $AC$  de baja frecuencia es de la forma

$$\vec{E}_s = E_s \exp(i\omega_{st}t) \hat{z}, \quad (5.3)$$

siendo  $E_s = V_{rms}/l$  y  $\hat{z}$  el vector unitario a lo largo de la dirección  $z$ . Una representación esquemática de los campos se muestra en la figura 5.14.

Se asume que la reorientación del director ocurre en el plano,  $x - z$ , de tal forma que al tiempo  $t$ ,

$$\bar{n} = [\sin \theta(r, \phi, z, t), 0, \cos \theta(r, \phi, z, t)], \quad (5.4)$$

donde  $\theta$  está definido con respecto al eje  $z$  (figura 5.14) y  $(r, \phi, z)$  son las coordenadas cilíndricas centradas en el haz.

Como se discutió anteriormente, la absorción de las tintas dicroicas es dos órdenes de magnitud mayor que la de un nemático puro por lo que es

de esperarse que los efectos térmicos sean significativos en el parámetro de orden escalar,  $S$ . Como se discutirá más adelante, esta absorción puede dar lugar a un incremento de temperatura  $\delta T \sim 12 - 15 \text{ }^\circ K$ , por otro lado, debido al dicroísmo y al hecho de que el haz tenga un perfil Gaussiano, es de esperarse que se genere un gradiente de temperatura que a su vez da origen a un gradiente en el parámetro de orden escalar de acuerdo con la relación [17],

$$\nabla S = \frac{dS}{dT} \nabla T. \quad (5.5)$$

Así, considerando como una primera aproximación que el proceso es isotérmico durante el paso del estado inicial al estado final del sistema. Aquí no se explicaran los procesos de transporte de calor asociado a la absorción. Bajo esta aproximación, las contribuciones a la densidad de energía libre de Helmholtz del sistema son: la energía elástica, [3]

$$f_{elas} = \frac{K}{2} [(\nabla \cdot \hat{n})^2 + (\nabla \times \hat{n})^2], \quad (5.6)$$

la contribución debido a los campos electromagnéticos,

$$f_{elec} = -\frac{1}{2} \left( \varepsilon_a^{opt} (1 + \zeta) |\vec{E}_{opt}|^2 \text{sen}^2 \theta + \varepsilon_a^{stat} |\vec{E}_{ac}|^2 \text{cos}^2 \theta \right), \quad (5.7)$$

y la energía resultante del acoplamiento de la polarización debido al efecto de orden y al campo alterno de baja frecuencia  $\vec{E}_{ac}$ , es,

$$f_{order}^{ac} = \frac{1}{2} \vec{P}_{order} \cdot \vec{E}_{ac}. \quad (5.8)$$

En esta expresión  $K$  es la constante elástica del nemático bajo la aproximación de constantes elásticas iguales,  $\varepsilon_a^{opt}$  y  $\varepsilon_a^{static}$  son, respectivamente, las anisotropías dieléctricas para los campos ópticos y de baja frecuencia, y  $\zeta$  es el factor de amplificación debido al efecto Jánossy.

Si la intensidad del campo óptico es mucho mayor que la intensidad crítica de Freederickzs, el número de anillos permanece constante (ver figura 5.3) y se espera que  $\hat{n}$  se encuentre alineado con  $\vec{E}_{opt}$  a lo largo de la dirección  $x$ . (figura 5.12). Como se mencionó antes, es de esperarse que la absorción a lo largo de la dirección  $x$  sea mayor que a lo largo de  $y$  y  $z$ . En consecuencia es razonable asumir que  $(\nabla T)_x$  sea mayor que las otras dos componentes.

Bajos estas suposiciones se tiene que la forma explícita de la ec.(5.8) puede escribirse como

$$f_{order}^{ac} \approx \frac{f_0}{2} |\nabla S| \left| \vec{E}_{ac} \right| \text{sen}2\theta. \quad (5.9)$$

Una simple estimación del  $|\nabla T|$  puede encontrarse en la referencia [17] en donde que el medio es homogéneo e isotrópico y la dinámica del intercambio de calor está descrita por la ecuación de calor,

$$\kappa \nabla^2 T - \rho c_v \frac{\partial T}{\partial t} = -\alpha I. \quad (5.10)$$

donde el campo óptico se considera como la fuente de calor a través de su irradiancia  $I$ ,  $\rho$  es la densidad del medio,  $c_v$  es el calor específico a volumen constante y  $\kappa$  es la conductividad térmica. Para el estado estacionario se tiene que,

$$|\nabla T| = \frac{\alpha \sigma}{2\kappa} c \varepsilon_0 \left| \vec{E}_{opt} \right|^2, \quad (5.11)$$

donde  $\alpha$  es el coeficiente de absorción lineal que puede identificarse con  $\alpha_{||}$ ;  $\sigma$  es la cintura del haz y como es usual,  $c$  y  $\varepsilon_0$  son la velocidad de la luz y la susceptibilidad eléctrica del vacío. En términos de estas cantidades la ecuación (5.9) se escribe como,

$$f_{order}^{ac} = A \frac{dS}{dT} \left| \vec{E}_{opt} \right|^2 E_{ac} \text{sen}2\theta, \quad (5.12)$$

donde

$$A = f_0 \frac{\alpha l}{2\kappa} c \varepsilon_0. \quad (5.13)$$

El valor del coeficiente  $\frac{dS}{dT}$  en (5.9) se ajusta por los resultado experimentales.

La ecuación reorientacional para  $\theta$  se obtiene calculando las correspondientes ecuaciones de Euler-Lagrange a partir de la energía libre de Helmholtz, [3],

$$F = \int_V (f_{elas} + f_{elec} + f_{order}^{ac}) d\vec{r},$$

y asumiendo que la reorientación es un proceso de relajación, esto es,

$$\frac{\partial \theta}{\partial t} = -\eta \frac{\delta F}{\delta \theta}, \quad (5.14)$$

donde  $\eta$  es la viscosidad orientacional y  $\frac{\delta}{\delta \theta}$  denota la derivada variacional con respecto al ángulo  $\theta$ .

En forma consistente con las suposición de despreciar los fenómenos de transporte y describiendo la orientación a una distancia  $r$  fija del centro del haz, se tiene que la ecuación dinámica de  $\theta(\phi)$ , siendo  $\phi$  el ángulo azimutal, puede escribirse como

$$\eta\partial\theta/\partial t = K\nabla^2\theta - (E_s^2\varepsilon_a^{stat}\text{sen}2(\theta) - E_o^2e^{-(\frac{r}{\sigma})^2}\varepsilon_a^{opt}(\zeta + 1)\text{sen}2\theta)/2 + A\frac{dS}{dT}\left|\vec{E}_{opt}\right|^2 E_{ac}\cos 2\theta. \quad (5.15)$$

Asumiendo que las condiciones de frontera del nemático son de anclaje fuerte,  $\theta(z = 0) = \theta(z = l) = 0$ , entonces  $\theta$  se desarrolla en modos como

$$\theta(r, \phi, z, t) = \sum_{n=1}^{\infty} \Theta_n(r, \phi, t)\text{sen}(n\pi z/l). \quad (5.16)$$

Como se mostrará más adelante, el primer modo  $\Theta = \Theta_1$  será el dominante. Insertando la ec. (5.16) en la ec. (5.15), desarrollando en series de Taylor hasta tercer orden en  $\Theta_1$ , multiplicando el resultado por  $\text{sen}(\pi z/l)$ , e integrando sobre el espesor de la celda se tiene la siguiente ecuación dinámica para  $\Theta_1(\phi, t)$

$$-\frac{\partial^2\Theta_1}{\partial(a\phi)^2} + \Omega^{-1}\frac{\partial\Theta_1}{\partial t} - \chi + \Theta_1 + \chi\Theta_1^2 - 8\Theta_1^3/9 = 0, \quad (5.17)$$

con

$$\Omega^{-1} \equiv \frac{\eta\pi r^2}{4Ka^2}. \quad (5.18)$$

En esta expresión la dependencia radial ha sido despreciada  $\partial\Theta/\partial r = 0$ , sin embargo la coordenada radial  $r$  entra como un parámetro  $\chi$  definido como

$$\chi \equiv \frac{2r^2 A}{\pi a^2 K} \frac{dS}{dT} E_{ac} E_{opt}^2 \exp\left[-\frac{r^2}{\sigma^2}\right], \quad (5.19)$$

y

$$a^2 \equiv \frac{\varepsilon_a^{stat} E_{ac}^2 - \varepsilon_a^{opt} (1 + \zeta) \exp\left[-\frac{r^2}{\sigma^2}\right] E_{opt}^2}{K} r^2. \quad (5.20)$$

La ecuación (5.17) es una ecuación de balance de torcas para el nemático, en particular  $f(\Theta_1) = \chi + \Theta_1 + \chi\Theta_1^2 - 8\Theta_1^3/9$  denota las torcas asociadas con ambos campos externos. Al tomar la parte lineal de la ec(5.17) se encuentra

que el tiempo de relajación del modo  $n$ -ésimo es  $(n^2\pi^2r^2/l^2 + 1)^{-1}$ . Por consiguiente el primer modo es el dominante, i.e. el que persiste más en el tiempo. Siguiendo la dinámica de este modo es posible describir la dinámica reorientacional del régimen de rotación estable,  $RS$ .

La ec. (5.17) es la ecuación de Nagumo y es bien conocido que posee soluciones de tipo soliton-orientacional (soliton-kink) de la forma [90],

$$\Theta_1 = \frac{\Theta_j - \Theta_i}{1 + \exp(ba(\phi - \bar{\omega}t))} + \Theta_i, \quad i, j = +, -, 0, \quad (5.21)$$

donde  $\Theta_i$  son las soluciones del polinomio de tercer orden  $f(\Theta_1)$ , que para valores pequeños de  $\chi$  están dados por

$$\Theta_{\pm} = \pm 1.4142 - 0.83\chi, \quad (5.22)$$

$$\Theta_0 = \chi. \quad (5.23)$$

$\bar{\omega}$  es la frecuencia de rotación de la solución tipo kink,

$$\bar{\omega} = \frac{\pm(\Theta_j + \Theta_i - 2\Theta_k)}{\sqrt{2}a\Omega}, \quad (5.24)$$

y  $b$  está dado por

$$b = \pm 3/2\sqrt{2} + \chi/16. \quad (5.25)$$

Es importante recalcar que la ec.(5.17) es una ecuación diferencial parcial, no lineal, que describe la dinámica espacio-temporal de  $\Theta_1$ . No es una ecuación de amplitud, la cual sigue la evolución temporal [85]. En este sentido el modelo nos permite obtener la dependencia temporal de la señal, así como los patrones espaciales.

Los diferentes estados estacionarios de la configuración están dados por las soluciones  $\Theta_i$  ( $i = +, -, 0$ ) donde  $+$  y  $-$  corresponden a los estados estables, mientras que  $0$  corresponde al estado inestable. Ya que estos estados tienen diferentes orientaciones, el sistema se divide en dominios cada uno de los cuales tiene los estados  $(+, -)$ ; Las paredes que los separan pueden ser identificados con los "Kinks" asociados a la ec. (5.17).

Considerando una geometría simplificada en la forma de un sector circular, con los dominios en sectores anulares en donde ambos campos, el óptico y el de baja frecuencia son comparables, esto se ilustra en la figura 5.15.

Usando la ec. (5.24) y la definición de  $\Omega$  dada por la ec.(5.18) se puede obtener una expresión explícita para la frecuencia de rotación de las paredes entre ambos dominios,  $\bar{\omega}$ ,

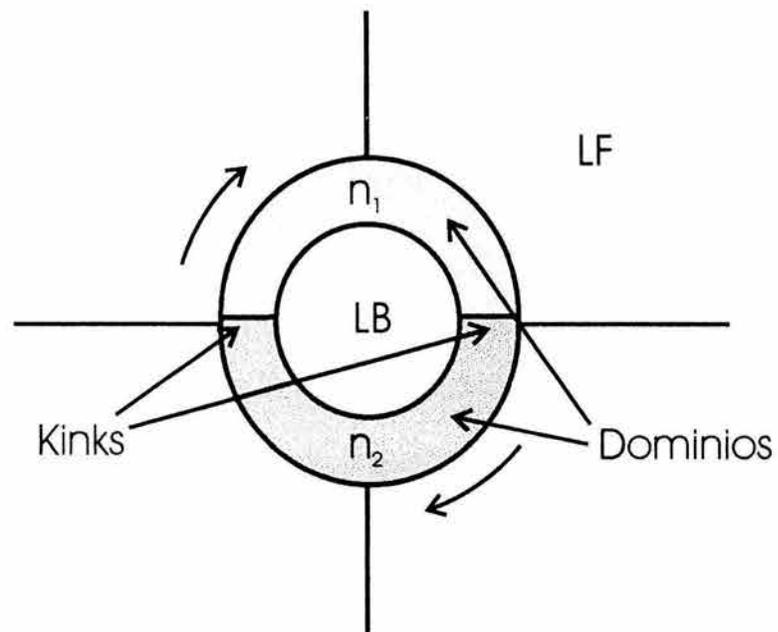


Figura 5.15: Esquema de la representación de los dominios en la región anular para la cual el campo óptico y alterno son comparables.  $n_1$  y  $n_2$  denotan los índices de refracción efectivos asociados a cada dominio,  $LB$  es la región dominada por el campo óptico y  $LF$  es la región donde predomina el campo alterno.

$$\bar{\omega} = \pm \frac{5K\alpha\chi}{2\sqrt{2}\eta\pi r^2}. \quad (5.26)$$

Esta puede ser reescrita más explícitamente en términos de los campos usando la ec.(5.19) y ec.(5.20)

$$\bar{\omega} = \pm \frac{5A\sqrt{K}\frac{dS}{dT}}{\sqrt{2}\eta r\pi^2} \frac{E_{ac}E_{opt}^2 \exp[-\frac{r^2}{\sigma^2}]}{\sqrt{\varepsilon_a^{stat}E_{ac}^2 - \varepsilon_a^{opt}(1 + \zeta) \exp[-\frac{r^2}{\sigma^2}]E_{opt}^2}}. \quad (5.27)$$

### 5.3.1. Frecuencia de rotación de los dominios

Usando los datos experimentales para  $P$  y  $\sigma$ , se obtiene que la intensidad en el centro del haz es  $I_0 = 7.95 \times 10^5 \text{ W/m}^2$ , que produce un campo de  $5.4 \times 10^{-4} \text{ V/m}$ . El campo  $AC$  para una celda de  $24 \mu\text{m}$  y con un voltaje  $V_{rms} = 17 \text{ V}$  es  $E_s = 2.1213 \times 10^5 \text{ V/m}$ . El factor de amplificación,  $\zeta$  puede ser estimado usando la potencia crítica en la transición de Fredericksz para la celda dopada,  $P_{fre}^{dye} = 6.45 \text{ mW}$ , que da un campo de  $E_{fre}^{dye} = 4 \times 10^4 \text{ V/m}$ . Ahora bien, el campo crítico para una celda de cristal líquido con el mismo espesor es de  $E_{fre}^{pure} = 7.4 \times 10^6 \text{ V/m}$ , la razón entre estos dos campo da un factor de amplificación  $\zeta = 185$ .

Los parámetros materiales para el  $E7$  son  $K = 1 \times 10^{11} \text{ N}$ ,  $\varepsilon_a = 0.225$ ,  $\varepsilon_{as} = 4.9$ ,  $\eta = 3.9 \times 10^{-1} \text{ poise}$ ; la conductividad térmica típica para un nemático termotrópico es  $\kappa = 10^{-1} \frac{\text{W}}{\text{Km}}$ , la absorción a lo largo del eje de las moléculas,  $\alpha_{\parallel} = 1.7 \times 10^5 \text{ m}^{-1}$  [24], mientras que un valor típico del coeficiente de orden,  $f_0$  es  $f_0 = 3 \times 10^{-11} \text{ C/m}$  [55].

Con estos parámetros es posible estimar el cambio en la temperatura de la muestra asumiendo como primera aproximación que el frente de onda del haz incidente es plano y que el intercambio de calor a través de las fronteras es ideal por lo que la solución de la ecuación (5.11) es

$$T = T_R + \delta T_M \sin \left[ \frac{\pi}{d} \left( z + \frac{d}{2} \right) \right], \quad (5.28)$$

donde  $T_R$  es la temperatura ambiente y  $\delta T_M$  es la temperatura máxima dentro de la celda. Promediando esta expresión sobre el espesor de la celda se obtiene que

$$\delta T = \left( \frac{\pi}{d} \right)^2 \frac{\alpha}{\kappa} I. \quad (5.29)$$

Usando los valores para los parámetros involucrados se tiene que  $\delta T \sim 12 - 15$  °K, que es un aumento de temperatura considerable.

Ahora bien, para  $r = \frac{1}{2}\sigma$ , y usando los valores listados arriba junto con el ajuste  $\frac{dS}{dT} = 0.09$ , se encuentra que  $\bar{\omega} = 2.58$  Hz que es un valor muy cercano al correspondiente valor experimental medido,  $\bar{\omega}_{\text{exp}} = 2.358$  Hz.

No se tiene un conocimiento directo del valor de  $\frac{dS}{dT}$ , sin embargo, es posible obtener a partir de la variación de los índices de refracción una estimación de este valor a partir de la variación del índice de refracción  $\frac{dS}{dT} \sim \frac{dn}{dT} \sim 10^{-2}$  K<sup>-1</sup>, que es del mismo orden del valor usado para ajustar el modelo.

### 5.3.2. Contribución de los dominios al patrón de difracción

A pesar de que  $\Theta_1$  no es una función periódica, es razonable esperar que exista un número par de estas paredes (kinks) en el intervalo  $0 \leq \phi \leq 2\pi$ . Por tanto, al menos dos Kinks deben existir en la celda para que den origen a dos dominios donde las torcas de ambos campos sean comparables. Una forma simple de visualizarlo, es considerando dos regiones del mismo tamaño, figura 5.15. Cada dominio introduce en el haz cambios de fase que en general son diferentes. Asumiendo que dentro de cada dominio la orientación del nemático es homogénea es posible utilizar la integral de difracción de campo lejano [14] (Fraunhofer) para describir la propagación del haz de salida al plano de proyección en la pantalla,

$$E_{sc}(R, \Phi) = E_0 \exp(in_1 k_0 l) \left[ \int_0^{2\pi} \exp\left(\frac{ik_o r R'}{R_{sc}} \cos(\tau - \Phi)\right) d\tau + (\exp(i\delta) - 1) \int_{\pi}^{2\pi} \exp\left(\frac{ik_o r R'}{R_{sc}} \cos(\tau - \Phi)\right) d\tau \right], \quad (5.30)$$

donde  $E_0$  es la amplitud de la onda a la salida de la muestra,  $n_1$  es el índice de refracción efectivo de uno de los dominios,  $\tau$  y  $\Phi$  son los ángulos azimutales en el plano de la celda y en el plano de la pantalla, respectivamente.  $R_{sc}$  es la distancia entre el plano de la pantalla y la celda y  $\delta$  es el cambio de fase producido por los diferentes índices de refracción efectivos en cada dominio.

Ahora bien, la integral de la ec. (5.30) puede obtenerse de una forma simple si se considera que la orientación en cada dominio es homogénea. Para un cierto tiempo  $t$ , el ángulo  $\theta$  está dada por la ec.(5.22). Si bien estas son las amplitudes del primer modo de Fourier, vamos a considerar que este

es el valor a lo largo de la dirección  $z$ . Como se discutió en el capítulo 1 el índice de refracción efectivo que sufre la onda extraordinaria en general puede escribirse como

$$n_{eff}^{\pm} = \frac{n_e n_o}{\sqrt{n_e \text{sen}^2 \Theta_{\pm} + n_o^2 \cos^2 \Theta_{\pm}}}, \quad (5.31)$$

donde  $\Theta_{\pm}$  está dado por la ec.(5.22). La diferencia de fase relativa entre los dos dominios,  $\delta$  puede escribirse entonces como

$$\delta = k_0 l (n_{eff}^+ - n_{eff}^-). \quad (5.32)$$

Si  $\chi$  es una cantidad pequeña, entonces al desarrollar en serie de Taylor (5.32) puede escribirse como

$$\delta = \frac{\chi k_0 l n_e n_o \varepsilon_a \text{sen} 2\Phi}{16 (n_e^2 \cos^2 \Phi + n_o^2 \text{sen}^2 \Phi)^{3/2}},$$

donde  $\Phi = 3/2\sqrt{2}$ . La intensidad en el plano de la pantalla es entonces

$$I(R, \Phi) = |E_{sc}(R, \Phi)|^2. \quad (5.33)$$

Usando los valores de los índices de refracción del E7 a temperatura ambiente,  $n_e = 1.73$ ,  $n_o = 1.52$ ,  $R_{sc} = 1 \text{ m}$  y evaluando en  $r = \sigma/2$  se tiene que  $\delta = 0.34$ . Es posible graficar la contribución al patrón de difracción de la región anular y ésta se ilustra en la figura 5.16. Nótese que el patrón teórico obtenido muestra características similares a la sombra que gira en el régimen de rotación estable, fig. 5.16.

## 5.4. Conclusiones

Hasta donde se tienen conocimiento, la existencia de los regímenes dinámicos observados no ha sido reportada en la literatura.

Debe notarse que a diferencia de sustancias puras, en donde el número de anillos se modifica con la aplicación de campos alternos de baja frecuencia, aquí el número de anillos no se altera, los anillos sólo se distorsionan. Este es un fuerte indicador de que los efectos de temperatura no son despreciables y que el patrón de difracción observado es la consecuencia de diversos mecanismos como la reorientación inducida por el haz óptico, efectos térmicos que dan origen por un lado a una lente térmica como consecuencia

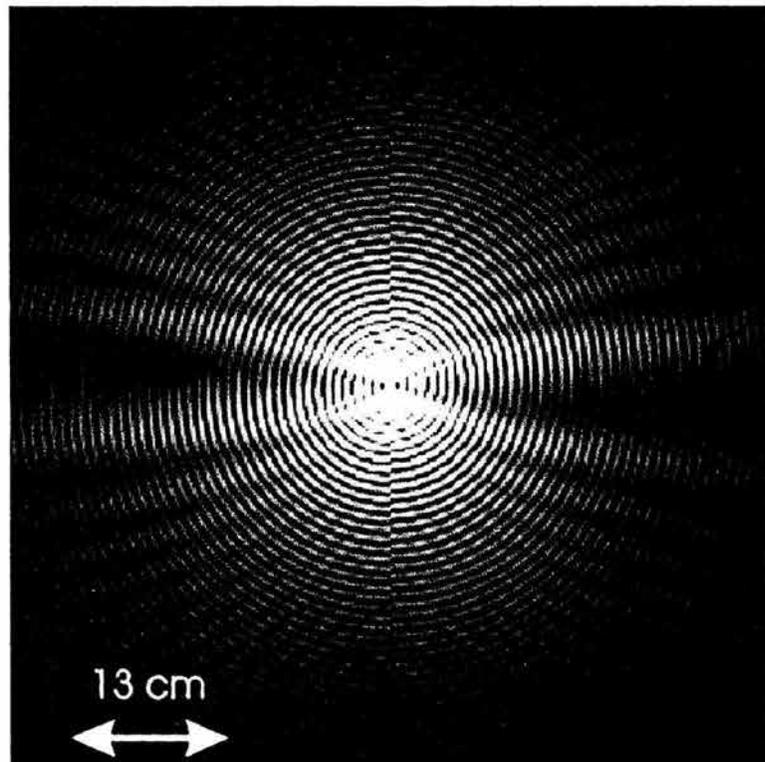


Figura 5.16: Simulación de la contribución al patrón de difracción debido a la formación de dos dominios anulares.

del gradiente de temperatura inducido en la celda [17] y, por otro lado, la variación del parámetro de orden que induce una polarización adicional en el medio. Además, resulta sorprendente que todos estos mecanismos involucrados se acoplen de tal forma que la dinámica en el patrón de rotación sea tan estable.

A pesar de que el modelo es altamente simplificado y que se han despreciado otros fenómenos complejos, tales como efectos de flujo asociados a la reorientación, histéresis, absorción no lineal, efectos de tipo conformacional en las moléculas de tinta etc, reproduce características esenciales de las observaciones experimentales, aportando una posible explicación de los mecanismos involucrados. Más aún, el modelo toma en consideración la no linealidad espacio-temporal en el proceso de reorientación y aunque sea en una forma simple, se consideran los efectos de temperatura como mecanismos de acoplamiento para la existencia de solitones orientacionales (soliton-kink).

Con respecto a las observaciones experimentales hay bastante trabajo por hacer, ya que otros regímenes dinámicos no fueron estudiados con mucho detalle. Es necesaria una caracterización completa y el desarrollo de métodos de observación para estos regímenes en donde la dinámica y la distribución espacial del patrón de difracción se vuelve sumamente compleja. En este mismo sentido el estudiar las series de tiempo asociadas a las variaciones temporales del patrón de difracción a través de técnicas de análisis no lineal resulta interesante, ya que a través de ellas se puede establecer si es posible alcanzar un régimen caótico cuando los voltajes aplicados a la celda son más grandes.

Desde mi perspectiva, esta dinámica no lineal puede ser empleada para determinar propiedades de los cristales líquidos una vez que se hayan entendido los mecanismos físicos que intervienen y quizá pueda ser empleada como lo menciona Blinov, con referencia a la dispersión dinámica en diversas aplicaciones tecnológicas [9]. Desde el punto de vista teórico, esta mezcla de los diversos mecanismos físicos, las técnicas empleadas y suposiciones para describirlos pueden ser mejorada con gran detalle.

## Capítulo 6

# Conclusiones y Perspectivas

En este trabajo se analizaron diversos aspectos de la propagación lineal y no lineal de campo ópticos en celdas con núcleo líquido cristalino. Particularmente, se estudió la respuesta óptica no lineal de cristales líquidos en diversos regímenes de interacción y su manifestación en el patrón de difracción.

Si bien los capítulos de este trabajo se encuentran íntimamente relacionados en términos de la energía de interacción del cristal líquido con el campo óptico, los resultados obtenidos y los fenómenos aquí reportados constituyen en sí mismos trabajos independientes, que contienen aspectos de interés científico y tecnológico que pueden estudiarse con mayor profundidad y producir resultados muy interesantes.

Así, por ejemplo, en el Capítulo 2 en donde se abordan algunos aspectos de la propagación lineal de un haz óptico en celdas híbridas. Se diseñó un experimento para medir la reflectancia de una celda en donde el cristal líquido, bajo esta configuración, se comporta como un medio anisotrópico e inhomogéneo para una polarización extraordinaria. Este tipo de experimentos se llevaron a cabo por dos razones principalmente; por un lado se deseaba observar el comportamiento de las trayectorias en un régimen donde existieran puntos de retorno y estudiar su manifestación en el patrón de interferencia. Por otro lado, ya que no es claro el origen de las curvas de reflectancia generadas por otros grupos de investigación [34], se decidió hacer un experimento análogo para generar resultados propios y así entenderlos. Los resultados del experimento ponen de manifiesto el comportamiento de las trayectorias en el régimen en donde existen puntos de retorno, manifestándose principalmente en cambios de fase y variaciones en la intensidad de la onda reflejada. Por otro lado, el comportamiento de las curvas de reflectancia aquí obtenidos difiere

de las curvas reportadas en la literatura [34]. Sin embargo, esta diferencia se debe a que las condiciones en las que se realizaron ambos experimentos fueron distintas, principalmente la relación entre el tamaño del haz y el espesor de la muestra. Esto, como ya se comentó, lleva a comportamientos muy diferentes en la curva de reflectancia. El trabajo correspondiente a este capítulo no se limita a la parte experimental, existe una contraparte teórica en donde se propuso un modelo que describe la propagación del haz en la celda de cristal líquido en el límite de la óptica geométrica. El modelo pone de manifiesto la importancia de la razón del ancho del haz reflejado al espesor de la muestra y su efecto en el comportamiento de la reflectancia. Esta importancia se manifiesta en los resultados aquí obtenidos y en los reportados en la literatura. El modelo va más allá y predice la existencia de un fenómeno de tunelaje cuando el ángulo de incidencia del haz es ligeramente mayor al crítico. Este fenómeno debe ser más notorio para celdas más delgadas; sin embargo el arreglo experimental de *TIR* que se discute en este trabajo no fue diseñado para la observación de este fenómeno. Por otro lado, sería de interés tomar en cuenta los posibles cambios en la trayectoria del haz cuando se aplica un campo eléctrico perpendicular a la celda. Esto cambiaría la configuración del campo director y, consecuentemente, la trayectoria y el cambio de fase. De esta forma se podría obtener un modulador de fase que dependería del voltaje; o bien, al aplicar el voltaje se puede cambiar el alcance del haz reflejado. Esto podría tener una aplicación importante como la de "beam steering" que consiste en dirigir la dirección del haz. Más aún, al combinar los efectos de tunelaje con un voltaje aplicado a través de la celda, podría controlarse la cantidad de luz transmitida o bien la longitud de onda que puede "tunear" la celda. Estos aspectos se están explorando actualmente a nivel teórico.

En el capítulo 3, se determinaron el coeficiente de absorción no lineal y el índice de refracción no lineal de celdas líquido cristalinas dopadas con diferentes concentraciones de tinta diroica. Los resultados obtenidos a través de la técnica de *Z-Scan* muestran que existe una contribución de orden superior al tercero en el caso particular de incidencia normal a la superficie de la celda. Esta contribución no existe en el caso de la incidencia oblicua. Si bien este capítulo sólo tuvo como finalidad caracterizar la susceptibilidad eléctrica no lineal de tercer orden, los resultados obtenidos son muy interesantes. Al parecer pone de manifiesto la existencia de un acoplamiento entre las fluctuaciones en la orientación del campo director y los efectos térmicos que dan origen a una contribución muy significativa de un proceso de orden

superior al tercero, en donde el índice de refracción no lineal no depende de la intensidad sino del cuadrado de ella.

Este es un problema abierto y una propuesta de modelo está en proceso. Su análisis detallado va más allá de los alcances de este capítulo. Aun así, el estudio de este problema desde el punto de vista teórico y experimental debe llevarse a cabo con mayor profundidad, ya que podría ayudar al entendimiento de los mecanismos de interacción que existen entre el cristal líquido, la tinta y el haz óptico. La propuesta a futuro para estudiar este problema a nivel experimental es la de considerar técnicas alternativas para la caracterización del medio como mezclado de ondas (4 wave mixing) [91].

En el Capítulo 4, se estudió el problema más complejo de la interacción del cristal líquido con el campo óptico en el régimen de interacción fuerte. En este caso el campo óptico reorienta al campo director induciendo un cambio de fase no lineal,  $\Delta\phi$ , mayor a  $2\pi$ , el cual produce una estructura de anillos concéntricos. Más aún, debido a que la cintura del haz es menor al espesor de la muestra, se genera una inestabilidad transversal en el campo director que da origen a la formación de una estructura superpuesta al patrón original de anillos. Esta estructura se manifiesta como un conjunto de zonas de máxima intensidad (manchas), que son simétricas respecto al centro del patrón. La estructura aparece para un valor bien definido de la intensidad del campo óptico. Para valores de la intensidad por arriba de este valor umbral, la estructura se modifica incrementándose el número de manchas. La interpretación física de este fenómeno se da en términos de un efecto de auto-retroalimentación (self feedback), en donde existe un gran acoplamiento entre el campo óptico y el campo director. De esta forma, al inducir la reorientación del campo director, el haz sufre un cambio de fase que modifica su frente de onda enfocándolo y, por tanto, el radio del haz disminuye. Como consecuencia, la intensidad se incrementa y el campo director se reorienta aún más en la zona iluminada por el láser. Esto trae como consecuencia la aparición de modos superiores en la inestabilidad transversal que dan origen a estructuras más complejas. La influencia del campo director en las zonas adyacentes a la región de interacción del haz, que dan origen a la inestabilidad transversal, ponen de manifiesto el carácter no local de la respuesta del cristal líquido a la acción del haz óptico.

Las observaciones aquí reportadas muestran la aparición de dichas estructuras para dos cristales líquidos sin dopar. En el caso de la muestra dopada el efecto no es estable, las estructuras en el patrón de difracción aparecen durante un par de segundos para después deformarse en un patrón más com-

plejo.

En la contraparte teórica se propone un modelo que predice la intensidad umbral del campo óptico cuando la inestabilidad transversal en el campo director aparece. Además, el modelo predice la magnitud del vector de onda asociado a la inestabilidad transversal. La comparación entre la predicción teórica y los resultados experimentales es muy satisfactoria, aunque el modelo debe mejorarse para poder predecir las estructuras más complejas asociadas a potencias más intensas.

En el Capítulo 5 se reporta la observación de diversos regímenes dinámicos en el patrón de difracción no lineal de muestra delgadas de cristal líquido dopado con tinta de tipo antroquinona. Como se comentó en este capítulo, el fenómeno es una consecuencia de la interacción de dos campos eléctricos aplicados de frecuencias muy diferentes: uno corresponde a frecuencias ópticas,  $10^{14} // z$ , y el otro corresponde a frecuencias en el rango de  $10^2$  a  $10^3$   $Hz$ . Sin embargo, debe notarse que las amplitudes de los campo involucrados son comparables,  $\sim 10^5 V/m$ . Para una potencia fija del haz se encontró que la variación de la amplitud del voltaje da origen a una sucesión de regímenes dinámicos a saber; estático ( $E$ ), rotacional estable ( $RS$ ), rotacional inestable ( $RI$ ), altamente inestable ( $AI$ ) y rotacional complejo ( $RC$ ) en donde la dinámica puede ser inclusive caótica. El estudio detallado de cada uno de estos regímenes rebasa los alcances de este trabajo; sin embargo, el régimen de rotación estable se estudió con más detalle determinándose los valores de los parámetros de control,  $V_{rms}$ ,  $\nu$ ,  $I$  que le dan origen.

Una posible interpretación de este régimen se da en términos de un solitón reorientacional (kink) que se origina en la interacción de los campos aplicados con el cristal líquido. Más específicamente, el campo óptico induce además de la reorientación del campo director, un gradiente térmico que da origen a una polarización a través del efecto de orden que se acopla con el campo eléctrico alterno de baja frecuencia. Esto provoca la formación de dominios anulares en la orientación del campo director que forma una estructura superpuesta al patrón de anillos. Esta estructura es justamente la que gira con una velocidad angular constante. Los solitones orientacionales corresponden a las fronteras entre estos dos dominios.

Esto ha sido modelado considerando los efectos de absorción por las tintas y los efectos reorientacionales lograndose predecir la velocidad angular de rotación observada, así como la contribución de estos dos dominios al patrón de difracción en el campo lejano. Si bien el modelo es muy preliminar y diversos efectos han sido despreciados, las predicciones teóricas concuerdan

satisfactoriamente con las observaciones experimentales. El modelo puede ser mejorado tomando en consideración la difusión del calor en la celda y de esta forma calcular el gradiente de temperaturas inducido por el láser. Sin embargo, como primera aproximación el modelo permite proponer un primer mecanismo que da origen al patrón de rotación estable. Por otro lado, en la parte experimental es necesario hacer un análisis más detallados de los regímenes dinámicos más complejos con técnicas de mediciones más refinadas para obtener las series de tiempo y de esa forma establecer si el sistema es caótico o no.

En general el trabajo elaborado durante esta tesis ha tocado diversos regímenes de interacción entre un campo óptico y un cristal líquido, principalmente, dopado. Las observaciones correspondientes al Capítulo 3 necesitan ser corroboradas por medio de otras técnicas y así poder definir con más precisión los mecanismos que dan origen a la aparente contribución de quinto orden. En general el trabajo realizado en esta tesis tiene relevancia por la explicación que aporta de la curvas de reflectancia discutidas en el Capítulo 2 y por las observaciones novedosas de los regímenes dinámicos que se discuten en el Capítulo 5, así como el modelo propuesto para explicar el régimen de rotación estable.

Cabe mencionar que si bien en esta tesis sólo se reportan los resultados obtenidos a lo largo del trabajo doctoral, no se menciona el trabajo de infraestructura previo que debió realizarse para poder realizar las observaciones aquí reportadas. Así, este trabajo no sólo involucra la investigación básica discutida a lo largo de este manuscrito, también involucra un gran esfuerzo en conjunción con el Dr, Rosalío Rodríguez para poder establecer hasta donde se tiene conocimiento el primer laboratorio de propiedades físicas de cristales líquidos en nuestro país.

## Bibliografía

- [1] W. H. de Jeu, "Physical Properties of Liquid Crystalline Materials", (Taylor & Francis, NY, 1980).
- [2] G. Vertogen y W.H de Jeu, "Thermotropic Liquid Crystals"(Springer-Verlag, New York, 1988).
- [3] P. G. de Gennes, *The Physics of Liquid Crystals* (Clarendon, Oxford, 1964).
- [4] S. Chandrasekhar, "Liquid Crystals, 2nd ed", (Cambridge University Press,Cambridge, 1992).
- [5] P. Collings, "Liquid Crystals: Nature's Delicate Phase of Matter", (Princeton University Press, Princeton, 1992).
- [6] M. Hird and P.J. Collings, "Introduction to Liquid Crystals : Chemistry and Physics ", (Taylor & Francis, NY, 1997).
- [7] B. Bahadur , "Liquid Crystals, Applications and Uses", (World Scientific, Singapore, 1990).
- [8] Pikin and L. Blinov, "Cristales líquidos"(Mir, Moscu 1985).
- [9] L.M. Blinov and V. G. Chigrinov, *Electrooptic Effects in Liquid Crystals Materials*, (Springer, New York,1994).
- [10] I-C. Khoo, editor, "Physics of Liquid Crystalline Materials", (Gordon and Breach, Amsterdam, 1991).
- [11] I-C. Khoo, "Liquid Crystals: Physical Properties and Nonlinear Optical Phenomena", (Wiley, New York, 1994).

- [12] L. Goldberg, L.S. y J.M. Schmur, "Tunable Internal Feedback Liquid Crystal Laser", US Patent 3,771,065 (1973)
- [13] W. Cao, A Muñoz, P. Palffy-Muhoray and B. Taheri, *Nat. Mat.* **1**, 111 (2002).
- [14] M. Born and E. Wolf, "Principles of Optics ", (Cambridge University Press, Cambridge, 1999).
- [15] L.D. Landau, E.M. Lifshitz and L.P. Pitaevski, "Electrodynamics of Continuous Media, 2nd ed. ", (Pergamon, Oxford, 1988)
- [16] I. Janossy, editor, "Optical Effects in Liquid Crystals ", (Kluwer Academic Press, Dordrecht, 1991).
- [17] F. Simoni, "Nonlinear Optical Properties of Liquid Crystals and Polymer Dispersed Liquid Crystals Series on Liquid Crystals Vol 2 ", (World Scientific, Singapore, 1997).
- [18] I. Janossy, *Journal of Nonlinear Opt. Phys. Mat.*, **8**, 361 (1999).
- [19] I. Janossy, A.D. Lloyd and B.S. Wherret, *Mol. Cryst. Liq. Cryst.* **179**, 1 (1990).
- [20] Janossy I. and Lloyd A.D., *Mol. Cryst. Liq. Cryst.* **203**, 77 (1991).
- [21] I. Janossy, L. Csillag and A.D. Lloyd, *Phys. Rev. A*, **44**, 8410 (1991).
- [22] I. Janossy, *Phys. Rev. E*, **49**, 2957 (1994).
- [23] T. Kosa y I. Janossy, *Opt. Lett.*, **17**, 1183 (1992).
- [24] T. Kosa y I. Janossy, *Opt. Lett.*, **20**, 1231 (1995).
- [25] M.I. Barnik, V.F. Kitaeva, V.G. Rumyantsev, A.S. Zolot'ko, *Mol. Cryst. Liq. Cryst.* **299**, 91-95 (1997).
- [26] L. Marrucci, *Liquid Crystals Today*, **11**, 6 (2002).
- [27] P. Palffy-Muhoray, *Appl. Phys. A* **75**, 294 (2002).
- [28] D. Riviere, Y. Levy and C. Imbert, *Opt. Commun.* **25** (1978) 206.

- [29] Y. Levy, D. Riviere C. Imbert and M. Boix, *Opt. Commun.* **26** (1978) 225.
- [30] D. Riviere, Y. Levy and E. Guyon, *J. de Phys. Lettres* **40** (1979) L215.
- [31] S. Naemura, *Appl. Phys. Lett.* **33** (1978) 1
- [32] D. Riviere and Y. Levy, *Mol. Cryst. Liq. Cryst. Lett.* **64** (1981) 177.
- [33] M. Warenghem, M. Ismaili, F. Simoni, F. Bloisi and L. Vicari, *Mol. Cryst. Liq. Cryst.* **251** (1994) 61.
- [34] M. Warenghem, M. Ismaili, F. Simoni, F. Bloisi and L. Vicari, *Mol. Cryst. Liq. Cryst.* **251** (1994) 43.
- [35] M. Warenghem, M. Ismaili and D. Hector, *J. Phys. III* **2** (1992) 765.
- [36] F. Simoni, F. Bloisi, L. Vicari, M. Warenghem, M. Ismaili and D. Hector, *Europhys. Lett.* **21** (1993) 189.
- [37] J. A. Reyes and R. F. Rodríguez, *Nonlin. Opt. Phys. Mat.*, **4** (1995) 943.
- [38] R. F. Rodríguez and J. A. Reyes, *J. Mol. Liq.* **71** (1997) 115.
- [39] R. F. Rodríguez and J. A. Reyes, *Mol. Cryst. Liq. Cryst.* **282** (1996) 287.
- [40] J. A. Reyes and R.F. Rodríguez, *Opt. Comm.* **134** (1997) 349.
- [41] J. A. Reyes and R. F. Rodríguez, *Nonlin. Opt. Phys. Mat.*, **6** (1997) 81.
- [42] J.A. Olivares R.F. Rodríguez and J.A. Reyes, *Opt. Comm.* , **221**, 223 (2003).
- [43] D.W Berreman and T. J. Scheffer, *Mol. Cryst and Liq. Cryst.* **11**, 395 (1970), D.W. Berreman and T.J. Scheffer, *Phys. Rev. Lett.* **25**, 577 (1970).
- [44] P. Allia, C. Oldano and L. Trossi, *Mol. Cryst. and Liq. Cryst.* **143**, 17 (1987)
- [45] H. Yuan, W.E.T., T. Kosa y Palffy-Muhoray, *Mol. Cryst. Liq. Cryst.* **331**, 491 (1999).

- [46] J. A. Reyes and R. F. Rodríguez, *Mol. Cryst. Liq. Cryst.* **317** (1998) 135.
- [47] H. Goldstein, "Classical Mechanics", 2 Ed., (Addison Wesley, Reading Ma, 1980)
- [48] G. R. Fowles, "Introduction to Modern Optics", (Dover, New York, 1975).
- [49] I. S. Gradshteyn and I. M. Ryzhik, "Tables of Integrals and Products", (Academic Press, New York, 1965)
- [50] H. Kogelnik, *Appl. Opt.*, **4** (1965) 1562.
- [51] J. D. Jackson, "Classical Electrodynamics", 2nd ed., (J. Wiley, New York, 1986) .
- [52] H. L. Ong, *Phys. Rev. A* **37** (1988) 3520.
- [53] P. Allia, C. Oldano and L. Trossi, *Liq. Cryst.* **199** (1991) 63.
- [54] A. Gerraed and M Burch, "Introduction to Matrix Methods in Optics", (Dover, New York, 1994).
- [55] Goingian Hu, PhD Dissertation, Kent State University, 1997
- [56] H.J. Yuan, L. Li and P. Palffy-Muhoray, *Mol. Cryst. Liq. Cryst.* **199**,223 (1991).
- [57] P. Palffy Muhoray, H.J. Yuan, L Li. Michael A Lee, J.R. DeSalvo, T.H. Wei, M. Sheok Bahae, D.J. Hagan and E. W. Van Stryland, *Mol. Cryst. Liq. Cryst.* **207**,291 (1991).
- [58] S. D. Durbin, S. M. Arakelian and Y. R. Shen, *Phys. Rev. Lett.* **47**, 1411 (1981).
- [59] Y. R. Shen , "Non-Linear Optics", (Wiley, )
- [60] A. Yariv, "Quantum Electronics", (Wiley, New York, 1985).
- [61] I.C. Khoo, *J. Nonlin Opt. Phys Mat.*, **8**, 305 (1999).

- [62] M Shaik Bahae, A. A. Said and E. W. Van Stryland, *Opt Lett*, **14**, 955 (1989).
- [63] M. Sheik-Bahae, Ali A. Said, Tai-Huei Wei, D. J. Hagan E. W. Van Strylad, *IEEE J. Quantum Electron.*, **26**, 760 (1990).
- [64] P.B Chapple, J. Staromlynska and R.G. McDuff *J. Opt. Soc. Am. B*, **11**, 975 (1994).
- [65] P. Palffy-Muhoray, and D.A. Dunmur, *Chem. Phys. Lett.*, **91A**, 121 (1982)
- [66] I. Drevenšek Olenik, M. Jazbinšek y M. Copic, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 2103-2106 (1999).
- [67] Lizette Gonzalez Lee, Tesis de Licenciatura: Física, (UNAM, Mexico, 2001).
- [68] B. Ya. Zel'dovich, N. F. Pilipotskii, A. V. Sulchov and N. V. Tabiryan, *JETP Lett.* **31**, 363 (1980).
- [69] Zolot'ko A.S., Kitaeva V.F. Kroo N., Sobolev N. and Chillang L., *Pis'ma Zh. Eks. Teor. Fiz.*, **32**, 170 (1980).
- [70] B. Ya. Zel'dovich, N.V. Tabiryan y Yu. S. Chilingaryan, *Sov. Phys. JETP*, **54**, 72 (1983)
- [71] Arecchi F.T., Boccaletti S., Ducci S., Pampaloni E., Ramazza P.L. And Residori S., *J. Nonlinear óptical Physics Materials*, **9**, (2000),183.
- [72] Lukishova S.G. Kosá T. , Taheri B., Palffy-Muhoray, P. and Ehrlich J. "Cumulative negative nonlinearity in planar nematics driven by nanosecond, 532-nm laser pulses with linear polarization parallel to the liquid crystals director. Unpublished
- [73] Hu, P. Palffy-Muhoray, N.V. Tabiryan, *Licht-und Teilenohtik*, Annual Report 1992-93, Institute fur Angewandte Physik, Technische Hochschule, Darmstadt.
- [74] F.Papoff and G.D'Alessandro [www.maths.soton.ac.uk/staff/D'Alessandro/research/](http://www.maths.soton.ac.uk/staff/D'Alessandro/research/)

- [75] A.S. Zolot'ko, V.F. Kitaeva, N.N. Sobolev and A. P. Sukhorukov, Sov. Phys. JETP, **54**, 496 (1981).
- [76] G. R. Fowles, *Introduction to Modern Optics*, 2 ed, Dover NY 1975.
- [77] A.S. Zolot'ko, V.F. Kitaeva, N. Kroo, N.N. Sobolev, A.P. Sukhorukov, V.A. Troshkin y L. Czillag, Sov. Phys. JETP, **60**, 488, (1984).
- [78] Zeldovich B. Ya, Merzlikin S.K, Pilipetskii N.F., Sukhov A.V. and Tabiryanyan N.V., JETP Lett, **37**, 676 (1983).
- [79] VF: Kitaeva, N. Kroo, N.N. Sobolev, A.P. Sukhorukov, V. Yu Fedorovich y L. Czillag, Sov. Phys. JETP, **62**, 520 (1985).
- [80] Santamato E, Shen YR, Phys. Rev. Lett., **57**, 2423, (1986).
- [81] Santamato E, Shen YR, Phys. Rev. Lett., **61**, 113, (1988).
- [82] Santamato E, Abbate G., Maddalena P, Marrucci L., Paparo D. and Piccirillo B., Mol. Cryst Liq Cryst, **328**, 479 (1999).
- [83] Santamato E, Shen YR, Phys. Rev. Lett., **64**, 1377, (1990).
- [84] Cipparrone G. Carbone V., Versace C. Umeton C. Bartolino R. and Simoni F. Phys Rev. **47**, 3741 (1993).
- [85] Demeter G. and Kramer L., Phys Rev Lett., **83**, 4744, (1999).
- [86] Buka A. and Kramer L., *Pattern Formation in Liquid Crystals*, (Springer, NY, 1996).
- [87] G. Barbero, I. Dozov, J. J.F. Palierne and G. Durand, Phys. Rev. Lett., **56**, 2056 (1986).
- [88] D.S Herman, P. Rudquis, K. Ichimura, K. Kudo, L. Lomitonov, y S.T. Lagerweall, Phys. Rev. E. **55**, 2857 (1997).
- [89] I. Dozov, Ph. Martino-Lagarde y G. Durand, Physique Lettres, **43**, L365 (1982)
- [90] L. Lam y J. Prost, *Solitons in Liquid Crystals*, (Springer-Verlag, New York, 1994).

- [91] P. A. Madden, F.C. Saunders and A. M. Maxwell Scott, *IEEE J. Quantum Elect.*, **8**, 1287 (1986)
- [92] H.L De Vries, *Acta Cryst*, **4**, 219 (1951).
- [93] G.K.L. Wong and Y.R. Shen, *Phys Rv. Lett.* **32**, 527 (1974).
- [94] J.W. Shelton and Y. R. Shen, *Phys. Rev. A*, **5**, 1867 (1972).