

PADA FASA SMEKTIK- C_{α}^*

Andika Fajar¹ dan Hiroshi Orihara²

¹Pusat Teknologi Bahan Industri Nuklir (PTBIN) - BATAN

Kawasan Puspiptek Serpong 15314, Tangerang

²Applied Physics Department, Hokkaido University

Sapporo 060-8628, Japan

ABSTRAK

EFEK ELEKTROOPTIK NONLINIER PADA FASA SMEKTIK- C_{α}^* . Telah dilakukan pengukuran elektrooptik untuk mempelajari dinamika molekul kristal cair di sekitar transisi fasa smektik-A-smektik- C_{α}^* kristal cair antiferoelektrik 4-(1-methyl-heptyloxycarbonyl)phenyl 4-octylcarbonyloxybiphenil-4-carboxylate (MHPOCBC). Telah diperlihatkan bahwa dispersi frekuensi dari respon elektrooptik orde kedua sangat tergantung pada sudut antara polarizer dan arah normal lapisan smektik dan anisotropi indeks bias, sedangkan respon linier tidak demikian. Meskipun *soft mode* pada fasa SmA tidak dapat diamati, pada fasa smektik- C_{α}^* *amplitude mode* dan *ferroelectric mode* dapat diamati menggunakan spektroskopi elektrooptik orde kedua. Pada kondisi eksperimen tertentu, kontribusi *ferroelectric mode* pada spektrum dispersi frekuensi berhasil dikurangi dan *amplitude mode* dapat diamati dengan jelas. Hasil yang diperoleh didiskusikan dan dianalisis berdasarkan teori fenomenologikal.

Kata kunci : Kristal cair, smektik, elektrooptik, *amplitude mode*

ABSTRACT

NON LINEAR ELECTROOPTIC EFFECT IN SMECTIC- C_{α}^* PHASE. Electrooptical measurements have been performed to study the dynamics behavior in the vicinity of second-order smectic-A-smectic- C_{α}^* phase transition of an antiferroelectric liquid crystal 4-(1-methyl-heptyloxycarbonyl)phenyl 4-octylcarbonyloxybiphenil-4-carboxylate (MHPOCBC). Then, it has been showed that the frequency dispersion of the second-order electrooptic strongly depends on the angle between the polarizer and the layer normal and the anisotropy of refractive index while that of the linear response does not. Though, the soft mode could not be observed in SmA phase, in the smectic- C_{α}^* phase, both the amplitude mode and ferroelectric mode have been observed by second-order electrooptic spectroscopy. In a particular experimental condition, the ferroelectric mode contribution in the frequency dispersion spectrum has been suppressed succesfully, and only the amplitude mode that can be observed clearly. The results were discussed and analyzed on the basis of the phenomenological theory.

Key words : Liquid crystal, smectic, electrooptic, *amplitude mode*

PENDAHULUAN

Penemuan fasa antiferoelektrik smektik- C_{α}^* (SmC_{α}^*) pada senyawa kristal cair MHPOBC diikuti dengan teridentifikasinya fasa-fasa baru lainnya seperti SmC_{α}^* dan beberapa fasa ferielektrik. Di antara ini semua, fasa SmC_{α}^* banyak mendapat perhatian karena sifat fisisnya yang menarik. Fasa ini biasanya muncul di antara fasa paraelektrik SmA dan feroelektrik SmC^* , dan pada beberapa senyawa, di antara SmA dan SmC_{α}^* atau fasa ferielektrik dengan berbagai variasi rentang suhu. Pengukuran hamburan resonansi sinar-X dan optik menunjukkan bahwa fasa kiral SmC_{α}^* memiliki struktur heliks dengan periode *incommensurate* hanya beberapa kali jarak antara lapisan smektik yang berskala nano [1,2], berbeda dengan fasa feroelektrik yang juga berstruktur heliks tetapi periodenya sekitar seribu kali jarak antara

lapisan smektik. Pada suhu di atas fasa SmC_{α}^* terdapat fasa SmA di mana molekul kristal cairnya tegak lurus terhadap bidang lapis smektik dan transisi fasa dari fasa SmA ke SmC_{α}^* adalah orde kedua. Karena pada fasa SmC_{α}^* terdapat struktur dengan periode heliks yang pendek, maka *soft mode* yang menimbulkan transisi fasa ini berada pada titik sembarang q_c di dalam zona Brillouin. Untuk memahami mekanisme transisi fasa SmA- SmC_{α}^* ini, pengukuran *soft mode* merupakan keharusan.

Pada smektik kiral, kondensasi *soft mode* secara eksperimental berhasil diamati pada transisi fasa SmA- SmC^* menggunakan spektroskopi dielektrik dan *light scattering* [3,4], karena *soft mode* mengalami kondensasi di pusat zona Brillouin. Tetapi pada transisi fasa SmA- SmC_{α}^* , tidak dapat diamati dengan alat

spektroskopi di atas. Hal ini karena *soft mode* yang menginduksi fasa SmC^* menyebabkan terjadinya perubahan polaritas spontan dan indeks bias, sedangkan *soft mode* yang menginduksi fasa SmC_α^* tidak menyebabkan perubahan keduanya karena mengalami kondensasi pada titik sembarang yang jauh dari pusat zona Brillouin. Meskipun demikian, pada fasa SmC_α^* *soft mode* (tepatnya *amplitude mode*) diharapkan dapat diamati melalui metode pengukuran yang tepat disebabkan terjadinya *symmetry breaking*. Ketika melakukan percobaan sangat penting memperhatikan apakah frekuensi relaksasi *mode* terkait berada di dalam rentang frekuensi pengukuran atau tidak. Beberapa tahun yang lalu, pengukuran kapasitas panas [5] dan *birefringence* resolusi tinggi [6] menemukan adanya fluktuasi yang cukup besar pada fasa SmA di dekat titik transisi ke fasa SmC_α^* . Hasil pengukuran ini menunjukkan terjadinya *critical slowing down* dan frekuensi relaksasi yang terkait dengan fluktuasi ini (*soft mode*) cukup kecil untuk dapat diamati di dekat titik transisi fasa.

Pengukuran elektrooptik telah dilaksanakan sejak lama pada penelitian kristal cair. Tetapi pengamatan hanya dibatasi pada respon harmonik pertama terhadap medan listrik. Sekarang, pengukuran ini telah diperluas sampai kepada respon harmonik yang lebih tinggi karena kristal cair memiliki sifat nonlinier yang cukup besar. Telah ditunjukkan pada penelitian-penelitian terdahulu bahwa pengukuran respon elektrooptik orde kedua merupakan metode yang sangat ampuh untuk mengamati fluktuasi orientasi polar dan nonpolar yang dapat dieksitasi oleh medan listrik [7-9]. Akhir-akhir ini, *softening* dari *nonpolar amplitude mode* (perubahan sudut kemiringan) selain dari *polar ferroelectric mode* (kemiringan ke arah tegak lurus medan listrik, yang menginduksi polarisasi makroskopik) pada fasa SmC_α^* berhasil diamati menggunakan pengukuran elektrooptik [10,11] dan dielektrik nonlinier [12,13]. Namun pengukuran elektrooptik, sebagaimana akan dijelaskan lebih detail nanti, bergantung pada berbagai parameter, dan kompleksitas ini belum sepenuhnya dipahami.

Dalam makalah ini akan dilaksanakan pengukuran elektrooptik pada dua kondisi percobaan yang berbeda untuk mempelajari dinamika molekul kristal cair di sekitar transisi SmA-SmC_α^* dan memperlihatkan bahwa dispersi frekuensi dari respon elektrooptik orde kedua dapat berubah sama sekali. Pada bagian berikut, akan dijelaskan teori fenomenologikal untuk menurunkan persamaan efek elektrooptik pada fasa SmC_α^* . Setelah menjelaskan prosedur percobaan akan diperlihatkan hasil percobaan dan mendiskusikannya berdasarkan teori.

TEORI

Pada penelitian sebelumnya [10] telah dikembangkan teori fenomenologikal pada medan listrik AC dan diturunkan persamaan untuk respon elektrooptik

pada fasa SmC_α^* . Teori ini hanya mempertimbangkan *spatially homogeneous tilt*, yakni *ferroelectric mode* di dalam fasa SmA (ξ_{fx}, ξ_{fy}), dan *helicoidal tilt*, yakni *soft mode* pada fasa SmA yang berhubungan dengan transisi fasa di mana (ξ_1, ξ_2), merupakan *order parameter* primer. *Order parameter* dapat diekspresikan dengan menggunakan *mode* di atas sebagai berikut,

$$\begin{pmatrix} \xi_x(x, y, jd) \\ \xi_y(x, y, jd) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \xi_{fx} \\ \xi_{fy} \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} \cos q_c jd & -\sin q_c jd \\ \sin q_c jd & \cos q_c jd \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \xi_1 \\ \xi_2 \end{pmatrix} \dots\dots\dots(1)$$

dimana q_c adalah bilangan gelombang struktur heliks pada fasa SmC_α^* . Kerapatan energi bebas pada fasa SmA dengan medan listrik yang ditambahkan sepanjang sumbu x, E_x , dapat dituliskan dengan

$$f = \frac{1}{2}a(\xi_1^2 + \xi_2^2) + \frac{1}{4}b(\xi_1^2 + \xi_2^2)^2 + \frac{1}{2}\lambda(\xi_1^2 + \xi_2^2)\xi_{fx}^2 - c\xi_{fx}E_x - \frac{\epsilon_a}{4}(\xi_1^2 + \xi_2^2)E_x^2 - \frac{a}{2}\xi_{fx}^2 \dots(2)$$

di mana ϵ_a merupakan anisotropi dielektrik pada frekuensi rendah, λ mempresentasikan *coupling* nonlinier antara *ferroelectric* dan *amplitude modes* yang berperan penting dalam pengukuran efek Kerr. Di dalam fasa SmC_α^* , ξ_1 dan ξ_2 bisa diubah oleh medan luar, dan dituliskan dengan $\xi_1 = \xi_s + \Delta\xi_1$, $\xi_2 = \Delta\xi_2$, di mana ξ_s adalah nilai spontan pada kondisi tanpa medan di dalam fasa SmC_α^* yang setara dengan sudut kemiringan. Bagian yang diinduksi oleh medan listrik, $\Delta\xi_1$ and $\Delta\xi_2$, masing-masing merupakan *amplitude mode* dan *phase mode* (*Goldstone mode*). Dengan mensubstitusi kesamaan ini ke dalam persamaan (2), akan diperoleh kerapatan energi bebas pada fasa SmC_α^* :

$$f = \frac{\alpha + 3\beta\xi_s^2}{2}\Delta\xi_1^2 + \frac{a + \lambda\xi_s^2}{2}\xi_{fx}^2 + \frac{1}{4}b\xi_{fx}^4 - c\xi_{fx}E_x + \lambda\xi_s\Delta\xi_1\xi_{fx}^2 - \frac{\epsilon_a}{2}\xi_s\Delta\xi_1E_x^2 \dots(3)$$

Goldstone mode $\Delta\xi_2$ tidak tereksitasi oleh medan luar, sedangkan *amplitude mode* $\Delta\xi_1$ dapat dieksitasi.

Dari kerapatan energi bebas di atas dan dengan menyelesaikan persamaan Landau-Khalatnikov di bawah ini, di mana medan listrik AC $E_x = E_0 \cos \omega t$,

$$\gamma \frac{d\xi_{fx}}{dt} = -\frac{\partial f}{\partial \xi_{fx}}, \gamma \frac{d\Delta\xi_1}{dt} = -\frac{\partial f}{\partial \Delta\xi_1} \dots\dots\dots(4)$$

maka akan diperoleh persamaan untuk masing-masing *mode* yang tereksitasi sebagai berikut :

$$\begin{aligned} \xi_{fx} &= \text{Re} \left[\chi_f(\omega) e^{i\omega t} \right] c E_0, \\ \Delta\xi_1 &\approx \text{Re} \left[\chi_s(2\omega) \left(\frac{\epsilon_a}{4} - \frac{\chi_f(\omega)^2}{2/\lambda c^2} \right) e^{i2\omega t} \right] \xi_s E_0^2 \dots\dots\dots(5) \end{aligned}$$

di mana $\chi_f(\omega) = (a + \lambda\xi_s^2 + i\omega\gamma)^{-1}$ dan $\chi_s(\omega) = (\alpha + 3\beta\xi_s^2 + i\omega\gamma)^{-1}$ masing-masing adalah suseptibilitas *ferroelectric mode* dan *amplitude mode* yang memiliki relaksasi tipe Debye. *Ferroelectric mode* berbanding lurus dengan medan listrik luar. Sebaliknya, perlu diperhatikan bahwa *amplitude mode* tidak dieksitasi oleh medan listrik itu sendiri tetapi oleh kuadratnya.

Intensitas sinar transmisi I untuk sel kristal cair *homogeneous* yang diletakkan di antara dua *polarizer* yang saling tegak lurus (*crossed polarizers*) pada mikroskop polarisasi dapat dituliskan dengan

$$I/I_0 = \sin^2 2\alpha_0 \sin^2(\beta n_{a0}) \dots\dots\dots (6)$$

Di sini $\beta = \pi d/\lambda$, I_0 adalah intensitas sinar datang, d adalah lebar celah sel, λ panjang gelombang sinar datang, α dan n_a masing-masing adalah sudut sumbu optik cuplikan terhadap salah satu arah *polarizer* dan anisotropi dari indeks bias. *Modes* yang diinduksi oleh medan listrik akan memodifikasi α dan n_a . Perubahan ini dituliskan

$$\begin{aligned} \alpha &= \alpha_0 + \Delta\alpha \\ n_a &= n_{a0} + \Delta n_a \dots\dots\dots (7) \end{aligned}$$

di mana α_0 dan n_{a0} adalah nilai kesetimbangan saat tanpa medan listrik, dan $\Delta\alpha$ dan Δn_a adalah bagian yang terinduksi secara elektrik. Dengan mensubstitusikan persamaan (7) ke dalam persamaan (6), maka untuk pengukuran elektrooptik pada arah medan listrik tertentu, perubahan intensitas sinar transmisi ΔI sampai dengan orde kedua diberikan dengan persamaan berikut [14],

$$\begin{aligned} \Delta I / I_0 &= 2 \sin 4\alpha_0 \sin^2(\beta n_{a0}) \Delta\alpha \\ &+ 4 \cos 4\alpha_0 \sin^2(\beta n_{a0}) \Delta\alpha^2 \dots\dots\dots (8) \\ &+ \beta \sin^2 2\alpha_0 \sin(2\beta n_{a0}) \Delta n_a \end{aligned}$$

Karena Δ dan Δn_a masing-masing berbanding lurus dengan medan listrik dan kuadratnya, maka suku pertama di ruas kanan persamaan di atas dapat dideteksi dengan respon elektrooptik orde pertama dan dua lainnya pada respon orde kedua. Dari persamaan (1) dan (5), $\Delta\alpha$ dan Δn_a dituliskan dengan

$$\begin{aligned} \Delta n_a &= -\frac{\epsilon_a}{2} \left(\frac{2}{\sqrt{\epsilon_{\parallel}}} + \frac{1}{\sqrt{\epsilon_{\perp}}} \right) \xi_s \Delta \xi_1 + \frac{3\epsilon_a}{4} \left(\frac{1}{\sqrt{\epsilon_{\parallel}}} + \frac{1}{\sqrt{\epsilon_{\perp}}} \right) \xi_s^2 \xi_{fs}^2 \dots\dots\dots (9) \\ \Delta\alpha &= \epsilon_a \xi_{fs} \end{aligned}$$

di mana ϵ_{\parallel} , ϵ_{\perp} , ϵ_a masing-masing adalah konstanta dielektrik yang paralel dan tegak lurus terhadap molekul dan dielektrik anisotropi $\epsilon_{\parallel} - \epsilon_{\perp}$ untuk sinar tampak. Dari persamaan di atas, arti fisis masing-masing suku pada persamaan (8) menjadi jelas. Suku pertama berasal dari *ferroelectric mode* dan berbanding lurus dengan medan listrik, yang asalnya adalah kemiringan indikatriks optikal (*optical indicatrix*) yang diinduksi oleh medan listrik, disebut juga dengan efek Pockels. Suku kedua juga berhubungan dengan *ferroelectric mode*, tetapi berbanding lurus dengan kuadrat medan listrik. Asal dari suku ketiga adalah *amplitude mode* dan juga *ferroelectric mode*, yang keduanya memberikan kontribusi pada efek Kerr.

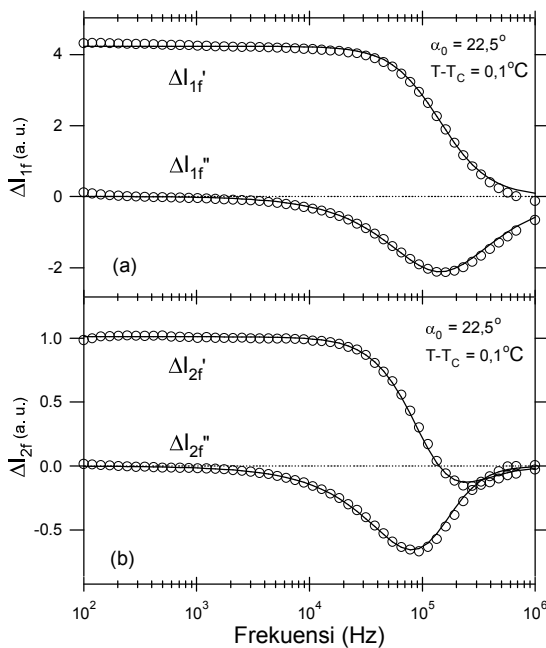
METODE PERCOBAAN

Cuplikan yang digunakan pada percobaan ini adalah *4-(1-methyl-heptyloxycarbonyl)phenyl 4-octylcarbonyloxybiphenyl-4-carboxylate* (MHPOCBC) yang memiliki deretan fasa SmC_A^* (99,5°C) SmC_{α}^* (105,5°C) SmA (146,8°C) Iso [15]. Cuplikan dimasukkan ke dalam sel homogen dengan lebar celah 12 μm . Metode *spacer edge* diadopsi untuk memperoleh *alignment monodomain* berkualitas tinggi karena kualitas *alignment* molekuler dapat mempengaruhi intensitas transmisi sinar pada pengukuran elektrooptik. Sel diletakkan di dalam *hot stage* (Instec HS1) kemudian di-*set* di atas kedudukan mikroskop polarisasi dan diiluminasi dengan laser ion Argon dengan panjang gelombang 488 nm. Medan listrik sinusoidal ditambahkan pada sel dengan arah yang sejajar lapisan smektik. Pada pengukuran elektrooptik, cahaya transmisi dideteksi dan dikonversi ke sinyal tegangan oleh *photodiode* (Hamamatsu Photonics, C6386) yang dipasangkan pada mikroskop. Sinyal teramplifikasi diukur secara simultan dengan *vector signal analyzer* (HP89410) untuk memperoleh amplitudo dan fasa dari respon elektrooptik orde pertama dan kedua. Di sini digunakan intensitas kompleks ΔI yang didefinisikan dengan $\Delta I = a \exp(i\phi)$, di mana a dan ϕ masing-masing adalah amplitudo dan fasa dari setiap respon. Dispersi frekuensi diukur pada rentang frekuensi dari 100 Hz sampai dengan 1 MHz setelah suhu stabil pada nilai tertentu, dan dilakukan pada proses pendinginan dengan langkah 0,05°C. Hasilnya di-*fitting* menggunakan formula yang diturunkan pada bagian sebelumnya dengan metode *least square*.

HASIL DAN PEMBAHASAN

Pertama, akan diperlihatkan hasil pengukuran elektrooptik pada $\alpha_0 = 22,5^\circ$ di sekitar transisi fasa $SmA-SmC_{\alpha}^*$. Gambar 1 memperlihatkan tipikal dispersi frekuensi respon elektrooptik orde pertama ΔI_{1f} dan respon orde kedua ΔI_{2f} pada fasa SmA ($T-T_c = 0,1^\circ C$). Untuk $\alpha_0 = 22,5^\circ$, respon orde pertama berasal dari rotasi indikatriks $\Delta\alpha$, dan respon orde kedua hanya dari perubahan *birefringence* Δn_a seperti terlihat pada persamaan (8). Terlihat pada Gambar 1 (a) hanya relaksasi tipe Debye yang merupakan kontribusi *ferroelectric mode* yang terdeteksi pada respon orde pertama di dalam rentang frekuensi pengukuran. Untuk mengamati hubungan antara *mode* terhadap suhu, dilakukan analisis dispersi frekuensi menggunakan metode *least square*. Garis tebal pada Gambar 1(a) merupakan hasil *fitting* secara teoritis dengan relaksasi Debye $\Delta I_{1f}(\omega) = A/(1+i\omega\tau_p)$, di mana $\tau_p = \gamma/(a+\lambda\xi_s^2)$ adalah waktu relaksasi *ferroelectric mode* yang diperoleh dari persamaan (7) dan (9), tetapi untuk fasa SmA nilai ξ_s sama dengan nol. Selanjutnya pada respon elektrooptik orde kedua diamati relaksasi tipe Debye kuadrat. Relaksasi ini berasal dari *ferroelectric mode* sebagaimana

terlihat pada persamaan (9), di mana ξ_s^2 digantikan dengan rata-rata termal ξ^2 pada fasa SmA. Efek Kerr yang disebabkan oleh fluktuasi termal telah diamati juga pada cuplikan MHPOBC [16]. Garis tebal pada Gambar 1(b) merupakan hasil *fitting* dengan persamaan Debye kuadrat. Telah pula dikonfirmasi bahwa frekuensi relaksasi yang diperoleh dari respon orde pertama dan kedua adalah sama. Hasil ini memperlihatkan bahwa dalam percobaan ini dispersi frekuensi elektrooptik orde kedua pada fasa SmA didominasi oleh kontribusi *ferroelectric mode*, sedangkan kontribusi *soft mode* belum berhasil diamati.



Gambar 1. Dispersi frekuensi (a) respon elektrooptik orde pertama ΔI_{1f} and (b) respon orde kedua ΔI_{2f} yang diperoleh pada $\alpha_0=22,5^\circ$ di dalam fasa SmA ($T-T_c=0,1^\circ\text{C}$)

Tipikal dispersi frekuensi respon elektrooptik pada fasa SmC_α^* ($T-T_c=-0,2^\circ\text{C}$) diperlihatkan pada Gambar 2. Pada respon orde pertama (Gambar 2(a)), hanya kontribusi *ferroelectric mode* yang dapat diamati sebagaimana pada fasa SmA. Sebaliknya, kurva dispersi respon elektrooptik orde kedua (Gambar 2b) berbeda dengan kurva dispersi tipe Debye. Pada bagian imajiner nya terdapat dua *mode* sebagaimana diprediksi pada persamaan (9). Selain puncak pada frekuensi tinggi yang merupakan kontribusi *ferroelectric mode*, puncak lain terlihat pada frekuensi yang lebih rendah seperti ditunjukkan dengan panah pada Gambar 2b. Ini adalah kontribusi *amplitude mode* yang berhubungan dengan transisi fasa SmA- SmC_α^* . Hal yang perlu ditekankan di sini adalah ketika melakukan pengukuran dispersi frekuensi pada $\alpha_0=22,5^\circ$, kontribusi *ferroelectric mode* pada respon elektrooptik orde kedua berasal hanya dari Δn_a , bukan dari $\Delta\alpha^2$.

Dari persamaan (5), persamaan (8) dan persamaan (9), terlihat bahwa dispersi frekuensi respon elektrooptik

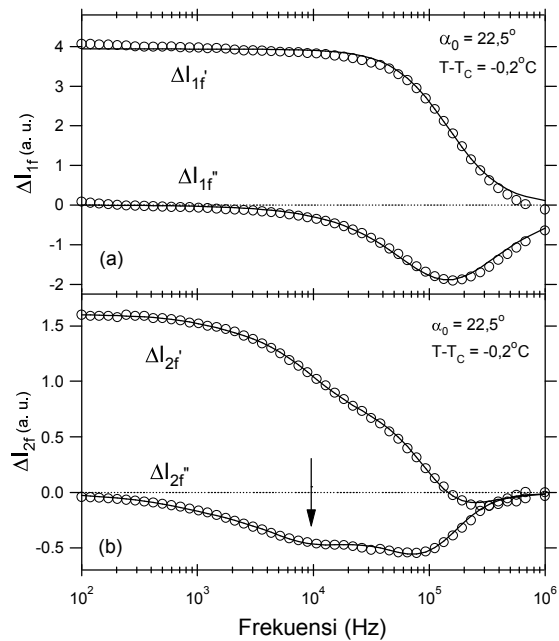
orde kedua pada fasa SmC_α^* dapat dianalisis dengan formula :

$$\Delta I_{2f}(\omega) = \frac{1}{1+i2\omega\tau_s} \left(A_{s1} + \frac{A_{s2}}{(1+i\omega\tau_f)^2} \right) + \frac{A_{f2}}{(1+i\omega\tau_f)^2} + \frac{A_l}{1+(i\omega\tau_l)^{\beta_l}} \dots (10)$$

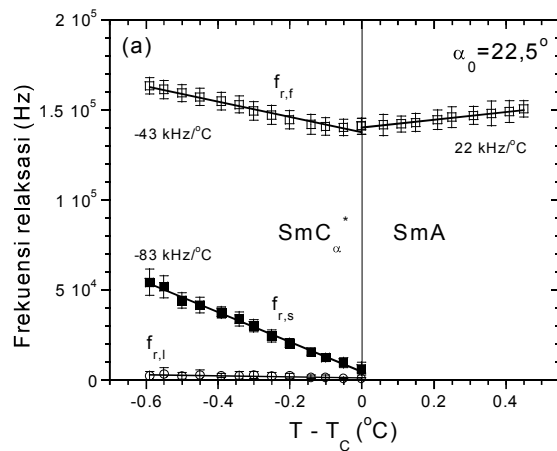
dimana $\tau_s = \gamma/(\alpha+3\beta\xi_s^2)$, τ_f dan τ_l adalah waktu relaksasi *amplitude mode*, *ferroelectric mode* dan *low frequency mode*, dan

$$A_{s1} = (-\varepsilon_a^2/8) \left(2/\sqrt{\varepsilon_{\parallel}} + 1/\sqrt{\varepsilon_{\perp}} \right) \xi_s^2 \chi_s(0)$$

$$A_{s2} = (\varepsilon_a/4) \left(2/\sqrt{\varepsilon_{\parallel}} + 1/\sqrt{\varepsilon_{\perp}} \right) \lambda c^2 \xi_s^2 \chi_s(0) \chi_f^2(0)$$



Gambar 2. Dispersi frekuensi (a) respon elektrooptik orde pertama ΔI_{1f} and (b) respon orde kedua ΔI_{2f} yang diperoleh pada $\alpha_0=22,5^\circ$ di dalam fasa SmCa^* ($T-T_c=-0,2^\circ\text{C}$). Amplitude mode ditunjukkan dengan tanda panah.



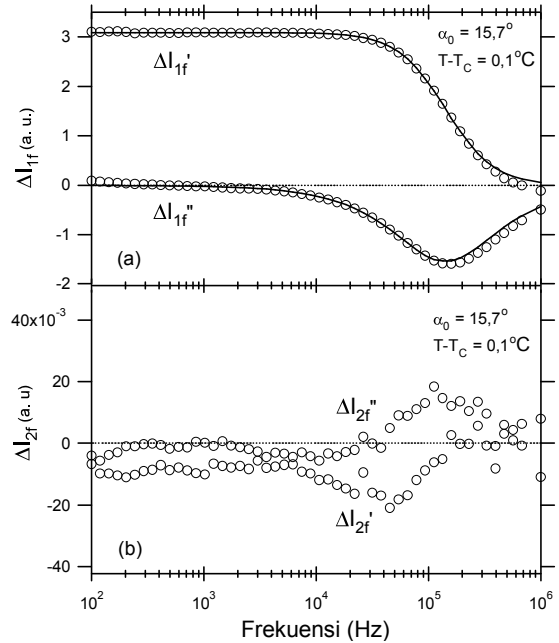
Gambar 3. Hubungan frekuensi relaksasi masing-masing mode terhadap suhu yang diperoleh dari pengukuran elektrooptik pada $\alpha_0=22,5^\circ$, $f_{r,f}$ dan $f_{r,s}$ masing-masing adalah frekuensi relaksasi *ferroelectric mode* dan *amplitude mode* dan $f_{r,l}$ adalah *low-frequency mode*.

$A_{f_2} = (3\varepsilon_a/4)(1/\sqrt{\varepsilon_{\parallel}} + 1/\sqrt{\varepsilon_{\perp}})c^2\xi_s^2\chi_f^2(0)$, serta A_l adalah parameter yang dapat diatur untuk *fitting least-square*. Catatan bahwa suku terakhir tidak diperoleh dari teori, tetapi ditambahkan untuk memperoleh *fitting* yang lebih baik pada daerah frekuensi rendah, meskipun asalnya belum jelas. Parameter A_{s_1} dan A_{s_2} berhubungan dengan *amplitude mode* dan asalnya adalah anisotropi dielektrik dan *coupling* nonlinier antara *amplitude mode* dan *ferroelectric mode*. Parameter A_{r_2} berhubungan dengan *ferroelectric mode*. Garis tebal pada 2(b) adalah kurva teoritis, di mana τ_f di-*fix*-kan dan disamakan dengan nilai yang diperoleh dari respon orde pertama. Dengan cara ini tampak diperoleh kecocokan yang cukup baik antara percobaan dan teori.

Gambar 3 memperlihatkan hubungan antara frekuensi relaksasi dengan suhu, $f_{rf} = (2\pi\tau_f)^{-1}$, $f_{rs} = (2\pi\tau_s)^{-1}$ and $f_{ri} = (2\pi\tau_i)^{-1}$. Pada kedua fasa SmA or SmC_α^* , *softening* dari *ferroelectric mode*, f_{rf} , terlihat jelas. Dalam fasa SmC_α^* , frekuensi relaksasi *amplitude mode*, f_{rs} mengecil mendekati titik transisi dan mengalami kondensasi di sana. Pada percobaan ini, frekuensi relaksasi *soft mode* pada fasa SmA belum dapat diperoleh. Di sini perlu dicatat bahwa kemiringan kurva *amplitude mode* (83 kHz/ $^{\circ}C$) di dalam fasa SmC_α^* mendekati empat kali kemiringan kurva *ferroelectric mode* (22 kHz/ $^{\circ}C$) pada fasa SmA. Dengan mengasumsikan bahwa kemiringan kurva *soft mode* yang tidak terdeteksi secara percobaan sama dengan *ferroelectric mode*, maka hasil di atas memperlihatkan bahwa transisi fasa SmA- SmC_α^* dekat dengan titik trikritis di mana koefisien orde ke empat ekspansi Landau menjadi nol [17]. Sebagai tambahan, hasil lengkap hubungan frekuensi relaksasi terhadap suhu dalam fasa SmA telah berhasil diperoleh menggunakan spektroskopi dielektrik nonlinier [12,13].

Selanjutnya, telah dilakukan pengecekan validitas perhitungan teoritis dan hasil percobaan di atas. Bila diperhatikan persamaan (9) lebih teliti, $\Delta\alpha$ berbanding lurus dengan ξ_{rx}^2 , sehingga suku kedua persamaan (8) berbanding lurus dengan ξ_{rx}^2 . Sebaliknya, Δn_a mencakup juga ξ_{rx}^2 seperti terlihat pada persamaan (9). Bila persamaan (8) merupakan fungsi dari ξ_{rx}^2 dan $\Delta\xi_1$, maka koefisiennya tergantung pada parameter α_0 , n_{a0} , λ dan d . Dengan demikian rasio intensitas dari *amplitude mode* terhadap *ferroelectric mode* tergantung pada parameter di atas. Secara khusus, sejumlah parameter bisa dipilih sedemikian rupa untuk mengurangi kontribusi *ferroelectric mode* terhadap respon orde kedua, dengan kata lain penjumlahan koefisien dari ξ_{rx}^2 suku pertama dan kedua pada persamaan (8) memungkinkan menjadi nol. Bila hal ini bisa diwujudkan maka *amplitude mode* dapat diamati lebih jelas. Pertama telah dicoba dengan mengubah sudut α_0 , tetapi kontribusi *ferroelectric mode* tidak dapat dikurangi. Selanjutnya dilakukan dengan meletakkan kompensator ($R=2030$ nm) di antara cuplikan dan lensa obyektif untuk mengubah n_{a0} . Pada suhu tepat di bawah transisi fasa SmA- SmC_α^* , dilakukan pengesetan sudut utama optik cuplikan pada sudut $\alpha_0=15,7^{\circ}$ untuk

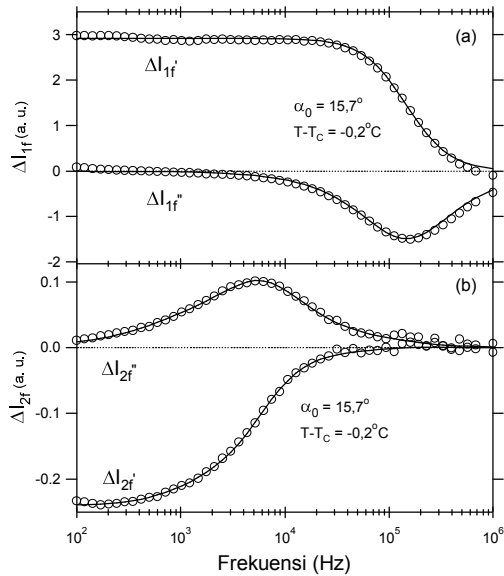
sel 12 μm , ternyata diperoleh respon orde kedua yang minimum. Fenomena ini disebabkan karena berkurangnya kontribusi *ferroelectric mode* pada intensitas respon orde kedua, yakni saling menghilangkan antara suku kedua dan ketiga pada persamaan (6). Kemudian cuplikan dipanaskan hingga fasa SmA dan dilaksanakan pengukuran dispersi frekuensi di sekitar transisi fasa SmA- SmC_α^* dengan menurunkan suhu secara perlahan.



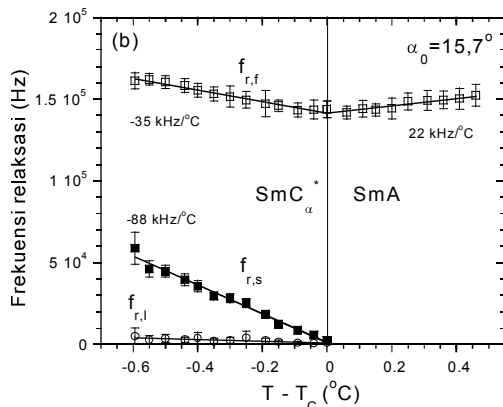
Gambar 4. Dispersi frekuensi (a) respon elektrooptik orde pertama ΔI_{1f} and (b) respon orde kedua ΔI_{2f} yang diperoleh pada $\alpha_0=15,7^{\circ}$ di dalam fasa SmA ($T-T_c=0,1^{\circ}C$)

Dispersi frekuensi respon elektrooptik pada fasa SmA diperlihatkan pada Gambar 4. Sebagaimana hasil pada Gambar 1, respon orde pertama (Gambar 4a) memperlihatkan dispersi tipe Debye dengan kontribusi dari *ferroelectric mode*. Sebaliknya respon orde kedua (Gambar 4b), nilai intensitasnya menjadi sangat kecil, sehingga tidak dapat dilakukan analisis lebih lanjut. Hasil ini mempertegas kenyataan bahwa pada fasa SmA, kontribusi *ferroelectric mode* pada respon elektrooptik orde kedua sangat dominan sehingga sangat sukar untuk mengamati kontribusi dari *soft mode*.

Gambar 5 memperlihatkan tipikal dispersi frekuensi pada fasa SmC_α^* untuk geometri pengukuran ini. Dispersi pada respon orde pertama sama dengan pengukuran pada $\alpha_0=22,5^{\circ}$ di mana hanya *ferroelectric mode* yang terdeteksi dalam rentang frekuensi pengukuran. Perbedaan besar terlihat pada respon orde kedua di mana puncak pada frekuensi tinggi yang berhubungan dengan *ferroelectric mode* berkurang, dan puncak pada frekuensi rendah yang berhubungan dengan *amplitude mode* terlihat dengan jelas. Hasil ini sesuai dengan prediksi di atas dan membuktikan validitas perhitungan teoritis persamaan (6). Selanjutnya dilakukan *fitting* dengan metode *least*



Gambar 5. Dispersi frekuensi (a) respon elektrooptik orde pertama ΔI_{1f} and (b) respon orde kedua ΔI_{2f} yang diperoleh pada $\alpha_0=15,7^\circ$ di dalam fasa SmC_α^* ($T-T_c=-0,2^\circ\text{C}$)



Gambar 6. Hubungan frekuensi relaksasi terhadap suhu yang diperoleh dari pengukuran elektrooptik pada $\alpha_0=15,7^\circ$.

square menggunakan persamaan (8) dan hubungan antara frekuensi relaksasi dan suhu diperlihatkan pada Gambar 6. Hasil yang sama diperoleh pada percobaan ini sebagaimana Gambar 3, yang mengindikasikan bahwa *mode* yang diamati adalah sama meskipun dengan geometri pengukuran yang berbeda.

KESIMPULAN

Telah dilakukan pengukuran elektrooptik di sekitar transisi fasa SmA-SmC_α^* kristal cair antiferroelektrik MHPOCBC dengan mempertimbangkan efek α_0 dan anisotropi indeks bias n_{a0} pada respon elektrooptik orde kedua. Berdasarkan formula yang diturunkan dari teori fenomenologikal, telah diprediksi efeknya pada respon elektrooptik orde kedua, dan telah dibuktikan secara percobaan bahwa kontribusi *ferroelectric mode* dapat dikurangi dengan memilih

parameter yang tepat sehingga *amplitude mode* dapat diamati lebih jelas. Kontribusi *soft mode* dalam respon elektrooptik orde kedua pada fasa SmA tidak dapat diamati pada percobaan kali ini dan masih diperlukan eksplorasi lebih lanjut. Selain fasa SmC_α^* , metode ini juga berguna untuk mengamati *nonpolar modes* di dalam fasa-fasa *nonpolar* seperti SmC_A^* dan fasa AF, ferielektrik dengan periode empat lapisan smektik.

DAFTARACUAN

- [1] P. MACH, R. PINDAK, A.-M. LEVELUT, P. BAROIS, H. T. NGUYEN, C. C. HUANG and L. FURENLID, *Phys. Rev. Lett.*, **81** (1998) 1015-1018
- [2] A. CADY, X. F. HAN, D. A. OLSON, H. ORIHARA and C. C. HUANG, *Phys. Rev. Lett.* **91**(2003) 125502-125505
- [3] S. KRISHNAPRASAD, S. M. KHENED, V.N. RAJA, S. CHANDRASEKHAR and B. SHIVKUMAR, *Ferroelectrics*, **138** (1993) 37-49
- [4] I. MUSEVIC, R. BLINC, B. ZEKS, C. FILIFIC, M. COPIC, A. SEPPEN, P. WYDER and A. LEVANYUK, *Phys. Rev. Lett.*, **60**, (1988) 1530-1533
- [5] K. EMA, H. YAO, *Phys. Rev. E* **57**(1998) 6677-6684
- [6] M. SKARABOT, K. KOCEVAR, R. BLINC, G. HEPPKE and I. MUSEVIC, *Phys. Rev. E* **59** (1999) R1323-R1326
- [7] H. ORIHARA, K. KAWADA, N. YAMADA and Y. ISHIBASHI, *Mol. Cryst. Liq. Cryst. Sci. Technol. Sect. A* **303** (1997)159-164
- [8] Y. KIMURA, N. KOBAYASHI and R. HAYAKAWA, *Phys. Rev. E* **64** (2001) 011705-1-4
- [9] K. HIRAOKA, H. TAKEZOE and A. FUKUDA, *Ferroelectrics* **147** (1993) 13-25
- [10] V. BOURNY, A. FAJAR and H. ORIHARA, *Phys. Rev E* **62** (2000) R5903-R5906
- [11] V. BOURNY, H. ORIHARA and A. FAJAR, *Mol. Cryst. Liq. Cryst. Sci. Technol. Sect. A* **364** (2001)373-38
- [12] H. ORIHARA, A. FAJAR and V. BOURNY, *Phys. Rev. E* **65** (2002) 040701-1-4
- [13] A. FAJAR, H. MURAI, H. ORIHARA, *Phys. Rev. E* **65** (2002) 041704-1-9
- [14] H. ORIHARA, Y. ISHIBASHI, *J. Phys. Soc. Jpn.*, **64** (1995) 3775-3786
- [15] T. ISOZAKI, Y. SUZUKI, I. KAWAMURA, K. MORI, N. NAKAMURA, N. YAMAMOTO, Y. YAMADA, H. ORIHARA, Y. ISHIBASHI, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **30** (1991) L1573-L1575
- [16] A. FAJAR, H. ORIHARA, V. BOURNY, J. PAVEL, V. LORMAN, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **39** (2000) L166-L168
- [17] R. BLINC, B. ZEKS, *Soft modes in Ferroelectrics and Antiferroelectrics*, North-Holland Publishing Co., Amsterdam, (1974) 27