

## EFEK ELEKTROOPTIK NONLINIER PADA FASA SMEKTIK- $C_{\alpha}^*$

Andika Fajar<sup>1</sup> dan Hiroshi Orihara<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Pusat Teknologi Bahan Industri Nuklir (PTBIN) - BATAN  
Kawasan Puspiptek Serpong 15314, Tangerang

<sup>2</sup>Applied Physics Department, Hokkaido University  
Sapporo 060-8628, Japan

### ABSTRAK

**EFEK ELEKTROOPTIK NONLINIER PADA FASA SMEKTIK- $C_{\alpha}^*$ .** Telah dilakukan pengukuran elektrooptik untuk mempelajari dinamika molekul kristal cair di sekitar transisi fasa smektik-A-smektik- $C_{\alpha}^*$  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- $C_{\alpha}^*$  *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- $C_{\alpha}^*$  PHASE.** Electrooptical measurements have been performed to study the dynamics behavior in the vicinity of second-order smectic-A-smectic- $C_{\alpha}^*$  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- $C_{\alpha}^*$  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- $C_{\alpha}^*$  ( $SmC_{\alpha}^*$ ) pada senyawa kristal cair MHPOBC diikuti dengan teridentifikasinya fasa-fasa baru lainnya seperti  $SmC_{\alpha}^*$  dan beberapa fasa ferielektrik. Di antara ini semua, fasa  $SmC_{\alpha}^*$  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  $SmC_{\alpha}^*$  atau fasa ferielektrik dengan berbagai variasi rentang suhu. Pengukuran hamburan resonansi sinar-X dan optik menunjukkan bahwa fasa kiral  $SmC_{\alpha}^*$  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  $SmC_{\alpha}^*$  terdapat fasa SmA di mana molekul kristal cairnya tegak lurus terhadap bidang lapis smektik dan transisi fasa dari fasa SmA ke  $SmC_{\alpha}^*$  adalah orde kedua. Karena pada fasa  $SmC_{\alpha}^*$  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- $SmC_{\alpha}^*$  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- $SmC_{\alpha}^*$ , tidak dapat diamati dengan alat

spektroskopi di atas. Hal ini karena *soft mode* yang menginduksi fasa  $\text{SmC}^*$  menyebabkan terjadinya perubahan polaritas spontan dan indeks bias, sedangkan *soft mode* yang menginduksi fasa  $\text{SmC}_\alpha^*$  tidak menyebabkan perubahan keduanya karena mengalami kondensasi pada titik sembarang yang jauh dari pusat zona Brillouin. Meskipun demikian, pada fasa  $\text{SmC}_\alpha^*$  *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  $\text{SmA}$  di dekat titik transisi ke fasa  $\text{SmC}_\alpha^*$ . 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  $\text{SmC}_\alpha^*$  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  $\text{SmA-SmC}_\alpha^*$  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  $\text{SmC}_\alpha^*$ . 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  $\text{SmC}_\alpha^*$ . Teori ini hanya mempertimbangkan *spatially homogeneous tilt*, yakni *ferroelectric mode* di dalam fasa  $\text{SmA}$  ( $\xi_{fx}, \xi_{fy}$ ), dan *helicoidal tilt*, yakni *soft mode* pada fasa  $\text{SmA}$  yang berhubungan dengan transisi fasa di mana ( $\xi_1, \xi_2$ ), 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  $\text{SmC}_\alpha^*$ . Kerapatan energi bebas pada fasa  $\text{SmA}$  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  $\epsilon_a$  merupakan anisotropi dielektrik pada frekuensi rendah,  $\lambda$  mempresentasikan *coupling* nonlinier antara *ferroelectric* dan *amplitude modes* yang berperan penting dalam pengukuran efek Kerr. Di dalam fasa  $\text{SmC}_\alpha^*$ ,  $\xi_1$  dan  $\xi_2$  bisa diubah oleh medan luar, dan dituliskan dengan  $\xi_1 = \xi_s + \Delta\xi_1$ ,  $\xi_2 = \Delta\xi_2$ , di mana  $\xi_s$  adalah nilai spontan pada kondisi tanpa medan di dalam fasa  $\text{SmC}_\alpha^*$  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  $\text{SmC}_\alpha^*$ :

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

*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,  $\lambda$  panjang gelombang sinar datang,  $\alpha$  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  $\alpha$  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  $\alpha_0$  dan  $n_{a0}$  adalah nilai kesetimbangan saat tanpa medan listrik, dan  $\Delta\alpha$  dan  $\Delta n_a$  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  $\Delta I$  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  $\Delta$  dan  $\Delta n_a$  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  $\Delta n_a$  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  $\epsilon_{\parallel}$ ,  $\epsilon_{\perp}$ ,  $\epsilon_a$  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.

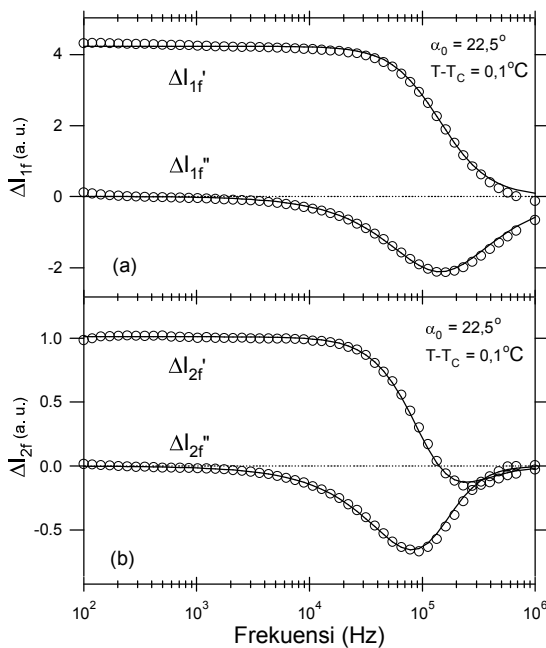
## METODE PERCOBAAN

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)  $SmC_{\alpha}^*$  (105,5°C)  $SmA$  (146,8°C)  $Iso$  [15]. Cuplikan dimasukkan ke dalam sel homogen dengan lebar celah 12  $\mu m$ . 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  $\Delta I$  yang didefinisikan dengan  $\Delta I = a \exp(i\phi)$ , di mana  $a$  dan  $\phi$  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  $\Delta I_{1f}$  dan respon orde kedua  $\Delta I_{2f}$  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*  $\Delta n_a$  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  $\xi_s$  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  $\xi_s^2$  digantikan dengan rata-rata termal  $\xi^2$  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  $\Delta I_{1f}$  and (b) respon orde kedua  $\Delta I_{2f}$  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  $\text{SmC}_\alpha^*$  ( $T-T_c=-0,2^\circ\text{C}$ ) 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 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- $\text{SmC}_\alpha^*$ . 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  $\Delta n_a$ , bukan dari  $\Delta\alpha^2$ .

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

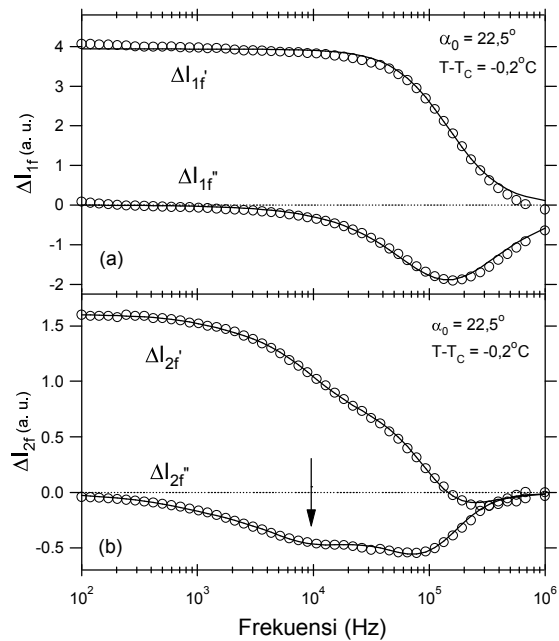
orde kedua pada fasa  $\text{SmC}_\alpha^*$  dapat dianalisis dengan formula :

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

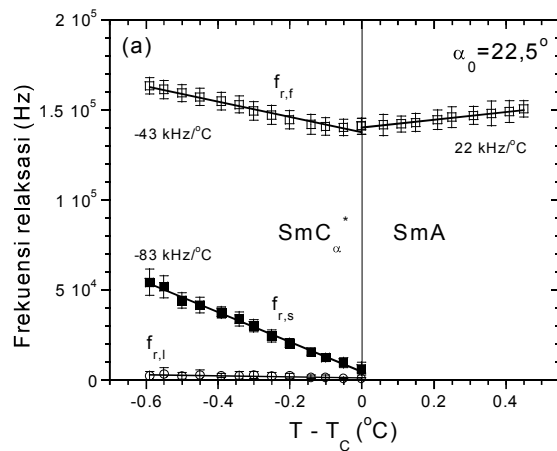
dimana  $\tau_s = \gamma/(\alpha+3\beta\xi_s^2)$ ,  $\tau_f$  dan  $\tau_l$  adalah waktu relaksasi *amplitude mode*, *ferroelectric mode* dan *low frequency mode*, dan

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

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



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



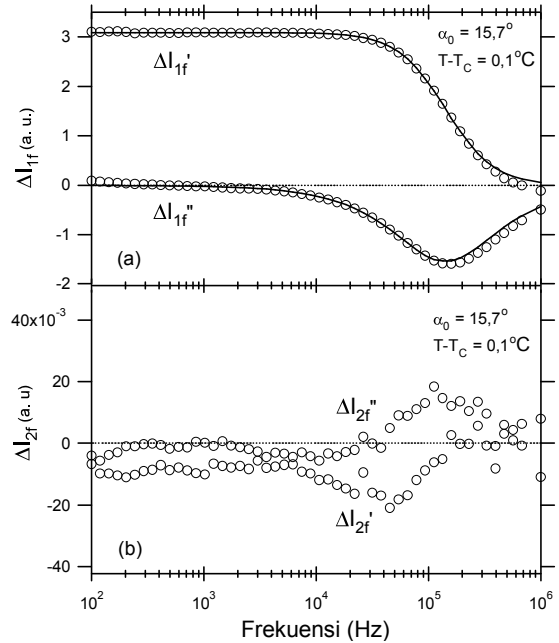
Gambar 3. Hubungan frekuensi relaksasi masing-masing mode terhadap suhu yang diperoleh dari pengukuran elektrooptik pada  $\alpha_0=22,5^\circ$ ,  $f_{r,f}$  dan  $f_{r,s}$  masing-masing adalah frekuensi relaksasi *ferroelectric mode* dan *amplitude mode* dan  $f_{r,l}$  adalah *low-frequency mode*.

$A_{f_2} = (3\varepsilon_a/4)(1/\sqrt{\varepsilon_0} + 1/\sqrt{\varepsilon_\perp})c^2\xi_s^2\chi_f^2(0)$ , 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  $\tau_j$  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,  $f_{rf} = (2\pi\tau_r)^{-1}$ ,  $f_{rs} = (2\pi\tau_s)^{-1}$  and  $f_{ri} = (2\pi\tau_i)^{-1}$ . Pada kedua fasa SmA or  $SmC_\alpha^*$ , *softening* dari *ferroelectric mode*,  $f_{rf}$ , terlihat jelas. Dalam fasa  $SmC_\alpha^*$ , 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  $SmC_\alpha^*$  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- $SmC_\alpha^*$  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  $\xi_{rx}^2$ , sehingga suku kedua persamaan (8) berbanding lurus dengan  $\xi_{rx}^2$ . Sebaliknya,  $\Delta n_a$  mencakup juga  $\xi_{rx}^2$  seperti terlihat pada persamaan (9). Bila persamaan (8) merupakan fungsi dari  $\xi_{rx}^2$  dan  $\Delta\xi_1$ , maka koefisiennya tergantung pada parameter  $\alpha_0$ ,  $n_{a0}$ ,  $\lambda$  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  $\xi_{rx}^2$  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  $\alpha_0$ , 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- $SmC_\alpha^*$ , dilakukan pengesetan sudut utama optik cuplikan pada sudut  $\alpha_0=15,7^\circ$  untuk

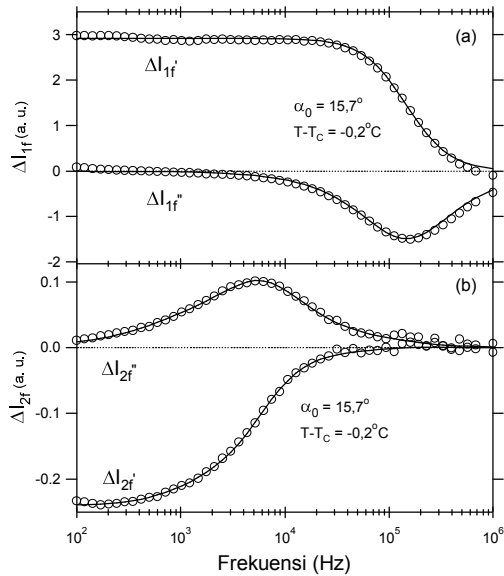
sel 12  $\mu m$ , ternyata diperoleh respon orde kedua yang minimum. Fenomena ini disebabkan karena berkurangnya kontribusi *ferroelectric mode* pada intensitas respon orde kedua, yakni saling menghilangkan antara suku kedua dan ketiga pada persamaan (6). Kemudian cuplikan dipanaskan hingga fasa SmA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



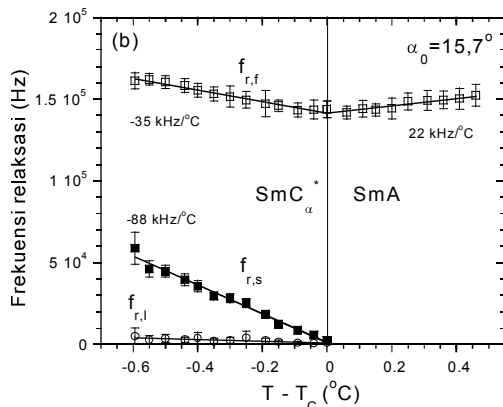
**Gambar 4.** Dispersi frekuensi (a) respon elektrooptik orde pertama  $\Delta I_{1f}$  and (b) respon orde kedua  $\Delta I_{2f}$  yang diperoleh pada  $\alpha_0=15,7^\circ$  di dalam fasa SmA ( $T-T_c=0,1^\circ C$ )

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  $SmC_\alpha^*$  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  $\Delta I_{1f}$  and (b) respon orde kedua  $\Delta I_{2f}$  yang diperoleh pada  $\alpha_0=15,7^\circ$  di dalam fasa  $\text{SmC}_\alpha^*$  ( $T-T_c=-0,2^\circ\text{C}$ )



**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  $\text{SmA-SmC}_\alpha^*$  kristal cair antiferroelektrik MHPOCBC dengan mempertimbangkan efek  $\alpha_0$  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  $\text{SmA}$  tidak dapat diamati pada percobaan kali ini dan masih diperlukan eksplorasi lebih lanjut. Selain fasa  $\text{SmC}_\alpha^*$ , metode ini juga berguna untuk mengamati *nonpolar modes* di dalam fasa-fasa *nonpolar* seperti  $\text{SmC}_A^*$  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