

Third-Harmonic Generation (THG) Microscopyを用いた 液晶コロイドにおけるトポロジカル欠陥のイメージング

(JST・SORST/液晶ナノシステム¹, 日立ディスプレイズ²) 大江 昌人^{1,2}, 横山 浩¹
(Universiteit van Amsterdam) Rajesh S. Pillai, Michiel Müller

The nature of the third-harmonic generation (THG) process in a nematic liquid crystal is investigated for the case of tightly focused, low intensity, laser beams. Colloidal particle induced topological defects in a liquid crystal are visualized in three-dimensions using the dependence of the THG signal on both changes in non-linear susceptibility and the orientation of the liquid crystal director relative to the incident laser polarization state.

【序】

液晶コロイド中の粒子周りの液晶のトポロジカル的構造，液晶配向場に形成される粒子間の相互作用や複数の粒子による自己組織化などが盛んに注目を浴びている[1]．サスペンドされた粒子は液晶に弾性的な変形を誘起し，液晶の協同性により分子の配向が粒子の周りで変化する．粒子と液晶分子の相互作用の違いにより，現れるトポロジカル的構造も異なる．本研究では，非線型光学効果のひとつ第3次光高調波発生(Third-Harmonic Generation: THG)マイクروسコープを用いて，粒子周りの分子の配向変化を3次元的にイメージングした[2]．

【実験】

フェムト秒レーザー(High Q GmbH, Austria)より発生したパルス光(113 fs, 1062 nm, 72 MHz)を高いnumerical aperture (NA)の対物レンズ(63x/1.25 oil)を用いて，回折限界までフォーカスさせサンプルに導いた．測定系の概要と，サンプルの構成と便宜上の座標を図1に示した．入射光と出射するTHG光の偏光を得るために，波長板とGlan Talorプリズムを用いた．THG光はCCDで検出し，サンプルは3次元にピエゾスキャンした．サンプルにはネマチック液晶5CB，粒子には直径5 μmのポリスチレン粒子を用い，カバーガラスに挟んだ．カバーガラス表面にはポリイミドを塗布し，y方向にラビング処理した．セルギャップはおよそ30 μmであった．

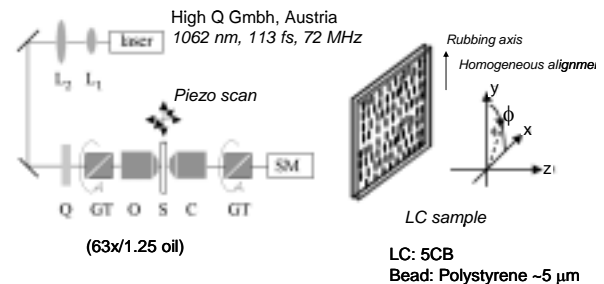


Fig. 1 Schematics of the experimental setup and the sample configuration.

【結果および考察】

一般に，3次非線型感受率 $\chi^{(3)}$ は小さいため，THGは弱いプロセスである．さらに，通常の負の波長分散($\Delta k = 3k_1 - k_3 = 6\pi(n_1 - n_3)/\lambda_1 < 0$)をもつホモジニアスな媒体では，絞られたレーザー光ではGouy phase shiftによりTHGは観測されない．ここで， n_1 と n_3 は基本光(λ_1)とTHG光波長における

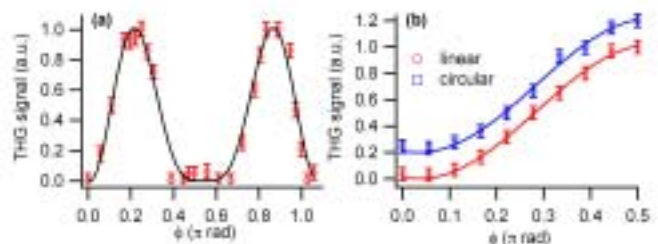


Fig. 2. THG intensity from within the LC medium as a function of (a) the angle between the input polarization and the LC director and (b) the angle between the analyzer and the LC director.

屈折率である．THGが観測されるのは，屈折率あるいは感受率に界面など不均一性が存在する場合である．しかしながら，強い屈折性を示す場合にみられる正の波長分散 ($\Delta k > 0$) をもつ媒体では，界面の存在がなくとも効率のよいTHGを得ることがある．この場合のTHG強度は $I_{THG} \propto b^4 \Delta k^2 \exp(-b\Delta k)$ で表される．

まず，液晶中におけるTHGプロセスを理解するために，液晶/ガラス界面および粒子からの影響を受けない離れた液晶媒体からのTHGを測定した．ただし，液晶の配向に影響を与えないと確認した強度 0.25 MW/cm^2 を用いた．図 2 (a) は入射偏光と液晶ダイレクターのなす角 (ϕ) とTHG信号の強度である．THG信号は $\phi \approx 0.22\pi, 0.83\pi$ で最大を示した．図 2 (b) は液晶ダイレクターと出射側偏光軸とのなす角である．このとき，入射光は $\phi \approx 0.22\pi$ の直線偏光あるいは円偏光を用いた．発生したTHG光は主にx軸に偏光していることを示している．ラビング方向はy軸であり，液晶分子は同方向に配向している．基本光およびTHG光とも吸収がないことから Kleinmann's symmetry を考慮して，non-zero の $\chi^{(3)}$ のテンソル要素は限定される．その中で，Type-I 位相整合 (eee o; e: extraordinary, o: ordinary axis) は $\chi_{xyyy} = 0$ であるため存在しない．一方，Type-II (eoo o) は $\chi_{yyxx} = \chi_{yyxy} = \chi_{xyxy} = \chi_{xyyx} = \chi_{yyxx} = \chi_{xyyx} \neq 0$ から成り立つ．5CBの位相の不整合は $\Delta k = 0.436 \text{ rad}/\mu\text{m}$ であり，5CBバルクから観測されたTHGはType-IIに因るものである [3] ．

さて，図 3 は粒子とその周辺のTHGイメージである．これらのイメージは粒子の赤道付近をx-yスキャンして得たものである．明るい部分はTHGが強いことを示しており，THGが四分円状の特徴あるパターンをなしている．ここで用いた偏光は $\phi = 0$ あるいは $\pi/2$ であり，変形のない液晶からは図 2 (a) のようにTHGは発生せず，得られたTHGイメージは粒子によって誘起された液晶の再配向に相当することを示唆している．液晶の配向場と粒子のアンカリングにより，数種のトポロジカル構造が発生することが知られているが，ポリスチレン粒子表面では平行配向をなすこと，および観測したTHGイメージパターンから，いわゆる“Boojum”欠陥に相当すると考えられる [1] ．四分円状パターンの明るい部分では，液晶分子がラビング方向のy軸からずれ，THGは2つの要因がある．液晶分子と入射偏光のなす角が生じ，擬似的位相整合に因る．また，局所的配向が変化したことにより，不均一に屈折率あるいは感受率が変化したこと，である．粒子の北極と南極では分子の配向がy軸を向いているのでTHGが極端に小さくなっていることが分かる．

当日は，z方向にスキャンしたイメージングも紹介する．

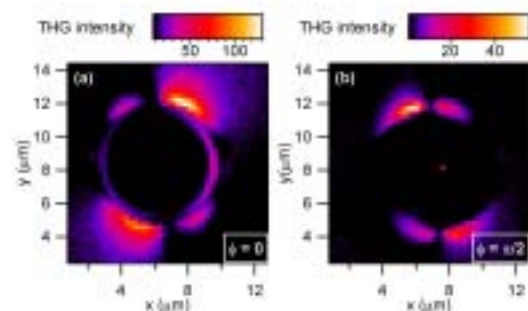


Fig. 3. THG optical sections of a polystyrene bead in a nematic LC medium near the equatorial plane. The input polarization is $\phi = 0$ for (a) and $\phi = \pi/2$ for (b).

References

- [1] P. Poulin, H. Stark, T. C. Lubensky, and D. A. Weitz, *Science* 275, 1770 - 1773 (1997); P. Poulin, and D. A. Weitz, *Phys. Rev. E* 57, 626 - 637 (1998).
- [2] R. S. Pillai, M. Oh-e, H. Yokoyama, G. J. Brakenhoff, and M. Müller *Opt. Express*, 14(26), 12976-12983 (2006).
- [3] J.-I. Kosugi, and K. Kajikawaa, *Appl. Phys. Lett.* 84, 5013-5015 (2004).