



ОПТИКА И СПЕКТРОСКОПИЯ. ЛАЗЕРНАЯ ФИЗИКА

УДК 535.361:53.06:617.73:76.03.29

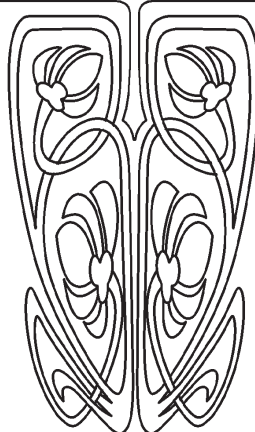
Особенности структуры статистически вращательно-инвариантных мозаичных двулучепреломляющих слоев, проявляющих круговой дихроизм

Д. Д. Яковлев

Яковлев Дмитрий Дмитриевич, аспирант кафедры оптики и биофотоники, Саратовский национальный исследовательский государственный университет имени Н. Г. Чернышевского, ddy-a-optics@mail.ru



НАУЧНЫЙ
ОТДЕЛ



Известно, что слои двулучепреломляющих материалов, имеющие хиральную надмолекулярную структуру, проявляют круговой дихроизм, если материал слоя обладает дихроизмом или выполняются условия брэгговского отражения для одной из циркулярно поляризованных компонент. В настоящей работе с помощью метода двухточечных обобщенных матриц Мюллера и приближения фазового экрана показывается, что круговой дихроизм может наблюдаться на мозаичных двулучепреломляющих слоях даже при отсутствии поляризационно-зависимых потерь при прохождении света через слой. В этом случае круговой дихроизм имеет дифракционную природу и ярко проявляется в свойствах нерассеянной слои компоненты прошедшего света. Установлены структурные свойства слоя, при наличии которых слой может проявлять круговой дихроизм такого рода. Выявлены условия, при которых нерассеянная компонента прошедшего света может быть полностью циркулярно поляризованной как в случае неполяризованного, так и в случае линейно поляризованного падающего света. Представлены экспериментальные примеры наблюдения кругового дихроизма при рассеянии света на слоях холестерических жидких кристаллов вне полос дихроичного поглощения жидкокристаллического материала и брэгговского отражения.

Ключевые слова: неоднородные двулучепреломляющие слои, круговой дихроизм, обобщенные матрицы Мюллера, приближение фазового экрана, холестерические жидкие кристаллы, случайные планарные граничные условия.

DOI: <https://doi.org/10.18500/1817-3020-2019-19-3-188-200>

Введение

Благодаря своей информативности и появлению новых удобных средств измерения спектрально-поляризационные методы исследования находят все большее применение [1–15]. В настоящее время они широко используются для исследования и характеристики кристаллических материалов [1–4], полимеров [5–9], жидкокристаллических систем [5, 6, 10, 11], биологических тканей [4, 10, 12–15] и т. д. В современных методах информацию о структуре и свойствах исследуемого образца извлекают из спектральных зависимостей либо всех элементов матрицы Мюллера (пропускания, отражения, рассеяния) образца [1–4, 9, 11], либо отдельных ее элементов или комбинаций элементов, несущих информацию о конкретных оптических свойствах образца, напри-



мер круговом дихроизме [3, 5–8, 10]. Наблюдаемый круговой дихроизм обычно расценивают как свидетельство молекулярного дихроизма структурных составляющих среды [4–6, 10]. Другим известным источником кругового дихроизма является брэгговское отражение одной из циркулярно поляризованных компонент падающего света в случае, когда имеется винтовая упорядоченность ориентации главных осей тензора диэлектрической проницаемости и шаг спирали сравним с длиной волны падающего света [4, 7–9]; этот тип кругового дихроизма характерен, в частности, для холестерических жидких кристаллов. В данном случае дихроизм обусловлен особенностями надмолекулярной структуры образца, т. е. здесь уместно говорить не о молекулярном, а о надмолекулярном круговом дихроизме. Здесь мы рассматриваем иной, к настоящему времени практически не изученный, тип надмолекулярного кругового дихроизма, который может наблюдаться вне полос брэгговского отражения для статистически вращательно-инвариантных случайно-неоднородных слоев двулучепреломляющих материалов.

Относительно недавно было экспериментально обнаружено, что случайно-неоднородные слои двулучепреломляющих материалов даже при отсутствии поляризационно-зависимых поглощения и объемного отражения могут проявлять круговой дихроизм [16]. Опыты проводились на тонких мелкодоменных слоях низкомолекулярных холестерических жидких кристаллов (ЖК), сформировавшихся в ячейках с ненатертыми полимерными ориентирующими слоями, способствующими планарной ориентации молекул ЖК у их поверхности, после их заполнения жидкокристаллическим материалом (ЖК-материал) в изотропном состоянии – такие слои мы будем условно называть LCPRPA (long-pitch-cholesteric random-planar-alignment) слоями. ЖК-материал был непоглощающим в видимом диапазоне, а естественный шаг спирали ЖК-материала существенно превышал длину волны падающего света. Круговой дихроизм был обнаружен при исследовании характеристик нерассеянной компоненты прошедшего света. Когда LCPRPA слой, находящийся под действием внешнего электрического поля, освещался линейно поляризованным пучком, нерассеянная компонента прошедшего света в общем случае имела эллиптическую поляризацию. Для одной из экспериментальных ячеек – ячейки отличались толщиной жидкокристаллического слоя (ЖК-

слоя) – в определенном диапазоне длин волн и приложенных напряжений нерассеянная компонента была почти циркулярно поляризованной (см. также раздел 1.3). При освещении этой ячейки неполяризованным пучком, нерассеянная компонента была частично циркулярно поляризованной. Степень поляризации этой компоненты можно было изменять, изменяя величину напряжения, приложенного к ЖК-слою (см. также раздел 1.4).

Простейшей оптической моделью LCPRPA слоя является эквидоменный слой – мозаичный слой, состоящий из хиральных доменов с одинаковой внутренней структурой, но разной азимутальной ориентацией деталей этой структуры [16–18] (рис. 1). Согласно анализу, проведенному в работе [17], эквидоменные слои при отсутствии локальных поляризационно-зависимых потерь не могут проявлять круговой дихроизм (см. также раздел 2.2). Следовательно, для объяснения проявления кругового дихроизма LCPRPA слоями требуется рассмотрение более общей модели слоя, допускающей неидентичность структуры составляющих слой доменов [16].

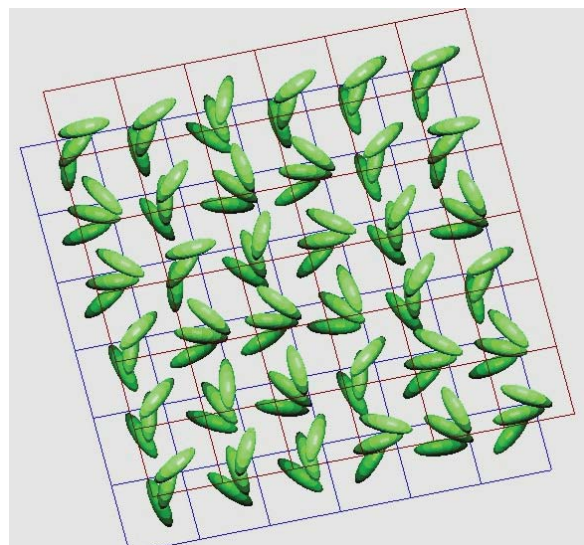


Рис. 1. Эквидоменная модель LCPRPA слоя
Fig. 1. The equidomain model of an LCPRPA layer

Основная цель настоящей работы – найти, наличие каких статистических структурных свойств мозаичных двулучепреломляющих слоев необходимо для проявления ими кругового дихроизма. В разделе 1 в качестве иллюстрации приводятся экспериментальные данные по электроиндуцированному круговому дихроизму для LCPRPA слоев, часть из которых была ранее представлена нами в работе [16]. Раздел 2 посвящен теоретическому



рассмотрению. Используемый теоретический подход основан на методе двухточечных обобщенных матриц Мюллера [19] и использует приближение фазового экрана [20–25] (см. раздел 2.1). В разделе 2.2 рассматриваются эквидоменные слои, а в разделах 2.3–2.6 – квазиэквидоменные. Раздел 2.4 посвящен структурным особенностям, необходимым для проявления слоями кругового дихроизма, а в разделе 2.5 выводятся условия, при которых круговой дихроизм проявляется в максимальной степени (когда нерассеянная компонента является циркулярно поляризованной как при линейно поляризованном, так и при неполяризованном освещении).

1. Эксперимент

1.1. Образцы

Здесь мы представим экспериментальные данные для трех образцов LCPRPA слоев различной толщины ($d \approx 3, 4, \text{ и } 5 \text{ мкм}$). Жидкокристаллические ячейки были собраны из промышленных стеклянных пластин с ITO покрытием (Merck, Германия). Случайная планарная ориентация ЖК обеспечивалась ненатертыми полиимидными слоями (полиимид PIA 3744, Chisso LIXON aligner, Япония). Полиимидные слои наносились на поверхность ITO слоев методом центрифугирования. После нанесения полиимидные слои не подвергались какой-либо обработке, способной привести к появлению предпочтительного направления ориентации жидкокристаллических молекул на поверхности полимера в макроскопическом масштабе. Толщина ЖК-слоя задавалась цилиндрическими и сферическими стеклянными

спейсерами, рассеянными между стеклянными пластинами. Ячейки были заполнены капиллярно холестерическим ЖК-материалом, представляющим собой смесь нематика E7 и холестерической добавки ZLI-811 (~0.7%, левая), в изотропной фазе. Заполнение в изотропной фазе предотвращало ориентацию потоком [26, 27] и способствовало образованию требуемой мелкодоменной структуры ЖК-слоя. Естественный шаг спирали холестерического материала при комнатной температуре составлял около 11 мкм.

1.2. Экспериментальная установка и обработка экспериментальных данных

Для характеристики состояния поляризации нерассеянной компоненты прошедшего через ячейку света нами измерялись спектры параметров Стокса $S_{j\text{nonsc}}$ ($j = 0, 1, 2, 3$) этой компоненты. Измерения проводились в диапазоне длин волн от 525 до 700 нм при нормальном падении света на установку, использующей схему «линейный поляризатор – образец – компенсатор – линейный анализатор» (рис. 2). На оптической скамье располагались выходной конец волоконно-оптического жгута, доставляющего излучение от широкополосного источника света (галогеновая лампа), две диафрагмы, формирующие узкий коллимированный пучок (диаметром около 2.5 мм в области его падения на образец), поляризатор, столик для крепления образца, четвертьволновая (на длине волны 633 нм) фазовая пластина (Thorlabs, США), анализатор и собирающая линза с фокусным расстоянием 94 мм, фокусирующая нерассеянную компоненту на приемный конец световода спектрометра Ocean Optics USB4000 (США).

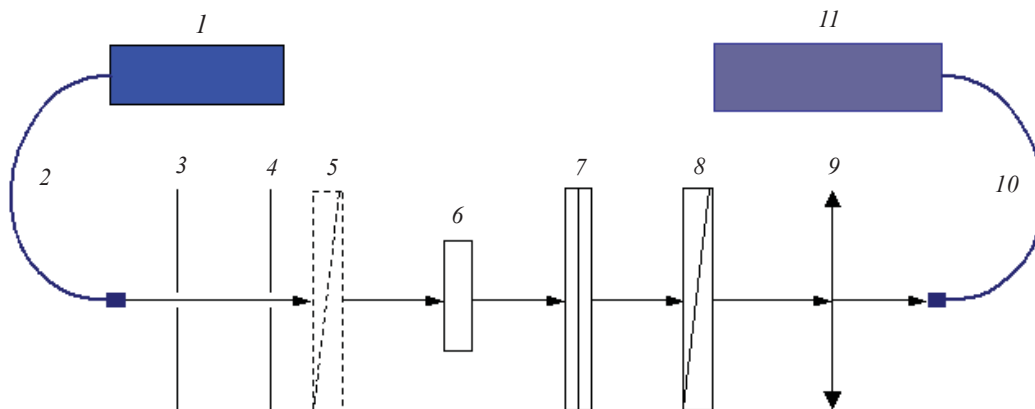


Рис. 2. Экспериментальная установка: 1 – источник света, 2, 10 – оптические волокна, 3, 4 – диафрагмы, 5 – поляризатор, 6 – образец, 7 – компенсатор, 8 – анализатор, 9 – линза, 11 – спектрометр
Fig. 2. Experimental setup: 1 – light source, 2, 10 – optical fibers, 3, 4 – diaphragms, 5 – polarizer, 6 – sample, 7 – compensator, 8 – analyzer, 9 – lens, 11 – spectrometer



Спектры параметров Стокса рассчитывались по шести экспериментальным спектрам полной мощности этой компоненты после ее прохождения через систему «компенсатор–анализатор», измеренным при следующих установках анализатора и фазовой пластины:

$$\begin{aligned} (\alpha, \vartheta') &= (\alpha_j, \beta_j), j=1,2,\dots,6; \\ (\alpha_1, \beta_1) &= (0^\circ, 0^\circ), (\alpha_2, \beta_2) = (90^\circ, 0^\circ), \\ (\alpha_3, \beta_3) &= (0^\circ, 45^\circ), \\ (\alpha_4, \beta_4) &= (0^\circ, -45^\circ), (\alpha_5, \beta_5) = (-45^\circ, -45^\circ), \\ (\alpha_6, \beta_6) &= (45^\circ, -45^\circ), \end{aligned}$$

где α и ϑ' – углы ориентации компенсатора и анализатора: ϑ' – угол между лабораторной осью отсчета (ось x) и осью пропускания анализатора и

α – угол между осью x и эффективной медленной осью фазовой пластины.

Используемый алгоритм расчета параметров Стокса основывается на следующем. Пусть

$$\mathbf{M}_{ca} = \begin{pmatrix} m_{11} & m_{12} & m_{13} & m_{14} \\ m_{21} & m_{22} & m_{23} & m_{24} \\ m_{31} & m_{32} & m_{33} & m_{34} \\ m_{41} & m_{42} & m_{43} & m_{44} \end{pmatrix}$$

– матрица Мюллера системы «компенсатор–анализатор» на данной длине волны λ . Тогда измеренные значения спектральной плотности мощности нерассеянной компоненты могут быть выражены через параметры Стокса нерассеянной компоненты следующим образом:

$$\begin{pmatrix} m_{11}(\alpha_1, \beta_1) & m_{12}(\alpha_1, \beta_1) & m_{13}(\alpha_1, \beta_1) & m_{14}(\alpha_1, \beta_1) \\ m_{11}(\alpha_2, \beta_2) & m_{12}(\alpha_2, \beta_2) & m_{13}(\alpha_2, \beta_2) & m_{14}(\alpha_2, \beta_2) \\ m_{11}(\alpha_3, \beta_3) & m_{12}(\alpha_3, \beta_3) & m_{13}(\alpha_3, \beta_3) & m_{14}(\alpha_3, \beta_3) \\ m_{11}(\alpha_4, \beta_4) & m_{12}(\alpha_4, \beta_4) & m_{13}(\alpha_4, \beta_4) & m_{14}(\alpha_4, \beta_4) \\ m_{11}(\alpha_5, \beta_5) & m_{12}(\alpha_5, \beta_5) & m_{13}(\alpha_5, \beta_5) & m_{14}(\alpha_5, \beta_5) \\ m_{11}(\alpha_6, \beta_6) & m_{12}(\alpha_6, \beta_6) & m_{13}(\alpha_6, \beta_6) & m_{14}(\alpha_6, \beta_6) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} S_{0\text{nonsc}} \\ S_{1\text{nonsc}} \\ S_{2\text{nonsc}} \\ S_{3\text{nonsc}} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} t_1 \\ t_2 \\ t_3 \\ t_4 \\ t_5 \\ t_6 \end{pmatrix},$$

где $m_{kl}(\alpha_j, \beta_j)$ – значения элементов матрицы \mathbf{M}_{ca} при $\alpha = \alpha_j$ и $\vartheta' = \beta_j$, а t_j – спектральная плотность мощности нерассеянной компо-

ненты после прохождения системы «компенсатор–анализатор» при $\alpha = \alpha_j$ и $\vartheta' = \beta_j$. Вектор Стокса

$$\mathbf{S}_{\text{nonsc}} = \begin{pmatrix} S_{0\text{nonsc}} \\ S_{1\text{nonsc}} \\ S_{2\text{nonsc}} \\ S_{3\text{nonsc}} \end{pmatrix}$$

рассчитывался методом наименьших квадратов по формуле

$$\mathbf{S}_{\text{nonsc}} = (\mathbf{N}^T \mathbf{N})^{-1} \mathbf{N}^T \mathbf{J}_e, \quad (1)$$

где

$$\mathbf{N} = \begin{pmatrix} m_{11}(\alpha_1, \beta_1) & m_{12}(\alpha_1, \beta_1) & m_{13}(\alpha_1, \beta_1) & m_{14}(\alpha_1, \beta_1) \\ m_{11}(\alpha_2, \beta_2) & m_{12}(\alpha_2, \beta_2) & m_{13}(\alpha_2, \beta_2) & m_{14}(\alpha_2, \beta_2) \\ m_{11}(\alpha_3, \beta_3) & m_{12}(\alpha_3, \beta_3) & m_{13}(\alpha_3, \beta_3) & m_{14}(\alpha_3, \beta_3) \\ m_{11}(\alpha_4, \beta_4) & m_{12}(\alpha_4, \beta_4) & m_{13}(\alpha_4, \beta_4) & m_{14}(\alpha_4, \beta_4) \\ m_{11}(\alpha_5, \beta_5) & m_{12}(\alpha_5, \beta_5) & m_{13}(\alpha_5, \beta_5) & m_{14}(\alpha_5, \beta_5) \\ m_{11}(\alpha_6, \beta_6) & m_{12}(\alpha_6, \beta_6) & m_{13}(\alpha_6, \beta_6) & m_{14}(\alpha_6, \beta_6) \end{pmatrix}, \quad \mathbf{J}_e = \begin{pmatrix} t_{e1} \\ t_{e2} \\ t_{e3} \\ t_{e4} \\ t_{e5} \\ t_{e6} \end{pmatrix},$$

t_{ej} – измеренное значение спектральной плотности мощности нерассеянной компоненты. При вычислении параметров Стокса по формуле (1) учитывалась неидеальность используемой фазовой пластины

по алгоритму, представленному в [28]. Точность оценки параметров Стокса составила порядка 0.2%.

Измерения проводились для двух вариантов освещения образцов. В первом случае падающий



на ячейку свет был линейно поляризован параллельно лабораторной оси отсчета x (см. раздел 1.3), а во втором – неполяризован (см. раздел 1.4). При изучении электрооптического отклика ячеек мы прикладывали к ним переменное напряжение (1 кГц, от 0 до 3.2 В).

1.3. Результаты для случая линейно поляризованного падающего света

В случае линейно поляризованного падающего света оценивалась степень круговой поляризации нерассеянной компоненты P_C (рис. 3). Для всех трех ячеек при всех значениях приложенного напряжения U нерассеянная компонента была полностью поляризованной практически во всем рассматриваемом спектральном диапазоне

($S_{P_{\text{nonsc}}} = S_{0_{\text{nonsc}}}$ в пределах экспериментальной ошибки), за исключением спектральных областей вблизи минимумов направленного пропускания. Опираясь на теоретические результаты раздела 2.3, мы предполагали, что нерассеянная компонента является полностью поляризованной, а наличие неполяризованной составляющей в регистрируемом излучении обусловлено попаданием во входное отверстие световода спектрометра рассеянной компоненты. С учетом этого степень круговой поляризации нерассеянной компоненты вычислялась по формуле $P_C = S_{3_{\text{nonsc}}}/S_{P_{\text{nonsc}}}$, где $S_{P_{\text{nonsc}}} = \sqrt{S_{1_{\text{nonsc}}}^2 + S_{2_{\text{nonsc}}}^2 + S_{3_{\text{nonsc}}}^2}$ – спектральная плотность мощности поляризованной составляющей нерассеянной компоненты.

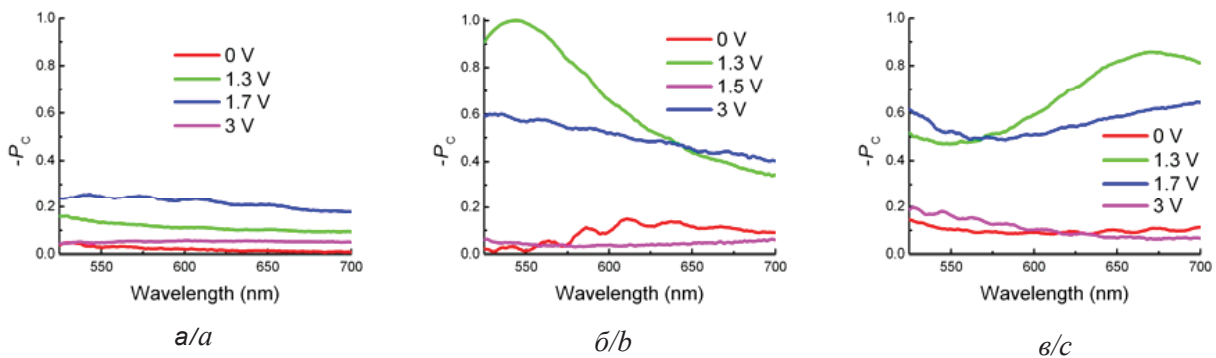


Рис. 3. Спектры степени циркулярной поляризации P_C для образцов с толщиной $d \approx 3$ мкм (а), 4 мкм (б) и 5 мкм (в) (ячейки С3, С4 и С5 соответственно) при различных значениях приложенного напряжения. Падающий свет линейно поляризован

Fig. 3. Circular polarization degree P_C for samples with thickness $d \approx 3$ μm (a), 4 μm (b), and 5 μm (c) (cells C3, C4, and C5, respectively) at different applied voltages. The incident light is linearly polarized (color online)

На рис. 3 показаны спектры P_C при различных значениях приложенного напряжения U для всех трех образцов. Отметим, что во всех рассмотренных случаях поляризация нерассеянной компоненты оказалась левой ($P_C < 0$). Видно, что при $U = 0$ В (в выключенном состоянии), а также при $U > 3$ В эллипс поляризации был сильно вытянутым (для всех ячеек значение $|P_C|$ не превышало 0.2, причем для ячеек с толщиной ЖК-слоя $d \approx 3$ мкм (ячейка С3) и 4 мкм (ячейка С4) при $U > 3$ В значение $|P_C|$ было меньше 0.1). Для ячейки С3 степень круговой поляризации была относительно малой во всем диапазоне напряжений ($|P_C| < 0.3$). Для ячеек с $d \approx 4$ мкм (С4) и 5 мкм (С5) в определенном диапазоне напряжений и длин волн степень круговой поляризации нерассеянной компоненты превышала 0.8 (см. рис. 3, б и рис. 3, в), причем для ячейки С4 при

$U \approx 1.3$ В и $\lambda \approx 560$ нм нерассеянная компонента имела строго круговую поляризацию ($P_C = -1$ в пределах экспериментальной ошибки).

1.4. Результаты для случая неполяризованного падающего света

В случае неполяризованного падающего света для всех ячеек при всех U и λ с высокой точностью выполнялись следующие соотношения: $S_{1_{\text{nonsc}}}/S_{0_{\text{nonsc}}} = 0$, $S_{2_{\text{nonsc}}}/S_{0_{\text{nonsc}}} = 0$ и $S_{3_{\text{nonsc}}}/S_{P_{\text{nonsc}}} = -1$, т. е. нерассеянная компонента была частично циркулярно поляризованной, причем поляризация была левой. На рис. 4 для ячейки С4 приведены спектры параметров $S_{0_{\text{nonsc}}}$, $S_{3_{\text{nonsc}}}$ и $S_{P_{\text{nonsc}}}$, нормированные на спектр мощности падающего света $S_{P_{i0}}$, при различных значениях U . Из рис. 4 видно, что при $U \approx 0$ В и $U \approx 3.2$ В нерассеянная компонента была практически полностью неполяризованной. При $U \approx 1.3$ В и

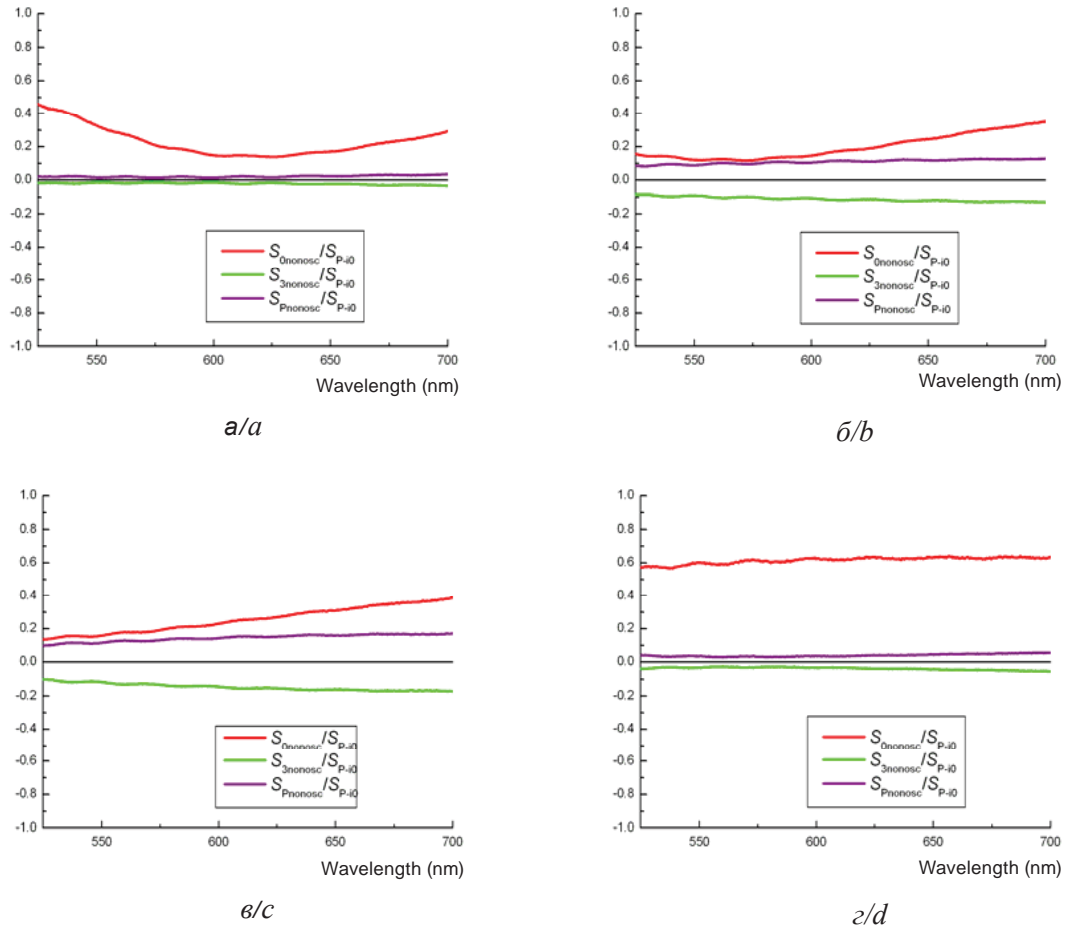


Рис. 4. Параметры Стокса $S_{0nonosc}$, $S_{3nonosc}$ и спектральная плотность мощности полностью поляризованной составляющей $S_{Pnonosc}$ нерассеянной компоненты, нормированные на спектральную плотность мощности падающего пучка S_{P-10} для ячейки C4 при различных значениях приложенного напряжения: $U = 0$ (а), $U \approx 1.3$ В (б) $U \approx 1.5$ В (в) и $U \approx 3.2$ В (г). Падающий свет неполяризован

Fig. 4. The Stokes parameters $S_{0nonosc}$, $S_{3nonosc}$, and the power spectral density of the completely polarized part $S_{Pnonosc}$ of the nonscattered component, normalized by the power spectral density of the incident light, for cell C4 at different values of the applied voltage: $U = 0$ V (a), $U \approx 1.3$ V (b) $U \approx 1.5$ V (c), and $U \approx 3.2$ V (d). The incident light is unpolarized (color online)

$U \approx 1.5$ В степень циркулярной поляризации нерассеянной компоненты была большой во всем спектральном диапазоне (значение $|S_{3nonosc}|$ было сравнимо с $S_{0nonosc}$). При $U \approx 1.3$ В и $\lambda \approx 550$ нм нерассеянная компонента была практически полностью циркулярно поляризованной.

2. Теория

2.1. Обобщенная матрица Мюллера для нерассеянной компоненты прошедшего света

Пусть однородно поляризованный коллимированный пучок падает в нормальном направлении на мозаичный слой. Следуя [18, 20–25], мы аппроксимируем слой плоским бесконечно протяженным амплитудно-фазовым экраном, находящимся в плоскости $z = 0$ декартовой

системы координат (x, y, z) . Это приближение применимо, если характерный масштаб неоднородностей слоя намного больше длины волны падающего света и если слой настолько тонок, что расходимость падающего пучка внутри него можно пренебречь [29, 30]. Для описания спектральных и корреляционных свойств падающего и прошедшего полей мы будем использовать обобщенные векторы Стокса [31] $\mathbf{S}(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, \omega) = \mathbf{L}(\langle \mathbf{J}(\mathbf{r}_1, \omega) \otimes \mathbf{J}^*(\mathbf{r}_2, \omega) \rangle)$, где $\mathbf{J}(\mathbf{r}, \omega)$ – вектор Джонса, характеризующий типичный элемент статистического ансамбля реализаций спектральной компоненты флуктуирующего электрического поля с угловой частотой ω в точке \mathbf{r} , $\langle \cdot \rangle$ обозначает усреднение по ансамблю реализаций поля,



$$\mathbf{L} \equiv \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 & 1 \\ 1 & 0 & 0 & -1 \\ 0 & 1 & 1 & 0 \\ 0 & -i & i & 0 \end{pmatrix}$$

и \otimes – символ кронекеровского умножения матриц. В дальнейшем мы опускаем аргумент ω у всех функций и записываем обобщенные векторы Стокса в плоскости $z = 0$ как функции от $\boldsymbol{\rho}_1 = (x_1, y_1)$ и $\boldsymbol{\rho}_2 = (x_2, y_2)$. Представим обобщенный вектор Стокса падающего пучка $\mathbf{S}_i(\boldsymbol{\rho}_1, \boldsymbol{\rho}_2)$ в плоскости $z = 0$ непосредственно перед экраном в виде

$$\mathbf{S}_i(\boldsymbol{\rho}_1, \boldsymbol{\rho}_2) = g(\boldsymbol{\rho}_1, \boldsymbol{\rho}_2) \mathbf{S}_{P-i},$$

где $g(\boldsymbol{\rho}_1, \boldsymbol{\rho}_2)$ – скалярная функция, удовлетворяющая условию $\int g(\boldsymbol{\rho}, \boldsymbol{\rho}) d^2 \boldsymbol{\rho} = 1$ и \mathbf{S}_{P-i} – интегральный вектор Стокса [32] падающего пучка (вектор Стокса спектральной плотности мощности пучка, характеризующий пучок как целое). Здесь и

$$\mathbf{S}_0^{(\infty)}(\mathbf{r}_s) = \frac{k^2}{(2\pi r_0)^2} \cos^2 \zeta \left[\int \exp(-iks_{\perp} \mathbf{R}) \left(\int \mathbf{M}(\boldsymbol{\rho}_0, \mathbf{R}) g(\boldsymbol{\rho}_0, \mathbf{R}) d^2 \boldsymbol{\rho}_0 \right) d^2 \mathbf{R} \right] \mathbf{S}_{P-i},$$

где $\mathbf{r}_s = r_0 \mathbf{s}$ – радиус-вектор точки в плоскости $z = z_d$, \mathbf{s} – единичный вектор в направлении \mathbf{r}_s , ζ – угол между \mathbf{s} и положительной осью z , $k = 2\pi/\lambda$, \mathbf{s}_{\perp} – проекция вектора \mathbf{s} на плоскость $z = 0$, $\boldsymbol{\rho}_0 = (\boldsymbol{\rho}_1 + \boldsymbol{\rho}_2)/2$ и $\mathbf{R} = \boldsymbol{\rho}_1 - \boldsymbol{\rho}_2$.

Мы ограничимся рассмотрением нерассеянной компоненты прошедшего света. Для того чтобы иметь возможность анализировать свойства этой компоненты отдельно, примем некоторые допущения относительно структуры экрана. Будем считать, что экран является макроскопически однородным [18] в масштабе R_{hom} и что свойства падающего поля на масштабе R_{hom} изменяются медленно. Тогда при любом $R' > R_{\text{hom}}$ выполняется следующее приближенное равенство:

$$\langle \mathbf{M}(\boldsymbol{\rho}_0, \mathbf{R}) \rangle_{\boldsymbol{\rho}', R'} \approx \mathbf{M}_A(\mathbf{R}).$$

Здесь $\langle \mathbf{M}(\boldsymbol{\rho}_0, \mathbf{R}) \rangle_{\boldsymbol{\rho}', R'}$ – среднее от $\mathbf{M}(\boldsymbol{\rho}_0, \mathbf{R})$, взятое по области $\boldsymbol{\rho}_0 \in \Omega_{\boldsymbol{\rho}', R'}$, где $\Omega_{\boldsymbol{\rho}', R'}$ – круговая область с центром в $\boldsymbol{\rho}'$ и радиусом R' , а $\mathbf{M}_A(\mathbf{R})$ – среднее от $\mathbf{M}(\boldsymbol{\rho}_0, \mathbf{R})$, взятое по всей площади фазового экрана. Скорость пространственного изменения параметров падающего пучка в нашем рассмотрении определяется функцией $g(\boldsymbol{\rho}_0, \mathbf{R})$. Ее, как функцию от $\boldsymbol{\rho}_0$, мы считаем медленной функцией в масштабе R_{hom} .

далее считаем, что все векторы состояния и матричные операторы представлены в системе координат (x, y, z) . Обобщенный вектор Стокса поля в плоскости $z = 0$ непосредственно за экраном может быть выражен следующим образом:

$$\mathbf{S}_0(\boldsymbol{\rho}_1, \boldsymbol{\rho}_2) = \mathbf{M}(\boldsymbol{\rho}_1, \boldsymbol{\rho}_2) \mathbf{S}_i(\boldsymbol{\rho}_1, \boldsymbol{\rho}_2),$$

где

$$\mathbf{M}(\boldsymbol{\rho}_1, \boldsymbol{\rho}_2) = \mathbf{L} \left(\mathbf{T}(\boldsymbol{\rho}_1) \otimes \mathbf{T}^*(\boldsymbol{\rho}_2) \right) \mathbf{L}^{-1}$$

– обобщенная матрица Мюллера [19] и $\mathbf{T}(\boldsymbol{\rho})$ – матрица Джонса локального пропускания фазового экрана.

Спектральные и поляризационные свойства прошедшего поля в дальней зоне ($z_d \gg R_b$, где R_b – радиус пучка, z_d – расстояние от экрана до плоскости детектирования) могут быть описаны с помощью одноточечного спектрального вектора Стокса $\mathbf{S}_0^{(\infty)}(\mathbf{r}_s)$, который может быть выражен через $\mathbf{M}(\boldsymbol{\rho}_1, \boldsymbol{\rho}_2)$, $g(\boldsymbol{\rho}_1, \boldsymbol{\rho}_2)$ и \mathbf{S}_{P-i} следующим образом [18, 33]:

Представим матрицу Джонса локального пропускания слоя в виде $\mathbf{T}(\boldsymbol{\rho}) = \bar{\mathbf{T}} + \tilde{\mathbf{T}}(\boldsymbol{\rho})$, где

$$\bar{\mathbf{T}} = \langle \mathbf{T}(\boldsymbol{\rho}) \rangle_A \quad (2)$$

и $\tilde{\mathbf{T}}(\boldsymbol{\rho}) = \mathbf{T}(\boldsymbol{\rho}) - \bar{\mathbf{T}}$. Тогда функцию $\mathbf{M}_A(\mathbf{R})$ можно представить в виде суммы:

$$\mathbf{M}_A(\mathbf{R}) = \bar{\mathbf{M}} + \tilde{\mathbf{M}}(\mathbf{R}),$$

где

$$\bar{\mathbf{M}} = \mathbf{L} \left(\bar{\mathbf{T}} \otimes \bar{\mathbf{T}}^* \right) \mathbf{L}^{-1}, \quad (3)$$

$$\tilde{\mathbf{M}}(\mathbf{R}) = \left\langle \mathbf{L} \left(\tilde{\mathbf{T}}(\boldsymbol{\rho}_1) \otimes \tilde{\mathbf{T}}^*(\boldsymbol{\rho}_2) \right) \mathbf{L}^{-1} \right\rangle_A.$$

Сделанные предположения позволяют выразить одноточечный вектор Стокса нерассеянной компоненты следующим образом [18]:

$$\mathbf{S}_{\text{nonsc}}^{(\infty)}(\mathbf{r}_s) \approx \frac{k^2}{(2\pi r_0)^2} \cos^2 \zeta \bar{\mathbf{M}} \mathbf{S}_{P-i} \int G(\mathbf{R}) \exp(-iks_{\perp} \mathbf{R}) d^2 \mathbf{R}, \quad (4)$$

Из (4) видно, что интегральный вектор Стокса $\mathbf{S}_{\text{nonsc}}$, характеризующий состояние поляризации нерассеянной компоненты, связан с интегральным вектором Стокса падающего пучка \mathbf{S}_{P-i} следующим образом:

$$\mathbf{S}_{\text{nonsc}} \approx \bar{\mathbf{M}} \mathbf{S}_{P-i}. \quad (5)$$

Выражения (3) и (5) будут служить основой в нашем дальнейшем анализе.



2.2. Свойства нерассеянной компоненты для эквидоменных слоев без локальных поляризационно-зависимых потерь

Пространственная зависимость матрицы Джонса пропускания произвольного эквидоменного слоя в приближении прямых лучей может быть представлена в виде:

$$\mathbf{T}(\boldsymbol{\rho}) = \mathbf{R}(-\varphi(\boldsymbol{\rho}))\mathbf{T}_{\text{dom}}\mathbf{R}(\varphi(\boldsymbol{\rho})), \quad (6)$$

где

$$\mathbf{R}(\alpha) = \begin{pmatrix} \cos \alpha & \sin \alpha \\ -\sin \alpha & \cos \alpha \end{pmatrix},$$

$\varphi(\boldsymbol{\rho})$ – угол азимутальной ориентации домена (структуры домена) и \mathbf{T}_{dom} – матрица пропускания домена-прототипа – эквидоменный слой может рассматриваться как мозаика, составленная из доменов, структура которых является копией структуры некоего домена-прототипа – в его собственной системе координат (матрица пропускания любого из доменов при $\varphi(\boldsymbol{\rho}) = 0$). Если свет, проходя через слой, не испытывает значительных поляризационно-зависимых потерь, матрица \mathbf{T}_{dom} может быть представлена в виде произведения унитарной матрицы и скаляра. Мы ограничимся рассмотрением ситуаций, когда такое представление возможно. Для определенности будем считать, что собственная система координат доменов выбрана так, чтобы в этой системе недиагональные элементы матрицы \mathbf{T}_{dom} отличались только знаком или были равны нулю. В этом случае эта матрица может быть записана в виде [17, 29]

$$\mathbf{T}_{\text{dom}} = Ke^{i\gamma} \begin{pmatrix} A + iC & B \\ -B & A - iC \end{pmatrix}, \quad (7)$$

где K – вещественный множитель, учитывающий поляризационно-независимые потери, γ – общий фазовый сдвиг и A , B и C – зависящие от структуры домена-прототипа действительные параметры, удовлетворяющие условию $A^2 + B^2 + C^2 = 1$. Если домены являются оптически нехиральными, $B = 0$. Подстановка (7) в (6) дает

$$\mathbf{T}(\boldsymbol{\rho}) = Ke^{i\gamma} \begin{pmatrix} A + iC \cos 2\varphi(\boldsymbol{\rho}) & B + iC \sin 2\varphi(\boldsymbol{\rho}) \\ -B + iC \sin 2\varphi(\boldsymbol{\rho}) & A - iC \cos 2\varphi(\boldsymbol{\rho}) \end{pmatrix}. \quad (8)$$

Для статистически вращательно-инвариантных слоев

$$\langle \cos 2\varphi(\boldsymbol{\rho}) \rangle_A = 0, \quad \langle \sin 2\varphi(\boldsymbol{\rho}) \rangle_A = 0. \quad (9)$$

Из (2), (8) и (9) следует, что

$$\bar{\mathbf{T}} = Ke^{i\gamma} \begin{pmatrix} A & B \\ -B & A \end{pmatrix}. \quad (10)$$

Подставляя (10) в (3), находим, что

$$\bar{\mathbf{M}} = K^2 \begin{pmatrix} A^2 + B^2 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & A^2 - B^2 & 2AB & 0 \\ 0 & -2AB & A^2 - B^2 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & A^2 + B^2 \end{pmatrix}. \quad (11)$$

Из (11) следует, что при падении на эквидоменный слой неполяризованного светового пучка нерассеянная компонента будет неполяризованной, а в случае падения линейно поляризованного пучка нерассеянная компонента будет линейно поляризованной. Элемент \bar{m}_{41} матрицы $\bar{\mathbf{M}} = [\bar{m}_{ij}]$ ($i, j = 1, 2, 3, 4$), отвечающий за круговой дихроизм, в (11) равен нулю при любых A , B и C . Следовательно, вращательно-инвариантные эквидоменные слои без локальных поляризационно-зависимых потерь в принципе не могут проявлять круговой дихроизм.

2.3. Обобщенная матрица Мюллера для нерассеянной компоненты в случае квазиэквидоменных слоев

Для квазиэквидоменных слоев матрицу Джонса локального пропускания в приближении прямых лучей по аналогии с (6) можно представить в виде

$$\mathbf{T}(\boldsymbol{\rho}) = \mathbf{R}(-\varphi(\boldsymbol{\rho}))\mathbf{T}_{\text{dd}}(\boldsymbol{\rho})\mathbf{R}(\varphi(\boldsymbol{\rho})), \quad (12)$$

где

$$\mathbf{T}_{\text{dd}}(\boldsymbol{\rho}) = Ke^{i\gamma(\boldsymbol{\rho})} \begin{pmatrix} A(\boldsymbol{\rho}) + iC(\boldsymbol{\rho}) & B(\boldsymbol{\rho}) \\ -B(\boldsymbol{\rho}) & A(\boldsymbol{\rho}) - iC(\boldsymbol{\rho}) \end{pmatrix}, \quad (13)$$

$A^2(\boldsymbol{\rho}) + B^2(\boldsymbol{\rho}) + C^2(\boldsymbol{\rho}) = 1$. В отличие от эквидоменного случая (6), в данном случае параметры A , B , и C , а также общий фазовый сдвиг γ могут быть функциями от $\boldsymbol{\rho}$. Из (2), (9), (12) и (13) следует, что для вращательно-инвариантных слоев

$$\bar{\mathbf{T}} = \langle \mathbf{T}_{\text{RI}}(\boldsymbol{\rho}) \rangle_A, \quad (14)$$

где

$$\mathbf{T}_{\text{RI}}(\boldsymbol{\rho}) = Ke^{i\gamma(\boldsymbol{\rho})} \begin{pmatrix} A(\boldsymbol{\rho}) & B(\boldsymbol{\rho}) \\ -B(\boldsymbol{\rho}) & A(\boldsymbol{\rho}) \end{pmatrix}$$

– вращательно-инвариантная часть матрицы $\mathbf{T}(\boldsymbol{\rho})$. Подстановка (14) в (3) дает

$$\bar{\mathbf{M}} = K^2 \begin{pmatrix} \bar{Y}_{AABB+} & 0 & 0 & -\bar{Y}_{ABBA-} \\ 0 & \bar{Y}_{AABB-} & \bar{Y}_{ABBA+} & 0 \\ 0 & -\bar{Y}_{ABBA+} & \bar{Y}_{AABB-} & 0 \\ -\bar{Y}_{ABBA-} & 0 & 0 & \bar{Y}_{AABB+} \end{pmatrix}, \quad (15)$$

где

$$\bar{Y}_{AABB+} = \gamma_{cA}^2 + \gamma_{cB}^2 + \gamma_{sA}^2 + \gamma_{sB}^2, \quad \bar{Y}_{ABBA-} = 2\gamma_{sA}\gamma_{cB} - 2\gamma_{sB}\gamma_{cA},$$

$$\bar{Y}_{ABBA+} = 2\gamma_{cA}\gamma_{cB} + 2\gamma_{sA}\gamma_{sB}, \quad \bar{Y}_{AABB-} = \gamma_{cA}^2 - \gamma_{cB}^2 + \gamma_{sA}^2 - \gamma_{sB}^2, \quad (16)$$



$$Y_{cA} = \langle \cos \tilde{\gamma}(\mathbf{p}) A(\mathbf{p}) \rangle_A, Y_{cB} = \langle \cos \tilde{\gamma}(\mathbf{p}) B(\mathbf{p}) \rangle_A, \quad (17)$$

$$Y_{sA} = \langle \sin \tilde{\gamma}(\mathbf{p}) A(\mathbf{p}) \rangle_A, Y_{sB} = \langle \sin \tilde{\gamma}(\mathbf{p}) B(\mathbf{p}) \rangle_A, \quad (18)$$

$\tilde{\gamma}(\mathbf{p}) = \gamma(\mathbf{p}) - \langle \gamma(\mathbf{p}) \rangle_A$ – компонента функции $\gamma(\mathbf{p})$, флуктуирующая относительно среднего по площади слоя значения $\langle \gamma(\mathbf{p}) \rangle_A$. Из (15) следует, что в общем случае при падении на квазиэквидоменный слой линейно поляризованного пучка нерассеянная компонента является эллиптически поляризованной, а при падении неполяризованного пучка – частично циркулярно поляризованной. Параметры \bar{Y}_{ABB+} , \bar{Y}_{ABBA-} , \bar{Y}_{ABBA+} и \bar{Y}_{ABB-} удовлетворяют соотношению $\bar{Y}_{ABB+}^2 = \bar{Y}_{ABB-}^2 + \bar{Y}_{ABBA+}^2 + \bar{Y}_{ABBA-}^2$, из чего следует, что нерассеянная компонента всегда является полностью поляризованной при линейно поляризованном падающем свете (это было использовано при обработке экспериментальных данных в разделе 1.3).

2.4. Необходимые условия проявления кругового дихроизма

Из (15) следует, что, как в случае линейно поляризованного, так и в случае циркулярно поляризованного падающего пучка, степень круговой поляризации нерассеянной компоненты $P_C \equiv S_{3\text{nonsc}}/S_{0\text{nonsc}}$ ($S_{j\text{nonsc}}$ ($j = 0, 1, 2, 3$) – элементы интегрального вектора Стокса S_{nonsc}) может быть выражена как

$$P_C = -\frac{\bar{Y}_{ABBA-}}{\bar{Y}_{ABB+}}. \quad (19)$$

Отсюда следует, что квазиэквидоменный слой не может проявлять круговой дихроизм, если

$$\bar{Y}_{ABBA-} = 0. \quad (20)$$

В этом случае при неполяризованном падающем свете нерассеянная компонента будет неполяризованной, а при линейно поляризованном падающем свете – линейно поляризованной. Согласно (16)–(18), условие (20) выполняется, если отсутствует вариация общего фазового сдвига по площади слоя ($\tilde{\gamma}(\mathbf{p}) = 0$ при всех \mathbf{p}). Также условие (20) выполняется, если слой является статистически нехиральным (слой как система доменов является энантиоморфным), поскольку в этом случае $Y_{cB} = 0$ и $Y_{sB} = 0$ (см. (16)–(18)). Таким образом, наличие вариации общего фазового сдвига и статистическая хиральность слоя являются необходимыми условиями для того, чтобы слой проявлял круговой дихроизм.

Реальные LCPRPA слои даже в случае отсутствия приложенного электрического поля могут иметь вариацию $\tilde{\gamma}(\mathbf{p})$. При планарных граничных условиях для холестерических ЖК может быть устойчивой не только строго планарная структура, но и конфокальная (focal conic) структура (структура с пространственной вариацией направления оси холестерической спирали) [34–36]. Для слоев с конфокальной структурой γ изменяется с \mathbf{p} , т. е. присутствует вариация $\tilde{\gamma}(\mathbf{p})$. Конфокальность структуры, скорее всего, и является причиной ненулевой эллиптичности нерассеянной компоненты на спектрах, приведенных на рис. 3, для случая $U = 0$ В.

2.5. Условия, при которых степень проявления кругового дихроизма является максимальной

Согласно (19), степень проявления кругового дихроизма является максимальной, если $|\bar{Y}_{ABBA-}| = \bar{Y}_{ABB+}$. Используя (16)–(18), можно выразить это условие одной из следующих систем уравнений в зависимости от знака \bar{Y}_{ABBA-} :

$$\begin{cases} Y_{sA} - Y_{cB} = 0, \\ Y_{cA} + Y_{sB} = 0, \end{cases} \quad (21)$$

если $\bar{Y}_{ABBA-} > 0$, или

$$\begin{cases} Y_{sA} - Y_{cB} = 0, \\ Y_{cA} + Y_{sB} = 0, \end{cases} \quad (22)$$

если $\bar{Y}_{ABBA-} < 0$. Знак \bar{Y}_{ABBA-} определяет, является ли поляризация нерассеянной компоненты правой или левой. Если $\bar{Y}_{ABBA-} > 0$, поляризация нерассеянной компоненты при линейно поляризованном или неполяризованном падающем свете левая (как в рассмотренных в разделах 1.3 и 1.4 экспериментальных примерах; см. рис. 3 и 4), а если $\bar{Y}_{ABBA-} < 0$, то поляризация правая. Таким образом, система (21) соответствует левой круговой поляризации; а система (22) – правой круговой поляризации. По всей видимости, в экспериментальном примере с ячейкой С4 при $U \approx 1.3$ В и $\lambda \approx 550$ нм мы столкнулись со случаем выполнения с хорошей точностью условий (21) (см. рис. 3, б).

Заключение

Таким образом, в данной работе показано, что мозаичные слои, состоящие из двулучепреломляющих доменов с разной азимутальной ориентацией, при отсутствии поляризационно-



зависимого отражения и поглощения проявляют круговой дихроизм только при одновременном выполнении следующих трех условий: (i) домены являются хиральными, (ii) слой как система доменов не является энантиоморфным, (iii) общий фазовый сдвиг варьируется по площади слоя. Найдены статистические структурные свойства слоя, при которых степень проявления кругового дихроизма является максимальной.

Благодарности

Автор выражает благодарность Д. А. Яковлеву за постановку задачи и полезные обсуждения.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проект № 18-52-16025/18).

Список литературы

1. *Arteaga O., Kahr B.* Characterization of homogenous depolarizing media based on Mueller matrix differential decomposition // *Opt. Lett.* 2013. Vol. 38, № 7. P. 1134–1136. DOI: 10.1364/OL.38.001134
2. *Arteaga O., Freudenthal J., Wang B., Kahr B.* Mueller matrix polarimetry with four photoelastic modulators : theory and calibration // *Appl. Opt.* 2012. Vol. 51, № 28. P. 6805–6817. DOI: 10.1364/AO.51.006805
3. *Arteaga O., Canillas A.* Measurement of the optical activity of anisotropic samples by transmission Mueller matrix ellipsometry // *EPJ Web Conf.* 2010. Vol. 5. P. 03001-p.1–03001-p.5. DOI: 10.1051/epjconf/20100503001
4. *Arteaga O.* Natural optical activity vs circular Bragg reflection studied by Mueller matrix ellipsometry // *Thin Solid Films.* 2016. Vol. 617. P. 14–19. DOI: 10.1016/j.tsf.2016.01.012
5. *Eguchi N., Goto H.* Lyotropic liquid crystal electrochemical polymerization of thiophene-based monomers : polymerization in cholesteric liquid crystal and columnar phase // *Soft.* 2017. Vol. 5, № 2. P. 9–19. DOI: 10.4236/soft.2017.52002
6. *Dong J., Kawabata K., Goto H.* Synthesis and characterization of a novel donor-acceptor-donor chiral inducer and application in electrochemical polymerization // *J. Mater. Chem. C.* 2015. Vol. 3, № 9. P. 2024–2032. DOI: 10.1039/C4TC02489C
7. *Vollick B., Kuo P.-Y., Alizadehgiashi M., Yan N., Kutmacheva E.* From structure to properties of composite films derived from cellulose nanocrystals // *ACS Omega.* 2017. Vol. 2, № 9. P. 5928–5934. DOI: 10.1021/acsomega.7b01119
8. *Cheng Z., Ye H., Cheng F., Li H., Ma Y., Zhang Q., Natan A., Mukhopadhyay A., Jiao Y., Li Y., Liu Y., Zhu H.* Tuning chiral nematic pitch of bioresourced photonic films via coupling organic acid hydrolysis // *Adv. Mater. Interfaces.* 2019. Vol. 6, № 7. P. 1802010-1–1802010-12. DOI: 10.1002/admi.201802010
9. *Mendoza-Galván A., Muñoz-Pineda E., Ribeiro S. J. L., Santos M. V., Järrendahl K., Arwin H.* Mueller matrix spectroscopic ellipsometry study of chiral nanocrystalline cellulose films // *J. Opt.* 2018. Vol. 20, № 2. P. 024001-1–024001-10. DOI: 10.1088/2040-8986/aa9e7d
10. *Heinzmann U., Bustamante C., Kim K.-J., Gea-Banacloche J., Scully H., Snyder P. A., Schatz P. N., Rowe E. M., Newman C. D., May J. H., Allen F. S., Bickel W. S., Hall K., Wells K. S., Samori B., Maestre M. F., Tinoco I., Jr., Nicolini C., Salzman G. C., Grace W. K., McGregor D. M., Gregg C. T., Johnson W. C., Jr., Keller D., Moore D. S., Polavarapu P. L., Stevens E. S.* Applications of circularly polarized radiation using synchrotron and ordinary sources. New York: Springer, 1985. 193 p.
11. *Coursault D., Zappone B., Coati A., Boulaoued A., Pelliser L., Limagne D., Boudet N., Ibrahim B. H., de Martino A., Alba M., Goldmann M., Garreau Y., Gallas B., Lacaze E.* Self-organized arrays of dislocations in thin smectic liquid crystal films // *Soft Matter.* 2016. Vol. 12, № 3. P. 678–688. DOI: 10.1039/C5SM02241J
12. *Синичкин Ю. П., Спивак А. В., Яковлев Д. А.* Простые параметрические представления поляризационно-оптических свойств двулучепреломляющих биотканей в рамках методов отражательной поляризационной спектроскопии // *Опт. и Спектр.* 2009. Т. 107, № 6. С. 922–933.
13. *Синичкин Ю. П., Спивак А. В., Яковлев Д. А.* Влияние анизотропии рассеяния и материальной оптической анизотропии слоев ориентированных волокон на состояние поляризации проходящего света // *Опт. и Спектр.* 2010. Т. 109, № 2. С. 197–205.
14. *Backman V., Gurjar R., Badizadegan K., Itzkan I., Dasari R. R., Perelman L. T., Feld M. S.* Polarized light scattering spectroscopy for quantitative measurement of epithelial cellular structures in situ // *IEEE J. Sel. Top. Quant. Electron.* 1999. Vol. 5, № 4. P. 1019–1026. DOI: 10.1109/2944.796325
15. *Tuchin V. V., Wang L. V., Zimnyakov D. A.* Optical polarization in biomedical applications. Berlin ; Heidelberg : Springer-Verlag, 2006. 281 p.
16. *Yakovlev D. D., Sherman M. M., Yakovlev D. A.* Electrically induced circular dichroism of multidomain layers of a long-pitch cholesteric liquid crystal // *Proc. SPIE.* 2014. Vol. 9031. P. 90311B-1–90311B-6. DOI: 10.1117/12.2052702
17. *Шерман М. М., Яковлев Д. А.* Особенности пропускания света монослоем одинаковых по структуре анизотропных доменов со случайной азимутальной ориентацией // *Опт. и Спектр.* 2010. Т. 109, № 2. С. 206–215.
18. *Яковлев Д. Д., Яковлев Д. А.* Картины рассеяния ортогонально поляризованных компонент света для статистически вращательно-инвариантных мозаичных двулучепреломляющих слоев // *Опт. и Спектр.* 2019. Т. 126, № 3. С. 324–335. DOI: 10.21883/OS.2019.03.47374.314-18
19. *Korotkova O., Wolf E.* Effects of linear non-image forming devices on spectra and on coherence and polarization properties of stochastic electromagnetic beams : part I : general theory // *J. Mod. Opt.* 2005. Vol. 52, № 18. P. 2659–2671. DOI: 10.1080/09500340500334038



20. Shirai T., Wolf E. Coherence and polarization of electromagnetic beams modulated by random phase screens and their changes on propagation in free space // J. Opt. Soc. Am. A. 2004. Vol. 21, № 10. P. 1907–1916. DOI: 10.1364/JOSAA.21.001907
21. Ostrovsky A. S., Hernández García E. Modulation of spatial coherence of optical field by means of liquid crystal light modulator // Rev. Mex. Fis. 2005. Vol. 51, № 5. P. 442–446.
22. Savenkov S. N., Grygoruk V. I., Muttiah R. S., Yushtin K. E., Oberemok Y., Yakubchak V. V. Effective dichroism in forward scattering by inhomogeneous birefringent medium // J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer. 2009. Vol. 110, № 1–2. P. 30–42. DOI: 10.1016/j.jqsrt.2008.09.002
23. Luis A. Spatial-angular Mueller matrices // Opt. Commun. 2006. Vol. 263, № 2. P. 141–146. DOI: 10.1016/j.optcom.2006.01.045
24. Tervo J., Turunen J. Paraxial-domain diffractive elements with 100% efficiency based on polarization gratings // Opt. Lett. 2000. Vol. 25, № 11. P. 785–786. DOI: 10.1364/OL.25.000785
25. Nikolova L., Ramamujam P. S. Polarization Holography. Cambridge : Cambridge University Press, 2009. 248 p.
26. Mi X.-D., Yang D.-K. Capillary filling of nematic liquid crystals // Phys. Rev. E. 1998. Vol. 58, № 2. P. 1992–2000. DOI: 10.1063/1.333796
27. Yokoyama H., Kobayashi S., Kamei H. Role of surface adsorption in the surface-induced alignment of nematic liquid crystals on evaporated SiO films // J. Appl. Phys. 1984. Vol. 56, № 10. P. 2645–2654. DOI: 10.1063/1.333796
28. Yakovlev D. D. Characterization of and correcting for imperfections of compound zero-order waveplates for spectral polarization measurements // Proc. of SPIE. 2014. Vol. 9031. P. 90311C-1–90311C-5. DOI: 10.1117/12.2052702
29. Yakovlev D. A., Chigrinov V. G., Kwok H.-S. Modeling and optimization of LCD optical performance. Chichester : J. Wiley & Sons, 2015. 554 p.
30. Desimpel C., Neyts K., Olivero D., Oldano C., de Boer D. K. G., Cortie R. Optical transmission model for thin two-dimensional layers // Mol. Cryst. Liq. Cryst. 2004. Vol. 422, № 1. P. 185/[455]–195/[465]. DOI: 10.1080/15421400490502526
31. Korotkova O., Wolf E. Generalized Stokes parameters of random electromagnetic beams // Opt. Lett. 2005. Vol. 30, № 2. P. 198–200. DOI: 10.1364/OL.30.000198
32. Korotkova O. Conservation laws for stochastic electromagnetic free fields // J. Opt. A : Pure Appl. Opt. 2008. Vol. 10, № 2. P. 025003-1–025003-5. DOI: 10.1088/1464-4258/10/2/025003
33. Korotkova O., Hoover B. G., Gamiz V. L., Wolf E. Coherence and polarization properties of far fields generated by quasi-homogeneous planar electromagnetic sources // J. Opt. Soc. Am. A. 2005. Vol. 22, № 11. P. 2547–2556. DOI: 10.1364/JOSAA.22.002547
34. Yang D. K., Doane J. W., Yaniv Z., Glasser J. Cholesteric reflective display : drive scheme and contrast // Appl. Phys. Lett. 1994. Vol. 64, № 15. P. 1905–1907. DOI: 10.1063/1.111738
35. Kim K.-H., Jin H.-J., Park K.-H., Lee J.-H., Kim J. C., Yoon T.-H. Long-pitch cholesteric liquid crystal cell for switchable achromatic reflection // Opt. Express. 2010. Vol. 18, № 16. P. 16745–16750. DOI: 10.1364/OE.18.016745
36. Yabe Y., Seo D.-Sh. Hysteresis behaviour of the nematic-cholesteric phase transition for liquid crystals on polyimide films without use of the rubbing technique // Liq. Cryst. 1994. Vol. 17, № 6. P. 847–854. DOI: 10.1080/02678299408035477

Образец для цитирования:

Яковлев Д. Д. Особенности структуры статистически вращательно-инвариантных мозаичных двулучепреломляющих слоев, проявляющих круговой дихроизм // Изв. Сарат. ун-та. Нов. сер. Сер. Физика. 2019. Т. 19, вып. 3. С. 188–200. DOI: <https://doi.org/10.18500/1817-3020-2019-19-3-188-200>

Structural Features of Statistically Rotationally Invariant Mosaic Birefringent Layers That Show Circular Dichroism

D. D. Yakovlev

Dmitry D. Yakovlev, <https://orcid.org/0000-0002-3417-1946>, Saratov State University, 83 Astrakhanskaya St., Saratov 410012, Russia, ddya-optics@mail.ru

Background and Objectives: Nonabsorbing cholesteric liquid crystalline layers with a fine-domain random planar structure and with the cholesteric pitch being much larger than the wavelength of the incident light have been recently demonstrated to exhibit electrically-induced circular dichroism due to scattering. Experimental conditions under which this effect was observed allow consideration of a problem of scattering of light on such a liquid-crystalline layer as a problem of diffraction of a light beam on a mosaic of chiral domains with different

azimuthal orientation. The main goal of this paper is to find out what structural features mosaic birefringent layers must have in order to show the circular dichroism. **Materials and Methods:** The theoretical approach is based on the two-point generalized Mueller matrix method and uses the phase screen approximation. As an illustration, experimental data on the circular dichroism of fine-domain layers of long-pitch cholesteric liquid crystals are presented. **Results:** It is shown that, in the absence of polarization-dependent reflection and absorption, a mosaic layer composed of birefringent domains with different azimuthal orientation can show the circular dichroism only when the following conditions are satisfied: (i) the domains are chiral, (ii) the layer, considered as a system of domains, is not enantiomorphous, (iii) the common absolute phase shift varies across the layer area. Structural conditions under which the nonscattered component is completely circularly polarized when the incident beam is linearly polarized or unpolarized are found. **Conclusion:** We have determined sufficient structural conditions for observation of the circular dichroism on mosaic birefringent layers.



Keywords: inhomogeneous birefringent layers, circular dichroism, generalized Mueller matrices, phase screen approximation, cholesteric liquid crystals, random planar alignment.

Acknowledgements: *The author is grateful to Dmitry A. Yakovlev for setting up the problem and helpful discussion.*

This work was supported by the Russian Foundation for Basic Research (project No. 18-52-16025/18).

References

- Artega O., Kahr B. Characterization of homogenous depolarizing media based on Mueller matrix differential decomposition. *Opt. Lett.*, 2013, vol. 38, no. 7, pp. 1134–1136. DOI: 10.1364/OL.38.001134
- Artega O., Freudenthal J., Wang B., Kahr B. Mueller matrix polarimetry with four photoelastic modulators: theory and calibration. *Appl. Opt.*, 2012, vol. 51, no. 28, pp. 6805–6817. DOI: 10.1364/AO.51.006805
- Artega O., Canillas A. Measurement of the optical activity of anisotropic samples by transmission Mueller matrix Ellipsometry. *EPJ Web Conf.*, 2010, vol. 5, pp. 03001-p.1–03001-p.5. DOI: 10.1051/epjconf/20100503001
- Artega O. Natural optical activity vs circular Bragg reflection studied by mueller matrix ellipsometry. *Thin Solid Films*, 2016, vol. 617, pp. 14–19. DOI: 10.1016/j.tsf.2016.01.012
- Eguchi N., Goto H. Lyotropic liquid crystal electrochemical polymerization of thiophene-based monomers: polymerization in cholesteric liquid crystal and columnar phase. *Soft*, 2017, vol. 5, no. 2, pp. 9–19. DOI: 10.4236/soft.2017.52002
- Dong J., Kawabata K., Goto H. Synthesis and characterization of a novel donor-acceptor-donor chiral inducer and application in electrochemical polymerization. *J. Mater. Chem. C*, 2015, vol. 3, no. 9, pp. 2024–2032. DOI: 10.1039/C4TC02489C
- Vollick B., Kuo P.-Y., Alizadehgiashi M., Yan N., Kumacheva E. From structure to properties of composite films derived from cellulose manocrystals. *ACS Omega*, 2017, vol. 2, no. 9, pp. 5928–5934. DOI: 10.1021/acsomega.7b01119
- Cheng Z., Ye H., Cheng F., Li H., Ma Y., Zhang Q., Natan A., Mukhopadhyay A., Jiao Y., Li Y., Liu Y., Zhu H. Tuning chiral nematic pitch of bioinspired photonic films via coupling organic acid hydrolysis. *Adv. Mater. Interfaces*, 2019, vol. 6, no. 7, pp. 1802010-1–1802010-12. DOI: 10.1002/admi.201802010
- Mendoza-Galván A., Muñoz-Pineda E., Ribeiro S. J. L., Santos M. V., Järrendahl K., Arwin H. Mueller matrix spectroscopic ellipsometry study of chiral nanocrystalline cellulose films. *J. Opt.*, 2018, vol. 20, no. 2, pp. 024001-1–024001-10. DOI: 10.1088/2040-8986/aa9e7d
- Heinzmann U., Bustamante C., Kim K.-J., Gea-Banacloche J., Scully H., Snyder P. A., Schatz P. N., Rowe E. M., Newman C. D., May J. H., Allen F. S., Bickel W. S., Hall K., Wells K. S., Samori B., Maestre M. F., Tinoco I., Jr., Nicolini C., Salzman G. C., Grace W. K., McGregor D. M., Gregg C. T., Johnson W. C., Jr., Keller D., Moore D. S., Polavarapu P. L., Stevens E. S. *Applications of circularly polarized radiation using synchrotron and ordinary sources*. New York, Springer, 1985. 193 p.
- Coursault D., Zappone B., Coati A., Boulaoued A., Pelliser L., Limagne D., Boudet N., Ibrahim B. H., de Martino A., Alba M., Goldmann M., Garreau Y., Gallas B., Lacaze E. Self-organized arrays of dislocations in thin smectic liquid crystal films. *Soft Matter*, 2016, vol. 12, no. 3, pp. 678–688. DOI: 10.1039/C5SM02241J
- Sinichkin Yu. P., Spivak A. V., Yakovlev D. A. Simple parametric representations of the polarization optical properties of birefringent biological tissues in reflection polarization spectroscopy. *Opt. Spectrosc.*, 2009, vol. 107, no. 6, pp. 873–883. DOI: 10.1134/S0030400X09120078
- Sinichkin Yu. P., Spivak A. V., Yakovlev D. A. Effect of scattering anisotropy and material optical anisotropy of oriented fiber layers on the transmitted light polarization. *Opt. Spectrosc.*, 2010, vol. 109, no. 2, pp. 169–177. DOI: 10.1134/S0030400X10080047
- Backman V., Gurjar R., Badizadegan K., Itzkan I., Dasari R. R., Perelman L. T., Feld M. S. Polarized light scattering spectroscopy for quantitative measurement of epithelial cellular structures in situ. *IEEE J. Sel. Top. Quant. Electron.*, 1999, vol. 5, no. 4, pp. 1019–1026. DOI: 10.1109/2944.796325
- Tuchin V. V., Wang L. V., Zimnyakov D. A. *Optical polarization in biomedical applications*. Berlin, Heidelberg, Springer-Verlag, 2006. 281 p.
- Yakovlev D. D., Sherman M. M., Yakovlev D. A. Electrically induced circular dichroism of multidomain layers of a long-pitch cholesteric liquid crystal. *Proc. SPIE*, 2014, vol. 9031, pp. 90311B-1–90311B-6. DOI: 10.1117/12.2052702
- Sherman M. M., Yakovlev D. A. Features of Light Transmission through Monolayer of Structurally Identical Anisotropic Domains with Random Azimuthal Orientation. *Opt. Spectrosc.*, 2010, vol. 109, no. 2, pp. 206–215. DOI: 10.1134/S0030400X10080059
- Yakovlev D. D., Yakovlev D. A. Scattering patterns of orthogonally polarized light components for statistically rotationally invariant mosaic birefringent layers. *Opt. Spectrosc.*, 2019, vol. 126, no. 3, pp. 245–256.
- Korotkova O., Wolf E. Effects of linear non-image forming devices on spectra and on coherence and polarization properties of stochastic electromagnetic beams: part I: general theory. *J. Mod. Opt.*, 2005, vol. 52, no. 18, pp. 2659–2671. DOI: 10.1080/09500340500334038
- Shirai T., Wolf E. Coherence and polarization of electromagnetic beams modulated by random phase screens and their changes on propagation in free space. *J. Opt. Soc. Am. A*, 2004, vol. 21, no. 10, pp. 1907–1916. DOI: 10.1364/JOSAA.21.001907



21. Ostrovsky A. S., Hernández García E. Modulation of spatial coherence of optical field by means of liquid crystal light modulator. *Rev. Mex. Fis.*, 2005, vol. 51, no. 5, pp. 442–446.
22. Savenkov S. N., Grygoruk V. I., Muttiah R. S., Yush-tin K. E., Oberemok Y., Yakubchak V. V. Effective di-chroism in forward scattering by inhomogeneous bire-fringent medium. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, 2009, vol. 110, no. 1–2, pp. 30–42. DOI: 10.1016/j.jqsrt.2008.09.002
23. Luis A. Spatial-angular Mueller matrices. *Opt. Commun.*, 2006, vol. 263, no. 2, pp. 141–146. DOI: 10.1016/j.optcom.2006.01.045
24. Tervo J., Turunen J. Paraxial-domain diffractive elements with 100% efficiency based on polarization gratings. *Opt. Lett.* 2000, vol. 25, no. 11, pp. 785–786. DOI: 10.1364/OL.25.000785
25. Nikolova L., Ramanujam P. S. *Polarization Hologra-phy*. Cambridge, Cambridge University Press, 2009. 248 p.
26. Mi X.-D., Yang D.-K. Capillary filling of nematic liquid crystals. *Phys. Rev. E*, 1998, vol. 58, no. 2, pp. 1992–2000. DOI: 10.1063/1.333796
27. Yokoyama H., Kobayashi S., Kamei H. Role of sur-face adsorption in the surface-induced alignment of nematic liquid crystals on evaporated SiO films. *J. Appl. Phys.*, 1984, vol. 56, no. 10, pp. 2645–2654. DOI: 10.1063/1.333796
28. Yakovlev D. D. Characterization of and correcting for imperfections of compound zero-order waveplates for spectral polarization measurements. *Proc. of SPIE*, 2014, vol. 9031, pp. 90311C-1–90311C-5. DOI: 10.1117/12.2052702
29. Yakovlev D. A., Chigrinov V. G., Kwok H.-S. *Modeling and optimization of LCD optical performance*. Chiches-ter, J. Wiley & Sons. 2015. 554 p.
30. Desimpel C., Neyts K., Olivero D., Oldano C., de Boer D. K. G., Cortie R. Optical transmission model for thin two-dimensional layers. *Mol. Cryst. Liq. Cryst.*, 2004, vol. 422, no. 1, pp. 185/[455]–195/[465]. DOI: 10.1080/15421400490502526
31. Korotkova O., Wolf E. Generalized Stokes parameters of random electromagnetic beams. *Opt. Lett.*, 2005, vol. 30, no. 2, pp. 198–200. DOI: 10.1364/OL.30.000198
32. Korotkova O. Conservation laws for stochastic electro-magnetic free fields. *J. Opt. A: Pure Appl. Opt.*, 2008, vol. 10, no. 2, pp. 025003-1– 025003-5. DOI: 10.1088/1464-4258/10/2/025003
33. Korotkova O., Hoover B. G., Gamiz V. L., Wolf E. Coher-ence and polarization properties of far fields generated by quasi-homogeneous planar electromagnetic sources. *J. Opt. Soc. Am. A*, 2005, vol. 22, no. 11, pp. 2547–2556. DOI: 10.1364/JOSAA.22.002547
34. Yang D. K., Doane J. W., Yaniv Z., Glasser J. Cholesteric reflective display: drive scheme and contrast. *Appl. Phys. Lett.*, 1994, vol. 64, no. 15, pp. 1905–1907. DOI: 10.1063/1.111738
35. Kim K.-H., Jin H.-J., Park K.-H., Lee J.-H., Kim J. C., Yoon T.-H. Long-pitch cholesteric liquid crystal cell for switchable achromatic reflection. *Opt. Express*, 2010, vol. 18, no. 16, pp. 16745–16750. DOI: 10.1364/OE.18.016745
36. Yabe Y., Seo D.-Sh. Hysteresis behaviour of the ne-matic-cholesteric phase transition for liquid crystals on polyimide films without use of the rubbing technique. *Liq. Cryst.*, 1994, vol. 17, no. 6, pp. 847–854. DOI: 10.1080/02678299408035477

Cite this article as:

Yakovlev D. D. Structural Features of Statistically Rotationally Invariant Mosaic Birefringent Layers That Show Circular Dichroism. *Izv. Saratov Univ. (N. S.), Ser. Physics*, 2019, vol. 19, iss. 3, pp. 188–200 (in Russian). DOI: <https://doi.org/10.18500/1817-3020-2019-19-3-188-200>
