Плотность фотонных состояний в холестерическом фотонном кристалле

 $\Pi.\,B.\,\mathcal{A}$ олганов $^{1)},\,B.\,K.\,\mathcal{A}$ олганов Институт физики твердого тела РАН, 142432 Черноголовка, Россия

Поступила в редакцию 28 июня 2018 г.

Определена плотность фотонных состояний в холестерическом фотонном кристалле в области фотонной зоны из измерений спектров поляризованной люминесценции. При определении плотности состояний учитывались ориентационное упорядочение дипольного момента перехода в люминесценции и эллиптичность собственных световых мод в фотонном кристалле. Максимумы в спектре плотности состояний с двух сторон фотонной зоны связаны с выталкиванием состояний из зоны. Внутри фотонной зоны групповая скорость света превышает скорость света в вакууме.

DOI: 10.1134/S0370274X18150043

В фотонных кристаллах пространственная модуляция показателя преломления с периодом, сопоставимым с длинами волн света, приводит к образованию фотонной запрещенной зоны и нетривиальным особенностям распространения света вне фотонной зоны [1-4]. В фотонных кристаллах обнаружены интересные и нетривиальные особенности спонтанного излучения света, лазерная генерация с длиной волны в области фотонной запрещенной зоны. Интенсивность люминесценции определяется не только дипольным моментом перехода атомов или молекул, но и структурой собственных мод света в периодической структуре. Благодаря своим уникальным оптическим свойствам фотонные кристаллы привлекают большое внимание как с научной, так и с технологической точки зрения [1–6]. Среди многообразия фотонных кристаллов жидкокристаллические фотонные кристаллы являются предметом особого интереса из-за их необычной структуры и оптических свойств [1,6].

Уникальной особенностью жидкокристаллических фотонных кристаллов является сильная зависимость фотонных свойств от поляризации света. Холестерические жидкие кристаллы образованы вытянутыми молекулами, длинные оси которых периодически поворачиваются в пространстве, образуя одномерную геликоидальную структуру [1]. Среднее значение показателя преломления n постоянно вдоль оси геликоида, однако направления обыкновенного n_{\perp} и необыкновенного n_{\parallel} показателей преломления периодически изменяют ориентацию в пространстве. Направление закрутки спирали

зависит от знака хиральности жидкого кристалла. Для света, распространяющегося вдоль оси спирали, запрещенная фотонная зона образуется для света только одной (собственной) круговой поляризации. В спектральной области фотонной зоны наблюдается селективное отражение света. Положение середины фотонной зоны λ_0 и ее спектральная ширина $\Delta \lambda$ определяются простыми выражениями $\lambda_0 = np, \ \Delta\lambda = \lambda_0\delta, \ \delta = (n_{\parallel}^2 - n_{\perp}^2)/(n_{\parallel}^2 + n_{\perp}^2), \ p - n_{\parallel}^2$ шаг спирали. Свет другой (несобственной) круговой поляризации свободно распространяется в среде и запрещенная фотонная зона в энергетическом спектре отсутствует. Использование жидкокристаллических фотонных кристаллов как сред для создания перестраиваемых лазеров - одно из перспективных приложений холестерических фотонных структур. Лазерная генерация в холестериках была открыта более 30 лет назад Ильчишиным с соавторами [7] и впоследствии интенсивно исследовалась [8-15]. Насколько нам известно, первые исследования влияния структуры холестерического жидкого кристалла на спектры люминесценции были проведены Коппом и соавторами [9]. Они наблюдали подавление люминесценции внутри фотонной зоны и усиление вблизи границ зоны. В дальнейшем люминесценция в холестериках активно изучалась различными группами [13, 16-22]. При наклонном падении света по отношению к оси спирали холестерика максимумы люминесценции сдвигаются в коротковолновую сторону [13, 19, 20]. В спектрах люминесценции наблюдались и теоретически объяснены осцилляции интенсивности с двух сторон фотонной зоны [16, 17, 19]. Спектральное положение

¹⁾e-mail: pauldol@issp.ac.ru

максимумов люминесценции находится в хорошем согласии с теорией.

Одной из основных характеристик фотонных кристаллов, определяющих их оптические свойства, является плотность фотонных состояний, т.е. число световых мод на единицу частоты. В периодических средах с сильной пространственной дисперсией, в частности, в фотонных кристаллах, знание плотности фотонных состояний позволяет характеризовать важные оптические свойства. Недавно был предложен метод определения плотности фотонных состояний, основанный на измерении вращения плоскости поляризации света [23]. Этим методом была определена плотность состояний вблизи фотонной зоны. Однако плотность состояний внутри зоны в этих измерениях определить не удалось. В данной работе плотность фотонных состояний в холестерическом фотонном кристалле определена как в окрестности, так и внутри фотонной запрещенной зоны из спектров поляризованной люминесценции.

Измерения проведены на холестерическом жидком кристалле, образованном смесью хирального CB15 (Synthon Chemicals, 29.2% вес.) и нематического жидкого кристалла Н-22 (бутил-п-(пгексилоксифенилоксикарбонил)-фенилкарбонат, допированном красителем вес.), диэтиламин-4'-нитростильбен (0.2% Bec).Смесь обладает холестерической фазой при комнатной температуре. Фотонная запрещенная зона присутствует для света правой круговой поляризации. Вещество помещалось в ячейку толщиной около 5.4 мкм, внутренние поверхности которой были покрыты слоем полиимида и натерты в одном направлении для создания планарных граничных условий. Ось холестерической спирали ориентирована перпендикулярно плоскости ячейки. Спектры пропускания измерялись в направлении параллельно оси спирали. Люминесценция возбуждалась лазером KLM-473-20 (ФТИ-Оптроник) с длиной волны 473 нм. Возбуждение осуществлялось светом несобственной круговой поляризации. Регистрировались спектры люминесценции в право- и левополяризованном свете. Качество структуры контролировалось с помощью наблюдений с использованием оптического микроскопа. Спектры регистрировались спектрометром Avaspec-2048 (Avantes).

На рисунке 1а сплошной кривой представлен экспериментальный спектр пропускания холестерика, измеренный в свете правой (собственной) круговой поляризации. В спектре присутствует интенсивная полоса, связанная с фотонной зоной, и боковые осцилляции. Для холестерического жидкого кристалла

комплексная амплитуда пропускания $t(\omega)$ определена из аналитического решения уравнений Максвелла [24,25]

$$t(\omega) = \frac{\tau \beta_3 e^{i\tau L/2}}{\tau \beta_3 \cos \beta_3 L + i(\beta_3^2 + (\tau^2/4) - \kappa^2) \sin \beta_3 L}, \quad (1)$$

здесь $\beta_3 = \kappa \sqrt{1 + (\tau/2\kappa)^2 - [(\tau/\kappa)^2 + \delta^2]^{1/2}}$, $\kappa = \omega n/c$, $\omega = 2\pi c/\lambda$, $\tau = 4\pi/p$. Выражение для интенсивности пропускания $T = |t|^2$ может быть записано в компактном виде [25]

$$T(\omega) = \frac{4(\beta_3/\kappa)^2}{4(\beta_3/\kappa)^2 + \delta^2 \sin^2 \beta_3 L}.$$
 (2)

Расчетный спектр пропускания, вычисленный по формуле (2), показан на рис. 1а пунктирной кривой. Подгоночными параметрами при расчете служили величины $p, n, u \delta$. Согласие экспериментального и расчетного спектра хорошее, что свидетельствует о высоком качестве структуры [24-28]. Вертикальными пунктирными линиями показаны границы фотонной зоны, $\nu_{1,2}=\nu_0/(1\pm\delta)^{1/2},\, \nu=1/\lambda,\, \nu_0=1/\lambda_0.$ Параметры p, n, δ , определенные из спектра пропускания, будут в дальнейшем использоваться для анализа спектров люминесценции. Как и в случае спектра пропускания, фотонный кристалл трансформирует спектр люминесценции собственной (в нашем случае правой) круговой поляризации I_R . Спектр собственной круговой поляризации, нормированный на спектр левой круговой поляризации I_R/I_L , приведен на рис. 1b. Интенсивность люминесценции уменьшается внутри фотонной зоны и увеличивается вблизи границ зоны.

Основные особенности спектров люминесценции определяются плотностью фотонных состояний $\rho=d\omega/dk$. В среде с постоянным показателем преломления n плотность состояний не зависит от длины волны и равна n/c. В среде с периодической модуляцией показателя преломления плотность состояний может быть вычислена аналитически, если известны действительная X и мнимая Y часть комплексного коэффициента пропускания [12, 16, 29, 31–34]

$$\rho = \frac{1}{L} \frac{Y'X - X'Y}{X^2 + Y^2},\tag{3}$$

L – толщина образца, штрих обозначает дифференцирование по $\omega.$

В соответствии с "Золотым правилом" Ферми [35] интенсивность люминесценции пропорциональна плотности фотонных состояний и квадрату дипольного момента перехода. Удобно использовать плотность состояний, нормированную на плотность со-

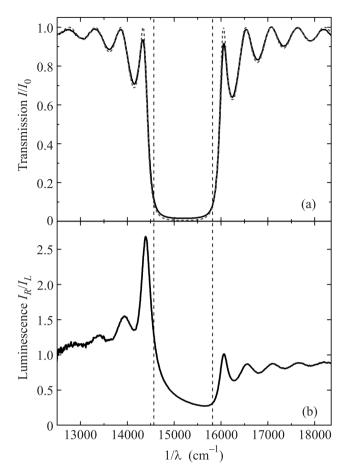


Рис. 1. (а) — Экспериментальный спектр пропускания холестерического фотонного кристалла (сплошная кривая) и расчетный спектр (пунктирная кривая). Экспериментальный спектр нормирован на спектр источника света. В спектре присутствует интенсивная полоса, связанная с фотонной зоной, и боковые осцилляции. Теоретический спектр пропускания рассчитан с параметрами $p=419.25\,\mathrm{Hm},\ n=1.574,\ n=0.082.$ (b) — Относительная интенсивность люминесценции правой и левой круговой поляризации I_R/I_L . Вертикальные пунктирные линии — границы фотонной запрещенной зоны. Толщина образца около $5.4\,\mathrm{mkm}.\ T=25\,^{\circ}\mathrm{C}$

стояний в отсутствие фотонной зоны $\rho_0=n/c$. Относительная интенсивность люминесценции

$$I_R/I_L = \frac{\rho_1}{\rho_2} \frac{\langle |d_1|^2 \rangle}{\langle |d_2|^2 \rangle} \tag{4}$$

 $\rho_1=\rho$ – плотность состояний для света собственной круговой поляризации, ρ_2 – плотность состояний для несобственной поляризации. Отношение ρ_2/ρ_0 очень близко к единице [16]. $\langle |d_1|^2 \rangle$ и $\langle |d_2|^2 \rangle$ – средние значения квадрата компоненты дипольного момента перехода вдоль вектора электрического поля световой волны для собственной и несобственной поляриза-

ции. Они зависят от длины волны света и от ориентационного параметра порядка $S=1/2(3\langle\cos^2\theta\rangle-1)$, где θ — угол ориентации длинных осей молекул относительно среднего направления (директора жидкого кристалла).

Для расчета плотности состояний из спектров люминесценции мы используем подход, учитывающий поляризационные свойства собственных световых мод [16]. Среднее значение квадрата компоненты дипольного момента перехода вдоль вектора электрического поля световой волны

$$\langle |d_{1,2}|^2 \rangle = \frac{2}{3} \frac{f_{1,2}^2 - \frac{1}{2}}{f_{1,2}^2 + 1} S + 1/3,$$
 (5)

где f_1 и f_2 — эллиптичность собственных мод света [16]

$$f_{1,2} = \frac{1 - \delta - (\beta/\kappa)^2 - (\tau/2\kappa)^2}{\beta\tau/\kappa^2}.$$
 (6)

В выражении (6) для света с собственной поляризацией $\beta=\beta_3$, для света с несобственной поляризацией $\beta=\beta_2=\kappa\sqrt{1+(\tau/2\kappa)^2+[(\tau/\kappa)^2+\delta^2]^{1/2}}$. Внутри фотонной зоны f_1 – комплексная величина, что связано с затуханием световой волны. В этой спектральной области в (6) вместо f_1 нужно использовать $\mathrm{Im}(f_1)$ [16]. Для света с несобственной круговой поляризацией f_2 принимает действительные значения во всем диапазоне длин волн.

Параметры p, δ, n , позволяющие определить $f_{1,2}$, были получены из сопоставления экспериментального и расчетного спектров пропускания (рис. 1). Эксперименты по определению плотности состояний вне фотонной зоны [23] показывают, что интенсивность двух основных пиков вблизи границ зоны хорошо совпадает с расчетной. Это позволяет оценить параметр порядка S, сравнивая относительные величины интенсивности люминесценции двух основных пиков вблизи границ фотонной зоны и расчетные значения. Теоретические значения интенсивности длинноволнового и коротковолнового максимумов спектра рассчитаны с использованием (1)–(6) при различных значениях S и с определенными из спектра пропускания параметрами p, δ, n . Наилучшее согласие между экспериментальным и теоретическим значением получено при $S \approx 0.55$. Величина параметра порядка типична для красителей аналогичного типа в нематических жидких кристаллах.

При вычислении плотности состояний из интенсивности люминесценции I_R/I_L учитывалось отражение от поверхностей кюветы, приводящее к смене знака круговой поляризации [16]. Плотность фотонных состояний ρ/ρ_0 определена из спектра люминес-

ценции I_R/I_L (рис. 1) и рассчитанных величин $|d_{1,2}|^2$ (5)

$$\frac{\rho}{\rho_0} = \frac{I_R}{I_L} \frac{\langle |d_2|^2 \rangle}{\langle |d_1|^2 \rangle}.$$
 (7)

Определенная таким образом плотность фотонных состояний приведена на рис. 2. Фотонные состо-

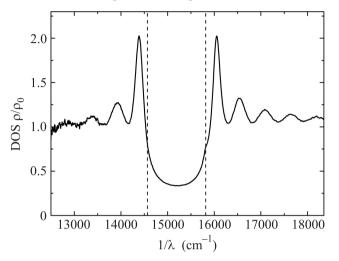


Рис. 2. Плотность фотонных состояний ρ/ρ_0 , определенная из спектров люминесценции. $\rho_0=n/c$ – плотность состояний в отсутствие фотонной зоны. Вертикальные пунктирные линии – границы фотонной запрещенной зоны. Максимумы плотности состояний у коротковолнового и длинноволнового края фотонной зоны близки по величине

яния выталкиваются из фотонной зоны и образуют максимумы вне зоны. В образцах конечной толщины запрещенная зона трансформируется в квазизапрещенную зону. Плотность состояний в ней остается конечной, однако существенно меньшей, чем в материале без фотонной зоны ρ_0 . Вблизи границ фотонной зоны находятся два главных максимума плотности состояний. Максимумы плотности состояний расположены на тех же длинах волн, что и максимумы в спектрах люминесценции. Существенное различие в относительных интенсивностях максимумов люминесценции (рис. 1b) и плотности состояний (рис. 2) возникает из-за поляризационных характеристик собственных световых мод и ориентационного упорядочения в жидком кристалле молекулярных дипольных моментов переходов в люминесценции.

Групповая скорость света — величина, обратная плотности состояний $v_{\rm gr}=1/\rho$. Спектральная зависимость групповой скорости света показана на рис. 3. Внутри зоны групповая скорость света существенно увеличивается и может превышать скорость света c в вакууме. В середине зоны $v_{\rm gr}\approx 1.8c$. Следует подчеркнуть, что это не нарушает принцип причинности

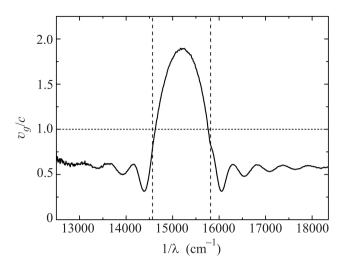


Рис. 3. Групповая скорость света v_g , нормированная на скорость света в вакууме c. Вблизи границ фотонной зоны спектральная зависимость групповой скорости света осциллирует. В середине зоны групповая скорость света превышает скорость света в вакууме (горизонтальная пунктирная линия)

Эйнштейна, поскольку принцип причинности не накладывает ограничений на групповую скорость света и групповая скорость может превышать скорость света в вакууме [23, 36].

В холестерическом фотонном кристалле определена плотность фотонных состояний в области фотонной зоны и вне зоны из спектров поляризованной люминесценции. Фотонные состояния выталкиваются из зоны, что приводит к уменьшению ρ/ρ_0 в зоне и к образованию максимумов вблизи границ зоны. Вблизи длинноволновой границы фотонной зоны относительная интенсивность люминесценции существенно увеличивается по сравнению с плотностью фотонных состояний, что связано с поляризационными характеристиками фотонных мод.

Работа выполнена при поддержке РФФИ, грант # 17-02-00246.

- 1. P.G. de Gennes and J. Prost, *The Physics of Liquid Crystals*, 2-nd ed., Clarendon Press, Oxford (1995).
- S. Chandrasekhar, Liquid Crystals, Cambridge University Press, Cambridge (1977).
- 3. K. Sakoda, Optical Properties of Photonic Crystals, Springer, Berlin (2001).
- S. G. Johnson and J. Joannopoulos, Photonic Crystals: The Road from Theory to Practice, Kluwer, Boston (2002).
- E. I. Kats, ZhETF 59, 1854 (1970) [Sov. Phys. JETP 32, 1004 (1971)].

- D. C. Wright and N. D. Mermin, Rev. Mod. Phys. 61, 385 (1989).
- I. P. Il'chishin, E. A. Tikhonov, V. G. Tishchenko, and M. T. Shpak, Pis'ma ZhETF 32, 27 (1980) [JETP Lett. 32, 24 (1980)].
- I.P. Il'chishin and A.Yu. Vakhnin, Mol. Cryst. Liq. Cryst. 265, 687 (1995).
- V. I. Kopp, B. Fan, H. K. M. Vithana, and A. Z. Genack, Opt. Lett. 23, 1707 (1998).
- A. D. Ford, S. M. Morris, and H. J. Coles, Mat. Today 9, 36 (2006).
- 11. S. Furumi and Y. Sakka, Adv. Mater. 18, 775 (2006).
- L. M. Blinov, Pis'ma v ZhETF 90, 184 (2009) [JETP Lett. 90, 166 (2009)].
- C.-R. Lee, S.-H. Lin, H.-C. Yeh, T.-D. Ji, K.-L. Lin, T.-S. Mo, C.-T. Kuo, K.-Y. Lo, S.-H. Chang, A. Y.-G. Fuh, and S.-Y. Huang, Optics Express 17, 12910 (2009).
- Z. Wang, C. Yang, W. Li, L. Chen, X. Wang, and Z. Cai, Appl. Phys. B 115, 483 (2014).
- G. Sanz-Enguita, J. Ortega, C. L. Folcia, I. Aramburu, and J. Etxebarria, J. Appl. Phys. 119, 073102 (2016).
- J. Schmidtke and W. Stille, Eur. Phys. J. B 31, 179 (2003).
- K. L. Woon, M. O'Neil, G. L. Richards, M. P. Aldred, and S. M. Kelly, Phys. Rev. E 71, 041706 (2005).
- A. Bobrovsky, K. Mochalov, V. Oleinikov,
 A. Sukhanova, A. Prudnikau, M. Artemyev, V. Shibaev,
 and I. Nabiev, Adv. Mater. 24, 6216 (2012).
- L. Penninck, J. Beeckman, P. De Visschere, and K. Neyts, Phys. Rev. E 85, 041702 (2012).
- B. A. Umanskii, L. M. Blinov, and S. P. Palto, Quantum Electron. 43, 1078 (2013).
- 21. P. V. Dolganov, JETP Lett. 105, 657 (2017).

- 22. J. Etxebarria, J. Ortega, and C. L. Folcia, Liq. Cryst. 44 (2017).
- 23. P. V. Dolganov, Phys. Rev. E 91, 042509-1-5 (2015).
- V. A. Belyakov, V. E. Dmitrienko, and V. P. Orlov, Sov. Phys. Usp. 22, 64 (1979).
- 25. V. A. Belyakov and V. E. Dmitrienko, Optics of Chiral Liquid Crystals, Harwood Academic, London (1989).
- P. V. Dolganov, G. S. Ksyonz, V. E. Dmitrienko, and V. K. Dolganov, Phys. Rev. E 87, 032506 (2013).
- 27. P. V. Dolganov, S. O. Gordeev, and V. K. Dolganov, JETP **118**, 891 (2014).
- 28. P.V. Dolganov, S.O. Gordeev, V.K. Dolganov, and A.Yu. Bobrovsky, Mol. Cryst. Liq. Cryst. **633**, 14 (2016).
- J. M. Bendickson, J. P. Dowling, and M. Scalora, Phys. Rev. E 53, 4107 (1996).
- H. Yoshida, C. H. Lee, A. Fujii, and M. Ozaki, Appl. Phys. Lett. 89, 231913 (2006).
- Th. K. Mavrogordatos, S. M. Morris, F. Castles,
 P. J. W. Hands, A. D. Ford, H. J. Coles, and
 T. D. Wilkinson, Phys. Rev. E 86, 011705 (2012).
- A. H. Gevorgyan and A. N. Kocharian, Opt. Commun. 285, 2854 (2012).
- 33. A. H. Gevorgyan, K. B. Oganesyan, R. V. Karapetyan, and M. S. Rafayelyan, Laser Phys. Lett. **10**, 125802 (2013).
- 34. Th. K. Mavrogordatos, S. M. Morris, S. M. Wood, H. J. Coles, and T. D. Wilkinson, Phys. Rev. E 87, 062504 (2013).
- P. W. Atkins and R. S. Friedman, Molecular Quantum Mechanics, 3-rd ed., Oxford University Press, Oxford (1997), p. 193.
- A. M. Steinberg and R. Y. Chiao, Phys. Rev. A 51, 3525 (1995).