Письма в ЖЭТФ, том 108, вып. 3, с. 170 – 174 © 2018 г. 10 августа

Плотность фотонных состояний в холестерическом фотонном кристалле

П. В. Долганов[1)], В. К. Долганов

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 – 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 H-22 (бутил-п-(п-гексилоксифенилоксикарбонил)-фенилкарбонат, 70.6 % вес.), допированном красителем 4-диэтиламин-4′-нитростильбен (0.2 % вес). 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 1a 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]

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

Расчетный спектр пропускания, вычисленный по формуле (2), показан на рис. 1a пунктирной кривой. Подгоночными параметрами при расчете служили величины p, n, и δ. 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]

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

L – толщина образца, штрих обозначает дифференцирование по ω.

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-

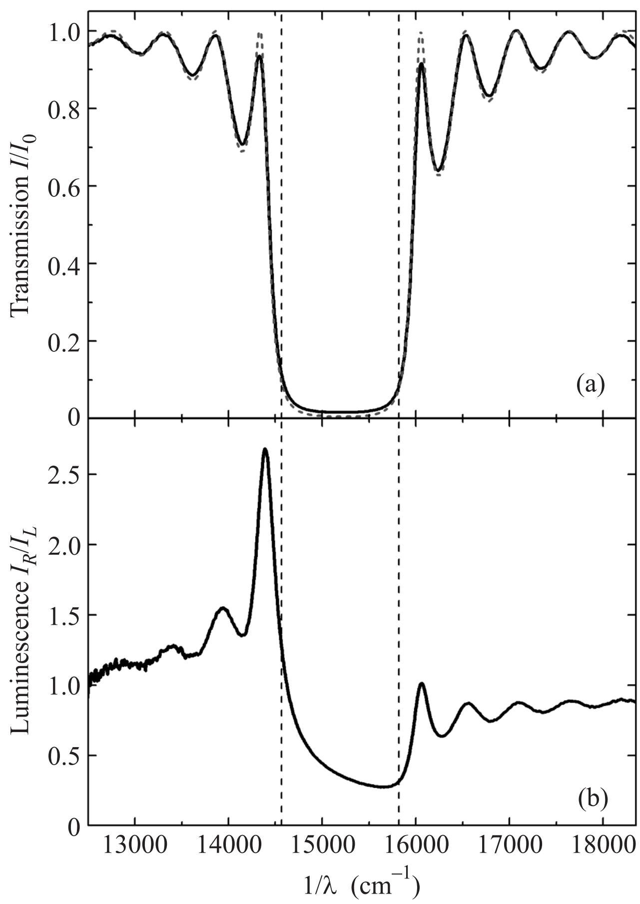

Рис. 1. (a) – Экспериментальный спектр пропускания холестерического фотонного кристалла (сплошная кривая) и расчетный спектр (пунктирная кривая). Экспериментальный спектр нормирован на спектр источника света. В спектре присутствует интенсивная полоса, связанная с фотонной зоной, и боковые осцилляции.Теоретический спектр пропускания рассчитан с параметрами $p = 419.25$ нм, $n = 1.574$, $n = 0.082$. (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 мкм. $T = 25\,^\circ$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 поляризации. 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

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

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

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

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

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

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

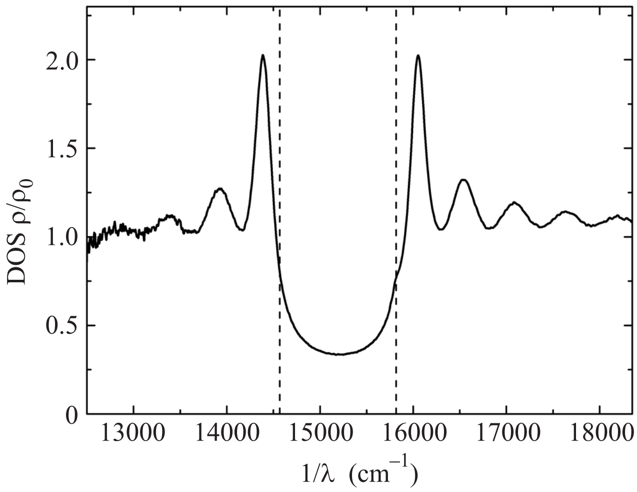

Рис. 2. Плотность фотонных состояний ρ/ρ_0, определенная из спектров люминесценции. $\rho_0 = n/c$ – плотность состояний в отсутствие фотонной зоны. Вертикальные пунктирные линии – границы фотонной запрещенной зоны. Максимумы плотности состояний у коротковолнового и длинноволнового края фотонной зоны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

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

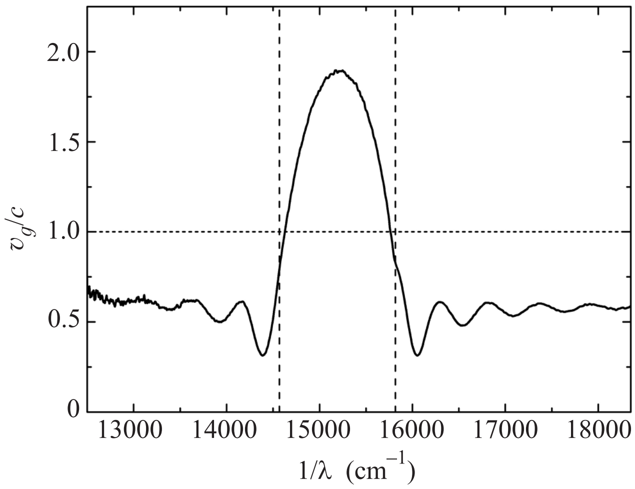

Рис. 3. Групповая скорость света v_g, нормированная на скорость света в вакууме c. Вблизи границ фотонной зоны спектральная зависимость групповой скорости света осциллирует. В середине зоны групповая скорость света превышает скорость света в вакууме (горизонтальная пунктирная линия)

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).
2. S. Chandrasekhar, *Liquid Crystals*, Cambridge University Press, Cambridge (1977).
3. K. Sakoda, *Optical Properties of Photonic Crystals*, Springer, Berlin (2001).
4. S. G. Johnson and J. Joannopoulos, *Photonic Crystals: The Road from Theory to Practice*, Kluwer, Boston (2002).
5. E. I. Kats, ZhETF **59**, 1854 (1970) [Sov. Phys. JETP **32**, 1004 (1971)].

6. D. C. Wright and N. D. Mermin, Rev. Mod. Phys. **61**, 385 (1989).
7. 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)].
8. I. P. Il'chishin and A. Yu. Vakhnin, Mol. Cryst. Liq. Cryst. **265**, 687 (1995).
9. V. I. Kopp, B. Fan, H. K. M. Vithana, and A. Z. Genack, Opt. Lett. **23**, 1707 (1998).
10. 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).
12. L. M. Blinov, Pis'ma v ZhETF **90**, 184 (2009) [JETP Lett. **90**, 166 (2009)].
13. 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).
14. Z. Wang, C. Yang, W. Li, L. Chen, X. Wang, and Z. Cai, Appl. Phys. B **115**, 483 (2014).
15. G. Sanz-Enguita, J. Ortega, C. L. Folcia, I. Aramburu, and J. Etxebarria, J. Appl. Phys. **119**, 073102 (2016).
16. J. Schmidtke and W. Stille, Eur. Phys. J. B **31**, 179 (2003).
17. K. L. Woon, M. O'Neil, G. L. Richards, M. P. Aldred, and S. M. Kelly, Phys. Rev. E **71**, 041706 (2005).
18. A. Bobrovsky, K. Mochalov, V. Oleinikov, A. Sukhanova, A. Prudnikau, M. Artemyev, V. Shibaev, and I. Nabiev, Adv. Mater. **24**, 6216 (2012).
19. L. Penninck, J. Beeckman, P. De Visschere, and K. Neyts, Phys. Rev. E **85**, 041702 (2012).
20. 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).
24. 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).
26. 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).
29. J. M. Bendickson, J. P. Dowling, and M. Scalora, Phys. Rev. E **53**, 4107 (1996).
30. H. Yoshida, C. H. Lee, A. Fujii, and M. Ozaki, Appl. Phys. Lett. **89**, 231913 (2006).
31. 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).
32. 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).
35. P. W. Atkins and R. S. Friedman, *Molecular Quantum Mechanics*, 3-rd ed., Oxford University Press, Oxford (1997), p. 193.
36. A. M. Steinberg and R. Y. Chiao, Phys. Rev. A **51**, 3525 (1995).