## Флуоресценция и лазерная генерация в периодической структуре холестерического жидкого кристалла, индуцированной электрическим полем

#### Н.М.Штыков, С.П.Палто, Б.А.Уманский, Д.О.Рыбаков, И.В.Симдянкин

Экспериментально исследована флуоресценция и лазерная генерация в структуре с индуцированной электрическим полем пространственно-периодической модуляцией директора в плоскости планарно-ориентированного слоя холестерического жидкого кристалла (ХЖК). Толщина слоя ХЖК выбрана близкой к естественному шагу холестерической спирали, что соответствует второй зоне Гранжана. Индуцированное электрическим полем периодическое поле директора ХЖК приводит к пространственной модуляции показателя преломления и возникновению оптических свойств, характерных для одномерных фотонных кристаллов, когда свет, распространяющийся в плоскости слоя ХЖК, испытывает брэгговское отражение. В поляризованном свете индуцированных в плоскости слоя ХЖК перпендикулярно исходному (невозмущенному электрическим полем) направлению директора в центре слоя. Для напряженностей электрического поля, соответствующих принципиально разным распределениям поля директора ХЖК, исследованы спектры флуоресценции лазерного красителя DCM как для различной геометрии (включая волноводный режим), так и для разлых уровней оптической накачки. В диапазоне электрических напряжений, соответствующих индуцированию фотонной пространственно-периодической структуры, обнаружена многомодовая лазерная генерация в волноводном режиме. Показано, что модовый состав лазерной генерации зависит от электрического поля, влияющего на свойства распределенной обратной связи.

**Ключевые слова:** холестерические жидкие кристаллы, флуоресценция красителей, лазеры на красителях, плоские диэлектрические волноводы.

### 1. Введение

Наряду с хорошо известными применениями жидких кристаллов (ЖК) в области информационных дисплеев в последние десятилетия активно развивается направление, связанное с жидкокристаллическими микролазерами [1-3]. Особенностью жидкокристаллических лазеров является то, что в них отсутствуют внешние зеркала, а необходимая для лазерной генерации положительная обратная связь реализуется благодаря пространственной модуляции показателя преломления в жидкокристаллическом слое. Условия получения лазерной генерации, когда обратная связь создается не внешними зеркалами, а является распределенной и связана с пространственно-периодическим изменением диэлектрической проницаемости, рассмотрены в теоретической работе Когельника и Шанка [4]. В 1973 г. был получен первый патент на перестраиваемый жидкокристаллический лазер с распределенной обратной связью [5]. Согласно представлениям авторов патента лазерная генерация должна обеспечиваться холестерическим жидким кристаллом (ХЖК) с внедренным в него флуоресцентным красителем. ХЖК относятся к хиральным нематическим ЖК и характеризуются надмолекулярной геликоидальной структурой, когда простран-

**Н.М.Штыков, С.П.Палто, Б.А.Уманский, Д.О.Рыбаков, И.В.Симдянкин.** Институт кристаллографии им. А.В.Шубникова ФНИЦ «Кристаллография и фотоника» РАН, Россия, 119333 Москва, Ленинский просп. 59; e-mail: nshtykov@mail.ru

Поступила в редакцию 13 ноября 2018 г., после доработки – 11 марта 2019 г.

ственное распределение директора ЖК образует геликоид с некоторым шагом р (директор – это единичный вектор, ориентированный вдоль направления преимущественной ориентации длинных осей молекул в рассматриваемой точке объема, совпадающий в случае оптически одноосных ЖК с направлением локальной оптической оси; значение шага *p*, реализуемое в неограниченном образце, называется естественным шагом холестерической спирали). В силу наличия локальной оптической анизотропии, геликоидальная структура ХЖК может обеспечивать распределенную обратную связь для жидкокристаллического лазера. Однако данных о реализуемости такого лазера не приводилось. Впервые лазерная генерация в ХЖК была экспериментально получена в 1980 г. [6]. Использовался планарно-ориентированный слой ХЖК с осью геликоида вдоль нормали к слою (рис.1,а). В качестве лазерного красителя, растворенного в ХЖК, использовался бензатрон, а оптическая накачка осуществлялась вдоль нормали к ориентированному слою ХЖК с помощью импульсного лазера на красителе, возбуждаемого второй гармоникой излучения рубинового лазера. Лазерная генерация возникала вдоль нормали, совпадающей с осью геликоида. Исследования были продолжены в серии работ [7-9]. Однако в силу ограниченности имевшихся на тот момент теоретических представлений экспериментальные особенности лазерной генерации в ХЖК, связанные с возбуждением лазерной генерации на краях зоны селективного отражения (в настоящее время вместо термина «зона селективного отражения» широко используется термин «фотонная стоп-зона»), были неверно интерпретированы. Авторы ошибочно полагали, что частота лазерной генерации должна совпадать с частотой брэгговского резонанса. Последующее развитие представлений об условиях возбуждения лазерной генерации в ХЖК, связанных с плотностью фотонных состояний DOS (density of states) на краях фотонной стоп-зоны, позволило глубже понять наблюдаемые особенности лазерной генерации в ХЖК на краях стоп-зоны [10-14]. Следует отметить, что между плотностью фотонных состояний и коэффициентом усиления по петле обратной связи существует прямая зависимость [15], поэтому ниже, при обсуждении лазерного эффекта в наших ЖК-системах, мы будем в основном придерживаться классической терминологии, связанной с понятием распределенной обратной связи (РОС).

Ориентированный слой ХЖК является ярким представителем одномерных фотонных кристаллов. Как уже отмечалось, ХЖК характеризуются геликоидальной структурой поля директора, и их оптические свойства подробно описаны в литературе [16-18]. При движении вдоль оси геликоида директор вращается в плоскости, перпендикулярной этой оси, и его азимутальный угол  $\varphi$  линейно изменяется в соответствии с формулой  $\varphi = 2\pi z/p$ , где z – координата вдоль оси, а *р* – шаг геликоида. Локально, в плоскости перпендикулярной оси геликоида, оптические свойства ХЖК характеризуются двумя главными показателями преломления – вдоль директора n<sub>ll</sub> и перпендикулярно директору *n*<sub>1</sub>, или соответствующими главными компонентами тензора диэлектрической проницаемости  $\varepsilon_{\parallel}$  и  $\varepsilon_{\perp}$ . Вращение директора ХЖК приводит к периодической модуляции эффективного показателя преломления и образованию для света, распространяющегося вдоль оси геликоида, фотонной стоп-зоны в спектральном диапазоне  $pn_{\perp} \leq \lambda \leq pn_{\parallel}$ , где  $\lambda$  – длина волны в вакууме. В области стоп-зоны запрещено распространение света с направлением круговой поляризации, совпадающим с направлением закрутки геликоида. Это свойство и позволяет рассматривать ХЖК как одномерный фотонный кристалл.

В первых работах для получения лазерной генерации использовался планарно-ориентированный слой ХЖК, когда ось спирали направлена нормально к плоскостям подложек и слою ХЖК (см. рис.1,а). Для этого на поверхностях подложек ячейки задаются условия планарной ориентации директора (директор параллелен плоскостям подложек). В объеме слоя ХЖК директор совершает несколько десятков витков при переходе от одной подложки к другой (для наглядности на рис.1, а показано лишь полвитка спирали). Планарные граничные условия обеспечивают при малом шаге спирали (*p* < 0.5 мкм) однородное поле директора в плоскости слоя при толщинах слоя ХЖК *d* от единиц до нескольких десятков микрометров. При этом толщины в несколько десятков микрометров достаточно для получения лазерной генерации. Однако важно отметить, что уже при толщине свыше 10 мкм оптическая накачка вдоль нормали к слою оказывается сильно неоднородной вследствие поглощения излучения накачки красителем. Это приводит к существованию оптимальной толщины слоя ХЖК, соответствующей минимальному порогу возбуждения лазерной генерации. При увеличении толщины выше оптимального значения порог возрастает из-за того, что не весь объем, охваченный РОС, является усиливающим; к тому же, возникают дополнительные потери. Поэтому представляет интерес создание одномерной фотонной ХЖК-структуры с осью в плоскости слоя и использование поперечной оптической накачки. В контексте сказанного выше важно отметить, что согласно работе [4] пороговый коэффициент усиле-



Рис.1. Распределение директора *n* в толстых планарно-ориентированных слоях ХЖК с осью спирали вдоль нормали к подложкам (показано полвитка спирали) (*a*), с осью спирали в плоскости подложек (для получения такого поля директора требуются специальные граничные условия) (*б*), а также в планарно-ориентированных ХЖК при  $d/p \approx 1$  при электрическом поле ниже порога (*в*) и при напряженности  $E > E_{th}(z)$ . Цилиндры показывают локальную симметрию нематической фазы (направления +*n* и –*n* вдоль оси цилиндров эквивалентны).

ния  $\alpha_{th}$ , необходимый для возбуждения лазерной генерации в условиях распределенной обратной связи, определяется соотношением

$$\alpha_{\rm th} = \left(\frac{\lambda}{\delta n}\right)^2 \frac{1}{L^3},\tag{1}$$

где  $\delta n$  – амплитуда модуляции показателя преломления; L – пространственная протяженность РОС и усиливающей среды. Выражение (1) можно использовать для определения эффективности РОС. Чем больше  $\delta n$  и L, тем ниже пороговый коэффициент усиления и тем выше эффективность распределенной обратной связи. Именно по этой причине одномерные фотонные структуры с осью в плоскости слоя, когда *L* не ограничивается толщиной слоя ЖК, являются перспективными. В этом случае размер области РОС ограничен не толщиной слоя ХЖК, составляющей, как правило, 20-30 мкм, а планарными размерами области накачки слоя ХЖК, которые могут быть равны единицам и десяткам миллиметров. Кроме того, в этом случае можно использовать достаточно тонкие слои ХЖК, чтобы обеспечить однородную оптическую накачку. Таким образом, сказанное выше дает предпосылки для существенного уменьшения порога лазерной генерации в волноводном режиме в планарных структурах с поперечной накачкой по сравнению со случаем продольной накачки планарно-ориентированного слоя ХЖК. Например, в работе [19] сообщается о создании образцов ХЖК, в которых ось геликоида параллельна плоскости подложек (рис.1, $\delta$ ). Авторы указывают на значительное уменьшение порога лазерной генерации при поперечной накачке по сравнению с планарно-ориентированными ХЖК-структурами с продольной оптической накачкой. К сожалению, способ, с помощью которого авторам удалось обеспечить граничные условия для ориентации оси геликоида параллельно плоскости подложек, предполагает специальную термическую обработку образцов в электрическом поле, что затрудняет воспроизведение эффекта.

Один из простых способов реализации одномерной фотонной ХЖК-структуры с осью в плоскости слоя связан с существованием полевой неустойчивости и, как следствие, индуцированием пространственно-периодического поля директора ХЖК под действием электрического напряжения [20]. В данном случае, говоря о полевой неустойчивости, мы подразумеваем ситуацию, когда в электрическом поле ниже порогового значения или в начальный момент времени включения электрического поля везде в планарно-ориентированном слое ХЖК с положительной диэлектрической анизотропией ( $\Delta \varepsilon = \varepsilon_{\parallel} - \varepsilon_{\perp} > 0$ ) директор ЖК строго перпендикулярен вектору электрического поля (рис.1,в). В этом случае результирующий электрический момент равен нулю. Переход в модулированную в плоскости слоя структуру (рис. 1, г) инициализируется благодаря неустойчивости системы по отношению к флуктуациям поля директора при превышении напряженности электрического поля некоторого порогового значения E<sub>th</sub>. Из-за ориентационных флуктуаций директора возникает дестабилизирующий момент, пропорциональный  $\Delta \varepsilon E_{\text{th}}^2$ . Переход в данном случае аналогичен переходу Фредерикса, а пороговое поле близко к полю ориентационного перехода Фредерикса [17, 18, 20]. В поляризационном микроскопе индуцированное полем периодическое распределение директора ХЖК в плоскости слоя имеет вид полосчатой текстуры. Направление ориентации полос зависит от угла между направлениями ориентации директора на подложках ячейки и отношения толщины слоя *d* к естественному шагу спирали *p*. Однако, как показали результаты численного моделирования и эксперимент, независимо от значения d/p направление полос перпендикулярно исходному (в отсутствие поля) направлению директора в центре слоя ХЖК. В работе [20] мы экспериментально и численно исследовали периодическую структуру в ХЖК, индуцированную электрическим полем. Полевой порог нестабильности и период модуляции директора в плоскости слоя были измерены для трех значений d/p, равных 0.5, 1.0 и 1.5. Эти значения d/p соответствуют первой, второй и третьей зонам Гранжана, если рассматривать слой ХЖК в ячейке с клиновидным зазором [17, 18] и, соответственно, с переменной толщиной d. Численное моделирование, основанное на решении полной системы уравнений континуальной теории ЖК, выполненное нами в работе [20], показало, что в центре слоя индуцированная электрическим полем модулированная в плоскости слоя структура характеризуется особым геликоидальным полем директора. В отличие от естественного геликоидального поля холестерического ЖК, где директор перпендикулярен его оси, в данном случае директор ориентирован под острым углом по отношению к оси геликоида и имеет место коническое вращение директора при движении вдоль начального направления однородной ориентации директора (ось X, рис.1,*г*). При этом угол между директором и осью геликоида зависит от координаты *Z*. Для толщины слоя 8 мкм период геликоида составляет ~ 24 мкм, а период модуляции эффективного показателя преломления в два раза меньше (~ 12 мкм), что приблизительно в 1.5 раза больше естественного шага спирали (p = 8 мкм) исследованной ХЖК-смеси.

В настоящей работе мы продолжаем изучение системы, аналогичной той, которая исследовалась в [20]. Представлены экспериментальные результаты исследования флуоресценции красителя DCM, растворенного в ХЖКматрице, для трех структурных состояний слоя ХЖК: для исходной планарной структуры без электрического напряжения (рис.1, в), когда поле директора однородно в плоскости слоя; для структуры, модулированной в плоскости слоя (рис.1,г), когда поле превышает пороговое значение и соответствует интервалу существования модулированной структуры; для структуры с раскрученным геликоидом (при достаточно высоких напряжениях (~5 В) оптическая ось в центре слоя ориентирована гомеотропно, т.е. направлена нормально к плоскости слоя ХЖК). Отметим, что для структуры с индуцированной электрическим полем модуляцией поля директора в плоскости слоя впервые приведены данные о лазерной генерации и ее зависимости от электрического напряжения.

# 2. Схема эксперимента и полученные результаты

Экспериментальный образец (ячейка) имеет геометрию типа «сэндвич» (рис.2). Он состоит из двух стеклянных пластин (1, 2), разделенных тефлоновыми полосками калиброванной толщины (4) в качестве спейсеров. Токопроводящие пленки ITO (3), нанесенные на поверхности пластин, служат электродами для подачи электрического напряжения через контакты (10) на слой ХЖК (5), расположенный между пластинами (подложками).

Для задания ориентации директора ХЖК на границах слоя электроды подложек покрывались пленками полиимида, которые отжигались при температуре около 200°С и натирались в направлении оси *X* для создания однород-



Рис.2. Схема ячейки типа «сэндвич», геометрия регистрации флуоресценции и лабораторная система координат:

1,2 – стеклянные пластины; 3 – токопроводящие пленки ITO; 4 – тефлоновые прокладки; 5 – слой ХЖК между пластинами; 6 – область накачки; 7 – направление распространения флуоресценции красителя в слое ХЖК в волноводном режиме; 8 – конденсор спектрометра при измерении флуоресценции вдоль нормали к слою ХЖК; 9 – конденсор спектрометра при измерении флуоресценции, выходящей из торца ячейки; 10 – подводящие провода. ной планарной ориентации ХЖК. Исследовалась планарная ячейка с толщиной d = 7.2 мкм. Эта толщина соответствует второй зоне Гранжана (отношение  $d/p \approx 0.94$ ). Исследуемый холестерический образец был изготовлен из нематического жидкого кристалла НЖК-1285 (НИОПИК) добавлением в него 0.7% оптически активной компоненты *L*-диментолового эфира 4-4'-ди-бензилдикарбоновой кислоты (ХДН-1, НИОПИК) и красителя DCM (4-дицианометилен-2-метил-6-(4-диметил-аминостирил)-4H-пиран) в концентрации 0.6% по массе. Естественный шаг геликоида *p* полученной холестерической смеси равен 7.7 мкм. НЖК-1285 имеет положительную диэлектрическую анизотропию ( $\Delta \varepsilon = +11.8$  при 20°С на частоте f = 1 кГц) и главные показатели преломления  $n_{\perp} = 1.512$  и  $n_{\parallel} = 1.687$ .

Начальное распределение поля директора в слое ХЖК представляет собой один виток геликоида с осью, ориентированной перпендикулярно подложкам (см. рис.1, в). При электрическом напряжении выше порога (~0.92 В) возникает модулированная структура ХЖК в плоскости слоя (в направлении X, рис. 1,e), которая в центре слоя характеризуется, как уже упоминалось, особым геликоидальным распределением поля директора [20] и визуализируется как периодическая система полос, ориентированных поперек направления натирания полиимидного слоя, (рис.3). Это модулированное состояние стабильно в диапазоне электрических напряжений примерно от 0.92 до 1.35 В и имеет период 11.6 мкм, что существенно больше естественного шага геликоида ХЖК-материала, который равен 7.7 мкм. Дальнейшее увеличение напряжения приводит сначала к разрушению периодической текстуры, а затем к переходу ХЖК в квазигомеотропную структуру (в центре слоя директор и оптическая ось нормальны к плоскости слоя).

На рис.3 показана типичная структура полос, видимая в поляризационном микроскопе при освещении образца полихроматическим светом, падающим нормально подложкам ячейки. Полосы ориентированы перпендикулярно направлению натирания и, соответственно, направлению директора на поверхностях подложек. Мы не наблюдали существенной зависимости периода полос от приложенного к ячейке напряжения. Аналогичный результат был получен в работе [21] для отношения  $d/p \approx 1$  и  $p \approx 5$  мкм, где период изменялся очень слабо с изменением напряжения.



Рис.3. Фотография небольшой области ячейки с системой полос модулированной структуры. Стрелка указывает направление натирания слоя полиимида на подложках ячейки.

При изучении флуоресценции красителя в ХЖК использовались два режима оптической накачки. В режиме низкой интенсивности накачки (~400 Вт/см<sup>2</sup>), когда не возникает существенной населенности возбужденных уровней молекул красителя и в среде нет усиления, использовался полупроводниковый лазер с длиной волны излучения 445 нм. Для накачки ячейки излучением высокой интенсивности (0.14–1.14 МВт/см<sup>2</sup>) и создания усиления в активной среде использовалась третья гармоника излучения импульсного неодимового лазера ( $\lambda = 355$  нм).

На рис.4, а приведены спектры флуоресценции при накачке излучением полупроводникового лазера. С помощью цилиндрической линзы лазерный пучок фокусировался в область накачки (см. рис.2) длиной 4 мм и шириной ~20 мкм. Флуоресценция регистрировалась по нормали к плоскостям подложек ячейки при двух ориентациях поляризатора (анализатора поляризации): в первом случае ось пропускания анализатора, ассоциируемая с вектором электрического поля волны, была параллельна направлению пучка накачки (вдоль оси X), а во втором случае – перпендикулярно ему (вдоль оси Y).

Полученная форма спектров типична для флуоресценции красителя DCM в жидкокристаллической среде. Максимум флуоресценции находится в области длин волн 581–583 нм, а ширина спектра на полувысоте составляет



Рис.4. Спектры флуоресценции, регистрируемой вдоль нормали к плоскостям подложек ячейки, с поляризацией излучения, параллельной (1, 1') и перпендикулярной (2, 2') направлению пучка накачки, для исходной планарной структуры ХЖК без поля (1, 2) и гомеотропной структуры (1', 2') при напряжении U = 5 B (*a*) и спектры флуоресценции с поляризацией излучения вдоль оси Z (TM моды), регистрируемые с торца ячейки при напряжениях на слое ХЖК, равных 2 (1), 3 (2), 4 (3) и 5 В (4) (6).

~ 65 нм. Следует, однако, отметить наличие дихроизма, который в данном случае связан с неоднородностью возбуждения флуоресценции. Дело в том, что вдоль направления пучка накачки, от внутренней поверхности первой подложки к передней поверхности второй подложки, директор делает один оборот, и в этом смысле число молекул с длинными осями вдоль направлений X и Y одинаково. Однако, если учесть, что интенсивность накачки падает по мере прохождения пучка в глубь слоя из-за поглощения, то становится понятно, что молекулы красителя, которые ближе к передней грани, возбуждаются более интенсивно, и именно они обеспечивают наблюдаемый дихроизм флуоресценции.

При регистрации с торца ячейки флуоресценции с поляризацией вдоль У (ТЕ поляризация) наблюдаются обычные спектры - такие же, как и при измерении вдоль нормали к подложкам ячейки. Для ТМ поляризации (линейная поляризация вдоль оси Z) ситуация иная. На спектрах флуоресценции (рис.4,б), выходящей из торца ячейки, наблюдаются осцилляции интенсивности, положение которых зависит от напряжения на слое ХЖК. Для напряжения U = 5 В расстояние между максимумами осцилляций увеличивается от 23.6 нм на коротковолновом краю спектра до 29.6 нм в центре спектра и до 36.9 нм на длинноволновом краю спектра. Это типичный эффект для резонатора Фабри-Перо. Если бы спектр был представлен в зависимости от частоты или волнового числа, а не от длины волны, то максимумы осцилляций были бы эквидистантны (если пренебречь спектральной дисперсией показателей преломления). Для других напряжений на слое ХЖК спектральные интервалы между пиками немного отличаются от упомянутых выше.

Как уже отмечалось, электрическое напряжение перехода геликоида ХЖК в раскрученное состояние ( $U_{\rm MH}$ ) составляет 1.35 В. Таким образом, при более высоких напряжениях пространственная периодичность поля директора отсутствует во всех направлениях, а при напряжениях выше 2 В ориентация директора ХЖК в центре слоя становится близкой к гомеотропной. Однако по мере приближения к поверхностям подложек директор плавно изменяет свою ориентацию от гомеотропной до планарной. Поэтому такое распределение директора в слое мы называем «квазигомеотропным». При высоком электрическом напряжении (~5 В) толщина пристеночных областей, где директор сильно изменяет свою ориентацию, составляет десятые доли микрометра, т.е. малую часть толщины слоя (d = 7.2 мкм). Толщина этих пристеночных слоев еще сильнее уменьшается с увеличением напряжения. Именно этими пристеночными слоями, толщина которых зависит от напряженности поля, и объясняется изменение спектрального интервала между пиками осцилляций (см. рис.4, $\delta$ ), а также их сдвиг при увеличении напряжения на слое ХЖК.

Оказалось, что такое поведение спектров флуоресценции достаточно хорошо объясняется теорией многолучевой интерференции в плоскопараллельной прозрачной пластине [22]. При падении света на такую пластину происходит многократное отражение пучка на ее поверхностях и интерференция отраженных или проходящих волн между собой. Интенсивность прошедшего через пластину света выражается формулой

$$I_{\rm T} = \frac{T^2}{1 + R^2 - 2R\cos\delta} I_{\rm in},$$
 (2)



Рис.5. Спектры флуоресценции исходной структуры ХЖК (1), квазигомеотропной структуры при U = 5 B(2) и расчетный спектр (3), полученный с помощью уравнений (2) и (3).

известной как формула Эйри [22]. Здесь  $I_{\rm in}$  – интенсивность падающего света, R и T – коэффициенты отражения и пропускания света поверхностями пластины. Фазовая задержка  $\delta$ , возникающая в результате двукратного прохождения волны в пластине, зависит от показателя преломления пластины n, ее толщины d и угла распространения пучка света  $\theta$  относительно нормали к пластине:

$$\theta = \frac{4\pi}{\lambda} n d\cos\theta. \tag{3}$$

В нашем случае плоскопараллельной прозрачной пластиной является слой ХЖК с квазигомеотропной ориентацией директора, а падающим на нее светом – флуоресценция, которая многократно отражается на границах подложка – ХЖК. На рис.5 приведены естественный спектр флуоресценции красителя DCM (1), спектр, наблюдаемый с торца ячейки при напряжении U = 5 B(2), а также спектр (3), рассчитанный для гомеотропной структуры слоя ХЖК с помощью формул (2), (3) и с учетом оптической анизотропии слоя [23]. Этот спектр был получен умножением естественного спектра флуоресценции (1) на коэффициент пропускания слоя  $I_T/I_{in}$  из (2) при  $\theta = 80^\circ$ . Угол  $\theta = 80^{\circ}$  близок к углу полного внутреннего отражения света с ТМ поляризацией на границе ЖК – подложка. Как видно из сравнения кривых 2 и 3, положение пиков расчетного спектра довольно хорошо совпадает с экспериментальными пиками даже без учета дисперсии показателей преломления ХЖК.

При накачке ячейки излучением высокой интенсивности на  $\lambda = 355$  нм форма спектров флуоресценции существенно меняется. С помощью цилиндрической линзы лазерный пучок фокусировался в область накачки (см. рис.2) длиной 7 мм и шириной ~ 50 мкм. На рис.6 приведены спектры флуоресценции исходной структуры слоя ХЖК, регистрируемой по нормали к плоскости ячейки при поляризации излучения, параллельной направлению пучка накачки (вдоль оси *X*).

При небольших интенсивностях накачки (0.14– 0.43 MBт/см<sup>2</sup>) форма спектров соответствует обычному спектру флуоресценции, полученному при накачке излучением полупроводникового лазера. При больших интенсивностях накачки (свыше 0.43 MBт/см<sup>2</sup>) в спектре флуоресценции возникает выраженный пик на  $\lambda = 609$  нм, интенсивность которого нелинейно растет с увеличением



Рис.6. Спектры флуоресценции, регистрируемой по нормали к плоскости ячейки, в отсутствие напряжения на ячейке при интенсивностях излучения накачки 0.14 (1), 0.43 (2), 0.57 (3), 0.86 (4) и 1.14 MBT/см<sup>2</sup> (5).

интенсивности накачки. Этот пик в спектре мы связываем с усилением интенсивности флуоресценции (суперлюминесценцией). Усиление флуоресценции становится особенно значимым в волноводном режиме. Действительно, поскольку показатель преломления ХЖК вдоль директора ( $n_{\parallel} = 1.687$ ) больше показателя преломления стеклянной подложки ( $n_{gl} = 1.52$ ), то при определенных углах флуоресценция с ТМ поляризацией (электрический вектор волны лежит в плоскости XZ) может распространяться в слое ХЖК как в волноводе и выходить из торцевой части ячейки. При больших интенсивностях накачки (более 0.43 MBt/см<sup>2</sup>) усиление интенсивности флуоресценции, распространяющейся в слое ХЖК в волноводном режиме, существенно больше, чем флуоресценции, выходящей из слоя под углами, близкими к нормали. Это связано с существенным различием в длине пути для стимулированного излучения в активной среде в этих двух случаях. Для волноводных мод длина пути усиления равна $\sim 7~{\rm MM}$  (длина области накачки), а для излучения, выходящего нормально к плоскости подложек ячейки, длина пути примерно равна толщине слоя ХЖК, т.е. ~7 мкм.

Спектры усиленной флуоресценции с поляризацией вдоль оси Z (ТМ поляризация), выходящей из торца ячейки (рис.7), существенно отличаются от спектров, наблюдавшихся ранее. Максимум усиленной в волноводе флуоресценции в этом случае находится на длине волны 612.3 нм, а ширина спектра на полувысоте от максимума составляет ~ 17.9 нм, т.е. ширина спектра примерно в четыре раза меньше, чем при наблюдении вдоль нормали к слою. Как видно из рис.7, спектры усиленной волноводной флуоресценции подтверждают наши предположения о том, что длинноволновый пик флуоресценции (см. рис.6), регистрируемый вдоль нормали к слою, относится к усиленному излучению. Пик усиленной волноводной флуоресценции ( $\lambda = 612.3$  нм) сдвинут примерно на 30 нм в длинноволновую область спектра относительно максимума спонтанной флуоресценции ( $\lambda = 582$  нм).

Наибольший интерес для нас представляла флуоресценция в модулированной структуре слоя ХЖК. Как видно из рис.8, каждый спектр флуоресценции состоит из группы узких полос (мод), разнесенных на расстояние от 5.5 до 9.4 нм друг от друга. В данном случае можно говорить о многомодовой лазерной генерации, т. к. обратная связь, создаваемая пространственно модулированным рас-



Рис.7. Спектры усиленной флуоресценции, регистрируемой с торца ячейки, в отсутствие напряжения на ячейке при интенсивностях излучения накачки 0.29 (1), 0.43 (2), 0.57 (3), 0.86 (4) и 1.14 MBT/см<sup>2</sup> (5), а также спектр флуоресценции красителя при нормальном наблюдении (6).

пределением показателя преломления, оказывает существенное влияние на спектр усиленной флуоресценции; причем некоторые линии из различных групп спектров наблюдаются при разных напряжениях: например, линия 1  $(\lambda = 607.3 \text{ нм})$  при напряжениях 1.07 и 1.30 В, а линия 2  $(\lambda = 614.9 \text{ нм})$  при напряжениях 1.15 и 1.30 В. Аналогично для линий 3 ( $\lambda$  = 620.5 нм) и 4 ( $\lambda$  = 629.7 нм). Таким образом, для нашей фотонной ХЖК-структуры существует набор мод, которые возбуждаются не одновременно, а лишь тогда, когда РОС обеспечивает для них условия лазерной генерации. При изменении напряжения на ячейке эффективность РОС изменяется, и поэтому для каждого напряжения возбуждается своя группа мод. При увеличении электрического напряжения в диапазоне 1.07-1.25 В наблюдается сдвиг максимума многомодовой генерации в длинноволновую область - от 598 до 630 нм. Однако при напряжении 1.3 В, когда пространственная периодичность начинает разрушаться, наиболее интенсивными оказываются центральные моды, близкие к  $\lambda = 612$  нм, для которых реализуется максимальный коэффициент усиления.

Для объяснения модового состава спектра генерации было проведено численное моделирование распространения света в фотонной структуре, имитирующей периодическую структуру в слое ХЖК экспериментального образца. Численное моделирование проводилось методом конечных разностей во временном домене (FDTD – finite difference time domain method) с использованием программного обеспечения OptiFDTD, доступного в интернете на сайте Optiwave [24]. Метод FDTD основан на прямом численном решении зависящих от времени уравнений Максвелла.

Слой ХЖК, контактирующий со стеклянными подложками, можно рассматривать как плоский волновод, т. к. на его границах могут быть реализованы условия полного внутреннего отражения света (показатель преломления слоя в направлении оптической оси  $n_{\parallel} = 1.687$  больше показателя преломления подложки  $n_{\rm gl} = 1.52$ ). Из соотношения показателей преломления видно, что в слое ХЖК возможно существование волноводных мод с ТМ поляризацией. В качестве виртуальной модели экспериментальной ХЖК-ячейки был использован слоистый волновод, состоящий из чередующихся слоев с показателями преломления, равными  $n_{\parallel}$  и  $n_{\perp}$ . Толщина слоев равна половине периода модуляции эффективного показателя прелом

ления:  $\Lambda/2 = 5.8$  мкм. Разбиение на слои в данном случае, конечно, является приближением и связано с ограничениями программного обеспечения.

На рис.8 представлен рассчитанный спектр коэффициента отражения света от слоистого волновода (кривая R) при использовании в программном обеспечении виртуального источника света, возбуждающего основную (ТМ<sub>0</sub>) моду. Отметим, что при моделировании однонаправленный виртуальный источник света располагался вне тестируемого отрезка волновода. Свет от виртуального однонаправленного источника вводился в торец, а виртуальный датчик, находясь в «тени» за источником, регистрировал отражение от тестируемой части волновода. Как видно из рис.8, в диапазоне длин волн 580-650 нм наблюдается восемь пиков отражения, соответствующих различным порядкам брэгговского отражения (m = 58-64) на периодической фотонной структуре. Расстояние между главными пиками составляет ~9.6 нм. Однако посредине между главными пиками имеются еще пики отражения меньшей амплитуды. Если учитывать и эти промежуточные пики, то расстояние между пиками отражения составит 4.8 нм. Спектральные расстояния 4.8 и 9.6 нм хорошо коррелируют с экспериментально найденными спектральными интервалами между модами лазерной генерации 5.5 и 9.4 нм. Таким образом, несмотря на простоту используемой модели волновода, результаты численного моделирования хорошо дополняют экспериментальные данные. Отметим, что наблюдаемые лазерные моды было бы неправильно называть «брэгговскими», т.к. брэгговская частота соответствует центру стоп-зоны, где в случае идеальной периодической структуры распространение волн и лазерная генерация запрещены. Для бездефектной периодической структуры наиболее низкопороговая генерация возможна для краевых мод, расположенных на краях стоп-зоны [2, 4, 11, 13]. Сдвиг по длине волны между ближайшими к краям стоп-зон модами и брэгговским резонансом (центром стоп-зоны) определяется глубиной модуляции показателя преломления, шагом геликоида и порядком брэгговской дифракции. В нашем случае из-за высоких порядков брэгговской дифракции (т ~ 50) и ма-



Рис.8. Спектры лазерной генерации с торца ячейки при интенсивности излучения накачки 1.14 МВт/см<sup>2</sup> и напряжениях на ячейке, при которых наблюдается модулированное состояние ХЖК слоя  $(U_1 = 1.07 \text{ B}, U_2 = 1.15 \text{ B}, U_3 = 1.25 \text{ B}, U_4 = 1.30 \text{ B})$ , и спектр коэффициента отражения (*R*) слоистого волновода с периодом 11.6 мкм. Цветной вариант рисунка помещен на сайте нашего журнала http:// www.quantum-electron.ru.

лых амплитуд высших пространственных фурье-гармоник диэлектрической проницаемости этот спектральный сдвиг очень мал. По нашим оценкам он меньше спектрального разрешения нашего спектрометра (~2 нм), поэтому сравнение спектрального положения наблюдаемых максимумов лазерной генерации с положениями брэгговских резонансов является вполне оправданным. Использованная нами упрощенная слоистая модель волновода не учитывает сложный характер геликоидального поля директора, которое изменяется по сечению волновода. В этой модели не учитываются и возможные топологические дефекты в слое ЖК, которые могут приводить к локализованным лазерным модам [2] внутри стоп-зоны. Таким образом, зонная структура реального слоя ЖК, определяющая спектр разрешенных мод, намного богаче, чем та, которая следует из брэгговских резонансов для нашего упрощенного модельного волновода. Этим объясняется то, что спектр лазерной генерации проявляется в виде серии полос, ширина которых превышает разрешение нашего спектрометра.

#### 3. Заключение

Экспериментально исследована флуоресценция в планарно-ориентированном слое ХЖК при разных значениях электрического напряжения на ячейке, включая ситуацию, когда в центре слоя ХЖК индуцируется фотонная структура с пространственно-периодическим полем директора и с осью геликоида, параллельной плоскости слоя. Обнаружено усиление интенсивности флуоресценции, распространяющейся в волноводном режиме в слое ХЖК, а также многомодовая лазерная генерация в случае, когда электрическое поле индуцирует фотонную структуру с распределенной обратной связью.

Интенсивность излучения накачки, при которой появляется эффект усиления флуоресценции в ХЖК-волноводе, составляет ~ 0.43 МВт/см<sup>2</sup>. Спектральный максимум усиленной в волноводе флуоресценции не совпадает с максимумом спонтанной флуоресценции ( $\lambda = 582$  нм), а сдвинут в длинноволновую область спектра на 30 нм.

Многомодовая лазерная генерация, возникающая в индуцированной фотонной структуре, состоит из группы мод, разделенных спектральным интервалом 5.5 и 9.4 нм. Изменение величины электрического напряжения на ячейке в диапазоне существования пространственной периодичности позволяет перераспределять энергию лазерного излучения между отдельными модами в области от 600 до 630 нм. Это объясняется изменением распределенной обратной связи под действием электрического поля, в результате чего условие лазерной генерации оказывается более выгодным для определенных мод.

Для объяснения экспериментально наблюдаемого модового состава было проведено численное моделирование оптических свойств индуцированной фотонной структуры для мод волновода с ТМ поляризацией.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (проект № 16-29-11754 ofi\_m).

- 1. Coles H., Morris S. Nature Photon., 4, 676 (2010).
- Blinov L.M., Bartolino R. *Liquid Crystal Microlasers* (Kerala, India: Transworld Research Network, 2010).
- Невская Г.Е, Палто С.П., Томилин М.Г. Оптический экурп., 77, 13 (2010).
- 4. Kogelnik H., Shank C.V. J. Appl. Phys., 43, 2327(1972).
- 5. Goldberg L.S., Schnur J.M. US Patent 3,771,065 (1973).

761

- Ильчишин И.П., Тихонов Е.А., Тищенко В.Г., Шпак М.Т. Письма в ЖЭТФ, 32, 27 (1980).
- 7. Ильчишин И.П., Тихонов Е.А., Толмачев А.В., Федоряко А.П., Шпак М.Т. Укр. физ. журнал, **33**, 1492 (1988).
- Il'chishin I.P., Tikhonov E.A., Tolmachev A.V., Fedoryako A.P., Shpak M.T. Mol. Cryst. Liq. Cryst., 191, 351 (1990).
- 9. Il'chishin I.P., Vakhnin A.Yu. Mol. Cryst. Liq. Cryst., 265, 687 (1995).
- 10. Kopp V.I., Zang Z.-Q., Genack A.Z. Opt. Lett., 23, 1707 (1998).
- 11. Kopp V.I., Zang Z.-Q., Genack A.Z. Progr. Quantum Electron., 27,
- 369 (2003).
  12. Petriashvili G., Matranga M.A., De Santo M.P., Chilaya G., Barberi R. *Opt. Express*, 17, 4553 (2009).
- 13. Palto S.P., Shtykov N.M., Umanskii B.A., Barnik M.I. J. Appl. Phys., **112**, 013105 (2012).
- 14. Belyakov V.A. J. Lasers, Optics & Photonics, 4, 153 (2017).
- 15. Palto S.P., in *Liquid Crystal Microlasers* (Kerala: Transworld Research Network, 2010, p.141).

- Пикин С.А. Структурные превращения в экидких кристаллах (М.: Наука, 1981).
- 17. De Gennes P.G., Prost J. *Physics of Liquid Crystals* (Oxford: Clarendon Press, 1993).
- Блинов Л.М. Электро- и магнитооптика жидких кристаллов (М.: Наука, 1978).
- Inoue Y., Yoshida H., Inoue K., Fujii A., Ozaki M. *Appl. Phys. Express*, **3**, 102702 (2010).
- Shtykov N.M., Palto S.P., Umanskii B.A., Rybakov D.O., Simdyankin I.V. *Liq. Cryst.*, 45, 1408 (2018).
- Subacius D., Bos P., Lavrentovich O. Appl. Phys. Lett., 71, 1350 (1997).
- 22. Борн М., Вольф Э. Основы оптики (М.: Наука, 1973, с. 297).
- 23. Палто С.П. ЖЭТФ, 130, 544 (2006).
- 24. http://optiwave.com/applications/fdtd-optical-grating-simulationsusing-optifdtd/.