

РОССИЙСКАЯ АКАДЕМИЯ НАУК

**ФИЗИЧЕСКИЙ
ИНСТИТУТ**



имени

П. Н. Лебедева

Ф И А Н

ПРЕПРИНТ

31

В.С. ГОРЕЛИК,
А.Д. КУДРЯВЦЕВА,
Н.В. ЧЕРНЕГА

**ВЫНУЖДЕННОЕ ГЛОБУЛЯРНОЕ
РАССЕЯНИЕ СВЕТА В ТРЁХМЕРНЫХ
ФОТОННЫХ КРИСТАЛЛАХ**

МОСКВА 2005

ВЫНУЖДЕННОЕ ГЛОБУЛЯРНОЕ РАССЕЯНИЕ СВЕТА В ТРЁХМЕРНЫХ ФОТОННЫХ КРИСТАЛЛАХ.

В.С.Горелик, А.Д.Кудрявцева, Н.В.Чернега

Аннотация

Впервые сообщается об экспериментальном наблюдении вынужденного рассеяния света в искусственных опалах – вынужденном глобулярном рассеянии света (ВГР). Исследования были проведены для опаловых матриц с незаполненными октаэдрическими и тетраэдрическими пустотами, а также с глобулярными нанокompозитами, в которых пустоты между глобулами заполнялись молекулярными жидкостями: ацетоном и этиловым спиртом. В качестве источника возбуждающего излучения был использован моноимпульсный рубиновый лазер (0,69 мкм) с длительностью импульсов генерации $\tau = 20$ нс, шириной линии генерации $0,015 \text{ см}^{-1}$, расходимостью $3,5 \cdot 10^{-4}$ рад и максимальной энергией в импульсе 0,3 Дж. Исследования были выполнены для двух геометрий рассеяния: «вперёд» (0 – градусное рассеяние) и «назад» (180 – градусное рассеяние). С использованием интерферометра Фабри-Перо были проведены исследования спектральной структуры рассеянного излучения. Для незаполненной опаловой матрицы обнаружилась лишь одна стоксова компонента ВГР, сдвинутая относительно возбуждающей на величину $\sim 0,05 \text{ см}^{-1}$ и наблюдаемая лишь для геометрии «назад». Для глобулярных нанокompозитов в спектрах ВГР наблюдались две стоксовы компоненты. В отличие от известного явления ВРМБ, вынужденное рассеяние света в глобулярном фотонном кристалле, заполненном молекулярными жидкостями, наблюдалось как для геометрии рассеяния «назад», так и для 0-градусной геометрии (рассеяние «вперёд»). В образцах с наполнителем (ацетон) для геометрии рассеяния «вперёд» в спектре присутствовал один стоксов спутник с частотным сдвигом $\sim 0,16 \text{ см}^{-1}$.

1. Введение.

В последние годы большой интерес как с научной, так и с прикладной точек зрения представляют так называемые фотонные кристаллы [1-3]. В отличие от обычных кристаллов в таких структурах присутствует сверхрешётка, трансляционный период которой может существенно превышать атомные размеры. Ранее исследования фотонных кристаллов в оптическом диапазоне велись лишь для одномерных и двумерных структур. Это объяснялось трудностями, связанными с получением трёхмерных сверхрешёток, период которых близок к длинам волн оптического диапазона ($d \sim 1$ мкм).

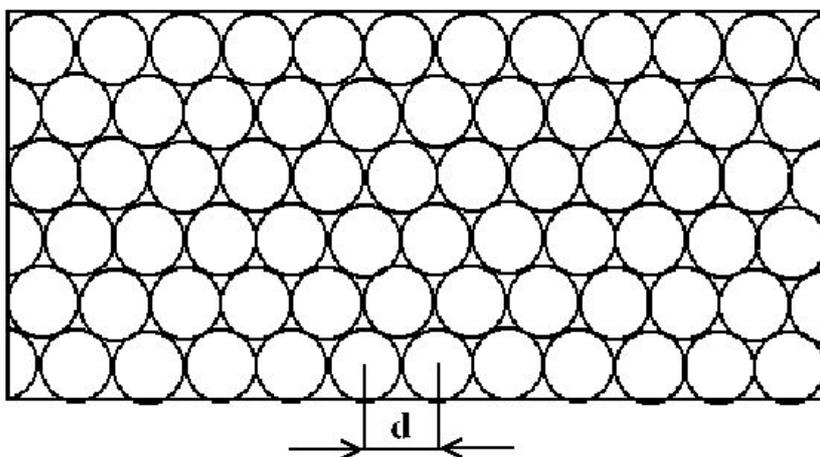


Рис.1.Общий вид структуры глобулярного фотонного кристалла, построенного из сферических частиц (глобул), плотно упакованных в виде кубической кристаллической решётки; d – диаметр шаров.

Одним из примеров трёхмерных фотонных кристаллов являются так называемые глобулярные фотонные кристаллы, построенные из глобул (шаров), диаметр d которых может быть сравнимым с длиной волны видимого излучения (см. Рис.1). В природе такого типа структуры существуют в виде

минералов опала, построенных из плотно упакованных шаров аморфного кварца и заполненных различными неорганическими соединениями. К настоящему времени развита [3-5] технология получения искусственных опалов, структура которых состоит из периодически расположенных в пространстве шаров из аморфного кварца с диаметром, равным 200 – 600 нм.

При плотной упаковке шаров в кубическую решётку между ними образуются тетраэдрические и октаэдрические пустоты. Объектами физических исследований могут служить как исходные (незаполненные) искусственные опалы (опаловые матрицы), так и наноккомпозиты, в которых пустоты размером 50-100 нм заполняются органическими или неорганическими соединениями. В частности, опаловые матрицы сравнительно легко заполняются молекулярными жидкостями: водой, этиловым спиртом, ацетоном, бензолом и др. Молекулярные жидкости являются типичными объектами, в которых наблюдаются различные виды вынужденного рассеяния света: вынужденное комбинационное рассеяние (ВКР), вынужденное рассеяние Мандельштама-Бриллюэна (ВРМБ) и др. Об особенностях спонтанного комбинационного рассеяния света в глобулярных фотонных кристаллах (искусственных опалах) сообщалось в работе [6]. Спонтанное рассеяние Мандельштама-Бриллюэна в глобулярных фотонных кристаллах наблюдалось ранее [7]. Исследований вынужденного рассеяния света в глобулярных фотонных кристаллах до настоящего времени не проводилось. В данной работе впервые сообщается об экспериментальном наблюдении вынужденного рассеяния света в опаловых матрицах и в опаловых наноккомпозитах, заполненных молекулярными жидкостями. В соответствии с глобулярной структурой опаловых матриц и соответствующих им наноккомпозитов, такой вид вынужденного рассеяния света мы будем называть вынужденным глобулярным рассеянием света (ВГР).

2.Методика эксперимента.

В качестве источника возбуждающего излучения нами использовался лазер на рубине (длина волны генерации - 0,69 мкм), работающий в режиме модуляции добротности. Длительность гигантского импульса лазера составляла: $\tau = 20$ нс; максимальная энергия в импульсе равнялась 0,3 Дж.; расходимость $3,5 \cdot 10^{-4}$ рад.; ширина линии генерации $0,015 \text{ см}^{-1}$.

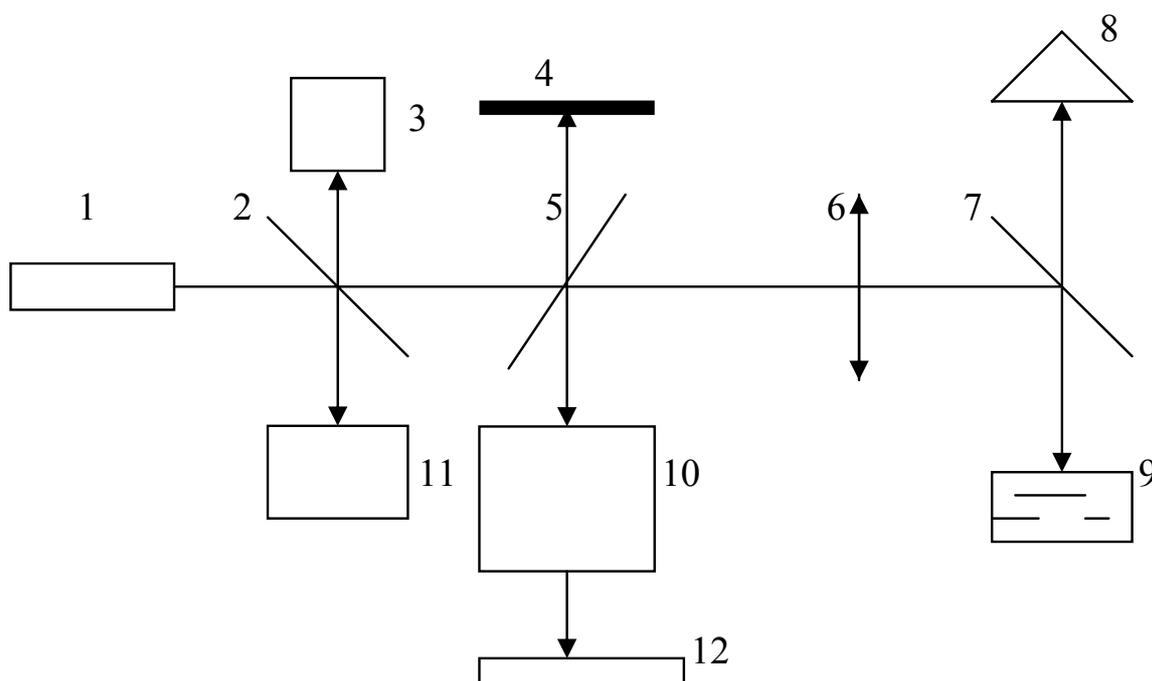


Рис. 2. Принципиальная схема эксперимента для наблюдения ВГР при геометрии «назад»;

1- рубиновый лазер; 2,5,6 - поворотные пластины; 3,8-измерители энергии вынужденного рассеяния света; 4-зеркало; 6-фокусирующая оптика; 9-исследуемый образец фотонного кристалла; 10-интерферометр Фабри-Перо; 11 – измеритель энергии возбуждающего излучения; 12- устройство для регистрации спектров.

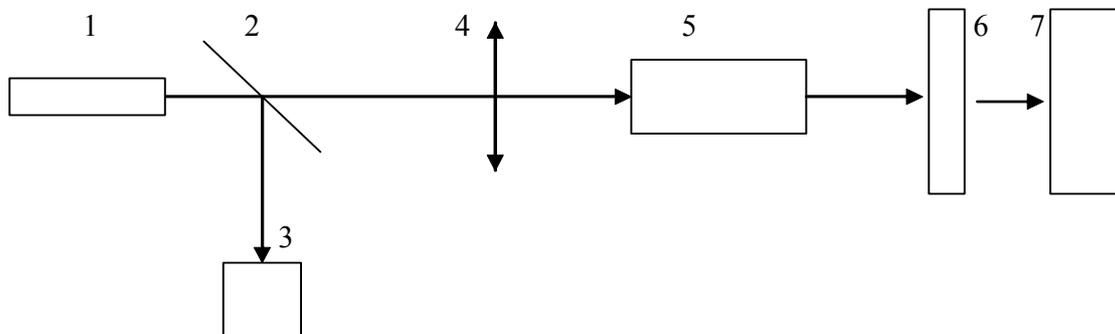


Рис. 3. Принципиальная схема эксперимента для наблюдения ВГР при геометрии «вперёд».

1- рубиновый лазер; 2- поворотная пластина; 3 – измеритель энергии возбуждающего излучения; 4 - фокусирующая оптика; 5 - исследуемый образец фотонного кристалла; 6 - интерферометр Фабри – Перо; 7 - устройство для регистрации спектров.

Исследования были выполнены для двух геометрий рассеяния: «вперёд» (0 – градусное рассеяние) и «назад» (180 – градусное рассеяние). Соответствующие схемы эксперимента приведены на Рис 2 и 3. Возбуждение ВГР осуществлялось сфокусированным излучением рубинового лазера. Измерения проводились для линз с различными фокусными расстояниями (50, 90, 150 мм) и для различных положений исследуемого образца относительно фокусирующей оптики. Это позволяло проводить измерения для различных плотностей мощности на входе в исследуемый образец и для различных распределений поля внутри образца. В качестве образца использовался кристалл искусственного опала, ряд измерений проводился для кристаллов, в которых пустоты между глобулами были заполнены нелинейными жидкостями (ацетон, этанол). Спектральные измерения проводились с

помощью интерферометра Фабри-Перо с базой 12 мм, что соответствовало расстоянию между порядками $0,42 \text{ см}^{-1}$.

3. Результаты эксперимента и их обсуждение.

Были получены спектры соответствующие возбуждающему излучению и стоксовым компонентам, обусловленным осцилляциями кварцевых глобул и наночастиц молекулярных жидкостей, присутствующих между глобулами.

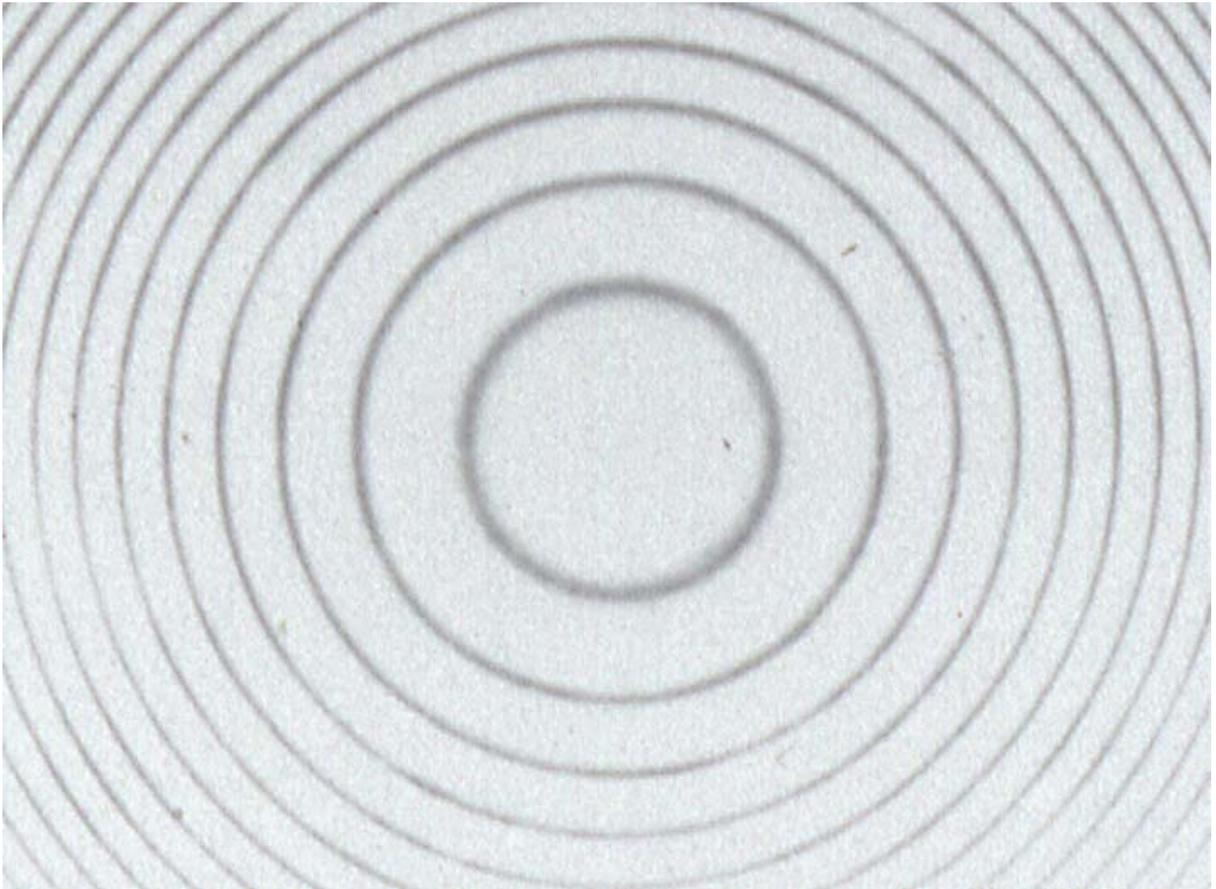


Рис. 4. Интерферограмма спектра излучения линии генерации лазера на рубине ($\lambda=694 \text{ нм}$).

На Рис. 4 представлена интерферограмма спектра генерации рубинового лазера. При этом наблюдается система «тонких» концентрических колец, ширина которых характеризует спектральную ширину линии генерации, составляющую в нашем случае $0,015 \text{ см}^{-1}$.

Для незаполненной опаловой матрицы при геометрии рассеяния «назад» (см. Рис.2) в спектре обнаружилась (см. Рис. 5) лишь **одна стоксова** компонента, сдвинутая относительно компоненты, соответствующей возбуждающему излучению на величину $0,05 \text{ см}^{-1}$. Таким образом, в этом случае наблюдаются две системы колец, соответствующие рубину и ВГР – «назад».



Рис. 5. Интерферограмма спектра ВГР в исходном (незаполненном молекулярной жидкостью) фотонном кристалле в сравнении со спектром генерации лазера на рубине ($\lambda=694 \text{ нм}$) при геометрии рассеяния «назад» (см.рис.2).

Отметим, что, если убрать зеркало 4 на схеме, представленной на Рис. 2, то на интерферограмме компонента, соответствующая возбуждающему излучению рубинового лазера, пропадает (см. Рис. 6). При этом на интерферограмме остаётся лишь одна компонента, соответствующая ВГР – «назад». Это свидетельствует о высокой степени когерентности ВГР (строго назад) в данном случае и о диффузном характере рассеяния света на несмещенной частоте. При этом ширина линии ВГР близка к ширине линии возбуждающего излучения и составляет $0,015 \text{ см}^{-1}$.

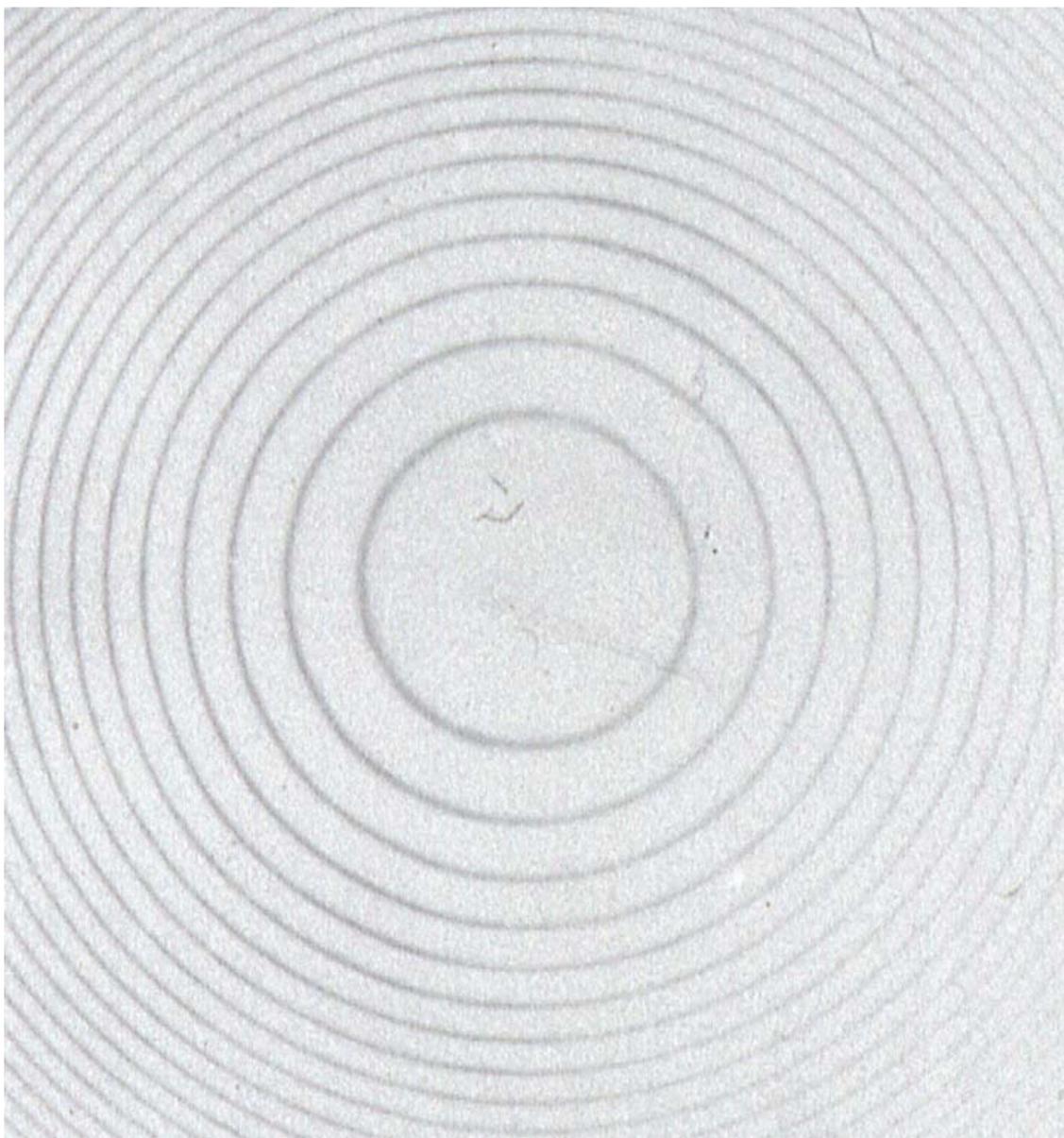


Рис. 6. Интерферограмма спектра ВГР в незаполненном жидкостью фотонном кристалле без сравнения со спектром генерации лазера на рубине ($\lambda=694$ нм) при геометрии рассеяния «назад».

Для нанокompозитных фотонных кристаллов, заполненных этиловым спиртом, при геометрии рассеяния «назад» (см. Рис. 2) на интерферограммах наблюдались (см. Рис. 7) два типа стоксовых колец ВГР. В этом случае одна система колец (более интенсивных) соответствует ВГР в чистой опаловой матрице, другая – ВГР в наночастицах спирта, расположенных в пустотах опаловой матрицы. Кольца, соответствующие возбуждающему излучению,

отсутствуют, так как зеркало 4 (см. Рис.2) было снято. Таким образом, для такой геометрии эксперимента наблюдались две стоксовы компоненты, соответствующие вынужденным осцилляциям глобул кварца и наночастиц этилового спирта соответственно. Ширина линий ВГР для обеих компонент сравнима с шириной линии возбуждающего излучения и составляет $0,015 \text{ см}^{-1}$.

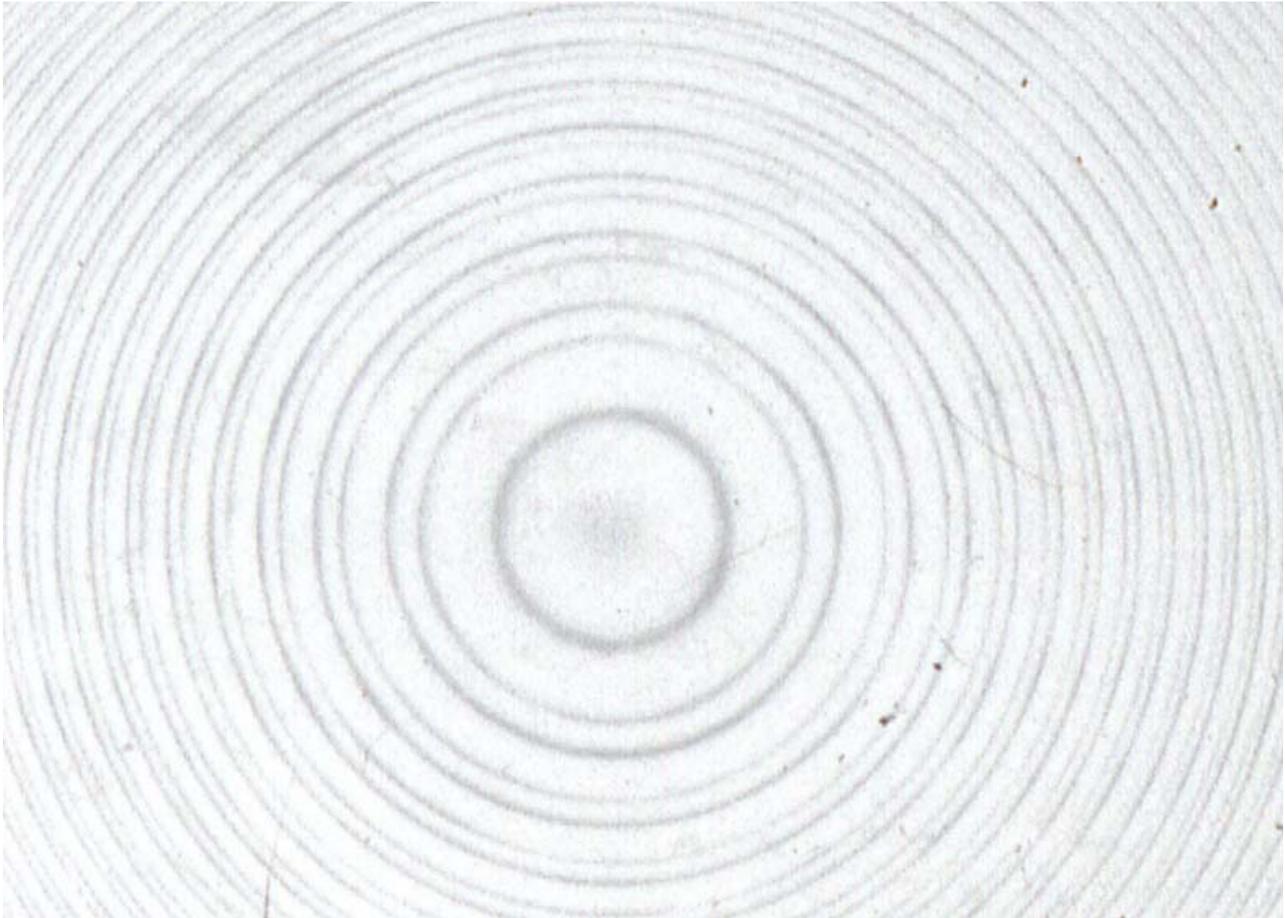


Рис. 7. Интерферограмма спектра ВГР в заполненном этиловым спиртом фотонном кристалле без сравнения со спектром генерации лазера на рубине ($\lambda=694 \text{ нм}$) при геометрии рассеяния «назад». Наблюдаются две стоксовы компоненты ВГР. Кольцо, соответствующее лазерному излучению, не регистрируется, т.к. зеркало (см .рис.2) отсутствует.

Для сравнения вида спектров ВГР и ВРМБ нами были получены при геометрии рассеяния «назад» (см. Рис.2) спектры ВРМБ в кварцевых кюветах,

заполненных ацетоном или этиловым спиртом соответственно. При этом входное окно кюветы было убрано, чтобы предотвратить его влияние на возбуждающее и рассеянное излучение и избежать разрушения материала окна. В этом случае (в условиях эксперимента) также наблюдаются одна или две стоксовы компоненты вынужденного рассеяния света, соответствующие возбуждению бегущих продольных акустических мод, распространяющихся в жидкости. Сдвиг частоты стоксовой компоненты ВРМБ оказывается близким к соответствующему сдвигу одной из компонент ВГР в заполненном ацетоном или этиловым спиртом глобулярном фотонном кристалле. На рис. 8 и 9 представлены интерферограммы спектров ВРМБ в ацетоне и в этиловом спирте.

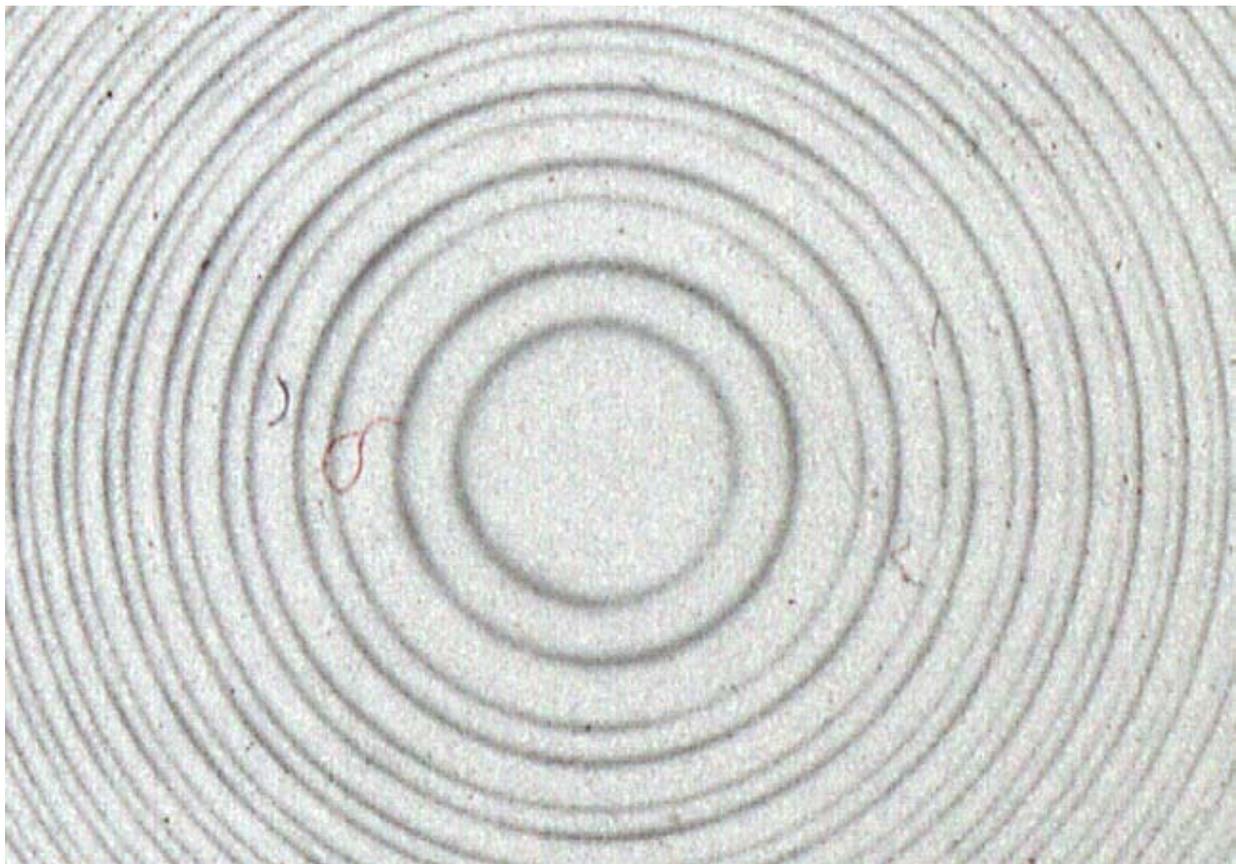


Рис. 8. Интерферограмма спектра ВРМБ в ацетоне. Кольца, соответствующие рубиновому лазеру, отсутствуют, т.к. зеркало 4 (см. рис.2) снято.

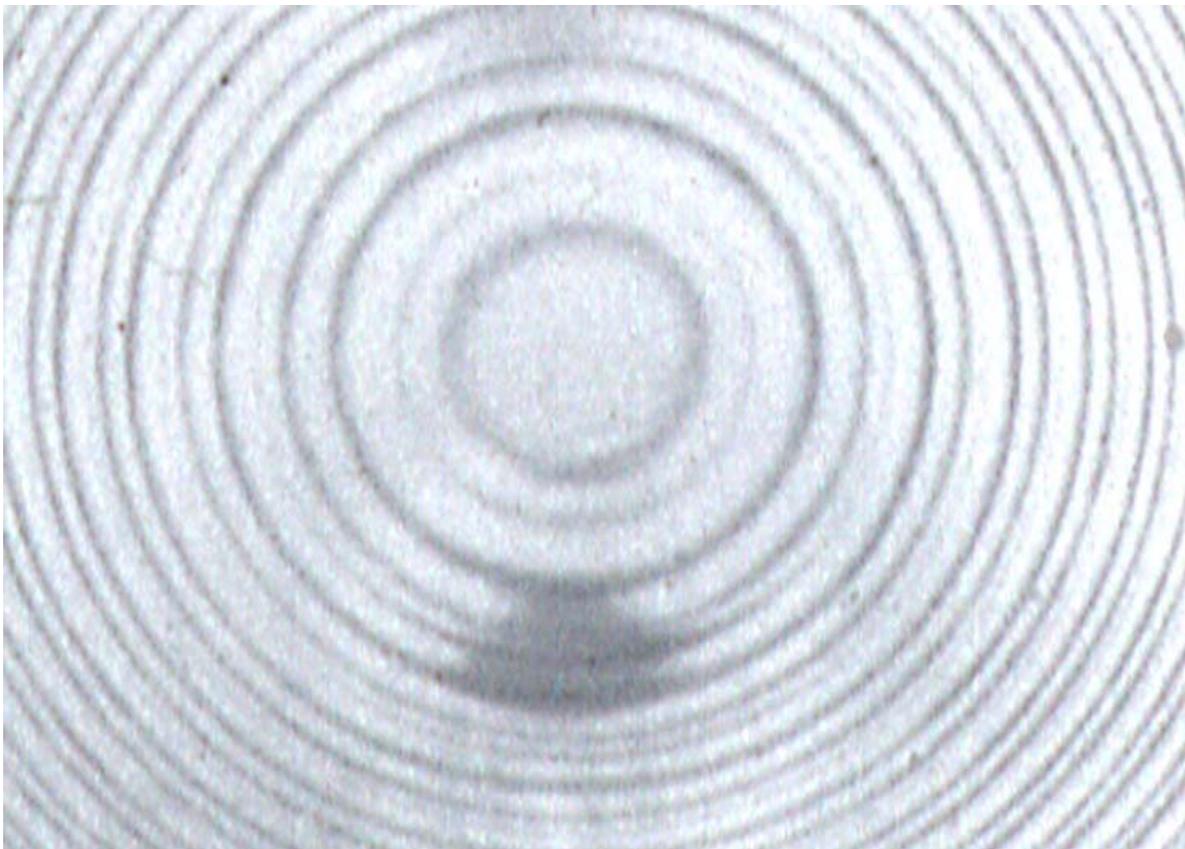


Рис. 9. Интерферограмма спектра ВРМБ в этиловом спирте при геометрии рассеяния «назад». Кольца на интерферограмме соответствуют лазерному излучению, первой стоксовой компоненте (наиболее интенсивное кольцо) и второй стоксовой компоненте.

Заметим также, что в случае ВРМБ вообще невозможно наблюдать вынужденное рассеяние при 0-градусной геометрии, в то время как для ВГР это оказалось возможным.

Следует отметить, что при насыщении опаловой матрицы этиловым спиртом или ацетоном, образец становится практически прозрачным, так как при этом показатели преломления компонентов несущественно отличаются.

Это позволило осуществить наблюдение ВГР при 0-градусной геометрии (ВГР – «вперёд»).

На рис.10 представлен спектр ВГР в фотонном кристалле, заполненном ацетоном, при геометрии рассеяния «вперед» (см. рис.3).

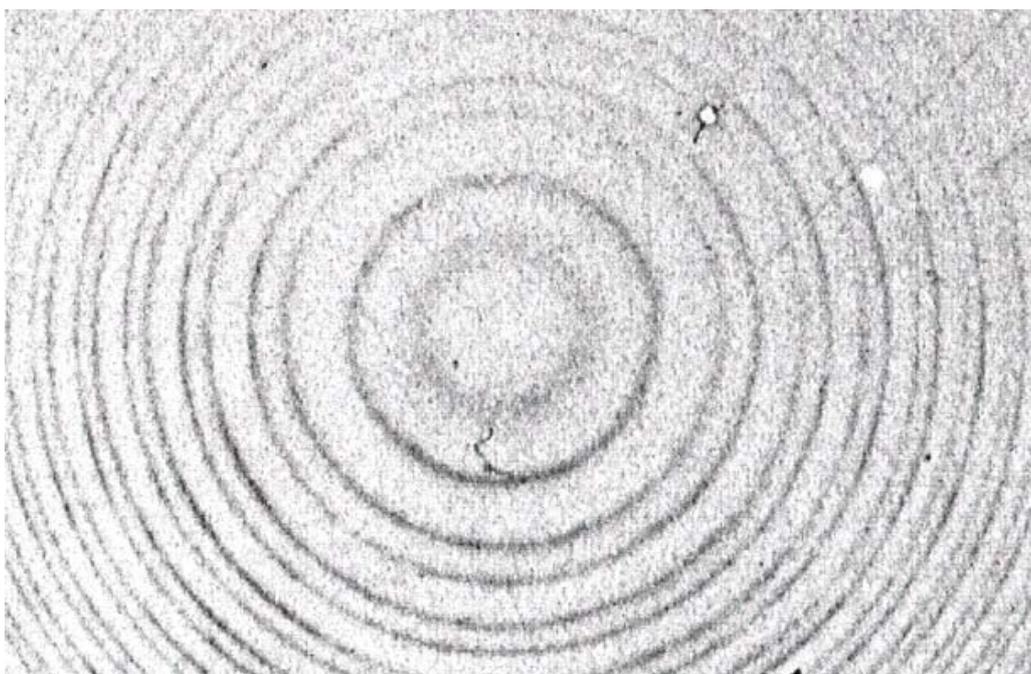


Рис. 10. Интерферограмма спектра ВГР в заполненном ацетоном фотонном кристалле в сравнении со спектром вынужденного излучения линии генерации лазера на рубине (кольцо большего радиуса) при геометрии рассеяния «вперед».

В таблице 1 приведены частотные сдвиги стоксовой компоненты для различных геометрий эксперимента. Как видно из приведенной таблицы, значения стоксовых сдвигов частот ВГР близки к соответствующим сдвигам частот ВРМБ, но, тем не менее, отличаются от последних.

Таблица 1. Значения стоксовых сдвигов частот ВГР для различных геометрий рассеяния.

Геометрия рассеяния	ν , см ⁻¹	Число стоксовых компонент
ВГР – «назад» в исходном кристалле	0.05	1
ВГР – «назад» в заполненном ацетоном кристалле	0.05	1
ВГР – «назад» в заполненном этиловым спиртом кристалле	0.05	2
	0.17	
ВРМБ в ацетоне	0.16	2
	0.32	
ВРМБ в этаноле	0.17	2
	0.34	
ВГР – «вперёд» в заполненном ацетоном кристалле	0.16	1

4. Заключение.

Таким образом, нами обнаружено вынужденное рассеяние света в глобулярных фотонных кристаллах, созданных на основе опаловых матриц. Эффект ВГР наблюдался как для незаполненных искусственных опалов, так и для опаловых нанокомпозитов, в которых пустоты между глобулами заполнены молекулярными жидкостями: ацетоном или этиловым спиртом. Эффект ВГР наблюдался при возбуждении гигантским импульсом лазера на рубине с пиковой мощностью в исходном пучке 10^7 Вт, при фокусировке

возбуждающего излучения в вещество линзой с фокусным расстоянием 50 мм. Измерения спектров ВГР проводились в условиях отсутствия пробоя в веществе.

Следует отметить, что при дальнейшем повышении плотности мощности возбуждающего излучения в обсуждаемых объектах следует ожидать проявления и других нелинейных процессов рассеяния света, в частности, вынужденного комбинационного рассеяния света, четырёхфотонных параметрических процессов и т.д.

Работа выполнена при поддержке проектов РФФИ: №04-02-16237 и №05-02-16205.

Авторы данной работы выражают благодарность Самойловичу М. И. за предоставление образцов опаловых матриц для исследований.

Литература.

1. Yablonovitch E. Phys. Rev. Lett., **58**, p. 2059 (1987).
2. John S. Phys Rev. Lett. **58** (1987) 2486.
3. V.N. Astratov, V.N. Bogomolov, A.A. Kaplyanskii, A.V. Prokofiev, L.A. Samoilovich, S.M. Samoilovich, Yu.A. Vlasov. Nuovo Cimento, D **17**, 1349 (1995).
4. Baryshev A.V., Kaplyansky A.A., Kosobukin V.A., Limonov M.F., Samusev K.B., Usvyat D.E. Solid State Phys. **45** (2003) 434 (in Russian).
5. Vlasov Yu. A., Astratov V. N., Baryshev A. V., Kaplyanskii A. A., Karimov O. Z. and Limonov M.F. Phys. Rev. E **61** (2000) 5784.
6. V.S. Gorelik, L.I. Zlobina, P.P. Sverbil', A.B. Fadyushin, and A.V. Chervyakov. Journal of Russian Laser Research. 2005. V. 26. № 3. P. 211-227.
7. M.H. Kuok, H.S. Lim, S.C. Ng, N.N. Liu, and Z.K. Wang. Brillouine Study of the Quantization of Acoustic Modes in Nanospheres // Phys. Rev. Lett. 2003. V. **90**. 255502.