

РОССИЙСКАЯ АКАДЕМИЯ НАУК

**ФИЗИЧЕСКИЙ
ИНСТИТУТ**



*имени
П.Н.Лебедева*

Ф И А Н

ПРЕПРИНТ

14

В.С. ГОРЕЛИК, А.А. ЕСАКОВ, А.Б. ФАДЮШИН

**СВЕЧЕНИЕ ГЛОБУЛЯРНЫХ ФОТОННЫХ
КРИСТАЛЛОВ ПРИ УЛЬТРАФИОЛЕТОВОМ
ВОЗБУЖДЕНИИ**

МОСКВА 2006

СВЕЧЕНИЕ ГЛОБУЛЯРНЫХ ФОТОННЫХ КРИСТАЛЛОВ ПРИ УЛЬТРАФИОЛЕТОВОМ ВОЗБУЖДЕНИИ.

В.С. Горелик, А.А. Есаков, А.Б. Фадюшин

Аннотация.

Сообщается об обнаружении свечения глобулярных фотонных кристаллов – искусственных опалов – при их облучении ультрафиолетовыми источниками света ($\lambda=363,5$ и $381,5$ нм). Показано, что спектр свечения искусственных опалов находится в диапазоне 425-600 нм. При этом обнаруживается максимум интенсивности свечения вблизи возбуждающей линии (низкочастотное свечение) и дополнительные максимумы интенсивности в стоксовой области. Установлено, что форма спектра свечения зависит от длины волны возбуждающего излучения и толщины образца. Наблюдаемое вторичное излучение вблизи частоты возбуждающей линии может быть объяснено как проявление комбинационного рассеяния света, эффективность которого возрастает вследствие возрастания плотности фотонных состояний вблизи края запрещённой фотонной зоны. Наблюдаемое свечение в стоксовой области вдали от возбуждающей линии объясняется как проявление параметрических процессов рассеяния: распада кванта возбуждающего излучения на два других кванта.

Работа выполнена при поддержке РФФИ (проекты №04-02-16237 и №05-02-16205).

1. Введение.

Термин «фотонные кристаллы» был предложен в конце прошлого столетия [1, 2]. Структуры такого типа характеризуются присутствием сверхрешетки, период которой соизмерим с длиной волны излучения. Характерным свойством фотонных кристаллов является наличие в их спектре разрешённых и запрещённых фотонных зон, во многом напоминающих зоны электронных состояний в обычных кристаллах.

Особый интерес представляют глобулярные фотонные кристаллы, построенные из глобул (шаров) одинакового радиуса. Типичным примером такого кристалла является искусственный опал, основным «строительным элементом» которого являются шары аморфного кварца размером 200-400 нм, образующие ГЦК решетку. Ранее неоднократно проводились исследования спектров отражения и пропускания опалов с целью выявления в них запрещенных фотонных зон [3, 4]. В данной работе впервые сообщается о наблюдении свечения искусственных опалов без специально введенных примесей под действием ультрафиолетовых источников возбуждающего излучения. Анализируется спектр такого свечения и предлагается объяснение особенностей, наблюдаемых в этом спектре.

2. Методика эксперимента.

Исследования оптических свойств проводились с двумя пластинами искусственных опалов толщинами 0,7 и 2,0 мм и сторонами порядка 10 мм вырезанными в плоскости (111). Для установления положения запрещенной фотонной зоны с исследуемыми образцами были выполнены исследования спектров зеркального отражения широкополосного излучения.

Измерения спектров отражения проводились на установке, блок-схема которой показана на рис. 1. В качестве источника света (1) использовалась галогенная лампа накаливания мощностью 100 Вт. Излучение лампы собиралось линзовой системой и направлялось на вход коллиматора гониометра ГС-5 (2), на выходе которого располагалась ирисовая диафрагма. Сформированный таким образом достаточно интенсивный пучок света

диаметром 3 мм с расходимостью менее 1" направлялся на образец опала, отражающая поверхность которого располагалась в центре столика гониометра перпендикулярно его плоскости.

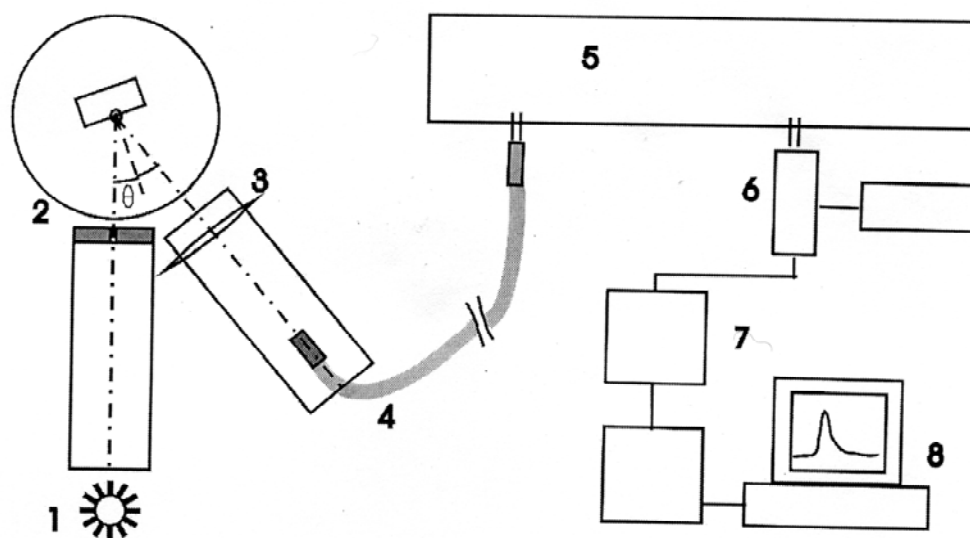


Рис.1. Блок-схема установки для измерения спектров отражения. 1 - источник света, 2 - гониометр ГС-5, 3 – линза, 4 - стеклянный волоконно-оптический жгут, 5 - монохроматор спектрометра ДФС-12, 6 - фотоумножитель типа ФЭУ-79, 7 - аналого-цифровой преобразователь, 8 - ПЭВМ.

Изменение угла падения достигалось поворотом столика гониометра. Точность измерения угла падения (отражения) составляла 5". Отраженный световой пучок проецировался на торец стеклянного волоконно-оптического жгута (4) диаметром 3 мм с помощью линзы (3) с фокусным расстоянием 7 см и диаметром 5 см, расположенной на двойном фокусном расстоянии от образца и торца жгута. Это позволяло собирать как зеркальную, так и диффузную компоненты отраженного света. Второй торец волоконно-оптического жгута располагался в плоскости входной щели монохроматора спектрометра ДФС-12 (5). Регистрация полезного оптического сигнала с выходной щели монохроматора осуществлялась фотоумножителем типа ФЭУ-79 (6). После предварительного усиления аналогового сигнала с ФЭУ и преобразования его в цифровой код аналого-цифровым преобразователем (7) он регистрировался в режиме счета фотонов с накоплением и поступал в ПЭВМ (8). Количественные измерения были проведены для углов падения

$\theta=20, 30$ и 45° . Для получения истинных спектров отражения от поверхности фотонного кристалла интенсивность наблюдаемого спектра отражения делилась на спектр отражения алюминиевого зеркала при тех же условиях освещения.

Это позволило исключить влияние монохроматора и источника излучения (галогенной лампы) на полученный спектр. Измерения для угла $\theta=5^\circ$, в силу конструктивных особенностей гониометра, не использовались для определения абсолютного значения коэффициента отражения и имели качественный характер. В работе изучались образцы опалов, состоящих из монодисперсных шарообразных частиц $\alpha\text{-SiO}_2$, предоставленные М.И. Самойловичем. Измеренные спектры отражения характеризовались асимметричными полосами отражения с параметрами, зависящими от угла падения (см. рис.2). Для чистого синтетического опала максимумы отражения для углов $\theta=30, 45$ и 60° наблюдались на длинах волн 506, 482 и 445 нм. Коэффициент отражения для угла $\theta=20^\circ$ составлял 25%. При увеличении угла падения коэффициент отражения уменьшался и составлял при 30° – 24%, а при 45° – 18%.

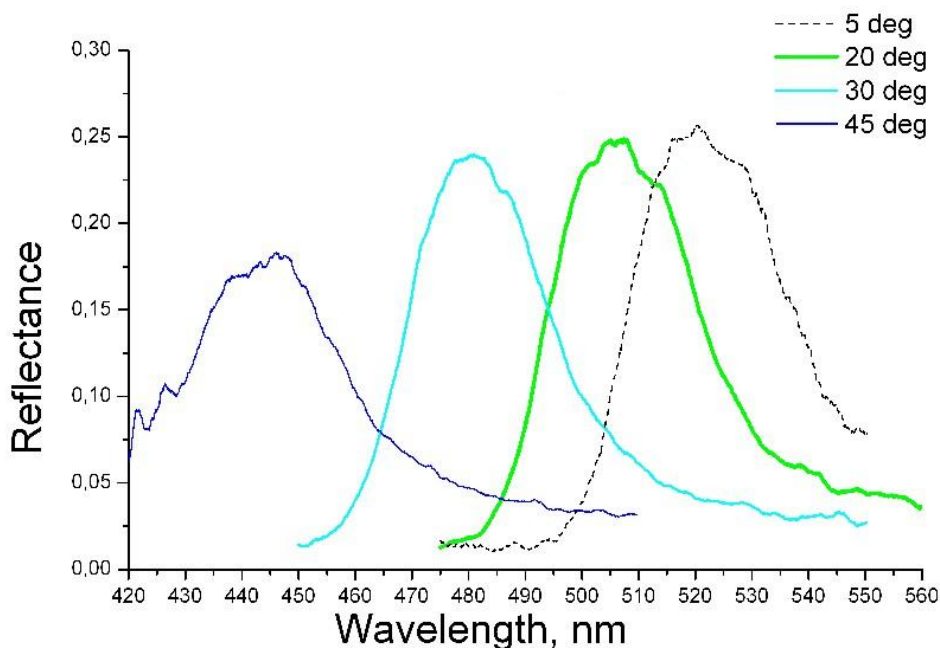


Рис. 2. Спектры отражения фотонных кристаллов без заполнения для углов $\theta=5, 20, 30$ и 45° .

Как видно из рис.2, полосы отражения имеют асимметричную форму, а их спектральное положение и интенсивность зависят от угла падения: С ростом угла падения полоса отражения смещается в область более коротких длин волн, а максимальное значение коэффициента отражения при этом уменьшается. Кроме того, при увеличении угла падения наблюдалось заметное уширение полосы отражения: при углах 20° и 30° ширина спектральной полосы составляла примерно 30 нм, а при угле 45° – 36 нм.

Спектры вторичного излучения в аморфном кварце изучались ранее при возбуждении коротковолновым электромагнитным излучением с учетом большой ширины запрещенной зоны этого материала. Как выяснилось, при возбуждении линией 255,3 нм (вторая гармоника линии генерации лазера на парах меди) в спектре фотолюминесценции аморфного кварца типа КВ присутствует пик в области 300 нм и сравнительно слабый максимум вблизи 380 нм.

В данной работе в качестве источников возбуждения вторичного излучения использовалось широкополосное излучение полупроводниковых светодиодов с максимумами в области 363,5 и 381,5 нм и средней мощностью 30-40 мВт. Обычная фотолюминесценция в аморфном кварце, обусловленная присутствием в ней дефектов, не должна проявиться в исследуемых образцах искусственных опалов при выбранных источниках возбуждающего излучения.

Схема использованной экспериментальной установки для анализа спектров свечения показана на рис.3. Излучение от светодиода с помощью световода диаметром 2 мм подводилось к поверхности пластин опалов толщиной 0,7 и 2,0 мм. Вторичное излучение собиралось с поверхности, противоположной освещаемой, с помощью кварцевого световода с поперечным диаметром светопроводящего канала, равным 200 мкм. Этим световодом вторичное излучение подводилось к миниатюрному полихроматору FSD8, при этом входной торец световода служил в качестве входной щели полихроматора. Спектр вторичного излучения

регистрировался с помощью ПЗС-линейки, являющейся частью полихроматора.

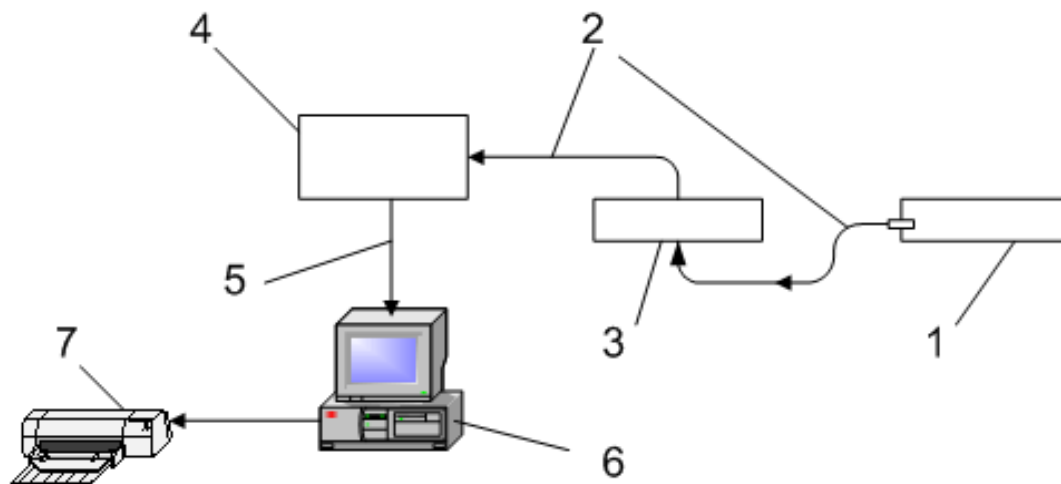


Рис.3. Установка для анализа вторичного излучения в искусственных опалах. 1 - источник возбуждающего излучения; 2 - кварцевый световод; 3 - кювета с исследуемым веществом; 4 - миниполихроматор; 5 - кабель; 6 - компьютер; 7 - принтер.

Оптическая и спектральная характеристика используемого полихроматора обеспечивала высокую чувствительность метода. В наших экспериментах время экспозиции для наблюдения свечения опала, возникающего под действием возбуждающего излучения, составляло 0.1-10с.

3. Результаты экспериментальных исследований.

На рис.4 приведен спектр свечения искусственного опала, имеющего вид плоскопараллельной пластины толщиной 0,7 мм при возбуждении вторичного излучения ультрафиолетовым светодиодом с длиной волны 363,5 нм. Максимумы свечения при этом наблюдались на длинах волн $\lambda=447,3$ и 472,4 нм. Интенсивность свечения при этом составила примерно 0,1 от интенсивности возбуждающего излучения.

На рис.5 приводится спектр свечения пластины опала толщиной 2,0 мм при возбуждении излучением с длиной волны 363,5 нм. Как видно из рис. 5, спектр свечения в этом случае характеризуется увеличением ширины полосы и изменением положения ее максимума ($\lambda=477,7$ нм). В низкочастотной области при этом свечение не наблюдается, что свидетельствует о процессах

многократного рассеяния возбуждающего излучения в кристаллах толщиной 2,0 мм.

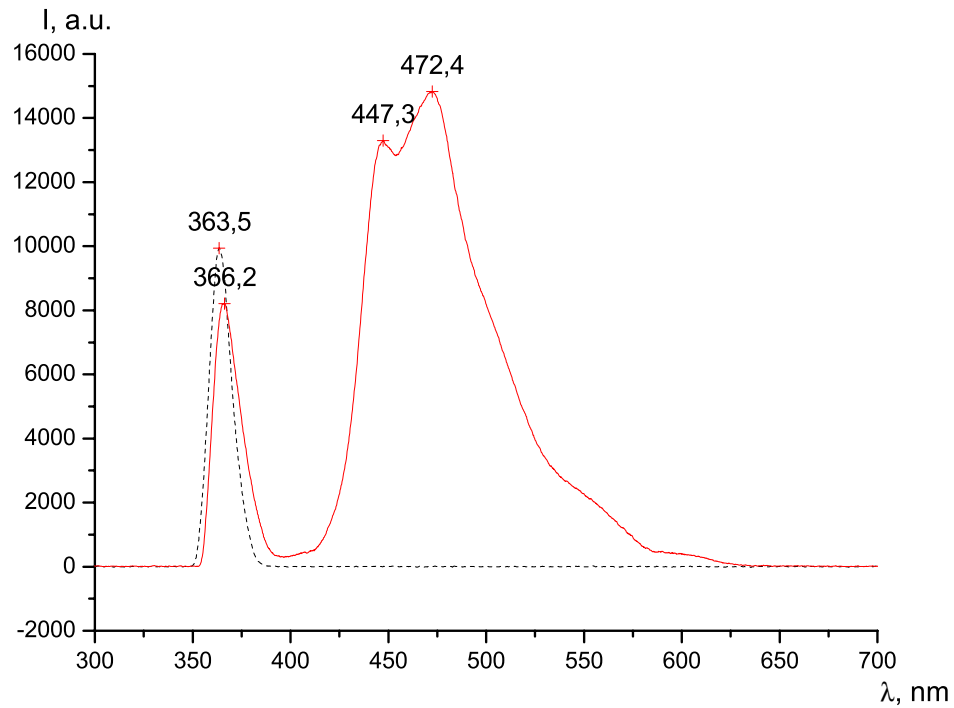


Рис. 4. Зависимость интенсивности свечения пластины опала толщиной $t=0,7$ мм ($\lambda_0=363,5$ нм) от длины волны. Пунктиром показан спектр возбуждающего излучения.

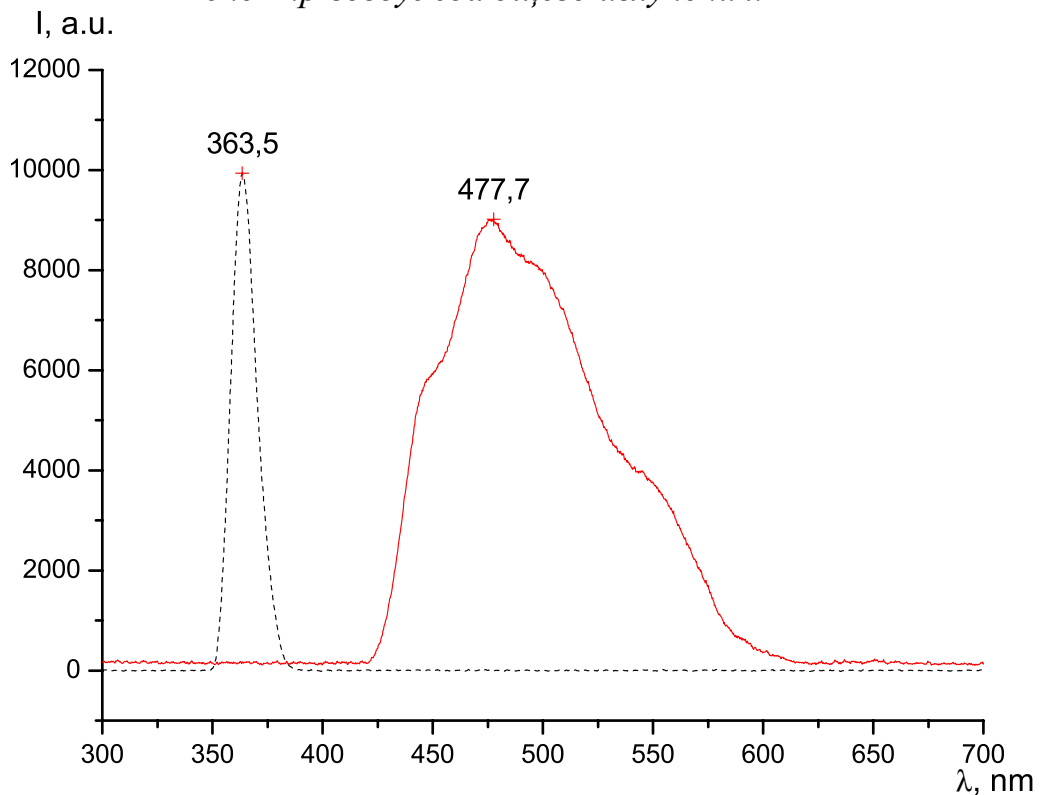


Рис. 5. Спектр свечения пластины опала толщиной $t=2,0$ мм от длины волны при возбуждении светодиодом с максимумом излучения на длине волны $\lambda_0=363,5$ нм. Пунктиром показан спектр возбуждающего излучения.

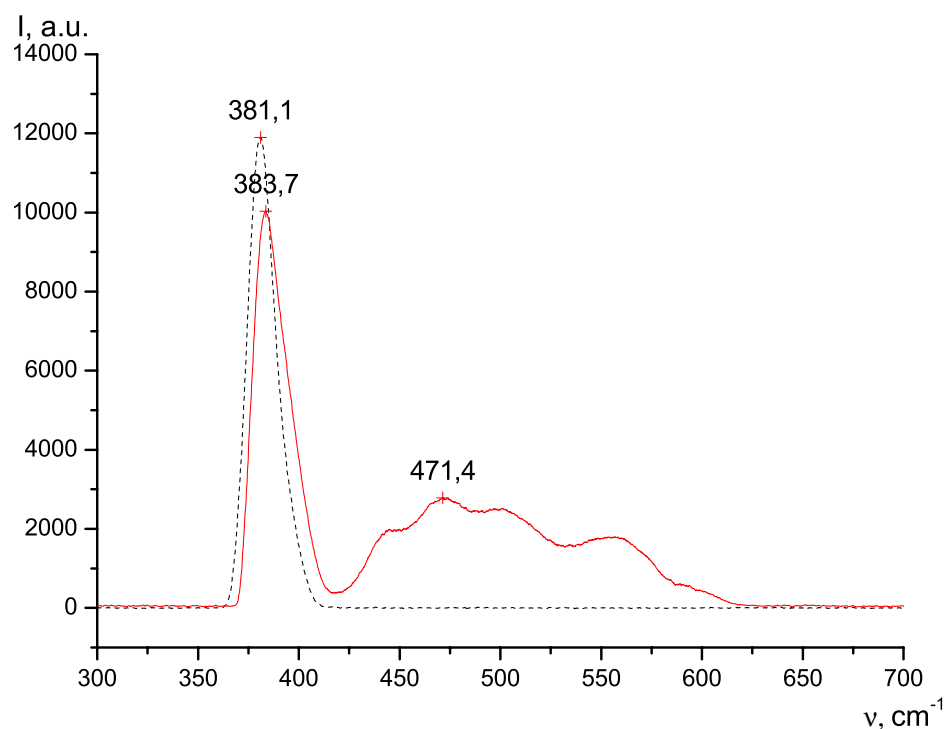


Рис. 6. Спектр вторичного излучения опала толщиной $t=0,7$ мм при возбуждении светодиодом с максимумом излучения на длине волны $\lambda_0 = 381,5$ нм. Пунктиром показан спектр возбуждающего излучения.

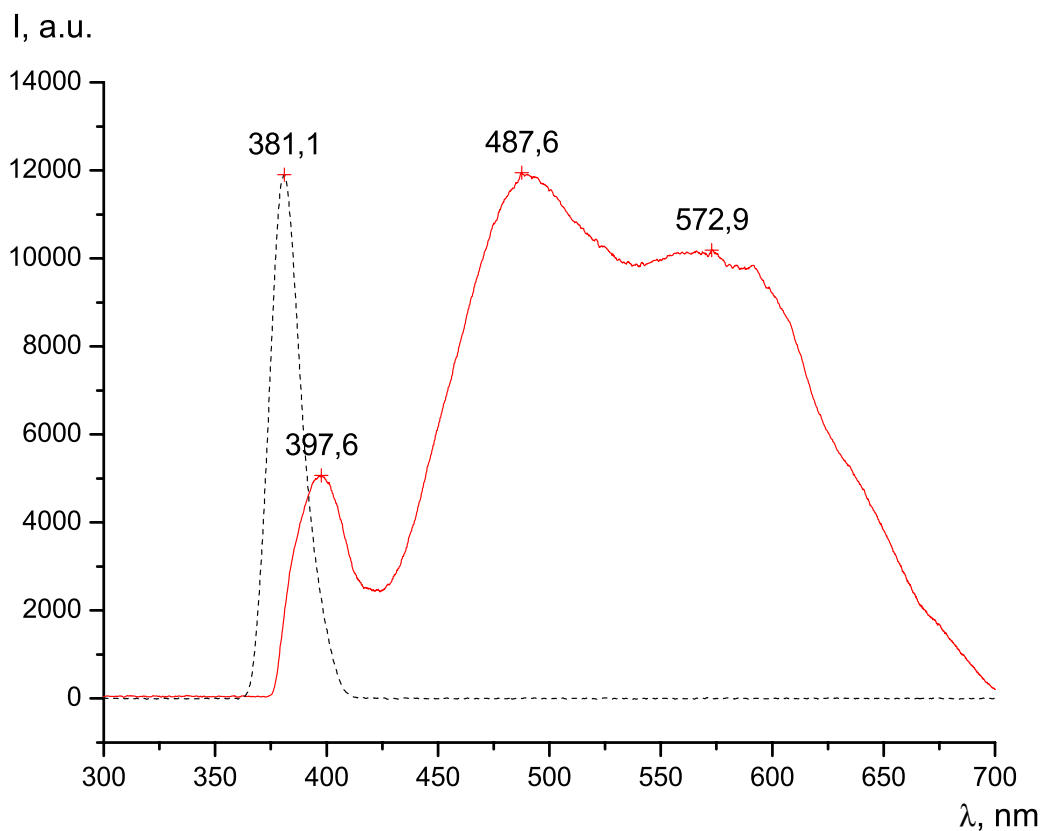


Рис. 7. Спектр вторичного излучения опала толщиной $t= 2,0$ мм при возбуждении светодиодом с максимумом излучения на длине волны $\lambda_0 = 381,5$ нм. Пунктиром показан спектр возбуждающего излучения.

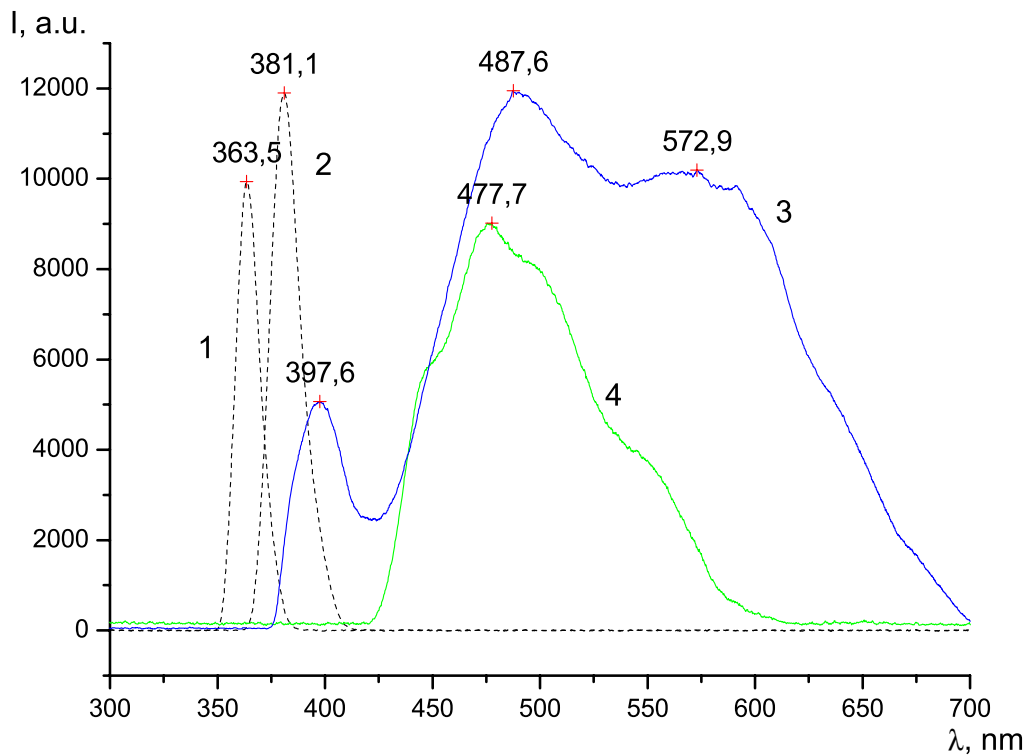


Рис. 8. Сравнение спектров вторичного излучения образцов опала ($t=2,0$ мм) возбуждаемых излучением с длинами волн $\lambda_0=363,5$ нм и $\lambda_0=381,5$ нм. 1, 2 - спектры возбуждающего излучения $\lambda_0=363,5$ и $381,5$ нм соответственно; 3- спектр вторичного излучения в опале при возбуждении $\lambda_0=381,5$ нм; 4- спектр вторичного излучения в опале при возбуждении $\lambda_0=363,5$ нм.

Рис. 6 и 7 иллюстрируют вид спектра свечения пластин опалов толщиной 0,7 и 2,0 мм соответственно при возбуждении излучением с длиной волны 381,5 нм. Как видно из этих рисунков, вид спектров в этом случае отличается от вида спектров, приведенных на рис. 4 и 5. Рис. 8 иллюстрирует аналогичные изменения спектров для опалов толщиной 2,0 мм. Как видно из сравнения рис.4 – 8, при изменении длины волны возбуждающего излучения от 363,5 до 381,5 нм увеличивается общая ширина полосы спектров свечения и число наблюдаемых полос.

Рис. 9 и 10 иллюстрируют изменение вида спектров при увеличении толщины опала от 0,7 до 2,0 мм. Как видно из этих рисунков, форма спектров свечения с изменением толщины образца изменяется существенным образом: в целом спектр смещается в длинноволновую область.

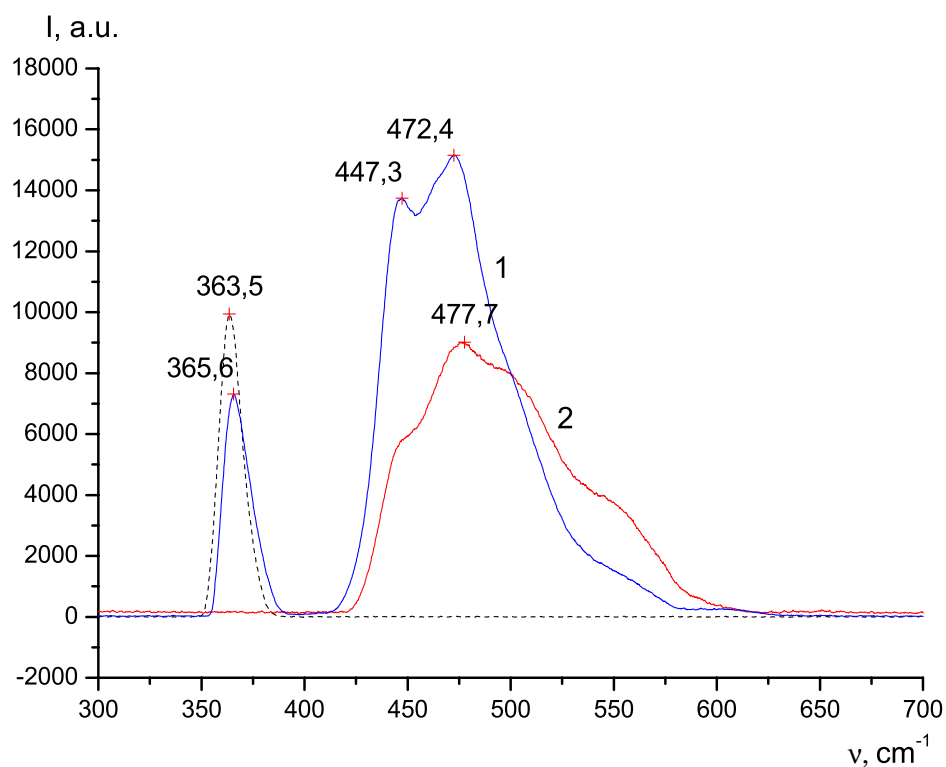


Рис. 9. Сравнение спектров свечения образцов опала ($t=0,7$ и $2,0$ мм) при возбуждении на длине волны $\lambda_0 = 363,5$ нм. 1-спектр вторичного излучения в опале толщиной $t=0,7$ мм; 2-спектр вторичного излучения в опале при $t=2,0$ мм. Пунктиром показан спектр возбуждающего излучения.

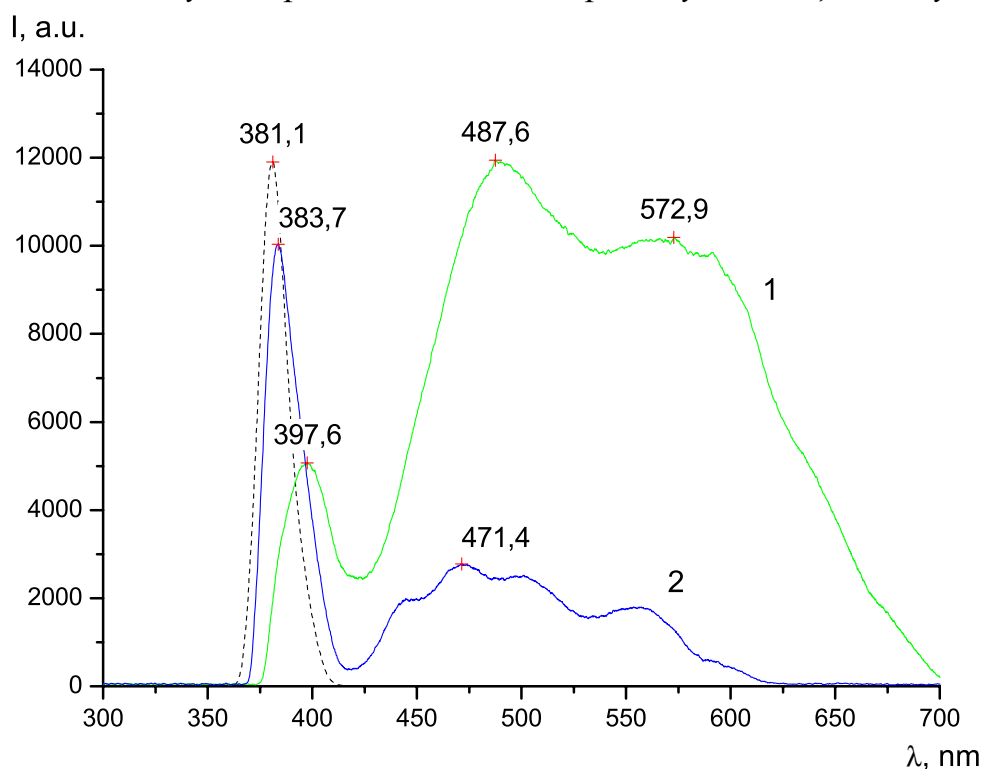


Рис. 10. Сравнение спектров свечения образцов опала ($t=0,7$ и $2,0$ мм) при возбуждении на длине волны $\lambda_0 = 381,5$ нм. 1-спектр вторичного излучения в опале при $t=0,7$ мм; 2-спектр вторичного излучения в опале при $t=2,0$ мм. Пунктиром показан спектр возбуждающего излучения.

4. Обсуждение полученных результатов.

Таким образом, нами установлено, что в спектрах зеркального отражения от поверхности искусственных опалов наблюдается резкий максимум, положение которого зависит от угла падения: при возрастании угла падения положение максимума смещается в коротковолновую область спектра. Присутствие максимума отражения свидетельствует о проявлении в опалах характерного свойства фотонных кристаллов – так называемой стоп-зоны, положение которой зависит от направления волнового вектора в k -пространстве.

Анализ полученных спектров зеркального отражения проводился с использованием известного соотношения для Брэгговской дифракции света в кристалле: $\lambda(\theta) = 2d\sqrt{\langle n \rangle^2 - \sin^2 \theta}$, где d – расстояние между плоскостями в кристалле ($d = \sqrt{\frac{2}{3}}a$, a – диаметр сфер, из которых сложен кристалл), θ – угол падения света на кристалл, $\langle n \rangle = \beta n - (1 - \beta)$ – эффективный показатель преломления синтетического опала; здесь $\beta = 0,79$ – коэффициент заполнения для сфер SiO_2 , $n = 1,47$ показатель преломления аморфного кварца. Диаметр сфер a рассчитывался по положению максимума в спектре отражения для угла $\theta = 5^\circ$ и составил 230 нм.

Наблюдаемые значения полуширины спектра зеркального отражения определяются значением ширины стоп-зоны, а также возможным присутствием разупорядоченных областей кристалла и затуханием электромагнитных волн в реальном фотонном кристалле.

Перейдем к анализу наблюдавшегося свечения искусственного опала под действием ультрафиолетового излучения. Присутствие в спектре свечения низкочастотной полосы вблизи положения максимума возбуждающего излучения (381,5 нм) естественно объяснить как проявление стоксова комбинационного рассеяния (КР). При этом важно отметить, что интенсивность стоксова излучения оказывается сравнимой с интенсивностью возбуждающего излучения. Такой эффект можно классифицировать как

комбинационную опалесценцию, т.е. резкое возрастание вероятности процесса КР. Причиной такого эффекта может быть близость полосы возбуждающего излучения к краю фотонной зоны и, соответственно, пику плотности фотонных состояний. В этом случае скорость электромагнитной волны становится существенно ниже скорости света c_0 в вакууме: $\frac{c_0}{v} \gg 1$.

Другим фактором, приводящим к возрастанию интенсивности вторичного излучения, может служить присутствие в искусственном опале большого числа рассеивающих центров с размерами, близкими к длине волны возбуждающего излучения. Это приводит к диффузному характеру движения фотонов и возрастанию длины их пути в образце.

Особый интерес представляет свечение опала в длинноволновой (стоксовой) области спектра (см. рис.4–10). Возникновение такого свечения можно объяснить процессами параметрического рассеяния света: распадом ультрафиолетового кванта на два других кванта. В центросимметричных кристаллах процессы такого рода запрещены. Однако в данном случае вследствие присутствия большой доли поверхности внутри кристалла такое правило отбора должно нарушаться, так как вблизи поверхности структура решетки всегда является ацентричной.

5. Заключение.

Таким образом, в данной работе обнаружено свечение искусственных опалов при их возбуждении ультрафиолетовыми источниками света. Форма спектра свечения оказалась зависящей от длины волны возбуждающего излучения и от толщины исследуемых образцов. Наблюдаемое вторичное излучение в области низких частот может быть объяснено как проявление однофотонных процессов КР. Вероятность таких процессов в данном случае резко возрастает, т.е. рассеяние приобретает характер комбинационной опалесценции.

Присутствие полосы вторичного излучения вдали от частоты возбуждающей линии в стоксовой области спектра обусловлено процессами

параметрического рассеяния, интенсивность которых модулируется плотностью фотонных состояний исследуемого фотонного кристалла.

Наблюдаемый эффект свечения искусственного опала в стоксовой области может быть использован в дальнейшем для создания излучателей электромагнитных волн в различных областях спектра, параметры которых зависят от размера глобул фотонного кристалла.

Работа выполнена при поддержке РФФИ (проекты №04-02-16237 и №05-02-16205).

Литература.

1. E. Yablonovitch. Phys. Rev. Lett. **58**, 2059 (1987).
2. S. John Phys. Rev. Lett. **58**, 2486 (1987).
3. А.В.Барышев, А.А.Каплянский, В.А.Кособукин, М.Ф.Лимонов, К.Б.Самусев, Д.Е.Усвят. ФТТ **45**, 3, 434 (2003)
4. Yu.A.Vlasov, V.N.Astratov, A.V.Baryshev, A.A.Kaplyansky, Karimov O.Z., M.F.Limonov. Phys. Rev. E **61**, 5784 (2000).