РОССИЙСКАЯ АКАДЕМИЯ НАУК



ПРЕПРИНТ

В.С. ГОРЕЛИК



ОПТИКА ГЛОБУЛЯРНЫХ ФОТОННЫХ КРИСТАЛЛОВ

MOCKBA 2006

Оптика глобулярных фотонных кристаллов.

В.С. Горелик.

Физический институт им. П.Н. Лебедева Российской академии наук.. Москва, Ленинский пр. 53; e-mail:gorelik@sci.lebedev.ru

Аннотация

Приводятся результаты экспериментальных и теоретических исследований оптических свойств глобулярных фотонных кристаллов - новых физических объектов, характеризующихся кристаллической структурой с периодом решётки, существенно превышающим атомные размеры. В качестве глобулярных фотонных кристаллов были использованы матрицы искусственных опалов, состоящие из плотно упакованных глобул кремнезёма, диаметр которых составлял около 200 нм. Приведены оптические спектры отражения таких объектов, характеризующие параметры фотонных зон, присутствующих в данных кристаллах в видимой области спектра. Исследуются идеализированные модели зонной энергетической структуры кристаллов, позволяющие в аналитическом фотонных виде установить дисперсионные зависимости для групповой скорости и эффективной массы фотонов в глобулярном фотонном кристалле. Сообщается о характеристиках вторичного излучения, возникающего в глобулярных фотонных кристаллах под действием монохроматического и широкополосного излучения. Приводятся результаты исследований однофотонно-возбуждаемого замедленного рассеяния, возникающего глобулярных фотонных кристаллов действием под непрерывного В ультрафиолетового излучения и импульсно-периодического лазера на парах меди. Рассмотрены возможности использования глобулярных фотонных кристаллов в качестве активной среды для лазерной генерации в различных спектральных диапазонах. Предложено использовать глобулярные фотонные кристаллы в качестве чувствительных сенсоров в оптоэлектронных устройствах для проведения молекулярного анализа органических и неорганических веществ с использованием современных методов лазерной спектроскопии. Изложены экспериментальные результаты исследований спонтанного и вынужденного глобулонного рассеяния света. Установлены условия наблюдения резонансного и двухфотонновозбуждаемого замедленного рассеяния света. Сообщается 0 возможности энергии лазерного излучения внутри глобулярного накопления и локализации фотонного кристалла.

Работа выполнена при поддержке РФФИ, проекты № 04-02-16237; 05-02-16221;06-02-81024- Bel a

Содержание.

1. Введение.

2. Структура глобулярных фотонных кристаллов.

3. К теории фотонных зон в периодических структурах.

4. Эксперименты по отражению света от поверхности глобулярных фотонных кристаллов.

5. Групповая скорость электромагнитных волн и эффективная масса фотонов в глобулярном фотонном кристалле.

6. Дисперсия показателя преломления в глобулярном фотонном кристалле.

7. Связанные состояния фотонов в глобулярных фотонных кристаллах.

8. Однофотонно-возбуждаемое замедленное рассеяние света, возникающее в глобулярных фотонных кристаллах под действием непрерывного ультрафиолетового излучения.

9. Однофотонно-возбуждаемое замедленное рассеяние света в глобулярных фотонных кристаллах, возникающее под действием импульсно-периодического лазерного излучения видимого диапазона.

10. Спонтанное комбинационное рассеяние света в исходных и заполненных диэлектриками опаловых матрицах.

11. Спонтанное глобулонное рассеяние света в опалах при непрерывном лазерном возбуждении излучением в видимой области спектра.

12. Вынужденное глобулонное рассеяние света при импульсном возбуждении.

13. Опаловые матрицы как активные среды.

14. Резонансное и двухфотонно-возбуждаемое замедленное рассеяние света в глобулярных фотонных кристаллах.

15. Заключение.

16. Литература.

1. Введение.

В оптике давно используются упорядоченные структуры, период которых а₀ сравним с длиной волны электромагнитного излучения. Примерами таких структур являются дифракционные решётки, интерференционные фильтры и многослойные диэлектрические зеркала. Как известно из физики твёрдого тела, при наличии периодичности в структуре материальной среды в энергетическом спектре возникают так называемые энергетические зоны. В полупроводниковом кристалле оптические свойства материала тесно связаны с шириной запрещённой зоны (Е,), величина которой равна энергетическому расстоянию между потолком валентной зоны и дном зоны проводимости. В кристаллическом твёрдом теле период решётки (d~10⁻⁸ см) сравним с длиной волны де-Бройля для электрона; при этом спектр запрещенных обусловлен значениями разрешенных И 30Н возможных энергетических состояний электронов и дырок.

Наличие периодической структуры в веществе с периодом, близким к длине формированию электромагнитной волны, приводит соответствующих К разрешённых и запрещённых зон для фотонов. Возможность формирования фотонных зон в периодических структурах была впервые установлена в работе В.П. Быкова.[1]. В дальнейшем особенности фотонных зон анализировались в работах Э. Яблоновича [2] и С. Джона [3] . Термин «фотонные кристаллы» был введён в работе [2] и относится к периодическим структурам, в которых формируются Фактически упомянутые выше оптические фотонные устройства 30НЫ. (дифракционные решётки, интерференционные фильтры, многослойные диэлектрические зеркала) также являются примерами фотонных кристаллов.

В 1991 году [4] впервые был изготовлен трехмерный фотонный кристалл путем сверления миллиметровых отверстий в материале с высоким показателем преломления. В этом искусственном кристалле, названном «яблоновитом», присутствовала фотонная запрещённая зона в миллиметровой области спектра.

На основе фотонных кристаллов было предложено создавать новые оптические устройства: высокодобротные резонаторы, спектральные фильтры, селективные зеркала, нелинейные оптические элементы [5] и т.д. Особый интерес представляют трёхмерные фотонные кристаллы, построенные из глобул (шаров) одинакового радиуса [6]. Такие структуры называют глобулярными фотонными кристаллами. Типичным примером глобулярного фотонного кристалла является искусственный опал, основным «строительным элементом» которого являются шары аморфного кварца, образующие ГЦК решетку. В данной работе сообщается о результатах экспериментальных и теоретических исследований [7-22] оптических и нелинейно-оптических свойств глобулярных фотонных кристаллов, выполненных в последнее время с участием автора данной статьи.

2. Структура глобулярных фотонных кристаллов.

Как уже отмечалось, глобулярный фотонный кристалл построен из шаров одинакового диаметра d, упакованных в виде кристаллической решётки. Схематический вид структуры глобулярного фотонного кристалла приведен на рис. 1.



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

В природе известны структуры, близкие к глобулярным фотонным кристаллам. В частности, это относится к так называемым сферическим вирусам, структура которых представляет собой кубическую кристаллическую решётку, период которой может достигать 200 нм.

Другим примером глобулярного фотонного кристалла, встречающегося в природе, является известный минерал – опал. Структура природного опала представляет собой кубическую гранецентрированную решётку, образованную близкими по диаметру сферами кремнезёма, размеры которых обычно находятся в диапазоне от 200 до 600 нм. Регулярная упаковка этих сфер образует трёхмерную сверхрешётку, а вся система в целом – трехмерный фотонный кристалл. Такие упаковки содержат структурные пустоты (тетраэдрического и октаэдрического типов) размером 60 – 200 нм, которые в природных опалах заполнены водой и другими компонентами.

В 90-е годы XX столетия были разработаны методы получения синтетических опалов [23-26]. В синтетических опалах диаметры шаров (глобул) кремнезёма могут варьироваться в диапазоне 100-1000 нм. Объёмные образцы, достаточно прочные и воздействиям, устойчивые температурным были получены К В 3AO «Алмазтехнокристалл» (г. Александров) Самойлович Л.А. В дальнейшем эти работы были продолжены в ЗАО «Опалон» и ОАО ЦНИТИ (г Москва). Для наших исследований искусственных образцы опаловых матриц были любезно предоставлены М.И. Самойловичем (ОАО ЦНИТИ) и С.Н. Ивичевой (Институт неорганической химии РАН). Общий вид синтетических опалов, исследовавшихся в наших работах, иллюстрируется рис.2.



Рис. 2. Фотография искусственных опалов, освещаемых белым светом под разными углами.

Электронная фотография искусственного опала представлена рис. 3.



Рис. 3. Электронная фотография искусственных опалов [27].







Рис. 4.Вид искусственных опалов, заполненных жидкостью.

На долю пустот в искусственных опалах может приходиться до 26 % полного объёма (при точечном контакте между шарами аморфного SiO₂). Размеры пустот (пор) составляют несколько сотен нанометров, а размеры каналов, связывающих поры, - десятки нанометров. Присутствие пор в опаловых матрицах позволяет осуществлять их заполнение жидкостями, смачивающими кварц (см. рис.4).

В работах [25,26] были рассмотрены оптические свойства опалов с внедрённым в их пустоты веществ с высоким показателем преломления. В этом случае реализуется существенное увеличение оптического контраста между матрицей и наполнителем (отношения показателей преломления наполнителя и аморфного SiO₂. Как было показано в этой работе, при вариации степени заполнения пор можно в широких пределах изменять среднее значение диэлектрической проницаемости композита. За счёт этого при неизменном размере шаров SiO₂ можно перестраивать фотонную запрещённую зону практически во всём видимом (опал-GaN) и ближнем ИК (опал-Si) диапазонах. В качестве наполнителей в глобулярных фотонных кристаллах могут быть использованы полупроводниковые материалы, обладающие высоким показателем преломления – Si (n≈3,5) и GaN (n≈2,3) и др. Развитая технология внедрения этих материалов в пористые структуры позволяет в широких пределах варьировать степень заполнения пор опала полупроводником . Таким образом, в опаловидной структуре может быть создана трёхмерная сверхрешётка из частиц материала заполнения (размер кластеров может варьироваться от 10 до 400 нм). При заполнении пор кристалла различными материалами возможно образование фрактальных структур, для которых поры заполняются частично. Ещё большее увеличение оптического контраста может быть инвертировании структуры композитного достигнуто при материала. Под инвертированием структуры понимается вытравливание из исходного композита опал-наполнитель каркаса аморфного SiO₂. В результате образуется трёхмерная решётка, занимающая до 26 % объёма и находящаяся в регулярной матрице из полых шаров, занимающих не менее 74 % объёма.

3.К теории фотонных зон в периодических структурах.

Согласно общей теории, развитой для периодических структур[28,29], если имеет место соотношение: $d = (2n+1)\frac{\lambda}{2}$, где d- период решётки, а λ – длина волны де-Бройля, n=1,2, ..., то соответствующая волна в результате взаимодействия с кристаллической решёткой отражается от соответствующей кристаллической плоскости. Интерференция прямой и обратной волн приводит к образованию стоячей волны. При этом распространение частиц с энергиями, удовлетворяющими условию Брэгга, в идеальном кристалле оказывается невозможным. В этих участках спектра образуются энергетические разрывы – запрещённые зоны. Волновой механизм образования запрещённых зон является общим для всех периодических структур.

В реальных кристаллах возможно существование различных фаз – областей с разными постоянными решётки. У искусственных глобулярных фотонных

кристаллов, выращиваемых на основе природных соединений, также возможно существование одновременно нескольких фаз. Анализ строения таких кристаллов естественно начинать с рассмотрения более простого случая – однофазного фотонного кристалла.

Основываясь на общей теории распространения света в сверхрешётках [28], рассмотрим решения уравнений Максвелла для диэлектрической среды без свободных зарядов и токов, моделирующей фотонный кристалл. Система уравнений Максвелла в этом случае имеет вид:

$$\begin{cases} \nabla \bullet \mathbf{D} = 0 \\ \nabla \bullet \mathbf{B} = 0 \\ \nabla \times \mathbf{E} = -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} \\ \nabla \times \mathbf{H} = \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t} \end{cases}$$
(1)

Здесь $\mathbf{D} = \varepsilon \varepsilon_0 \mathbf{E}; \mathbf{B} = \mu \mu_0 \mathbf{H}; \sqrt{(\varepsilon_0 \mu_0)^{-1}} = c$.

Из (1) получаем следующее соотношение:

$$\varepsilon^{-1}(\mathbf{r}) \cdot (\nabla \times \mathbf{H}) = \varepsilon_0 \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} \,. \tag{2}$$

Применяя операцию "rot" к выражению (2), с учётом (1) получаем:

$$\nabla \times \left(\varepsilon^{-1}(\mathbf{r}) \cdot (\nabla \times \mathbf{H}) \right) = -\frac{\mu}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathbf{H} \,. \tag{3}$$

Отсюда для монохроматических волн имеем:

$$\frac{\partial^2}{\partial t} \mathbf{H}(\mathbf{r}, t) = -\omega^2 \mathbf{H}(\mathbf{r}, t).$$
(4)

Для µ=1, имеет место

$$\nabla \times \left(\varepsilon^{-1}(\mathbf{r}) \cdot \nabla \times \mathbf{H} \right) = \left(\frac{\omega^2}{c^2} \right) \mathbf{H} \,. \tag{5}$$

Так как величина $\varepsilon(\mathbf{r})$ в рассматриваемом случае вещественна, то уравнение (5) является задачей на нахождение собственных значений величины ω^2/c^2 эрмитова оператора $A = \nabla \times (\varepsilon^{-1}(\mathbf{r}) \cdot \nabla \times \mathbf{H}(\mathbf{r}))$ в уравнении

$$\mathbf{\hat{A}}\mathbf{H} = \left(\frac{\omega}{c}\right)^2 \mathbf{H} \,. \tag{6}$$

Рассмотрим одномерный фотонный кристалл с периодом структуры $d=a=a_1+a_2$, где a_1 и a_2 - размеры участков, имеющих диэлектрические проницаемости ε_1 и ε_2 соответственно. Известно, что собственные функции уравнения (6) в периодической среде имеют блоховский вид:

$$\varphi = e^{ikx} u(x), \tag{7}$$

где x – координата, k – волновой вектор.

Собственные функции оператора Я определяются, исходя из их вида (7) и граничных условий, определённых функцией

$$\varepsilon(x) = \begin{cases} \varepsilon_1, na \le x < a_1 + na \\ \varepsilon_2, a_1 + na \le x < (n+1)a \end{cases}$$
(8)

где n – целое число. Собственные функции в областях с диэлектрическими проницаемостями ε_1 и ε_2 будут иметь, соответственно, вид

$$\varphi_{1}(x) = Ae^{ik_{1}x} + Be^{-ik_{1}x}$$

$$\varphi_{2}(x) = Ce^{ik_{2}x} + De^{-ik_{2}x},$$
 (9)

где A, B, C, D – некоторые коэффициенты.

Учитывая непрерывность функций и их производных на границах скачкообразного изменения диэлектрической проницаемости и граничные условия для стоячей волны, приходим к соотношениям:

$$(A+B)e^{ika} = \left(Ce^{ika} + De^{-ik_2a}\right)$$

$$k_1(A-B)e^{ika} = k_2\left(Ce^{ik_2a} - De^{-ik_2a}\right)$$

$$Ae^{ik_1a} + Be^{-ik_1a} = Ce^{ik_2a} + De^{-ik_2a} \qquad (10)$$

$$k_1\left(Ae^{ik_1a} - Be^{-ik_1a}\right) = k_2\left(Ce^{ik_2a} - De^{-ik_2a}\right)$$

В матричной форме эта система уравнений относительно A, B, C и D может быть записана в виде:

$$M(k_{1},k_{2},k)V = 0,$$
(11)

$$\Pi_{A}e^{ik_{1},k_{2},k} = \begin{pmatrix} 1 & 1 & -e^{id(k_{2}-k)} & -e^{-id(k_{2}+k)} \\ k_{1} & -k_{1} & -k_{2}e^{id(k_{2}-k)} & k_{2}e^{-id(k_{2}+k)} \\ e^{ik_{1}a} & e^{-ik_{1}a} & -e^{ik_{2}a} & -e^{-ik_{2}a} \\ k_{1}e^{ik_{1}a} & -k_{1}e^{-ik_{1}a} & -k_{2}e^{ik_{2}a} & k_{2}e^{-ik_{2}a} \end{pmatrix}, \quad V = \begin{pmatrix} A \\ B \\ C \\ D \end{pmatrix}.$$

Эта система уравнений имеет ненулевое решение, если det M=0. Раскрывая определитель, можно получить в неявном виде закон дисперсии $\omega(k)$:

$$\cos(k_1a_1)\cos(k_2a_2) - \frac{1}{2}\frac{\varepsilon_1 + \varepsilon_2}{\sqrt{\varepsilon_1\varepsilon_2}}\sin(k_1a_1)\sin(k_2a_2) = \cos(ka), \quad (12)$$

где $k_i = \sqrt{\varepsilon_i} \frac{\omega}{c_0}$, а k – волновой вектор. Так как $|\cos ka| \le 1$, то в спектре возникают запрещённые зоны, то есть значения k, для которых (при $|\cos(k_1a_1)\cos(k_2a_2) - \frac{1}{2}\frac{\varepsilon_1 + \varepsilon_2}{\sqrt{\varepsilon_1\varepsilon_2}}\sin(k_1a_1)\sin(k_2a_2)| > 1$). распространение излучения в

кристалле оказывается невозможным.

В работе [15] для анализа зонной структуры глобулярного фотонного кристалла было предложено использовать одномерную модель кристаллической цепочки с дополнительными связями (см. рис.5).



Рис. 5. Моноатомная цепочка с дополнительными связями.

При этом роль колеблющихся частиц играют электроны, входящие в состав глобул. Для такого типа цепочки с учётом взаимодействия лишь ближайших соседей имеет место следующий вид уравнений движения:

$$m\ddot{u}(l) = -\gamma_0 u(l) - \gamma [2u(l) - u(l-1) - u(l+1)],$$
(13)

Здесь u(l)- смещение частицы с номером l от положения равновесия (l = 0, 1, ...), а γ_0 и γ - соответствующие упругие коэффициенты, m – масса колеблющихся чачтиц. С учётом того, что решение (13) имеет вид плоской монохроматической волны $(u = u_0 e^{i(kl - \omega t)})$, от соотношения (13) приходим к закону дисперсии рассматирваемой кристаллической цепочки:

$$\omega^2(k) = \frac{\gamma_0}{m} + 4\frac{\gamma}{m}\sin^2\frac{ka}{2},\tag{14}$$

где *а* - постоянная кристаллической решётки(a=d), а k-волновой вектор соответствующей плоской волны. Если $\gamma_0 = 0$ и $\gamma > 0$, то от (14) мы приходим к закону дисперсии для самой нижней ветви (разрешённой зоны) фотонного кристалла:

$$\omega = 2\frac{S}{a}\sin\frac{ka}{2},\tag{15}$$

где $S^2 = \frac{\gamma}{m}a^2$. При этом $S^2 = \frac{c_0^2}{n_1} = c_1^2$, где c_0 – скорость света в вакууме, а n_1 –

эффективный показатель преломления . Соответственно для второй и третьей фотонных ветвей имеет место:

$$\omega^{2} = \omega_{02}^{2} - 4 \frac{S_{2}^{2}}{a^{2}} \sin^{2} \frac{ka}{2} , \quad \text{где} \quad \omega_{02}^{2} = \frac{\gamma_{02}}{m} \quad \text{и} \quad S_{2}^{2} = -\frac{\gamma}{m} a^{2} = c_{2}^{2}, \gamma < 0; \quad (16a)$$

$$\omega^{2} = \omega_{03}^{2} + 4 \frac{S_{3}^{2}}{a^{2}} \sin^{2} \frac{ka}{2} , \qquad \Gamma \exists e \quad \omega_{03}^{2} = \frac{\gamma_{03}}{m} \quad \forall \quad S_{3}^{2} = \frac{\gamma}{m} a^{2} = c_{3}^{2}, \gamma > 0; \qquad (16b)$$

На границе зоны Бриллюэна имеем значения частот, задающие положения краёв первой запрещённой фотонной зоны: $\omega_1 = c_1 \frac{\pi}{a}$ (нижний край) и $\omega_2 = \sqrt{\omega_{02}^2 - 4 \frac{c_2^2}{a^2}}$ (верхний край) соответственно.

На основе установленных законов дисперсии фотонных зон можно получить зависимости групповой скорости $V = \frac{d\omega}{dk}$ от волнового вектора для рассматриваемых ветвей. Для первой ветви получаем:

$$V = c_1 \cos \frac{ka}{2}.$$
 (17)

Для второй ветви находим:

$$V = -\frac{c_2^2 \sin ka}{\sqrt{\omega_{02}^2 a^2 - 4c_2^2 \sin^2 \frac{ka}{2}}}$$
(18)

Для третьей ветви получаем :

$$V = \frac{c_3^2 \sin ka}{\sqrt{\omega_{03}^2 a^2 + 4c_3^2 \sin^2 \frac{ka}{2}}}$$
(19)

Из соотношений (17-19) следует, что вблизи краёв запрещённой зоны $(k = \frac{\pi}{a})$ групповая скорость соответствующих электромагнитных волн стремится к нулю.

Для упрощения расчётов будем полагать, что $\omega_{02} = \omega_{03} = \omega_0$ и $c_1 = c_2 = c_3 = c$, где константа с имеет смысл скорости света в вакууме. При этом вблизи центра зоны Бриллюэна (величина k стремится к нулю) для трёх нижних фотонных зон имеет место:

$$\omega_1 = ck \tag{20a}$$

$$\omega_2^2 = \omega_0^2 - c^2 k^2$$
 (20b)

$$\omega_3^2 = \omega_0^2 + c^2 k^2 \tag{20c}$$

Таким образом, в глобулярном фотонном кристалле фотон может вести себя как элементарное возбуждение электромагнитной волны в вакууме (соотношение (20а)), как массивная релятивистская частица с положительной эффективной массой (соотношение (20b)) и как квазичастица с отрицательной эффективной

массой(соотношение (20с)). Для закона дисперсии (20b) знак величины $\left(\frac{d\omega}{dk}\right)$ - становится отрицательным.

Рассмотрим ситуацию, когда световой луч падает на поверхность фотонного кристалла при нулевом угле падения. Обозначим направление единичного вектора нормали к поверхности кристалла через *i*. Тогда вектор скорости падающего из вакуума на поверхность кристалла луча есть: c = -ci. Направление этого вектора совпадает с направлением вектора группой скорости внутри кристалла и при $\left(\frac{d\omega}{dk}\right) < 0$ противоположно направлению вектора фазовой скорости $\frac{\omega}{k}i$. При этом для нормального падения имеет место соотношение:

$$\frac{\omega}{k}\mathbf{i} = \frac{\mathbf{c}}{n} , \qquad (21)$$

Таким образом, если величина $\left(\frac{d\omega}{dk}\right)$ отрицательна, то из (21) следует, что

показатель преломления должен быть также отрицательным. Если же $\left(\frac{d\omega}{dk}\right) > 0$, то направления векторов фазовой и групповой скоростей внутри кристалла совпадают

и показатель преломления должен быть положительным. В любых случаях должно иметь место соотношение:

$$|n| = \frac{ck}{\omega(k)},\tag{22}$$

где $\omega(k)$ - закон дисперсии соответствующей волны.

Для всех точек первой зоны Бриллюэна в рассматриваемом приближении согласно (15,16) должно иметь место для первых трёх фотнных зон:

$$\omega_{1}(k) = \frac{2c}{a} \sin \frac{ka}{2}$$
(23)

$$\omega_2(k) = \sqrt{\omega_0^2 - 4\frac{c^2}{a^2}\sin^2\frac{ka}{2}}$$
(24)

$$\omega_{3}(k) = \sqrt{\omega_{0}^{2} + 4\frac{c^{2}}{a^{2}}\sin^{2}\frac{ka}{2}}$$
(25)

Здесь *с* –скорость света в вакууме, a – постоянная решётки глобулярного фотонного кристалла и ω_0 – соответствующая частота.

Спектральная зависимость коэффициента отражения находится из известного соотношения:

$$R = \left| \frac{k - k_0}{k + k_0} \right|^2 \tag{26}$$

При этом зависимости $k=k(\omega)$ находятся из (22-25), а $k_0=\omega/c$. Соответственно кэффициент пропускания (при отсутствии потерь) находится из соотношения:

$$T = 1 - \left| \frac{k - k_0}{k + k_0} \right|^2 \quad . \tag{27}$$

4.Эксперименты по отражению света от поверхности глобулярных фотонных кристаллов.

Анализ спектров отражения от поверхности опаловых матриц проводился, в частности, в работе [14]. Измерения выполнялись на установке, блок схема которой показана на рис.6.



Рис.6 [14]. Блок-схема установки для измерения спектров отражения. 1 источник света, 2 - гониометр ГС-5, 3 – линза, 4 - стеклянный волоконнооптический жгут, 5 - монохроматор спектрометра ДФС-12, 6 - фотоумножитель типа ФЭУ-79, 7 - аналого-цифровой преобразователь, 8 - ПЭВМ.

В качестве источника света (1) использовалась галогенная лампа накаливания мощностью 100Вт. 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 параллельный пучок света диаметром Змм направлялся на образец опала, отражающая поверхность которого располагалась в центре столика гониометра перпендикулярно его плоскости. Расходимость падающего пучка составляла не более 1' Изменение угла падения достигалось поворотом столика гониометра. Точность измерения угла падения (отражения) составляла 5'. Отраженный световой поток проектировался на торец стекляного волоконно-оптического жгута диаметром 3 мм с помощью линзы с фокусным расстоянием 7см и диаметром 5см,

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 модифицированного спектрометра ДФС-12 (5). Регистрация полезного оптического сигнала с выходной щели монохроматора осуществлялась охлаждаемым ФЭУ-79 (6). После предварительного усиления аналогового сигнала с ФЭУ и преобразования его в цифровой код (7) он регистрировался в режиме счета фотонов с накоплением и поступал в ПЭВМ (8). Количественные измерения были проведены для углов $\theta = 5, 20, 30$ и 45° . Для получения истинных спектров отражения от реальной поверхности фотонного интенсивность наблюдаемого спектра отражения спектр кристалла была нормирована на интенсивность спектра отражения алюминиевого зеркала, полученного при тех же условиях освещения. Это позволило исключить влияние монохроматора (спектральной зависимости отражательной способности решетки) и спектральной зависимости чувствительности ФЭУ и получить абсолютные значения коэффициента отражения.

работе изучались образцы опалов, В состоящие ИЗ монодисперсных шарообразных частиц a-SiO₂, любезно предоставленные для исследований М.И. Самойловичем. Размеры образцов составляли 1x0,5x0,5см³. Согласно результатам работы [4] в таких опалах формируется гранецентрированная кубическая (ГЦК) решетка. Заполнение образцов диэлектриком осуществлялось путём пропитки чистых опалов насыщенным спиртовым раствором нитрата бария с последующим испарением этилового спирта при нагревании на воздухе до температуры 150° в течение одного часа. После этого образец подвергался лазерному отжигу с использованием импульсно-периодического лазера на парах меди со средней мощностью 1Вт. Измерялись спектры отражения от ростовой плоскости (111) как для чистых кристаллов (образец 1), так и для кристаллов, пространство которых вне шаров a-SiO₂ было заполнено нелинейно-оптическим материалом Ba(NO₃)₂ (образец 2).

Полученные спектры отражения (см рис.7 и 8) характеризовались асимметричными полосами с параметрами, зависящими от угла падения. Для образца №1 («чистый» синтетический опал) максимум коэффициента отражения для углов 20, 30 и 45° наблюдался соответственно на длинах волн 506, 482 и 446нм, а для образца №2 (опаловая матрица, пропитанная Ba(NO₃)₂) – на длинах волн 590, 564 и 510нм. Коэффициент отражения для угла 20° для обоих образцов составил 25%. При увеличении угла падения наблюдалось заметное уширение полосы отражения. Так при углах 20 и 30° ширина спектральной полосы составляла примерно 30 нм, а при угле 45° - 36 нм. Сдвиг максимума полосы в спектрах образца №2 при тех же углах падения, что и для незаполненного опала (образец №1) в сторону больших длин волн объяснется изменением коэффициента преломления в порах опаловой матрицы при их заполнении нитратом бария.



Рис.7 [14]. Спектры отражения номинально чистых фотонных кристаллов для углов θ = 5°, 20°, 30° и 45°(крайний левый спектр).



Рис.8 [14]. Спектры отражения фотонных кристаллов, пространство которых вне шаров a-SiO₂ заполнено нелинейно-оптическим материалом Ba(NO₃)₂ для углов θ = 5°, 20°, 30° и 45° (крайний левый спектр).

Анализ полученных спектров проводился с использованием известного соотношения для Брэгговской дифракции света в опалах: $\lambda(\theta) = 2a\sqrt{\langle n \rangle^2 - \sin^2 \theta}$, где а – расстояние между плоскостями в кристалле (a = $\sqrt{\frac{2}{2}}$ d , d – диаметр сфер), θ – угол падения света на кристалл, $\langle n \rangle = \beta n_1 + (1-\beta)n_2 - э \phi \phi$ ективный показатель преломления синтетического опала, β – коэффициент заполнения для сфер SiO₂,n₁ – показатель преломления кварца, n₂- показатель преломления заполнителя. По этой формуле была рассчитана теоретическая зависимость длин волн в максимумах отражения от угла падения на кристалл . Для образца №1 были использованы следующие значения физических параметров: $n_1 = 1,47$; $n_2 = 1$; $\beta = 0,74$; d = 230нм. Диаметр глобул рассчитывался по спектрам нормального отражения ($\theta = 5^{\circ}$). Для углов $\theta = 20^{\circ}$, 30° и 45° были получены значения длины волн в максимумах отражения 505, 482 и 444 нм соответственно. Для образца №2 использовались следующие значения величин: $n_1 = 1,47$; $n_2 = 1,57$ (Ba(NO₃)₂); $\beta = 0,74$; d = 230нм. Результат расчета длин волн в максимумах отражения для углов $\theta = 20^{\circ}$, 30° и 45° дал величины 590, 571 и 534нм соответственно. Таким образом, для образца №1 экспериментальные данные и расчет дают близкие значения длин волн в максимуме отражения, в то время как для образца №2 расхождения теории с экспериментом оказались достаточно велики. Это, по-видимому, связано с особенностями Результаты сопоставления расчёта положений максимумов заполнения пор. отражения с экспериментальными данными для обоих образцов приведены на рис.9.



Рис.9 [14]. Угловая зависимость положений максимумов интенсивности в спектрах зеркального отражения искусственного опала.

полученных Спектральная полуширина полос отражения В основном определяется величиной «стоп зоны», Для углов 20, 30 и 45° эта величина составила: для образца №1 – 30, 30 и 36 нм соответственно. Для образца №2 были получены следующие значения этой величины для тех же углов: 50 ,50 и 57нм соответственно. Дополнительное спектральное уширение полос отражения и уменьшение максимального значения коэффициента отражения с увеличением угла падения может быть обусловлено рассеянием света на дефектах структуры Увеличение полуширины полос отражения в случае синтетического опала. заполненного опала, по-видимому, было вызвано наличием дефектов заполнения. К числу таких дефектов можно отнести: ростовые двойники, отклонение ориентации от [111] для отдельных блоков (доменов), из которых состоял опал [5], дефекты структуры самих блоков, а также границы блоков.



Рис.10 [14]. Экспериментальная зависимость вида спектра отражения от поверхности (111) для малого угла падения.

Рис. 10 иллюстрирует полученные экспериментально спектральные зависимости коэффициента отражения при направлении падения луча на поверхность (111), близком к нормали.



Рис.11[17]. Теоретическая зависимость вида спектра отражения при нормальном падении луча на поверхность исходного опала.

Ha коэффициента отражения основе формул для были рассчитаны соответствующие зависимости коэффициента отражения по формуле (26) путем подбора параметров, таким образом, чтобы обеспечить соответствие теоретической и экспериментальной зависимости. На рис.11 приводятся полученные теоретические зависимости спектра отражения для нормального падения на поверхность (111) исходного (незаполненного) опала для следующих параметров: $\omega_{02} = \omega_{03} = 5,39 \times 10^{15}$ 1/c, $a = 1.68 \times 10^{-7}$ м. Как видно из сравнения экспериментальных и теоретических зависимостей (см. рис. 10 и 11) наблюдается качественное согласие теории с экспериментом, хотя имеется существенное различие в форме наблюдаемых Последнее обстоятельство можно объяснить необходимостью учёта кривых. эффектов затухания и влияния дефектов кристаллической решётки. На основе проведенного анализа спектров отражения были установлены границы «стоп-зоны» для нормального падения на поверхность (111) опаловой матрицы: λ₁= 480 нм (верхняя граница) и $\lambda_2 = 520$ нм (нижняя граница).

Рис.12 иллюстрирует вид соответствующих трёх дисперсионных ветвей при условии, что $c_1 = c_2 = c_3 = c_0$.



Рис. 12[17]. Теоретический вид дисперсионных ветвей в исследуемом фотонном кристалле.

Таким образом, эксперименты по отражению света от поверхности объёмных опаловых матриц позволяют установить основные характеристики фотонных зон, и дают возможность провести оценку размеров глобул, из которых формируется опаловая матрица. Здесь следует отметить также, что в реальных фотонных кристаллах следует ожидать присутствия многочисленных дефектов, связанных с изменением ориентации доменов и другими особенностями роста. Подтверждением такого вывода служат как оптические эксперименты по отражению света от высоким пространственным разрешением, поверхности опалов с так И эксперименты [11] по отражению от опаловых матриц более коротковолнового излучения. Представление о степени дефектности реальных опаловых матриц дают цифровые микроизображения поверхности опалов, освещаемой непрерывным источником видимого света, полученные с тысячекратным увеличением (см. рис. 13). Как видно из представленных рисунков, размеры дефектов вблизи поверхности опаловой матрицы, приводящие к изменению цвета отраженного от поверхности излучения, составляют десятки микрометров. Для уменьшения количества дефектов кристаллической решётки опаловых матриц необходимо дальнейшее совершенствование технологии их выращивания.

5. Групповая скорость электромагнитных волн и эффективная масса фотонов в глобулярном фотонном кристалле.

Групповая скорость электромагнитных волн V= $\frac{d\omega}{dk}$ вычисляется, если известен закон дисперсии для фотонных ветвей. Соответственно для первой фотонной ветви имеем:

$$v = c\sin(ka/2). \tag{28}$$

Для второй фотонной ветви:

$$v = -\frac{2c^2 \sin(ka/2)\cos(ka/2)}{\sqrt{\omega_0^2 a^2 - 4c^2 + 4c^2(\cos(ka/2))^2}}.$$
(29)

Для третьей фотонной ветви:

$$v = \frac{2c^2 \sin(ka/2) \cos(ka/2)}{\sqrt{\omega_0^2 a^2 + 4c^2 - 4c^2 (\cos(ka/2))^2}}$$
(30)

Рис. 14 иллюстрирует результаты анализа зависимостей групповой скорости от волнового вектора с учётом следующих значений параметров: $\omega_0 = 5,39 \times 10^{15}$ rad/s, $a = 1,68 \times 10^{-7}$ m. Верхняя (сплошная) кривая соответствует первой фотонной ветви; самая нижняя кривая соответствует второй фотонной ветви; средняя кривая соответствует третьей фотонной ветви.



10мкм.

Рис. 13. Микрофотографии различных участков поверхности фотонного кристалла, полученные с помощью цифровой камеры оптического микроскопа. Различные цветные области соответствуют проявлению микродефектов на поверхности.



Рис. 14[17]. Зависимости групповой скорости от волнового вектора для трёх нижних ветвей.

Как видно из представленного рисунка, первая и третья фотонные ветви характеризуются положительным знаком величины $\frac{d\omega}{dk}$; кривая, соответствующая второй фотонной ветви, характеризуется отрицательным знаком этой величины.

Из рис.14 следует, что скорость фотонов (групповая скорость соответствующих электромагнитных волн) становится очень малой вблизи границы зоны Бриллюэна, а также в в центре этой зоны. Соответствующие электромагнитные возбуждения были названы «слоутонами». Плотность фотонных состояний обратно пропорциональна групповой скорости [29]. Поэтому вероятность возникновения слоутонов при различных процессах (излучение примесных атомов или молекул, параметрическое и комбинационное рассеяние света, генерация оптической гармоники), пропорциональная плотности конечных состояний, должна резко возрасти в глобулярном фотонном кристалле, по сравнению с аналогичными процессами излучения фотонов в однородной среде.

Вычисления эффективной массы фотонов в глобулярном фотонном кристалле в зависимости от волнового вектора были выполнены с использованием известных соотношений для эффективной массы квазичастиц :

$$m = \frac{h}{2\pi \frac{d^2 \omega}{dk^2}} \tag{31}$$

гду *h* – постоянная Планка.

Соответственно для первой фотонной получаем зависимость(см. рис. 15):



$m = -\frac{h}{\pi ca\sin(ka/2)}.$ (32)

Рис. 15[17]. Зависимость эффективной массы фотонов от волнового вектора для первой фотонной ветви .

Для второй ветви имеем:

$$m = -\frac{ha\sqrt{\omega_0^2 a^2 - 4c^2(\sin(ka/2))^2}}{2\pi(4c^2\cos^2(ka/2)\sin^2(ka/2) - c^2a^2\cos^2(ka/2) + c^2a^2\sin^2(ka/2)}$$
(33)

Полученная в этом случае зависимость представлена на рис.16. Для третьей ветви соответственно получаем (см. рис.17):

$$m = -\frac{ha\sqrt{\omega_0^2 a^2 + 4c^2(\sin(ka/2))^2}}{2\pi(4c^2\cos^2(ka/2)\sin^2(ka/2) + c^2a^2\cos^2(ka/2) - c^2a^2\sin^2(ka/2)}$$
(34)



Рис.16[17]. Зависимость эффективной массы фотонов от волнового вектора для второй фотонной ветви.



(35)

Рис.17[17]. Зависимость эффективной массы фотонов от волнового вектора для третьей фотонной ветви.

6. Дисперсия показателя преломления в глобулярном фотонном кристалле.

Исходя из выражения (21), приходим к следующему соотношению: $(\omega/k)k/k=c/n$.

Здесь направление волнового вектора k совпадает с направлением вектора фазовой скорости, направление вектора c задаёт направление групповой скорости электромагнитной волны внутри глобулярного фотонного кристалла. Таким образом, если направления векторов групповой и фазовой скоростей совпадают, то показатель преломления является положительным. Если же эти направления взаимно противоположны, то показатель преломления является отрицательным. Рис. 18 иллюстрирует полученную зависимость показателя преломления от частоты для всех трёх фотонных ветвей. Вблизи точек, соответствующих краям зоны Бриллюэна, обнаруживаются аномалии такой зависимости.



Рис. 18[17]. Дисперсия показателя преломления в глобулярном фотонном кристалле.

7. Связанные состояния фотонов в глобулярных фотонных кристаллах.

При рассмотрении свойств различного рода элементарных возбуждений – квазичастиц - на первом этапе анализа взаимодействие между квазичастицами не учитывается. На следующем этапе принимается во внимание взаимодействие между квазичастицами, приводящее к притяжению или отталкиванию в зависимости от характера взаимодействия. При наличии притяжения между квазичастицами могут формироваться связанные двухчастичные или, в общем случае, многочастичные состояния. Если связанное двухчастичное состояние является короткоживущим, то в этом случае говорят о так называемых резонансах. Если связанное двухчастичное состояние является долгоживущим, то в этом случае говорят о связанном состоянии, соответствующем новой квазичастице. Ранее детально исследовались свойства и условия существования связанных состояний двух фононов, магнонов, плазмонов и ротонов, являющихся элементарными возбуждениями бозе-типа. В частности, было установлено, условия для связывания квазичастиц выполняются при явлении резонанса Ферми, когда энергия связанного состояния близка к энергии фундаментальных возбуждений того же типа симметрии. Другим важным условием связывания квазичастиц даже при наличии слабого притяжения между ними оказалось требование наличия аномалии плотности состояний в области энергий свободных квазичастиц. Особый случай соответствует связыванию в пары квазичастиц типа Ферми, например, электронов. При этом формируются так называемые куперовские пары, играющие важную роль в явлении сверхпроводимости.

В работе автора данной статьи [20] была рассмотрена возможность образования связанного состояния пар фотонов с конечной массой в глобулярном фотонном кристалле – бифотонов. Теоретический анализ условий формирования связанного состояния двух фотонов с конечной массой основывается на общей теории связанных состояний пар квазичастиц, развитой ранее.

В качестве элементарных возбуждений электромагнитных волн, участвующих в процессе формирования связанных состояний фотонов, рассматриваются взаимодействующие друг с другом фотоны с конечной эффективной массой. Гамильтониан для таких квазичастиц может быть представлен в следующем виде:

$$H = \sum_{k} E_{k} a_{k}^{+} a_{k} + g_{4} \sum_{k,p,q} a_{k+q}^{+} a_{p-q}^{+} a_{p} a_{k} + \dots$$
(36a)

Здесь E_k – энергия фотонов; a_k, a_k^+ - соответствующие операторы уничтожения и рождения квазичастиц; величина g_4 характеризуют процессы взаимодействия между квазичастицами, обусловленные фотон-фотонным ангармонизмом и соответствующие проявлению четырёхчастичных процессов рассеяния в реальном кристалле. При этом для простоты не учитывается зависимость величины g_4 от волнового вектора квазичастиц.

В данном приближении задача решается путём суммирования диаграмм Фейнмана, соответствующих элементарным процессам рассеяния фотонов друг на друге в материальной среде.



Рис.19. Диаграммы Фейнмана, соответствующие четырёхчастичным (а) и трёхчастичным (б) процессам.

В результате суммирования соответствующих диаграмм Фейнмана для четырёхчастичных процессов (см. рис.19) приходим к уравнению Бете-Солпитера, решение которого имеет вид:

$$G_2(Q,\omega) = \frac{G_{02}(Q,\omega)}{1 - g_4 G_{02}(Q,\omega)} , \qquad (37)$$

где
$$G_{02}(Q,\omega) = \int \frac{\rho_{02}(Q,\omega)dE}{\omega - E + 2i\gamma}$$
 (38)

Здесь $\rho_{02}(Q,\omega)$ - плотность двухфотонных состояний свободных квазичастиц. Эта величина принмает аномально большое значение в том случае, когда скорости частиц аномально малы. В частности, как следует из анализа зависимостей групповых скоростей от волнового вектора, такая ситуация имеет место для слоутонов, соответствующих областям вблизи краёв зоны Бриллюэна. Если выполняется условие:

$$1 = g_4 G_{02}(Q, \omega) \,. \tag{39}$$

то связанное состояние может быть устойчивым даже при слабом взаимодействии между квазичастицами при условии, что $g_4 > 0$. Спектр связанных состояний задаётся соотношением:

$$\rho_2(Q,\omega) = -\frac{\operatorname{Im} G_2(Q,\omega)}{\pi}.$$
(40)

Рассмотрим теперь ситуацию, когда в материальной среде глобулярного фотонного кристалла существуют возбуждённые состояния, соответствующие неприводимые представления которых входят в приводимое представление тензора второго ранга. В частности, при наличии центра симметрии в точечной группе симметрии среды такими представлениями могут быть чётные типы симметрии: А_g,Е_g и т.д. Однофотонные переходы из таких возбуждённых состояний в основное состояние оказываются запрещёнными правилами отбора. В связи с этим такого рода состояния естественно называть тёмными (дарктонными) состояниями, а соответствующие элементарные возбуждения (квазичастицы) – дарктонами. Примерами дарктонов могут служить оптические фононы, классифицируемые чётными типами симметрии. Такие фононы в соответствии с правилами отбора возникают при двухфотонных процессах, в частности, в процессах спонтанного или вынужденного комбинационного рассеяния в центросимметричных молекулах или кристаллах. Другим примером такого рода возбуждений являются механические осцилляции глобул, в частности, колебания «дыхательного» типа. Наконец. возможно существование чётных двухэлектронных состояний в органических и неорганических структурах в ультрафиолетовой области спектра. При этом модельный гамильтониан может быть представлен в следующем виде:

$$H = \sum_{k} E_{k} a_{k}^{+} a_{k} + g_{3} \sum_{k,q} d_{k}^{+} a_{k} a_{k-q} + h.e.$$
(36b)

Здесь операторы d_k^+, d_k^- - соответствующие операторы рождения и уничтожения дарктонов.

Если учитывать только трёхчастичные процессы ($g_4=0$), то необходимо суммировать диаграммы, соответствующие уравнению Дайсона. При этом получаем:

$$G_{1}(\omega) = \frac{G_{1}^{0}}{1 - g_{3}^{2}G_{1}^{0}G_{2}^{0}(Q,\omega)}, \ G_{1}^{0} = \frac{1}{\omega - \omega_{0} - i\gamma}.$$
 (41)

Отсюда следует, что связанное состояние возникает, если имеет место:

$$1 = g_3^2 G_1^0 G_2^0(Q, \omega) \,. \tag{42}$$

Такая ситуация осуществляется, если реализуется аналог явления резонанса Ферми, т.е. в области энергии двухчастичного состояния присутствует реальное состояние, симметрия которого совпадает с симметрией двухфотонного состояния. Так как фотоны являются векторными частицами, то двухфотонное состояние по своим трансформационным свойствам характеризутся тензором второго ранга. В структурах с центром инверсии волновые функции такого состояния являются чётными относительно операции инверсии и соответственно классифицирутся чётными типами симметрии. Таким образом, образование связанных состояний в центосимметричных структурах может происходить, если энергия дарктонного состояния в кристалле оказывается близкой по величине к энергии двух свободных фотонов. Связанные состояния двух фотонов являются одним из видов дарктонных состояний. В реальном фотонном кристалле образование связанных состояний может быть обусловлено определённым вкладом как трёхчастичных, так и четырёхчастичных процессов взаимодействия.

Важно отметить, что при образовании связанного состояния двух фотонов в центосимметричных структурах возникают элементарные возбуждения (бифотоны), симметрия которых существенным образом отличается от симметрии исходных квазичастиц: фотоны трансформационным если по своим свойствам связанные в пары фотоны классифицируются как векторные частицы, то классифицируются тензором второго ранга. Таким образом, в центросимметричной возможно существование связанных пар фотонов скалярного или среде псевдовекторного (аксиального) типов. Излучение, обусловленное бифотонами в центросимметричных по оптическим средах, своим свойствам должно существенным образом отличаться от обычных электромагнитных волн. В частности, излучение такого типа бифотонов должно быть невидимым и должно без существенного поглощения проникать через материальные среды.

8. Однофотонно-возбуждаемое замедленное рассеяние света, возникающее в глобулярных фотонных кристаллах под действием непрерывного ультрафиолетового излучения.

Опаловые матрицы, полученные на основе $a-SiO_2$, характеризуются фундаментальным поглощением лишь в дальнем ультрафиолетовом диапазоне. Спектры вторичного излучения в плавленом кварце изучались ранее при возбуждении коротковолновым электромагнитным излучением с учетом большой ширины запрещенной зоны этого материала. Если освещать образцы плавленого кварца типа КВ ультрафиолетовым излучением среднего диапазона ($\lambda=255,3$ нм), то в них возникает слабая фотолюминесценция в виде полос вблизи 300 и 390 нм. Таким образом, при облучении исходно чистых опалов излучением видимого или ближнего ультрафиолетового диапазонов фотолюминесценция должна практически отсутствовать. Это не исключает возможности наблюдать в этом случае вторичное излучение, обусловленное различными процессами, включая комбинационное

рассеяние света, фотолюминесценцию, трёхфотонное параметрическое рассеяние, параметрическое рассеяние (при четрёхфотонное импульсном лазерном возбуждении), вынужденное рассеяние света, многофотонно-возбуждаемое свечение и т.д. Для исследования такого рода эффектов нами были выполнены эксперименты по анализу свойств вторичного излучения в различного рода опаловых матрицах при возбуждении вторичного излучения различными источниками света.

На первом этапе проводилось исследование [22] особенностей вторичного излучения в исходных (незаполненных) опалах под действием некогерентного излучения полупроводниковых светодиодов. Исследования были выполнены с пластинами искусственных опалов толщинами 0,7 и 2,0 мм и сторонами порядка 10 мм вырезанными в направлении [111]. Для установления положения запрещенной зоны с исследуемыми образцами были выполнены независимые фотонной исследования спектров зеркального отражения широкополосного электромагнитного излучения. Как оказалось, запрещённая зона («стоп-зона») при нормальном падении для исследуемых образцов такого типа находилась в диапазоне 480-520 нм, что соответствует размеру глобул d=230 нм.

В качестве источников возбуждения вторичного излучения использовались полупроводниковые светодиоды с максимумами полос излучения 363,5 и 381,5 нм, полушириной спектрального распределения 10 нм и средней мощностью 30-40 мВт. Обычная фотолюминесценция в аморфном кварце практически не должна проявиться в исследуемых образцах искусственных опалов при выбранных источниках возбуждающего излучения.

Схема экспериментальной установки [22] для анализа спектров вторичного излучения при непрерывном ультрафиолетовом возбуждении показана на рис.20.



Рис.20 [22]. 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.

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 выходной торец световода служил в качестве входной щели полихроматора. Спектр вторичного излучения регистрировался с помощью ПЗС-линейки, являющейся частью полихроматора.

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.

На рис.21 приведен спектр наблюдаемого вторичного излучения от искусственного опала, имеющего вид плоскопараллельной пластины толщиной 0,7 мм при возбуждении ультрафиолетовым светодиодом с длиной волны 363,5 нм. Максимумы свечения при этом наблюдались на длинах волн λ =447,3 и 472,4 нм. Интенсивность свечения при этом составила примерно 0,01 от интенсивности возбуждающего излучения.



Рис. 21. [22] Зависимость интенсивности свечения пластины опала толщиной t= 0,7мм (λ₀=363,5 нм) от длины волны. Пунктиром показан спектр возбуждающего излучения.

На рис.22 приводится спектр вторичного излучения пластины опала толщиной 2,0 мм при возбуждении излучением с длиной волны 363,5 нм. Как видно из рис. 21,

спектр свечения в этом случае характеризуется увеличением ширины полосы и изменением положения ее максимума (λ_m =477,7нм). В низкочастотной области при этом свечение не наблюдается. На рис. 23 показан вид спектров вторичного излучения пластин опалов толщиной 0,7 мм соответственно при возбуждении непрерывным излучением с длиной волны 381,5 нм. Рис. 24 иллюстрирует аналогичные спектры для опалов толщиной 2,0 мм. Как видно из сравнения обсуждаемых спектров при изменении длины волны возбуждающего излучения от 363,5 до 381,5 нм при заданной толщине увеличивается общая ширина полосы спектров свечения и число наблюдаемых полос.

Рис.25 и 26 иллюстрируют вид спектров вторичного излучения при заданной полосе возбуждения с увеличением толщины опала от 0,7 до 2,0 мм. Как видно из этих рисунков, форма спектров свечения с возрастанием толщины образца при заданной длине волны возбуждающего излучения спектр в целом смещается в длинноволновую область, что является свидетельством эффективного переизлучения внутри образца из-за увеличения толщины пластины.



Рис. 22. [22] Спектр свечения пластины опала толщиной t=2,0 мм от длины волны при возбуждении светодиодом с максимумом излучения на длине волны λ₀ =363,5 нм. Пунктиром показан спектр возбуждающего излучения.



Рис. 23. [22] Спектр вторичного излучения опала толщиной t=0,7 мм при возбуждении светодиодом с максимумом излучения на длине волны λ₀ =381,5 нм. Пунктиром показан спектр возбуждающего излучения.



Рис. 24. [22] Спектр вторичного излучения опала толщиной t= 2,0 мм при возбуждении светодиодом с максимумом излучения на длине волны λ₀ =381,5 нм. Пунктиром показан спектр возбуждающего излучения.



Рис. 25 [22] Сравнение спектров свечения образцов опала (t=0,7 и 2,0 мм) при возбуждении на длине волны λ₀ =363,5 нм. 1-спектр вторичного излучения в опале толщиной t=0,7мм; 2-спектр вторичного излучения в опале при t=2,0 мм. Пунктиром показан спектр возбуждающего излучения.

Перейдем к анализу наблюдавшегося вида спектра вторичного излучения в незаполненных искусственных опалах под действием ультрафиолетового излучения. Присутствие в спектре такого излучения низкочастотной полосы вблизи положения максимума возбуждающего излучения с длиной волны 381,5 нм естественно объяснить как спонтанное стоксово комбинационное рассеяние (КР) света.



Рис. 26 [22] Сравнение спектров свечения образцов опала ((t=0,7 и 2,0 мм) при возбуждении на длине волны λ_0 =381,5 нм. 1-спектр вторичного излучения в опале при t=0,7мм; 2-спектр вторичного излучения в опале при t=2,0мм. Пунктиром показан спектр возбуждающего излучения. Спектры свечения исходных опалов показаны для t=0.8мм – слева и t=2мм – справа.

Важно отметить, что интенсивность стоксова КР в этом случае оказывается сравнимой с интенсивностью возбуждающего излучения. Такой эффект можно классифицировать как комбинационную опалесценцию (КО), т.е. резкое возрастание вероятности процесса КР. Причиной такого эффекта может быть близость полосы возбуждающего излучения к краю фотонной зоны и, соответственно, к пику плотности фотонных состояний. В этом случае скорость электромагнитной волны становится существенно ниже скорости света c_0 в вакууме, т.е. $\frac{c_0}{V}$ »1.

Соответственно возрастает плотность световой энергии и напряженность переменного электрического поля внутри образца, что и должно приводить к возрастанию вероятности процессов КР.

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

Особый интерес представляет объяснение присутствие вторичного излучения вдали от полосы возбуждающего излучения, когда процессы КР не должны существенным образом влиять на наблюдаемый спектр свечения опала в длинноволновой (стоксовой) области спектра. Присутствие вторичного излучения в этой области спектра можно объяснить процессами трёхфотонного параметрического рассеяния света, элементарным актом которого является распад ультрафиолетового кванта на два других кванта: видимого и инфракрасного диапазонов. В объёмных центросимметричных кристаллах процессы такого рода запрещены известными правилами отбора. Однако, в данном случае вследствие присутствия большой доли поверхности в области пор фотонного кристалла правила отбора, соответствующие центросимметричной структуре, неприменимы, так как вблизи поверхности структура кристалла является ацентричной. Трёхфотонное параметрическое рассеяние света ("down conversion") обычно наблюдается в анизотропных ацентричных структурах, для которых может быть выполнено известное условие синхронизма. В случае фотонного кристалла условия сохранения энергии и квазиимпульса (условие синхронизма) в элементарном параметрическом процессе имеют вид:

$$\omega_0 = \omega_1 + \omega_2;$$

$$k_0 = k_1 + k_2 + b_i.$$
(43)

Здесь b_i – вектор обратной решётки. Из-за присутствия этого вектора условие синхронизма оказывается выполненным для нескольких направлений в кристалле, что упрощает наблюдение такого вида рассеяния в искусственных опалах. Дополнительным фактором, приводящим к потере направленности

параметрического рассеяния в глобулярном фотонном кристалле, является сильная неоднородность образцов из-за присутствия в них многочисленных доменов. Фотон возбуждающего излучения (с чатотой \mathcal{O}_0) соответствует ультрафиолетовому процессе диапазону. Один ИЗ фотонов, возникающих В трёхфотонного параметрического рассеяния (с частотой \mathcal{O}_1), соответствует сине-зелёной области спектра. В этой области находится запрещённая фотонная зона и участки резкого возрастания плотности фотонных состояний вблизи краёв запрещённой зоны и резкого замедления групповой скорости соответствующих электромагнитных волн. Таким образом, фотон с частотой ω_1 является «медленным фотоном» - слоутоном. Другой фотон (с частотой ω_2), возникающий в элементарном процессе рассеяния

Другой фотон (с частотой ω_2),возникающий в элементарном процессе рассеяния относится к инфракрасному диапазону частот.

В соответствии с тем, что в элементарных процессах рассматриваемого вида рассеяния света возникают медленные фотоны (слоутоны) как за счёт спонтанного КР, так и за счёт трёхфотонных параметрических процессов, такой вид рассеяния может быть классифицирован как однофотонно-возбуждаемое замедленное рассеяние (O3P).

Для уточнения природы наблюдаемого вторичного излучения нами были выполнены [21] дополнительные эксперименты с образцами, заполненными различными диэлектриками: органическими соединениями с центросимметричной структурой (стильбен – рис.27, РОРОР - рис.28), и неорганическими соединениями, группа симметрии которых как содержала центр инверсии (ромбическая сера), так и относилась нецентросимметричным структурам (нитрит натрия - рис.29, дигидрофосфат аммония, триглицинсульфат).



Рис. 27[21].Спектр вторичного излучения в опале, заполненном стильбеном, при возбуждении ультрафиолетовым излучением.



Рис. 28[21].Спектр вторичного излучения в опале, заполненном РОРОР. Зеленая кривая – фотолюминесценция РОРОР. Красная кривая соответствует меньшей, а черная – большей концентрации РОРОР.



Рис.29[21].Спектр вторичного излучения в опале, заполненном нитритом натрия. Синяя кривая – спектр исходного опала



Рис.30[21].Спектр вторичного излучения в опале, заполненном наночастицами серебра. Пунктир соответствует исходному опалу.

Кроме того, были выполнены эксперименты с опаловыми матрицами, заполненными наночастицами золота или серебра (рис.30). В частности, опаловая матрица пропитывалась водной коллоидной суспензией серебра и в дальнейшем высушивалась при нагревании до температуры 100 ⁰C.

Как выяснилось, при заполнении опаловых матриц стильбеном, спектр собственной флуоресценции которого находится в ближнем ультрафиолетовом диапазоне, наблюдался сдвиг полосы свечения в стоксову область по сравнению с исходным опалом. Это можно объяснить соответствующим перемещением положения запрещённой зоны («стоп-зоны»), аналогичным сдвигу положения отражения света в опалах, заполненных нитратом бария. Такая же максимума ситуация наблюдалась для опалов, заполненных кристаллической серой. Более сложная картина имела место для образцов опалов, заполненных известным люминофором РОРОР(см. рис. 28)Собственная флуоресценция РОРОР находится в голубой области спектра и легко возбуждается ультрафиолетовыми светодиодами. При начальной стадии заполнения опаловой матрицы РОРОР наблюдалось ослабление интенсивности собственной флуоресценции и возникновение двух новых полос вторичного излучения, которые можно объяснить краевым свечением от нижнего и верхнего краёв запрещённой зоны. При дальнейшем заполнении опала РОРОР происходит полное гашение собственной флуоресценции и «разгорание» краевого свечения с формированием резкого пиков интенсивности (см. рис.28)

При заполнении опаловых матриц нецентросимметричными структурами (см. рис.29), наряду со смещением положений максимумов свечения наблюдалось существенное увеличение интенсивности свечения. При этом коэффициент преобразования возбуждающего излучения во вторичное достигал десятков процентов. Такой эффект свидетельствует о том, что главный вклад в наблюдаемое вторичное излучение в этом случае обусловлен трёхфотонным параметрическим

37

процессом, т.е.: распадом ультрафиолетовых квантов на два кванта вторичного излучения, один из которых (сигнальная волна) соответствует медленному фотону, а другой (холостая волна) - соответствует инфракрасному излучению. Аналогичный эффект усиления эффективности свечения наблюдался для образцов опалов, заполненных ультрадисперсным серебром (см. рис.30). Возрастание интенсивности ЗР в этом случае можно объяснить проявлением эффекта гигантского возрастания величины внутреннего поля, возникающего при возбуждении глобулярного фотонного кристалла, заполненного наночастицами серебра, излучением ультрафиолетового или видимого диапазона спектра.

В отличие от обычного трёхфотонного параметрического рассеяния и комбинационного рассеяния света в обычных средах спонтанное ЗР в фотонном кристалле характеризуется излучением в одной и той же области спектра, соответствующей краям запрещённой фотонной зоны, независимо от спектра возбуждения (при условии, что частота возбуждающего излучения превышает частоту краевых фотонов).

9. Однофотонно-возбуждаемое замедленное рассеяние света в глобулярных фотонных кристаллах, возникающее под действием импульсно-периодического лазерного излучения видимого диапазона.

Для уточнения природы наблюдаемого вторичного излучения в опалах были выполнены эксперименты по анализу его свойств в этих материалах при возбуждении вторичного излучения импульсно-периодическим источником света – лазером на парах меди. Исследования были выполнены для исходных опалов (рис. 31), а также для опалов, заполненных центросимметричными (рис. 32) и нецентросимметричными(рис.33-35) средами.



Рис.31.Спектр вторичного излучения в исходном опале при возбуждении лазером на парах меди (510,6 нм).



Рис.32.Спектр вторичного излучения в опале, заполненном люминофором РОРОР при возбуждении лазером на парах меди (510,6 нм).



Рис.33.Спектр вторичного излучения в опале, заполненном дигидрофосфатом аммония при возбуждении лазером на парах меди (510,6 нм)

Возбуждение вторичного излучения осуществлялось лазером на парах меди с длиной волны генерации, равной 510,6 нм. В этом случае энергия квантов возбуждающего излучения находится внутри запрещённой (для нормального падения) зоны, вблизи её низкоэнергетического края. Лазер на парах меди работал с частотой следования импульсов генерации 10⁴Гц и обеспечивал пиковую плотность мощности 10⁴ Вт. При заполнении опаловой матрицы нелинейнооптическими соединениями (дигидрофосфатом аммония, нитритом натрия или MNA) сигнал вторичного излучения на выходе из фотонного кристалла оказался сравнимым с соответствующим сигналом от возбуждающей (см. рис. 33 - 35) линии. Особый интерес представляют результаты анализа вторичного излучения в опаловых матрицах, заполненных наночастицами золота или серебра при возбуждении импульсно-периодическим лазером на парах меди. Интенсивность вторичного излучения в этом случае резко возрастает и составляет десятки процентов от интенсивности возбуждающего излучения даже в случае образцов, незаполненных ацентричными диэлектриками. Спектр излучения при ЭТОМ формируется в основном вблизи низкочастотного края запрещённой зоны исходного Явление резкого (гигантского) возрастания эффективного сечения опала. неупругого рассеяния света в молекулах вблизи наночастиц золота, серебра, платины и некоторых других металлов хорошо известно в современной оптике. Такое явление объясняется резким возрастанием эффективного поля вблизи вблизи наночастиц металлов. аналогичным возрастанию такого поля металлического острия. Особенностью такого явления в данном случае является формирование упорядоченной объёмной структуры наночастиц металлов в виде кристаллической решётки, что открывает новые возможности для усиления эффекта. Таким образом, нами установлено, что в искусственных опалах при их возбуждении импульсно-периодическим лазерным источником света интенсивность свечения опалов с энергиями фотонов, близкими к значениям энергии краёв стопвозрастает существенно В тех случаях, когда заполнение 30ны, опалов осуществляется ацентричными средами, для которых процесс трёхфотонного разрешённым. Это параметрического рассеяния оказывается подтверждает высказанное предположение о том, что природа наблюдаемого вторичного излучения связана с трёхфотонным параметрическим рассеянием света. возникновением сопровождающимся медленных фотонов. Дополнительным механизмом для возрастания интенсивности вторичного излучения в этом случае может служить также комбинационное рассеяние света, поскольку сдвиг частоты по отношению к возбуждающей линии оказывается в диапазоне частот оптических колебаний соответствующих кристаллических решёток. Так как спектр наблюдаемого вторичного излучения находится в области края стоп-зоны, характеризующегося проявлением замедленных фотонов, то можно утверждать, что и в данном случае имеет место эффект ОЗР.



Рис. 34.Спектр вторичного излучения в опале, заполненном NaNO₂ при возбуждении лазером на парах меди (510,6 нм). Звездочка соответствует линии разряда.



Рис. 35.Спектр вторичного излучения в опале, заполненном MNA, при возбуждении лазером на парах меди (510,6 нм). Стрелки соответствуют пикам комбинационного рассеяния, широкая полоса обусловлена фотолюминесценцией молекул MNA.

Наблюдаемый эффект O3P в искусственных опалах в спектральном интервале, соответствующем краям запрещённой зоны, может быть использован в дальнейшем для создания новых типов источников света. При этом область свечения может изменяться в широком диапазоне в зависимости от размеров наночастиц опала или типов наполнителей.

10. Спонтанное комбинационное рассеяние света в исходных и заполненных диэлектриками опаловых матрицах.

Основой матрицы искусственных опалов является амофный кварц (a-SiO₂). Известно, что структура, близкая к амофному кварца осуществляется в стёклах на основе кремнезёма, в частности в плавленом кварце. Спектры КР плавленого кварца, полученные [19] при различных поляризационных геометриях, приведены на рис.36. При этом возбуждение спектров КР осуществлялось линией генерации 514,5 нм аргонового лазера. Как видно из приведенного рисунка в спектре КР плавленого кварца обнаруживается интенсивная поляризованная полоса в области 500 см⁻¹, обусловленная осцилляциями октаэдров SiO₄. При увеличении частоты в обнаруживаются также слабые полосы, обусловленные кислорода и спектре кремния. В области же низких частот при всех поляризационных геометриях проявляется широкая полоса, которая относится к упомянутому «бозонному пику» и связана с формированием квазикристаллических кластеров размером 2-4 нм. При переходе от плавленого кварца к глобулярному фотонному кристаллу, происходит усложнение молекулярной структуры. Можно полагать, что реальные глобулы аморфного кварца в свою очередь состоят из нескольких типов кластеров, колебания которых также должны проявляться в спектре неупругого рассеяния света в соответствующей области частот. В связи с этим, в первую очередь, представляет интерес анализ вида спектров КР в исходных, незаполненных опалах.



Рис. 36[19]. Спектр комбинационного рассеяния в плавленом кварце. Около графиков приводятся обозначения поляризационной геометрии согласно Порто. Бозонный пик соответствует поляризованной полосе с максимумом на частоте 60 см⁻¹.



Рис. 37[19]. Сравнение спектров комбинационного рассеяния в опале (верхняя кривая) и плавленом кварце.

Анализ такого рода спектров усложняется как в связи с возрастанием доли «паразитного» рассеяния, обусловленного присутствием многочисленных микронеоднородностей в реальных опалах, так и в связи с проявлением мешающего для регистрации КР фона параметрического рассеяния, возникающего в том случае, когда длина волны возбуждающего излучения близка к краю фотонной зоны. Такой случай как раз имеет место для аргонового лазера (λ =514,5 нм). В связи с этим более удобным для анализа спектров КР в рассматриваемых типах опалов является использование в качестве возбуждающего излучения линий генерации, находящихся в красной или ближней инфракрасной областях спектра. На рис.37приводятся спектры КР, полученные для опаловой матрицы в сравнении со спектром КР плавленого кварца при возбуждении линией генерации λ=1060 нм лазера на алюмоиттриевом гранате.

Как видно из этого рисунка, спектры КР искусственного опала и плавленого кварца оказываются очень близкими. Небольшое отличие наблюдается лишь в низкочастотной области, что можно объяснить проявлением дополнительных нанокластеров, возникающих в искусственном опале. Обращает на себя внимание довольно интенсивной полосы с максимумом 1600 см⁻¹ в опале; присутствие наличием возникновение этой полосы, возможно, связано с посторонних молекулярных компонентов в опале.

На рис. 38 и 39 приводятся спектры КР, полученные в работе [19] для опала, заполненного наночастицами сегнетоэлектрика – нитрита натрия (верхняя кривая на

рис 39). Внизу на этих рисунках для сравнения, приводится соответствующий спектр в поликристаллическом нитрите натрия. Как видно, в целом наблюдается хорошая корреляция между спектрами макро- и наночастиц. В то же время следует отметить, что имеет место перераспределение относительных интенсивностей в обсуждаемых спектрах и небольшие сдвиги частот комбинационных пиков.



Рис. 38[19]. Спектры комбинационного рассеяния в опале, заполненном наночастицами нитрита натрия (верхняя кривая) в диапазоне частот 800 - 1400 см⁻¹. Внизу для сравнения приводится спектр комбинационного рассеяния поликристаллического нитрита натрия. Стрелки показывают положения пиков комбинационного рассеяния.



Рис. 39[19]. Спектры комбинационного рассеяния в опале, заполненном наночастицами нитрита натрия в диапазоне частот 0 - 1500 см⁻¹.



Рис. 40[19]. Вид спектра комбинационного рассеяния света в опале, заполненном нитритом натрия в диапазоне 0 – 4000 см⁻¹.

Рис.40 иллюстрирует полный спектр КР в опале, заполненном нитритом натриясегнетоэлектрическом опале- в диапазоне 0-4000см⁻¹. Как видно из этого рисунка, в высокочастотной области спектра обнаруживаются малоинтенсивные полосы, которые не могут быть отнесены к фундаментальным колебаниям молекулы NaNO₂. Объяснение присутствия этих полос в наблюдаемом спектре состоит в способе приготовления композита. Так как нитрит натрия, вводимый в опаловую матрицу, был растворён в этиловом спирте, наблюдаемые высокочастотные полосы обусловлены присутсвием в порах небольшой доли молекул этилового спирта, которые, возможно, находятся в связанном состоянии с аморфным кварцем.

Особый интерес представляет возможность наблюдения резонансного КР в молекулах, введённых в поры опаловой матрицы, а также условия наблюдения гигантского КР, когда в поры опаловой матрицы вводятся наночастицы серера и анализируемое молекулярное соединение. Таким образом, опаловые матрицы, заполненные диэлектриками, могут быть использованы как сверхчувствительные сенсоры молекулярных структур. Новые возможности открываются также для оптимизации режимов возбуждения и понижения порогов генерации ВКР при ВКР-активными веществами: заполнении опаловых матриц сероуглеродом, бензолом, жидким азотом и другими.

11. Спонтанное глобулонное рассеяние света в опалах при непрерывном

лазерном возбуждении излучением в видимой области спектра.

В каждой глобуле фотонного кристалла возникают стоячие волны; в простейшем случае частота резонаторной моды находится по формуле $\omega = s \frac{\pi}{I}$, где

L=d – диаметр глобулы, a s – скорость звука внутри глобулы (сферической частицы кремнезёма). Резонаторные моды в глобулах фотонного кристалла соответствуют движениям, в результате которых происходит изменение размеров глобул. В фотонном кристалле возбуждение от одной глобулы может передаваться к другой глобуле; соответственно в кристалле может распространяться волна возбуждений глобул глобулонная волна. Квазичастицы, соответствующие глобулонной волне естественно называть глобулонами. Соответственно неупругое рассеяния света с возбуждениями глобулонных волн может быть названо глобулонным рассеянием света. При малых интенсивностях накачки такое рассеяние естественно носит спонтанный характер. По своей природе глобулонное рассеяние близко как к комбинационному рассеянию света, так и к рассеянию Мандельштама- Бриллюэна, но существенным образом отличается от этих видов рассеяния. В отличие от рассеяния Мандельштама – Бриллюэна, глобулонное рассеяние может наблюдаться как для геометрии «вперёд», так и для 180-градусной геометрии (рассеяние «назад»). В отличие от комбинационного рассеяния света, частотный сдвиг для глобулонного рассеяния оказывается существенным меньшим, чем при комбинационном рассеянии, и составляет десятые доли см⁻¹.

В работе [27] впервые были получены спектры такого вида рассеяния в искусственном опале при возбуждении излучением аргонового лазера с длиной волны генерации 514,5 нм в оптической схеме обратного рассеяния на 180°. Для измерений были использованы синтетические опалы с диаметром шаров 204, 237, 284 и 340 нм. Типичный спектр спонтанного глобулонного рассеяния, полученный в этих экспериментах, приведён на рис.41.



Рис41. Вид спектра спонтанного глобулонного рассеяния, полученного в работе [27].

этом рисунке видны шесть хорошо разрешаемых пиков рассеяния в Ha стоксовой и антистоксовой областях на частотах резонаторных мод в диапазоне 7-27 $\Gamma\Gamma\mu$ (1 см⁻¹ соответствует 3х10¹⁰ $\Gamma\mu$). Присутствие антистоксовых спутников объясняется большой «заселённостью» низких энергетических уровней при комнатной температуре. Как выяснилось, положение относительная И интенсивность спутников не зависят OT поляризации угла И падения возбуждающего излучения. Кроме того, параметры пиков рассеяния не изменяются при вращении образцов вокруг нормали к их поверхности в точке падения возбуждающего излучения. Благодаря тому, что диаметры шаров в кристалле опала одинаковы с высокой точностью (3%), пики в спектре рассеяния хорошо разрешаются.

Анализ результатов экспериментов проводился с использованием теории резонаторных мод в однородном упругом шаре со свободной поверхностью. Основные положения этой теории были сформулированы Лэмбом [30]. Им было предсказано существование двух видов глобулонных осцилляций, характеризуемых значениями (квантовыми числами) *l* и n.

Введем безразмерные величины, характеризующие эти моды:

$$\xi_{nl} = \frac{\pi v_{nl} D}{V_L}$$

$$\eta_{nl} = \frac{\pi v_{nl} D}{V_T} , \qquad (44)$$

где v_{nl} – частота акустической моды, D – диаметр шара, V_L и V_T – продольная и поперечная скорости звука в материале шара соответственно.

Уравнение для собственных значений, соответствующих акустическим модам, возбуждаемым в шаре при рассеянии света, выглядит следующим образом :

$$2\left[\eta^{2} + (l-1)(l+2)\left(\frac{\eta j_{l+1}(\eta)}{j_{l}(\eta)} - (l+1)\right)\right] \frac{\xi j_{l+1}(\xi)}{j_{l}(\xi)} - \frac{1}{2}\eta^{4} + (l-1)(2l+1)\eta^{2} + \left[\eta^{2} - 2l(l-1)(l+2)\right]\frac{\eta j_{l+1}(\eta)}{j_{l}(\eta)} = 0$$
(45)

где η и ξ – соответствующие собственные значения, а $j_l(\eta)$ – сферическая функция Бесселя первого рода.

Полученные экспериментальные результаты были использованы для определения значений скоростей распространения звука в глобулах, образующих кристалл. Такими значениями, наиболее точно описывающими полученный спектр, оказались V_L=5279 м/с и V_T=3344 м/с, что хорошо согласуется с известными значениями для плавленого кварца.

Так как эксперименты проводились с использованием кристаллов, составленных шаров разных размеров, возможным ИЗ то оказалось экспериментально проверить вид зависимости частоты акустических мод от диаметра шаров. Как известно из акустики, резонансные частоты для шара обратно диаметру D. Экспериментальные пропорциональны его значения хорошо описываются формулой вида

$$v_{nl} = \frac{v_0(n,l)}{D},$$
 (46)

где $v_0(n,l)$ – некоторая функция, зависящая от чисел *n* и *l*.

что элементарные Отметим, возбуждения, возникающие В процессе глобулонного рассеяния света, являются неактивными резонансного ДЛЯ взаимодействия с электромагнитными волнами, т.е соответствующие состояния, классифицируемые чётными симметрии, типами являются «тёмными» (дарктонными), а квазичастицы, возникающие в элементарных процессах такого вида рассеяния, можно отнести к дарктонам.

12.Вынужденное глобулонное рассеяние света.

Опаловые матрицы сравнительно легко заполняются молекулярными жидкостями, смачивающими кварц: 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. Исследования вынужденного рассеяния света в глобулярных фотонных кристаллах до последнего времени не выполнялись. В работе [31] нами впервые сообщается об экспериментальном наблюдении вынужденного глобулонного рассеяния (ВГР) света в опаловых матрицах и в искусственных опалах, заполненных молекулярными жидкостями.

В качестве источника возбуждающего излучения нами использовался лазер на рубине (длина волны генерации – 694,3 нм), работающий в режиме модуляции добротности. Длительность гигантского импульса лазера составляла: $\tau = 20$ нс; максимальная энергия в импульсе равнялась 0,3 Дж.; расходимость 3,5 10^{-4} рад.; ширина линии генерации 0,015 см⁻¹.

Исследования были выполнены для двух геометрий рассеяния: «вперёд»(0 – градусное рассеяние) и «назад» (180 – градусное рассеяние). Соответствующие схемы эксперимента приведены на рис 42 и 43.



Рис. 42 [18].Принципиальная схема эксперимента для наблюдения ВГР при геометрии «вперёд»; 1 - рубиновый лазер, 2- поворотное пластина, 3 – измеритель энергии возбуждающего излучения, 4 - фокусирующая оптика, 5 - исследуемый образец фотонного кристалла, 6 - -интерферометр Фабри – Перо, 7 - устройство для регистрации спектров.

48



Рис. 43[18].Принципиальная схема эксперимента для наблюдения ВГР при 180 –градусной геометрии рассеяния (геометрия - «назад»); 1 - рубиновый лазер, 2,5,7 - поворотные полупрозрачные пластины, 3,8,11 – измерители энергии возбуждающего и вынужденного излучений, 4 - съёмное зеркало, 6 фокусирующая оптика, 9 - исследуемый образец фотонного кристалла, 10 - интерферометр Фабри – Перо, 12 - устройство для регистрации спектров.

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 двумя базами, обеспечившими область дисперсии 0,42 и 1,67 см⁻¹ соответственно.

В результате экспериментов были получены спектры, соответствующие возбуждающему излучению и стоксовым компонентам, обусловленным осцилляциями кварцевых глобул в чистых опалах колебаниями глобул, окружённых молекулярными жидкостями, в опалах пропитанными этими жидкостями.

На рис. 44 представлена интерферограмма спектра генерации используемого в этой работе рубинового лазера. При этом наблюдается система «тонких» концентрических колец, ширина которых характеризует спектральную ширину линии генерации, составляющую в нашем случае 0,015 см⁻¹.



Рис. 44[18]. Интерферограмма спектра излучения линии генерации лазера на рубине (λ=694,3 нм).



Рис. 45(а) [18]. Интерферограммы спектров ВГР в исходном (незаполненном молекулярной жидкостью) фотонном кристалле в сравнении со спектром генерации лазера на рубине (λ =694,3 нм) при геометрии рассеяния «назад»; область дисперсии – 0,833 см⁻¹; двойные кольца относятся к лазерному излучению (кольцо большего диаметра) и ВГР (кольцо меньшего диаметра) соответственно.



Рис. 45(b) [18]. Интерферограммы спектров ВГР в исходном (незаполненном молекулярной жидкостью) фотонном кристалле без сравнении со спектром генерации лазера на рубине (λ =694,3 нм) при геометрии рассеяния «назад»; область дисперсии – 0,833 см⁻¹;(а) – двойные кольца относятся к лазерному излучению (кольцо большего диаметра) и ВГР (кольцо меньшего диаметра); ВГР зарегистрировано для геометрии, при которой отсутствовало зеркало 4 (см. рис. 43), отражающее лазерное излучение.

Для незаполненной опаловой матрицы при геометрии рассеяния «назад» (см. рис.45,а) в спектре обнаружилась лишь одна стоксова компонента, сдвинутая относительно компоненты, соответствующей возбуждающему излучению на величину 0,4 см⁻¹. В этом случае наблюдаются двойные кольца, соответствующие рубину (кольцо большего диаметра) и ВГР – «назад»(кольцо меньшего диаметра). Если убрать зеркало 4 (см. рис.45,b), отражающее лазерное излучение, то в этом случае остаются лишь одиночные кольца, соответствующие ВГР-«назад». При этом ширина линии ВГР близка к ширине линии возбуждающего излучения и составляет 0,015 см⁻¹. Это свидетельствует о высокой когерентности и направленности ВГР (строго назад) и о диффузном характере рассеяния излучения на несмещенной частоте. Спектральная ширина кольца ВГР близка к спектральной ширине кольца возбуждающего излучения и составляет 0,015 см⁻¹.

Для нанокомпозитных фотонных кристаллов, заполненных этиловым спиртом, при геометрии рассеяния «назад» на интерферограммах наблюдались один (при меньшей мощности накачки; см. рис.46) или два (при повышенной мощности) типа стоксовых колец ВГР.



Рис. 46[18]. Интерферограммы спектров ВГР в заполненном этиловым спиртом фотонном кристалле в сравнении со спектром генерации лазера на рубине (λ =694,3 нм) при геометрии рассеяния «назад» ; двойные кольца относятся к лазерному излучению (кольцо большего диаметра) и ВГР (кольцо меньшего диаметра)соответственно. Плотность мощности возбуждающего излучения - 0,21 GW/cm²; область дисперсии -1.67 cm⁻¹.

Таким образом, для определённых условий эксперимента наблюдались две стоксовы компоненты, соответствующие двум типам осцилляций глобул кварца. Такой эффект наблюдался как для опалов, пропитанных этиловым спиртом, так и ацетоном. Ширина линий ВГР для обеих компонент при этом была сравнима с шириной линии возбуждающего излучения и составляла 0,015 см⁻¹. Рис. 47 иллюстрирует изменение вида спектра рассеянного излучения при возрастании плотности мощности накачки для образцов опалов, пропитанных ацетоном.

Следует отметить, что при насыщении опаловой матрицы этиловым спиртом или ацетоном, образец становится практически прозрачным. Это объясняется тем, что при этом показатели преломления компонентов опаловой матрицы несущественно отличаются. Прозрачность образца для возбуждающего излучения обеспечила возможность наблюдения ВГР при 0-градусной геометрии (ВГР – «вперёд»).



Рис. 47 [18]. Интерферограммы спектров ВГР в заполненном ацетоном фотонном кристалле в сравнении со спектром генерации лазера на рубине (λ =694,3 нм) для геометрии рассеяния «назад» при двух значениях плотности накачки: 0,12 GW/cm² (слева) и 0.21 GW/cm² (справа). Одно из колец относится к лазерному излучению (кольцо большего диаметра) и ВГР (два кольца меньших диаметров, справа)).

Как выяснилось в результате проведенных экспериментов, ВГР наблюдается как для геометрии рассеяния «назад», так и для 0-градусной (см. рис.48) геометрии (рассеяние «вперёд»). Таким образом, если в случае ВРМБ вообще невозможно наблюдать вынужденное рассеяние при 0-градусной геометрии, то для ВГР, как следует из наших экспериментов, это оказывается возможным.

таблице приведены стоксовой В 1 частотные сдвиги компоненты, наблюдаемые для различных геометрий эксперимента. Как следует из приведенной таблицы, значения наблюдаемых стоксовых сдвигов частот ВГР в опалах, заполненных жидкостями, близки к сдвигам частот ВРМБ, наблюдаемых ранее в Таким образом, эффект ВГР наблюдался этих же жидкостях. как для незаполненных искусственных опалов, так и для опаловых нанокомпозитов, в которых пустоты между глобулами заполнены молекулярными жидкостями: ацетоном или этиловым спиртом. Наблюдение ВГР оказалось возможным при использовании гигантских импульсов лазера на рубине с пиковой мощностью в исходном пучке 10⁷ Вт и при фокусировке возбуждающего излучения в вещество линзой с фокусным расстоянием 50 мм. Измерения спектров ВГР проводились в условиях отсутствия пробоя в веществе.



Рис. 48[18]. Интерферограммы спектров ВГР в заполненном ацетоном фотонном кристалле в сравнении со спектром генерации лазера на рубине (λ=694,3 нм) при геометрии рассеяния «вперёд»; двойные кольца относятся к лазерному излучению (кольцо большего диаметра) и ВГР (кольцо меньшего диаметра). Область дисперсии – 1,67 см⁻¹.

При возбуждении опаловых матриц, заполненных диэлектриками, мощными лазерными импульсами следует ожидать проявления и других нелинейных процессов, в частности, вынужденного комбинационного рассеяния света, трёхфотонных и четырёхфотонных параметрических процессов, нелинейновозбуждаемой люминесценции, генерации оптических гармоник, гиперрэлеевского и гиперкомбинационного рассеяний света.

Отметим также, что как спонтанное, так и вынужденное глобулярное рассеяние света позволяют получать информацию о спектре нормальных колебаний глобул различной природы, включая сферические наночастицы в гетерогенных средах, белковые глобулы, вирусы и т.д. При вынужденном глобулярном рассеянии осцилляции всех глобул фотонного кристалла оказывается сфазированными.

| расселини. | | |
|-------------------------|-----------------------------|-----------------|
| Геометрия рассеяния | Δ , cm ⁻¹ | Число стоксовых |
| | | компонент |
| ВГР – «назад» в | 0.44 | 1 |
| исходном опале | | |
| ВГР – «назад» в опале, | 0.40 | 2 |
| заполненном ацетоном | 0.65 | |
| ВГР – «вперёд» в опале, | 0,40 | 1 |
| заполненном ацетоном | | |
| ВГР – «назад» в опале, | 0,39 | 2 |
| заполненном этанолом | 0,63 | |
| ВГР – «вперёд» в опале, | 0,37 | 1 |
| заполненном этанолом | | |

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

13. Опаловые матрицы как активные среды.

До последнего времени создание твердотельных активных сред с оптической накачкой осуществлялось главным образом путём введения редкоземельных ионов в виде легирующих примесей в стёкла или монокристаллы. Новым материалом в этой области являются прозрачные керамики, характеризующиеся присутствием нанопор, которые могут служить в качестве носителя активной среды. При этом размеры пор, а также их удалённость друг от друга хаотическим образом изменяются внутри керамического образца. С этой точки зрения глобулярные фотонные кристаллы также представляют большой интерес, так как в них размеры пор и их удалённость друг остаются неизменными во всём объёме опаловой матрицы. Другим важным преимуществом опалов как активных сред является возможность резкого снижения порога лазерной генерации в том случае, когда в процессе излучения возникают слоутоны – медленные фотоны. При этом вероятность излучения усиливается по сравнению с соответствующим процессом в однородной среде из-за резкого возрастания плотности фотонных состояний вблизи края запрещённой фотонной зоны.

Об экспериментах по созданию такого рода активных сред с использованием глобулярного фотонного кристалла, сообщалось в работе [31]. При этом в поры опловой матрицы вводился окисел эрбия, для осуществления генерации с длиной волны 1,54 мкм. Как выяснилось из этих экспериментов, квантовый выход фотолюминесценции резко возрастал при увеличении концентрации иона Er^{3+} , в то время как для лазерных стёкол наблюдается концентрационное тушение для этого элемента. Одним из методов заполнения пор редкоземельными элементами являлось приготовление водных нитратов соответствующих соединений (ErNO₃ и YbNO₃).

Большой интерес представляет также возможность получения генерации в видимом диапазоне на основе активных сред, содержащих редкоземельные ионы,

размещаемые в порах опаловой матрицы. С этой точки зрения весьма перспективными являются ионы диспрозия, обеспечивающие получение резких полос фотолюминесценции [10] в зелёной области спектра (см. рис.49).



Рис.49[10]. Спектр вторичного излучения, возникающего в опале, заполненном окисью диспрозия, возбуждаемого ультрафиолетовым излучением ртутной лампы; две кривые соответствуют двум поверхностям исследуемого образца.

При введении в поры опаловых матриц полупроводниковых квантовых точек или молекул красителей может быть реализована инверсная заселённость при широкополосной накачке или при накачке излучением, частота которого близка к низкочастотному краю запрещённой фотонной зоны (стоп-зоны) и к полосе Другая возможность для генерации в поглощения соответствующих молекул. видимом и даже ультрафиолетовом диапазоне связана с использованием процессов «ир»-конверсии и сложения частот генерации при введении в поры опала наряду с нелинейно-оптических активными ионами структур (нитрита натрия, дигидрофосфата калия, MNA и др).

Как было отмечено при анализе вторичного излучения в опаловых матрицах и нанокомпозитах, при оптическом возбуждении таких систем наблюдается также параметрическое излучение в узком спектральном диапазоне, вблизи краёв запрещённой зоны. При использовании селективных спектральных элементов и оптических резонаторов и достаточно интенсивной накачке такое излучение должно принимать когерентный характер, что также открывет возможности для реализации новых типов лазеров. Важно отметить, что в этом случае генерация обеспечивается не за счёт создания инверсной заселённости, а за счет процессов индуцированного излучения при вынужденном рассеянии света. Изменение размеров наночастиц опаловой матрицы или показателей преломления заполняющих компонентов при этом обеспечивает перестройку длины волны генерации в широком спектральном диапазоне.

14. Резонансное и двухфотонно-возбуждаемое замедленное рассеяние света в глобулярных фотонных кристаллах.

При достаточно большой отстройке частоты возбуждающего излучения от краёв запрещённой фотонной зоны главный вклад в возбуждение слоутонных состояний, как уже отмечалось, вносят трёхфотонные параметрические процессы. При этом порог перехода от режима спонтанного параметрического рассеяния к генерации должен быть пониженным по сравнению с однородными нелинейными средами за счёт аномального возрастания плотности фотонных состояний вблизи краёв зоны.

При небольшой отстройке частоты существенный вклад в процесс возникновения медленных фотонов (слоутонов) в кристалле могут внести также процессы комбинационного рассеяния, которые усиливаются из-за резкого возрастания плотности фотонных состояний вблизи краёв запрещённой зоны.



Рис. 50. Спектры свечения опала, заполненного органическим соединением РОРОР, при возбуждении полупроводниковыми светодиодами с длинами волн: λ= 381,5 нм (верхний спектр); 463,0 нм.(средний спектр) и 530 нм(нижний спектр). Пунктир соответствует возбуждающей линии.



Рис.51. Спектры РЗР исходного опала при возбуждении двумя полупроводниковыми светодиодами видимого диапазона: λ = 463,0 нм(вверху) и λ = 530,0 нм (внизу). Пунктир соответствует возбуждающей линии.

Если же частота возбуждающего излучения совпадает с одной из частот, соответствующей краю (низкочастотному или высокочастотному) запрещённой

зоны, то в этом случае должно происходить резонансное возбуждение слоутонных состояний, соответствующих медленным фотонам - слоутонам. Соответствующее рассеяние света естественно называть резонансным замедленным рассеянием (РЗР). Результаты экспериментальных исследований, выполненные автором совместно с А.А. Есаковым (ФИРАН), особенностей спектров вторичного излучения, когда частота возбуждающего излучения приближается к частоте, соответствующей краю запрещённой зоны, иллюстрируются рис. 52-54.



Рис. 52. Спектры РЗР опала, заполненного нитритом натрия, при возбуждении полупроводниковыми светодиодами видимого диапазона с длинами волн: λ=

463,0 нм (вверху) и 530 нм(внизу). Пунктир соответствует возбуждающей линии.

При этом возбуждение вторичного излучения осуществлялось полосы полупроводниковыми диодами, максимум излучения которых соответствовал видимой (463,0 и 530,0 нм) или ультрафиолетовой (381,5 нм) Из рис. 52, иллюстрирующего обсуждаемый эффект для областям спектра. органического соединения РОРОР, видно, что с приближением длины волны максимума интенсивности полосы возбуждающего излучения к краю стоп-зоны, наблюдается пестройка спектра вторичного излучения: интенсивность полосы вторичного излучения увеличивается, а соответствующее положение макимума интенсивности приближается к полосе возбуждающего излучения. Самый нижний спектр на рис. 52 соответствует РЗР; при этом в спектре вторичного излучения наблюдается одиночная полоса, близкая по форме к полосе возбуждающего излучения, но сдвинутая стоксову область. Аналогичная ситуация имеет место для исходного опала (рис.53) и для опала, заполненного нитритом натрия (рис. 54). При этом резонанс осуществляется как для нижнего, так и для верхнего края стоп-зоны. По измеренным значениям частот максимумов РЗР могут быть оценены значения частот, соответствующих слоутонным состояниям.

Элементарный процесс четырёхфотонного параметрического рассеяния света состоит в одновременном уничтожении двух квантов возбуждающего излучения с последующим возникновением двух квантов вторичного излучения. В соответствии со свойствами оператора возмущения в этом случае такой процесс оказывается разрешённым правилами отбора как для нецентросимметричных, так и для центросимметричных сред. Законы сохранения энергии и квазиимпульса в элементарном процессе четырёхфотонного параметрического рассеяния в глобулярном фотонном кристалле имеют вид(ħ=1):

$$2\omega_{0} = \omega_{1} + \omega_{2};$$

$$2k_{0} = k_{1} + k_{2} + b_{i}.$$
(45)

Здесь ω_0 - частота квантов возбуждающего излучения, ω_1, ω_2 - частоты двух возникающих квантов (b_i – вектор обратной решётки). Так как рассматриваемый процесс является нелинейным, для его наблюдения необходимо использование достаточно интенсивных источников возбуждающего излучения. Порог для перехода от режима спонтанного излучения к генерации существенно понижается, если один из возникающих фотонов (например, с частотой \mathcal{O}_1) является слоутоном «медленным» фотоном. Остановимся на результатах экспериментального исследования [32], недавно выполненного А.Д. Кудрявцевой и Н.В. Чернегой этом направлении. В этих экспериментах в качестве источника (ФИРАН) в излучения использовался рубиновый возбуждающего лазер. генерирующий гигантские импульсы с длительностью 20 нс и энергией 0,3 Дж. Расходимость возбуждающего излучения составляла 3,5х10⁻⁴ рад., а спектральная ширина линии генерации (694,3 нм) - 0,015 см⁻¹. Эксперименты проводились для геометрий

60

«назад» с использованием фокусирующей линзы «вперёд» И на образце глобулярного фотонного кристалла в условиях отсутствия искры. При этом плотность мощности возбуждающего излучения внутри образца составляла 10-100 MBT/cm^2 . B качестве образцов для исследований использовались тонкие ориентированные пластины глобулярных фотонных кристаллов с поверхностью (111). Исследуемые образцы закреплялись (см. Рис. 53) на хладопроводе, температура которого была близка к температуре кипения азота (78 К).



Рис.53[32]. Схема экспериментальной установки для возбуждения опалов гигантским импульсом рубинового лазера; 1 - рубиновый лазер, 2 - фокусирующая система, 3, 4, 5 - исследуемые кристаллы, 6 - подложка, 7 - кювета с жидким азотом, 8 - волоконный световод, 9 - спектрометр, 10 - компьютер.

Как выяснилось в результате выполненных экспериментов, при возбуждении глобулярного фотонного кристалла гигантским импульсом рубинового лазера в нём возникало антистоксово (сине-зелёное) свечение, интенсивность которого в момент лазерного импульса была сравнима с интенсивностью накачки. Анализ наблюдаемого свечения осуществлялся с помощью цифровой фотокамеры в режиме заданной экспозиции или с использованием покадровой развёртки с интервалом 0,01 с. Для выяснения вида спектра свечения применялся миниспектрометр типа FSD8, параметры которого приводились выше. На рис. 54 приводятся фотографии излучения, наблюдаемого в момент лазерной вспышки (рис. 54;а) и через некоторое время: ~1c(рис. 54;b). Наряду с красной вспышкой рубинового лазера отчётливо наблюдалось сине-зелёное свечение, сконцентрированное в области фокусировки возбуждающего излучения. Как было выяснено из экспериментов, вторичное излучение в сине-зелёной области спектра присутствовало в опале и после лазерного импульса, имеющего длительность 20 нс, в течение 3-5 с. Другая важная особенность наблюдаемого вторичного излучения состояла в том, что оно наблюдалось не только в образце, внутри которого было сфокусировано возбуждающее излучение, но и для образцов, расположенных около облучаемого кристалла на расстоянии в несколько миллиметров (см. рис 55). Длительное

61

послесвечение вторичного излучения может служить подтверждением возбуждения в данном случае «долгоживущих» слоутонов, положение которых в спектре соответствует сине-зелёному диапазону.



(a)



(b) Рис. 54. [32] Фотография свечения поверхности опала в момент лазерной вспышки (а)и после неё, через ~1с(b).

Эффект наиболее выразительно проявлялся при низких температурах образца (близких к температуре кипения азота). Интенсивность сине-зелёного свечения резко изменялась в зависимости от ориентации образца, т.е. для его наблюдения требовалось выполнения условий синхронизма. Наблюдаемый эффект носил пороговый характер и начинал проявляться при плотности мощности на образце 10⁷

Вт/см², что свидетельствует о вынужденном характере такого рода вторичного излучения. Важно отметить, что, как показал экспериментальный анализ временной зависимости такого свечения, его интенсивность изменялась немонотонно, т.е. наблюдались осцилляции интенсивности. В некоторых случаях в определённый момент времени после импульса накачки сине-зелёное излучение практически пропадало, а затем появлялось снова.



Рис.55 [32]. Фотография свечения кристаллов, расположенных на медной подложке, при температуре жидкого азота. Красный цвет соответствует первичному излучению рубинового лазера. Сине-зедёный цвет соответствует задержанному во времени излучению, возникающему в облучаемом образце, а также в образцах, расположенных на расстоянии в несколько миллиметров от облучаемого кристалла.

Наблюдаемый эффект может быть интерпретирован как проявление двухфотонно-возбуждаемого замедленного рассеяния (ДЗР) света в глобулярном Эффект фотонном кристалле. ДЗР можно рассматривать как новый вид вынужденного рассеяния света, так как оно имеет пороговый характер и проявляется только при достаточно высоких интенсивностях возбуждающего излучения. В результате такого рассеяния происходит генерация слоутонов в синезелёной области спектра в глобулярном фотонном кристалле при двухфотонной накачке. При этом в элементарном процессе рассеяния на первом этапе поглощаются два кванта возбуждающего излучения, а на втором одновременно рождается слоутон, соответвующий краю зоны Бриллюэна в синей или этапе областях спектра, комплементарный фотон, зелёной И соответствующий инфракрасному диапазону. Длительное послесвечение в сине-зелёной области обусловлено малой скоростью распространения спектра соответствующих электромагнитных волн. Учитывая, что размер пластины фотонного кристалла

63

составлял 0,1см, а длительность послесвечения 1с, можно полагать, что скорость соответствующих электромагнитных волн внутри образца не превышала 0,1 см/с. Аномальное замедление электромагнитных волн вторичного излучения (слоутонных волн), генерируемых при двухфотонной накачке гигантскими лазерными импульсами, обеспечивает резкое (на несколько порядков) локальное возрастание плотности энергии электромагнитного излучения внутри фотонного кристалла. При импульсно-периодическом лазерном возбуждении возможно накопление этой энергии внутри образца с течением времени. Таким образом, генерация слоутонных волн при ДЗР представляется перспективной для осуществления локального разогрева материальной среды, необходимого для инициирования химических реакций, структурных превращений, ядерных реакций и т.д.

Наблюдаемые осцилляции интенсивности послесвечения могут быть объяснены образованием, а затем разрушением связанных состояний фотонов - бифотонов, обсуждавшихся выше. При этом уменьшение интенсивности свечения соответствует переходу части слоутонов в связанные состояния – бифотоны. Распад связанных состояний приводит к увеличению числа слоутонов, т.е. к возрастанию интенсивности вторичного излучения.

Особая ситуация возникает в том случае, когда в частотную область проявления медленных фотонов попадает вторая оптическая гармоника возбуждающего излучения. Если при этом в порах кристалла присутствуют ацентричные молекулы, характеризующиеся высокой нелинейностью, наблюдается резкое возрастание интенсивности на частоте второй оптической гармоники. Эксперименты по наблюдению такого эффекта были выполнены автором совместно с Н.Ф. Бункиным и В.Д. Шигориным (ИОФРАН).



Рис. 56. Иллюстрация эффекта удвоения частоты лазерного излучения глобулярным фотонным кристаллом, заполненным MNA. Представлена фотография излучения второй оптической гармоники(λ=532 нм), возбуждаемой лазером на алюмоиттриевом гранате(λ=1064 нм).

Рис. 56 иллюстрирует эффективное преобразование инфракрасного излучения лазера на алюмоиттриевом гранате (1064 нм) в зелёное излучение с длиной волны 532 нм с помощью глобулярного фотонного кристалла, насыщенного MNA.Таким

образом, глобулярные фотонные кристаллы, заполненные ацентричными молекулами с высокими нелинейно-оптическими характеристиками, могут служить в качестве эффективных умножителей частоты лазерного излучения.

15.Заключение.

глобулярные фотонные Таким образом. кристаллы обнаруживают уникальные оптические и нелинейно-оптические свойства, открывающие новые возможности для квантовой электроники. Оказывается возможным заполнение различными компонентами: опаловых матриц нелинейно-оптическими материалами, включая сегнетоэлектрические структуры с высокими нелинейнокоэффициентами, ВКР-активными молекулярными оптическими средами, редкоземельными элементами, магнитными материалами, наночастицами благородных металлов и др. Обнаруженные явления свечения и послесвечения опаловых матриц при их возбуждении источниками света ультрафиолетового и видимого диапазонов позволяют надеяться на создание новых типов излучателей в различных областях спектра.

Заполнение опаловых матриц молекулами красителей или полупроводниковыми квантовыми точками открывает возможности для создания новых типов активных сред, генерирующих лазерное излучение с высоким кпд.

Введение наночастиц благородных металлов (серебра, золота, платины) в опаловые матрицы позволяет осуществлять процессы гигантского усиления эффективности возбуждения вторичного излучения, включая комбинационное рассеяние света, генерацию оптических гармоник, параметрические процессы и т.д. Эффект ВГР открывает возможность для наблюдения вынужденного рассеяния света как при 180-градусной геометрии, так и в направлении «вперёд». Вынужденное послесвечение в опалах – эффект ДЗР - позволяет накапливать энергию электромагнитного излучения внутри материальной среды в небольшой области образца в течение нескольких секунд. Новые особенности в глобулярных фотонных кристаллах ожидаются для известных ранее нелинейных явлений, ВКР, гиперрэлеевское и гиперкомбинационное рассеяние включая света. двухфотонно-возбуждаемую флуоресценцию, генерацию оптических гармоник и др.

В заключение автор выражает признательность М.И. Самойловичу и С.Н. Ивичевой за предоставление образцов опалов для исследований, а также всем соавторам экспериментальных исследований, цитированных в данной работе.

Литература

- 1. V.P. Bykov. Soviet Physics JETP , **35**, 269,1972.
- 2. E. Yablonovitch. Phys. Rev. Lett., 58, 2059, 1987.
- 3. S.John. Phys. Rev. Lett. 58, 2486, 1987.
- 4. E, Yablonovitch T.J. Gmitter, K.M. Leung. Phys. Rev. Lett., 67,2295,1991.

5. I.S. Fogel, J.M. Bendickson, M.D. Tocci, M.J. Bloemer, M. Scalora C.M., Bowden J.P. Pure Appl. Opt., 7, 393,1998.

6.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.

7. Горелик В.С., Злобина Л.И., Мурзина Т.В., Свербиль П.П., Сычев Ф.Ю. КСФ, N 6, 3. 2004

8.V.S.Gorelik, L.I. Zlobina, P.P. Sverbil', A.B. Fadyushin, A.V. Chervyakov. J. of Russian Laser Research, **26**, N 3, 211, 2005

9.V.S.Gorelik, V.I. Burkov, N.N. Melnik, P.P. Sverbil, S.N. Ivicheva, L.I. Zlobina, A.V. Chervyakov. Chinese journal of light scattering, **17**, N 3, 268, 2005

10А.Н.Артамонов, В.И.Бурков, А.Г.Витухновский, В.С.Горелик, С.Н.Ивичева, П.П.Свербиль, В.М. Скориков. Фотолюминесценция нанокомпозитов на основе опаловых матриц кремнезолей с РЗЭ. КСФ, No. 10, 20, 2005

- А.Н. Артамонов, В.И. Бурков, А.Г.Витухновский, В.С. Горелик, С.Н. Ивичева. Тезисы докладов III Всероссийской конференции "Необратимые процессы в природе и технике", г., Москва, Изд-во МГТУ им. Н.Э.Баумана, 278, 2005.
- 12. В.С. Горелик, Л.И. Злобина, П.П. Свербиль, А.Б. Фадюшин, А.В. Червяков. Препринт ФИАН, No. 2, 28 с., 2005.
- 13.В.С. Горелик, Л.И. Злобина, А.А. Манушкин, М.И. Самойлович, П.П. Свербиль, В.А. Соменков, Н.И. Юрасов. Материалы XI Международной научнотехнической конференции "Высокие технологии в промышленности России", Москва, 91, 2005.
- 14.Ю.Я. Голубь, В.С. Горелик, Л.И. Злобина, В.Н. Моисеенко, П.П. Свербиль. В сборнике "Необратимые процессы в природе и технике", ред. А.Н.Морозов и В.С. Горелик, Изд. РИИС ФИАН, г. Москва, 308, 2005 г.
- 15.В.С. Горелик. В сборнике "Необратимые процессы в природе и технике", ред. А.Н.Морозов и В.С. Горелик, Изд. РИИС ФИАН, г. Москва, 283, 2005 г.
- 16.V.S.Gorelik. Proc. of Int. Scient. Meet. "Physical Interpretations of Relativity Theory", Moscow, 70, 2005.
- 17.Yu.Ya. Golub', V.S.Gorelik. Positive and negative value of refraction index and effective mass of photons in globular photonic crystal. Proc. of Int. Scient. Meet. "Physical Interpretations of Relativity Theory", Moscow, 288, 2005.
- 18.В.С. Горелик, А.Д. Кудрявцева, Н.В. Чернега. Вынужденное глобулярное
- рассеяние света в трёхмерных фотонных кристаллах. Препринт ФИАН, №31, 15 стр. 2005.
- 19.Л.П. Авакянц, В.С. Горелик, Л.И. Злобина, Н.Н. Мельник, П.П. Свербиль, А.Б. Фадюшин, А.В. Червяков. Неорганические материалы, **42**, № 6, 703, 2006,
- 20.V. S. Gorelik.. Proc. 13th Central European Workshop on Quantum Optics" ("13 CEWQO 2006") Wien, 15, 2006.

21.В.С., Горелик, А.А., Есаков, А.Б. Фадюшин. Свечение глобулярных фотонных кристаллов при ультрафиолетовом возбуждении.Препринт ФИАН,№14, 13стр. 2006. 22. В.С. Горелик, А.А., Есаков, Л.И., Злобина П.П., Свербиль, М.И Самойлович, Н.И. Юрасов. Свечение незаполненных и заполненных центросимметричными диэлектриками, сегнетоэлектриками и благородными металлами опаловых матриц при ультрафиолетовом возбуждении. Труды XI Международной научнотехнической конференции "Высокие технологии в промышленности России", XVII Международный симпозиум "Тонкие пленки в электронике", (г. Москва, ОАО ЦНИТИ "ТЕХНОМАШ", 2006)

- Труды XI Международной научно-технической конференции "Высокие технологии в промышленности России", Москва,467,2006.
- 23. Yu. A., Vlasov ,V. N., Astratov, A. V Baryshev, A. A Kaplyanskii, O. Z Karimov and M.F. Limonov. Phys. Rev. E **61** , 5784, 2000.
- 24.В.Г. Голубев, В.А. Кособукин, Д.А. Курдюков, А.В. Медведев, А.Б. Певцов. ФТП, **35**, 710,2001.
- В.Г. Балакирев, В.Н. Богомолов, В.В. Журавлёв, Ю.А. Кумзеров,
 В.П.Петрановский, С.Г. Романов, Л.А. Самойлович. Кристаллография,
 38, 111, 1993.
- 26. А.В.Барышев, А.А.Каплянский, В.А.Кособукин, М.Ф.Лимонов, К.Б.Самусев, Д.Е.Усвят. ФТТ **45**, 3, 434, 2003.
- 27.M.H. Kuok, H.S. Lim, S.C. Ng, N.N. Liu, and Z.K. Wang. Phys. Rev. Lett., 90, 255502, 2003.

28.A.Yariv, P. Yeh. Optical waves in crystals. Wiley-Interscience publication, New York, 1985,616 p.

29. K. Sakoda. Optical properties of Photonic crystals. Berlin, Springer, 350 p.1985.

30. H. Lamb. Proc. London Math. Soc, **13**, 189, 1882.

31.М. И. Самойлович, А.Ф. Белянин, С.М. Клещёва, М.Ю. Цветков, В.Д. Житковский, А.В. Гурьянов. Труды X Международной научно-технической конференции «Высокие технологии в промышленности России» (часть 3). Москва, ОАО ЦНИТИ «ТЕХНОМАШ», 274, 2004 г.

32. N.V. Tcherniega, A.D.Kudryavtseva, Journal of Russian Laser Research, 27, № 5, 450,2006.

