УДК 535.374, 535.212

ВТОРИЧНОЕ ИЗЛУЧЕНИЕ ФОТОННЫХ КРИСТАЛЛОВ ПРИ ИНТЕНСИВНОЙ ОПТИЧЕСКОЙ НАКАЧКЕ

Т.И. Кузнецова

Анализируются квантово-механические переходы, возникающие при оптическом возбуждении глобулярного фотонного кристалла. Обсуждаются возможные варианты электрон-фононного и электрон-фотон-фононного взаимодействия, инициированного лазерной накачкой. Дан расчет спектральных характеристик звуковых волн, испускаемых при электрон-фононных переходах в синтетическом опале. Приведена оценка максимальной частоты возникающего электромагнитного излучения. Акцентируется определяющая роль свободных электронов, локализованных в пределах глобул, в возбуждении излучательных процессов в кристалле.

Ключевые слова: глобулярные фотонные кристаллы, свободные электроны в глобулах, фононы в фотонных кристаллах, вторичное излучение.

Веедение. Исследования фотонных кристаллов, представленные в литературе последних десятилетий, в большей своей части направлены на изучение взаимодействия кристаллов с полями от внешних источников. История развития этих исследований и их современное состояние освещены, например, в [1]. В меньшей степени в литературе представлены исследования собственных электромагнитных полей (нулевых флуктуаций) в фотонных кристаллах. С формально-вычислительной точки зрения это направление исследований примыкает к кругу задач, типичных для физики твердого тела, по расчету электронных волновых функций в поле периодического потенциала [2]. Однако задачи для оптического диапазона имеют свою специфику. Особенности связаны с тем, что в оптических задачах обычно приходится рассматривать и собственные поля протяженной среды (имеющей микронную или субмикронную модуляцию), и поля осцилляторов атомарного масштаба. Этот существенный момент был акцентирован в [3]. В этой работе было показано, что в определенных условиях проявляются только

ФИАН, 119991 Россия, Москва, Ленинский пр-т, 53; e-mail: tkuzn@lebedev.ru.

собственные частоты периодически модулированной среды, а частота осциллятора атомарного масштаба оказывается заблокированной.

Переход от слабых световых полей к высокоинтенсивному свету открывает новые возможности для наблюдения эффектов, связанных с собственными полями, – с модами, поддерживаемыми кристаллом. Такие условия имели место в работах [4, 5], в которых изучалось вторичное излучение синтетического опала под действием гигантского импульса лазера на рубине. Результаты, полученные в этих работах, привели к постановке целого комплекса вопросов относительно процессов, происходящих в фотонных кристаллах под действием мощной накачки. Характеристики наблюдавшегося вторичного излучения имели ряд существенных особенностей, возникновение которых оставалось без объяснения. Предлагаемая здесь работа направлена на анализ этих особенностей.

Исходные положения. Работа ориентирована на поиск механизма излучательных процессов, происходящих в условиях, при которых была выполнена работа [4]. Будут взяты основные параметры кристалла и возбуждающего излучения из этой работы. Рассматриваем фотонный кристалл, состоящий из глобул аморфного кварца, плотно упакованных в соответствии с гранецентрированной кубической решеткой. Размер глобул (и период структуры) составляет 0.2 мкм, линейный размер образца ~0.5 см. Кристалл находится на подложке, помещенной в кювету с жидким азотом. На кристалл направлено излучение лазера (лазер на рубине, длина волны $\lambda = 0.694$ мкм, соответственно, частота $\omega = 2.7 \cdot 10^{15} \text{ c}^{-1}$). Лазер работает в режиме гигантского импульса, длительность которого составляет 2·10⁻⁸ с, ширина линии излучения незначительно превышает обратную длительность импульса. В максимуме гигантского импульса при фокусировке в пятно диаметром 0.1 см плотность мощности может достигать 10⁷ Вт·см⁻², что обеспечивает плотность фотонов $2 \cdot 10^{17}$ см⁻³. Именно в таких условиях в работе [4] наблюдалось вторичное излучение, лежащее в сине-зеленой области спектра. В последующей работе [5] были получены более подробные спектральные характеристики вторичного излучения. Анализ результатов работы [5] требует отдельного теоретического исследования.

На рис. 1 приведена предполагаемая схема квантово-механических энергетических уровней, которые включены в процессы, происходящие в синтетическом опале под действием лазерной накачки.

Указанный на рисунке уровень *a* – верхний уровень невозбужденной молекулы диоксида кремния – является нижним уровнем рабочего перехода, а уровень *b* – верхним



Рис. 1: Схема энергетических уровней, участвующих в оптических переходах: а – нижний рабочий уровень двухквантового перехода, b – верхний рабочий уровень двухквантового перехода, с – нижний уровень в зоне свободных (в пределах глобулы) электронов; на вставке справа показан один из переходов между уровнями зоны.

рабочим уровнем, уровень с – это уровень молекулы, который первоначально не был заселен и заселяется при депопуляции уровня b. Переходы $a \rightarrow b$ и $a \rightarrow c$ являются дипольно-запрещенными. В экспериментальных работах [4, 5], а также в обзоре [6] уже отмечалось, что возбуждение опала происходит в результате двухфотонного поглощения. В нашей схеме также принимается, что переход с уровня a на уровень bявляется двухфотонным, промежуточные уровни даны на рисунке без буквенных обозначений. Рассматривая данные ряда экспериментов по однофотонному возбуждению опала непрерывными лазерами ультрафиолетового диапазона [6–8], а также учитывая результаты работ [4, 5], мы пришли к допущению о наличии в системе несвязанных состояний электронов. Предполагаем, что в синтетическом опале верхний уровень (отвечающий невозбужденному аморфному кварцу) оказывается расщепленным, выше него находится один или несколько локализованных уровней и большой набор уровней свободных электронов. Уровни с и b, приведенные на рис. 1, принадлежат зоне свободных электронов. Характерное только для опала локализованное состояние в рассмотрение не включаем. Частота $\omega_{ba} = \omega_b - \omega_a$ находится в точном резонансе с величиной 2ω – удвоенной частотой возбуждающего излучения. Оценки, основанные на известных подходах (см., напр., [9, 10]), показывают, что частота Раби двухфотонного перехода между

уровнями *a* и *b* при имеющейся интенсивности накачки составляет 10^9 с⁻¹. Вместе с тем переходы внутри зоны тоже являются быстрыми. Если обратиться к аналогии с затуханием инверсии в инжекционном лазере, где из-за соударений скорость затухания может достигать $10^{10} \div 10^{13}$ с⁻¹ [11], то получим, что и в нашем случае скорость затухания уровня *b* будет велика, и, по крайней мере, будет превосходить частоту осцилляций Раби. При этом заселенность уровня *b* представляет собой монотонный импульс, без осцилляций, идущий вслед за импульсом накачки. Рассмотрим движение заселенности от возбужденного уровня *b* вниз, ко дну зоны.

Электронные функции. По нашему предположению, энергетическая зона, которой принадлежат уровни b и c, содержит волновые функции, отвечающие свободному движению электронов внутри глобул. Возьмем зависимость энергии свободного электрона E(k) от волнового числа k в виде

$$E(k) = \varepsilon(k) + E_c, \quad \varepsilon(k) = \frac{k^2 \hbar^2}{2m}, \tag{1}$$

где E_c – энергия дна зоны. Поскольку целостность глобулы не должна нарушаться, можно принимать нулевые граничные условия на границе глобулы. Для упрощения заменим в расчетах сферическую форму глобул на кубическую и возьмем электронные волновые функции ψ в виде

$$\psi \propto \sin(k_x x) \cdot \sin(k_y y) \cdot \sin(k_z z),$$
(2)

$$\{k_x, k_y, k_z\} = k_{\min}\{N_x, N_y, N_z\}, \quad k = k_{\min}\sqrt{N_x^2 + N_y^2 + N_z^2}, \quad k_{\min} = \pi/l, \quad (3)$$

где l – линейный размер глобулы. Точке с координатами $\{l/2, l/2, l/2\}$ отвечает центр одной из глобул, а N_x , N_y , N_z – целые числа, означающие направление волнового вектора.

Максимальное значение волнового числа в рассматриваемой системе определяется из условия $k_{\text{max}} = \sqrt{\frac{2m}{\hbar}(\omega_b - \omega_c)}$. Для нахождения приближенного значения энергии, отвечающей дну зоны, следует обратиться к экспериментам. Опираясь на данные по однофотонному возбуждению синтетического опала малоинтенсивными ультрафиолетовыми лазерами [6–8], приходим к допущению, что переходу $c \rightarrow a$ соответствует частота ω_{ca} , равная $4.4 \cdot 10^{15}$ с⁻¹. С учетом известного значения $\omega_{ba} = 2\omega = 5.4 \cdot 10^{15}$ с⁻¹ получаем $\omega_b - \omega_c = \omega_{ba} - \omega_{ca} = 1 \cdot 10^{15}$ с⁻¹. Из соотношения (1) находим максимальное – для наших условий – значение электронного волнового числа

$$k_{\max} = \sqrt{\frac{2m}{\hbar}(\omega_b - \omega_c)}.$$
(4)

40

Для найденной величины интервала $\omega_b - \omega_c$ отсюда находим $k_{\text{max}} = 4.16 \cdot 10^7 \text{ см}^{-1}$. Используя минимальное значение волнового числа $\pi/l = (\pi/2) \cdot 10^5 \text{ см}^{-1}$, получаем $k_{\text{max}}/k_{\text{min}} = 265$.

Движение электронного состояния по уровням вниз, к меньшим энергиям, определяет все излучательные процессы, происходящие в кристалле. Далее будут рассмотрены электрон-фононные переходы и электрон-фотон-фононные переходы.

Фононы. Характеристики звуковых волн (так же, как и световых волн) определяются в фотонном кристалле его периодической структурой. В синтетическом опале скорость распространения звука имеет значения $v = \tilde{v}_{\perp} = 3.760 \cdot 10^5 \text{ см} \cdot \text{c}^{-1}$ (аморфный кварц, поперечные волны), $v = \tilde{v}_{\parallel} = 5.980 \cdot 10^5 \text{ см} \cdot \text{c}^{-1}$ (аморфный кварц, продольные волны), а в материале, заполняющем поры, в условиях эксперимента эта величина находится в интервале $1.5 \cdot 10^5 \div 2.0 \cdot 10^5 \text{ см} \cdot \text{c}^{-1}$, либо составляет $0.334 \cdot 10^5 \text{ см} \cdot \text{c}^{-1}$ (воздух). При таких больших различиях материальных характеристик двух сред можно приближенно считать фононный спектр дискретным. Из литературы известно, что при большой глубине модуляции одномерная периодическая структура имеет большие интервалы запрещенных волновых чисел, а разрешенные зоны оказываются узкими. Этот вывод был сделан в [12] на основе численных данных из [13].

Не имея строгого решения для трехмерной периодически модулированной среды, авторы ряда работ по опалам отбрасывали учет периодичности и обращались к задаче о колебаниях одиночной изолированной сферы. С таких позиций, например, при обсуждении результатов по рассеянию Мандельштама–Бриллюэна в опале авторы [14] использовали для оценок волновое число π/l . Это же число, а также волновые числа, кратные π/l , обеспечивали хорошее согласие с экспериментальными данными по рассеянию Мандельштама–Бриллюэна в обзоре [6].

В нашей задаче величина π/l также будет использоваться. Она будет взята в качестве минимального волнового числа для фотонного кристалла, и через нее будут выражаться более высокие волновые числа. В общем случае резонансные волновые числа определяются материальными характеристиками двух сред (пор – воздух и глобулдиоксид кремния), а именно, отношением скоростей $v_{\rm air}/\tilde{v}_{\rm sil}$. Однако, учитывая малость этого отношения, в расчетах принимаем, что базисное волновое число составляет π/l . Отметим также, что волны другого типа, распространяющиеся по порам и затухающие при удалении от поверхности глобул к центру, здесь не обсуждаются, поскольку они не могут эффективно взаимодействовать с электронами внутри глобул. При таком подходе пространственная зависимость фононных мод и электронных волн будет задаваться одними и теми же тригонометрическими функциями. Модули волновых чисел фононов, как и электронных волн, берутся в виде

$$|\tilde{k}| = \frac{\pi}{l} \sqrt{\tilde{N}_x^2 + \tilde{N}_y^2 + \tilde{N}_z^2},$$
(5)

где $\tilde{N}_x, \tilde{N}_y, \tilde{N}_z$ – целые числа, а энергия фонона линейно связана с модулем импульса,

$$\hbar\tilde{\omega} = \tilde{v}\tilde{p},\tag{6}$$

 \tilde{v} – макроскопическая скорость звука.

Оценки фононных частот. Приведем соотношение между частотами возбуждаемых фононов и волновыми числами и направлениями электронных волн, участвующих в процессе девозбуждения. Используем законы сохранения импульса и энергии в рассматриваемом акте электрон-фононного взаимодействия:

$$\mathbf{p}_1 = \mathbf{p}_2 + \tilde{\mathbf{p}}, \quad \frac{\mathbf{p}_1^2}{2m} = \frac{\mathbf{p}_2^2}{2m} + \hbar \tilde{\omega}. \tag{7}$$

Здесь p_1 , p_2 – исходный и конечный импульсы электрона, $\tilde{\mathbf{p}}$ – импульс фонона, $\tilde{\omega}$ – частота фонона, m – масса электрона. Вводя обозначение θ для угла между направлениями векторов \mathbf{p}_1 и $\tilde{\mathbf{p}}$, учитывая соотношение (6), из (7) получаем уравнение для модулей импульсов \mathbf{p}_1 и $\tilde{\mathbf{p}}$:

$$\tilde{p} - 2p_1 \cos\theta + 2m\tilde{v} = 0. \tag{8}$$

Для анализа этой зависимости выразим модули импульсов \mathbf{p}_1 и $\tilde{\mathbf{p}}$, входящих в соотношение (8), через величину минимального импульса $p_{\min} = \frac{\pi}{l}$. При подстановке $p_1 = \frac{\pi}{l}\hbar N_1$, $\tilde{p} = \frac{\pi}{l}\hbar \tilde{N}$ уравнение (8) принимает вид

$$\tilde{N} = 2\left(N_1 \cos\theta - \frac{l}{\pi} \frac{m\tilde{v}}{\hbar}\right).$$
(9)

Для принятых характеристик среды (макроскопической скорости поперечных звуковых волн $\tilde{v} = 3.760 \cdot 10^5 \text{ см} \cdot \text{c}^{-1}$ в аморфном кварце и размера глобулы l = 0.2 мкм), численное значение второго слагаемого в скобках в (9) составляет $\frac{l}{\pi} \frac{m\tilde{v}}{\hbar} \approx 2.07$. Угловая зависимость, вытекающая из (9), служит только для иллюстрации характеристик элементарного акта взаимодействия, она мало влияет на наблюдаемые в эксперименте результаты. Обусловлено это тем, что направления возникающих под действием накачки свободных электронов занимают большой телесный угол, так что в лабораторной системе координат заметной угловой зависимости не будет. Исключения, связанные



Рис. 2: Максимальные величины испускаемых фононных частот в зависимости от волнового числа электрона.

со специальной формой образца кристалла или особенностями фокусировки накачки, не рассматриваем. В наших условиях достаточно с помощью равенства (9) и условия $\cos \theta = 1$ определить максимальный номер фононной моды для взятого электронного волнового числа N_1 . При этом мы получаем информацию об испускании фононов со всеми номерами, лежащими в диапазоне $1 \leq \tilde{N} \leq \tilde{N}_{\text{max}}$. Зависимость максимального значения модуля волнового числа \tilde{N}_{max} от стартового волнового числа электрона N_1 приведена на рис. 2. На нем область, лежащая ниже графика \tilde{N}_{max} , закрашена в знак того, что в ней требования, наложенные уравнением (9), для всех значений (N_1, \tilde{N}) выполняются.

На рис. 2 проведена вторая вертикальная ось, где указаны значения частот, отвечающих указанным фононным числам \tilde{N} . Максимальное значение фононной частоты $\tilde{\nu}$ (обратного периода колебаний) составляет $\tilde{\nu} \sim 5 \cdot 10^{12}$ Гц. Минимальное значение $\tilde{\nu}_{\min} = \frac{\tilde{\nu}}{2l}$ составляет $0.94 \cdot 10^{10}$ Гц.

Следует обратить внимание на наиболее высокие значения приведенных фононных частот. Самым высоким фононным частотам, указанным на рис. 2 ($\tilde{\nu}_{max} \simeq 5 \cdot 10^{12}$ Гц), отвечает длина волны $8 \cdot 10^{-8}$ см. Эта величина в 5 раз превосходит длину связи Si-O в диоксиде кремния, но близка к размеру кластеров, присутствующих в аморфном кварце. Обусловленный кластерами масштаб неоднородности может повлиять на модовую структуру в области высоких волновых чисел. Соответствующая область высоких частот на рис. 2 выделена закраской. Имеющаяся здесь неопределенность заставляет уменьшить значение максимально достижимой частоты гиперзвука до 10¹² Гц.



Рис. 3: Зависимость волнового числа испускаемых фононов от электронного волнового числа в окрестности начала координат. Значению $\tilde{N} = 1$ отвечает частота $\tilde{\nu}_{min} = 0.94 \cdot 10^{10}$ Гц.

На рис. 2 не отображен дискретный характер фононных и электронных волновых чисел, который удобнее рассматривать в области низких частот (малых волновых чисел). Для низкочастотной области зависимость фононных волновых чисел от электронных волновых чисел приведена на рис. 3.

На рис. 3 отмечены несколько низких волновых чисел фононов, их значения составляют $\tilde{\nu}_{\min}$, $\sqrt{2}\tilde{\nu}_{\min}$, $\sqrt{3}\tilde{\nu}_{\min}$, $\sqrt{4}\tilde{\nu}_{\min}$,... Последовательность задается модулями векторов с целочисленными компонентами. Подобным же требованиям удовлетворяют и электронные числа, только для них последовательность чисел начинается с $\sqrt{8}$. Электронные состояния с более низкой энергией по такому пути распадаться не будут. Для них может осуществляться только переход из зоны на нижележащий уровень с одновременным испусканием фононов и фотонов.

Особенности спектра электромагнитных колебаний оптического диапазона. Электромагнитное излучение, как и излучение гиперзвука, порождается в рассматриваемой системе при переходах между состояниями свободных электронов. Переходы возбуждаются при непременном участии фононов, так как даже самые быстрые электроны в системе имеют нерелятивистские скорости. Соответствующая вычислительная задача является многопараметрической, система уравнений содержит величины энергии и векторов импульсов исходного и конечного электронов, фонона и световой волны. Задача требует отдельного рассмотрения. Здесь мы лишь отметим, что собственные электромагнитные волны, поддерживаемые фотонным кристаллом (собственные функции, моды), имеют спектр, который отличается от фононного спектра не только по диапазону частот, но и по своей структуре. Допустимые частоты электромагнитного излучения охватывают и миллиметровый диапазон, и оптику. Оптический спектр имеет большие интервалы разрешенных частот и во многих случаях узкие запрещенные зоны, ширина зон зависит от глубины модуляции показателя преломления. (Фононный спектр в системе мы здесь могли считать дискретным.) В экспериментах наиболее яркие проявления всех особенностей оптического спектра наблюдаются в условиях, когда скорость света в глобулах меньше, чем в порах, что достигается введением наполнителя в поры. По аналогии с волоконной оптикой здесь можно говорить о волноводном распространении медленных волн в сложно разветвленной системе, по глобулам. Волновые числа фотонных мод, которые эффективно взаимодействуют с электронами, определяются теми же формулами, как и фононные волновые числа (см. (5)), с безразмерными числами той же структуры,

$$N = \sqrt{N_x^2 + N_y^2 + N_z^2},$$
(10)

где компоненты N_x, N_y, N_z – целочисленные.

Наличие запрещенных зон оказывает существенное влияние на интенсивность наблюдаемых спектральных линий. Вблизи границ зон, вследствие повышения плотности состояний фотонов, в спектре возникают частотные интервалы повышенной интенсивности. В обсуждаемых здесь условиях, при заданной накачке, верхняя граница ω_{lim} достижимой частоты испускаемого света составляет $\omega_{\text{lim}} = 5.4 \cdot 10^{-15} \text{ c}^{-1}$, соответствующая длина волны $\lambda_{\text{lim}} = 0.35$ мкм. Для середины каждой из запрещенных зон значение частоты ω_{gap} дается величиной

$$\omega_{\rm gap} = \frac{cN\pi}{l\sqrt{\varepsilon}},\tag{11}$$

где N дается формулой (10) с целочисленными N_x , N_y , N_z . Возможные значения частот, которые близки к границе какой-либо зоны и не превосходят частоту $\omega_{\rm lim}$, даются значениями N = 1, $N = \sqrt{2}$, $N = \sqrt{3}$. Число N = 1, означающее одномерное движение, отбрасываем, число $N = \sqrt{3}$ могло бы дать максимум, соответствующий волнам с энергией, лежащей выше предельной энергии $\hbar\omega_{\rm lim}$, числу $N = \sqrt{2}$ соответствует частота $4.5 \cdot 10^{15}$ с⁻¹, то есть длина волны $\lambda = 0.416$ мкм. Наблюдаемый на эксперименте максимум вблизи значения $\lambda = 0.4$ мкм можно сопоставить с указанным числом $N = \sqrt{2}$. Отсутствие в экспериментальных данных максимума, соответствующего числу $N = \sqrt{3}$ (в близкой окрестности которого имеются состояния с разрешенной энергией), возможно, означает наличие еще одного локализованного уровня, не указанного на схеме рис. 1, между уровнями *с* и *a*; на него в процессе релаксации первоначально приходят электроны, и только после временного сдвига его заселенность затухает.

Выводы. В работе показано, что источником вторичного излучения в возбужденном глобулярном фотонном кристалле являются высокочастотные колебания плотности свободных электронов. Возбужденные накачкой электроны локализованы в пределах глобул, но внутри глобул двигаются с большими скоростями. Периодическое расположение глобул в кристалле обеспечивает пространственный резонанс электронных и фононных волновых функций. Определены значения фононных частот, достижимых в реальных экспериментальных условиях. Предсказана возможность испускания фононов, частота которых ν (обратный период) лежит в интервале $10^{10} \div 10^{12}$ Гц. Получены оценки для электромагнитного излучения оптического диапазона. Рассчитано значение максимума в синей области спектра, который может наблюдаться в эксперименте (круговая частота $\omega_{obs} = 4.5 \cdot 10^{15}$ с⁻¹, соответствующая длина волны $\lambda = 0.416$ мкм).

ЛИТЕРАТУРА

- J. D. Joannopoulos, S. G. Johnson, J. N. Winn, R. D. Meade, Molding the flow of light (Princeton Univ. Press, Princeton, NJ., 2008).
- [2] Charles Kittel, Introduction to Solid State Physics (New York, Wiley&Sons, Inc.; London, Chapman&Hall, Ltd, 1956).
- [3] В. П. Быков, ЖЭТФ **62**(2), 505 (1972).
- [4] N. V. Tcherniega, A. D. Kudryavtseva, Journal of Russian Laser Research 27(5), 450 (2006). DOI: 10.1007/s10946-006-0026-8.
- [5] Н. В. Чернега, А. Д. Кудрявцева, Поверхность. Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования, № 7, 23 (2009). DOI: 10.1134/S1027451009040053.
- [6] V. S. Gorelik, Laser Physics **18**(12), 1479 (2008). DOI: 10.1134/S1054660X08120153.
- [7] В. С. Горелик, Л. И. Злобина, Т. В. Мурзина и др., Краткие сообщения по физике ФИАН, № 6, 3 (2004).
- [8] А. Н. Артамонов, В. И. Бурков, А. Г. Витухновский и др., Краткие сообщения по физике ФИАН, № 10, 20 (2005).
- [9] Д. Н. Клышко, Физические основы квантовой электроники (М., Наука, 1986).

- [10] P. W. Milonni, J. H. Eberly, *Laser Physics* (Wiley, 2010).
- [11] П. Г. Елисеев, Введение в физику инжекционных лазеров (М., Наука, 1983).
- [12] S. G. Davison, J. D. Levine, Surface States (Academic Press: New York, London, 1970).
- [13] E. Jahnke, F. Emde, *Table of Functions with Formulae and Curves* (Dover Publications, 1945).
- M. H. Kuok, H. S. Lim, S. C. Ng, et al., Physical Review letters 90(25), 255502 (2003).
 DOI: 10.1103/PhysRevLett.90.255502.

Поступила в редакцию 20 сентября 2021 г.

После доработки 3 октября 2021 г.

Принята к публикации 4 октября 2021 г.