

УДК 535.371

ВЫНУЖДЕННОЕ ГЛОБУЛЯРНОЕ РАССЕЙЕНИЕ СВЕТА В ТРЕХМЕРНЫХ ФОТОННЫХ КРИСТАЛЛАХ

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

Впервые сообщается об экспериментальном наблюдении вынужденного рассеяния света в искусственных опалах – вынужденном глобулярном рассеянии света (ВГР). Исследовались спектры рассеяния в опаловых матрицах с незаполненными октаэдрическими и тетраэдрическими пустотами, а также в глобулярных наноккомпозитах, в которых пустоты между глобулами заполнялись молекулярными жидкостями: ацетоном и этанолом при возбуждении излучением моноимпульсного рубинового лазера. Исследования были выполнены для двух геометрий рассеяния: “вперед” (0-градусное рассеяние) и “назад” (180-градусное рассеяние).

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

Важным примером трёхмерного фотонного кристалла является так называемый глобулярный фотонный кристалл (ГФК). ГФК построен из глобул (шаров), диаметр d которых может быть сравнимым с длиной волны видимого излучения (рис. 1). В природе такого типа структуры существуют в виде минералов опала, построенных из плотно упакованных шаров аморфного кварца и заполненных различными неорганическими соединениями. К настоящему времени развита [3 – 5] технология получения искусственных опалов, структура которых состоит из периодически расположенных в

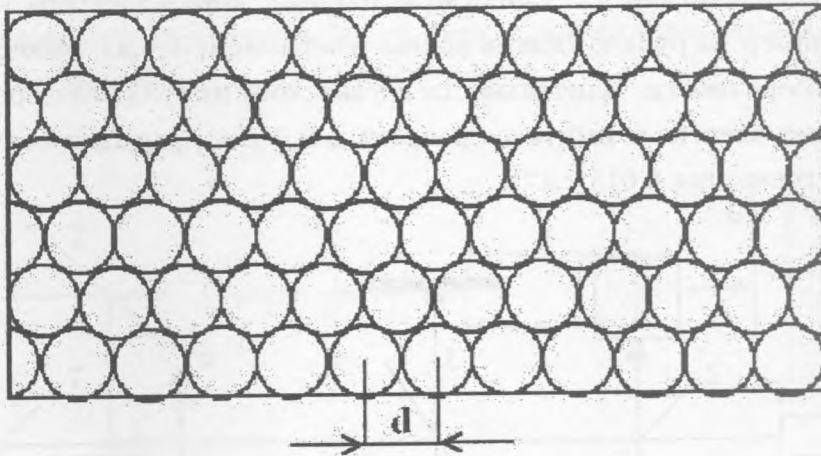


Рис. 1. Общий вид структуры глобулярного фотонного кристалла, построенного из сферических частиц (глобул), плотно упакованных в виде кубической кристаллической решетки; d – диаметр шаров.

пространстве шаров из аморфного кварца с диаметром, равным 200 – 600 нм. При плотной упаковке шаров в кубическую решётку между ними образуются тетраэдрические и октаэдрические пустоты. Объектами физических исследований могут служить как исходные (незаполненные) искусственные опалы (опаловые матрицы), так и нанокompозиты, в которых пустоты размером 50 – 100 нм заполняются органическими или неорганическими соединениями. В частности, опаловые матрицы сравнительно легко заполняются молекулярными жидкостями: водой, этанолом, ацетоном, бензолом и др. Молекулярные жидкости являются типичными объектами, в которых наблюдаются различные виды вынужденного рассеяния света: вынужденное комбинационное рассеяние (ВКР), вынужденное рассеяние Мандельштама–Бриллюэна (ВРМБ) и др. Об особенностях спонтанного комбинационного рассеяния света в глобулярных фотонных кристаллах (искусственных опалах) сообщалось в работе [6]. Спонтанное рассеяние Мандельштама–Бриллюэна в глобулярных фотонных кристаллах наблюдалось ранее в работе [7]. Исследований вынужденного рассеяния света в глобулярных фотонных кристаллах до настоящего времени не проводилось. В данной работе впервые сообщается об экспериментальном наблюдении вынужденного рассеяния света в опаловых матрицах и в опаловых нанокompозитах, заполненных молекулярными жидкостями. В соответствии с глобулярной структурой опаловых матриц и соответствующих им нанокompозитов такой вид вынужденного рассеяния света мы будем называть вынужденным глобулярным рассеянием света (ВГР).

Методика эксперимента. В качестве источника возбуждающего излучения нами использовался лазер на рубине (длина волны генерации 694 нм), работающий в режиме модуляции добротности. Длительность гигантского импульса лазера составляла 20 нс; максимальная энергия в импульсе равнялась 0.3 Дж; расходимость $3.5 \cdot 10^{-4}$ рад; ширина линии генерации 0.015 см^{-1} .

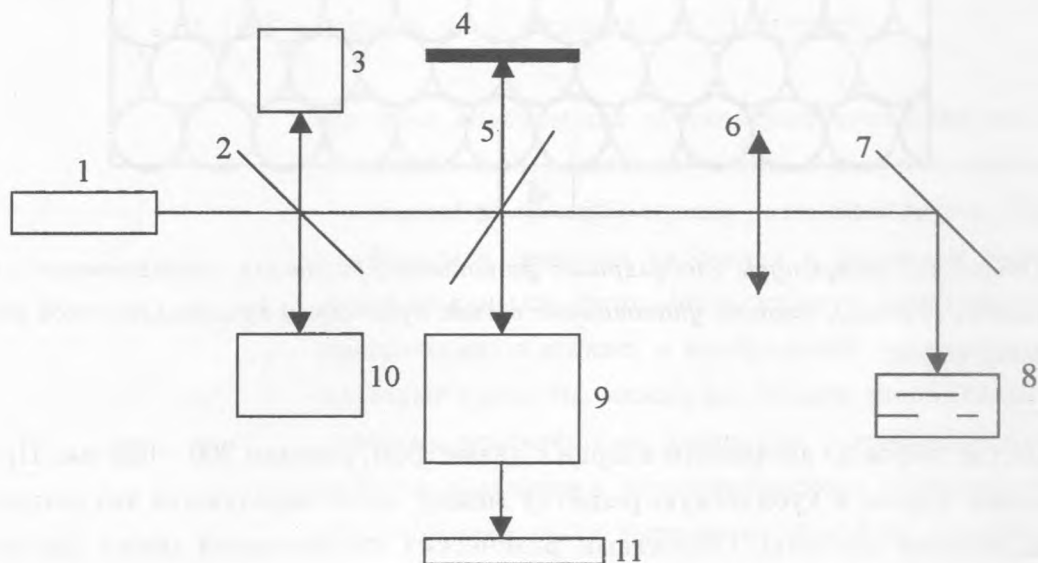


Рис. 2. Принципиальная схема эксперимента для наблюдения ВГР при геометрии “назад”; 1 – рубиновый лазер; 2, 5, 7 – поворотные пластины; 3 – измеритель энергии вынужденного рассеяния света; 4 – зеркало; 6 – фокусирующая оптика; 8 – исследуемый образец фотонного кристалла; 9 – интерферометр Фабри-Перо; 10 – система измерения параметров возбуждающего излучения; 11 – устройство для регистрации спектров.

Исследования были выполнены для двух геометрий рассеяния: “вперёд” (0-градусное рассеяние) и “назад” (180-градусное рассеяние). Соответствующие схемы эксперимента приведены на рис. 2 и 3. Возбуждение ВГР осуществлялось сфокусированным излучением рубинового лазера. Измерения проводились для линз с различными фокусными расстояниями (50, 90, 150 мм), для различных положений исследуемого образца относительно фокусирующей оптики и для различных энергий возбуждающего излучения. 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 (диаметр глобул 200 нм), 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 различными базами, что позволило менять область дисперсии от 0.42 см^{-1} до 1.67 см^{-1} .

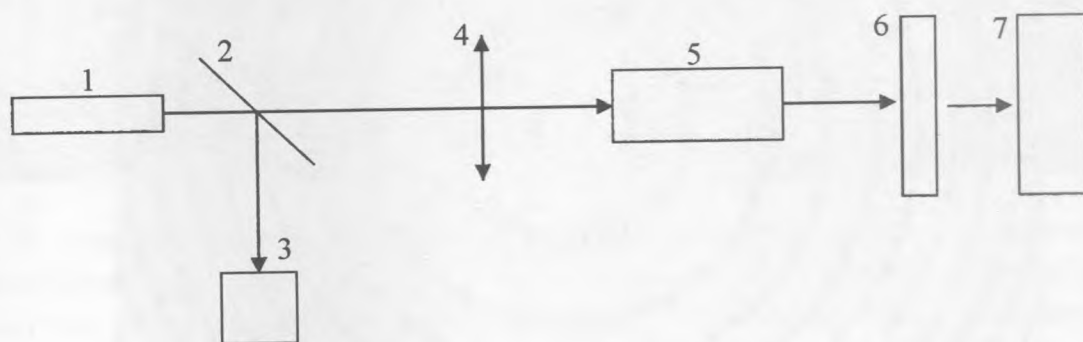


Рис. 3. Принципиальная схема эксперимента для наблюдения ВГР при геометрии “вперед”. 1 – рубиновый лазер; 2 – поворотная пластина; 3 – система измерения параметров возбуждающего излучения; 4 – фокусирующая оптика; 5 – исследуемый образец фотонного кристалла; 6 – интерферометр Фабри-Перо; 7 – устройство для регистрации спектров.

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

На рис. 4 представлена интерферограмма спектра генерации рубинового лазера. При этом наблюдается система “тонких” концентрических колец, ширина которых характеризует спектральную ширину линии генерации, составляющую в нашем случае 0.015 см^{-1} .

Для незаполненной опаловой матрицы при геометрии рассеяния “назад” (рис. 2) при плотности мощности накачки больше 0.12 ГВт/см^2 в спектре обнаружилась (рис. 5а) одна стоксова компонента, сдвинутая относительно компоненты, соответствующей возбуждающему излучению, на величину 0.44 см^{-1} . В этом случае наблюдаются две системы колец, соответствующие излучению рубинового лазера (кольцо большего диаметра) и ВГР “назад” (кольцо меньшего диаметра).

Если убрать зеркало 4 (рис. 2), отражающее лазерное излучение, то на интерферограмме остаются лишь одиночные кольца, соответствующие ВГР “назад” (рис. 5б).

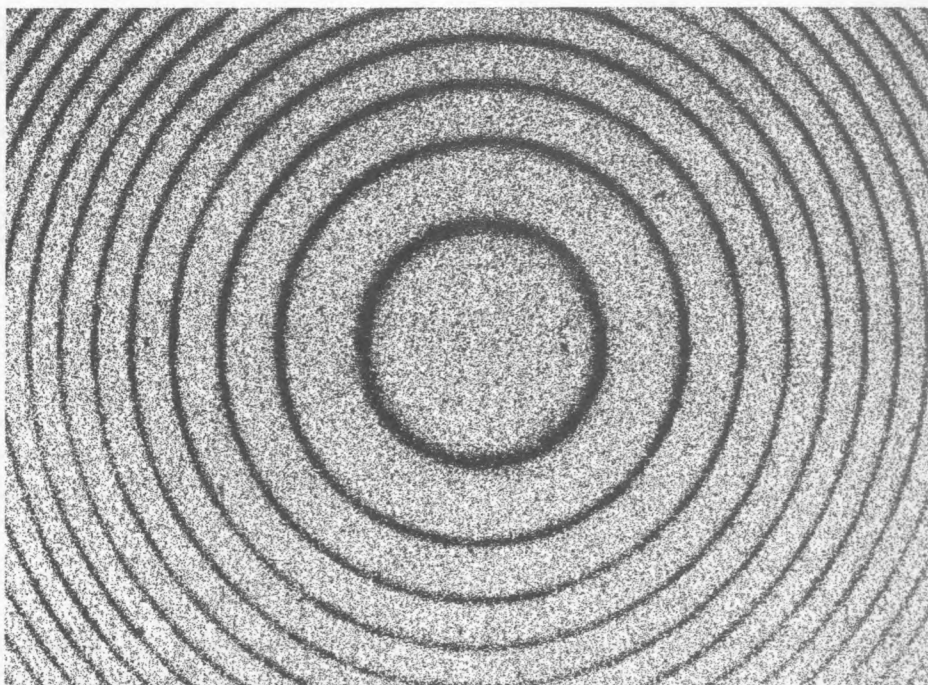


Рис. 4. Интерферограмма спектра излучения линии генерации лазера на рубине ($\lambda = 694$ нм).

При этом ширина линии ВГР близка к ширине линии возбуждающего излучения и составляет 0.015 см^{-1} .

На рис. 6 и 7 представлены типичные интерферограммы спектров ВГР в фотонных кристаллах, заполненных ацетоном и этанолом для различных геометрий рассеяния и различных режимов возбуждения. Как видно из рисунков, при геометрии рассеяния “вперед” наблюдается одна стоксова компонента ВГР, при геометрии “назад” – одна или две стоксовы компоненты в зависимости от плотности мощности накачки.

Ширина линий ВГР для обеих компонент сравнима с шириной линии возбуждающего излучения.

Следует отметить, что при насыщении опаловой матрицы этанолом или ацетоном образец становится практически прозрачным. Это объясняется тем, что показатели преломления компонентов нанокompозита (опаловой матрицы и жидкости, заполняющей ее пустоты) близки. Прозрачность образца для возбуждающего излучения обеспечила возможность наблюдения ВГР при 0-градусной геометрии (ВГР “вперёд”).

В табл. 1 приведены частотные сдвиги стоксовых компонент ВГР для различных образцов и различных геометрий эксперимента.

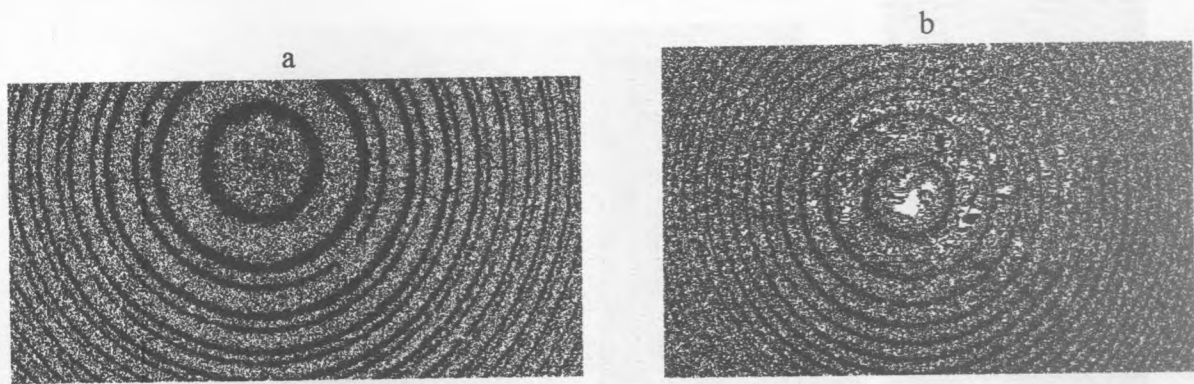


Рис. 5. Интерферограммы спектров ВГР в исходном (незаполненном молекулярной жидкостью) фотонном кристалле в сравнении со спектром генерации лазера на рубине ($\lambda = 694$ нм) при геометрии рассеяния “назад” (рис. 2). Область дисперсии интерферометра 0.833 см^{-1} . (а) – двойные кольца относятся к лазерному излучению (кольцо большего диаметра) и ВГР (кольцо меньшего диаметра); (б) – одиночные кольца соответствуют ВГР, зарегистрированному для геометрии, соответствующей рис. 2 при отсутствии зеркала 4, отражающего лазерное излучение.

Т а б л и ц а 1

Значения стоксовых сдвигов частот ВГР для различных геометрий рассеяния

Геометрия рассеяния	$\nu, \text{ см}^{-1}$	Число стоксовых компонент
ВГР “назад” в исходном опале	0.44	1
ВГР “назад” в опале, заполненном ацетоном	0.40 0.65	2
ВГР “вперед” в опале, заполненном ацетоном	0.40	1
ВГР “назад” в опале, заполненном этанолом	0.39 0.63	2
ВГР “вперед” в опале, заполненном этанолом	0.37	1

Наблюдаемые частотные сдвиги соответствуют собственным частотам сферических частиц аморфного SiO_2 , из которых построен глобулярный фотонный кристалл.

Таким образом, нами обнаружено вынужденное рассеяние света в глобулярных фотонных кристаллах, созданных на основе опаловых матриц – вынужденное глобулярное

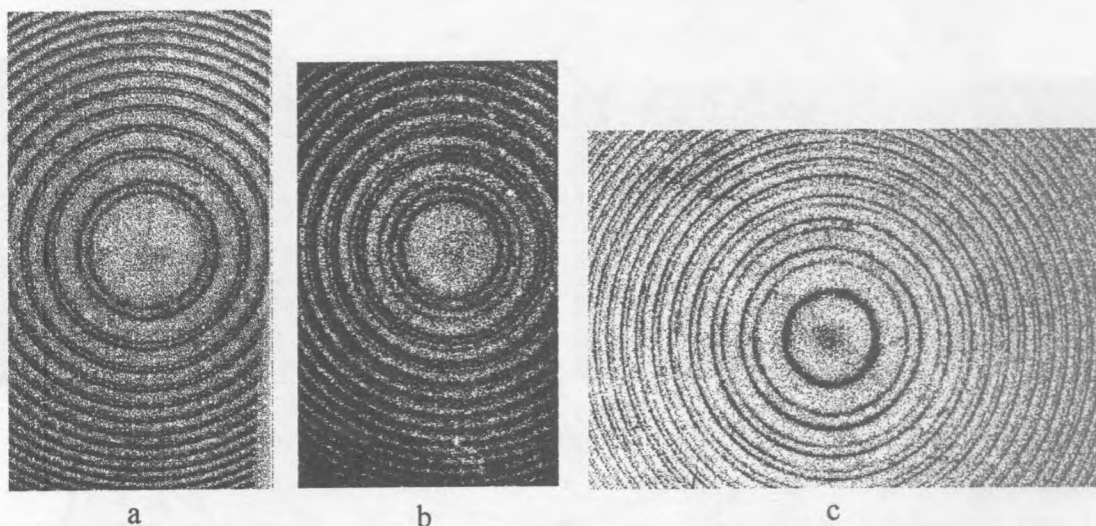


Рис. 6. Интерферограммы спектров ВГР в опале, заполненном ацетоном. (а) – рассеяние “назад” при плотности мощности 0.12 ГВт/см^2 . Лазерному излучению соответствует кольцо большего диаметра, ВГР – меньшего; область дисперсии интерферометра 1.67 см^{-1} . (б) – рассеяние “назад” при плотности мощности 0.21 ГВт/см^2 . Лазерному излучению соответствует кольцо большего диаметра, ВГР – два кольца меньшего диаметра; область дисперсии интерферометра 1.67 см^{-1} . (с) – рассеяние “вперед”; лазерному излучению соответствует кольцо большего диаметра, ВГР – меньшего; область дисперсии интерферометра 0.833 см^{-1} .

рассеяние света. Эффект ВГР наблюдался как для незаполненных искусственных опалов, так и для опаловых нанокмозитов, в которых пустоты между глобулами заполнены молекулярными жидкостями: ацетоном или этанолом. Наблюдение ВГР оказалось возможным при использовании для возбуждения гигантских импульсов лазера на рубине с пиковой мощностью в исходном пучке 10^7 Вт , при фокусировке возбуждающего излучения в вещество линзой с фокусным расстоянием 50 мм . Измерения спектров ВГР проводились в условиях отсутствия пробоя в веществе.

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

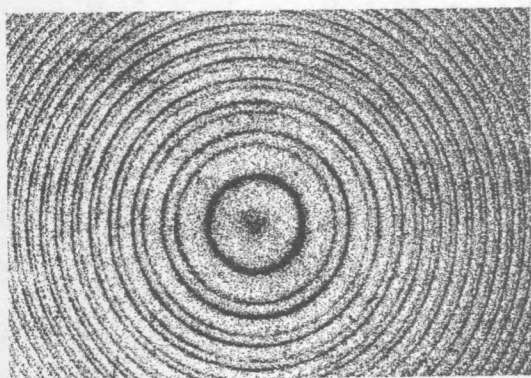


Рис. 7. Интерферограмма спектра ВГР "назад" в опале, заполненном этанолом. Наблюдаются две стоковые компоненты ВГР. Кольцо, соответствующее лазерному излучению, не регистрируется, т.к. зеркало 4 (рис. 2) отсутствует. Область дисперсии интерферометра 0.833 см^{-1} .

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.

Работа выполнена при поддержке проектов РФФИ: N 04-02-16237 и N 05-02-16205.

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

ЛИТЕРАТУРА

- [1] Yablono vitch E. Phys. Rev. Lett., **58**, 2059 (1987).
- [2] John S. Phys. Rev. Lett., **58**, 2486 (1987).
- [3] Astratov V. N., Bogomolov V. N., Kaplyanski i A. A., et al. Nuovo Cimento, D **17**, 1349 (1995).
- [4] Барышев А. В., Каплянский А. А., Кособукин В. А. и др. ФТТ, **45**, 434 (2003).
- [5] Vlasov Yu. A., Astratov V. N., Baryshev A. V., et al. Phys. Rev., E **61**, 5784 (2000).

- [6] Gorelik V. S., Zlobina L. I., Sverbil' P. P., et al. Journal of Russian Laser Research, **26**, N 3, 211 (2005).
- [7] Kuok M. H., Lim H. S., Ng S. C., et al. Phys. Rev. Lett., **90**, 255502 (2003).

Поступила в редакцию 13 апреля 2006 г.