

УДК 535.361

СВЕЧЕНИЕ ГЛОБУЛЯРНЫХ ФОТОННЫХ КРИСТАЛЛОВ ПРИ УЛЬТРАФИОЛЕТОВОМ ВОЗБУЖДЕНИИ

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

Сообщается об обнаружении свечения глобулярных фотонных кристаллов – искусственных опалов – при их облучении ультрафиолетовыми источниками света ($\lambda = 363.5$ и 381.1 нм). Показано, что спектр свечения искусственных опалов находится в диапазоне $425 - 600$ нм. При этом обнаруживается максимум интенсивности свечения вблизи возбуждающей линии (низкочастотное свечение) и дополнительные максимумы интенсивности в стоксовой области. Установлено, что форма спектра свечения зависит от длины волны возбуждающего излучения и толщины образца. Наблюдаемое вторичное излучение вблизи частоты возбуждающей линии может быть объяснено как проявление комбинационного рассеяния света, эффективность которого возрастает вследствие возрастания плотности фотонных состояний вблизи края запрещенной фотонной зоны. Наблюдаемое свечение в стоксовой области вдали от возбуждающей линии объясняется как проявление параметрических процессов рассеяния: распада кванта возбуждающего излучения на два других кванта.

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

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

Методика эксперимента. Исследования оптических свойств проводились с двумя пластинами искусственных опалов толщинами 0.7 и 2.0 мм и сторонами порядка 10 мм, вырезанными в плоскости (111). Для установления положения запрещенной фотонной зоны были выполнены исследования спектров зеркального отражения широкополосного излучения исследуемыми образцами.

Измерения спектров отражения проводились на установке, блок-схема которой показана на рис. 1а. В качестве источника света (1) использовалась галогенная лампа накаливания мощностью 100 Вт. Излучение лампы собиралось линзовой системой и направлялось на вход коллиматора гониометра ГС-5 (2), на выходе которого располагалась ирисовая диафрагма. Сформированный таким образом достаточно интенсивный пучок света диаметром 3 мм с расходимостью менее 1' направлялся на образец опала, отражающая поверхность которого располагалась в центре столика гониометра перпендикулярно его плоскости. Изменение угла падения достигалось поворотом столика гониометра. Точность измерения угла падения (отражения) составляла 5". Отраженный световой пучок проецировался на торец стеклянного волоконно-оптического жгута (4) диаметром 3 мм с помощью линзы (3) с фокусным расстоянием 7 см и диаметром 5 см, расположенной на двойном фокусном расстоянии от образца и торца жгута. Это позволяло собирать как зеркальную, так и диффузную компоненты отраженного света. Второй торец волоконно-оптического жгута располагался в плоскости входной щели спектрометра ДФС-12 (5). Регистрация полезного оптического сигнала с выходной щели монохроматора осуществлялась фотоумножителем типа ФЭУ-79 (6). После предварительного усиления сигнала с ФЭУ и преобразования его в цифровой код преобразователем (7) он регистрировался с накоплением и поступал в ПЭВМ (8). Количественные измерения были проведены для углов падения $\theta = 20, 30$ и 45° . Для

получения истинных спектров отражения от поверхности фотонного кристалла интенсивность наблюдаемого спектра отражения делилась на спектр отражения алюминиевого зеркала при тех же условиях освещения.

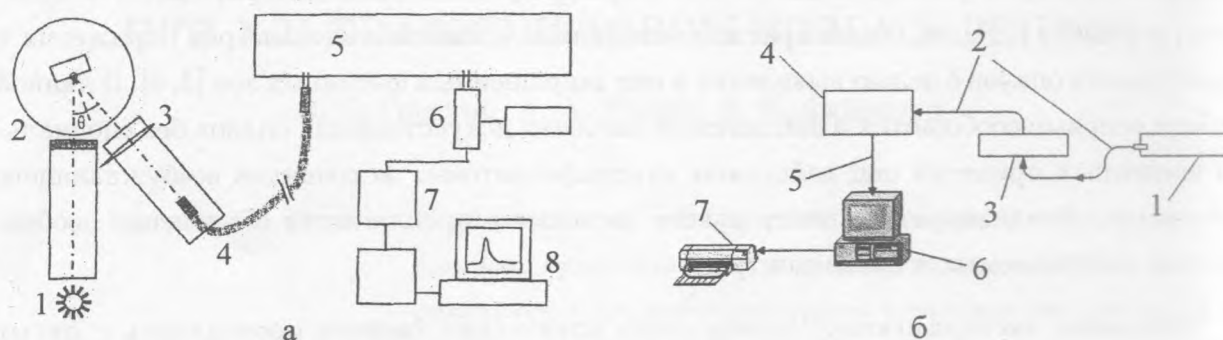


Рис. 1. Схемы экспериментальных установок: а – блок-схема установки для измерения спектров отражения. 1 – источник света, 2 – гониометр ГС-5, 3 – линза, 4 – стеклянный волоконно-оптический жгут, 5 – спектрометр ДФС-12, 6 – фотоумножитель типа ФЭУ-79, 7 – аналого-цифровой преобразователь, 8 – ПЭВМ; б – блок-схема установки для анализа вторичного излучения в искусственных опалах. 1 – источник возбуждающего излучения; 2 – кварцевый световод; 3 – кристалл; 4 – миниполихроматор; 5 – кабель; 6 – компьютер; 7 – принтер.

Это позволило исключить влияние монохроматора и источника излучения (галогенной лампы) на полученный спектр. Измерения для угла $\theta = 5^\circ$, в силу конструктивных особенностей гониометра, не использовались для определения абсолютного значения коэффициента отражения и имели качественный характер.

В работе изучались образцы опалов, состоящих из монодисперсных шарообразных частиц $\alpha\text{-SiO}_2$, предоставленные М. И. Самойловичем.

Измеренные спектры отражения характеризовались асимметричными полосами отражения с параметрами, зависящими от угла падения (см. рис. 2). Для чистого синтетического опала максимумы отражения для углов $\theta = 30, 45$ и 60° наблюдались на длинах волн 506, 482 и 445 нм. Коэффициент отражения для угла $\theta = 20^\circ$ составлял 25%. При увеличении угла падения коэффициент отражения уменьшался и составлял при 30° – 24%, а при 45° – 18%.

Как видно из рис. 2, полосы отражения имеют асимметричную форму, а их спектральное положение и интенсивность зависят от угла падения: с ростом угла падения

полоса отражения смещается в область более коротких длин волн, а максимальное значение коэффициента отражения при этом уменьшается. Кроме того, при увеличении угла падения наблюдалось заметное уширение полосы отражения: при углах 20° и 30° ширина спектральной полосы составляла примерно 30 нм , а при угле 45° – 36 нм .

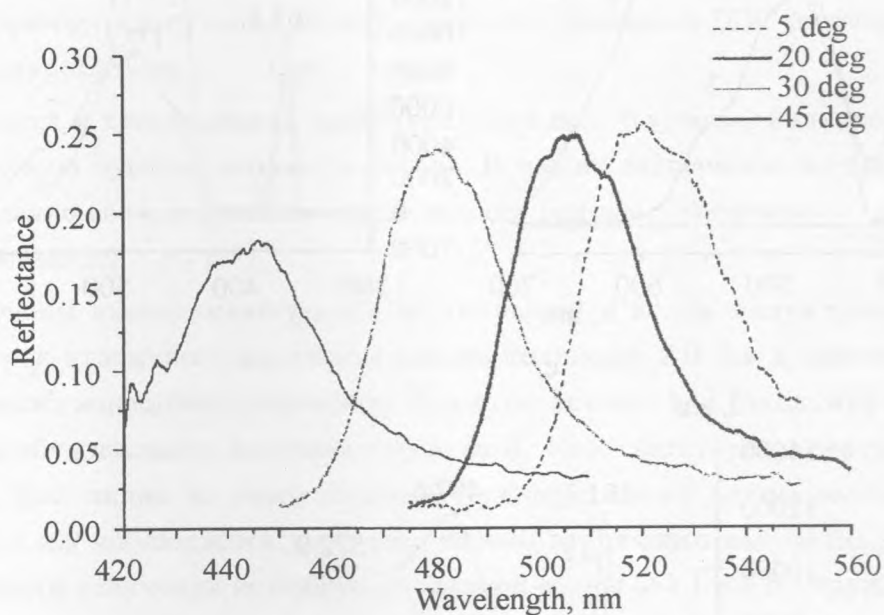


Рис. 2. Спектры отражения фотонных кристаллов без заполнения для углов $\theta = 5, 20, 30$ и 45° .

Спектры вторичного излучения в аморфном кварце изучались ранее при возбуждении коротковолновым электромагнитным излучением. Как выяснилось, при возбуждении линией 255.3 нм (вторая гармоника линии генерации лазера на парах меди) в спектре фотолюминесценции аморфного кварца типа КВ присутствует пик в области 300 нм и сравнительно слабый максимум вблизи 380 нм .

В данной работе в качестве источников возбуждения вторичного излучения использовалось широкополосное излучение полупроводниковых светодиодов с максимумами в области 363.5 и 381.1 нм и средней мощностью $30 - 40 \text{ мВт}$. Обычная фотолюминесценция в аморфном кварце, обусловленная присутствием в ней дефектов, не должна проявиться в исследуемых образцах искусственных опалов при выбранных источниках возбуждающего излучения.

Схема использованной экспериментальной установки для анализа спектров свечения показана на рис. 1б. Излучение от светодиода с помощью световода диаметром 2 мм

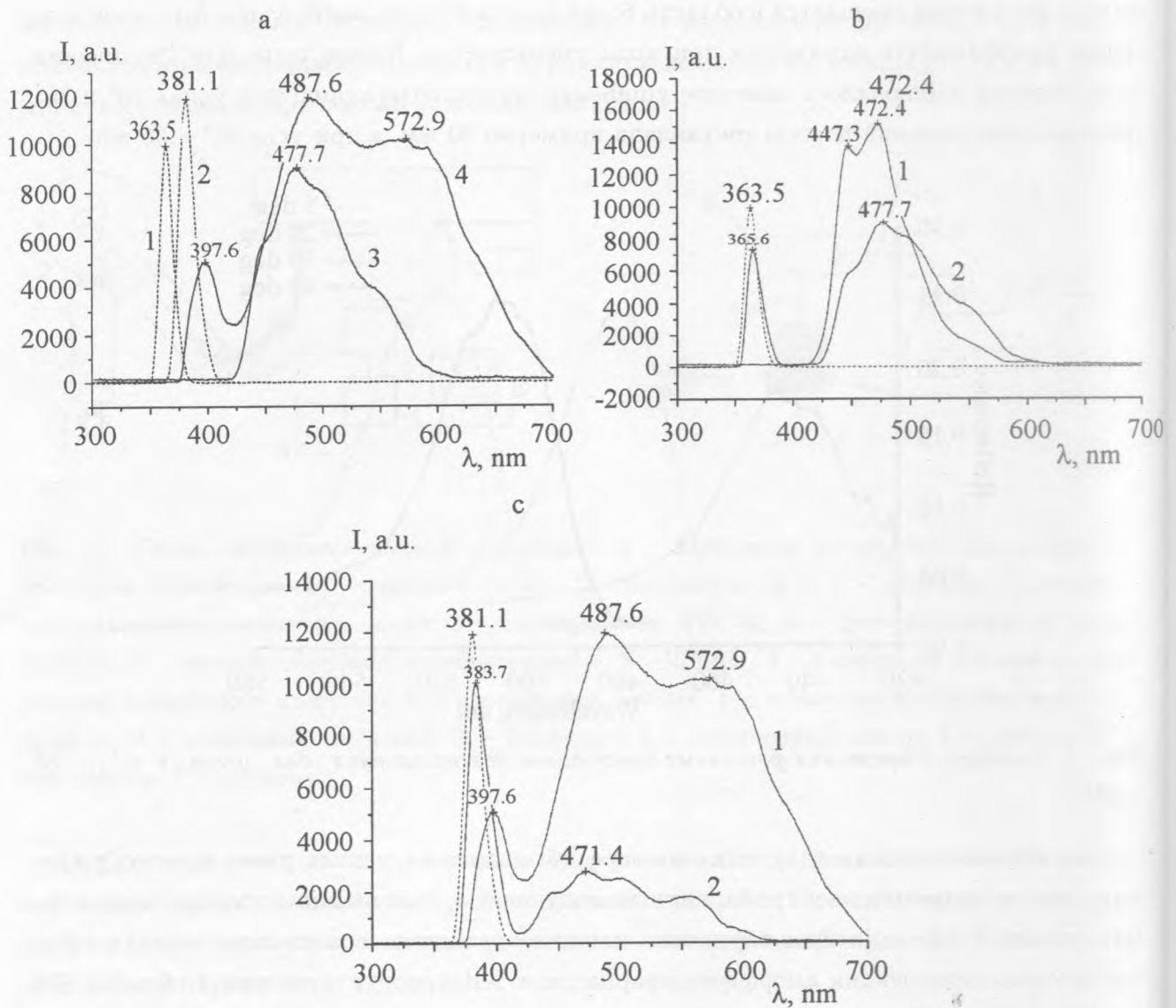


Рис. 3. Спектры свечения пластин опалов различной толщины и при различных условиях возбуждения (пунктир – спектр возбуждающего излучения). а – 1, 2 – спектры возбуждающего излучения с максимумами $\lambda_0 = 363.5$ и 381.1 нм соответственно; 3 – спектр вторичного излучения в опале ($t = 2.0$ мм) при возбуждении $\lambda_0 = 363.5$ нм; 4 – спектр вторичного излучения в опале ($t = 2.0$ мм) при возбуждении $\lambda_0 = 381.1$ нм; б – 1, 2 – спектры вторичного излучения в опале толщиной $t = 0.7$ и 2.0 мм соответственно ($\lambda_0 = 363.5$ нм); в – 1, 2 – спектры вторичного излучения в опале толщиной $t = 0.7$ и 2.0 мм соответственно ($\lambda_0 = 381.1$ нм).

подводилось к поверхности пластин опалов толщиной 0.7 и 2.0 мм. Вторичное излу-

чение 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 – 10 с.

Результаты экспериментальных исследований. Рис. 3а иллюстрирует изменения вида спектров вторичного излучения опалов толщиной 2.0 мм в зависимости от длины волны возбуждающего излучения. При этом кривые 1, 2 (пунктир) соответствуют спектрам возбуждающего излучения; кривые 3, 4 соответствуют спектрам вторичного излучения. Как видно из этого рисунка, при переходе от длины волны возбуждения 363.5 к 381.1 нм наблюдается уширение полосы вторичного излучения. При возбуждении вторичного излучения источником с длиной волны 381.1 нм обнаруживается полоса вблизи положения возбуждающего излучения (см. кривая 4 на рис. 3а).

Рис. 3б иллюстрирует изменение вида спектров при увеличении толщины опала от 0.7 до 2.0 мм при возбуждении источником с длиной волны 363.5 нм; аналогично, рис. 3с соответствует возбуждающему излучению с длиной волны 381.1 нм. Как видно из этих рисунков, форма спектров свечения с увеличением толщины образцов изменяется существенным образом, а интенсивность вторичного излучения резко падает.

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

Анализ полученных спектров зеркального отражения проводился с использованием известного соотношения для Брэгговской дифракции света в кристалле: $\lambda(\theta) = 2d\sqrt{\langle n \rangle^2 - \sin^2 \theta}$, где d – расстояние между плоскостями в кристалле ($d = \sqrt{\frac{2}{3}}a$, a

– диаметр сфер, из которых сложен кристалл), θ – угол падения света на кристалл, $\langle n \rangle = \beta n + (1 - \beta)$ – эффективный показатель преломления синтетического опала; здесь $\beta = 0.79$ – коэффициент заполнения для сфер SiO_2 , $n = 1.47$ показатель преломления аморфного кварца. Диаметр сфер a рассчитывался по положению максимума в спектре отражения для угла $\theta = 5^\circ$ и составил 230 нм.

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

Перейдем к анализу наблюдавшегося свечения искусственного опала под действием ультрафиолетового излучения. Присутствие в спектре свечения низкочастотной полосы вблизи положения максимума возбуждающего излучения (381.5 нм) естественно объяснить как проявление стокова комбинационного рассеяния (КР). При этом важно отметить, что интенсивность стокова излучения оказывается сравнимой с интенсивностью возбуждающего излучения. Такой эффект можно классифицировать как комбинационную опалесценцию, т.е. резкое возрастание вероятности процесса КР. Причиной такого эффекта может быть близость полосы возбуждающего излучения к краю фотонной зоны и, соответственно, пику плотности фотонных состояний. В этом случае скорость электромагнитной волны v становится существенно ниже скорости света c_0 в вакууме: $\frac{c_0}{v} \gg 1$.

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

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

Таким образом, в данной работе обнаружено свечение искусственных опалов при их возбуждении ультрафиолетовыми светодиодами. Форма спектра свечения оказалась за-

висящей от длины волны возбуждающего излучения и от толщины исследуемых образцов. Наблюдаемое вторичное излучение в области низких частот может быть объяснено как проявление однофотонных процессов КР. Вероятность таких процессов в данном случае резко возрастает, т.е. рассеяние приобретает характер комбинационной опалесценции.

Присутствие полосы вторичного излучения вдали от частоты возбуждающей линии в стоксовой области спектра обусловлено процессами параметрического рассеяния, интенсивность которых возрастает в связи с увеличением плотности фотонных состояний вблизи краев стоп-зоны исследуемого фотонного кристалла.

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

Работа выполнена при поддержке РФФИ (проекты N 04-02-16237 и N 05-02-16205).

ЛИТЕРАТУРА

- [1] Y a b l o n o v i t c h E. Phys. Rev. Lett., **58**, 2059 (1987).
- [2] J o h n S. Phys. Rev. Lett., **58**, 2486 (1987).
- [3] Б а р ы ш е в А. В., К а п л ь а н с к и й А. А., К о с о б у к и н В. А. и др. ФТТ, **45**, 3, 434 (2003).
- [4] V l a s o v Yu. A., A s t r a t o v V. N., B a r y s h e v A. V., et al. Phys. Rev., E **61**, 5784 (2000).

Поступила в редакцию 11 апреля 2006 г.

После переработки 5 октября 2006 г.