

В. С. Горелик, В. В. Филатов

ОПТИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА ФОТОННЫХ КРИСТАЛЛОВ, ЗАПОЛНЕННЫХ РЕДКОЗЕМЕЛЬНЫМИ ЭЛЕМЕНТАМИ

Исследованы оптические свойства резонансных фотонных кристаллов на примере искусственных опалов с нановключениями оксида европия. Определены дисперсионные кривые, коэффициенты отражения света, эффективные показатели преломления, групповые скорости и эффективные массы электромагнитных волн в исходном опале и резонансном фотонном кристалле. Проведено сопоставление теории с экспериментом по спектрам отражения и фотolumинесценции в отраженном свете. Рассчитаны параметры электромагнитных волн на резонансном уровне.

E-mail: gorelik@sci.lebedev.ru

Ключевые слова: глобулярный фотонный кристалл, опал, оксид европия, спектр, люминесценция, дисперсионное соотношение, показатель преломления, коэффициент отражения, фотоны, групповая скорость, эффективная масса, резонанс.

В последнее время большой интерес исследователей во всем мире вызывают метаматериалы — композиты, свойства которых обусловлены не столько свойствами составляющих элементов, сколько искусственно созданной периодической структурой [1]. Для задач оптики важны структуры с изменением показателя преломления с периодом, допускающим брэгговскую дифракцию света, — фотонные кристаллы [2]. Достижения в области исследований фотонных кристаллов связаны с трехмерными образцами, например, на основе искусственных опалов. Глобулярные фотонные кристаллы (ГФК) — это композиты, образованные ГЦК-решеткой глобул (шаров) аморфного кварца SiO_2 . Наличие пор в опале позволяет вводить в материал различные включения. Легирование опалов представляет интерес в связи с возможностью управления оптическими свойствами образцов. Исследованиям фотонных кристаллов на основе искусственных опалов с различными внедрениями посвящена серия работ авторов [3–6].

В работе [2] развита теория экситон-поляритонной зонной структуры резонансного фотонного кристалла. В частности, теоретически установлена возможность появления резонансного уровня в запрещенной зоне. В силу того что диэлектрическая проницаемость оксидов некоторых редкоземельных элементов имеет резонансный вид, представляется важным исследовать резонансные фотонные кристаллы с внедрениями подобного рода на примере искусственных опалов, заполненных оксидом европия Eu_2O_3 . Таким образом, целью данной

работы является исследование дисперсии оптических свойств резонансных фотонных кристаллов, заполненных оксидом европия.

Теоретический анализ. Для осуществления теоретического анализа использована хорошо зарекомендовавшая себя модель распределенного брэгговского отражателя. В соответствии с [7] распространение электромагнитных волн вдоль выделенного направления [111] нормали к естественной грани роста (111) описывается следующим дисперсионным соотношением:

$$\cos k_1 a_1 \cos k_2 a_2 - \frac{1}{2} \left(\frac{n_2}{n_1} + \frac{n_1}{n_2} \right) \sin k_1 a_1 \sin k_2 a_2 = \cos ka. \quad (1)$$

Здесь индекс $i = 1$ относится к опаловой матрице композита; $i = 2$ соответствует заполненным порам; a_i — эффективный период i -й среды ($i = 1, 2$); n_i — соответствующий показатель преломления; $k_i = \omega n_i / c$ — волновой вектор; $c = 3 \cdot 10^8$ м/с — скорость света в вакууме. Кроме того, $a = a_1 + a_2$. В силу гранецентричности решетки ГФК необходимо положить $a = D\sqrt{2/3}$, где D — диаметр глобул опала. Величины a_1 и a_2 удобно определить следующим образом:

$$a_1 = (1 - \eta)a; \quad a_2 = \eta a,$$

где $\eta = 0,26$ — удельная объемная доля пор в образце для ГЦК-решетки.

С учетом перечисленных условий уравнение (1) для первой зоны Бриллюэна можно записать в виде

$$k(\omega) = \frac{1}{D\sqrt{\frac{2}{3}}} \arccos \left\{ \cos \left[\frac{\omega n_1(\omega)}{c} (1 - \eta) D\sqrt{\frac{2}{3}} \right] \times \right. \\ \times \cos \left[\frac{\omega n_2(\omega)}{c} \eta D\sqrt{\frac{2}{3}} \right] - \frac{1}{2} \left(\frac{n_1(\omega)}{n_2(\omega)} + \frac{n_2(\omega)}{n_1(\omega)} \right) \times \\ \left. \times \sin \left[\frac{\omega n_1(\omega)}{c} (1 - \eta) D\sqrt{\frac{2}{3}} \right] \sin \left[\frac{\omega n_2(\omega)}{c} \eta D\sqrt{\frac{2}{3}} \right] \right\}. \quad (2)$$

Теоретический спектр отражения излучения от N -слойной брэгговской стопки может быть определен следующим образом [7]:

$$R_N = |r_N|^2 = \frac{\left| \frac{1}{2} \left(\frac{k_2}{k_1} - \frac{k_1}{k_2} \right) \sin k_2 a_2 \right|^2}{\left| \frac{1}{2} \left(\frac{k_2}{k_1} - \frac{k_1}{k_2} \right) \sin k_2 a_2 \right|^2 + \left| \frac{\sin ka}{\sin Nka} \right|^2}. \quad (3)$$

При этом эффективный показатель преломления света фотонным кристаллом может быть найден как

$$\begin{cases} n(\omega) = \frac{ck(\omega)}{\omega}, & V > 0; \\ n(\omega) = -\frac{ck(\omega)}{\omega}, & V < 0. \end{cases} \quad (4)$$

Показатель преломления отрицателен, когда направления фазовой и групповой скоростей электромагнитных волн взаимно противоположны. Групповые скорости, определяющие скорость распространения энергии в кристалле, находят по формуле

$$V(\omega) = \frac{d\omega}{dk}. \quad (5)$$

Эффективную массу данных квазичастиц можно вычислить следующим образом:

$$m(\omega) = \hbar^2 \left(\frac{d^2\varepsilon}{dk^2} \right)^{-1} = \hbar \left(V(\omega) \frac{dV(\omega)}{d\omega} \right)^{-1}. \quad (6)$$

Для непосредственных расчетов по приведенным формулам необходимо задать материальные соотношения на показатели преломления n_1 и n_2 . По данным [8] показатель преломления аморфного кварца, образующего матрицу композита, задают соотношением Коши вида

$$n_1(\lambda) = \sqrt{1 + \frac{0,6961663\lambda^2}{\lambda^2 - 0,0684043^2} + \frac{0,4079426\lambda^2}{\lambda^2 - 0,1162414^2} + \frac{0,8974794\lambda^2}{\lambda^2 - 9,896161^2}}, \quad (7)$$

где λ — длина волны, мкм.

Показатель преломления оксида европия в порах ГФК можем представить в аналогичном виде:

$$n_2(\omega) = \sqrt{1 + \frac{\omega_p^2}{\omega_0^2 - \omega^2}}. \quad (8)$$

Здесь ω_0 и ω_p — некоторые параметры, значения которых определяют из эксперимента.

Методика эксперимента. Экспериментальные исследования проводили на образцах опалов с диаметром глобул $D = 266$ нм по схеме, приведенной в работе [3]. Свет от источника опорного излучения (галогенной лампы) по оптоволокну подавали на входной канал двухжильного световода, заканчивающегося зондом, присоединенным к кювете с образцом. Отраженное излучение по другому оптоволоконному каналу поступало на вход цифрового спектрометра, подключенного к компьютеру. Полученные спектры очищали от шумов и нормировали на единицу.

Анализ полученных результатов эксперимента. Спектр люминесценции опала с наночастицами оксида европия содержит характерный резонанс на длине волны $\lambda_0 = 615$ нм. Поэтому в формуле (8) значение ω_0 следует положить равным $\omega_0 = 2\pi c/\lambda_0 = 3 \cdot 10^{15}$ рад/с. Для нахождения значения ω_p необходимо решить задачу определения неизвестного параметра по известным экспериментальным данным. С этой целью проведена серия расчетов спектров отражения резонансных ГФК при различных значениях ω_p : лучше всего данные согласуются с экспериментом при $\omega_p = 0,2\omega_0$.

Дисперсионные кривые для исходного и легированного образцов, определенные по формуле (2), представлены на рис. 1. Параметры на рис. 1, *а* соответствуют зонной структуре незаполненного опала, на рис. 1, *б* – фотонному кристаллу с оксидом европия. На рис. 1, *б* хорошо виден резонансный уровень вблизи нижнего края первой запрещенной зоны. На рис. 1, *а* и *б* показаны границы запрещенных зон, край первой зоны Бриллюэна $k = \pi/a$, а также прямая $\omega = ck$, соответствующая закону дисперсии электромагнитных волн в вакууме.

На рис. 2 приведены теоретические спектры отражения 1, найденные по уравнению (3) при числе слоев $N = 20$, в сопоставлении со спектрами отражения 2 и люминесценции 3 для обоих типов образ-

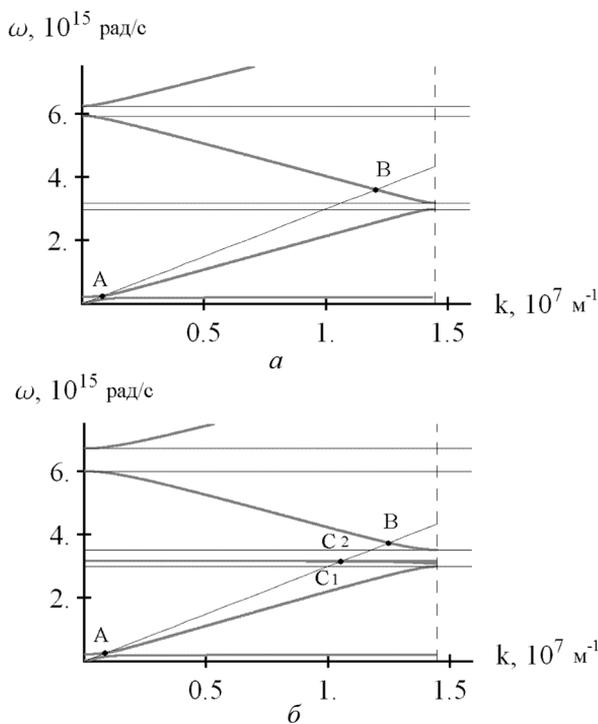


Рис. 1. Дисперсионные кривые для образцов опалов с диаметром глобул 266 нм: *а* – исходный (незаполненный) опал; *б* – резонансный кристалл с оксидом европия

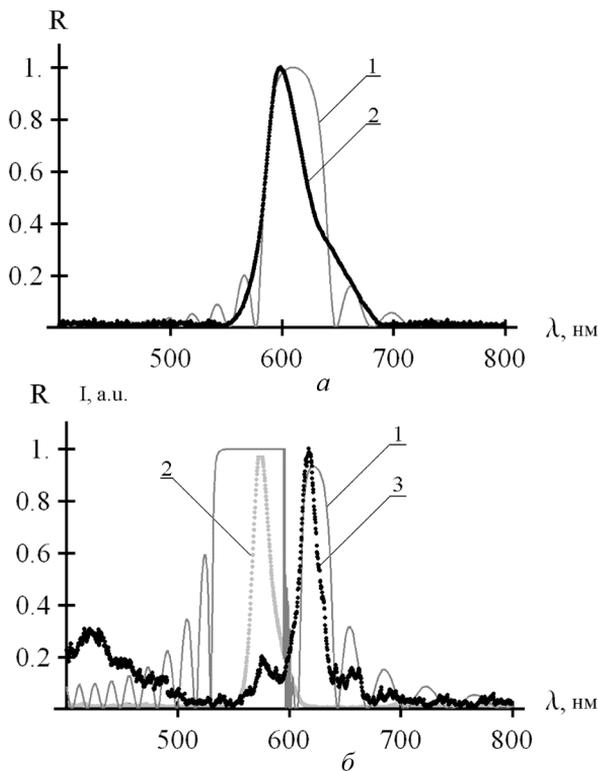


Рис. 2. Теоретические спектры I в сопоставлении со спектрами отражения 2 и люминесценции 3 :

a – исходный опал; b – кристалл с Eu_2O_3 . Диаметр глобул кварца $D = 266$ нм

цов. Данные на рис. 2, a соответствуют исходному опалу, на рис. 2, b – фотонному кристаллу, заполненному оксидом европия.

Эффективные показатели преломления света опалами вдоль направления $[111]$, вычисленные по формуле (4), графически приведены на рис. 3, a и b , на которых также показаны границы запрещенных зон и проведена прямая $n = -1$, соответствующая максимальной прозрачности материала.

Графики дисперсионных зависимостей (5) групповых скоростей электромагнитных волн в исследуемых опалах изображены на рис. 4. Пунктиром отмечен релятивистский предел $v = \pm c$. Наблюдается замедление фотонов у краев запрещенной зоны и вблизи резонансного уровня. Этот эффект приводит к появлению пика в спектре люминесценции опала с Eu_2O_3 вблизи резонансной длины волны $\lambda_0 = 615$ нм (см. рис. 2, b).

Наконец, эффективные массы фотонов, определяемые соотношением (6), приведены на рис. 5: дисперсионная зависимость массы квазичастиц в незаполненном кристалле показана на рис 5, a , в образце с оксидом европия – на рис. 5, b .

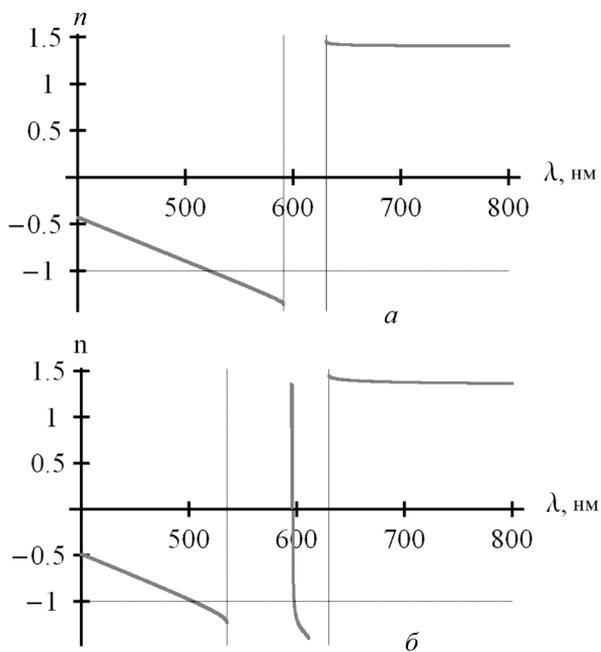


Рис. 3. Эффективные показатели преломления электромагнитного излучения вдоль направления [111] в опалах с диаметром глобул 266 нм: *a* – исходный образец; *б* – резонансный ГФК

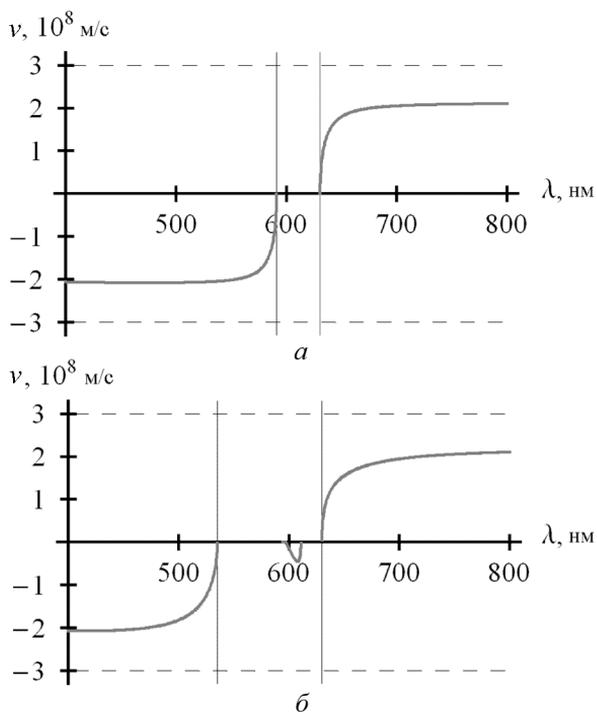


Рис. 4. Групповые скорости электромагнитных волн в исследуемых образцах: *a* – исходном; *б* – резонансном

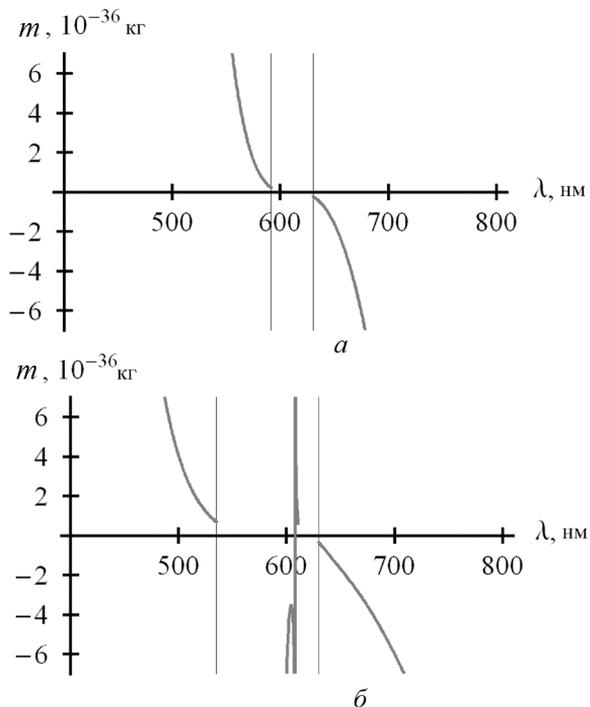


Рис. 5. Эффективные массы фотонов в фотонных кристаллах:
a – исходный опал; *б* – резонансный кристалл

Количественные характеристики электромагнитных волн в особых точках дисперсионных ветвей (см. рис. 1) сведены в таблицу.

Параметры электромагнитных волн в особых точках дисперсионных кривых

Точка	$\omega, 10^{15}$ рад/с	$\lambda, \text{нм}$	$k, 10^7 \text{ м}^{-1}$	n	R	$v, 10^6 \text{ м/с}$	$m, 10^{-36} \text{ кг}$
Исходный опал							
<i>A</i>	0,2476	7614	0,08252	1	0	89,26	0,5091
<i>B</i>	3,610	522,1	1,203	-1	0	-206,1	41,46
Опал, заполненный Eu_2O_3							
<i>A</i>	0,2557	7371	0,08524	1	0	104,926	0,4804
<i>C</i> ₁	3,155	597,5	1,052	-1	0	-2,9175	-60,24
<i>C</i> ₂	3,163	596,0	1,054	1	0	0,0134663	-34630
<i>B</i>	3,744	503,5	1,2480	-1	0	-177,416	3,495

Итак, теория дисперсионных зависимостей оптических свойств резонансных фотонных кристаллов развита на примере искусственных опалов с внедрениями оксида европия. Оказалось, что введение в поры опала наночастиц материалов, диэлектрическая проницаемость которых имеет резонансный вид, приводит к существенному изменению

оптических свойств композита. Так, например, при легировании опала частицами Eu_2O_3 возникает дополнительный резонансный уровень в области первой запрещенной зоны. При этом в окрестностях резонанса происходит замедление электромагнитных волн, что приводит к возникновению метастабильного состояния. Данный эффект может быть использован для создания лазеров на фотонных кристаллах.

Работа выполнена при поддержке Минобрнауки РФ (Государственный контракт 16.513.11.3116) и проектов РФФИ № 10-02-00293, 11-02-00164, 11-02-12092, 12-02-00491, 12-02-90422.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Engheta N., Ziolkowski R. W. Electromagnetic metamaterials: Physics and engineering explorations. – New Jersey: Wiley-IEEE Press, 2006. – 440 p.
2. И в ч е н к о Е. Л., П о д д у б н ы й А. Н. Резонансные трехмерные фотонные кристаллы // Физика твердого тела. – 2006. – Т. 48, № 3. – С. 540–547.
3. С п е к т р ы отражения опалов с порами, заполненными золотом или серебром / Ю.П. Войнов, В.С. Горелик, Л.И. Злобина, В.В. Филатов // Неорганические материалы. – 2009. – Т. 45, № 10. – С. 1211–1216.
4. Ф и л а т о в В. В., Г о р е л и к В. С. Закон дисперсии акустических волн в фоновых кристаллах, заполненных диэлектриком или металлом // Краткие сообщения по физике. – 2010. – № 2. – С. 42–44.
5. Bunkin N. F., Gorelik V. S., Filatov V. V. Acoustic properties of globular photonic crystals based on synthetic opals // Physics of Wave Phenomena. – 2010. – Vol. 18(2). – P. 90–95.
6. Г о р е л и к В. С., Ф и л а т о в В. В. Дисперсионные характеристики глобулярных фотонных кристаллов, заполненных водой и золотом // Неорганические материалы. – 2012. – Т. 48, № 4. – С. 429–436.
7. Я р и в А., Ю х П. Оптические волны в кристаллах: пер. с англ. – М.: Мир, 1987. – 616 с.
8. M a l i t s o n I. H. Interspecimen comparison of the refractive index of fused silica // J. Opt. Soc. Am. – 1965. – Vol. 55. – P. 1205–1208.

Статья поступила в редакцию 05.07.2012