Подсекция:

ОПТИКА И ЛАЗЕРНАЯ ФИЗИКА

Сопредседатели
профессор В.А.Макаров, профессор В.В.Михайлин,
профессор А.М.Желтиков

ОПТИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА ОДНОМЕРНЫХ АПЕРИОДИЧЕСКИХ СИСТЕМ

Аспирантка *Грушина Н.В.*, вед.программист *Зотов А.М.,*
профессор *Короленко П.В.*, инженер *Мишин А.Ю.*

С момента открытия в 1984 г. квазикристаллов в физике большое внимание уделяется исследованию оптических свойств квазипериодических детерминированных структур. При описании их геометрии используются математические модели, обычно основанные на применении 4-х типов последовательностей: Фибоначчи (*Ф*), Тью-Морзе (*ТМ*), Рудин-Шапиро (*РШ*) и “двойного периода” (*ДП*). При построении соответствующих структур требуется два типа элементов *A* и *B*, чередование которых при увеличении их числа определяется следующими правилами: $A \to AB$, $B \to A$ (последовательность *Ф*); $A \to AB$, $B \to BA$ (последовательность *ТМ*); $AA \to AAAB$, $AB \to AABA$, $BA \to BBAB$, $BB \to BBBA$ (последовательность *РШ*); $A \to AB$, $B \to AA$ (последовательность *ДП*) [1].

Цель данной работы состоит в проведении сравнительного анализа и определении на его основе особенностей характеристик одномерных квазипериодических структур типа дифракционной решетки и многослойной системы, построенных с помощью различных математических моделей.

В случае апериодической амплитудной дифракционной решетки роль элементов *A* и *B* играют щели решетки, отличающиеся размерами. Было проведено сравнение характеристик решеток, в которых чередование щелей с разными размерами определялось указанными выше последовательностями. На *рис. 1* показаны фрагменты распределений амплитуды светового поля в дальней зоне дифракции для четырех видов решеток, насчитывающих 100 щелей. Они соответствуют случаю, когда ширины щелей много меньше размеров непрозрачных зон. Картины дифракции характеризуются наличием главных максимумов с максимальной интенсивностью и находящимися между ними дополнительными дифракционными пиками. Однако, если в решетках, соответствующих последовательностям *Ф* и *ДП*, эти пики хорошо структурированы, то в решетках, относящихся к последовательностям *ТМ* и *РШ*, дополнительные пики проявляются менее отчетливо. На *рис. 1,а,б* положение дополнительных пиков подчиняется простому алгоритму: на *рис. 1,а* они находятся в точках Золотого сечения, образуя фрактальную структуру; на *рис. 1,б* они располагаются в точках, делящих расстояние между другими пиками пополам. Примечательно, что положение дополнительных дифракционных пиков по отношению к главным максимумам у всех решеток не зависит от их геометрических параметров. От последних зависит лишь величина пиков.

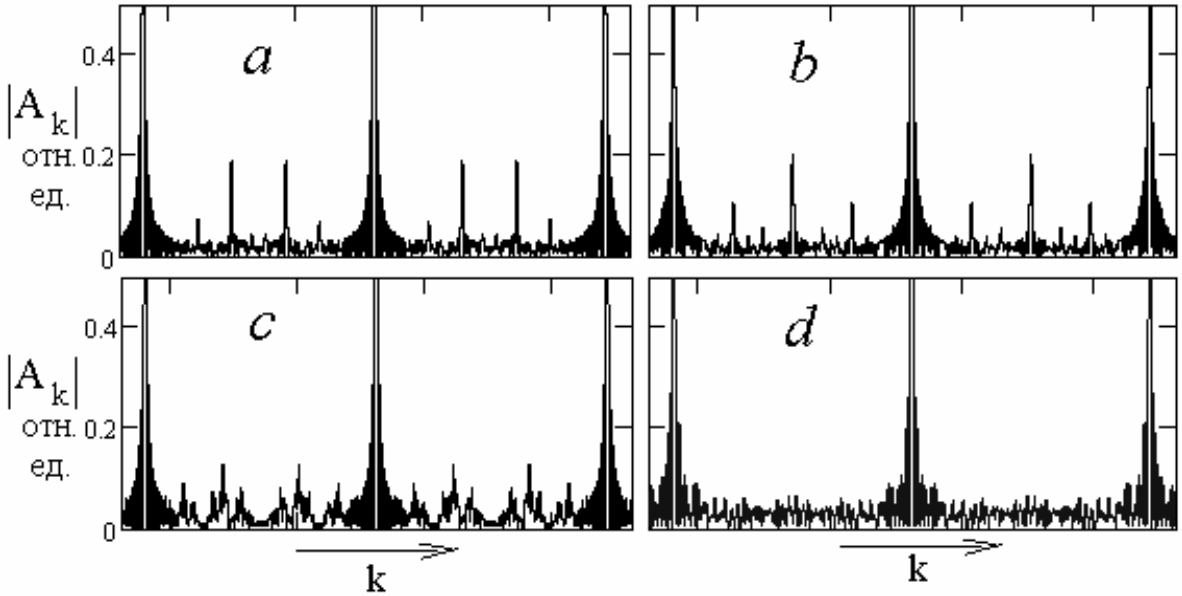


Рис.1. Фрагменты картин дифракции света на решетках, соответствующих последовательностям *Ф (a), ДП (b), ТМ (c), РШ (d). A* – амплитуда поля, *k* – пространственная частота.

Другие рассмотренные одномерные квазипериодические структуры – многослойные системы – также строились на основе последовательностей *Ф, ТМ, РШ* и *ДП*. Элементы *A* и *B* ставились в соответствие отдельным слоям, определяя их толщину и соответственно показатель преломления. Закономерности, характеризующие чередование слоев, во многом определяют свойства многослойных систем (МС) [2]. Особенности спектров пропускания МС, иллюстрирует *рис. 2*. Приведенные на нем спектры соответствуют четверть - волновым МС, насчитывающим 143 слоя с чередующимися показателями преломления $n = 1.45$ и $n = 2.3$. Из рисунка видно, что важным как в теоретическом, так и в практическом отношениях свойством обладают МС, построенные на основе последовательностей *Ф*, *ТМ* и *РШ*. Это свойство состоит в наличии пиков пропускания в области фазовых набегов, близких к $\pi/2$, (в так называемой запрещенной зоне). МС, построенная по принципу *ДП*, этого свойства лишена. В то же время всем МС присущ целый набор запрещенных зон с нулевым коэффициентом пропускания. Изменение показателей преломления слоев может вызывать их уширение или сужение.

Фрактальный анализ зависимостей пропускания МС от фазовых набегов Ф в отдельных слоях указывает на наличие в его структуре элементов самоподобия. Наиболее отчетливо они проявляются в МС, построенной на основе последовательности *Ф*. В отличие от других МС в ней признаки фрактальности проявляются не только в пределах отдельно взятого спектра, но и при сравнении коэффициентов пропускания систем с различным числом слоев.

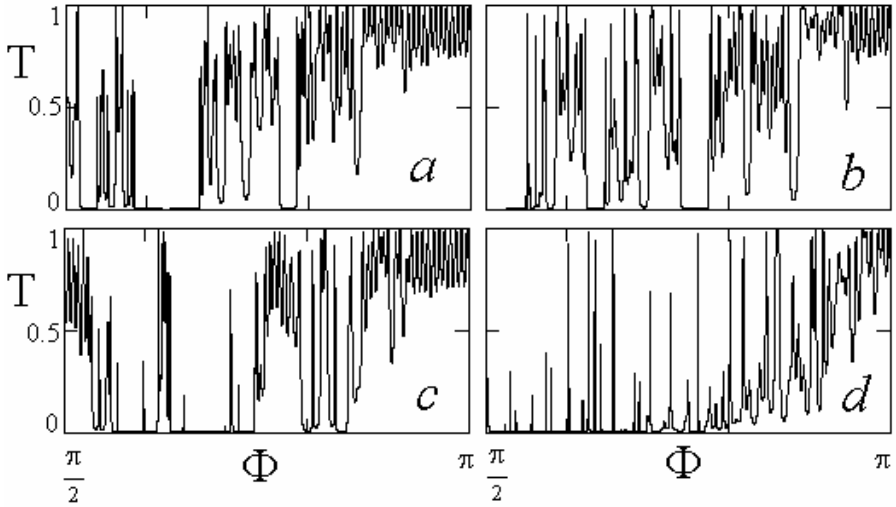


Рис.2. Спектры пропускания МС, соответствующих последовательностям *Ф (a), ДП (b), ТМ (c), РШ (d).* Т – коэффициент пропускания, Ф – фазовый набег в отдельном слое.

Параллельно с фрактальным анализом была проведена мультифрактальная параметризация характеристик МС, определены распределения интенсивности по отдельным слоям и построены “динамические портреты” изменений их пропускания при увеличении числа слоев. Все выполненные расчеты указывают на то, что одномерные квазипериодические системы, основанные на использовании последовательностей *Ф, ТМ, РШ* и *ДП*, обладают широким многообразием оптических свойств, обеспечивающим разнообразное их использование в оптике, лазерной технике и оптоэлектронике. Особым образом следует отметить открывающиеся дополнительные возможности улучшения характеристик фотонных кристаллов, ставших атрибутом многих современных нанотехнологий.

Литература

1. Bambi Hu, Baowen Li, Peiging Tong // Phys. Rev. B, v. 61, № 14, (2000), pp. 9414 – 9418.

2. E.L. Albuquerque, M.G. Cottam // Phys. Reports, v. 376 (2003), pp. 225 – 337.

ЛАЗЕРНО-ИНДУЦИРОВАННАЯ ОРИЕНТАЦИЯ МОЛЕКУЛ ПРИ КОМНАТНЫХ ТЕМПЕРАТУРАХ

Аспирант *Жданов Д.В.*, доцент *Задков В.Н.*

Предложен метод послеимпульсной (field-free) ориентации молекул в газовой смеси при комнатных температурах при помощи воздействия мощного импульсного многокомпонентного когерентного лазерного излу-

чения. Для управления вращательной динамикой используется разработанный нами ранее метод лазерной селекции молекул по их ориентации. На примере молекулы BF показано, что при наличии у молекулы постоянного дипольного момента ориентация молекул может сопровождаться генерацией импульсного терагерцового излучения большой интенсивности.

Лазерно-индуцированная ориентация молекул (т.е. молекулярное выстраивание с добавочным требованием совмещения молекулярной (ζ) и пространственно фиксированной (z) осей по направлению, т.е малости угла θ между их направлениями) в последнее десятилетие является предметом активных теоретических и экспериментальных исследований, которые стимулированы широким спектром перспективных приложений, включающих нанолитографию, стереохимические задачи, анализ процессов столкновений и ионизации, пространственных эффектов в динамике химических реакций. Необходимость получения ансамблей ориентированных молекул возникает при решении задач, относящихся к самым разнообразным областям исследований – от генерации высоких гармоник до реализации квантовых вычислений.

Для приложений особенно интересны методы послеимпульсной (field-free) динамической ориентации молекул. К настоящему моменту предложены различные способы получения такой ориентации: с помощью совместного действия лазерных и электростатических полей, длинного импульса с ``обрубленным'' задним фронтом, коротких асимметричных импульсов, когерентных многокомпонентных лазерных полей и т.д. К числу наиболее общих изъянов, присущих данным методам, следует отнести необходимость предварительного понижения вращательной температуры молекул до нескольких кельвин. Кроме того, насколько нам известно, проблема динамической ориентации неполярных молекул до сих пор остаётся открытым вопросом.

В настоящей работе мы предлагаем новый сценарий динамической ориентации молекул, являющийся возможным вариантом решения этих двух проблем. Механизмом ориентации служит недавно предложенный нами метод ориентационно-зависимой селекции молекул [1] при помощи воздействия многокомпонентного лазерного импульса фемтосекундной длительности. На примере молекулы BF мы демонстрируем, что в термодинамически равновесном ансамбле при температуре T~300 K может быть достигнута высокоэффективная ориентация ($<\cos(\theta)>\sim 0{,}1$), причём усреднение по «отселектированным» (т.е. находящимся в заданном вибронном состоянии $|1>$) молекулам даёт ($<\cos(\theta)>_1\sim 0{,}7$).

1. *Zhdanov D.V., Zadkov V.N.* // Phys. Rev. A. 2008. **77**. N 1, pp. 011401-4(R).
2. *Жданов Д.В., Гришанин Б.А., Задков В.Н.* // ЖЭТФ. 2006. **130**. №3, с. 387-400.

ВЛИЯНИЕ ПРИМЕСНЫХ ИОНОВ НА ОПТИЧЕСКОЕ ПОГЛОЩЕНИЕ И ЛЮМИНЕСЦЕНЦИЮ ЭПИТАКСИАЛЬНЫХ ПЛЕНОК ГАДОЛИНИЙ-ГАЛЛИЕВОГО ГРАНАТА

Ст.науч.сотр. *Васильева Н.В.*, вед.науч.сотр. *Рандошкин В.В.*, зав.лаб. *Плотниченко В.Г.*, науч.сотр. *Пырков Ю.Н.*, науч.сотр. *Колташев В.В.*, ученый секретарь *Воронов В.В.*, ст.науч.сотр. *Колобанов В.Н.*, науч.сотр. *Спасский Д.А.*

В последнее время возник интерес к изучению спектроскопических свойств монокристаллических пленок граната, активированных как редкоземельными ионами, так и ионами переходных металлов. На основе этих пленок могут быть изготовлены люминесцентные преобразователи излучения: катодолюминесцентные и рентгеновские экраны высокого разрешения, α-, β-сцинтилляторы, микролазеры или волноводные лазеры, а также пассивные затворы для лазеров, излучающих в спектральном диапазоне 1.4-1.6 мкм.

Монокристаллические пленки на основе гадолиний-галлиевого граната (ГГГ) выращивают методом жидкофазной эпитаксии (ЖФЭ) из переохлажденных растворов-расплавов на основе систем $PbO–B_2O_3$ и/или $Bi_2O_3 – B_2O_3$ на изоморфных подложках ГГГ с ориентацией (111) или (100). При синтезе эпитаксиальных пленок в состав пленки в качестве неконтролируемой примеси входят компоненты растворителя: ионы Pb^{2+}, пары ионов Pb^{2+} и Pb^{4+}, ионы Bi^{3+}, а также ионы Pt^{3+} или Pt^{4+} из платинового тигля. Эти примесные ионы в выращенных эпитаксиальных пленках по сравнению с подложкой дают дополнительные полосы поглощения.

Целью настоящей работы являлось исследование влияния примесных ионов свинца и висмута на оптическое поглощение и люминесценцию монокристаллических пленок гадолиний-галлиевого граната.

Эпитаксиальные пленки ГГГ были выращены из переохлажденных растворов-расплавов на основе систем $PbO – B_2O_3$ или $Bi_2O_3 – B_2O_3$ на изоморфных подложках ГГГ с ориентацией (111) методом ЖФЭ на воздухе. Пленки выращивали из платиновых тиглей.

Выращено пять серий пленок из свежеприготовленных растворов-расплавов на основе $PbO – B_2O_3$ с концентрацией оксида гадолиния $C(Gd_2O_3)$ 0.1 (I), 0.2 (II), 0.3 (III), 0.4 (IV) и 0.5 (V) мол.% [1]. Максимальная толщина выращенных эпитаксиальных пленок составляла 44.7 мкм, а максимальная скорость роста, наблюдавшаяся в экспериментах, достигала 1.82 мкм/мин. Следует отметить, что скорость роста пленок возрастала с ростом концентрации оксида гадолиния в шихте. При концентрации $C(Gd_2O_3)$ в диапазоне от 0.2 до 0.4 мол.% в шихте обнаружены две области роста пленок. В первой области с относительно малым переохлаждением

$\Delta T = T_s - T_g$ ($\Delta T < 47\ ^0$C для раствора-расплава II, $\Delta T < 60\ ^0$C для III, $\Delta T < 94^0$C для IV и $\Delta T < 110^0$C для V) вырастают пленки прозрачные и бесцветные, а во второй области с большим переохлаждением – прозрачные и фиолетовые. При переохлаждении $\Delta T > 65^0$C для раствора-расплава II, $\Delta T > 60^0$C для III и $\Delta T > 35^0$C для IV и V одновременно с ростом пленки в объеме раствора-расплава наблюдается рост монокристаллов граната в форме тетрагонтриоктаэдра с гранями {211}. В спектрах оптического поглощения исследованных пленок ГГГ были обнаружены полосы поглощения ионов Pb^{2+} и Pb^{4+}. В этих пленках при малом переохлаждении наблюдается полоса поглощения с максимумом на длине волны 282 нм (35461 см$^{-1}$), соответствующая электронному переходу $^1S_0 \rightarrow {}^3P_1$ ионов $Pb^{2+}(6s^2)$ {Pb^{2+} ($6s^2$, $^1S_0$) $\rightarrow Pb^{2+}$ ($6s^1\ 6p^1$, $^3P_1$}. С ростом концентрации $C(Gd_2O_3)$ в растворе-расплаве поглощение ионов Pb^{2+} падает во всём диапазоне длин волн от 250 нм до 350 нм. В пленках, выращенных при большом переохлаждении, наблюдаются несколько полос поглощения: полоса поглощения с максимумом на длине волны 282 нм (35461 см$^{-1}$); полоса поглощения с максимумом на длине волны 319 нм (31348 см$^{-1}$), которая соответствует переходу с переносом заряда из первой валентной подзоны, образованной уровнями O^{2-} (2p), на уровень Pb^{4+} ($5d^{10}$, $^1S_0$) {$O^{2-} + Pb^{4+} + h\nu \rightarrow Pb^{3+} + V_O^{2-}$}, где V_O^{2-} вакансии кислорода и полоса поглощения с максимумом на длине волны 558 нм (17921 см$^{-1}$), соответствующая межвалентному переходу {$Pb^{2+} + Pb^{4+} + h\nu \rightarrow Pb^{3+} + Pb^{3+}$}. В связи с тем, что в запрещенной зоне ГГГ появился уровень иона Pb^{4+}, то пропускание между полосами поглощения $O^{2-} + Pb^{4+} + h\nu \rightarrow Pb^{3+} + V_o^{2-}$ и $Pb^{2+} + Pb^{4+} + h\nu \rightarrow Pb^{3+} + Pb^{3+}$ соответствует длинам волн 415 ÷ 430 нм, то есть фиолетовой части спектра, поэтому пленки, выращенные при большом переохлаждении, имели фиолетовую окраску. Рентгеноструктурные исследования показали, что пленки, выращенные при большом переохлаждении из растворов-расплавов II и V, состоят из двух слоев. Сравнение спектров поглощения пленок, выращенных из растворов-расплавов I, II,и V с данными рентгеноструктурного анализа показывает, что отрицательное относительное рассогласование $\Delta a/a_s$, следовательно, $a_f < a_s$, характерно для пленок, **у** которых наблюдается сдвиг полос поглощения ионами Gd^{3+} по сравнению с их положением в исходной подложке. По наличию такого сдвига можно констатировать, что пленка растянута относительно подложки.

Выращено четыре серий пленок из свежеприготовленных растворов-расплавов на основе $Bi_2O_3 – B_2O_3$ с концентрацией $C(Gd_2O_3)$ 3.0 (I), 4.0 (II), 6.5 (III) и 7.0 (IV) мол.% [2]. Максимальная толщина выращенных эпитаксиальных пленок составляла 43.5 мкм, а максимальная скорость роста, наблюдавшаяся в экспериментах, достигала 7.4 мкм/мин. Небольшая часть выращенных пленок была бесцветной, а остальные пленки имели желтова-

тый оттенок. В спектрах оптического поглощения исследованных эпитаксиальных пленок наблюдаются полосы поглощения: интенсивная полоса поглощения с максимумом на длине волны 290 нм (34480 см$^{-1}$), обусловленная электронным переходом $^1S_0 \rightarrow {}^3P_1$ ионов Bi^{3+} ($6s^2$), причем она отчетливо наблюдается в спектрах поглощения всех исследованных пленок и широкие полосы поглощения с максимумами на длинах волн 343 нм (29124 см$^{-1}$), 423 нм (23637 см$^{-1}$) и 483 нм (20700 см$^{-1}$), которые не наблюдаются в пленках составов I и II, выращенных при $\Delta T < 15^oC$. В монокристаллах иттрий-алюминевого граната ($Y_3Al_5O_{12}$), выращенных из расплава в платиновом тигле при медленном охлаждении, методом ЭПР были обнаружены парамагнитные ионы Pt^{3+}, у которых основной уровень – $^4F_{9/2}$. Ионы Pt^{3+} входят в состав граната в виде изоморфной, изовалентной примеси и замещают ионы Ga^{3+} в октаэдрической подрешетке. В спектрах поглощения иттрий-алюминевого граната, содержащего ионы Pt^{3+}, обнаружены полосы поглощения с максимумами 15380, 18760, 21740, 27470, 32680, 37310, 39680, 45450 см$^{-1}$. Из сравнения расположения этих полос поглощения с полосами поглощения, зарегистрированными в эпитаксиальных пленках гадолиний-галлиевого граната, можно сделать вывод, что ионы Pt^{3+} ($5d^7$) вошли в структуру гранатовой пленки на уровне неконтролируемой примеси. Растворимость платины в расплавах Bi_2O_3 довольно хорошо изучена в работах [3,4]. Известно, что с уменьшением температуры расплава с 1000^0C до 850^0C концентрация насыщения платины увеличивается с 0,11 вес.% до 0,21 вес.%.

Спектры люминесценции эпитаксиальной пленки, выращенной из раствора-расплава III при $T_g = 1045^0C$ и скорости роста 2.7 мкм/мин, при селективном возбуждении синхротронным излучением на длине волны 82.6 нм имеют вид колокола, расположенного в диапазоне длин волн от 380 до 750 нм, максимум интенсивности которого при изменении температуры от 10 до 300 К смещается на 5 нм в длинноволновую область. Мы полагаем, что колокол, впервые наблюдавшийся нами в эпитаксиальных пленках ГГГ, связан с люминесценцией примесных ионов Bi^{3+}.

Литература

1. Васильева Н.В., Рандошкин В.В., Плотниченко В.Г., Пырков Ю.Н. Воронов В.В., Галстян А.М., Сысоев Н.Н. // Неорганические материалы, 2008,т.44, №.1, с. 82-87.

2. Васильева Н.В., Рандошкин В.В., Плотниченко В.Г., Пырков Ю.Н., Колташев В.В., Галстян А.М., Сысоев Н.Н. // Поверхность. 2008, №.1, с. 54-57.

3. Кутвицкий В.А., Скориков В.М., Воскресенская Е.Н. и др. // Неорганические материалы. 1979.т. 15. № 10.с.1844-1847.

4. Тананаев И.В., Скориков В.М., Кутвицкий В.А. и др. // Неорганические материалы. 1981. т. 17. №4. с.663-668.

ОПТИКО-АКУСТИЧЕСКАЯ ТОМОГРАФИЯ ПОГЛОЩАЮЩИХ ОБЪЕКТОВ В РАССЕИВАЮЩЕЙ СРЕДЕ: ПРЕДЕЛЬНЫЕ ВОЗМОЖНОСТИ И МЕДИЦИНСКИЕ ПРИЛОЖЕНИЯ

Аспирантка *Хохлова Т.Д.*, ассистент *Пеливанов И.М.*,
профессор *Карабутов А.А.*

Оптико-акустическая томография является гибридным, лазерно-ультразвуковым методом диагностики объектов, поглощающих оптическое излучение, в том числе, биотканей. Данный метод основан на термоупругом эффекте: при поглощении импульсного лазерного излучения в среде происходит ее нестационарный нагрев, что приводит, вследствие теплового расширения среды, к генерации ультразвуковых (оптико-акустических, ОА) импульсов. Профиль давления ОА импульса несет информацию о распределении тепловых источников в среде, поэтому по зарегистрированным ОА сигналам можно судить о распределении в исследуемой среде поглощающих неоднородностей.

ОА томография применима к любой задаче, в которой требуется визуализация объекта, обладающего повышенным коэффициентом поглощения света по отношению к окружающей среде. К таким задачам относится, прежде всего, визуализация кровеносных сосудов, так как кровь является основным хромофором среди других биотканей в ближнем ИК диапазоне. Повышенное содержание кровеносных сосудов характерно для злокачественных новообразований, начиная с ранней стадии их развития, поэтому ОА томография позволяет проводить их обнаружение и диагностику.

Области применения ОА томографии в диагностике биологических объектов удобно классифицировать в соответствии с требуемым пространственным разрешением и глубиной зондирования. Обе эти характеристики определяются, прежде всего, шириной частотной полосы приема ОА сигналов. Широкая (5 МГц – 25 МГц) полоса приема позволяет добиться пространственного разрешения от 60-ти микрон, однако глубина зондирования при этом не превышает 1 см, так как высокие ультразвуковые частоты сильно затухают в биологических тканях. Томографическая система с такими характеристиками может быть использована для диагностики кровеносной системы маленьких животных, например, крыс, которые являются биологическими моделями во многих медицинских исследованиях [1]. Возможно также проведение диагностики новообразований кожи и слизистых человека [2]. Более узкая (1 МГц – 5 МГц) полоса приема используется в том случае, если необходима визуализация объектов размером от сотен микрон до нескольких миллиметров на глубине нескольких сантиметров. Важнейшей проблемой в этой области является диагностика рака молочной железы человека на ранних стадиях, а именно, когда размер опухо-

ли не превышает 1 см. В данной задаче необходимо визуализировать объект размером ~1-10 мм, находящийся на глубине несколько сантиметров. ОА метод уже применялся *in vivo* для визуализации новообразований размером 1-2 см [3], была показана перспективность метода, однако изображений опухолей меньшего размера получено не было, вследствие недостаточного развития систем регистрации ОА сигналов. Разработка таких систем, а также алгоритмов восстановления изображения являются на сегодняшний день наиболее актуальными проблемами в ОА томографии.

Регистрация ОА сигналов обычно осуществляется антенными решетками приемников, конструкция которых обусловливается особенностями конкретной диагностической задачи. В настоящей работе разработана новая численная модель, позволяющая рассчитывать выходной сигнал пьезоэлемента произвольной формы при регистрации ОА сигналов, возбуждаемых произвольным распределением тепловых источников (например, поглощающая неоднородность, находящаяся в рассеивающей свет среде). Данная модель была применена для оценки и оптимизации параметров антенной решетки в задаче ОА диагностики рака молочной железы человека [4]. Результаты численного расчета показали, что новая конструкция антенной решетки, состоящей из фокусированных пьезоэлементов, позволяет существенно улучшить пространственное разрешение и контрастность получаемых ОА изображений, а также увеличить глубину зондирования. Для подтверждения правильности расчетов был проведен модельный эксперимент, в ходе которого были получены ОА изображения поглощающей неоднородности размером 3 мм, находящейся на глубине до 4 см в рассеивающей свет среде (см. рис. 1). Оптические свойства модельных сред были близки к значениям, характерным для здоровой и опухолевой тканей молочной железы человека.

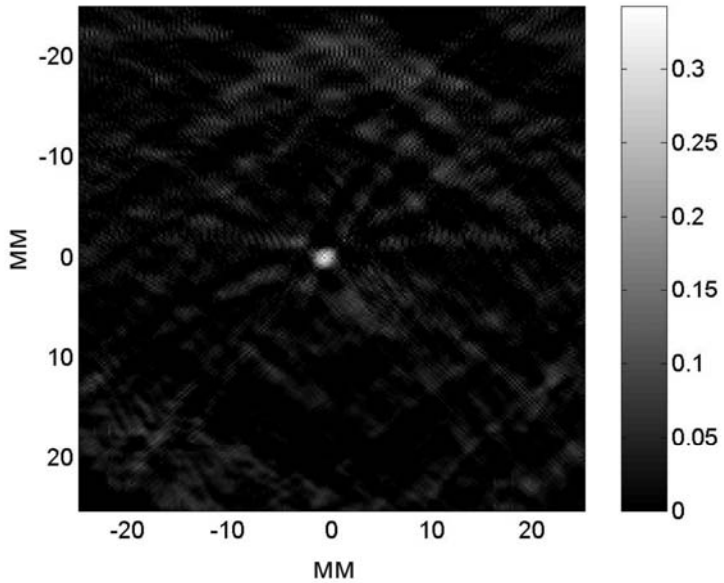


Рис. 1. ОА изображение модельного поглощающего объекта (свиная печень, размер 3 мм), находящегося на глубине 4 см в рассеивающей свет среде (молоко)

Обратная задача ОА томографии заключается в вычислении распределения тепловых источников по зарегистрированным сигналам давления. Во всех работах по ОА томографии до настоящего времени яркость полу-

чаемых изображений измерялась в относительных единицах. Алгоритм количественного восстановления двумерных ОА изображений, предложенный в настоящей работе, позволяет получать информацию о распределении тепловых источников в абсолютных величинах, что является необходимым во многих диагностических и терапевтических задачах.

Одной из возможных областей применений ОА томографии является мониторинг высокоинтенсивной ультразвуковой терапии (в англоязычной литературе – high intensity focused ultrasound, HIFU) новообразований. В HIFU терапии мощные ультразвуковые волны фокусируются внутрь человеческого тела, что приводит к нагреву и последующему разрушению тканей в фокальной области излучателя вследствие поглощения ультразвука. Этот эффект уже использовался *in vivo* для неинвазивного удаления новообразований в молочной железе, предстательной железе, печени, почке и поджелудочной железе, однако основным фактором, препятствующим массовому применению этой технологии в клинике является недостаточное развитие методов контроля процедуры воздействия – визуализации разрушенной области, прицеливания. Возможность применения ОА томографии в этой области зависит, в первую очередь, от отношения коэффициентов поглощения света в исходной и коагулировавшей биотканях. Измерения, проведенные в настоящей работе показали, что это отношение на длине волны 1064 мкм составляет не менее 1.8. ОА методом было проведено обнаружение HIFU разрушения, созданного внутри образца биоткани [5].

Литература

1. K. H. Song, G. Stoica, L. V. Wang, "In vivo three-dimensional photoacoustic tomography of a whole mouse head," Optics Letters 31, pp. 2453–2455 (2006).

2. J. Viator, G. Paltauf, S. Jaques, S. Prahl, H. Ren, Z. Chen, S. Nelson, “Clinical Testing of a Photoacoustic Probe for Port Wine Stain Depth Determination”, Lasers in Surgery and Medicine 30, pp. 141-149 (2002).

3. V.G. Andreev, A.A. Karabutov, S.V. Solomatin, E.V. Savateeva, V.L. Aleynikov, Y.V. Zhulina, R.D. Fleming, A.A. Oraevsky, “Opto-acoustic tomography of breast cancer with arc-array transducer”, Proc. SPIE 3916, pp. 36-46 (2003).

4. T. D. Khokhlova, I. M. Pelivanov, V. V. Kozhushko, A. N. Zharinov, V. S. Solomatin, A. A. Karabutov “Optoacoustic imaging of absorbing objects in a turbid medium: ultimate sensitivity and application to breast cancer diagnostics”, Applied Optics 46(2), pp. 262-272 (2007).

5. Т.Д. Хохлова, И.М. Пеливанов, О.А. Сапожников, В.С. Соломатин, А.А. Карабутов, “Оптико-акустическая диагностика теплового воздействия высокоинтенсивного фокусированного ультразвука на биологические тка-

ни: оценка возможностей и модельные эксперименты”, Квантовая Электроника 36(12), с. 1097-1102 (2006).

МОДЕЛЬ ЦЕНТРОВ ЛЮМИНЕСЦЕНЦИИ С ПЕРЕНОСОМ ЗАРЯДА В АКТИВИРОВАННЫХ ИТТЕРБИЕМ ПОЛУТОРНЫХ ОКСИДАХ

Аспирант *Красиков Д.Н.,* профессор *Михайлин В.В.*

Люминесценция с переносом заряда (ЛПЗ) является наименее исследованным видом люминесценции редкоземельных элементов. Она наблюдается только для иона Yb^{3+} в кристаллических матрицах и обусловлена излучательными переходами с возбужденного состояния с переносом заряда (состояние, в котором дырка с незаполненной 4f оболочки Yb^{3+} переходит на лиганды) на уровни $^2F_{5/2}$ и $^2F_{7/2}$ конфигурации $4f^{13}$ иттербия. Интерес к данному типу люминесценции вызван возможностью ее использования в сцинтилляторах благодаря быстрому времени затухания и удобному для регистрации спектральному диапазону.

Основным фактором, затрудняющим практическое использование ЛПЗ является значительное уменьшение световыхода при повышении температуры для большинства соединений. Многочисленные исследования ЛПЗ при возбуждении непосредственно в полосе с переносом заряда с применением синхротронного излучения позволили установить, что уменьшение световыхода при повышении температуры определяется конечной стадией релаксации электронных возбуждений, т.е. тушением на центре ЛПЗ. Несмотря на то, что спектрально-люминесцентные свойства различных иттербий-содержащих соединений к настоящему моменту исследованы достаточно широко, структура состояния с переносом заряда, играющая очень важную роль в процессах излучательной и безызлучательной релаксации, до сих пор не исследовалась.

В данной работе представлены результаты *ab-initio* расчетов структуры состояния с переносом заряда Y_2O_3-Yb и Lu_2O_3-Yb и моделирования спектральных характеристик ЛПЗ.

Расчеты проводились в кластерном приближении с помощью пакета GAMESS [1,2] и включали в себя два этапа. На первом этапе была найдена равновесная геометрия кластера $(YbO_6)^{-9}$ в состоянии с переносом заряда. Было также установлено, что дырка в состоянии с переносом заряда полностью локализована на одном из атомов кислорода. Детали расчета и результаты первого этапа описаны в [3].

Второй этап расчетов состоял в использовании многоконфигурационного подхода для расчета спектров и моментов переходов без оптимизации геометрии кластера. В активное пространство было включено 10 мо-

лекулярных орбиталей. 7 из них соответствовали 4f-орбиталям Yb, еще 3 соответствовали 2p-орбиталям атома кислорода, на котором локализована спиновая плотность в возбужденном состоянии. Таким образом, было получено 10 состояний, образованных из конфигураций с разным распределением спиновой плотности по орбиталям. В трех верхних по энергии состояниях дырка находится на одной из 2p-орбиталей кислорода, в семи нижних по энергии состояниях дырка находится на 4f-орбиталях иттербия (Рис.1). Были рассчитаны энергии переходов между этими состояниями при двух заданных конфигурациях кластера, а также дипольные моменты этих переходов. Считая, что излучательные переходы происходят с нижнего возбужденного состояния на все семь основных состояний, а поглощение с самого нижнего состояния на все возбужденные, были определены энергии, соответствующие излучению и поглощению с максимальной интенсивностью.

После поправки на энергию динамической корреляции рассчитанная энергия излучательного перехода очень хорошо соответствует максимуму высокоэнергетической полосы спектра ЛПЗ, а рассчитанная энергия поглощения примерно соответствует середине полосы возбуждения с переносом заряда.

Используя формулу Эйнштейна, выражающую вероятности спонтанного перехода через квадрат дипольного момента

$$\tau^{-1}{}_{r} = \frac{4\bar{\omega}^3 n}{3\mathrm{h}c^3}\left|\mathbf{d}\right|^2$$

были рассчитаны константы скорости излучательной релаксации состояния с переносом заряда с учетом переходов на семь основных состояний. Эти константы скорости соответствуют времени затухания примерно 30-40 нс. Экспериментальные значения времени затухания ЛПЗ при температуре около 10 К составляют 80 нс (Y_2O_3-Yb) и 100 нс (Lu_2O_3-Yb). Несмотря на соответствие порядка величины времени затухания для расчета и эксперимента, можно заключить, что дипольный момент при расчете несколько недооценен.

Таким образом, полученные при расчетах характеристики люминесценции с переносом заряда, такие как стоксов сдвиг, максимумы люминесцентных полос и время затухания ЛПЗ, хорошо соответствуют экспериментальным данным. Это позволяет сделать вывод о том, что модель состояния с переносом заряда, в которой дырка локализована на одном из атомов кислорода, не противоречит экспериментальным данным. Для получения окончательного подтверждения справедливости такой модели были проведены расчеты методом функционала плотности с использованием функционала BHHLYP. При этом была получена другая структура возбужденного состояния, в которой дырка оказалась делокализованной по двум

атомам кислорода. Рассчитанные в такой модели параметры (стоксов сдвиг, положение люминесцентных полос и время затухания ЛПЗ) существенно отличались от экспериментальных значений.

Для расчета формы линии и квантового выхода ЛПЗ с учетом тушения был использован метод, основанный на вычислении эффективного коэффициента Франка-Кондона [4]

$$U_p = \sum_{m=m_0}^{\infty} (1-r_v) r_v^m U_{pm}^2 ,$$

где $U_{pm}^2 = f_m \left\langle u_{p+i_m-1} \middle| v_m \right\rangle^2 + (1-f_m) \left\langle u_{p+i_m} \middle| v_m \right\rangle^2$, r_v = exp $(-\hbar\omega_v/kT)$ – больцмановский фактор для колебательных подуровней возбужденного состояния, u_n и v_m – волновые функции фононов основного и возбужденного состояний соответственно, $<u_n|v_m>^2$ – квадраты интегралов перекрытия колебательных волновых функций. Интегралы перекрытия $A_{nm} = <u_n|v_m>$ были вычислены с помощью рекурсивных соотношений из [5] в форме приведенной в [4]. Использующиеся в этих соотношениях параметры, определяющие количество фононов, образующихся после поглощения и излучения, были взяты из результатов квантовомеханических расчетов.

Эффективный фактор Франка–Кондона зависит от одного целочисленного параметра $p \approx n - (\hbar\omega_v/\hbar\omega_u)m$, где n, $\hbar\omega_u$, m и $\hbar\omega_v$ это колебательное квантовое число и фононная энергия основного и возбужденного состояния соответственно. Перейти к зависимости от энергии позволяет уравнение энергетического баланса для излучательных переходов $h\nu_{zp,vu} - p\hbar\omega_u + h\nu_p = 0$, где $h\nu_{zp,vu}$, $h\nu_p$ это полученные из расчетов энергии безфононного перехода и максимума полосы излучения. Зависимость эффективного коэффициента Франка–Кондона от энергии определяет форму линии излучения.

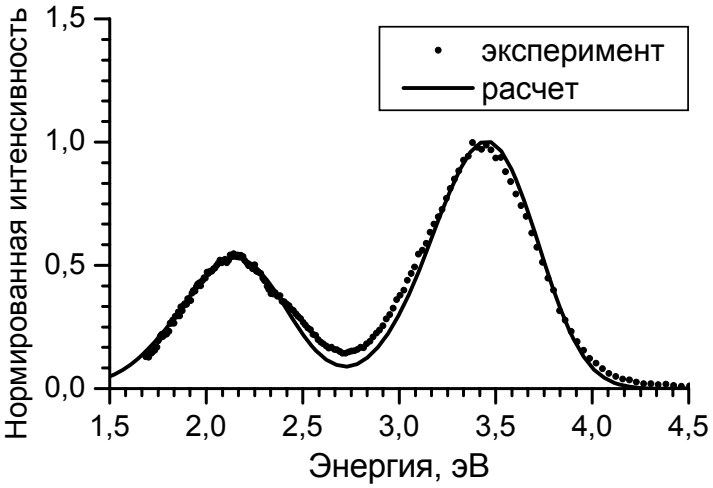


Рис.1. Экспериментальный и смоделированный спектры ЛПЗ Y_2O_3-Yb

Сравнение экспериментальной формы высокоэнергетической полосы ЛПЗ и формы полосы, полученной из расчета с учетом наличия двух типов центров, образуемых в полуторных оксидах ионами Yb, приведено на Рис. 1. В расчетах не учитывалось спин-орбитальное расщепление основного уровня, поэтому была рассчитана форма только высокоэнергетической полосы, а вторая полоса получена сдвигом на энергию спин-орбитального расщепления терма ^2F иона Yb^{3+} (10000 см$^{-1}$) и уменьшением интенсивности.

Зависимость квантового выхода ЛПЗ от температуры была рассчитана по формуле Q = R / (R + N), где R – константа излучательной релаксации, полученная из расчетов, N – константа безызлучательной релаксации, вычисляемая по формуле $N_p = 10^{13} U_p$ для чисто фононных переходов, когда $h\nu_{nm} \approx 0$. Было показано, что, с использованием параметров описанной модели, R >> N в диапазоне температур от 10 до 300 К. И наблюдаемое в эксперименте температурное тушение ЛПЗ не может быть описано в рамках данной модели. Это может объясняться тем, что рассматривалась только одна эффективная акцептирующая мода. Для более корректного описания тушения ЛПЗ может потребоваться учет влияния промотирующих мод.

Литература

1. M.W. Schmidt, K.K. Baldridge, J.A. Boatz, et al., J. Comput. Chem. 14 (1993) 1347.
2. A.A. Granovsky, PC GAMESS 7.0, http://classic.chem.msu.su/gran/gamess/index.html
3. Красиков Д.Н. Тезисы доклада на конференции Ломоносовские чтения, Москва, физический факультет МГУ, 16-25 апреля 2007 г.
4. C.W. Struck, W.H. Fonger, Journal of Luminescence 10 (1975) 1-30.
5. C. Manneback, Physica 17 (1951) 1001-1010.

НЕЛИНЕЙНАЯ ОПТИКА КРЕМНИЕВЫХ НАНОСТРУКТУР И ФОТОННЫХ КРИСТАЛЛОВ

Ст. преподаватель *Федянин А.А.*

Работа посвящена обзору результатов экспериментального исследования квадратичных и кубичных нелинейно-оптических эффектов в кремниевых наноструктурах и в фотонных кристаллах. В рамках данной работы экспериментально исследованы спектральные свойства излучения второй и третьей оптической гармоники, генерируемой в трехмерных композитных фотонных кристаллах опал-кремний [1,2,5], а также проведены экспериментальные исследования нелинейно-оптических свойств одномерных фотонных кристаллов и микрорезонаторов на основе пористого кремния ме-

тодом спектроскопии второй и третьей гармоники как в угловом, так и в частотном пространствах [3,4].

Одним из направлений современной оптики твердого тела является исследование оптических и нелинейно-оптических явлений в микроструктурах с фотонной запрещенной зоной – фотонных кристаллах и микрорезонаторах. Такие микроструктуры обладают периодической модуляцией диэлектрической проницаемости в одном или нескольких направлениях с периодом порядка длины волны, расположенной в видимом или инфракрасном диапазонах. Спектр оптических мод внутри фотонных кристаллов и микрорезонаторов имеет фотонную запрещенную зону – область волновых векторов, распространение света с которыми сильно подавлено. Интерес к фотонным кристаллам и микрорезонаторам на основе кремния обусловлен возможностью управлять оптическим откликом кремния – контролируемо усиливать в определенном спектральном диапазоне сечения фотолюминесценции или рамановского рассеяния, а также увеличивать эффективность нелинейно-оптического отклика кремния, например, генерации второй и третьей гармоник. Прикладной интерес к фотонным кристаллам из кремния связан с перспективой изготовления на их основе устройств современной фотоники и оптоэлектроники – оптических транзисторов, переключателей, мультиплексоров и т.д. В настоящее время разработаны методики изготовления на основе кремния одномерных (1D), двумерных (2D) и трехмерных (3D) фотонных кристаллов, т.е. микроструктур, обладающих периодичностью диэлектрической проницаемости в одном, двух или трех направлениях.

Одномерные фотонные кристаллы (брэгговские зеркала) изготавливаются из мезопористого кремния, двумерные фотонные кристаллы – из макропористого кремния, а трехмерные – на основе композитов опал – кремний. Одной из задач в рамках этой проблематики является создание анизотропных фотонных кристаллов на основе анизотропного мезопористого кремния, обладающего оптическим двулучепреломлением. В настоящее время развиты методики изготовления дихроичных брэгговских зеркал на основе пористого кремния.

При исследовании нелинейно-оптических свойств фотонных кристаллов (ФК) до сих пор основное внимание уделялось возможности эффективного удвоения частоты в ФК благодаря выполнению условий фазового квазисинхронизма. Наличие микрорезонаторного слоя позволяют эффективно управлять пространственным распределением электромагнитного поля внутри них. Например, при резонансе внешнего поля с модой фотоннокристаллического микрорезонатора (МР) интерференция волн с противоположными проекциями волнового вектора на направление периодичности ФК зеркал приводит к образованию внутри МР стоячей волны с амплитудой, резонансно возрастающей в окрестности резонаторного слоя.

Ожидалось, что увеличение плотности энергии лазерного излучения внутри МР в спектральной (частотной или угловой) окрестности моды МР приведет к резонансному усилению нелинейно-оптического отклика МР.

Целью данной работы является исследование явлений трехмерной нелинейно-оптической дифракции света в трехмерных композитных фотонных кристаллах опал – кремния, а также зависимости спектрального положения фотонной запрещенной зоны и микрорезонаторной моды от ориентации вектора поляризации относительно оптической оси одномерных фотонных кристаллов и микрорезонаторов на основе анизотропного мезопористого кремния.

Исследованные образцы синтетических опалов были изготовлены в ФТИ РАН методом седиментации – осаждения из водной суспензии под действием силы тяжести сферических микрочастиц аморфного диоксида кремния с диаметром сферических микрочастиц в диапазоне от 150 до 350 нм при сохранении оптимальных параметров высушивания суспензии, обеспечивающих наименьшую плотность дислокаций в гексагональной структуре ростового опалового слоя и наименьшую концентрацию дефектов межслоевой упаковки. Температурный режим отжига полученных образцов подбирался с учетом увеличения их механической твердости при сохранении спектральных параметров фотонной запрещенной зоны и упорядоченности опаловой матрицы. Образцы композитных фотонных кристаллов опал-кремний состоят из микросфер аморфного диоксида кремния диаметром около 320 нм, плотно упакованных в полидоменную гранецентрированную кубическую решетку, промежутки внутри которой заполнены кремнием. Фактор заполнения промежутков между микросферами диоксида кремния составляет порядка 0.9. Аморфный кремний осаждается в порах опаловой матрицы методом термического разложения газовой смеси силана с аргоном с последующим высокотемпературным отжигом в сильно разреженной воздушной атмосфере, приводящей к кристаллизации аморфного кремния в ансамбль нанокристаллитов. Рентгеноструктурные и рамановские исследования показали, что кремний внутри пор находится в смешанной аморфно-нанокристаллический фазе. Глубина заполнения кремнием составляет порядка 400 мкм при полной толщине исходного опала порядка 1мм [1].

На рис. 1 представлены изображения поверхности (111) композитных фотонных кристаллов опал-кремний, полученных в сканирующем электронном микроскопе при различном увеличении. Отчетливо видно заполнение кремнием пор опалового шаблона.

Измерены спектры пропускания для серии образцов синтетических опалов с положением запрещенной фотонной зоны в диапазоне от 500 до 730 нм, иммерсированных изопропиловым спиртом при падении света вдоль оси роста фотонного кристалла, соответствующей направлению[111]

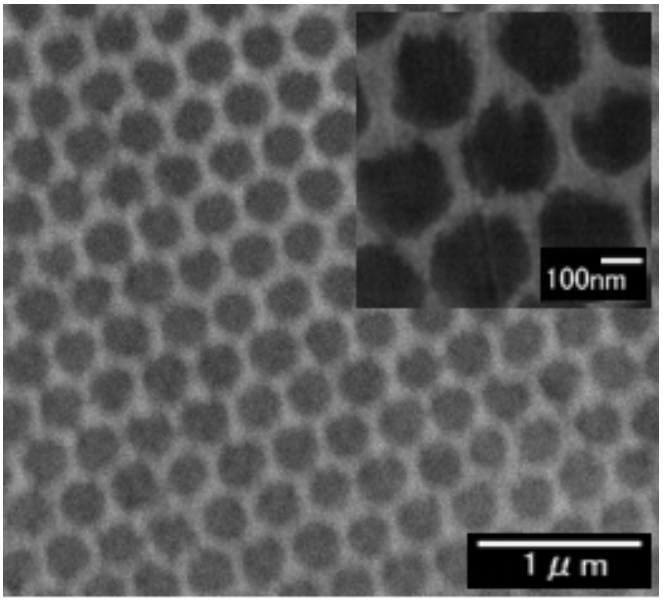


Рис. 1. Изображение поверхности (111) фотонного кристалла кремний – опал в сканирующем электронном микроскопе

объемной гранецентрированной кубической решетке упаковки микросфер диоксида кремния в опалах. Спектры пропускания демонстрируют наличие областей непропускания с шириной на полувысоте от 30 до 60 нм в зависимости от толщины и качества образца. По полученным значениям спектральных положений фотонной запрещённой зоны рассчитаны межплоскостные расстояния между слоями (111) и размеры сферических частиц диоксида кремния. Измерены спектры пропускания образцов синтетического опала при падении света вдоль оси роста фотонного кристалла при заполнении образца жидкостями с различными показателями преломления (изопропиловый спирт, этанол, метанол, водный раствор глицерина различной концентрации). Показано, что по мере приближения показателя преломления иммерсирующей жидкости к показателю преломления опала коэффициент пропускания для длины волны, соответствующей центру фотонной запрещенной зоны, монотонно возрастает с одновременным увеличением глубины запрещенной фотонной зоны. Исследована частотно-угловая спектроскопия отражения образцов синтетических опалов со спектральным положением центра фотонной запрещенной зоны 700 нм при изменении угла падения света в диапазоне от 200 до 400. Проведено сравнение полученной зависимости спектрального положения максимума отражения от угла падения света с модельной кривой, полученной в рамках модели дифракции Брэгга-Вульфа. Экспериментальные данные совпадают с теоретическими расчётами в пределах ошибки.

На рисунке 2 представлена спектральная зависимость коэффициента отражения композитного фотонного кристалла опал – кремний. Диффузная компонента из спектра вычтена. Фотонная запрещенная зона проявляется

при отражении света от системы ростовых граней (111) гранецентрированной кубической решетки упаковки шаров диоксида кремния и находится в окрестности 860 нм при падении света, близком к нормальному. Проведено исследование спектрально-углового состава дифрагированного пучка при падении света на образец под ненулевым углом падения относительно нормали к поверхности (111). В спектрах отражения наблюдается уменьшение относительной интенсивности отраженного излучения при отклонении угла детектирования от зеркального угла [1,2].

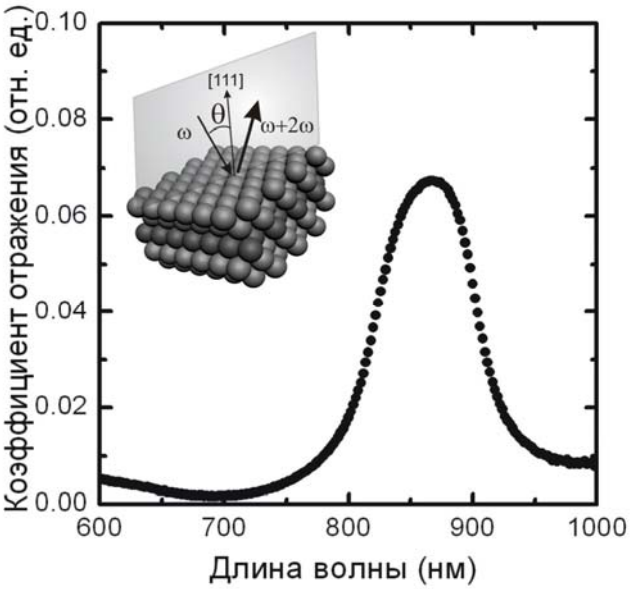


Рис. 2. Спектр отражения композитного фотонного кристалла опал – кремний. Диффузная компонента из спектра вычтена. На вставке – схематическое изображение геометрии линейной и нелинейной дифракции от ростовых слоев опала (111)

Наблюдается сдвиг спектрального положения фотонной запрещённой зоны в длинноволновую область при увеличении значения разности между углом падения и углом детектирования, и в коротковолновую область при уменьшении значения этой разности. Показано, что сдвиг спектрального положения запрещённой фотонной зоны связан с небольшим отклонением нормалей к системе плоскостей [111] относительно ростовой оси.

Исследована трехмерная дифракция света в образцах синтетических опалов при распространении падающего монохроматического излучения вдоль плоскости (111). Показано, что при вращении образца вокруг направления [111] наблюдается обратный дифракционный рефлекс. Исследована спектрально-угловая зависимость интенсивности этого дифракционного рефлекса при вращении образца вокруг направления [111]. Показа-

но, что механизм возникновения дифракции в этого конфигурации обусловлен дифракцией на системе слоев (-111). Обнаружено усиление генерации второй гармоники в трехмерных фотонных кристаллах на основе опалов, заполненных кремнием с фактором заполнения, близким к единице. На рисунке 3 представлен спектр интенсивности второй гармоники (ВГ) при отражении от поверхности (111) фотонных кристаллах на основе опалов, заполненных кремнием.

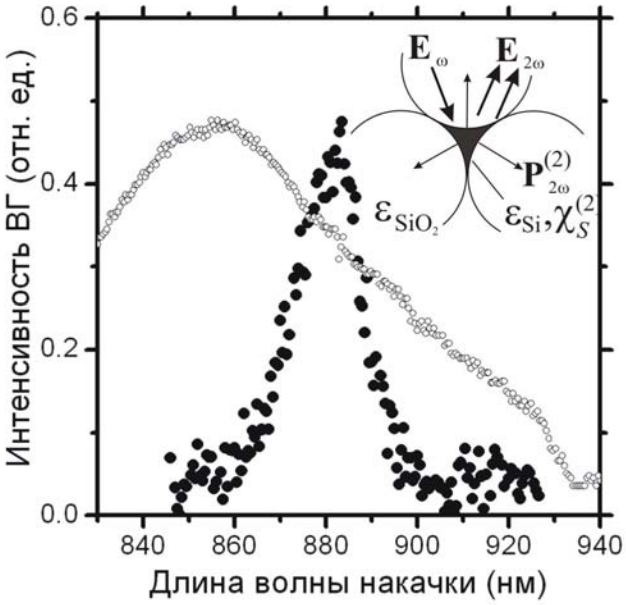


Рис. 3. Спектральная зависимость интенсивности ВГ при отражении от поверхности (111) фотонных кристаллах на основе опалов, заполненных кремнием (черные кружки). Белые кружки – спектр отражения излучения накачки

Спектры интенсивности второй гармоники демонстрируют резонансное усиление примерно в 20 раз при перестройке длины волны накачки через фотонную запрещенную зону, обусловленное нелинейной дифракцией излучения накачки. Полуширина пиков в спектре второй гармоники составляет порядка 10 нм. При увеличении угла падения излучения накачки, пики в спектре интенсивности второй гармоники сдвигаются в коротковолновую область, коррелируя с угловой зависимостью положения фотонной запрещенной зоны. Предложен механизм обнаруженного усиления генерации второй гармоники. Показано, что дифракция излучения накачки на упорядоченной трехмерной диэлектрической решетке фотонного кристалла на основе опала, заполненного кремнием, и нелинейная дифракция на трехмерной решетке квадратичной поляризации приводят к резонансному возрастанию интенсивности генерации второй оптической гармоники при перестройке длины волны накачки через фотонную запрещенную зону.

Зарегистрировано явление нелинейной дифракции на частоте третьей гармоники одновременно в нескольких пространственных направлениях [5]. Усиление интенсивности генерации третьей гармоники составило около одного порядка величины при углах отражения, соответствующих длинноволновым краям фотонных запрещенных зон в направлениях [111] и [-111] в терминах ГЦК решетки. Зависимость интенсивности генерации третьей гармоники от угла положения ФЭУ демонстрируют два пика при углах падения, сдвинутых относительно пиков линейной дифракции. Показано, что угловые положения максимумов нелинейной дифракции третьей гармоники связаны с выполнением условий фазового квазисинхронизма с участием векторов обратной решетки G_{111} и G_{-111}, связанные с системами плоскостей (111) и (-111).

В рамках метода построений сфер Эвальда показано, что угловые положения максимумов интенсивности дифракционных рефлексов в эксперименте по линейной спектроскопии объясняются процессом линейной дифракции на системах плоскостей (111) и (-111). Векторные треугольники, характеризующие дифракцию, замыкаются на векторах G_{111} и G_{-111}. Угловые положения максимумов интенсивностей генерации третьей гармоники объясняются процессом нелинейной дифракции на тех же системах плоскостей. Треугольники квазисинхронизма замыкается на векторах G_{111} и G_{-111}. Утроенный вектор накачки составляет два треугольника, состоящих из векторов третьей гармоники и замыкающихся на векторах обратной решетки G_{111} и G_{-111}. Это означает, что условия квазисинхронизма выполняются сразу для двух векторов обратной решетки, что приводит к возможности наблюдения мультинаправленной генерации третьей гармоники (трехмерной нелинейной дифракции) [5].

Образцы анизотропных фотонных кристаллов изготовлены из пластин высоколегированного кремния кристаллографической ориентации поверхности (110) и сопротивлением 50 мОм см методом электрохимического анодного травления в 22%-ном водном растворе плавиковой кислоты с добавлением этилового спирта. В отсутствии электрического тока кремний устойчив к воздействию плавиковой кислоты. Однако при приложении электрического напряжения между кремнием и платиновым электродом, погруженным в электролит, происходит электрохимическое травление кремния с выделением фторида кремния и водорода, в результате чего в приповерхностном слое монокристаллического кремния образуются случайные углубления, развивающиеся затем в каналы – поры. Выделяющийся при реакции травления водород пассивирует боковые стенки пор, оставляя активным только дно пор. Благодаря этому диаметр пор остается практически постоянным на всей толщине образца. Плотность тока, текущего через дно пор, определяет пористость кремния и, соответственно, его эффективный показатель преломления, а время травления определяет толщи-

ну слоя пористого кремния. Таким образом, периодическое изменение параметров травления – плотности тока и времени травления каждого слоя мезопористого кремния, – позволяет получать одномерные фотонные кристаллы и микрорезонаторы со спектральным положением фотонной запрещенной зоны и разрешенной моды, определяемым оптическими толщинами составляющих их слоев. Для мезопористого кремния, получаемого из пластин высоколегированного кремния, диаметр пор составляет от 10 нм до 100нм, а травление происходит вдоль кристаллографических направлений типа [100]. В случае пластин кремния кристаллографической ориентации поверхности (110) направления [100] и [010] лежат под углом 45 градусов к поверхности. В этом случае поры также ориентированы под углом 45 градусов к поверхности, благодаря чему возникает анизотропия эффективного показателя преломления пленки пористого кремния в плоскости поверхности. Пористый кремний с такой структурой может быть описан в терминах двулучепреломляющего анизотропного кристалла с оптической осью вдоль кристаллографического направления [001].

Исследованные фотонные кристаллы [3,4] состоят из 25 пар слоев мезопористого кремния, полученных при травлении кремния с током плотностью 100 мА/см2 и 28 мА/см2, соответственно. Оптические толщины слоев составляют четверть длины волны от 800 нм, которая определяет центр фотонной запрещенной зоны при нормальном падении света. Эффективные показатели преломления слоев составляют 1.39 и 1.58, соответственно. Микрорезонаторы состоят из двух фотонных кристаллов, каждый из которых образован 12 парами слоев мезопористого кремния, разделенных микрорезонаторным слоем оптической толщины половину длины волны. Аппроксимация спектров отражения одиночных слоев анизотропного мезопористого кремния позволила определить величину анизотропии показателя преломления, составившую 0.07 на длине волны 800 нм.

На рисунке 4 представлены спектры отражения s-поляризованного света и микрорезонатора, измеренные при угле падения 20 градусов для двух значений азимутального угла поворота образца, задающего угол между плоскостью падения и плоскостью (1-10), содержащей оптическую ось фотонного кристалла. Спектр отражения микрорезонатора показывает наличие фотонной запрещенной зоны с коэффициентом отражения порядка 0.85 в диапазоне длин волн от 780 нм до 900 нм и микрорезонаторной моды на длине волны 830 нм. При изменении азимутального угла наблюдается сдвиг положения запрещенной зоны и микрорезонаторной моды. Наибольший сдвиг, составивший порядка 20 нм, наблюдается при повороте образца на 90 градусов, соответствующем повороту оптической оси фотонного кристалла и микрорезонатора от положения в плоскости падения до перпендикулярного ей.

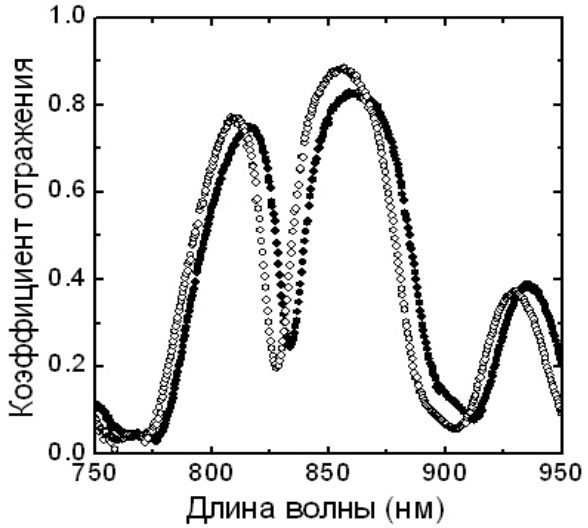


Рис. 4. Спектры отражения s-поляризованного света и микрорезонатора, измеренные при угле падения 20 градусов для двух значений азимутального угла поворота образца, задающего угол между плоскостью падения и плоскостью (1-10)

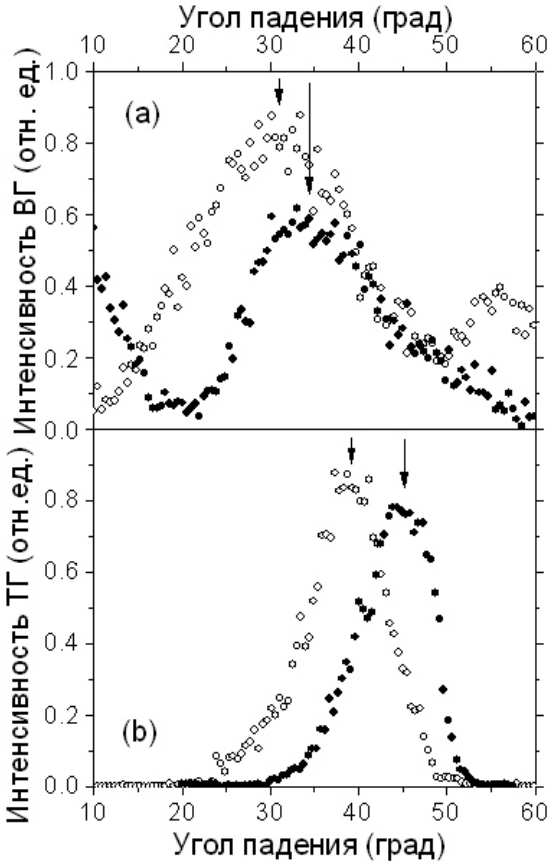


Рис. 5. Угловые зависимости интенсивности второй и третьей оптических гармоник в анизотропных кремниевых фотонных кристаллах. Стрелки указывают значения углов падения излучения накачки, соответствующие максимумам генерации ВГ и ТГ

На рисунке 5 представлены угловые зависимости интенсивности второй и третьей оптических гармоник. Угловые спектры второй гармоники демонстрируют усиление в окрестности углов падения излучения накачки порядка 31 и 35 градусов с полушириной на полувысоте порядка (HWHM) 10 градусов. Угловые спектры третьей гармоники показывают усиление в окрестностях углов падения 39 и 44 градусов с HWHM порядка 5 градусов. Усиление интенсивности ВГ и ТГ составляет не менее 100 и 1000 раз, соответственно и достигается при угловых положениях, соответствующих длинноволновому краю фотонной запрещенной зоны. Наибольший интенсивностный контраст обнаружен в случае генерации третьей гармоники. В зции излучения накачки приводит сти ТГ. Усиление генерации втоловлено выполнению условий фа-

зового квазисинхронизма на краю фотонной запрещенной зоны фотонных кристаллов и микрорезонаторов. Значения когерентных длин генерации ВГ и ТГ для длины волны излучения накачки 1064 нм составляют 1.5 мкм и 200 нм, соответственно, при полной толщине микрорезонатора 9 мкм. Угловые положения максимумов генерации ВГ и ТГ, найденные по оценке угловых положений замыкания треугольников квазисинхронизма, количественно совпадают со значениями, полученными в эксперименте.

Автор выражает глубокую благодарность Акципетрову О.А., Долговой Т.В. и Соболевой И.В. за помощь в проведении экспериментов и Курдюкову Д.А. (ФТИ РАН) за предоставление образцов композитных фотонных кристаллов опал – кремний.

Литература

[1] A.A. Fedyanin, O.A. Aktsipetrov, D.A. Kurdyukov, V. G. Golubev, and M. Inoue, “Nonlinear diffraction and second-harmonic generation enhancement in silicon-opal photonic crystals”, Appl. Phys. Lett. **87**, 151111 (2005).

[2]. A.A. Fedyanin, O.A. Aktsipetrov, D.A. Kurdyukov, V.G. Golubev, and M. Inoue, “Nonlinear diffraction in enhanced second-harmonic generation from 3D opal-Si and opal-GaN photonic crystals”, SPIE Proceedings **5840**, 185 (2005).

[3] О.А. Акципетров, Т.В. Долгова, И.В. Соболева, А.А. Федянин, «Анизотропные фотонные кристаллы и микрорезонаторы на основе мезопористого кремния», Физика Твердого Тела **47**, 150 (2005).

[4] I.V. Soboleva, E.M. Murchikova, A.A. Fedyanin, and O.A. Aktsipetrov, «Second- and third-harmonic generation in birefringent photonic crystals and microcavities based on anisotropic porous silicon», Appl. Phys. Lett. **87**, 241110 (2005).

[5] I.V. Soboleva, S.A. Seregin, A.A. Fedyanin, O.A. Aktsipetrov. “Nonlinear diffraction of second- and third-harmonics in three-dimensional photonic crystals of opals”, Appl. Phys. Lett. (2008), послана в редакцию.

АВТОКОЛЕБАТЕЛЬНАЯ НЕУСТОЙЧИВОСТЬ В ЛАЗЕРАХ С ДВИЖУЩЕЙСЯ ДВУХКОМПОНЕНТНОЙ АКТИВНОЙ СРЕДОЙ

Аспирант *Кузьминский Л.С.*, студентка *Лужинская Ю.В.*,
доцент *Одинцов А.И.*, доцент *Федосеев А.И.*

Проточные лазеры являются примером распределенных нелинейно-динамических систем с инерционной обратной связью, создаваемой движением среды. Для таких систем характерно сложное динамическое поведение, выражающееся в возникновении неустойчивостей, различного вида

автоколебаний и хаоса. Практический интерес к изучению указанных явлений в проточных лазерах связан с разработкой новых методов управления режимами генерации “технологических” лазеров, работающих на смесях газов $(CO_2 : N_2,\ CO : N_2)$ [1,2]. В настоящей работе исследуются качественные особенности возбуждения релаксационных и пролетных автоколебаний в двухкомпонентных смесях.

В расчетах использовалась одномерная геометрооптическая модель неустойчивого резонатора (НР) с поперечным протоком среды и неоднородной внутренней накачкой. В каждой из компонент рассматривается по одному возбужденному уровню, которые обмениваются энергией между собой.

Система уравнений для комплексных амплитуд мод малых возмущений поля и среды в нормированных величинах имеет вид [2]:

$$d\bar{g}_2 / dx = -\left(\bar{\Gamma} + \gamma_2 + W_s + \gamma_{23}\right)\bar{g}_2 + \gamma_{32}\bar{g}_3 - P_s\bar{w}, \tag{1}$$

$$d\bar{g}_3 / dx = -\left(\bar{\Gamma} + \gamma_3 + \gamma_{32}\right)\bar{g}_3 + \gamma_{23}\bar{g}_2, \tag{2}$$

$$(1 - x)(d\bar{w} / dx) = \bar{\Gamma}\tau_c\bar{w} - \bar{g}_2. \tag{3}$$

Здесь $\bar{g}_2$ и $\bar{g}_3$ – возмущения коэффициента усиления лазерно-активной компоненты и населенности возбужденного уровня второй (“энергонесущей”) компоненты, $\bar{w}$ – возмущение поля в резонаторе, нормированное на стационарную интенсивность поля W_s, $P_s = G_{2s}W_s$ – удельная генерируемая мощность, G_{2s} – стационарный коэффициент усиления, γ_2, γ_3, γ_{23}, γ_{32} – константы скоростей релаксации и обмена, τ_c – время затухания поля в НР, $\bar{\Gamma} = \Gamma + i\Omega$ – комплексный инкремент автоколебаний. Координата вдоль потока x нормирована на апертуру резонатора, τ_c и вероятности отнесены ко времени пролета τ_f.

На входе потока в резонатор $(x = 0)$ выполняются граничные условия $\bar{g}_2(0) = 0$, $\bar{g}_3(0) = 0$, на оптической оси НР $(x = 1)$ имеем $\bar{g}_2(1)/\bar{w}(1) = \bar{\Gamma}\tau_c$.

В аналитической модели для слабонеоднородной системы решения уравнений записываются в виде:

$$\bar{g}_2(x) = \bar{g}_{2e}(x) + \bar{g}_{2u}(x),\ \bar{g}_3(x) = \bar{g}_{3e}(x) + \bar{g}_{3u}(x), \tag{4}$$

где $\bar{g}_{2e}(x)$ и $\bar{g}_{3e}(x)$ – квазиоднородные частные решения, $\bar{g}_{2u}(x)$, $\bar{g}_{3u}(x)$ – осциллирующие решения однородной системы (1-2).

Для $\bar{g}_{2e}$ и $\bar{g}_{3e}$ методом итераций получены соотношения [2]:

$$\bar{g}_{2e}(x) = -P_s\bar{w}\left[\bar{\Gamma} + \chi_{23} - \gamma_{23}\gamma_{32} / \left(\bar{\Gamma} + \chi_{32}\right)\right]^{-1}, \tag{5}$$

$$\bar{g}_{3e} = \gamma_{23}\bar{g}_{2e} / \left(\bar{\Gamma} + \chi_{32}\right), \tag{6}$$

где

$$\chi_{23} = \gamma_{23} + \gamma_2 + W_s - (1/P_s)(dP_s / dx),\ \chi_{32} = \gamma_{32} + \gamma_3 - (1/P_s)(dP_s / dx) \tag{7}$$

Функции $\bar{g}_{2u}(x)$ и $\bar{g}_{3u}(x)$ на малых интервалах $x_k \le x < x_{k+1}$ аппроксимируются “локальными” решениями системы уравнений с постоянными коэффициентами. При этом возмущение представляется в виде суперпозиции мод смеси, соответствующих собственным векторам матрицы коэффициентов однородной системы (1-2). В нашем случае двухкомпонентной смеси это моды с синфазными и противофазными колебаниями возмущений компонент. Для первой из них инкремент не зависит от скоростей обмена, и она распространяется в среде с малым затуханием. Противофазная мода имеет более высокую скорость затухания, определяемую суммарной вероятностью обмена $\gamma_{23} + \gamma_{32}$. Учитывается перемешивание мод в неоднородном поле $W_s(x)$. Данный подход может быть обобщен на случай многокомпонентной смеси.

В ряде расчетов производился специальный выбор параметров среды, при которых в стационарном состоянии системы обмен энергией между компонентами отсутствует. В такой искусственно “согласованной” смеси механизм неустойчивости связан исключительно с обменом возмущениями.

На рис.1 представлена пространственная структура моды ПК порядка $m = 11$. Осцилляции возмущения обусловлены “краевой модуляцией” (КМ) усиления на входе потока в резонатор [1]. Анализ кривых показывает, что, за исключением узкой области вблизи $x = 0$, они соответствуют синфазной моде КМ. Сдвиг максимумов кривых соответствует разности

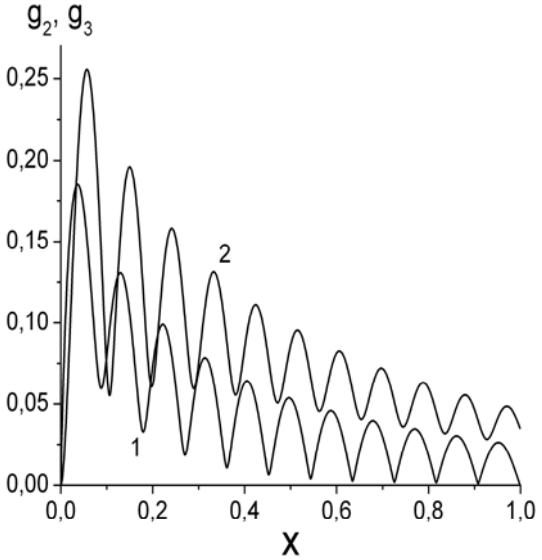


Рис.1. Амплитуды мод возмущений $g_2(1)$ и $g_3(2)$ ПК в смеси $1:3$, $\Gamma = 0.4$, $\gamma_{32} = 20$, $\gamma_{23} = 60$.

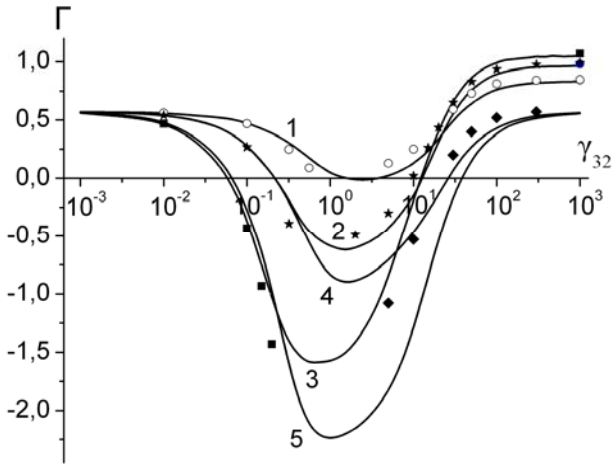


Рис.2. Инкременты ПК $(m = 5)$ в согласованных смесях 1:1 (1), 1:3 (2), 1:10 (3) и в смесях 1:1 (4), 1:3 (5) в отсутствие согласования. Точки – расчет по аналитической модели

фаз величин $\bar{g}_{2e}$ и $\bar{g}_{3e}$, даваемой (6). Для данных рис.1 на входе потока в резонатор противофазная мода имеет преимущество, однако она быстро затухает на длине $x \approx 10^{-2}$.

На рис.2 показаны зависимости инкрементов ПК от скорости обмена для набора смесей. В области слабого обмена $(\gamma_{ik} << W_s,\ \Omega)$ преимущественно возбуждается противофазная мода КМ. При этом прямой поток возмущений $\bar{J}_{23} = \gamma_{23}\bar{g}_2$ приводит к увеличению скорости затухания возмущений в активной компоненте, в то время как обратный поток $\bar{J}_{32} = \gamma_{32}\bar{g}_3$ не играет заметной роли. В средней области $(W_s < \gamma_{ik} \le \Omega)$ возрастает вклад в возмущение медленно затухающей синфазной моды КМ, и одновременно обратный поток возмущений начинает компенсировать действие прямого потока. В результате этого уменьшение инкремента сменяется его ростом и достигается порог неустойчивости. При сильном обмене $(\gamma_{ik} >> \Omega)$ инкременты принимают максимальные значения. В пределе $\gamma_{ik} \to \infty$ двухкомпонентная среда становится подобной однокомпонентной с некоторыми эффективными значениями параметров.

Несмотря на то, что по своему механизму и характеристикам релаксационные колебания (РК) существенно отличаются от пролетных [1, 2], качественная картина влияния процессов обмена возмущениями на эти виды автоколебаний имеет много общих черт. Для РК также является характерным наличие достаточно широкой зоны стабильности стационарной генерации в области малых и средних скоростей обмена $(\gamma_{ik} \le \Omega)$. В этой области процессы обмена приводят к подавлению автоколебаний. Однако, в отличие от ПК, порог возбуждения РК наступает при более высоких скоростях обмена, которые для смеси $CO_2 : N_2$ соответствуют давлениям свыше 100 Тор (ПК могут возбуждаться при парциальных давлениях CO_2 порядка нескольких Тор). Частота РК существенно зависит от скоростей обмена и состава смеси. При $\gamma_{ik} >> \Omega$ она приближается к предельному значению $\Omega_R = \sqrt{\xi}\Omega_0$, где ξ – относительная концентрация активной компоненты смеси, Ω_0 – релаксационная частота.

Литература

1. Одинцов А.И., Саркаров Н.Э., Федосеев А.И. Квантовая электроника. 2006. **36**, N9. С. 853

2. Ануфриева А.А, Кузьминский Л.С., Одинцов А.И., Федосеев А.И. Препринт физического ф-та МГУ им.М.В.Ломоносова, 2006г., N 13/2006.

РЕЛАКСАЦИЯ ЭЛЕКТРОНОВ В ДИЭЛЕКТРИКЕ ПОСЛЕ НАГРЕВА МОЩНЫМ ФЕМТОСЕКУНДНЫМ ИНФРАКРАСНЫМ ИМПУЛЬСОМ: ФОНОННОЕ РАССЕЯНИЕ И ВТОРИЧНЫЕ ЭЛЕКТРОНЫ

Профессор *Васильев А.Н.*, аспирант *Богатырев И.Б.*

В работе проведено теоретическое исследование релаксации электронов в диэлектрике после возбуждения ИК фемтосекундным импульсом во всем объеме кристалла; рассчитаны распределения электронов по энергии на границе кристалла. Разработана модель, позволяющая получить систему рекуррентных интегральных уравнений, преобразующих начальное распределение электронов по энергии во всем объеме кристалла в распределение вылетающих электронов на границе кристалла. В качестве основных каналов релаксации рассмотрены фононное рассеяние и создание вторичных электронов. В результате объяснен механизм образования низкоэнергетичных электронов в экспериментальных спектрах фотоэмиссии и резкий спад на высоких энергиях в распределении по энергии вылетающих электронов.

В модели предполагается, что после окончания фемтоскундного ИК импульса в зоне проводимости диэлектрика появляются нагретые этим импульсом электроны [1] с энергией E в точке z, описываемые функцией распределения $f_0(E,z)$. Такие электроны характеризуются длиной свободного пробега $\lambda_e(E)$ для электрон-электронного рассеяния (если их энергия выше порога электрон-электронного рассеяния) и $\lambda_{ph}(E)$ для электрон-фононного рассеяния. После этих рассеяний распределения по энергии электронов равны $g_e(E';E)$ и $g_{ph}(E';E)$, данные распределения удовлетворяют следующим нормировочным соотношениям:

$$\int_0^E g_e(E';E)dE' = 2 \text{ и } \int_0^E g_{ph}(E';E)dE' = 1.$$

Количество электронов сохраняется в электрон-фононном рассеянии и удваивается в электрон-электронном рассеянии с рождением новой электронно-дырочной пары; упругие рассеяния не учитываются из-за малой концентрации электронов в кристалле с широкой запрещенной зоной. Электрон, созданный в точке z с углом θ между скоростью и осью z, рассеивается в изотропном кристалле в точке z' с вероятностью $\exp\left(\left[\lambda_e^{-1}(E)+\lambda_{ph}^{-1}(E)\right]|z-z'|/\cos\theta\right)$; интеграл по θ может быть выражен через интегральную экспоненту $\mathrm{Ei}(x)$. В полубесконечном кристалле электрон может достигнуть поверхности с вероятностью

$\exp\left(-\left[\lambda_e^{-1}(E)+\lambda_{ph}^{-1}(E)\right]z/\cos\theta\right)$. Поэтому электрон с энергией E в точке z дает следующее распределение электронов по энергии в точке z':

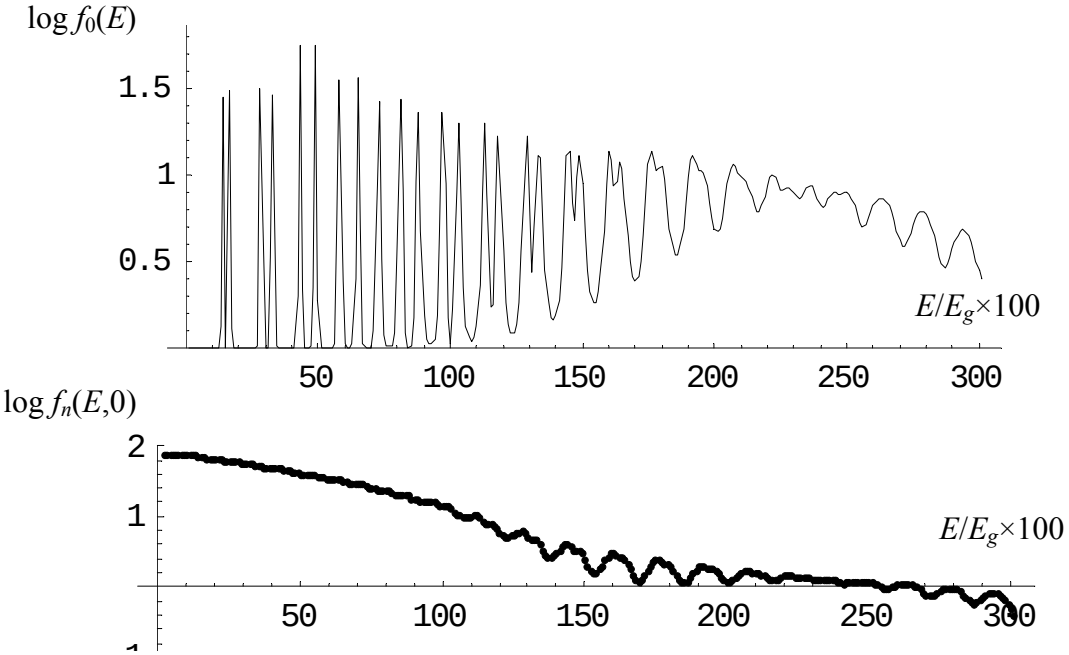
$$K(E',z';E,z)=\frac{\lambda_{ph}^{-1}(E)g_{ph}(E',E)+\lambda_e^{-1}(E)g_e(E',E)}{\lambda_e^{-1}(E)+\lambda_{ph}^{-1}(E)}K_0\left(\left[\lambda_e^{-1}(E)+\lambda_{ph}^{-1}(E)\right]|z-z'|\right)$$

$$K_0(x)=e^{-x}-x\Gamma(0,x)=e^{-x}+x\,\mathrm{Ei}(x). \qquad (1)$$

Пространственное распределение электронов по энергии после n рассеяний описывается следующим рекуррентным соотношением:

$$f_n(E,z)=\int_E^{E_{\max}}dE'\int_0^{\infty}dz'\,K(E,z;E',z')f_{n-1}(E',z') \qquad (2)$$

На основе описанной выше модели релаксации была разработана программа для численной оценки релаксации горячих электронов перед их вылетом из кристалла. Для получения результатов, пригодных для сравнения с экспериментом, мы исследовали эволюцию распределения электронов в диэлектрике после облучения фемтосекундными импульсами различной интенсивности. Изменения в процессе релаксации представлены на рисунке для интенсивности 3ТВт/см^2.



Распределение нагретых электронов по энергии в модели осциллятора [2] сразу после окончания фемтосекундного импульса (левый график) и после вылета с поверхности с учетом релаксации на фононах и с учетом создания вторичных электронов (правый график) для W=3 ТВт/см^2. Энер-

гия фотонов равна 1.55 эВ, ширина запрещенной зоны модельного кристалла E_g=10 эВ.

Литература

[1] H. Bachau, A.N. Belsky, P. Martin, A.N. Vasil'ev, and B.N. Yatsenko, *Phys. Rev*. **B** 74, 235215 (2006)

[2] И.Б. Богатырев, А.Н. Васильев, *Вестник Московского университета*, сер. физика, астрономия, в печати.

ФОТОНИКА НАНОСТРУКТУРИРОВАННЫХ ПОЛУПРОВОДНИКОВ И ДИЭЛЕКТРИКОВ

Доцент *Головань Л.А.*, профессор *Желтиков А.М.*,
профессор *Тимошенко В.Ю.*

Возрастающие потребности в передаче данных требуют создания новых приборов и устройств, позволяющих в широком спектральном диапазоне осуществлять быстрое переключение и изменять частоту сигнала. Дальнейшее развитие таких систем в основном определяется возможностью генерировать, переключать и детектировать оптический сигнал, используя нелинейно-оптические процессы. С другой стороны, современные телекоммуникационные технологии требуют миниатюризации устройств для управления распространением излучения. Однако большинство имеющихся на сегодня нелинейно-оптических кристаллов обладают либо сравнительно малой нелинейной восприимчивостью, но при этом в них возможна большая длина нелинейно-оптического взаимодействия, например за счёт фазового согласования процесса, либо, наоборот, при большой нелинейной восприимчивости длина взаимодействия очень мала и зачастую ограничена несколькими длинами волн. В связи с этим встает необходимость в развитии новых подходов, которые приведут к формированию новых искусственных материалов на основе наноструктур, позволяющих сочетать высокую нелинейную восприимчивость с большой длиной взаимодействия.

Получение и исследование новых материалов с требуемыми структурными и оптическими свойствами представляет собой актуальную задачу современной лазерной физики, решаемую методами нанотехнологии. Для этого тем или иным способом проводится «сборка» нанокристаллов или нанокластеров, электронные и оптические свойства которых определяются их размером и формой. Оптические свойства ансамбля наночастиц будут определяться не только взаимодействием между атомами, но и вза-

имным расположением нанокластеров, а также их объемной долей. Важным примером таких сред являются пористые полупроводниковые и диэлектрические материалы, образующиеся в результате процесса электрохимического травления. Они представляют собой нанокомпозитные среды, образованные пустотами в объеме (порами) и оставшимися после удаления части материала нанокристаллами полупроводника или нанокластерами диэлектрика.

Все вышесказанное объясняет необходимость детального изучения оптических свойств пористых полупроводников и диэлектриков. Указанные материалы, как свидетельствуют результаты недавних исследований, могут обладать высокой эффективной нелинейной восприимчивостью и позволяют осуществить фазовое согласование нелинейно-оптических процессов. Широкое применение могут найти и линейные оптические свойства пористых сред, например двулучепреломление формы. Надо отметить, что важным достоинством устройств на основе пористых полупроводников является возможность легко интегрировать их с существующими полупроводниковыми оптическими и электронными элементами.

С фундаментальной точки зрения пористые полупроводники и диэлектрики, структурные параметры которых можно варьировать в широких пределах, меняя режимы их изготовления, являются хорошими модельными объектами для изучения электродинамики нанокомпозитных сред, в частности исследования влияния таких факторов как квантово-размерный эффект, адсорбция молекул и эффекты локального поля на оптические свойства наносистем. В рамках настоящей работы основное внимание уделяется проявлениям эффектов локальных полей и исследованию возможностей управления с их помощью фотонными свойствами пористых полупроводников и диэлектриков.

Цели настоящей работы заключались в следующем: установить взаимосвязь микроструктуры пористых полупроводников и диэлектриков с их оптическими свойствами и исследовать нелинейно-оптические процессы второго и третьего порядка в пористых полупроводниках и диэлектриках с различными структурными характеристиками.

В качестве объектов исследования были выбраны такие полупроводниковые материалы, как пористый кремний (ПК) и пористый фосфид галлия (ПФГ), а также диэлектрические среды, такие, как окисленный пористый кремний (ОПК) и пористый оксид алюминия (ПОА). Данные материалы составляют бóльшую часть пористых сред, представляющих интерес для фотоники. Важно отметить, что они допускают варьирование как структурных, так и оптических параметров в широких пределах. Так, в зависимости от материала и условий формирования размеры пор и нанокластеров составляют от единиц нанометров до долей микрометра.

Образцы пористых материалов и структур на их основе формировались посредством химического и электрохимического травления. В работе были предложены методы изготовления указанных пористых материалов, а также фотонно-кристаллических структур на их основе. Изучены зависимости структурных параметров (пористости, размеров пор и нанокластеров, формы пор) от режимов травления и особенностей исходных материалов. Так, для ПК возможно формирование пор диаметром от 1 до 100 нм, для ПФГ от 50 до 1000 нм, для ПОА от 10 до 500 нм. Используется следующая классификация пористых сред по размеру пор: 1) микропористые – диаметр пор менее 2~нм, 2) мезопористые – диаметр пор свыше 2 нм, но менее 50 нм и 3) макропористые – диаметр пор свыше 50 нм.

Для ПК размеры пор и остающихся зависят от плотности тока травления, концентрации плавиковой кислоты в электролите и уровня легирования пластины. Известно, что ПК обладает преимущественной ориентацией пор вдоль кристаллографических осей <100>, а упорядоченность пор возрастает с увеличением уровня легирования исходного кристалла кремния [1,2].

Для преодоления такого недостатка ПК, как непрозрачность в видимой области спектра, ограничивающего его применение в оптике, предлагается использовать окисленный пористый кремний, получаемый в результате термического отжига ПК. Получены сведения о режиме такой обработки, позволяющей формировать слои ОПК оптического качества, прозрачные в видимом спектральном диапазоне.

Пористый фосфид галлия формировался при электрохимическом травлении пластин кристаллического фосфида галлия в плавиковой или серной кислотах, размеры пор при этом составляли сотни нанометров. Слои ПОА изготовлялись методом электрохимического травления подложек из фольги алюминия в различных кислотах. Получающийся пористый слой представляет собой набор гексагональных оксидных ячеек, по центру которых проходит полый канал. Расстояние между порами линейно увеличивается с повышением напряжения. Диаметр пор определяется скоростью химического растворения оксида алюминия, которая зависит от используемого электролита. В зависимости от входящей в состав электролита кислоты и ее концентрации диаметр пор варьируется в широких пределах: от 0,01-0,03 мкм для серной кислоты до 0,1-0,5 мкм для винной кислоты.

Для описания оптических свойств микро- и мезопористых материалов применяется приближение эффективной среды [3]. В рамках данного приближения нанокомпозитные системы можно рассматривать как однородные с точки зрения оптики среды. Условием применимости данного приближения является малость размеров неоднородностей по сравнению с длиной волны оптического излучения.

При использовании в качестве подложки сильнолегированного кремния (p^{++}-Si) вследствие преимущественной ориентации пор мезопори-

стый слой, сформированный на поверхности с ориентацией поверхности (110), будет проявлять свойства отрицательного одноосного кристалла, оптическая ось которого совпадает с кристаллографическим направлением [001]. Напротив, мезопористый кремний, сформированный на p^{++}-Si с ориентацией поверхности (100), обладает свойствами положительного кристалла.

Величина двулучепреломления существенным образом зависит от пористости, значение которой определяется в том числе плотностью тока травления. Как видно из рис. 1, увеличение пористости сопровождается уменьшением эффективных показателей преломления для обыкновенной и необыкновенной волн и увеличением величины двулучепреломления $\Delta n = n_o - n_e$, где n_o и n_e – показатели преломления для обыкновенной и необыкновенной волн соответственно. Величина Δn для высокопористых слоев достигала 0,24 в ИК области при средней величине показателя преломления $(n_o + n_e)/2 = 1{,}3$. Отметим, что это значение Δn превышает аналогичную величину для такого естественного кристалла, как исландский шпат ($\Delta n = 0{,}15$).

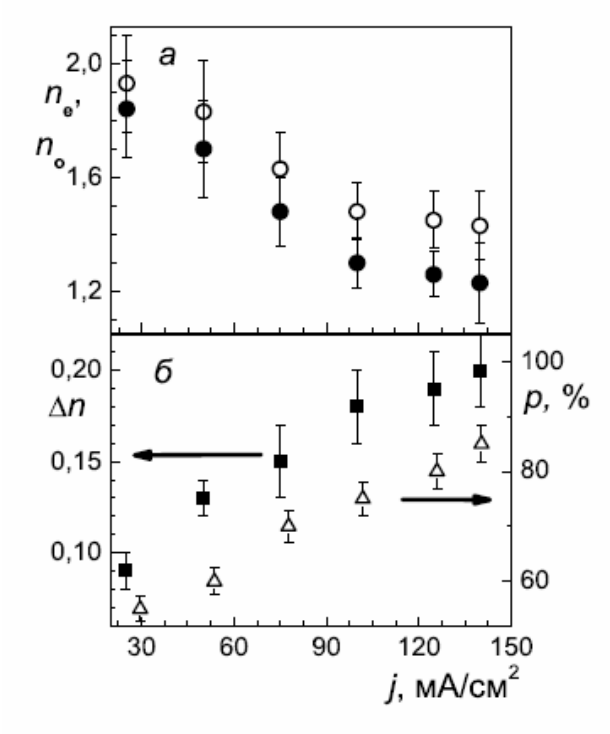


Рис. 1. Зависимости а) показателей преломления мезопористого кремния для обыкновенной и необыкновенной волн (○ и ● соответственно) и б) величины двулучепреломления (■), а также пористости p (△) от плотности тока травления j.

Измеренная экспериментально дисперсия показателей преломления для мезопористого кремния позволила провести сравнение с результатами моделирования, выполненного в рамках обобщенной модели Бруггемана [4], в которой поры с диэлектрической проницаемостью ε_1 и кремниевые нанокристаллы с диэлектрической проницаемостью ε_2 считаются эллипсоидами вращения. В этом случае компоненты тензора эффективной диэлектрической восприимчивости нанокомпозитной среды $\varepsilon_{eff,\,ii}$ находятся из уравнения:

$$p\frac{\varepsilon_1 - \varepsilon_{eff,ii}}{\varepsilon_{eff,ii} + L_i(\varepsilon_1 - \varepsilon_{eff,ii})} + (1-p)\frac{\varepsilon_2 - \varepsilon_{eff,ii}}{\varepsilon_{eff,ii} + L_i(\varepsilon_2 - \varepsilon_{eff,ii})} = 0\,, \qquad (1)$$

где p – пористость, L_i фактор деполяризации, определяемый отношением полуосей эллипсоида, а индекс i нумерует декартову координату.

Сравнение рассчитанных по модели (1) величин показателей преломления с экспериментально найденными показывает, что данная модель дает хорошее описание оптических свойств анизотропных слоев ПК в ближнем и среднем ИК диапазонах (см. рис. 2). Однако данное приближение неприменимо для длин волн видимого диапазона. Это связано с приближением длины волны к размеру нанокристалла и, следовательно, с выходом из области применимости электростатической модели эффективной среды. Более точный анализ требует учета влияния так называемой динамической деполяризации [5], т.е. размера нанокристалла и конечного времени распространения электромагнитной волны в нем, что позволяет, оставаясь в рамках модели эффективной среды, обеспечить лучшую аппроксимацию экспериментально полученных величин показателей преломления.

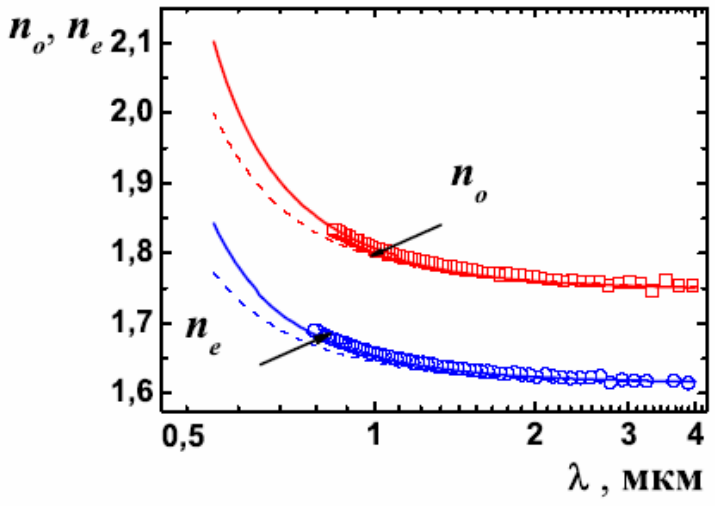


Рис. 2. Дисперсионные зависимости обыкновенной и необыкновенной волн для двулучепреломляющей пленки мезопористого кремния. Штриховые линии – результат аппроксимации в рамках электростатического приближения Бруггемана, сплошные линии — с учетом динамических поправок.

Термическое окисление двулучепреломляющего ПК приводит к формированию прозрачных в видимом диапазоне пленок, также обладающих

двулучепреломлением, хотя его величина на порядок меньше, чем в исходных слоях ПК. Отметим, что по данным структурных измерений ОПК представляет собой аморфную среду. Величина двулучепреломления ОПК возрастает с увеличением пористости. Максимальная величина двулучепреломления ОПК достигается для образца с наибольшей пористостью и составляет Δn =0,025, что более чем в два раза превышает оптическую анизотропию кристаллического кварца [6]. Продемонстрировано также двулучепреломление формы в пористом фосфиде галлия и пористом оксиде алюминия.

Важную часть работы составляет изучение распространения лазерного излучения в макропористом фосфиде галлия. Пористый фосфид галлия отличается высокой величиной показателя преломления, прозрачностью в видимом диапазоне, поры и нанокристаллы в ПФГ имеют размер в сотни нанометров. Все это делает ПФГ одним из самых привлекательных материалов для изучения процессов рассеяния и локализации света.

Образцы ПФГ обладали значительным рассеянием в видимом диапазоне. Динамика рассеяния света в слоях ПФГ была исследована с использованием схемы оптического гетеродинирования [7]. Рост пористости приводит к падению длины свободного пробега фотонов и увеличению времени жизни фотона в пористом слое, т.е. происходит усиление роли локализации света с ростом пористости. Вместе с тем, с увеличением пористости, режим сильной локализации, критерием которого является выполнение условия $kl \leq 1$, где k – волновой вектор, а l – длина свободного пробега фотона, очевидно не достигается.

Нами были детально исследованы возможности достижения фазового синхронизма для процессов генерации второй и третьей гармоник (ВГ, ТГ) лазерного излучения в ПК и генерации ТГ в ОПК. Данные материалы выбраны потому, что обладают сравнительно большой величиной двулучепреломления, а расположение оптической оси в плоскости образца обеспечивает наиболее удобную геометрию эксперимента. Теоретический анализ фазового согласования указанных нелинейно-оптических процессов был основан на развитой модели эффективной среды.

В выполненных расчетах определены условия достижения фазового согласования в слоях ПК и ОПК, результаты которых нашли свое подтверждение в экспериментах. Установлено, что двулучепреломление в мезопористом кремнии слишком велико для осуществления синхронной генерации ВГ, однако заполнение пор диэлектрическими жидкостями, понижающее анизотропию, позволяет добиться фазового согласования при повороте образца вокруг оси, перпендикулярной его оптической оси. Факт достижения фазового синхронизма подтверждается ростом сигнала ВГ при заполнении пор, зависимостью сигнала ВГ от угла падения излучения на образец и из-

менением его поляризационных зависимостей (рис. 3) [8]. Величина двулучепреломления ПК и ОПК оказывается столь велика, что позволяет осуществить фазовое согласование генерации ТГ. На возможность реализации фазового синхронизма в геометрии *ooe-e* указывает теоретический анализ этого процесса с помощью укороченных волновых уравнений, учитывающих модификацию тензора кубической нелинейной восприимчивости. В эксперименте фазовое согласование достигалось при перестройке длины холостой волны параметрического генератора света (ПГС) (1,0-2,1 мкм, 3 нс). В образцах ПК с большим двулучепреломлением удается добиться фазового синхронизма в указанной выше геометрии (рис. 4) при накачке на длине волны 1,635 мкм [9]. В то же время для иных геометрий взаимодействия фазовый синхронизм в исследуемом диапазоне длин волн накачки не достигался.

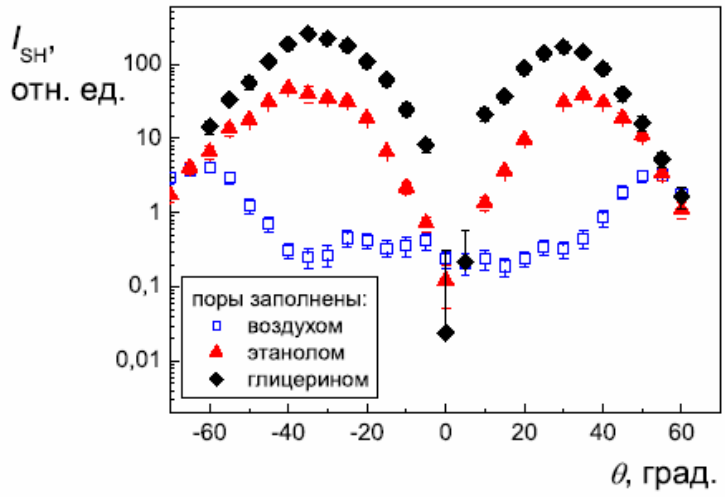


Рис. 3. Зависимости сигнала ВГ от угла падения θ излучения на образец ПК с пористостью 65%. Поры заполнены воздухом (◯), этанолом (▲) и глицерином (♦). Поляризации волны основной частоты и ВГ соответствуют взаимодействию (*oo-e*).

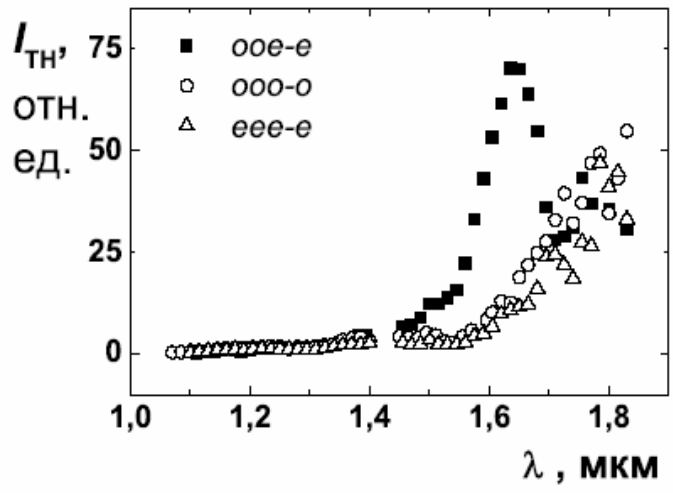


Рис. 4. Зависимости сигнала ТГ от длины волны накачки в различных геометриях взаимодействия для пленки ПК.

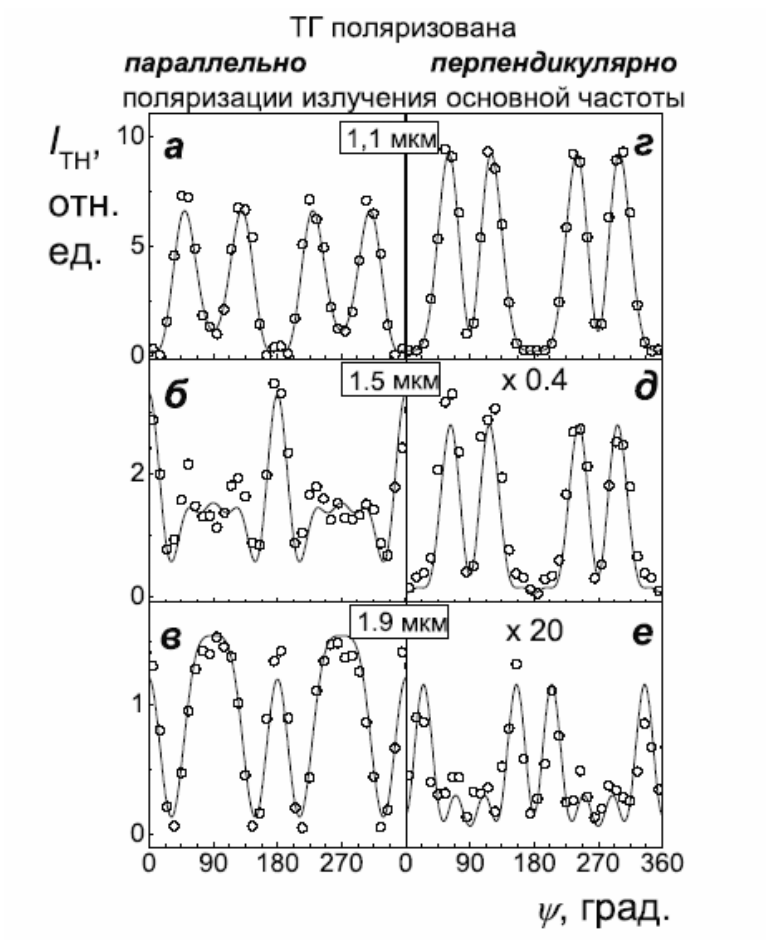


Рис. 5. Ориентационные зависимости сигнала ТГ в ОПК для различных длин волн излучения на основной частоте. Угол 0° соответствует поляризации накачки вдоль кристаллографической оси [001]. Сплошные линии – рассчитанные ориентационные зависимости.

Для двулучепреломляющего ОПК фазовый синхронизм достигается при длине волны накачки 1,1 мкм также при взаимодействии типа *ooe-e*. Достижение режима синхронной генерации ТГ при накачке на данных длинах волн в исследуемых материалах подтверждается изменением вида ориентационных зависимостей ТГ. Для ОПК при изменении длины волны накачки от 1,9 мкм до 1,1 мкм наблюдается рост сигнала ТГ в пять раз в том случае, когда ТГ поляризована параллельно поляризации излучения накачки, и на два порядка, когда ТГ поляризована перпендикулярно поляризации излучения накачки (рис. 5) [6].

Отметим, что в аморфном материале, формирующем ОПК, ТГ должна быть поляризована лишь параллельно поляризации излучения на основной частоте, однако двулучепреломление ОПК и фазовое согласование в нем приводят к генерации ТГ, поляризованной перпендикулярно поляризации накачки. Кроме того, в пользу достижения фазового синхронизма в ПК свидетельствует и зависимость сигнала ТГ от толщины образца. Для обоих материалов результаты расчетов и экспериментальные данные демонстрируют хорошее соответствие.

Анализ свойств симметрии слоев ПК и ОПК, показывает, что данные материалы обладают свойствами кристаллов групп *4/mmm* и ∞/mm и, следовательно, обладают пятью и тремя независимыми ненулевыми компонентами тензора кубической восприимчивости $\chi^{(3)}(3\omega;\omega,\omega,\omega)$ соответственно [10]. Напомним, что для кристаллического кремния $\chi^{(3)}$ имеет две не-

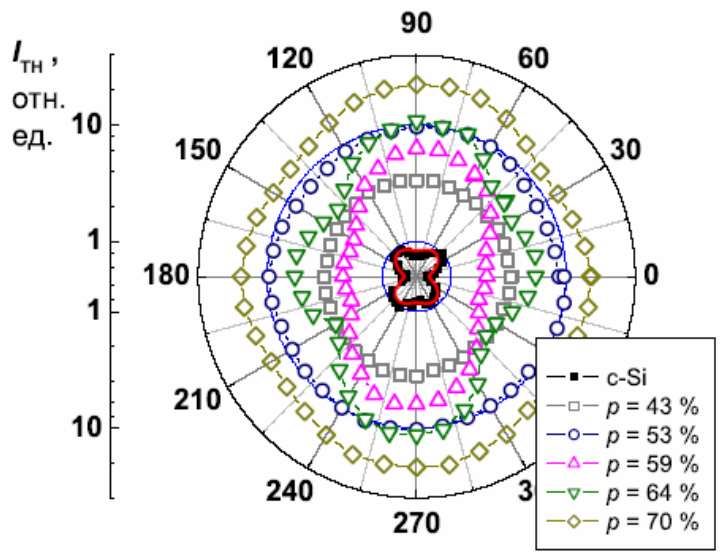


Рис. 6. Ориентационные зависимости сигнала ТГ, генерируемой при отражении от поверхностей кристаллического и мезопористого кремния различной пористости. ТГ поляризована параллельно поляризации накачки. Угол 0° соответствует направлению оптической оси [001].

зависимых компоненты: $\chi^{(3)}{}_{1111}$ и $\chi^{(3)}{}_{1122}$, а аморфный оксид кремния – одну независимую компоненту $\chi^{(3)}{}_{1111} = 3\ \chi^{(3)}{}_{1122}$. Оценки величин $\chi^{(3)}$ пористого кремния в приближении эффективной среды дают:

$$\chi^{(3)}_{eff,ijkl} = f\mathcal{L}_i(\omega)\chi^{(3)}_{ijkl}(\omega;\omega_1,\omega_2,\omega_3)\mathcal{L}_j(\omega_1)\mathcal{L}_k(\omega_2)\mathcal{L}_l(\omega_3)\ , \qquad (2)$$

где f – объёмная доля (фактор заполнения) компонента нанокомпозитной среды, обладающего оптической нелинейностью, а

$$\mathcal{L}_i = (1 + L_i(\varepsilon_{1,ii} - \varepsilon_{2,ii})/\varepsilon_{2,ii})^{-1} \quad - \qquad (3)$$

фактор локального поля. В результате этих оценок мы получаем те же независимые компоненты тензора $\chi^{(3)}(3\omega;\omega,\omega,\omega)$, что и в результате анализа свойств симметрии. Выполненные в рамках этого приближения расчеты предсказывают, что двулучепреломляющий мезопористый кремний должен обладать существенно меньшей величиной кубической восприимчивости, чем кристаллический кремний; с ростом пористости ее величина должна только падать, а различие компонент $\chi^{(3)}{}_{eff,3333}$ и $\chi^{(3)}{}_{eff,1111}$, совпадающих для кристаллического кремния, должно достигать двух порядков для высокопористых образцов.

Эти выводы были проверены в серии экспериментов по генерации ВГ и ТГ в ПК различной степени пористости и размера пор и нанокристалов. Как свидетельствуют результаты этих экспериментов, существенное уменьшении величины $\chi^{(3)}_{eff}$ по сравнению с кристаллическим кремнием происходит только в микропористом кремнии. Мезопористый же кремний отличается ростом эффективности генерации ВГ и ТГ на порядок (см. рис. 6) [11]. Кроме того, при общем росте сигнала ориентационные зависимости сигналов ВГ и ТГ в ПК обладают менее выраженными максимумами и минимумами, чем в кристаллическом кремнии. Определенные из анализа экспериментальных данных отношения $(\chi^{(3)}_{1111} + 3\chi^{(3)}_{1111})/ \chi^{(3)}_{3333}$ лишь качественно совпадают с результатами моделирования. В то же время результаты экспериментов по генерации ТГ в ОПК, нанокластеры которого отличаются заметно меньшим показателем преломления, свидетельствуют о хорошем согласии с моделью эффективной среды.

Для объяснения полученных результатов выдвинута гипотеза о том, что причиной локального возрастания поля является слабая локализация света в результате рассеяния на наночастицах и порах и многократной интерференции рассеянного излучения как на основной частоте, так и на частотах гармоник. В образцах с бóльшим размером пор и нанокристаллов неоднородность поля возрастает, что и объясняет увеличение сигнала ТГ в мезопористом кремнии. В числе причин такого возрастания неоднородности поля можно назвать, например, интерференцию волн, рассеиваемых наночастицами. Микропористый же кремний, напротив, является материалом, который, благодаря тому, что размеры пор и нанокристаллов составляют единицы нанометров, хорошо описывается в рамках электростатического приближения эффективной среды.

Детально изучены особенности нелинейно-оптических взаимодействий в условиях локализации света на эффективность этих процессов. В частности, исследована генерация ВГ и ТГ в многослойных периодических структурах, образованных чередующимися слоями ПК различной пористости. Установлено, что происходит значительное увеличение эффективности процесса генерации ВГ по сравнению как с кристаллическим кремнием, так и с одним слоем ПК. Как видно из рис. 7, эффективность генерации ВГ существенным образом зависит от угла падения излучения на структуру, причем наибольший сигнал достигается для структуры с фотонной запрещенной зоной, приходящейся на длину волны ВГ. Изменение сигнала ВГ при вариации угла падения связано с изменением эффективного периода структуры, который, в свою очередь, обусловливает ее закон дисперсии и возможность достижения в такой структуре фазового синхронизма [12].

Дополнительные возможности достижения эффективного фазового согласования в одномерных фотонно-кристаллических структурах открываются при использовании слоев ПК, обладающих двулучепреломлением. Особый

интерес представляют случаи, когда фотонные запрещенные зоны возникают на основной частоте или частоте гармоники. При этом становится возможным сочетать фазовое согласование, обусловленное как двулучепреломлением слоёв, так и самой структурой, и усиление поля в многослойной структуре. Установлено, что эффективность генерации ВГ и ТГ существенным образом зависит от положения фотонной запрещенной зоны: запрет на распространение излучения на основной частоте или частоте гармоники приводит к подавлению процесса генерации гармоник. В многослойных структурах, сформированных из анизотропных слоев ПК, это проявляется как модификация ориентационных зависимостей сигналов гармоник.

Важную часть работы составляет изучение влияния эффекта слабой локализации света на нелинейно-оптический отклик наноструктурированных сред. Эксперименты продемонстрировали рост эффективности генерации ВГ на слоях ПФГ более чем на порядок по сравнению с кристаллическим GaP [13]. Эффективность данных процессов существенно зависит от длины волны накачки. Как показали эксперименты с использованием ПГС (рис. 8), для длин волн свыше 1,5 мкм сигнал ВГ в ПФГ уступает сигналу ВГ в кристаллическом GaP, что, по крайней мере качественно, согласуется с представлениями приближения эффективной среды. В то же время для мень-

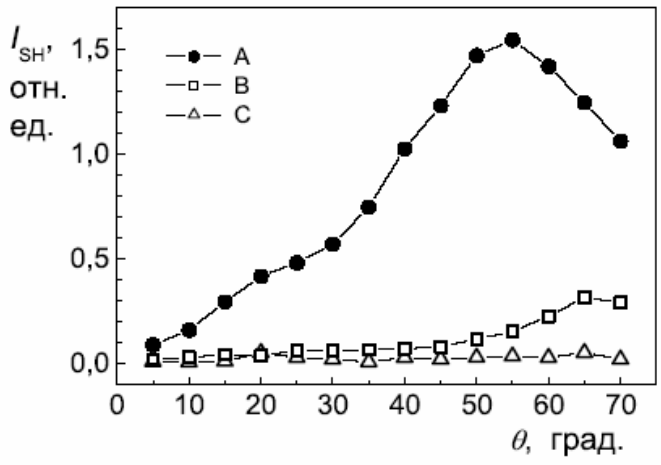


Рис. 7. Зависимости сигнала ВГ от угла падения излучения для многослойных периодических структур с различным периодом.

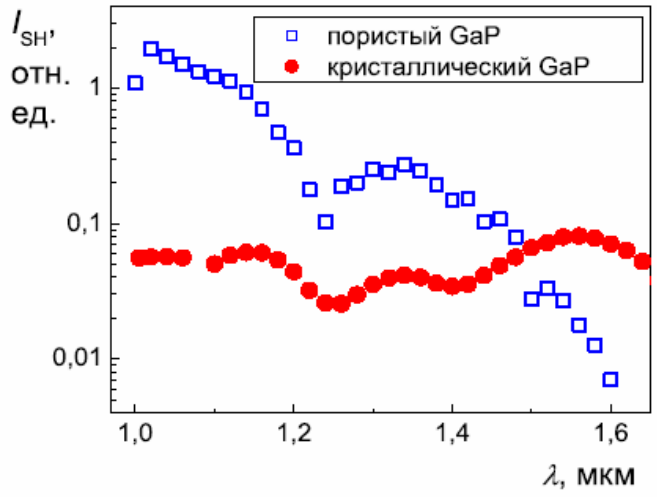


Рис. 8. Зависимости сигнала ВГ в кристаллическом и пористом фосфиде галлия от длины волны излучения накачки.

ших длин волн генерация ВГ в ПФГ оказывается более эффективной, чем в кристаллическом GaP, причем сигнал ВГ возрастает с уменьшением длины волны накачки. Измерения ориентационной зависимости сигнала ВГ свидетельствуют о полной деполяризации последней. Рост сигнала ВГ с увеличением времени жизни фотона в пористом слое согласуется с предположением о достижении случайного фазового квазисогласования [14], в рамках которого нелинейно-оптический сигнал от такой среды как целого может сводиться к сумме нелинейно-оптических сигналов от ее отдельных элементов.

Таким образом, в работе разработаны методы изготовления фотонных структур на основе пористого кремния, окисленного пористого кремния, пористого фосфида галлия и пористого оксида алюминия с анизотропным расположением пор, исследовано явление двулучепреломления формы в них, продемонстрировано достижение фазового согласования для генерации гармоник в слоях пористого кремния и окисленного пористого кремния, установлена зависимость эффективности процессов генерации гармоник в пористом кремнии от среднего размера пор и нанокристаллов, обнаружен рост эффективности генерации оптических гармоник в пористом фосфиде галлия и сделан вывод о связи последнего эффекта со слабой локализацией света в пористом слое.

Литература:

1. Smith R.L., Collins S.D. J. Appl. Phys.– 1992.– V. **70**.– P. R1.
2. Lehmann V. *et al*. Mat. Sci. Eng. B.– 2000.– V. **69-70**.– P. 11.
3. Sipe J.E., Boyd R.W. Topics Appl. Phys.– 2002.–V. **82**.– P. 1–19. Berlin: Springer.
4. Spanier J. E., Herman I. P. Phys. Rev. B.– 2000.–V. **61**.– P. 10437.
5. Mallet P. *et al*. Phys. Rev. B.– 2005.– V. **72**.– 014205.
6. Golovan L. A. *et al*. Phys. Rev. B.– 2006 –V. **73**.– P. 115337.
7. Golovan L. A. *et al*. Appl. Phys. B. – 2005. – V. **81**.– P. 353.
8. Golovan L. A. *et al*. Appl. Phys. B.– 2001.– V. **73**.– P. 31.
9. Заботнов С.В. и др. ЖЭТФ.– 2004.– Т. **99**.– С. 36
10. Zheltikov A.M. Laser Physics.– 2001.– V. **11**.– P. 1024.
11. Golovan L. A. *et al*. Appl. Phys. B.– 2003.– V. **76**.– P. 429.
12. Головань Л.А. и др. Письма в ЖЭТФ.– 1999.– Т. **69**.– С. 274.
13. Головань Л.А. и др. Письма в ЖЭТФ.– 2003.– Т. **78**.– С. 229.
14. Skipetrov S.E. Nature.– 2004.– V. **432**.–P. 285.