

## НАНОТЕХНОЛОГИИ В ОПТИКЕ И ЭЛЕКТРОНИКЕ

УДК 621.373.826

ЛАЗЕРНАЯ ГЕНЕРАЦИЯ В ОПАЛОПОДОБНЫХ  
МОНОКРИСТАЛЛИЧЕСКИХ И ГЕТЕРОСТРУКТУРНЫХ  
ФОТОННЫХ КРИСТАЛЛАХ\*

А. С. Кучьянов, А. И. Плеханов

*Институт автоматизации и электрометрии СО РАН,  
630090, г. Новосибирск, просп. Академика Коптюга, 1  
E-mail: aleks@iae.nsk.su*

Проведено исследование лазерной генерации родамина 6Ж в искусственных опалах, представляющих собой монокристаллические и гетероструктурные плёнки. Изучены спектральные и угловые особенности излучения, пороговые характеристики генерации. В случае, когда родамин 6Ж находился в объёмном опале, наблюдалась так называемая случайная лазерная генерация. В противоположность этому в фотонно-кристаллических опаловых плёнках возникала лазерная генерация, вызванная распределённой обратной связью внутри структуры фотонной запрещённой зоны.

*Ключевые слова:* фотонный кристалл, лазерная генерация, опал, гетероструктура.

DOI: 10.15372/AUT20160612

**Введение.** Потенциальное применение фотонных кристаллов в качестве основы для создания низкопороговых лазеров привлекло внимание исследователей с момента зарождения концепции фотонного кристалла [1]. Данные кристаллы представляют собой пространственные структуры с трёхмерной периодической модуляцией показателя преломления с периодом порядка длины волны видимого света. Хорошо известно [1–4], что эти структуры обладают фотонной запрещённой зоной, т. е. областью таких частот, фотоны которых не могут проникать внутрь среды. Дефекты кристаллической решётки приводят к образованию внутрищелевых фотонных состояний, что может обеспечить сильную обратную связь, необходимую для реализации фотонно-кристаллического лазера. С фотонными кристаллами связывают будущее современной кибернетики. В настоящее время идёт интенсивное изучение их свойств, разработка теоретических методов исследования, создание различных устройств с этими кристаллами. Что касается беспороговых лазеров, то из-за сложности изготовления высококачественных трёхмерных фотонных кристаллов с полной фотонной запрещённой зоной они не реализованы до сих пор, поэтому целью данной работы было получение и исследование лазерной генерации в тонких фотонно-кристаллических плёнках.

Впервые лазероподобная эмиссия в фотонных кристаллах наблюдалась в [5]. В настоящее время появляются экспериментальные исследования по получению вынужденного излучения на основе объёмных фотонных кристаллов [6, 7]. В тонких плёнках опала, а также в гетероструктурных фотонных кристаллах лазерная генерация практически не изучалась. В сравнении с объёмными опалами тонкие плёнки имеют такие преимущества, как монокристаллическость, гораздо более низкая плотность дефектов (на несколько порядков).

В данной работе использовались плёнки фотонных кристаллов с неполной шириной запрещённой зоны как резонаторы с распределённой обратной связью для достижения низко-

\*Работа выполнена при поддержке Президиума РАН (программы № 1 и № 17).

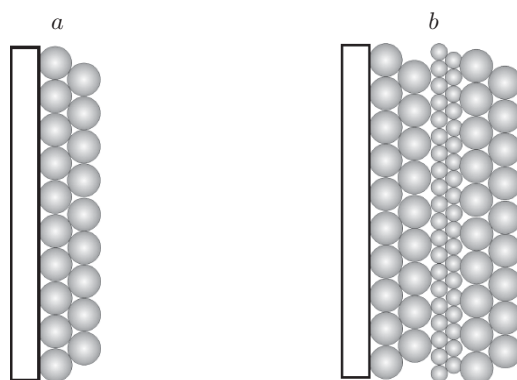


Рис. 1. Схематичное изображение опалоподобных плёнок: монокристаллической (a) и гетероструктурной (b)

пороговой лазерной генерации. В объёмных фотонных кристаллах (искусственных опалах) может возникать так называемая случайная генерация, связанная с рассеянием света на дефектах решётки [8]. В предлагаемой работе порог лазерной генерации в тонких опаловых монокристаллических плёнках благодаря распределённой обратной связи брэгговского отражения света примерно в 5 раз меньше, чем порог случайной генерации в объёмных фотонных кристаллах.

**Изготовление искусственных опалоподобных моно- и гетероструктур.** Создание структур с фотонной запрещённой зоной осложняется тем, что период модуляции показателя преломления должен быть того же порядка, что и длина волны распространяющегося света. Существует потенциально простой и дешёвый метод изготовления таких структур на основе самосборки сферических частиц кремнезёма под действием сил гравитации [9]. Метод обеспечивает создание искусственного объёмного опала, однако количество дефектов в таких опалах является довольно значительным, что затрудняет его использование в различных устройствах. Более эффективный способ изготовления опалоподобного фотонного кристалла с минимальным количеством нежелательных дефектов заключается в кристаллизации коллоидного золя при медленном движении мениска в течение испарения [10, 11]. Этот метод позволяет добиться высокого качества монокристаллической плёнки с отражением света 95 % в запрещённой зоне. Также он предоставляет возможность изготовления гетероструктур с помощью последовательного нанесения плёнок из частиц с разными диаметрами. Были исследованы синтетические объёмные опалы (размерами  $3 \times 3 \times 3$  мм) и тонкие опаловые монокристаллические и гетероструктурные плёнки ( $10 \times 10$  мм). Плёнка монокристаллического опала (рис. 1, a) состоит примерно из 20 слоёв сферических частиц  $\text{SiO}_2$  диаметром 260 нм. Частицы упакованы в гранцентрированные кубические кристаллоподобные структуры. Гетероструктуры содержат три разные опалоподобные плёнки. Диаметр частиц в наружном слое составляет 260 нм, а во внутреннем — 235 нм (рис. 1, b). Фотонные кристаллы пропитаны спиртовым раствором красителя родамин 6Ж с концентрацией  $10^{-3}$  моль/л. Чтобы избежать образования паразитного лазерного резонатора, из плёнки красителя на поверхности фотонного кристалла раствор инфильтрировался под действием капиллярных сил, начиная от края образца.

**Эксперимент.** Образцы, пропитанные красителем родамин 6Ж, накачивались пикосекундными импульсами второй гармоники Nd:YAG-лазера ( $\lambda = 532$  нм). Длительность импульса составляла 9 пс с частотой повторения 5 Гц и энергией до 50 мкДж/импульс, расходимость луча накачки в плоскости образца —  $5 \cdot 10^{-3}$  рад. Образец был установлен на поворотной платформе в центре гониометра (рис. 2) таким образом, чтобы лазерный луч пересекал образец по оси гониометра. Это позволяет изменять во время эксперимента как угол падения луча возбуждения, так и угол наблюдения. Излучение от фотонного кристал-

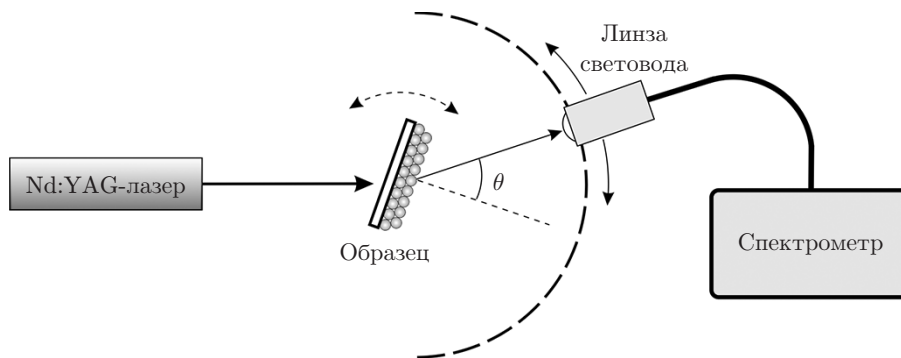


Рис. 2. Схема экспериментальной установки ( $\theta$  — угол между поверхностью образца и направлением наблюдения)

ла собиралось коллимационной линзой, размещённой на гониометре на расстоянии 15 см от образца, а затем передавалось через оптический волновод на вход спектрометра типа AvaSpec-2048 ТЕС фирмы "Avantes". Угловое разрешение составляло около  $1^\circ$ , спектральное во всех измерениях — 0,5 нм. Излучение накачки второй гармоники Nd:YAG-лазера отрезалось с помощью оптического фильтра OS-12 с коэффициентом пропускания около 90 % в области 540–700 нм. Спектр оптического излучения усреднялся по 100 импульсам.

*Объёмный опал.* На рис. 3 показан типичный спектр излучения объёмного опала, пропитанного родамином 6Ж. При энергиях накачки ниже порога 3,2 мкДж видна широкополосная (на полувысоте 40 нм) фотолюминесценция красителя (кривая 2). Увеличение интенсивности накачки приводит к сужению линии до 6–10 нм с центром в точке  $\lambda = 572$  нм (кривая 1). На вставке представлена зависимость выходной интенсивности лазерной генерации от энергии накачки. Пороговая энергия накачки равна 3,2 мкДж (или 13 МВт/см<sup>2</sup>). Резкий компонент спектра совпадает с максимумом люминесценции красителя в опале. Лазерное излучение распространяется в широкий угол ( $\sim \pi/2$ ). Его поляризация была близка к хаотичной. Такой тип генерации ранее наблюдался в суспензии родамина 6Ж с рассеива-

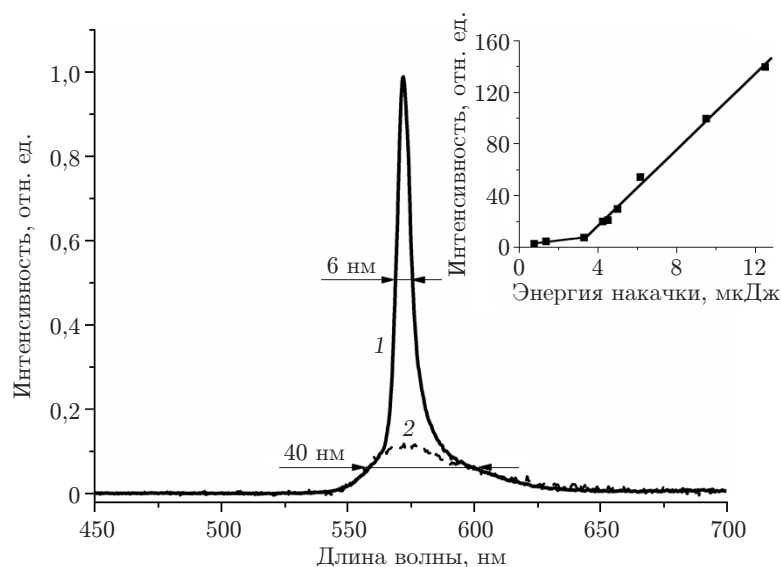


Рис. 3. Спектр лазерного излучения родамина 6Ж, инфильтрированного в объёмный опал, выше порога генерации (кривая 1), широкополосное излучение люминесценции ниже порога генерации (кривая 2). На вставке показана зависимость интенсивности излучения от энергии накачки

ющими частицами  $\text{TiO}_2$  микронного размера при лазерной накачке [12], а затем в искусственных опалах, легированных родамином 6Ж [5]. Это известно как случайная лазерная генерация, вызванная значительным количеством рассеивателей, содержащихся в активной среде. В таком типе лазеров обратная связь образуется не за счёт концевых зеркал, а благодаря случайному рассеянию внутри активной среды. Отметим, что искусственный опал может содержать значительные дефекты (домены, дефекты упаковки местной гексагональной структуры и др.). Спектральное положение узкой линии излучения коррелирует с пиком фотолюминесценции инфильтрированного красителя и не имеет никакого отношения к стоп-зоне фотонного кристалла. Случайный режим генерации подтверждается нашими экспериментами с большим (1 мм) и малым (100 мкм) диаметрами луча накачки. Ширина линии излучения для луча большего поперечного сечения увеличивается в несколько раз в сравнении с узким лучом. Аналогичная зависимость наблюдалась в [11].

*Монокристаллические опалоподобные плёнки.* Тонкие опалоподобные плёнки изготавливались методом подвижного мениска [10]. В отличие от объёмных искусственных опалов они обладают высоким качеством и содержат примерно на два порядка меньше дефектов структуры [11]. Исследуемая опалоподобная плёнка состояла из 20 слоёв сферических частиц кремнезёма. Изучались пороговые характеристики лазерной генерации таких плёнок, пропитанных красителем родамином 6Ж. Порог генерации составлял 0,64 мкДж или  $2,5 \text{ МВт/см}^2$ , что примерно в 5 раз меньше, чем пороговое значение случайной генерации в объёме опала. Спектр излучения лазера показан на рис. 4.

Нами наблюдались как широкая полоса люминесценции красителя, так и узкая (5 нм) линия генерации. Спектральное положение последней находилось на длине волны 579 нм, не совпадало со спектральным положением максимума линии люминесценции красителя и определялось положением края стоп-зоны фотонного кристалла (пунктирная линия на рис. 4). В данном случае несовпадение является не случайной лазерной генерацией, а лазерной генерацией, задаваемой распределённой обратной связью, образованной фотоннокристаллической средой. Наблюдается сужение линии генерации до 2–3 нм, когда образец возбуждался энергией намного выше пороговой.

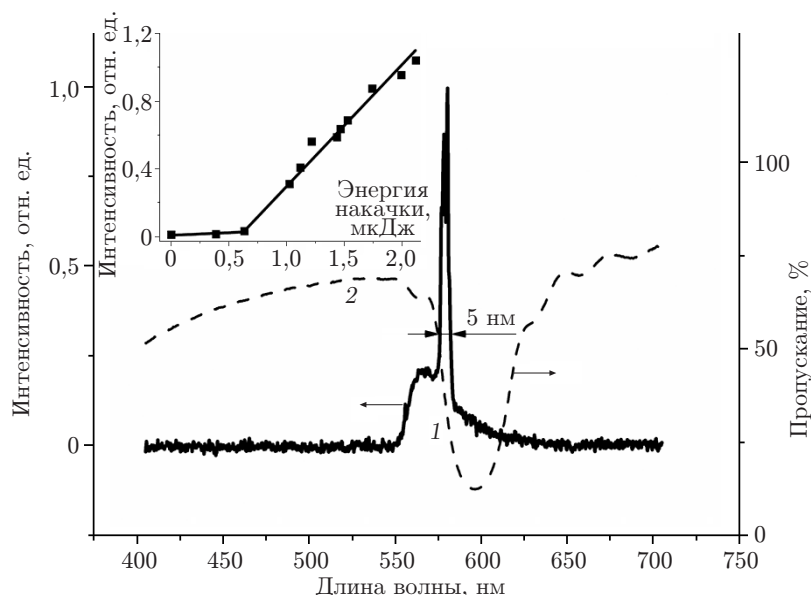


Рис. 4. Спектр лазерного излучения родамина 6Ж, инфильтрированного в плёнку монокристаллического опала, выше порога генерации (кривая 1), спектр пропускания плёнки (кривая 2). На вставке показана зависимость интенсивности выходного излучения от энергии накачки

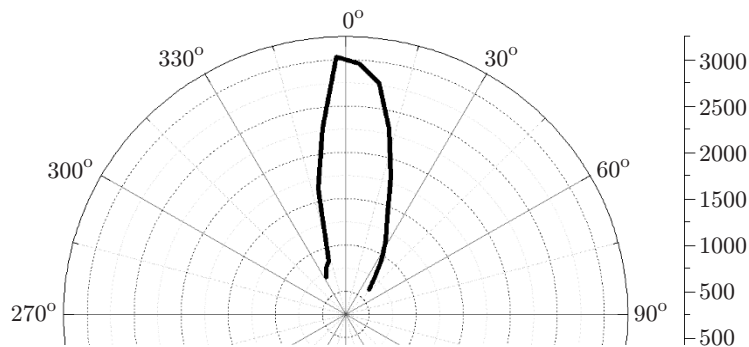


Рис. 5. Угловая зависимость лазерного излучения родамина 6Ж, инфильтрированного в плёнку монокристаллического опала, выше порога генерации

На рис. 5 показана угловая зависимость интенсивности лазерного излучения родамина 6Ж, инфильтрированного в плёнку монокристаллического опала, на длине волны 579 нм. Диаметр пятна от лазера накачки составляет 1 мм. Угол измеряется от нормали к поверхности образца, что соответствует плоскости [111] опаловой решётки. Угловая ширина этой зависимости, по-видимому, определяется углом, в котором выполняется условие брэгговского отражения. Действительно, для формирования полной запрещённой зоны в средах на основе опаловых матриц необходимо обеспечить высокий диэлектрический контраст (отношение диэлектрических проницаемостей сферических частиц кремнезёма и вещества, заполняющего пространство между ними), превышающий 2,8. В нашем случае контраст  $\text{SiO}_2$  — воздух составляет 1,45. По этой причине полная запрещённая зона в подобных структурах формируется только в пределах 8 % полного телесного угла дифракции. В фотонных кристаллах зависимость длины волны отражённого света  $\lambda$  от угла падения  $\varphi$  выражается формулой  $\lambda = 1,63d\sqrt{n^2 - \sin^2 \varphi}$ , где  $n$  — эффективный показатель преломления фотонного кристалла,  $d$  — диаметр сферических шариков, составляющих фотонный кристалл. Аналогичная зависимость будет справедлива для люминесценции, исходящей из глубины кристалла (рис. 6). Видно, что при ширине спектра генерации 5 нм угловая расходимость ограничена  $3^\circ$ .

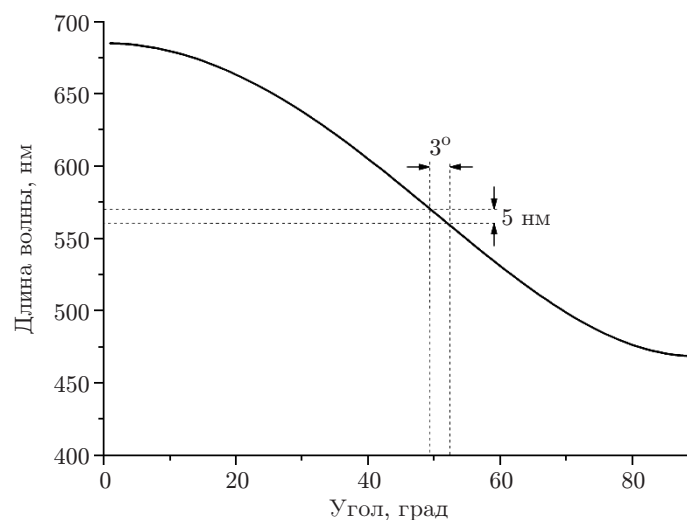


Рис. 6. Зависимость длины волны света, отражённого от фотонного кристалла, от угла падения,  $d = 250$  нм

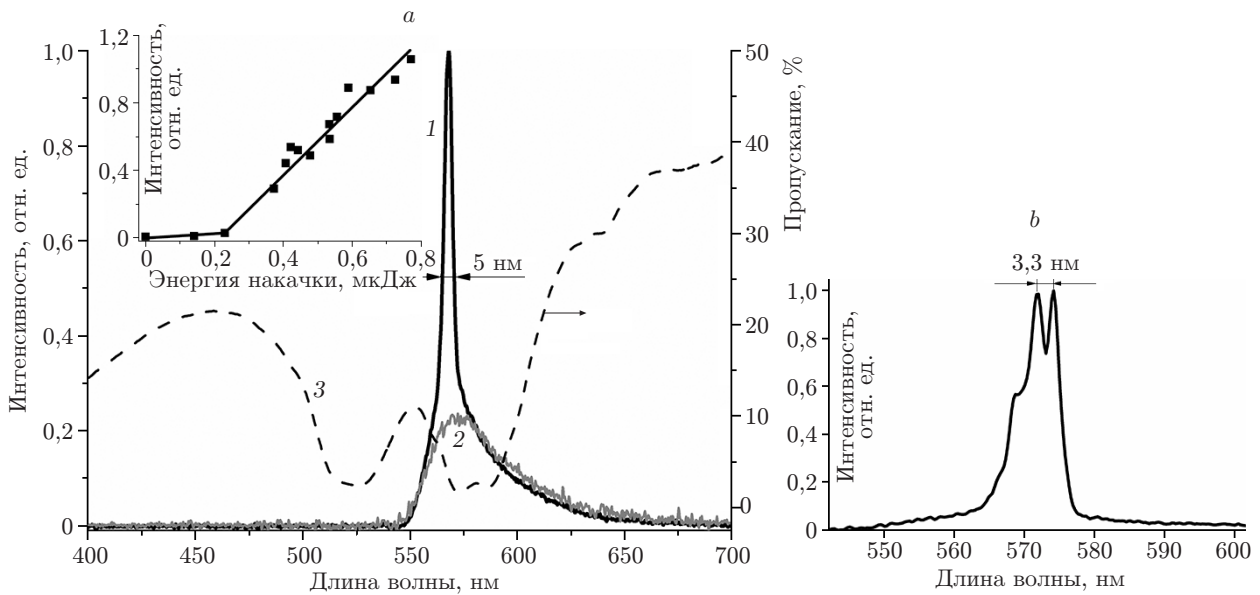


Рис. 7. Спектр лазерного излучения родамина 6Ж, инфильтрированного в плёнку опалоподобной гетероструктуры: *a* — выше порога генерации (кривая 1), ниже порога (кривая 2), спектр пропускания трёхслойной гетероструктуры (кривая 3), на вставке показана зависимость интенсивности выходного излучения от энергии накачки; *b* — при накачке узким (100 мкм) пучком

*Опалоподобные гетероструктуры.* Метод подвижного мениска позволяет различным фотонно-кристаллическим плёнкам кристаллизоваться друг на друге, образуя так называемые гетероструктуры. Они могут иметь несколько стоп-зон из-за различий в постоянных решётки. Нами использовались трёхслойные гетероструктуры со следующими диаметрами частиц: 260, 235 и 260 нм [10]. Спектр пропускания такой плёнки (рис. 7, *a*, кривая 3) показывает две ширины запрещённой зоны, одна из которых соответствует внутреннему слою с диаметром частиц кремнезёма 235 нм, а другая — наружному (260 нм).

Внешние слои гетероструктуры имеют максимумы стоп-зоны отражения, близкие к максимуму люминесценции красителя, и образуют резонатор. Обнаружено уменьшение в 3 раза порога генерации для гетероструктур, легированных родамином 6Ж, в сравнении с монокристаллическими опалоподобными плёнками. При превышении энергией накачки порогового значения 0,23 мкДж (или 0,86 МВт/см<sup>2</sup>) начинается лазерная генерация с шириной линии ~ (3–5 нм) на длине волны 568 нм (см. рис. 7, *a*, кривая 1). Спектральный пик лазерной генерации расположен на краю запрещённой зоны, которая перекрывается полосой фотолюминесценции красителя. При энергиях возбуждения ниже порога наблюдается лишь широкополосное свечение красителя (см. рис. 7, *a*, кривая 2). Можно отметить, что в случае гетероструктур спектральная ширина линии генерации не зависит от диаметра пучка накачки в отличие от объёмных опалов при возбуждении широким (1 мм) и узким (100 мкм) лазерными лучами (с одинаковыми интенсивностями). Тем не менее для узкого пучка накачки лазера спектр содержит тонкую структуру (рис. 7, *b*), обусловленную модами резонатора, образованного внешними плоскостями фотонно-кристаллических плёнок. Расстояние между пиками структуры 3,3 нм соответствует резонатору с эффективной длиной 50 мкм. Исчезновение такой структуры при возбуждении широким пучком можно объяснить несовершенством внутреннего слоя плёнки площадью 1 мм<sup>2</sup>. Расходимость лазерного луча была того же порядка, как и в ситуации с монокристаллической опалоподобной плёнкой.

**Заключение.** В данной работе получен и исследован режим генерации в объёмных искусственных опалах, монокристаллических опалоподобных плёнках искусственного опала,

легированных красителем родамин 6Ж, при накачке пикосекундными импульсами второй гармоники Nd:YAG-лазера. Такая генерация вызвана брэгговской дифракцией внутри фотонного кристалла, связанной с периодичностью пространственной структуры опалоподобной плёнки. Спектральное положение максимума лазерной генерации всегда находится на границе стоп-зоны фотонного кристалла. Порог интенсивности накачки в этом случае составлял около  $2,5 \text{ МВт/см}^2$ . Впервые получена лазерная генерация в трёхслойной опалоподобной гетероструктуре, когда порог уменьшается в 3 раза в сравнении с монокристаллической плёнкой. Обнаружено влияние внешних поверхностей плёночной структуры на спектральные особенности генерации. Выявлено существование случайной генерации из-за рассеяния света внутри объёмного опала. Порог генерации для родамина 6Ж в объёмном опале равен  $13 \text{ МВт/см}^2$ . Случайная генерация в синтетических объёмных опалах всегда достигает пика в максимуме люминесценции красителя независимо от спектрального положения стоп-зоны.

### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. **Yablonovitch E.** Inhibited spontaneous emission in solid-state physics and electronics // *Phys. Rev. Lett.* 1987. **58**, N 20. P. 2059–2062.
2. **John S.** Strong localization of photons in certain disordered dielectric superlattices // *Phys. Rev. Lett.* 1987. **58**, N 23. P. 2486–2489.
3. **Joannopoulos J. D., Villeneuve P. R., Fan S.** Photonic crystals: Putting a new twist on light // *Nature.* 1997. **386**, Is. 6621. P. 143–149.
4. **Кучьянов А. С., Плеханов А. И., Spisser H., Чубаков П. А.** Анизотропия деформации решётки фотонного кристалла как основа высокочувствительных селективных оптических хемосенсоров // *Автометрия.* 2014. **50**, № 2. С. 77–83.
5. **Frolov S. V., Vardeny Z. V., Zakhidov A. A., Baughman R. H.** Laser-like emission in opal photonic crystals // *Opt. Commun.* 1999. **162**, Is. 4–6. P. 241–246.
6. **Shkunov M. N., DeLong M. C., Raikh M. E. et al.** Photonic versus random lasing in opal single crystals // *Synthetic Metals.* 2001. **116**, Is. 1–3. P. 485–491.
7. **Алимов О. К., Басиев Т. Т., Орловский Ю. В. и др.** Преобразование люминесценции лазерных красителей в вынужденное излучение в опаловой матрице // *Квантовая электроника.* 2008. **38**, № 7. С. 665–669.
8. **Летохов В. С.** Генерация света рассеивающей средой с отрицательным резонансным поглощением // *ЖЭТФ.* 1968. **53**, вып. 4. С. 1442–1452.
9. **Serdobintseva V. V., Kalinin D. V., Danilyuk A. F.** Mechanism of structural ordering of monodisperse spherical silica particles in concentrated alcohol suspensions // *React. Kinet. and Catal. Lett.* 1999. **67**, Is. 1. P. 143–147.
10. **Плеханов А. И., Калинин Д. В., Сердобинцева В. В.** Нанокристаллизация монокристаллических плёнок опала и плёночных опаловых гетероструктур // *Российские нанотехнологии.* 2006. № 1. С. 233–239.
11. **Vlasov Yu. A., Bo X.-Zh., Sturm J. C., Norris D. J.** On-chip natural assembly of silicon photonic bandgap crystals // *Nature.* 2001. **414**, Is. 6861. P. 289–293.
12. **Lawandy N. M., Balachandran R. M., Gomes A. S. L., Sauvain E.** Laser action in strongly scattering media // *Nature.* 1994. **368**, Is. 6470. P. 436–438.