

## Светоуправляемый сдвиг стоп-зоны в синтетических опалах, заполненных оптически нелинейным раствором красителя\*

А.М.Гончаренко, Г.В.Синицын, А.В.Ляхнович, М.И.Самойлович, С.П.Апанасевич, М.А.Ходасевич, Ю.А.Варакса, Т.Т.Басиев, Ю.В.Орловский

*Экспериментально исследован светоиндуцированный нелинейный отклик в синтетических опалах на основе SiO<sub>2</sub>, заполненных этанольным раствором красителя. При возбуждении образцов излучением с плотностью мощности ~ 10 Вт/см<sup>2</sup> зарегистрированы изменения пропускания и отражения, связанные со светоиндуцированным динамическим сдвигом стоп-зоны фотонного кристалла. Рассмотренные синтетические опалы могут использоваться при разработке оптических затворов и светоуправляемых переключателей.*

**Ключевые слова:** опаловидные наноматрицы, фотонные кристаллы, оптическая нелинейность, оптические переключатели.

Достижения в области технологии изготовления опаловидных наноматриц (ОНМ) на основе SiO<sub>2</sub> позволяют получать структуры из плотноупакованных, периодически повторяющихся сфер аморфного SiO<sub>2</sub> диаметром 100–800 нм. Значительный объем пустот между сферами (от 24 % в нормальных опалах до 76 % в инверсных) позволяет заполнять ОНМ другими веществами, например такими, которые эффективно изменяют их оптические характеристики. В частности, введение неорганических и органических жидкостей в наноразмерные пустоты в опалах позволяет в десятки раз уменьшить рассеяние света, суперфлюоресценцию и другие процессы на границах раздела сфер SiO<sub>2</sub> и пустот и тем самым увеличивать оптическое пропускание. Кроме того, большой интерес представляет возможность создания на основе опаловидных материалов новых сред с ярко выраженными нелинейно-оптическими свойствами. Наличие фотонной запрещенной зоны (ФЗЗ), или стоп-зоны, важно для возможных применений фотонных кристаллов и ОНМ в оптических системах обработки и передачи информации [1, 2]. Комбинация резкого изменения пропускания/отражения образцов ОНМ в области стоп-зоны с оптической нелинейностью заполняющего их материала может способствовать созданию перспективных оптических переключающих устройств с улучшенными энергетическими и временными характеристиками (см., напр., [3]).

В настоящей работе приводятся экспериментальные угловые и температурные зависимости пропускания

пластинок (образцов) ОНМ на основе SiO<sub>2</sub>, заполненных этанольным раствором красителя метиловый красный, а также светоиндуцированные изменения этого пропускания под воздействием низкоинтенсивного лазерного излучения.

В экспериментах использовались образцы толщиной 0.5–1.5 мм и площадью 0.5–2 см<sup>2</sup> опаловидных структур на основе наносфер SiO<sub>2</sub> диаметром 200–300 нм. Исследованные образцы изготовлены в ОАО ЦНИТИ «Техномаш» (Россия). В качестве возбуждающего и зондирующего излучения использовалось непрерывное и модулированное по мощности излучение аргонового лазера на длинах волн  $\lambda = 488$  и 514 нм, а также излучение He–Ne-лазера на  $\lambda = 632$  нм. Данные условия являлись определяющими при выборе спектрального положения центра стоп-зоны и спектральной области максимальной нелинейности заполняющей среды. Принималось во внимание и присущее сравнительно толстым образцам опаловидных структур большое диффузное рассеяние, затрудняющее как измерение спектров пропускания опалов, так и моделирование оптических переключателей с использованием прошедшего светового излучения. Рассеяние связано с различием показателей преломления составляющих решетку наноматрицы сфер SiO<sub>2</sub> ( $n = 1.37$ ) и заполненных воздухом пор ( $n = 1$ ). В связи с этим основная часть измерений выполнялась при погружении (иммерсировании) матриц в этанол с  $n = 1.361$ . Этанол впоследствии использовался и в качестве растворителя красителя, вводимого в ОНМ.

В первую очередь измерялись спектральные характеристики исследуемых образцов, необходимые для оценки их качества и уточнения начальных условий для выполнения исследований температурных и светоиндуцированных изменений в них. Измерения проводились в прошедшем световом потоке по общепринятым методикам на модифицированном спектрофотометре PV 1251B («Солар», Белоруссия).

Рис.1 иллюстрирует угловую зависимость спектрального положения стоп-зоны для образца опаловидной структуры, отобранного для последующего возбуждения излучением на  $\lambda = 488$  нм и зондирования пробным

\* Доложена на Международной конференции «Оптика лазеров-2006» (С.-Петербург, Россия, июнь 2006).

А.М.Гончаренко, Г.В.Синицын, А.В.Ляхнович, С.П.Апанасевич, М.А.Ходасевич, Ю.А.Варакса. Институт физики им. Б.И.Степанова НАНБ, Белоруссия, 220072 Минск, пр. Независимости, 68; e-mail: g.sinitsyn@ifanbel.bas-net.by

М.И.Самойлович. ОАО Центральный научно-исследовательский технологический институт «Техномаш», Россия, 121108 Москва, ул. Ивана Франко, 4

Т.Т.Басиев, Ю.В.Орловский. Научный центр лазерных материалов и технологий Института общей физики им. А.М.Прохорова РАН, Россия, 119991 Москва, ул. Вавилова, 38; e-mail: orlovski@Lst.gpi.ru

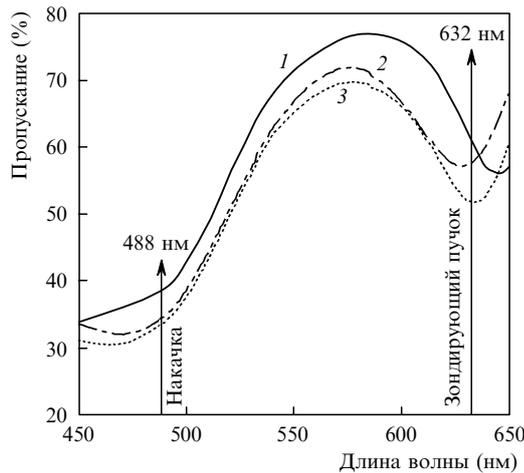


Рис.1. Спектры пропускания образца синтетического опала на основе  $\text{SiO}_2$ , иммерсированного в этаноле, для углов падения  $0$  (1),  $+9^\circ$  (2) и  $-7^\circ$  (3).

пучком с  $\lambda = 632$  нм. Общая тенденция сдвига спектрального положения стоп-зоны в коротковолновую область при уходе от нормального падения излучения согласуется с литературными данными [4] и коррелирует с общей физической картиной формирования спектральных характеристик объемного брэгговского отражателя. Заметные на рисунке изменения пропускания, а также глубины стоп-зоны могут быть обусловлены прохождением луча через различные объемные области недостаточно однородного по структуре искусственного опала толщиной 1.5 мм при изменении угла наклона и, как следствие, вовлечением различных наборов монодоменных областей в формирование спектральной характеристики образца.

Исследуемые образцы ОНМ состоят из наноглобул  $\text{SiO}_2$  и характеризуются малой собственной нелинейностью. Для придания образцам ОНМ заметных нелинейных свойств на данном этапе исследований поры матрицы заполнялись этанольным раствором красителя. Тип красителя подбирался в соответствии с длиной волны возбуждения. В частности, для сине-зеленой области спектра использовался краситель метиловый красный. Концентрация красителя должна быть не слишком высокой, чтобы не вызывать существенного ослабления мощности проходящего излучения. В то же время поглощение лазерного излучения введенным красителем должно быть достаточным, чтобы приводить к локальному разогреву раствора в зоне засветки и соответствующему температурному изменению показателя преломления раствора в матрице. Величина и знак наведенной рефракции определяются температурной зависимостью показателя преломления этанола с коэффициентом  $dn/dT = -4 \times 10^{-4} \text{ K}^{-1}$ .

Нелинейный отклик ОНМ моделировался изменением температуры при нагреве образца тепловым источником и его охлаждении. На целевых длинах волн возбуждения проведены исследования температурных зависимостей пропускания, которые позволяют оценить влияние нелинейности на спектральные и амплитудные характеристики образцов, заполненных этанолом. На рис.2 представлены результаты измерений для образца ОНМ, имеющего спектральное положение стоп-зоны в области 0.5 мкм. Видно, что с увеличением температуры происходит уширение стоп-зоны и сдвиг минимума пропускания в коротковолновую сторону в соответствии с темпе-

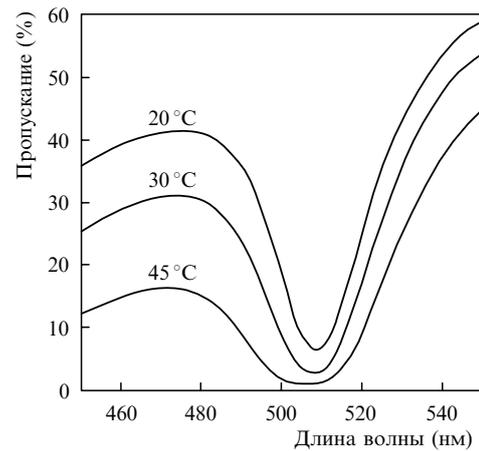


Рис.2. Температурные зависимости спектров пропускания образцов синтетических опалов на основе  $\text{SiO}_2$ , иммерсированных в этаноле. Стоп-зоны образцов расположены в спектральной области вблизи 510 нм.

ратурной зависимостью показателя преломления среды, заполняющей ОНМ. Сдвиг контура пропускания является одним из наиболее существенных условий реализации режимов оптического переключения и ограничения.

Исследование нелинейно-оптических свойств иммерсированных ОНМ проводилось путем регистрации передаточных характеристик в отраженном и прошедшем свете при возбуждении образцов прямоугольными импульсами излучения с  $\lambda = 488$  нм и плотностью мощности от единиц  $\text{Вт/см}^2$  до десятков  $\text{кВт/см}^2$ . В соответствии со спектральными характеристиками выбранного типа образца (см. рис.1) использовалось зондирующее излучение гелий-неонового лазера ( $\lambda = 632$  нм). Пробный пучок не модулировался, имел мощность не более 1 мВт (т.е. существенно меньшую, чем мощность возбуждающего пучка) и не вызывал существенного изменения пропускания образцов. Оптическая схема нелинейно-оптических измерений показана на рис.3.

Образец устанавливался на угломерном поворотном столике, что обеспечивало возможность настройки спектрального положения стоп-зоны относительно длины волны зондирующего излучения путем наклона опаловидной наноматрицы. Объектив с фокусным расстоянием в диапазоне 60–400 мм обеспечивал создание требуемого уровня плотности мощности возбуждения. Излучение, прошедшее через образец, и отраженное излу-

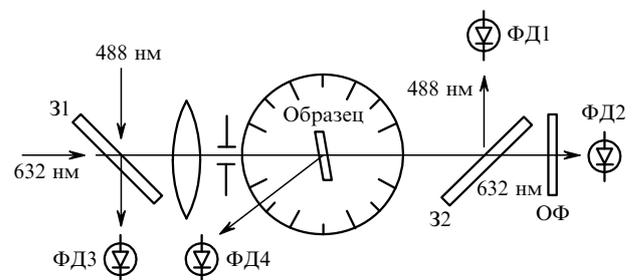


Рис.3. Схема эксперимента по измерению индуцированных излучением  $\text{Ar}^{3+}$ -лазера изменений пропускания образца, зондируемого излучением He-Ne-лазера. Образец синтетического опала на основе  $\text{SiO}_2$  иммерсирован в этанольном растворе красителя метиловый красный; ФД1–ФД4 – фотодиоды; 31, 32 – дихроичные зеркала с максимумом отражения на  $\lambda = 490$  нм; ОФ – отсекающий фильтр на  $\lambda = 550$  нм.

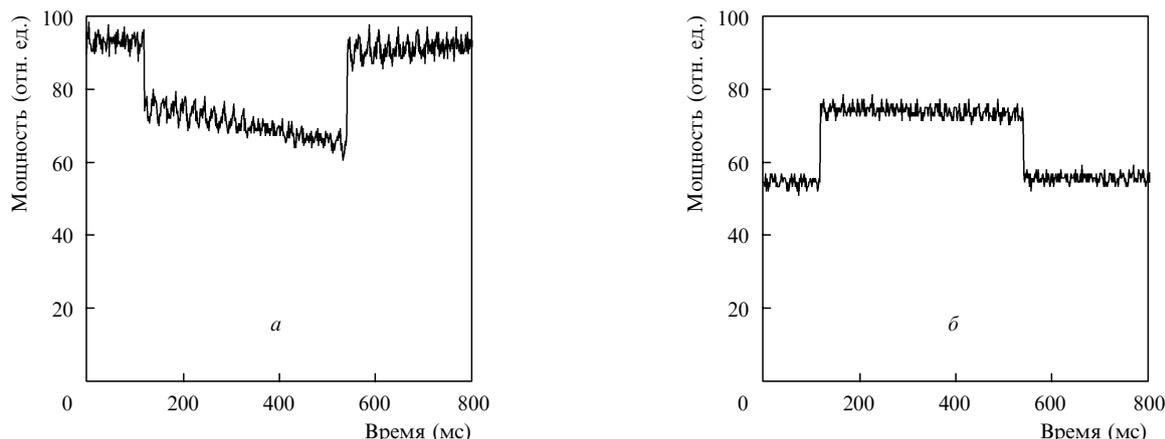


Рис.4. Изменение пропускания образца синтетического опала на  $\lambda = 632$  нм (зондирующий пучок He–Ne-лазера) при возбуждении излучением аргонного лазера на  $\lambda = 488$  нм (светоиндуцированное переключение); указанная длина волны зондирующего пучка соответствует коротковолновому (а) и длинноволновому (б) склонам стоп-зоны.

чение зондирующего пучка регистрировались соответственно фотоприемниками ФД2 и ФД3. Перед последним при необходимости устанавливался фильтр, подавляющий остаточное излучение на длине волны возбуждения. Фотоприемник ФД4 обеспечивал контроль формы и измерение мощности возбуждающего излучения, а ФД1 использовался для регистрации кинетики этого излучения после прохождения через образец.

Образцы с предварительно заполненными порами матрицы помещались на поворотный столик в закрытой кювете и были погружены в раствор. Возбуждению подвергались участки образца, выступающие над раствором. Такой подход препятствовал быстрому испарению этанола из пор ОНМ и, кроме того, позволял исключить вовлечение в нелинейное взаимодействие раствора, который для полностью иммерсированного образца располагался бы между стенкой кюветы и поверхностью образца.

На рис.4,а показано изменение пропускания на  $\lambda = 632$  нм образца ОНМ, спектры которого приведены на рис.1. Наблюдаемые фронты интенсивности зондирующего пучка соответствовали фронтам прямоугольного импульса возбуждения. Начальные условия отвечают спектру 1 на рис.1, когда длина волны пробного пучка находится на коротковолновом склоне стоп-зоны. Плотность мощности возбуждения на  $\lambda = 488$  нм составляла  $\sim 35$  Вт/см<sup>2</sup>. В схеме формирования воздействующего излучения (см. рис.3) линза была исключена, диаметр диафрагмы был равен 0.5 мм. Некоторая изрезанность наблюдаемых сигналов объясняется электрическими наводками на входные цепи регистрирующей аппаратуры.

Видно, что наряду с оптически управляемой модуляцией, которая достигает 20 %, при указанной плотности мощности возбуждения уже заметными становятся сравнительно медленные изменения пропускания, приводящие к снижению уровня сигнала как в зондирующем, так и в прошедшем возбуждающем пучках. Эти изменения могут быть связаны с рядом физических процессов, таких как наведенная тепловая линза в образце, интенсивное испарение растворителя из зоны возбуждения и даже локальное его вскипание. Наклон кривой, представленной на рис.4,а, вызван, по всей видимости, теми же механизмами, что и общее «проседание» спектрального контура пропускания на рис.2. В нашем случае важно оп-ределить суммарное воздействие подобных процессов и

по возможности исключить их искажающее влияние на режим оптического переключения в подобных системах.

На рис.4,б показана кинетика изменения мощности зондирующего излучения при его наклонном падении. В этом случае положение стоп-зоны таково, что длина волны пробного пучка в ходе модуляции попадает на ее длинноволновый склон (исходный спектр примерно соответствует кривой 3 на рис.1). Амплитуды зарегистрированных сигналов на рис.4,а и б нормированы одинаково и относятся к разным склонам контура пропускания. Плотность мощности возбуждения в случае рис.4,б составляла  $\sim 20$  Вт/см<sup>2</sup>, глубина модуляции была равна  $\sim 30$  %. Видно, что образец характеризуется более высоким контрастом переключения при более низком начальном пропускании. Для указанной плотности мощности долговременное падение пропускания становится практически несущественным. Оценка сдвига спектрального контура стоп-зоны, связываемая с изменением пропускания, составляет  $\sim 10$  нм и приближается к достаточной для реализации устройств управления оптическими сигналами. В то же время при практическом применении ОНМ в таких устройствах желательно использовать образцы с большей крутизной краев стоп-зоны.

При дальнейшем повышении плотности мощности возбуждающего пучка наблюдается значительное превышение медленных изменений пропускания ОНМ над амплитудой импульса переключения (рис.5), что связано, скорее всего, с превышением температуры кипения раствора в объеме, прогреваемом лазерным пучком.

Регистрация кинетики проводилась в тех же условиях, что и ранее, но с использованием фокусирующей линзы в оптической схеме. Благодаря фокусировке диаметр возбуждаемой области поверхности образца составлял 20 мкм, а плотность мощности достигала нескольких кВт/см<sup>2</sup>. Начальное положение длины волны пробного пучка соответствовало спектральной области, приближающейся ко дну стоп-зоны с коротковолновой стороны. Видно, что, начиная с плотностей мощности порядка сотни Вт/см<sup>2</sup>, попытки повышения контраста переключения путем простого увеличения возбуждающей мощности приводят к резкому росту влияния сравнительно медленных изменений пропускания ОНМ. В результате такие изменения пропускания могут многократно превысить амплитуду переключения и свести к нулю контраст переключения.

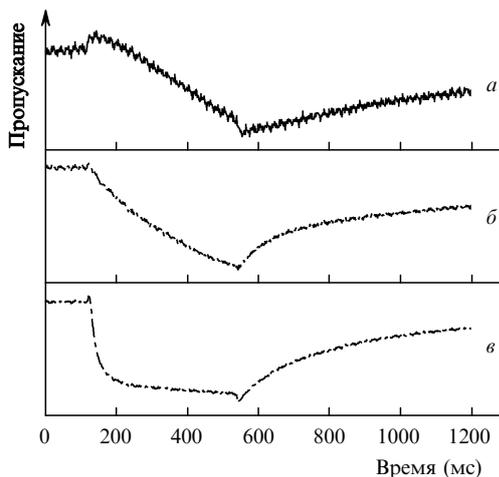


Рис.5. Изменение пропускания образца синтетического опала при долговременном воздействии возбуждающего излучения с интенсивностью 75 (а), 150 (б) и 500 Вт/см<sup>2</sup> (в).

С целью оптимизации условий проявления нелинейного отклика в системах на ОНМ нами были измерены диаграммы угловых спектров отражения для поверхностей роста ОНМ (нормальных к оси [111] кубической гранцентрированной решетки) как со стороны ростовой поверхности, так и со стороны, обращенной к подложке в технологическом процессе изготовления образцов. Спектры регистрировались для серии длин волн монохроматического излучения лазеров на  $\text{Ag}^{3+}$  и  $\text{He-Ne}$  (476.5, 488, 514.5 и 632.8 нм). Указанные зависимости измерялись также после дополнительной полировки данных поверхностей.

По результатам измерений определены зависимости от длины волны излучения ассоциируемого со стоп-зоной оптимального угла отражения, при котором достигается максимальный контраст пика интенсивности в диаграмме углового распределения отраженного и рассеянного излучения. В частности, для длины волны излучения 488 нм при угле падения  $30^\circ$  измеренное значение контраста составило 15. Угловая ширина пика не превышала  $10^\circ$ . Интегральная мощность излучения в пике углового распределения достигала 35 % от падающей на образец.

Экспериментально зарегистрирована корреляция оптимального угла отражения и угловой ширины пика для излучения, коротковолнового по отношению к запрещенной зоне. Для длинноволнового излучения (632.8

нм) характер отражения существенно изменяется. Угловой профиль пика отражения с большой точностью соответствует профилю падающего пучка, а при больших углах падения (превышающих  $35^\circ$ ) появляется размытый рассеянием дополнительный дифракционный пик в окрестности половинного угла падения.

Вполне понятны критерии качества образцов ОНМ, соответствие которым будет способствовать более сильному нелинейному отклику. Эти критерии учитывают остроту пика отражения на диаграмме направленности и контраст данного пика по отношению к фоновому (рэлеевскому) рассеянию. Оптимизация образцов предусматривает упорядочение их структуры, снижение дисперсии размеров наносфер, составляющих матрицу, а также тщательное согласование периода решетки фотонного кристалла, показателей преломления матрицы и заполняющей среды с длиной волны возбуждающего излучения.

Таким образом, в настоящей работе экспериментально зарегистрирован светоиндуцированный динамический сдвиг стоп-зоны опаловидной наноматрицы на основе  $\text{SiO}_2$ , заполненной этанольным раствором красителя метиловый красный, при возбуждении низкоинтенсивными импульсами излучения аргонового лазера. Выделены два механизма наведенного изменения пропускания ОНМ и сдвига контура его стоп-зоны с существенно различающимися временными характеристиками. Реализован режим переключения сигнального светового пучка в ОНМ при воздействии импульсами управляющего излучения с плотностями мощности  $\sim 10$  Вт/см<sup>2</sup>.

Проведенные исследования позволяют надеяться на перспективность применения ОНМ, заполненных нелинейными средами, для разработки и совершенствования элементной базы систем оптической обработки информации, включая оптические модуляторы, ограничители, бистабильные элементы, мультиплексоры/демультиплексоры.

Работа выполнена при частичной финансовой поддержке Белорусского республиканского фонда фундаментальных исследований (гранты № Ф04Р-150, Ф05БР-006).

1. Joannopoulos J.D., Villeneuve P.R., Fan S. *Nature*, **386**, 143 (1997).
2. Fleming J.G., Lin S.-Y. *Opt. Lett.*, **24**, 49 (1999).
3. Mazurenko D.A., Akimov A.V., Pevtsov A.B., Kurdyukov D.A., Golubev V.G., Dijkhuis J.I. *Physica E*, **17**, 410 (2003).
4. Comoretto D., Cavallo D., Dellepiane G., Grassi R., Marabelli F., Andreani L., Brabec C., Andreev A., Zakhidov A., in *Mater. Res. Soc. Symp. Proc.* (2002, Vol. 708, p. BB10.19.1).