

**О ГЕНЕРАЦИИ ЛАЗЕРНОГО ИЗЛУЧЕНИЯ В ОПАЛЕ,
НАСЫЩЕННОМ ОРГАНИЧЕСКИМ КРАСИТЕЛЕМ РОДАМИН 6Ж****Е.А. Вошинский¹, В.С. Горелик²**¹Физический институт им. П.Н. Лебедева РАН, Москва
e-mail: evotshinsky@mail.ru;²МГТУ им. Н.Э. Баумана, Москва
e-mail: gorelik@sci.lebedev.ru

Выполнены наблюдения лазерной генерации в глобулярном фотонном кристалле, насыщенном красителем Родамин 6Ж. Получены спектры вторичного излучения образца опала с диаметром глобул 240 и 260 нм, насыщенного красителем Родамин 6Ж, при различных схемах эксперимента. Во всех рассмотренных случаях отмечено сужение спектральной полосы, а также рост интенсивности вторичного излучения относительно возбуждающего, что свидетельствует о переходе от спонтанного излучения к индуцированному. Возможность лазерной генерации также подтверждается проведенными теоретическими оценками.

Ключевые слова: лазер, генерация, опал, родамин 6Ж, фотонный кристалл.

**ON LASER EMISSION IN OPAL DOPED
WITH THE RHODAMINE 6G ORGANIC DYE****Е.А. Voshchinsky¹, V.S. Gorelik²**¹Lebedev Physical Institute, Russian Academy of Sciences, Moscow
e-mail: evotshinsky@mail.ru;²Bauman Moscow State Technical University, Moscow
e-mail: gorelik@sci.lebedev.ru

Observations of laser emission in the globular photonic crystal doped with the Rhodamine 6G dye are conducted. The secondary emission spectra are obtained with different experiment schemes for a sample of the Rhodamine 6G dye-doped opal with globules 240 and 260 nm in diameter. It is noted in all investigated cases that the spectral band got narrow and the intensity of the secondary emission increased with respect to exciting emission, which testifies to the transfer from the spontaneous emission to the induced one. The feasibility of laser emission is also confirmed by the performed theoretical estimations.

Keywords: laser, emission, opal, Rhodamine 6G, photonic crystal.

Введение. Глобулярные фотонные кристаллы (ГФК) — это объекты, состоящие из периодически расположенных в пространстве глобул с диаметром, сравнимым с длиной волны света видимого диапазона. Примером ГФК является искусственный опал. Опаловая матрица, представляющая собой фотонный кристалл, приобретает уникальные свойства при введении в ее межглобулярные пустоты оптически активных веществ. Недавно [1, 2] была обнаружена возможность наблюдать генерацию лазерного излучения в опалах, насыщенных органическими красителями, такими как Родамин 6Ж. В работе [2] на опаловой матрице, заполненной органическими красителями, при импульсном

наносекундном лазерном возбуждении был реализован режим лазерной генерации без внешнего оптического резонатора с низким порогом. В настоящей работе ставилась задача получения лазерной генерации в опале при непрерывном возбуждении полупроводниковыми светодиодами.

Схема эксперимента. Измерение спектров люминесценции и направленного излучения проводилось на специально собранной для этого установке (рис. 1). Краситель растворяли в этиловом спирте с концентрацией 10^{-5} г/см³, полученный раствор заливали в кварцевую кювету толщиной $d = 10$ мм, куда помещалась опаловая матрица размером $2 \times 10 \times 5$ мм. Спектральное положение стоп-зоны, измеренное по спектру пропускания, находится в области длин волн 540–590 нм, а ее максимум — в районе 570 нм при диаметре сфер SiO₂, примерно равных 280 нм. Измерения проводились после полного заполнения пор опаловой матрицы раствором красителя, а кювета располагалась так, чтобы избежать паразитных отражений.

С помощью широкополосного источника света находили участок поверхности опала с ярко выраженной стоп-зоной (она проявляется интенсивным пиком отражения). Затем с помощью полупроводниковых светодиодов возбуждали найденный участок поверхности образца. Использование многожильного зонда позволило обеспечить эффек-

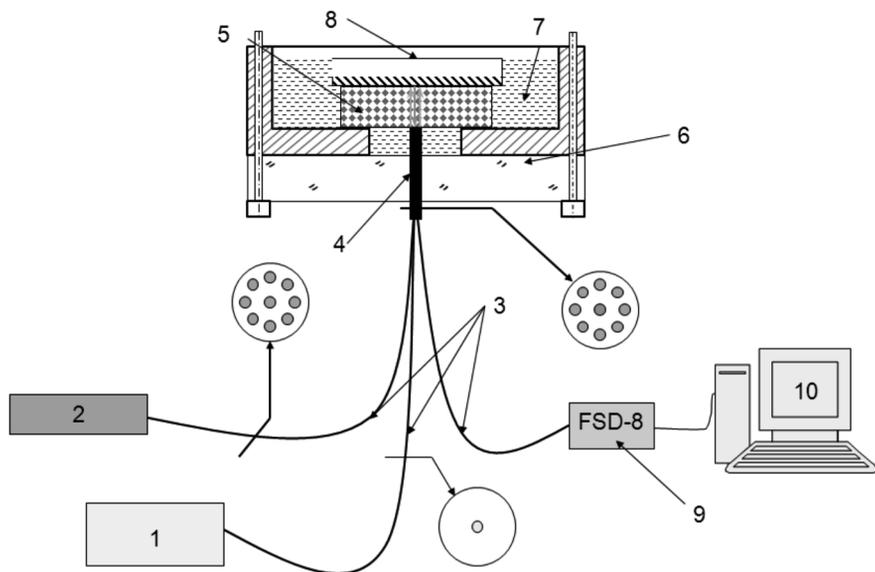


Рис. 1. Схема экспериментальной установки:

1 — источник широкополосного (белого) света; 2 — источник возбуждающего излучения; 3 — кварцевые световоды; 4 — оптический зонд; 5 — исследуемый образец; 6 — кювета с жидким красителем; 7 — краситель; 8 — зеркало; 9 — миниспектрометр FSD-8; 10 — компьютер

тивную передачу возбуждающего излучения от полупроводникового светодиода. Прием вторичного излучения осуществлялся с помощью одножильного световода, подводившего анализируемый сигнал к миниспектрометру.

Для возбуждения вторичного излучения использовались полупроводниковые светодиоды. Возбуждающее излучение светодиода 2 с помощью кварцевого светового жгута 3 направлялось на зонд 4, направленный на ГФК с внедренным красителем 7. Вторичное излучение направлялось другим световодом к входной щели миниспектрометра 9. С миниспектрометра цифровые данные со спектром вторичного излучения через USB-порт передавались на компьютер 10.

Результаты измерений. Применение Родамина 6Ж характерно для многих лазерных систем. Он имеет высокий КПД преобразования ($\approx 20\%$) и широкий спектральный диапазон перестройки. Флуоресценция Родамина 6Ж наблюдается в оранжевой области спектра, а накачка осуществляется излучением в области длин волн 490–535 нм.

Исследуемый краситель может почти полностью поглощать излучение накачки в видимой области спектра, преобразуя более 20 % поглощенной энергии в когерентное излучение с длиной волны в районе максимума полосы флуоресценции [2]. Спектры люминесценции и пропускания лазерного красителя (Родамин 6Ж) и фотонной стоп-зоны опаловой матрицы полностью перекрываются (рис. 2).

На рис. 3–6 представлены результаты экспериментов, полученные с использованием схемы с многожильным светодиодом (см. рис. 1). В качестве исследуемых образцов применялись искусственные опалы с диаметром глобул 240 нм (D240) и 260 нм (D260), насыщенные красителем Родамин 6Ж с концентрацией 10^{-5} г/см³. Спектры получены при возбуждении вторичного излучения светодиодами с длинами волн $\lambda = 365, 382, 463$ и 527 нм.

В спектрах, приведенных на рис. 3–5 (длины волн возбуждающего излучения $\lambda = 363, 382, 463$ нм), видны полосы вторичного излучения, относительная интенсивность которых в сравнении с возбуждающими невысока. Спектральные полосы вторичного излучения на рис. 3–5 также более широкие, чем линии возбуждающего излучения.

При переходе к возбуждению света светодиодом с длиной волны $\lambda = 527$ нм наблюдается возрастание интенсивности вторичного излучения в 48 раз относительно возбуждающего (см. рис. 6), а также резкое сужение спектральной полосы вторичного излучения. Это свидетельствует о возможном переходе от спонтанного излучения к индуцированному при длине волны возбуждения $\lambda = 527$ нм. Подобные спектры были получены и для второго образца опала с диаметром

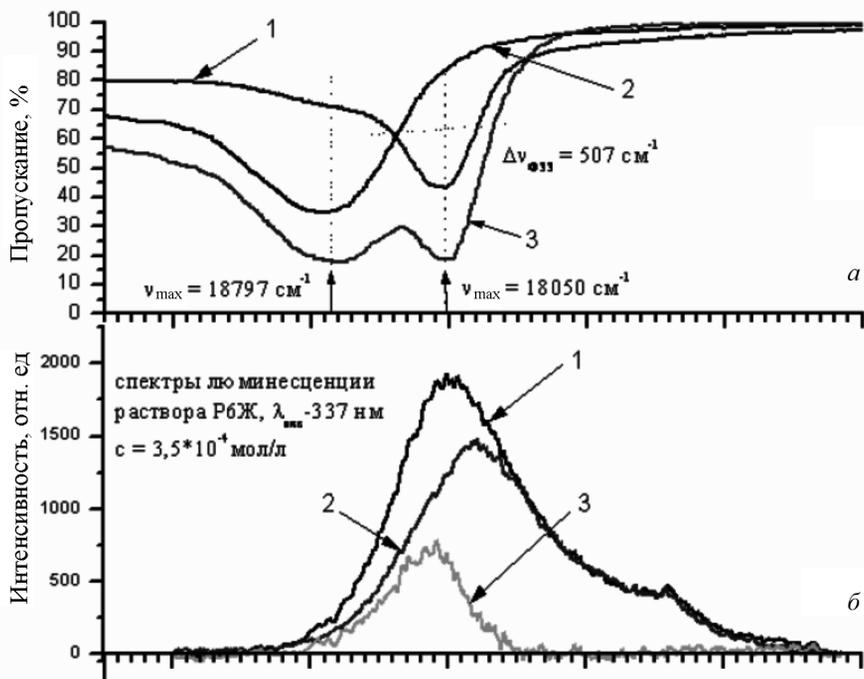


Рис. 2. Спектры пропускания опала с диаметром глобул 240 нм, насыщенного этиловым спиртом (1), красителя Родамин 6Ж (2) и красителя в опале (3) (а); спектры люминесценции красителя Родамин 6Ж (1) и Родамина 6Ж в опале (2) и их разность (3) [2] (б)

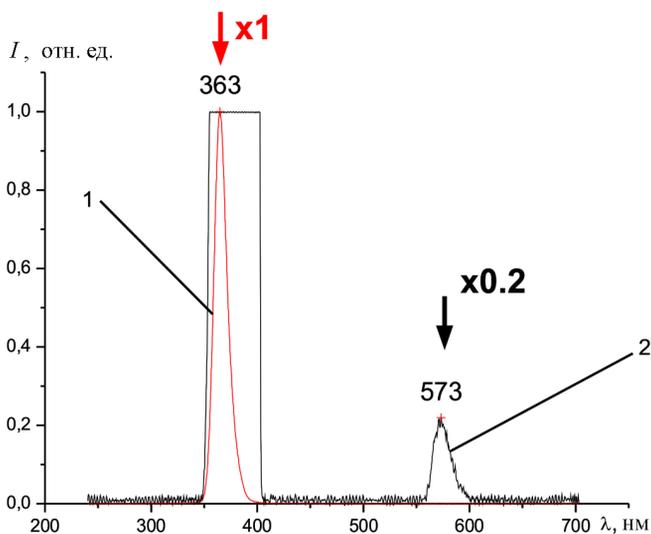


Рис. 3. Спектр вторичного излучения опала D260, насыщенного Родамином 6Ж с концентрацией 10^{-5} г/см³, при возбуждении светодиоидом с длиной волны $\lambda = 363$ нм:

1 — линия возбуждающего излучения, 2 — линия вторичного излучения

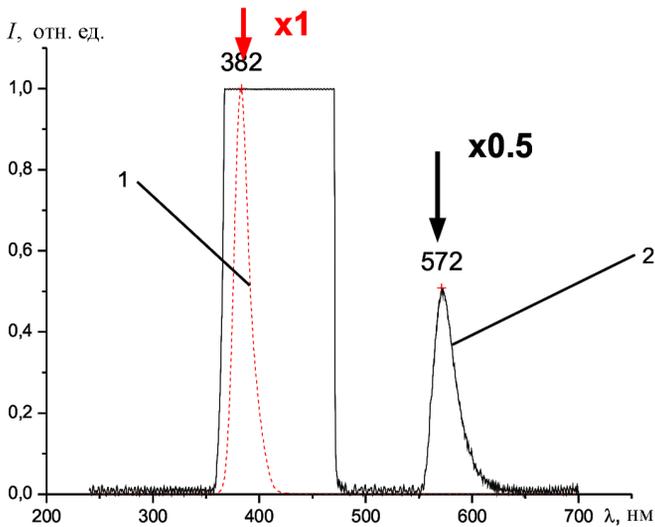


Рис. 4. Спектр вторичного излучения опала D260, насыщенного Родамином 6Ж с концентрацией 10^{-5} г/см³, при возбуждении светодионом с длиной волны $\lambda = 382$ нм:

1 – линия возбуждающего излучения, 2 – линия вторичного излучения

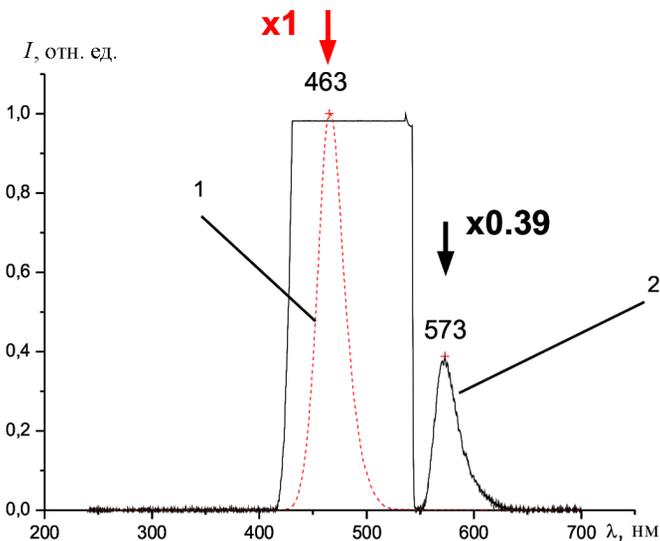


Рис. 5. Спектр вторичного излучения опала D260, насыщенного Родамином 6Ж с концентрацией 10^{-5} г/см³, при возбуждении светодионом с длиной волны $\lambda = 463$ нм:

1 – линия возбуждающего излучения, 2 – линия вторичного излучения

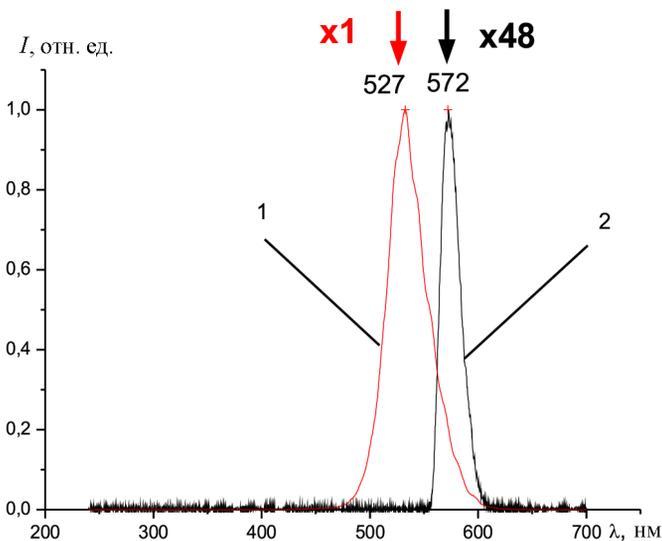


Рис. 6. Спектр вторичного излучения опала D260, насыщенного Родамином 6Ж с концентрацией 10^{-5} г/см³, при возбуждении светодиоидом с длиной волны $\lambda = 527$ нм:

1 – линия возбуждающего излучения, 2 – линия вторичного излучения

глобул 240 нм, но в этом случае максимум вторичного излучения приходится на $\lambda = 554$ нм.

Теоретическое обоснование гипотезы о лазерной генерации в проведенных экспериментах. Для анализа распространения света вдоль направления [111] фотонного кристалла использована модель слоистой среды. Известно, что коэффициент усиления света в среде можно записать в виде

$$\alpha = (N_2 - N_1)\sigma, \quad (1)$$

где N_1, N_2 – населенности энергетических уровней; σ – эффективное сечение. В соответствие с теорией [1, 4] групповая скорость волны в ГФК в том случае, когда частота приближается к краю запрещенной фотонной зоны, оказывается существенно меньше скорости света – $v_{гр} \ll c$ (рис. 7). Поэтому время прохождения электромагнитной волны через ГФК, имеющий форму пластины толщиной L , $\tau = \frac{L}{v} \gg \tau_0 = \frac{L}{c}$. Соответственно для эффективного сечения имеет место соотношение $\sigma_{eff} = \frac{\sigma c}{v}$.

Таким образом, коэффициент усиления α в активной среде должен резко возрастать, если частота рабочего перехода находится вблизи края запрещенной зоны. Приняв в (1) $N_1 = 0$, получим

$$\alpha = \sigma_{eff}N_2 = N_2\sigma\frac{c}{v}. \quad (2)$$

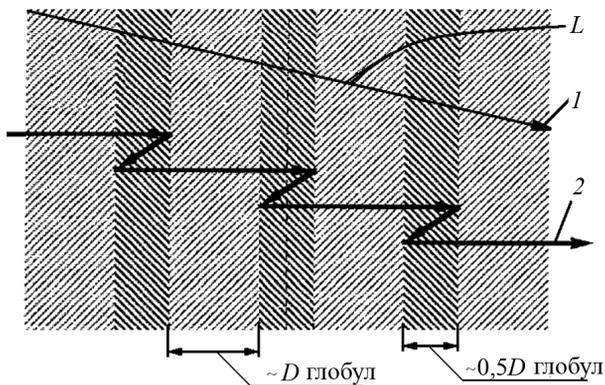


Рис. 7. Модель движения фотона в слоистой среде:

1 — при движении без отражений, *2* — при движении с переотражениями

Отметим, что значение N_2 должно сильно зависеть от эффективности накачки, т.е. от частоты возбуждающего излучения. При приближении к резонансу квантовый выход фотолюминесценции приближается к единице и все молекулы красителя переходят на верхний рабочий уровень. Принимая $N_2 \sim 10^{15} \text{ см}^{-3}$, $\sigma \sim 10^{-16} \text{ см}^2$ и $c/v_{\text{тр}} \sim 10^3$, что характерно для рабочих тел большинства лазеров средней мощности [3], получаем, что при приближении к полосе накачки Родамина 6Ж коэффициент усиления $\alpha_{eff} \sim 10^2 \text{ см}^{-1}$. Такой коэффициент усиления существенно превышает потери и обеспечивает возможность получения лазерной генерации.

На основании полученных экспериментальных данных был рассчитан коэффициент усиления света. Известно, что изменение интенсивности излучения через вещество происходит по закону $I = I_0 \exp(\alpha l)$, где α — эффективный коэффициент усиления, l — эффективное расстояние, проходимое светом в среде; I_0 и I — интенсивности излучения до и после прохождения среды соответственно [4]. Тогда $\alpha = l^{-1} \ln(I/I_0)$. Для случая возбуждения вторичного излучения светодиодом с длиной волны $\lambda = 527 \text{ нм}$ в кристалле с диаметром глобул 260 мкм ($l \approx 0,05 \text{ см}$) $\alpha = (0,05)^{-1} \ln(112/1) \approx 95 \text{ см}^{-1}$. Это значение близко к оценочному, приведенному выше ($\alpha \sim 10^2 \text{ см}^{-1}$), что свидетельствует об экспериментальном подтверждении гипотезы о лазерной генерации в образце опала.

Выводы. В ходе экспериментов получены спектры вторичного излучения различных образцов опаловых матриц, насыщенных красителем Родамин 6Ж, при возбуждении различными светодиодами. При возбуждении комбинационных процессов в образце опала, находящегося в растворе Родамина 6Ж, светом с длиной волны $\lambda = 527 \text{ нм}$ имеет место резкое возрастание интенсивности вторичного излучения относительно возбуждающего, а также сужение спектральной полосы (в 2 раза). Вторичное излучение происходит на длинах волн

$\lambda = 554$ нм (для опалов D240) и $\lambda = 572$ нм (для опалов D260) при одинаковых концентрациях красителя. Таким образом, наблюдаемое излучение связано со структурой опала и, скорее всего, возникает на границе стоп-зоны. Согласно теории [4] на границе стоп-зоны возможен резкий рост коэффициента усиления среды и, как следствие, понижение порога генерации.

Рассчитаны коэффициенты усиления света для исследованных образцов. Наибольший коэффициент усиления ($\alpha = 95 \text{ см}^{-1}$) имеет место для образца опала D240, находящегося в растворе красителя. Обнаружено, что рассчитанный на основании опытных данных коэффициент усиления полностью согласуется с его теоретической оценкой для случая генерации ($\alpha_{eff} \sim 10^2 \text{ см}^{-1}$).

Работа выполнена при поддержке Минобрнауки РФ (гос. контракт № 16.513.11.3116), а также грантов РФФИ № 08-02-00114, 10-02-90042, 10-02-90404.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Горелик В. С. Оптика глобулярных фотонных кристаллов // Квантовая электроника. – 2007. – Т. 37, № 5. С. 409–435.
2. Алимов О. К., Басиев Т. Т., Орловский Ю. В., Осико В. В., Самойлович М. И. Преобразование люминесценции лазерных красителей в вынужденное излучение в опаловой матрице // Квантовая электроника. – 2008. – Т. 38, № 7. – С. 665–669
3. Frolov S. V., Vardeny Z. V., Zakhidov A. A., Baughman R. P. Laser-like emission in opal photonic crystals // Optics Communications. – 1999. – Vol. 162. – P. 241
4. Dowling J. P., Scalora M., Bloemer M. J., and Bowden C. M. The photonic band edge laser: A new approach to gain enhancement // J. Appl. Phys. – 1994. – Vol. 75. – P. 1896–1899

Статья поступила в редакцию 21.10.2012