

Гладышук А.А., Ракович Ю.П., Русаков К.И., Чугунов С.В.

ТОНКАЯ СТРУКТУРА ОПТИЧЕСКИХ МОД В ФОТОННЫХ МОЛЕКУЛАХ С ПОЛУПРОВОДНИКОВЫМИ НАНОКРИСТАЛЛАМИ

1. Введение

Оптические процессы в сферических микрорезонаторах (СМ), содержащих полупроводниковые нанокристаллы (НК), являются предметом активных теоретических и экспериментальных исследований в течении последних пяти лет [1-4]. Было показано, что сочетание высокой добротности (Q) резонатора и малого объема, занимаемого полем моды, в стеклянных или полимерных микросферах с контролируемыми излучательными свойствами нанокристаллов позволяет наблюдать резонансную структуру предельно узких пиков излучения при комнатной температуре [5], изменение кинетики фотолуминесценции (ФЛ) [6] и низкороговое стимулированное излучение [2,6,8]. При этом размерная зависимость спектров ФЛ НК, вследствие эффекта размерного квантования, позволяет получить излучение в заданной области спектра.

По аналогии с методом линейной комбинации уровней энергии в атомной физике было показано, что распределение мод “шепчущей галереи” (МШГ) в спектре рассеяния или излучения СМ может быть описано путем формирования связанных (СВ) и несвязанных (НСВ) орбиталей молекулы H_2 из комбинации орбиталей двух атомов водорода [9]. Как и уровни энергии в атоме водорода, МШГ характеризуются тремя числами: угловым модовым числом n , радиальным числом l (порядок моды) и азимутальным числом m . При этом n пропорционально отношению длины окружности СМ к длине волны света, соответствующей данной моде. Порядок моды l определяется числом максимумов в радиальном распределении внутреннего электромагнитного поля СМ, а величина m определяет ориентацию орбитальной плоскости, в которой распространяются МШГ. В случае идеальной сферической формы СМ МШГ вырождены относительно азимутального квантового числа.

Детальное исследование, в основе которого лежат уравнения Максвелла, показало, что распределение электромагнитного поля внутри СМ, находящегося в вакууме, может быть описано с помощью следующих уравнений [10]:

$$\mathbf{E}_{TE} = j_n(n, kr) \mathbf{X}_{nm}(\theta, \phi) \quad (1)$$

- для мод, у которых отсутствует составляющая (проекция) электрического поля по направлению радиуса микросферы (так называемые ТЕ моды) и

$$\mathbf{E}_{TM} = \nabla \times j_n(n, kr) \mathbf{X}_{nm}(\theta, \phi), \quad (2)$$

- в случае поперечных магнитных (ТМ) мод, для которых радиальная проекция магнитного поля равна нулю. В уравнениях (1)-(2) $\mathbf{X}_{nm}(\theta, \phi)$ – сферические гармоники, выраженные в полярной системе координат, $j_n(n, kr)$ – обозначает функцию Бесселя порядка n , в которой $k = 2\pi/\lambda$ – волновое число, n_r – показатель преломления микросферы, λ – длина волны в вакууме.

С другой стороны, уравнение для волновой функции

электрона в атоме водорода представляет собой произведение двух функций, одна из которых зависит только от r , а другая – от углов θ и ϕ [11]:

$$\Psi_{slm} = R_{sl}(r) Y_{lm}(\theta, \phi), \quad (3)$$

Можно видеть, что уравнения (1) и (3) имеют одну и ту же радиальную и угловую зависимость и пространственное распределение волновой функции в обоих случаях определяется тремя целыми числами: s , l и m (для атома водорода) и n , l и m (для СМ), которые являются соответственно угловым, радиальным и азимутальным числами. Формальное подобие уравнений (1) и (3) является той причиной, по которой СМ иногда называют “фотонными атомами” [12,13], хотя, несомненно, данная аналогия не является абсолютной. Наиболее существенным отличием является разный режим локализации. В то время как плотность распределения волновой функции электрона полностью локализована в пределах атома водорода, фотонные состояния в резонансных модах СМ имеют конечное время жизни (τ) и поэтому не являются полностью локализованными в СМ.

Величина этого “времени жизни” фотона определяется добротностью Q оптических мод и может, таким образом, зависеть от дифракционных потерь, поглощения, оптического усиления, неоднородности пространственного распределения показателя преломления или от несферичности СМ вследствие деформации [14]. В результате этого, резонансное внутреннее поле в СМ не является полностью локализованным в пределах микросферы. Его максимум, в зависимости от типа моды, лежит либо на поверхности, либо внутри СМ на небольшом расстоянии от поверхности [14]. Вне микросферы поле спадает по закону $\exp[-2\pi\sqrt{\epsilon-1}(y-r)/\lambda]$ (где ϵ – диэлектрическая проницаемость, y – расстояние от поверхности по нормали к ней, r – радиус микросферы, λ – длина волны в вакууме) и область его действия может превышать несколько микрометров.

Однако такая делокализация поля оптического возбуждения, хотя и является фактором, ограничивающим рассмотренную выше аналогию, имеет большое значение, так как позволяет обеспечить когерентную оптическую связь между модами МШГ двух СМ одинакового или близкого размера, допуская принципиальную возможность для контроля фотонных состояний в пространственной области с размерами в несколько микрометров. Подобная структура двух оптически связанных СМ получила название “фотонной молекулы” (ФМ), так как в приближении сильной связи взаимодействие оптических мод отдельных СМ может быть описано по аналогии с формированием связанных (СВ) и несвязанных (НСВ) орбиталей молекулы H_2 из комбинации орбиталей двух атомов водорода [9].

Теоретическое рассмотрение на основе классической теории рассеяния показало [15], что формирование ФМ из двух

Гладышук Анатолий Антонович, к.физ.-мат.н., зав. каф. физики Брестского государственного технического университета.
Ракович Юрий Петрович, к.физ.-мат.н., доцент каф. физики Брестского государственного технического университета.
Русаков Константин Иванович, к.физ.-мат.н., доцент каф. физики Брестского государственного технического университета.
Чугунов Сергей Владимирович, ассистент каф. физики Брестского государственного технического университета.
Беларусь, БрГТУ, 224017, г. Брест, ул. Московская, 267.

СМ должно приводить к появлению двух уширенных резонансов на месте МШГ отдельно взятых микросфер. Это явление, которое является характерным признаком когерентной оптической связи между модами отдельных СМ, было недавно обнаружено экспериментально в ряде систем, таких как: две “фотонные точки” квадратной формы, соединенных тонким волноводным каналом [9]; в системе двух микросфер, допированных молекулами органических красителей [16-18]; в ФМ содержащих CdSe [19] и CdTe НК [20,21], а также в печочках, состоящих из полимерных микрочастиц [22].

Как показано выше, МШГ отдельного СМ вырождены относительно азимутального квантового числа m и поэтому частота (длина волны) мод с индексом l не зависит от m . Однако формально, в полной аналогии с вырождением уровней энергии в атоме водорода, каждому из целочисленных значений n соответствует $2n+1$ значений m . Хорошо известно, что образование молекул из отдельных атомов водорода сопровождается снятием вырождения по числу m [11]. Подобное явление должно наблюдаться и в ФМ в случае абсолютно одинаковых размеров составляющих ее СМ. В самом деле, недавнее теоретическое [23] и экспериментальное исследование проблемы [20,21] позволили выявить сложное распределение плотности фотонных состояний СВ и НСВ мод ФМ, основной причиной которого является снятие вырождения оптических мод ФМ относительно азимутального модового числа. Было показано, что в случае ФМ состоящей из двух СМ близкого размера, снятие вырождения приводит к различию частот оптических мод с разными m [20,21].

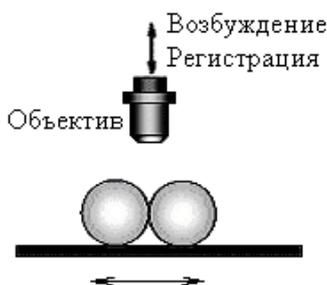


Рис. 1. Геометрия эксперимента, использованная для сканирования ФМ вдоль ее оси.

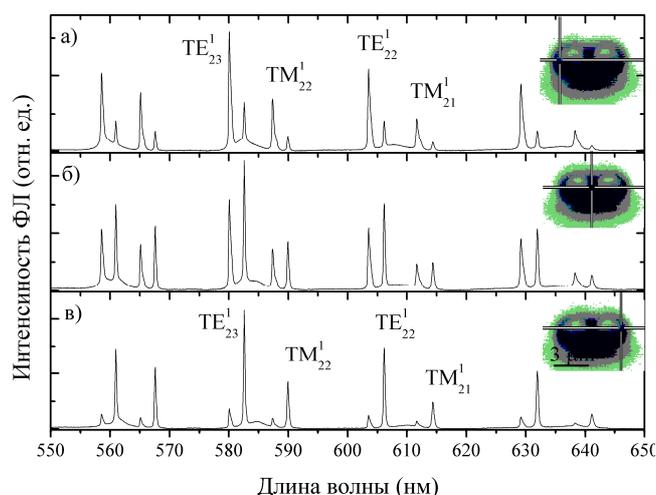


Рис. 2. Спектры ФЛ измеренные при возбуждении в трех разных точках вдоль оси ФМ. На вставках показаны микроскопические изображения ФМ. Перекрестие обозначает позицию фокусировки возбуждающего излучения с размером пятна 0.7 мкм.

В данной работе обсуждаются новые экспериментальные и теоретические результаты исследования спектров излучения ФМ, покрытых тонкой пленкой плотноупакованных НК CdTe. Как будет показано ниже, модификация оптических мод ФМ экспериментально проявляется в виде тонкой структуры СВ и НСВ мод ФМ, в которой общее число пиков излучения, их спектральное положение и ширина полос определяются угловым квантовым номером n МШГ в спектрах отдельно взятых СМ.

2. Эксперимент

Для наблюдения эффекта сильной когерентной связи в спектрах излучения ФМ необходимо, чтобы СМ почти одинакового размера обладали высокой эффективностью излучения, способной обеспечить достаточную интенсивность саморассеяния. В наших экспериментах СМ (микросферы меламина-формальдегида с показателем преломления 1.68 и диаметром 3.02 мкм) покрывались тонкой пленкой НК CdTe с использованием метода послойного осаждения за счет электростатического взаимодействия [21]. Для контроля оптического качества образцов использовался метод конфокальной спектроскопии с последующим анализом трёхмерного изображения СМ. Спектры излучения измерялись с использованием спектрального комплекса RENISHAW, оснащенного дифракционной решеткой 1800 штр./мм, объективом ($\times 100$), узкополосным режектовым и плазменным фильтрами и CCD камерой. В качестве источника возбуждения использовался Ag^+ лазер ($\lambda = 514$ нм). Для контроля ориентации ФМ относительно оптической оси микроскопа мы использовали пленку полистирола с поверхностным слоем микропор, приготовленных методом термокапиллярной конвекции (рис.2). Размер пор в данной работе подбирался таким образом, чтобы каждая пора вмещала только одну пару СМ, и составлял ~ 5 мкм. Необходимо отметить, что такая микропористая поверхность не оказывает сильного влияния на структуру МШГ в спектрах излучения СМ, за исключением незначительного уширения полос. Принимая во внимание разницу в размерах между СМ и микропорой (рис. 2 а, вставка), можно сделать вывод, что использованная структура не изменяет добротность МШГ исследуемых СМ.

3. Результаты и обсуждение

Прежде чем перейти к обсуждению результатов исследования мод в ФМ, необходимо разработать способ идентификации МШГ в спектрах отдельных СМ. На рис. 2 показаны спектры излучения двух близко расположенных СМ измеренные в геометрии, когда возбуждение и регистрация осуществлялись в направлении перпендикулярном продольной оси ФМ (рис.1). При этом для измерения спектров проводилось сканирование вдоль оси. В данном случае, дублетная структура, в которой распределение интенсивности между компонентами зависит от места возбуждения и регистрации, является результатом эффективной связи электромагнитного поля СМ с излучательными переходами НК CdTe. Возникновение такой структуры объясняется суперпозицией несвязанных МШГ, принадлежащих разным СМ. Положение пиков излучения в спектрах отдельно взятых СМ определяется резонансными частотами МШГ для электромагнитных волн разной (ТЕ или ТМ) поляризации.

В случае микрочастиц, обладающих сферической симметрией, поперечное сечение коэффициента экстинкции можно рассчитать на основе классической теории рассеяния [24]:

$$C_{ext} = \frac{2\pi}{k^2} \operatorname{Re} \sum_{n=1}^{\infty} (2n+1) (b_n(x, n_r) + a_n(x, n_r)), \quad (4)$$

где $x = 2\pi r/\lambda$ – размерный параметр, комплексные коэффициенты рассеяния $a_n(x, n_r)$ и $b_n(x, n_r)$ можно записать в форме [25]:

$$a_n(x, n_r) = \frac{A_n(x, n_r)}{A_n(x, n_r) + iC_n(x, n_r)}$$

$$\text{и } b_n(x, n_r) = \frac{B_n(x, n_r)}{B_n(x, n_r) + iD_n(x, n_r)}. \quad (5)$$

Парные функции A_n , C_n и B_n , D_n можно получить в рамках теории рассеяния Ми [26]. При этом возникновение резонансной структуры определяется условием максимального значения действительной части коэффициентов $a_n(x, n_r)$ и $b_n(x, n_r)$, в то время как их мнимая часть изменяет свой знак с положительного на отрицательный, проходя через нулевую отметку. Другими словами, для возникновения резонансной структуры в спектрах СМ необходимо выполнение условий $C_n = 0$ или $D_n = 0$, что дает следующие выражения, определяющие условия резонанса [27]:

$$n_r \Psi_n(x) \Psi'_n(n_r, x) - \Psi_n(n_r, x) \Psi'_n(x) = 0 \quad (6)$$

ИЛИ

$$n_r \chi_n(x) \Psi'_n(n_r, x) - \Psi_n(n_r, x) \chi'_n(x) = 0. \quad (7)$$

Заметим, что для заданных значений n и m и фиксированных значений x , данные уравнения имеют множество корней для ТМ и ТЕ МШГ соответственно. При этом функции Рикати-Бесселя первого и второго рода могут быть выражены как:

$$\Psi_n(z) = z j_n(z) = \sqrt{\frac{\pi z}{2}} J_{n+\frac{1}{2}}(z)$$

$$\text{и } \chi_n(z) = z y_n(z) = \sqrt{\frac{\pi z}{2}} Y_{n+\frac{1}{2}}(z), \quad (8)$$

где $J(z)$ и $Y(z)$ – цилиндрические функции Бесселя первого и второго рода, соответственно. Использование функций Бесселя для систем цилиндрической симметрии вместе с рекуррентным выражением $\Psi'_n(z) = -\frac{n}{z} \Psi_n(z) + \Psi_{n-1}(z)$

позволяют записать уравнения (6)-(7) в форме, удобной для практических расчетов спектрального положения МШГ. Таким образом, для случая действительного показателя преломления (т.е. в отсутствие поглощения) можно записать следующие выражения, определяющие резонансные условия для волн ТМ и ТЕ поляризации, соответственно:

$$\frac{1}{x} \left(\frac{n}{n_r} - n_r n \right) J_{n+1/2}(x) J_{n+1/2}(n_r, x) +$$

$$+ n_r J_{n+1/2}(n_r, x) J_{n-1/2}(x) - J_{n+1/2}(x) J_{n-1/2}(n_r, x) = 0,$$

$$n_r Y_{n+1/2}(x) J_{n-1/2}(n_r, x) - J_{n+1/2}(n_r, x) Y_{n-1/2}(x) = 0. \quad (9)$$

Эти условия представляют собой трансцендентные уравнения, корни которых можно получить для заданного значения параметра x , определяющего спектральное положение резонанса, для фиксированного значения показателя преломления n_r и для заданного значения углового числа n . Сравнивая результаты расчетов с измеренным положением МШГ в спектрах рассеяния или излучения, можно идентифицировать модовые числа n и l для каждой моды, а также точно определить размер СМ. Таким образом, можно предложить следующий алгоритм, позволяющий идентифицировать МШГ различной поляризации: 1) Из экспериментально измеренных спектров отдельного СМ определяются значения резонансных длин волн λ_i^{exp} ($i = 1, 2 \dots, N$), где N – число экспериментально полученных пиков. 2) На основании технических паспортных данных или результатов микроскопических исследований радиус СМ приписывается приближенное значение. 3) Используя условия (9)-(10), проводится вычисление положения резонансов λ_i^{theor} . 4) Для каждого значения λ_i^{exp} и наиболее близкого к нему значения λ_i^{theor} вычисляется раз-

ность Δ_i . 5) Принимая во внимание величину спектрального разрешения Δ , и используя размер микросферы в качестве единственного варьируемого параметра, проводится поиск максимального значения корреляционной функции

$$S = \frac{1}{N} \sum_1^N (1 + \Delta_i / \Delta)^{-1}.$$

На рис. 2 представлен результат идентификации МШГ, проведенный согласно описанному выше алгоритму. Сдвиг в положении TE_{22}^1 , TE_{23}^1 , TM_{21}^1 и TM_{22}^1 мод, наблюдаемый в спектрах двух СМ, является результатом разницы размеров микросфер, которая в данном случае составляет всего 11 нм. Полученные данные ясно показывают, что в случае, когда возбуждение и регистрация осуществляются в месте контакта двух СМ (рис. 2,б), излучение эффективно распространяется вдоль оси ФМ, что можно наблюдать как вклад МШГ отдельных СМ в суммарный спектр излучения. Оптические моды наблюдаются для близких, но все-таки различных длин волн. Из сравнения спектров, представленных на рис. 2, видно, что вклад отдельных СМ в суммарный спектр неодинаков для разных условий возбуждения, и распределение интенсивности между компонентами каждого дублета зависит от положения возбуждающего лазерного луча и регистрирующего устройства.

Необходимо заметить, что в данной геометрии возбуждения (рис. 1) мы не смогли зарегистрировать никаких новых пиков излучения, принадлежащих собственно ФМ как целостной оптической системе. Отсутствие оптической связи между модами в такой геометрии неудивительно, поскольку взаимодействие между электромагнитными полями отдельных СМ должно быть минимальным в условиях, когда возбуждение и регистрация осуществляются в направлении, перпендикулярном продольной оси ФМ [16]. Однако обнаруженное контролируемое перераспределение интенсивности между компонентами дублетной структуры ясно демонстрирует возможность волноводного переноса энергии электромагнитного поля вдоль оси ФМ даже в условиях слабой оптической связи.

Детальные теоретические исследования процессов рассеяния и распределения внутреннего электромагнитного поля в системе двух СМ показали [15,23], что максимальная величина оптической связи может быть обеспечена только для таких пар фотонных мод, орбиты которых проходят через точку контакта между СМ и лежат в одной плоскости [16]. Принимая результаты этих исследований за основу, мы предположили, что интенсивность ФЛ связанных мод в исследуемых в настоящей работе ФМ, имеет сильную угловую зависимость, и должна быть максимальна в направлении, параллельном оси ФМ. Иными словами, именно в такой параллельной геометрии эксперимента (рис. 3) можно ожидать появления в спектрах ФЛ новых пиков, принадлежащих связанным коллективным модам ФМ.

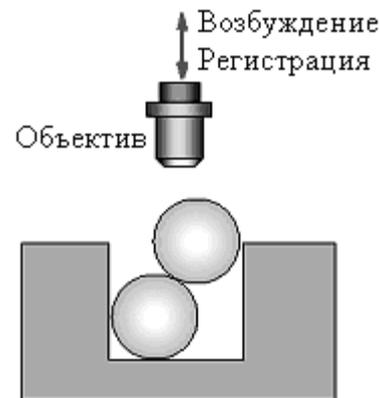


Рис. 3. Геометрия эксперимента, использованная для сканирования ФМ под углом, близким к направлению ее оси.

В наших экспериментах мы использовали промышленную микроскопическую установку, которая не позволяла варьиро-

вать угол возбуждения или регистрации. Поэтому, для того, чтобы удовлетворить условиям максимальной оптической связи, брали пленку полистирола с поверхностным слоем микропор, приготовленных методом термокапиллярной конвекции [28]. Упорядоченная структура микропор (рис. 3) была достигнута за счет быстрого стимулированного испарения раствора полистирола в толуоле в присутствии капель воды и принудительной продувки охлаждающего воздуха через раствор. На рис. 4 показана сформированная таким способом гексагональная структура микропор глубиной 3-5 микрон, каждая из которых может вместить только одну пару СМ размером 3 микрон. Кроме того, угол между направлением возбуждения и продольной осью ФМ в этом случае может быть очень малым. Микросферы могут быть перенесены в такие микропоры, с помощью оптоволокна с острием порядка 1 микрона, что может быть достигнуто методом селективного травления.

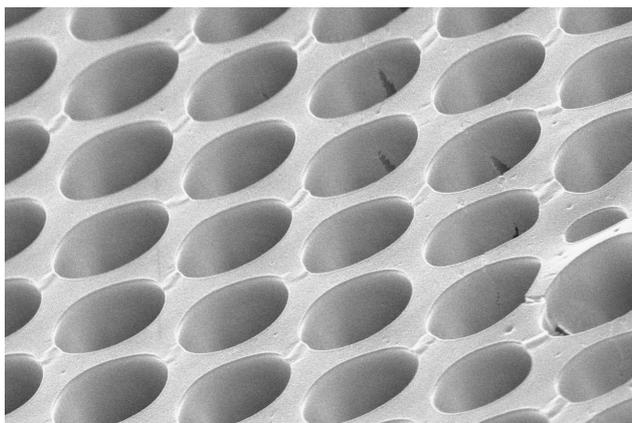


Рис. 4. Фотография пленки полистирола с поверхностным слоем микропор (размером ~ 5 мкм), полученная методом электронной микроскопии.

На рис. 5 представлены спектры ФЛ, измеренные от ФМ, находящейся в одной микропоре в сравнении со спектрами отдельных СМ, измеренными до перемещения их в микропору. Выраженная дублетная структура на рис. 5,а компоненты, которой совпадают со спектральным положением МШГ отдельных СМ (рис. 5,б), являются результатом перекрытия несвязанных мод двух микросфер. Сдвиг в позиции МШГ наблюдаемый в спектрах двух СМ (рис. 5,а) и (рис.5,б), является результатом разности размеров микросфер порядка 25 нм. Однако, по сравнению со спектром, представленным на рис. 2, каждый такой дублет сопровождается появлением двух дополнительных, более широких пиков ФЛ (указанных стрелками на рис. 5,а), что является характерным признаком сильного взаимодействия электромагнитных полей двух СМ.

Появление таких “спутников” является результатом формирования коллективных СВ и НСВ орбиталей ФМ (9). При этом НСВ пик всегда сдвинут в сторону меньших длин волн по сравнению с положением СВ моды. Согласно обобщенной теории рассеяния [15], наблюдение СВ и НСВ спутников в спектрах ФМ становится возможным вследствие снятия вырождения относительно азимутального числа m . Форма полосы СВ и НСВ мод отражает распределение энергии электромагнитного поля между взаимодействующими модами. В результате спектрального перекрытия, моды с различной комбинацией индексов m дают свой вклад в формирование дополнительных полос в спектрах ФМ. При этом оказалось, что ширина НСВ пика всегда больше, чем СВ моды, что отражает уменьшение добротности мод, принадлежащих собственно ФМ по сравнению со случаем невзаимодействующих СМ. Такое изменение добротности предположительно объясняется взаимодействием мод ФМ с

более диссипативными модами с меньшим значением числа l [16]. Результаты аппроксимации контура полос ФМ вблизи резонанса TE_{22}^1 с использованием функций Лоренца (рис. 5а,б) показывают, что добротность мод ФМ почти в 8 раз меньше, чем МШГ в спектрах несвязанных СМ.

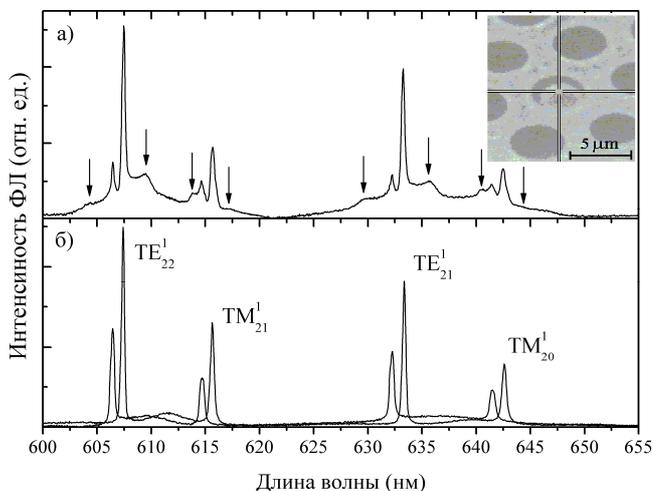


Рис. 5. Спектр ФЛ ФМ, находящейся в микропоре. Стрелками указано положение связанных мод (а). Спектры ФЛ невзаимодействующих микросфер (б). На вставке показано изображение ФМ, полученное методом стандартной микроскопии.

Высокая эффективность излучения НК CdTe и связь электромагнитного поля ФМ с излучательными переходами НК позволили обеспечить регистрацию СВ и НСВ мод в широком спектральном диапазоне от 525 нм до 725 нм, что соответствует полной ширине спектра излучения НК. Благодаря этому, мы получили возможность измерить и теоретически проанализировать величину спектрального интервала Δx_m между СВ и НСВ модами в зависимости от значения углового числа n (рис. 6).

Теоретические расчеты величины Δx_m были выполнены в приближении максимального значения (ПМЗ) одномодового метода сильной связи (МСС) [29]. Для упрощения вычислений, в расчет были включены сферы одинакового размера, имеющие МШГ с радиальным числом $l=1$. Кроме того, во внимание принималось только взаимодействие между МШГ с одинаковыми n .

Для заданной поляризации, величина Δx_m может быть рассчитана из уравнения [29]:

$$\Delta x_m = 2\Gamma_n |A_{n,m}(x_n)|, \quad (11)$$

где $x_n = 2\pi R/\lambda_n$ – размерный параметр, соответствующий резонансу с номером n , λ_n – соответствующая длина волны, Γ_n – ширина полосы моды n , которая может быть рассчитана на основе классической теории рассеяния как мнимая часть коэффициентов $a_n(x,n,r)$ и $b_n(x,n,r)$ (уравнения (4-5)). Для заданной величины радиуса отдельного СМ коэффициенты $A_{n,m}(x_n)$ можно получить из следующего выражения:

$$A_{n,m}(x_n) = -2n(-1)^{n+m} h_{2n}^{(1)}(k_0 Z) \times \sqrt{\frac{2n}{\pi(n+m)(n-m)}} \times \frac{n^{2n}}{(n+m)^{n+m} (n-m)^{n-m}}, \quad (12)$$

где $k_0 = x_n/a$ – волновое число, Z – параметр характерной длины [29]. Входящие в (12) сферические функции Ханкеля можно получить из уравнения

$$h_{2n}^{(1)}(k_0 Z) \cong -i \frac{\exp[(2n+1/2)(\alpha - \tanh\alpha)]}{(n+1/2)\sqrt{\operatorname{sech}\alpha \tanh\alpha}}, \quad (13)$$

где коэффициент α определяется тождеством $k_0 Z = (2n+1/2)/\cosh \alpha$. Наконец, спектральное положение m – резонансов можно рассчитать как $x_m = x \pm \Delta x_m/2$.

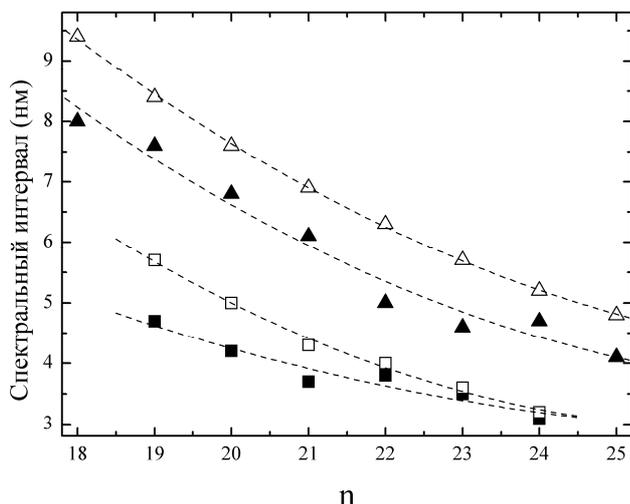


Рис. 6. Величина спектрального интервала между СВ и НСВ модами ФМ в зависимости от значения углового числа n , измеренная для мод ТЕ (черные треугольники) и ТМ (черные квадраты). “Светлыми” символами представлены результаты теоретического анализа.

На рис. 6 показаны экспериментально определенные значения Δx_m по сравнению с теоретически рассчитанными данными. Анализируя спектры ФЛ было обнаружено существенное уменьшение спектрального интервала между СВ и НСВ модами ФМ при возрастании углового числа n . При этом оказалось, что для ТЕ мод величина параметра Δx_m всегда больше, чем для ТМ мод в полном соответствии с результатами теоретических расчетов (рис.6). Хотя использованный ПМЗ метод по определению дает завышенные значения Δx_m [29], результаты, представленные на рис. 6 свидетельствуют, что данный подход является достаточно аккуратным, по крайней мере, для качественного анализа свойств оптических мод в ФМ.

Следует также заметить, что наблюдаемое несоответствие между рассчитанными и экспериментально определенными значениями Δx_m может быть вызвано тем, что величина спектрального интервала между СВ и НСВ модами ФМ определялась в спектрах ФЛ как разница между спектральными максимумами соответствующих полос. Однако, детальное рассмотрение проблемы когерентной связи мод в ФМ с использованием техники МСС показывает, что на самом деле СВ и НСВ фотонные моды формируются из набора чрезвычайно узких пиков, происхождение которых объясняется присутствием спектральных компонент с $m \neq \pm 1$ [29]. Общее число таких узких пиков для заданного значения n определяется истинным вырождением МШГ, степень которого в приближении нормальных мод равна $n+1$. Вследствие зависимости связи между модами ФМ от ориентации плоскости орбиты МШГ, взаимодействие ограничено только модами, имеющими одинаковое значение азимутального

числа m . Вырождение по знаку моды (т.е. между m и $-m$) не снимается и модифицированная кратность вырождения мод ФМ становится равной $n+1$. При этом m может принимать любое значение между 0 и n . В нашем случае значения Δx_m были рассчитаны как величина спектрального интервала между внешними пиками с $m = \pm 1$, что не соответствует максимуму огибающей контура СВ и НСВ мод, и поэтому может приводить к различию между значениями Δx_m , оцененными теоретически и определенными экспериментально. Наличие тонкой структуры СВ и НСВ мод ФМ представляет большой интерес, поскольку предполагает множество практических применений, особенно в области оптической обработки и передачи информации [30]. Однако для экспериментального обнаружения этого явления необходимо выполнение по крайней мере двух условий.

Во-первых, величина спектрального интервала между СВ и НСВ модами ФМ сильно зависит от угла падения возбуждающей или рассеивающейся электромагнитной волны θ [16,21,23]. В случае $\theta = 0^\circ$, когда волна распространяется строго параллельно продольной оси ФМ, соответствующее излучение будет предпочтительно возбуждать только моды с $m = \pm 1$. Взаимодействие с другими диссипативными модами, имеющими меньшее значение числа l вызывает, в этом случае, уширение СВ и НСВ модами ФМ, и соответствующее понижение добротности по сравнению со спектрами отдельных СМ (как показано на рис.5) и о чем сообщалось в ряде опубликованных работ [15,16,20,21,31]. С другой стороны, в перпендикулярной геометрии, когда $\theta = 90^\circ$, взаимодействие между модами минимально и экспериментальное обнаружение даже относительно широких СВ и НСВ мод в ФМ требует большого экспериментального мастерства [31]. Таким образом, для обнаружения тонкой структуры СВ и НСВ мод ФМ необходимо найти компромисс по спектральному разрешению, обеспечив возбуждение и регистрацию в области $0^\circ < \theta < 90^\circ$ относительно направления продольной оси ФМ.

Вторым условием для экспериментального обнаружения m -резонансов в спектре ФМ является исключение взаимодействия с более диссипативными модами, локализованными глубже в объеме СМ. Выполнение данного условия может быть обеспечено, если два СМ, образующие ФМ, имеют не только одинаковые размеры, но одинаковую добротность взаимодействующих мод. В случае, когда ширины полос резонансов, принадлежащих двум СМ, сильно отличаются друг от друга, условие когерентной оптической связи между МШГ нарушается, и обнаружение тонкой структуры коллективных мод ФМ затрудняется вследствие сильного перекрытия полос с разным значением числа m .

На вставке к рис. 5,а можно увидеть, что возбуждение и регистрация в данном эксперименте осуществлялись в точке, расположенной ближе к центру верхнего СМ, т.е. в условиях, когда угол θ был близок к нулю. Для обнаружения спектральных компонент, обладающих значениями азимутального числа $m \neq \pm 1$, спектры ФМ были измерены при сканировании положения возбуждения ФЛ в горизонтальной плоскости, касательной к верхней микросфере.

На рис. 7 приведены спектры ФЛ ФМ, состоящей из двух почти одинаковых СМ с размерами 3.0168 мкм и 3.0189 мкм, измеренные при возбуждении ФЛ на правом краю верхнего СМ (вставка, рис.7а). Представленный спектр демонстрирует две основные особенности, присущие сильной когерентной связи между фотонными состояниями двух взаимодействующих СМ. Во-первых, ясно видно возникновение серии узких пиков ФЛ, расположенных по обе стороны от соответствующей

щих TE и TM пиков в спектрах отдельных СМ, измеренных до переноса их в микропору (рис.7б). Поскольку основным механизмом формирования такой структуры является снятие вырождения относительно азимутального квантового числа, [29,30,32] при выполнении условий, указанных выше, подобная многопиковая структура должна появляться в спектрах рассеяния, стимулированного или лазерного излучения, или в спектрах стимулированного комбинационного рассеяния. Подобным же образом, лазерное излучение в полупроводниковых микрорезонаторных структурах обычно является более эффективным, по сравнению с макроскопическим резонатором, но не влияет на спектральное распределение оптических мод микрорезонатора [33].

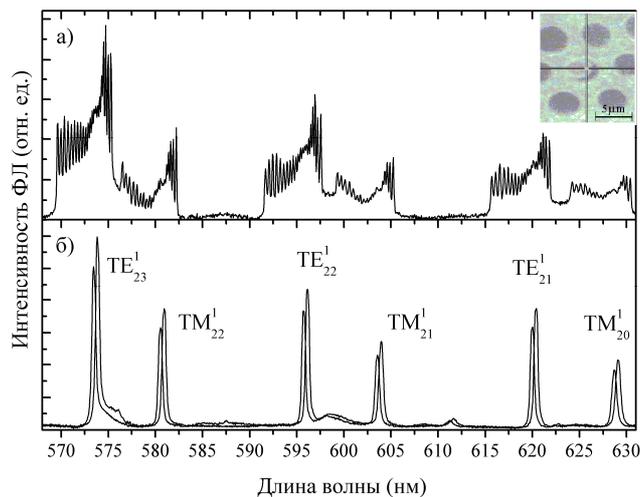


Рис. 7. Спектр ФЛ ФМ находящейся в микропоре (а). Спектры ФЛ не взаимодействующих микросфер (б). Вставка: изображение ФМ, полученное методом стандартной микроскопии. Перекрестие указывает положение места возбуждения ФЛ.

Во-вторых, было обнаружено, что для мод обеих (TE и TM) поляризаций число экспериментально разрешенных m -пиков возрастает с увеличением углового модового числа, но никогда не превышает n . Так, в спектральной области моды TE_{20}^1 наблюдается 19 пиков (и такое же количество пиков для МШГ TM_{20}^1). В области резонанса TE_{21}^1 было обнаружено 20 разрешенных m -пиков (и 20 пиков для TM_{21}^1). Структура, состоящая из 21-го пика, наблюдается для моды TE_{22}^1 (21 пик для TM_{22}^1), 22 пика в области МШГ TE_{23}^1 (22 пика для TM_{23}^1) и 23 пика возле резонанса TE_{24}^1 . Необходимо заметить, что ширина спектральной области, занимаемой каждой системой m -пиков, значительно больше ширины соответствующих МШГ в спектрах не взаимодействующих СМ (рис. 7).

В результате аппроксимации формы полос m -мод с использованием функций Лоренца было обнаружено, что ширина полос m -резонансов всегда меньше в спектральной области СВ орбиталей, что отражает их большую добротность, и, следовательно, большее время жизни фотонов τ , по сравнению с резонансами, формирующими НСВ моды в спектрах ФМ. Однако наиболее важным является экспериментально обнаруженный факт, что добротность m -мод в спектре ФМ значительно превышает величину Q , измеренную для соответствующих МШГ не взаимодействующих СМ. Соответ-

ственно, время жизни фотонов в m -модах ФМ ($\tau_{ФМ}$) должно быть больше их времени жизни в МШГ отдельных СМ ($\tau_{СМ}$). Поскольку, как указывалось выше, обнаруженное явление имеет общий характер, и должно также наблюдаться также в спектрах пропускания ФМ, интегрированных в системы оптической коммуникации, обнаруженное различие добротности мод вместе с величиной спектрального интервала между СВ и НСВ модами ФМ ($\sim 5-7$ нм) указывают на возможность создания новых фотонных устройств, таких, как система оптической задержки с контролируемой спектральной и временной настройкой.

На рис. 8а показано спектральное распределение отношения времени жизни $\tau_{ФМ}$ к величине $\tau_{СМ}$, рассчитанного исходя из анализа соответствующих значений ширины полос в области МШГ TE_{21}^1 и TM_{20}^1 и демонстрирующее более чем трехкратное возрастание времени жизни фотона в модах ФМ. Из рис. 8 видно, что взаимодействие между СМ, формирующими ФМ приводит к возникновению спектра групповой задержки с пиками, соответствующими частоте каждого m -резонанса. При этом время задержки строго зависит от азимутального числа, возрастая с увеличением m для каждого фиксированного значения углового модового числа n .

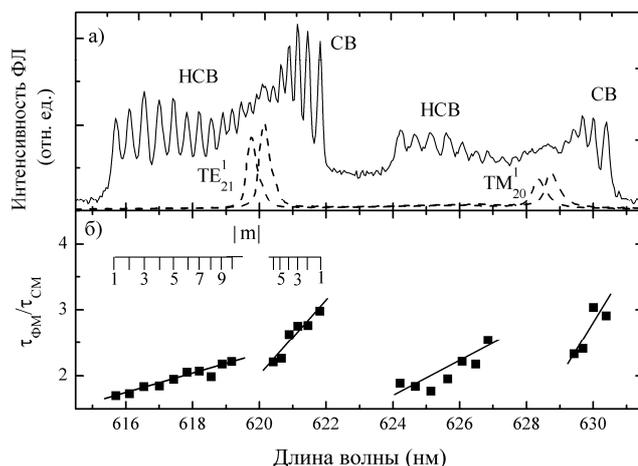


Рис. 8. Спектры ФЛ ФМ (сплошная кривая) состоящей из двух СМ, спектры которых показаны штриховыми кривыми (а). Отношение времени жизни фотонов в m -модах ФМ к величине времени жизни в МШГ отдельных СМ (б).

Дальнейший анализ зависимости относительного возрастания времени жизни фотонов в модах ФМ $R = \tau_{ФМ}/\tau_{СМ}$ с ростом азимутального числа m (рис. 8б), выполненных в широкой области изменения значения n , позволил обнаружить, что в свою очередь, величина изменения этого отношения ($\Delta R/\Delta m$) зависит линейно от n (рис. 9, вставка).

В данной работе явление сильной когерентной связи в спектрах ФМ экспериментально исследовано в видимой и ближней инфракрасной частях спектра, которые находятся за пределами спектральной области, в которой работают современные устройства передачи и обработки оптической информации. Для исследования возможности использования ФМ как элемента оптической задержки, работающего в области коммуникационных частот, был проведен теоретический анализ структуры m -резонансов расположенных в пределах так называемой С-полосы в области между 1525 и 1565 нм, с использованием метода ПМЗ (уравнения 11-13) и зависимость отношения $\Delta R/\Delta m$ от значения числа n ,

полученную из экспериментальных данных (рис.9). При этом зависимость $\Delta R/\Delta m$ как функция n была экстраполирована в спектральную область С-полосы.

На рис. 10а представлены результаты расчета интервала между соседними m -модами Δx , выполненного в спектральной области С-полосы для случая ФМ образованной двумя стеклянными СМ с размерами 10 мкм (кривая 3), 12 мкм (кривая 2) и 16 мкм (кривая 1). Указанные размеры СМ были выбраны, принимая во внимание существующие стандарты (40 - 100 ГГц) на величину интервала между отдельными каналами в современных телекоммуникационных системах [34]. В выполненных расчетах каждый m – резонанс в спектре ФМ рассматривался как отдельный волноводный канал. При этом частотный интервал между такими каналами зависел от размера СМ и значения азимутального числа МШГ.

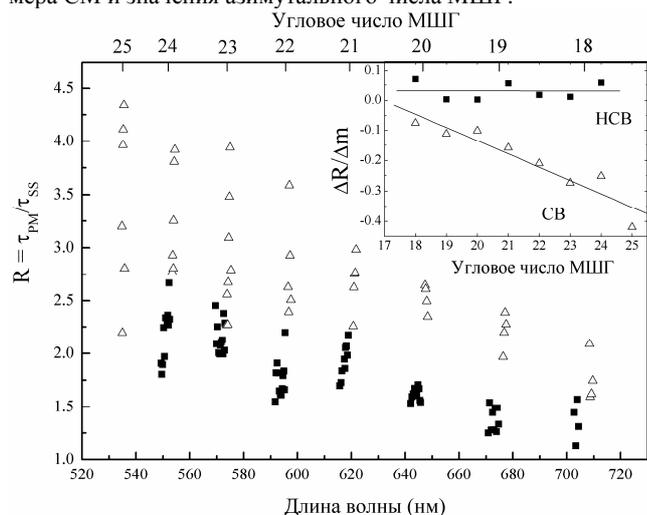


Рис. 9. Отношение времени жизни фотонов в m -модах ФМ к величине времени жизни в МШГ отдельных СМ. На вставке показана зависимость отношения $(\Delta R/\Delta m)$ от углового числа n .

В случае 10-микронного размера СМ, только одна ТЕ мода ($\lambda_{24} = 1542,4$ нм) была обнаружена в заданной спектральной области (кривые 3 на рис.10). Для ФМ, образованной двумя такими СМ, было получено значение максимального спектрального интервала между СВ и НСВ модами (т.е. для $m = 1$) $\Delta x_{\max} = 15,7$ нм. Расчеты положения МШГ для СМ размером 16 мкм позволили обнаружить 2 моды в области С-полосы: TE_{40} ($\lambda = 1544,6$ нм) и TM_{39} ($\lambda = 1559,6$ нм). В этом случае величина Δx_{\max} оказалась меньше (8.8 нм для TE_{40}), чем для 10-микронных СМ, однако в ее пределах было обнаружено большее количество m -резонансов (рис.10, кривые 3). Полученные результаты ясно показывают, что два СМ с близкими по длине волны и добротности МШГ в режиме сильной когерентной связи генерируют структуру мод с контролируемым числом пиков, расположенных в области длин волн современных телекоммуникационных систем. В противоположность случаю отдельно взятых СМ, полоса пропускания предложенного устройства задержки оптического сигнала может быть сравнимой по ширине с рабочей областью пропускания любой из коммуникационных областей в зависимости от размера используемых СМ формирующих ФМ.

На рис. 10 также представлены результаты расчета распределения времени задержки между m -резонансами ФМ. В качестве исходных времен жизни фотонов, в отдельно взятых

СМ, были использованы значения $\tau_{SM} = 55$ пс для TE_{40}^1 , 3 пс для TE_{29}^1 и 0.9 пс для TE_{24}^1 полученные из теоретического анализа формы МШГ, в основе которого лежит классическая теория рассеяния света микроскопическими частицами сферической формы. При этом мы допускаем, что полученные значения времени задержки $\tau_{ФМ}$, рассчитанные таким методом являются заниженными, вследствие существенной разницы в величине добротности, которую можно достичь в экспериментальных условиях для 3-х микронных СМ и микросфер с размерами 10-16 микрометров. Недавние экспериментальные данные однозначно указывают на наличие сильной зависимости величины добротности m – резонансов, и, следовательно, времен жизни фотонов, от добротности СМ формирующих ФМ [30,32,35,36].

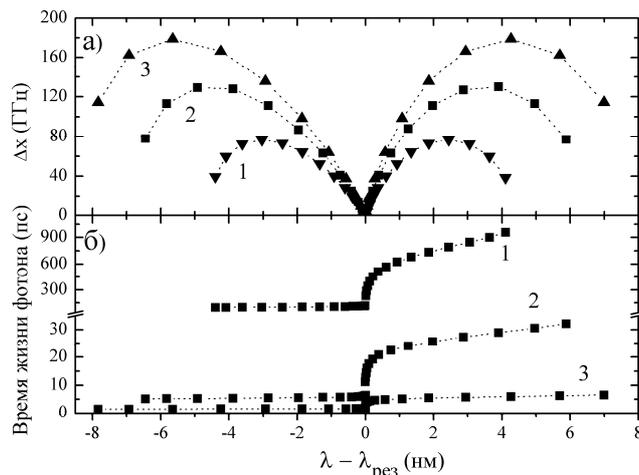


Рис. 10. Величина спектрального интервала между соседними m -модами Δx рассчитанная для области, соответствующей С-полосе (а), для случая ФМ из двух стекляннх СМ с размерами 10 мкм (3), 12 мкм (2) и 16 мкм (1). Рассчитанное спектральное распределение времени жизни фотона (времени задержки оптического сигнала) между соответствующими m -модами ФМ (б). Нулевая отметка на шкале длин волн соответствует положению МШГ TE_{24} (3), TE_{29} (2) and TE_{40} (1), рассчитанных для случая несвязанных СМ.

Наблюдаемая неоднородность интервала между соседними m -модами (рис.9, рис.10а) дает уникальную возможность для контроля распределения времени жизни фотонов в заданной области спектра (рис.10б). Для всех размеров СМ, исследованных в данной работе, величина Δx возрастает в области трех первых m – резонансов, затем в распределении Δx наблюдается провал с последующим возрастанием (рис.10а). Следует заметить, что этот теоретический результат, по крайней мере, качественно, подтверждается экспериментальными данными [30]. Как показывают расчеты, для СМ наименьшего размера, в пределах 12 – 200 ГГц расположены 18 m -мод. Вследствие низкой добротности МШГ отдельных СМ, для такой ФМ наблюдается относительно небольшое возрастание времени задержки – от 1.5 пс (значения полученного для НСВ моды с $m = 1$) до 7 пс - величины задержки, полученной для соответствующего m -резонанса, принадлежащего СВ моде. В случае СМ большего размера, число мод, находящихся в указанном интервале частот, возрастает. Так для 12-мкм связанных СМ в данной области находится уже 20 m -резонансов, с наибольшим значением интервала между соседними модами ~ 130 ГГц. Время задержки оптического сигнала, распреде-

ленное между этими модами возрастает от 5 пс до 32 пс. Верхний предел межмодового интервала Δx еще больше уменьшается для ФМ, образованной из двух 16-мкм СМ. В этом случае в заданной спектральной области наблюдаются 22 m -резонанса, величина Δx варьируется между 12 и 76 ГГц, а время жизни фотонов возрастает от 94 пс до 960 пс (рис. 10а). Интересно, что максимальное значение $\tau_{ФМ}$, полученное для двух когерентно связанных 16-мкм СМ, соответствует параметрам, которые являются характерными для Si:SiO₂ волноводной линии задержки длиной ~ 15 см.

4. Заключение

Рассматривая полученные в данной работе результаты, мы хотели бы сделать несколько общих выводов. В режиме слабой связи между отдельными СМ взаимодействие МШГ приводит к передаче оптического сигнала за счет волноводных свойств ФМ. В режиме сильной когерентной связи, ФМ генерирует структуру мод, добротность которых (как и время жизни фотонов) выше, чем в случае отдельных, невзаимодействующих СМ. В результате анализа тонкой структуры СВ и НСВ мод ФМ в настоящей работе предложена новая концепция для возможного практического использования связанных СМ в качестве многоканальной системы оптической задержки с возможностью тонкой настройки по длине волны. В предложенной методике ширина полосы пропускания, величина спектрального интервала между каналами и время задержки оптического сигнала определяются только физическими параметрами взаимодействующих СМ и не зависят от частоты модуляции коммуникационного сигнала.

Авторы благодарят к.х.н. А. Рогача и к.х.н. Н. Гапоника за предоставленные образцы, а также к.ф.-м.н. Т. Перову за помощь в проведении экспериментов.

СПИСОК ИСПОЛЬЗОВАННЫХ ИСТОЧНИКОВ

- Artemyev, M.V. and U. Woggon, Quantum dots in photonic dots. //Appl. Phys. Lett., 2000. № 76(11). P. 1353-1355.
- Klimov, V.I. and M.G. Bawendi, Ultrafast Carrier Dynamics, Optical Amplification, and Lasing in Nanocrystals Quantum Dots. //MRS Bulletin, 2001. № 26(12). P. 998-1004.
- Fan, X.D., et al., Enhanced spontaneous emission from semiconductor nanocrystals embedded in whispering gallery optical microcavities. //Phys. Rev. B, 2001. № 64(11). P. 115310-1/4.
- Artemyev, M.V., et al., Light Trapped in a Photonic Dot: Microspheres Act as a Cavity for Quantum Dot Emission. //Nano Lett., 2001. № 1(6). P. 309-314.
- Artemyev M.V. and Woggon U., Quantum dots in photonic dots. //Appl. Phys. Lett., 2000. № 76(11). P. 1353-1355.
- Artemyev M.V., et al., Light Trapped in a Photonic Dot: Microspheres Act as a Cavity for Quantum Dot Emission. //Nano Lett., 2001. № 1(6). P. 309-314.
- Fan X.D., et al., Enhanced spontaneous emission from semiconductor nanocrystals embedded in whispering gallery optical microcavities. //Phys. Rev. B, 2001. № 64(11). P. 115310-1/4.
- V.I. Klimov and M.G. Bawendi, Ultrafast Carrier Dynamics, Optical Amplification, and Lasing in Nanocrystals Quantum Dots. //MRS Bulletin, 2001. № 26(12). P. 998-1004.
- Bayer M., et al., Optical modes in photonic molecules. //Phys. Rev. Lett., 1998. № 81(12). P. 2582-2585.
- Chang, R.K. and A.J. Campillo, Optical Processes in Microcavities. //Advanced Series in Applied Physics. Vol. 3. 1996, Singapore: World Scientific. 448.
- Eisberg, P. and R. Resnick, Quantum Physics of Atoms, Molecules, Solids, Nuclei and Particles. /2nd ed. 1985, New York: John Wiley & Sons, Inc.
- Lidorikis, E., et al., Tight-binding parametrization for photonic band gap materials. //Phys. Rev. Lett., 1998. № 81(7). P. 1405-1408.
- Arnold, S., et al., Room-temperature microparticle-based persistent hole-burning spectroscopy. // J. Opt. Soc. Am. B, 1992. № 9(5). P. 819-824.
- Chang R.K. and Campillo A.J., Optical Processes in Microcavities. //Advanced Series in Applied Physics. Vol. 3. 1996, Singapore: World Scientific. 448.
- Fuller K.A., Optical Resonances and Two-Sphere Systems. //Appl. Opt., 1991. № 30(33). P. 4716-4731.
- Mukaiyama T., et al., Tight-Binding Photonic Molecule Modes of Resonant Bispheres. //Phys. Rev. Lett., 1999. № 82(23). P. 4623-4626.
- Arnold S., et al., Morphological resonances detected from a cluster of two microspheres. //Opt. Lett., 1994. №19(3). P. 156-8.
- Hara Y., et al., Photonic molecule lasing. //Opt. Lett., 2003. №28(24). P. 2437-2439.
- Möller B.M., et al., Photonic molecules doped with semiconductor nanocrystals. //Phys. Rev. B, 2004. № 70. P. 115323-1/5.
- Rakovich Y.P., et al., Confined optical modes in small photonic molecules with semiconductor nanocrystals. //J. Appl. Phys., 2004. № 96(11). P. 6761-6765.
- Rakovich Y.P., et al., Fine structure of coupled optical modes in photonic molecules. //Phys. Rev. A, 2004. № 70(5). P. 051801(R)-1/4.
- Barnes M.D., et al., Three-dimensional photonic "molecules" from sequentially attached polymer-blend microparticles. //Phys. Rev. Lett., 2002. № 88(1). P. 015508/1-4.
- Miyazaki H. and Jimba Y., Ab initio tight-binding description of morphology-dependent resonance in a bisphere. //Phys. Rev. B, 2000. № 62(12). P. 7976-7997.
- Bohren, C.F. and D.R. Huffman, Absorption and scattering of light by small particles. / New York; Chichester 1983.; Wiley. 530.
- Chylek, P., Resonance structure of Mie scattering: distance between resonances. //J. Opt. Soc. Am. A, 1990. №7(9). P. 1609-1613.
- Kerker, M., The scattering of light and other electromagnetic radiation. /New York; London 1969, Academic P. 665.
- Hunter, B.A., M.A. Box, and B. Maier, Resonance structure in weakly absorbing spheres. //J. Opt. Soc. Am. A, 1988. № 5(8). P. 1281-1286.
- Srinivasarao, M., et al., Three-dimensionally ordered array of air bubbles in a polymer film. //Science, 2001. №292(5514). P. 79-83.
- Miyazaki, H. and Y. Jimba, Ab initio tight-binding description of morphology-dependent resonance in a bisphere. //Phys. Rev. B, 2000. № 62(12). P. 7976-7997.
- Rakovich, Y.P., et al., Fine structure of coupled optical modes in photonic molecules. //Phys. Rev. A, 2004. № 70(5). P. 051801(R)-1/4.
- Möller, B.M., et al., Photonic molecules doped with semiconductor nanocrystals. //Phys. Rev. B, 2004. № 70. P. 115323-1/5.
- Rakovich, Y.P., et al., Confined optical modes in small photonic molecules with semiconductor nanocrystals. //J. Appl. Phys., 2004. № 96(11). P. 6761-6765.
- Weisbuch, C., H. Benisty, and R. Houdre, Overview of fundamentals and applications of electrons, excitons and photons in confined structures. //J. Lumin., 2000. № 85(4). P. 271-293.
- Gumaste, A. and T. Antony, DWDM Network Designs and Engineering Solutions. /2002, Indianapolis: Cisco Press.
- Rusakov, K.I., et al., Control of efficiency of photon energy up conversion in CdSe/ZnS quantum dots. //Opt. Spectr., 2003. № 94(6). P. 921-925.
- Rusakov, K.I., et al., Modification of photon states in photonic molecules with semiconductor nanocrystals. //Opt. Spectr., 2005. № 99(3). P. 483-487.