

ФЕДЕРАЛЬНОЕ АГЕНТСТВО ПО ОБРАЗОВАНИЮ
ГОСУДАРСТВЕННОЕ ОБРАЗОВАТЕЛЬНОЕ УЧРЕЖДЕНИЕ ВЫСШЕГО
ПРОФЕССИОНАЛЬНОГО ОБРАЗОВАНИЯ
ИРКУТСКИЙ ГОСУДАРСТВЕННЫЙ УНИВЕРСИТЕТ
(ГОУ ВПО ИГУ)
КАФЕДРА ОБЩЕЙ ФИЗИКИ

Е.Ф. Мартынович

**Эффект пространственной модуляции
интенсивности люминесценции кристаллов**

Методическое пособие

Иркутск 2005 г

Печатается по решению учебно-методического совета ГОУ ВПО
Иркутского государственного университета

Составитель Е.Ф. Мартынович:

доктор физ. – мат. наук,
профессор

Эффект пространственной модуляции интенсивности люминесценции кристаллов. Методическое пособие – Иркутск: Иркутский филиал института лазерной физики СО РАН, ИГУ, 2005 – с. 21

Пособие содержит лабораторную работу по разделу физика твёрдого тела и оптика. Предназначено для студентов физических специальностей вузов.

Иркутский филиал Института
лазерной физики СО РАН, 2005
Иркутский государственный
Университет, 2005.

ЛАБОРАТОРНАЯ РАБОТА

ЭФФЕКТ ПРОСТРАНСТВЕННОЙ МОДУЛЯЦИИ ИНТЕНСИВНОСТИ ЛЮМИНЕСЦЕНЦИИ КРИСТАЛЛОВ

Необходимое оборудование:

1. Лазерный диод;
2. Лазерный микрочип, включающий лазерный кристалл, генератор второй гармоники и оптический резонатор;
3. Синий светодиод;
4. Полированные ориентированные образцы кристаллов фторида магния и сапфира, содержащих анизотропные квантовые системы, люминесцирующие при возбуждении излучением второй гармоники, а также синего светодиода;
5. Цифровой фотоаппарат;
6. Оптический столик;
7. Юстировочный механизм для установки и юстировки кристаллов.

Цель работы - изучение механизма взаимодействия поляризованного лазерного излучения с анизотропными квантовыми системами в двулучепреломляющих кристаллах, анализ природы эффекта пространственно-периодической модуляции интенсивности люминесценции таких кристаллов. При выполнении данной работы ставится также цель закрепления и углубления знаний по таким смежным вопросам как двойное лучепреломление света в кристаллах, двойное поглощение, симметрия кристаллов, ориентация находящихся в них квантовых систем, которые могут служить рабочими центрами лазерных сред и насыщающихся поглощающих кристаллических оптических материалов. Студенты получают знания, необходимые для построения тензоров диэлектрической проницаемости кристаллов и электрической восприимчивости внедренных в них анизотропных квантовых систем, оценят значение диаграммы направленности излучения элементарных излучателей в механизме эффекта пространственной модуляции интенсивности люминесценции.

КРАТКАЯ ТЕОРИЯ ЭФФЕКТА

1. Схема наблюдения эффекта

Схема наблюдения эффекта пространственной модуляции интенсивности люминесценции кристаллов довольно проста [1,2]. Для его наблюдения необходимо иметь люминесцирующий анизотропный кристалл с полированными гранями. Через одну из граней направляется лазерное излучение, возбуждающее люминесценцию. Через другую грань в направлении, перпендикулярном направлению распространения возбуждающего излучения, наблюдают люминесценцию. При соответствующей природе квантовых систем, ответственных за люминесценцию, и некоторых других условиях люминесценция может наблюдаться в виде периодически чередующихся ярких и темных слоев. Правильнее будет сказать, что люминесценция имеет пространственно-периодическую модуляцию интенсивности в направлении распространения возбуждающего излучения. На *рис. 1* показана схема наблюдения эффекта, показано также, что период модуляции изменяется в зависимости от величины угла между оптической осью и направлением распространения излучения.

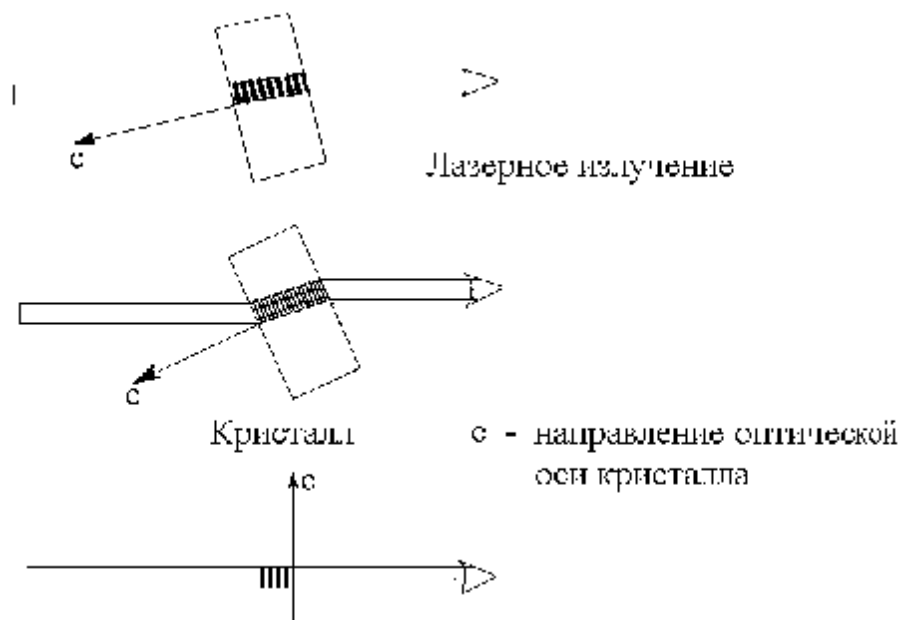


Рис.1. Схема наблюдения эффекта пространственной модуляции интенсивности люминесценции кристаллов

2. Исходные уравнения

Описанный эффект является результатом своеобразной комбинации следующих явлений и свойств, реализующихся при взаимодействии излучения с веществом:

- двойного лучепреломления возбуждающего излучения в кристалле, которое определяется главным образом формулой симметрии кристалла, видом и величиной компонентов тензора его диэлектрической проницаемости;
- поглощения света квантовыми системами, ответственными за люминесценцию, которое в существенной мере определяется формулой симметрии кристалла и тензором электрической восприимчивости квантовых систем;
- спонтанного излучения квантовых систем с учетом диаграммы его направленности.

При описании пространственной картины распределения плотности возбуждения анизотропных кристаллов, мы ограничимся резонансным взаимодействием содержащихся в них поглощающих центров с оптическим излучением. Это могут быть центры различной природы, например, центры окраски, примесные ионы с локальной компенсацией заряда, молекулярные ионы и др. Система уравнений движения, описывающих такое взаимодействие, должна включать дифференциальные уравнения для электрической поляризации среды, концентраций центров и волновое уравнение для поля. При составлении такой системы необходимо учитывать тензорные свойства кристаллов, реальные ориентации дипольных моментов переходов в изучаемых центрах, знать энергии этих переходов. При изложении теории эффекта ограничимся рассмотрением кристаллов средней категории, т.е. кристаллов, обладающих одной оптической осью.

В качестве исходных уравнений используем уравнения движения для дипольного момента поглощающих центров

$$\langle \mathbf{m}_i \rangle + \frac{2}{T_2} \langle i\mathbf{m}_i \rangle + \Omega^2 \langle m_i \rangle = \frac{2\Omega}{\hbar} (\mathbf{r}_{11} - \mathbf{r}_{22}) \cdot (\mathbf{m}_i \mathbf{m}_j^*) E_j \quad (1)$$

$$i, j = x, y, z$$

и для диагональных элементов матрицы оператора плотности

$$\frac{\partial}{\partial t} (\mathbf{r}_{11} - \mathbf{r}_{22}) + \frac{(\mathbf{r}_{11} - \mathbf{r}_{22}) - (\mathbf{r}_{11} - \mathbf{r}_{22})^e}{T_1} = -\frac{2}{\hbar W} \langle i\mathbf{m}_i \rangle E_i \quad (2)$$

полученные для двухуровневых квантовых систем, взаимодействующих друг с другом, с излучением и с термостатом, под которым понимается весь кристалл, исключая рассматриваемые квантовые системы, люминесценцию которых мы описываем [3]. Здесь m_i - i -тая координатная компонента оператора дипольного момента частицы, r_{11} и r_{22} - диагональные элементы матрицы плотности, T_1 и T_2 - постоянные времени энергетической и фазовой релаксации соответственно, W - частота перехода, E_i - i -тая координатная компонента поля, L - поправочный множитель для локального поля, \hbar -

постоянная Планка. Угловые скобки означают квантовомеханическое усреднение, знак e помечает равновесное значение величины, над которой он стоит.

Кристаллы, для которых проводился расчет, и которые используются в экспериментах - это немагнитные диэлектрики, содержащие собственные или примесные поглощающие и люминесцирующие центры. Распространение света в таких кристаллах описывается волновым уравнением, скомбинированным из уравнений Максвелла. Поскольку рассматриваемые нами дефекты связаны с возбуждением поглощающих центров, исходные уравнения должны учитывать поглощение излучения. Для этого в литературе используются различные подходы.

Например, в [4] поглощение учитывается введением в уравнение Максвелла феноменологической проводимости диэлектрика. В [3] поглощение, обусловленное квантовыми переходами в рассматриваемых центрах, учитывается введением поляризации \bar{P} , обусловленной этими переходами:

$$\bar{D} = e_0 \bar{E} + \bar{P}_a + \bar{P} = e_0 \bar{E} + e_0 c_a \bar{E} + \bar{P} = e_0 (1 + c_a) \bar{E} + \bar{P} = e \bar{E} + \bar{P}$$

где \bar{D} - вектор электрической индукции, \bar{P}_a - поляризация кристалла, не связанная с рассматриваемым поглощающим переходом, c_a - тензор восприимчивости, определяющий эту поляризацию, e_0 - электрическая постоянная, e - тензор диэлектрической проницаемости, не учитывающий рассматриваемый переход. Здесь в дальнейших расчетах тоже будет выделена поляризация, обусловленная рассматриваемым переходом аналогично [3], а другими потерями будем пренебрегать, учитывая, что при отсутствии примесных центров или центров окраски кристаллы прозрачны, как, например, прозрачны кристаллы лейкосапфира в видимой области спектра.

Таким образом, для наших условий уравнения Максвелла имеют вид:

$$\begin{aligned} \bar{\nabla} \bar{B} &= 0 & \bar{\nabla} \bar{D} &= 0 \\ \bar{\nabla} \times \bar{H} &= \frac{\partial \bar{D}}{\partial T} & \bar{\nabla} \times \bar{E} &= -\frac{\partial \bar{B}}{\partial T} \\ \bar{B} &= m_0 \bar{H} & \bar{D} &= e \bar{E} + \bar{P} \end{aligned} \quad (3)$$

а соответствующее им волновое уравнение, полученное обычным путем,

$$\bar{\nabla} \times (\bar{\nabla} \times \bar{E}) + m_0 (e + e_0 c) \bar{E} = 0 \quad (4)$$

Для выяснения условий, при которых плотность возбуждения имеет пространственно-периодический характер, рассмотрим несколько моделей кристалла, отличающихся распределением поглощающих центров по ориентациям их дипольных моментов переходов. Обычно при исследовании взаимодействия излучения с поглощающими центрами в анизотропных кристаллах, например, с центрами окраски, конкретная ориентация их дипольных моментов не известна. Однако число возможных ориентаций, их взаимное положение определяются точечной группой или классом симметрии кристалла. Так, кристаллы сапфира, имеющие формулу симметрии L_3L_23PC , относятся к аксиально-центральному (планаксиальному) классу $3m$ (D_{3d} , по Шенфлису) тригональной сингонии, средней категории [5]. Любая возможная ориентация дипольного момента перехода в этих кристаллах будет размножена до трех ориентаций, благодаря наличию оси симметрии третьего порядка L_3 . Их проекции на плоскость, перпендикулярную оптической оси будут ориентированы под углом 120° . Благодаря отражению в плоскостях $3P$ появятся еще три возможных ориентации. Все они показаны на *рис. 2*. Эти шесть возможных ориентаций будут определять свойства тензора восприимчивости данных кристаллов. Более простой случай осесимметричного распределения реализуется, если совмещаются два треугольника на *рис. 2* и получится картина, показанная на *рис. 3*. Очевидно, что при равновероятном распределении центров по ориентациям, показанным на *рис. 2* и *3*, направления главных осей тензоров диэлектрической проницаемости и электрической восприимчивости совпадут. Это характерно для кристаллов средней категории. Рассмотренная ниже первая модель для расчета соответствует этому случаю.

3. Зависимость поглощаемой мощности от расстояния в кристалле при совпадении направлений главных осей тензоров ϵ и σ .

На *рис. 4* показано взаимное расположение оптической оси с кристалла, осей координат, волнового \vec{k} и лучевого \vec{S} векторов, векторов поля \vec{D} и \vec{E} и их компонент для обыкновенной (индекс o) и необыкновенной (индекс e) волн, показаны углы, определяющие ориентацию соответствующих векторов и осей.

Используя систему исходных уравнений (1) и рассматривая отдельные группы (ориентации) поглощающих центров, показанные на *рис. 3*, конкретизируем вид правых частей этих уравнений. Например, для группы центров с ориентацией 2 уравнения для координатных компонент m_i имеют вид:

$$\langle \mathbf{m}_x \rangle + \frac{2}{T_2} \langle \mathbf{m}_x \rangle + W^2 \langle \mathbf{m}_x \rangle = \frac{2pW}{\mathbf{h}} L(\mathbf{r}_{11} - \mathbf{r}_{22}) \frac{|m_{12}|^2}{2} \times$$

$$\times \left(\frac{3}{2} E_x \sin^2 b_m + \frac{\sqrt{3}}{2} E_y \sin^2 b_m - \sqrt{3} E_z \sin b_m \cdot \cos b_m \right)$$

Записывая аналогичные уравнения для других групп центров, переходя от дипольных моментов $\langle \mathbf{m}_i \rangle$ к поляризации P_i и производя усреднение по ориентациям, получим следующие уравнения:

$$\mathbf{m}_x + \frac{2}{T_2} \mathbf{m}_x + \Omega^2 P_x = \frac{2\Omega}{\mathbf{h}} L(N_1 - N_2) \cdot |m_{12}|^2 \frac{1}{2} E_x \sin^2 b_m$$

$$\mathbf{m}_y + \frac{2}{T_2} \mathbf{m}_y + \Omega^2 P_y = \frac{2\Omega}{\mathbf{h}} L(N_1 - N_2) \cdot |m_{12}|^2 \frac{1}{2} E_y \sin^2 b_m \quad (5)$$

$$\mathbf{m}_z + \frac{2}{T_2} \mathbf{m}_z + \Omega^2 P_z = \frac{2\Omega}{\mathbf{h}} L(N_1 - N_2) \cdot |m_{12}|^2 \frac{1}{2} E_z \sin^2 b_m$$

Подставляя в уравнения (5) как обычно P и E в виде комплексных, плоских, гармонических волн найдем тензор восприимчивости в следующем виде:

$$c = -\frac{P}{\mathbf{h}e_0} L|m_{12}|^2 (N_1 - N_2) \begin{pmatrix} \frac{1}{2} \sin^2 b_m & & \\ & \frac{1}{2} \sin^2 b_m & \\ & & \frac{1}{2} \cos^2 b_m \end{pmatrix} \cdot \tilde{g}(w) \quad (6)$$

где $\tilde{g}(w)$ - комплексная функция формы спектральной полосы. Волновое уравнение (4) для условий, принятых в данном разделе, приводит к обычному уравнению Френеля, в котором, выделены слагаемые, относящиеся к изучаемому квантовому переходу:

$$\left[\frac{c^2}{w^2} k^2 - (n_{\perp}^2 + c_{\perp}) \right] \cdot \left\{ (n_{\parallel}^2 + c_{\parallel}) \cdot \frac{c^2}{w^2} + (n_{\perp}^2 + c_{\perp}) \cdot (k_x^2 + k_y^2) \cdot \frac{c^2}{w^2} - (n_{\perp}^2 + c_{\perp}) \cdot (n_{\parallel}^2 + c_{\parallel}) \right\} = 0$$

где $n_{\perp}^2 = \frac{e_{\perp}}{e_0}$, $n_{\parallel}^2 = \frac{e_{\parallel}}{e_0}$, e_{\perp} и e_{\parallel} - диэлектрические проницаемости кристалла в направлениях поперек и вдоль оптической оси, соответственно. Это уравнение показывает, что в рассматриваемом случае в кристалле, как обычно, будут существовать две волны, обыкновенная и необыкновенная, а величина

действительной и мнимой частей модуля волнового вектора для этих волн определяется следующим выражением:

$$k'_0 = \frac{w \cdot n_{\perp}}{c} \left(1 + \frac{c'_{\perp}}{2n_{\perp}^2} \right),$$

$$k''_0 = \frac{wc''_{\perp}}{2cn_{\perp}},$$

$$k'_e = \frac{wn_{\perp}n_{\parallel}}{c} \cdot \frac{\left(n_{\perp}^2 + \frac{n_{\perp}^2}{2n_{\parallel}^2} c'_{\parallel} \right) \sin^2 q + \left(n_{\parallel}^2 + \frac{n_{\parallel}^2}{2n_{\perp}^2} c'_{\perp} \right) \cos^2 q}{\left(n_{\perp}^2 \sin^2 q + n_{\parallel}^2 \cos^2 q \right)^{3/2}} \quad (7)$$

$$k''_e = \frac{w}{2cn_{\parallel}n_{\perp}} \cdot \frac{n_{\perp}^4 c''_{\parallel} \sin^2 q + n_{\parallel}^4 c''_{\perp}}{\left(n_{\perp}^2 \sin^2 q + n_{\parallel}^2 \cos^2 q \right)^{3/2}} \quad (8)$$

Полученные значения k'_o, k'_e, k''_o, k''_e численно определяют величины показателей преломления и коэффициентов поглощения для двух распространяющихся в кристалле световых волн с учетом влияния поглощающих центров на дисперсию кристалла.

Теперь, когда определены тензор восприимчивости и характеристики световых волн, можно найти зависимость поглощаемой мощности от расстояния, пройденного светом от поверхности кристалла. Мощность излучения, поглощаемого кристаллом в единице объема, определяется дивергенцией вектора Умова-Пойнтинга :

$$W = -div \bar{S} = \nabla \cdot (\bar{E} \times \bar{H}) = \bar{E} \cdot \bar{\mathcal{E}} \quad (9)$$

После временного усреднения по высокочастотным световым колебаниям это дает

$$W(r) = \frac{we_0}{2} Re \left[i (c'_{aa} + ic''_{aa}) \tilde{E}_a^* \tilde{E}_a \right] =$$

$$= \frac{we_0}{2} \left[c_{xx} E_x^2 e^{2\bar{k}_0 \bar{r}} + \left(c''_{yy} E_y^2 + c_{zz} E_z^2 \right) e^{2\bar{k}_e \bar{r}} \right] \quad (10)$$

где \tilde{E}_a - комплексная амплитуда, а E_a - действительная амплитуда. Если волновой вектор возбуждающего излучения k направлен по оси y , то:

$$2\bar{k}_0 \bar{r} = 2k_o y = -\Gamma_o y, \quad 2\bar{k}_e \bar{r} = 2k_e y = -\Gamma_e y,$$

где Γ_o и Γ_e - коэффициенты поглощения обыкновенной и необыкновенной волн кристаллом, соответственно. Полученное выражение (10) показывает, что для заданных условий, когда направления главных осей тензоров и совпадают, с увеличением расстояния происходит простое затухание поглощенной мощности, обусловленное ослаблением световых волн, распространяющихся в кристалле. Аналогично ведет себя плотность возбуждения кристалла, мерой которой можно избрать величину населенности второго уровня N_2 . Уравнение для разности населенностей уровней N_1 и N_2 получается из исходного уравнения (2) для диагональных элементов оператора плотности после усреднения по ориентациям:

$$\frac{\partial}{\partial t}(N_1 - N_2) + \frac{(N_1 - N_2) \cdot (N_1 - N_2)^e}{T_1} = -\frac{2}{\hbar W} W \quad (11)$$

или для стационарного случая

$$(N_1 - N_2) - (N_1 - N_2)^e = -\frac{2T_1}{\hbar W} W$$

Учитывая, что $N_2^e \approx 0$, $N_1^e \approx N_v$ и $N_v - N_1 = N_2$, получим

$$N_2 = \frac{T_1}{\hbar W} W$$

Мощность интегральной по направлениям люминесценции, выраженная через число квантов, равна

$$I(r) = aN_2(r) = \frac{aT_1}{\hbar W} W(r),$$

где a - вероятность излучательного перехода.

Таким образом, для заданных условий, когда главные оси тензоров совпадают, или другими словами, когда тензоры ϵ и χ имеют диагональный вид, поглощаемая мощность, плотность возбуждения вещества и интегральная по направлениям интенсивность люминесценции одинаково зависят от расстояния, пройденного излучением в кристалле, и эта зависимость для случая слабого линейного возбуждения просто определяется ослаблением излучения в соответствии с законом Бугера-Ламберта-Бера с учетом двойного поглощения, характерного для анизотропного кристалла. Никакой пространственной модуляции поглощенной кристаллом энергии или интенсивности излученной люминесценции в данной модели не возникает.

Если на этой стадии ограничить рассмотрение теории взаимодействия излучения с анизотропными кристаллами, можно сделать ошибочный вывод,

что теория не предсказывает модуляционных эффектов. Поэтому необходимо несколько углубить проводимый анализ. Для этого рассмотрим отдельно поглощение света и люминесценцию отдельных ориентационных групп квантовых систем.

4. Модуляция поглощенной мощности в отдельных ориентационных группах центров

Тензор восприимчивости отдельной ориентационной группы центров, направление дипольного момента квантовых переходов в которых по отношению к оптической оси задано произвольными углами b_m и h_m , имеет вид:

$$c = \frac{P}{\mathbf{h}e_0} L |m_{12}|^2 g(w) (N_1 - N_2) \times \begin{pmatrix} \sin^2 b_m \cos^2 h_m & \sin^2 b_m \cosh h_m \sinh h_m & \sin b_m \cosh h_m \cos b_m \\ \sin^2 b_m \cosh h_m \sinh h_m & \sin^2 b_m \sin^2 h_m & \sin b_m \sinh h_m \cos b_m \\ \sin b_m \cos b_m \cosh h_m & \cos b_m \sinh h_m \sin b_m & \cos^2 b_m \end{pmatrix} \quad (14)$$

При таком виде тензора восприимчивости усредненная по высокочастотным световым колебаниям поглощенная квантовыми системами мощность определяется выражением:

$$W(r) = \frac{w}{2} e_0 \sum_{a,b} \operatorname{Re} [i(c'_{ab} + ic''_{ab}) \tilde{E}^* \tilde{E}_b] = -\frac{we_0}{2} \left[c''_{xx} E_x^2 e^{2\bar{k}'r} + 2(c''_{xy} E_x E_y + c''_{xz} E_x E_z) e^{(\bar{k}' + \bar{k}'_2)r} \times \cos \bar{d}r + (2c''_{zy} E_z E_y + c''_{yy} E_y^2 + c''_{zz} E_z^2) e^{2\bar{k}'_2 r} \right]$$

где $\bar{d} = \bar{k}'_1 - \bar{k}'_2$ разность волновых векторов.

В отличие от рассмотренных ранее условий, при разной симметрии тензоров e и c кроме членов, плавно затухающих с коэффициентами поглощения $-2k'_1$ и $-2k'_2$, имеется перекрестный осциллирующий с расстоянием член, затухающий с коэффициентом поглощения $-(k'_1 - k'_2)$. Осциллирующее слагаемое отлично от нуля, когда отличны от нуля недиагональные компоненты тензора восприимчивости c''_{xy} и c''_{xz} , определенные в системе координат, построенной на главных осях тензора диэлектрической проницаемости кристалла средней категории.

Уравнение для разности населенностей поглощающих центров будет иметь тот же самый вид, что и уравнение (11). Мощность люминесценции,

излучаемой этими центрами по всем направлениям, тоже, как и ранее, будет определяться выражением

$$I(r) = \frac{aT_1}{h}$$

Отличие состоит лишь в том, что мощность люминесценции, как и поглощаемая мощность $P(r)$, как и населенность возбужденного состояния центров $N_2(r)$, будут осциллировать с расстоянием вдоль направления распространения излучения возбуждающего излучения.

Т.о. мы получили следующий результат. Мощность или энергия, поглощаемая центрами отдельных ориентационных групп, модулирована в пространстве. Вместе с тем полная мощность, поглощаемая центрами всех ориентационных групп, не имеет пространственной модуляции. Ниже будет показано, что это обусловлено фазовым сдвигом осцилляций в разных ориентационных группах, поэтому при суммировании по ориентациям осцилляции пропадают.

5. Расчет пространственно-периодической модуляции интенсивности люминесценции кристаллов с учетом диаграммы направленности излучения квантовых систем.

Выше было показано, что для осесимметричного распределения ориентаций поглощающих центров в кристаллах средней категории в линейном режиме поглощения, когда тензор восприимчивости имеет диагональный вид, поглощенная мощность не имеет периодических изменений с расстоянием. Однако это не означает, что нет осцилляций в отдельных ориентационных группах центров. Они есть, как показали приведенные выше результаты расчетов. Поэтому теперь с учетом диаграмм направленности излучения квантовых систем рассчитаем зависимости интенсивности люминесценции от расстояния u , пройденного возбуждающим излучением в кристалле, для произвольных углов наблюдения этой люминесценции. Фактически эта зависимость определяет вид возбужденного канала кристалла в свете люминесценции, т.е. вид той картины, которая наблюдается визуально экспериментатором. Наблюдение будем вести с достаточно большого расстояния R для того, чтобы все участки кристалла наблюдались практически под одним и тем же углом.

Величина вектора Умова-Пойнтинга для люминесцентного излучения в точке наблюдения от i -той группы одинаково направленных электрических диполей, находящихся на расстоянии R в волновой зоне, обратно пропорционально R и прямо пропорционально $\sin^2 g$:

$$S_{\mathcal{L}}^{(i)} = m^{(i)} \frac{\sin^2 g_i}{R^2}$$

где $m^{(i)}$ - коэффициент пропорциональности, а g_i - угол между направлением наблюдения и дипольным моментом. Функция $\sin^2 \gamma_i$ отражает учет диаграммы направленности излучения электродипольных квантовых систем. Для выражения этого коэффициента $m^{(i)}$ через определенную ранее величину усредненной по времени мощности, поглощаемой единицей объема кристалла \bar{P} , проведем нормировку, используя условие:

$$\int S_{\mathcal{L}}^{(i)} dS = AT_1 \bar{P}^{(i)} \quad (15)$$

где A - интегральный коэффициент Эйнштейна, dS - площадь элементарного сферического пояса на сфере радиуса R , а $\bar{P}^{(i)}$ относится лишь к одной рассматриваемой ориентации центров. Интегрируя (15) найдем:

$$2\pi m^{(i)} \cdot \int_0^{\pi} \sin^2 g_i dg_i = AT_1 \bar{P}^{(i)},$$

откуда

$$m^{(i)} = \frac{3AT_1}{8\pi} \bar{P}^{(i)}$$

Таким образом, центры каждой i -той ориентации дают величину вектора Умова-Пойнтинга для люминесцентного излучения, определяемую выражением

$$S_{\mathcal{L}}^{(i)} = \frac{3}{8\pi R^2} AT_1 \bar{P}^{(i)} \sin^2 g_i$$

Полная интенсивность люминесценции от центров всех ориентаций в точке наблюдения определяется выражением

$$I(r) = \sum_{i=1}^p S_{\mathcal{L}}^{(i)}(r) = \frac{3AT_1}{8\pi R^2} \sum_{i=1}^p \bar{P}^{(i)}(r) \sin^2 g_i \quad (16)$$

Как было показано выше, для каждой отдельной ориентации центров даже при слабых интенсивностях возбуждающего излучения, далеких от насыщения перехода имеются периодические изменения величины $\bar{P}^{(i)}(r)$. Вместе с тем выражение (10) показывает, что при учете всех ориентаций в результате суммирования периодические осцилляции $\bar{P}^{(i)}(r)$ исчезли, взаимно компенсировались. Сейчас же при наблюдении люминесценции, в соответствии с выражением (16), суммирование $\bar{P}^{(i)}$ производится с весовыми

множителями $\sin^2 g_i$. Углы γ_i для различных ориентаций различны. Поэтому при суммировании уже не происходит взаимной компенсации периодических изменений, характерных для отдельных ориентаций. Следовательно, даже в случае обычного слабого возбуждения пространственная зависимость интенсивности люминесценции носит периодический характер.

Углы γ_i -это углы между направлением дипольного момента центров i -той ориентации и направлением наблюдения. Направления дипольных моментов мы задаем углами h_m и b_m . В той же системе координат направление наблюдения будем задавать углом η_R , отсчитываемым в плоскости XU от оси X , и углом β_R , отсчитываемым от оси Z . Тогда полная интенсивность люминесценции в точке наблюдения через указанные углы выражается следующим образом:

$$I(r) = \frac{3AT_1}{8pR^2} \sum_{i=1}^p P^{(i)}(r) q_i(h_R, b_R, b_m, h_m), \quad (17)$$

где

$$q_i(h_R, b_R, h_m, b_m) = 1 - [\cos b_R \cos b_m + \sin b_R \sin b_m \cos(h_R - h_m)]^2$$

При нахождении выражения для q использовалось геометрическое построение, приведенное на *рис.5*, где указаны также обозначения углов.

Для пояснения описанных выше свойств люминесценции, вытекающих из общего выражения (17), приведем несколько примеров. Пусть дипольные моменты переходов направлены так, как показано на *рис.6* ($\beta_m = \pi/4$). Световая волна распространяется вдоль оси Y , а электрический вектор ориентирован под углами $\beta_E = \pi/4$, $\eta_E = 0$. Мощности излучения, поглощаемого в линейном режиме центрами отдельных ориентаций, определяются следующими выражениями:

$$W^{(1)}(r) = -\frac{e_0 \omega c_0'' E^2}{2} \left(\frac{1}{4} e^{2\bar{k}_1 \bar{r}} + \frac{1}{2} e^{(\bar{k}_1 + \bar{k}_2) \bar{r}} \cos \bar{d} \bar{r} + \frac{1}{4} e^{2\bar{k}_2 \bar{r}} \right),$$

$$W^{(2)}(r) = -\frac{e_0 \omega c_0'' E^2}{2} \left(\frac{1}{16} e^{2\bar{k}_1 \bar{r}} - \frac{1}{4} e^{(\bar{k}_1 + \bar{k}_2) \bar{r}} \cos \bar{d} \bar{r} + \frac{1}{4} e^{2\bar{k}_2 \bar{r}} \right),$$

$$W^{(3)}(r) = -\frac{e_0 \omega c_0'' E^2}{2} \left(\frac{1}{16} e^{2\bar{k}_1 \bar{r}} - \frac{1}{4} e^{(\bar{k}_1 + \bar{k}_2) \bar{r}} \cos \bar{d} \bar{r} + \frac{1}{4} e^{2\bar{k}_2 \bar{r}} \right).$$

Из этих выражений следует, что осциллирующие слагаемые при суммировании действительно исчезают, взаимно компенсируются:

$$W(r) = \sum_{i=1}^3 R^{(i)}(r) = \frac{\epsilon_0 \omega c_0'' E^2}{2} \left(\frac{3}{8} e^{2\bar{k}_1'' r} + \frac{3}{4} e^{2\bar{k}_2'' r} \right) \quad (18)$$

Компенсация периодических изменений происходит потому, что для центров с ориентациями 2 и 3 они происходят в противофазе, по сравнению с изменениями в ориентации 1. Это демонстрируется на рис.6, где показаны соответствующие зависимости для начальных участков кристалла, удовлетворяющих неравенству:

$$r \ll \frac{1}{k_1'' + k_2''}$$

При определении зависимостей интенсивности люминесценции кристалла в соответствии с выражением (17) для различных направлений предварительно найдем значения множителей q_i . Для ряда направлений эти значения приведены в таблице 1.

Таблица 1. Весовые множители q_i для различных направлений наблюдения.

Номер направления	Углы, определяющие направление		q_1	q_2	q_3
	β_R	η_R			
1	0	-	0,5	0,5	0,5
2	$\pi/2$	0	0,5	0,875	0,875
3	$\pi/4$	0	0	0,9375	0,9375
4	$\pi/4$	$2\pi/3$	0,9375	0	0,9375

Полученные зависимости интенсивностей суммарной по ориентациям излучающих центров люминесценции от расстояния для указанных в таблице 1 направлений наблюдения, имеют следующий вид:

$$I_1(r) = G \left[\frac{3}{16} e^{2k_1'' r} + \frac{3}{8} e^{2k_2'' r} \right],$$

$$I_2(r) = G \left[\frac{15}{64} e^{2k_1'' r} - \frac{6}{32} e^{(k_1'' + k_2'') r} \cos dr + \frac{9}{16} e^{2k_2'' r} \right],$$

$$I_3(r) = G \left[\frac{15}{128} e^{2k_1'' r} - \frac{15}{32} e^{(k_1'' + k_2'') r} \cos dr + \frac{15}{32} e^{2k_2'' r} \right],$$

$$I_4(r) = G \left[\frac{75}{256} e^{2k_1' r} - \frac{15}{64} e^{(k_1' + k_2') r} \cos dr + \frac{15}{32} e^{2k_2' r} \right],$$

где

$$G = \frac{3we_0 c_0'' AT_1}{16pR^2},$$

а величина c_0'' включает множителем не полную концентрацию центров N_V , а лишь концентрации центров одной ориентации, т.е. $N_V/3$. Для использованных условий возбуждения периодические изменения отсутствуют лишь при наблюдении люминесценции вдоль оптической оси (направление 1), т.к. в этом случае весовые множители для центров всех ориентаций одинаковы. В других случаях суммарная интенсивность люминесценции периодически изменяется с расстоянием, в отличие от суммарной поглощаемой мощности (18), которая постоянна. Полученные зависимости показаны на рис.7 для начального участка кристалла, где еще не существенно ослабление возбуждающего излучения с расстоянием, из-за его поглощения кристаллом.

Период осцилляций интенсивности люминесценции связан с направлением волнового вектора луча выражением

$$L = \frac{2pc}{wn_{\perp}} \cdot \left| 1 + \frac{c'_{\perp}}{2n_{\perp}^2} - n_{\parallel} \frac{\left(n_{\perp}^2 + \frac{n_{\perp}^2 c'_{\parallel}}{2n_{\parallel}^2} \right) \sin^2 b_k + \left(n_{\parallel}^2 + \frac{n_{\parallel}^2 c'_{\perp}}{2n_{\perp}^2} \right) \cos^2 b_k}{\left(n_{\perp} \sin^2 b_k + n_{\parallel} \cos^2 b_k \right)^{3/2}} \right|^{-1} \quad (19)$$

В более простом случае, когда $k \perp c$, период становится минимальным:

$$L_{min} = \frac{1}{\left| Dn + \frac{1}{2} \left(\frac{c'_{\parallel}}{n_{\parallel}} - \frac{c'_{\perp}}{n_{\perp}} \right) \right|}$$

причем восприимчивость дает лишь малосущественные добавки к периоду, если концентрация ЦО не очень велика. В таких случаях можно пользоваться выражением $L_{min} = \lambda / |n_{\perp} - n_{\parallel}|$. Порядок величин периода приведен в табл.2.

Таблица 2. Минимальные значения периода Λ в мкм. для некоторых кристаллов.

	λ , мкм		
	1,06	0,53	0,266
Al_2O_3	123	61,6	30,8
TiO_2	3,79	1,89	0,95

ОПИСАНИЕ УСТАНОВКИ

Работа выполняется на установке, содержащей твердотельный лазер (Nd^{3+}) с генерацией второй гармоники, цифровой фотоаппарат, оптический столик, три изучаемых кристаллических образца и другие приспособления. Ориентация оптической оси в этих образцах показана на *рис. 8*.

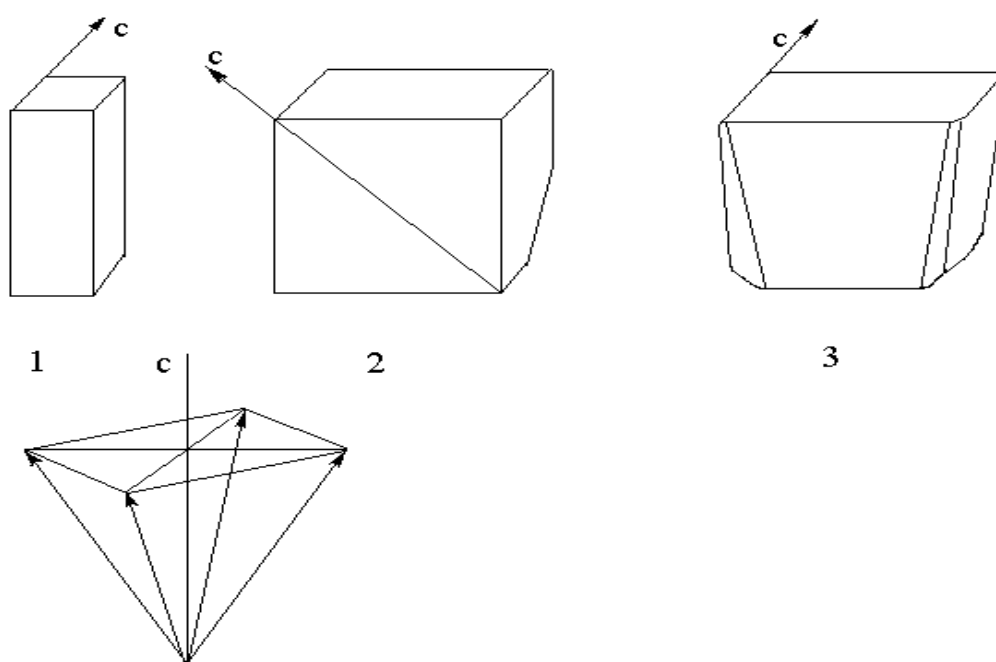


Рис. 8

Образцы 1 и 3 содержат квантовые системы, дипольный момент перехода в которых ориентирован под углом близким к $\pi/4$ по отношению к оптической оси, как показано в нижней части рисунка. Образец 3 изготовлен из неизвестного оптически одноосного кристалла и содержит квантовые системы с неизвестной ориентацией.

Лазер в непрерывном режиме генерирует линейно поляризованное излучение с длиной волны 532 нм. Это излучение направляется на кристаллический образец, установленный на предметном столике под объективом микроскопа. Под действием лазерного излучения возбуждается люминесценция кристалла, которая имеет пространственно-периодическую

структуру. Изображение светящегося объема кристалла, находящегося в канале лазерного луча, фотографируется с помощью цифрового фотоаппарата.

ПОРЯДОК ВЫПОЛНЕНИЯ РАБОТЫ

Перед началом работы необходимо ознакомиться с инструкцией к лазеру, получить инструктаж о правилах безопасной работы с лазерным излучением.

Задание 1. Строго следуя инструкции по эксплуатации лазера, включить его и вывести в режим генерации. Используя стеклянную пластинку и экран, определить как ориентирован электрический вектор лазерного излучения.

Задание 2. Разместив образец 1 на предметном столике, направить лазерный луч под малым углом к оптической оси кристалла. Наблюдение люминесценции вести вдоль направления электрического вектора возбуждающего лазерного излучения. Зафиксировать эффект пространственной модуляции интенсивности люминесценции. Плавно меняя угол между волновым вектором k лазерного излучения и оптической осью c путем поворота кристалла в пределах небольших углов порядка 10-15 градусов, установить целое число периодов Λ изменения интенсивности люминесценции на толщине кристалла l . Измерив толщину кристалла l , определить соответствующее значение периода модуляции Λ .

Задание 3. Упростить выражение зависимости Λ от угла b_k (19), пренебрегая величинами компонент электрической восприимчивости по сравнению с n_{\perp}^2 и n_{\parallel}^2 . Построить график зависимости $\Lambda(b_k)$ для значений углов в пределах от 10 до 20 градусов. Используя полученный график и измеренное значение периода, определить угол между волновым вектором лазерного излучения и оптической осью кристалла. Табличные значения показателей преломления для кристалла MgF_2 составляют $n_{\perp}=1,387$ и $n_{\parallel}=1,399$.

Задание 4. Рассчитать минимально достижимый период модуляции интенсивности люминесценции кристалла MgF_2 . Используя образец 2, реализовать соответствующий случай наблюдения эффекта. Применить фотоаппарат для наблюдения эффекта.

Задание 5. Установить на предметный столик образец 3, изготовленный из неизвестного кристалла. Ориентировать его аналогично ориентации образца 1 в задании 2. Изучить характер пространственного распределения интенсивности люминесценции. Какое заключение можно сделать относительно ориентации квантовых систем в образце 3?

Контрольные вопросы:

1. Как изменяется состояние поляризации линейно поляризованного света, распространяющегося в оптически одноосном кристалле в направлении перпендикулярном оптической оси?
2. Как изменяется с расстоянием мощность, поглощаемая кристаллом из световой волны электродипольными квантовыми системами?
3. Какова диаграмма направленности интенсивности люминесценции, излучаемой электродипольными центрами?
4. Каков механизм эффекта пространственной модуляции интенсивности люминесценции кристаллов?
5. Какими тремя признаками должен обладать кристаллический материал для того, чтобы он обладал способностью к реализации в нем эффекта пространственной модуляции интенсивности люминесценции?
6. Почему свет с электрическим вектором, лежащим в плоскости падения на диэлектрическую поверхность, не отражается от нее при определенном угле падения, называемом углом Брюстера?
7. Почему нельзя наблюдать эффект модуляции интенсивности люминесценции рабочих квантовых систем в некоторых лазерных средах, например, ионов хрома в рубине и ионов неодима в алюмоиттриевом гранате?
8. Почему излучение твердотельного лазера поляризовано?
9. Каковы основные характеристики излучения использованного твердотельного лазера?
10. Какую опасность представляет лазер для работающих с ним и окружающих? Правила безопасной работы.

Литература

1. Мартынович Е.Ф. Самоиндуцированные периодические структуры в анизотропных кристаллах.-Письма в ЖЭТФ, 1989, т.49, N12, с.655-658.
2. Мартынович Е.Ф. Фотовыжигание периодических структур в анизотропных кристаллах.-Письма ЖЭТФ. 1989 т.15, N11, с.60-64.
3. Пантел Р., Путхоф Г. Основы квантовой электроники. М. Мир,1972, 327 с.
4. Борн М., Вольф Э. Основы оптики. М. Наука, Главн. ред. физ.-мат. лит-ры 1973, 719 с.
5. Сиротин Ю.И., Шаскольская М.П. Основы кристаллофизики. М. Наука, Главн. ред. физ.-мат. лит-ры, 1979, 640 с.
6. Гречушников Б.Н. Оптические свойства кристаллов. - Современная кристаллография. М. Наука 1981, с.338-424.

7. Ярив А. Введение в оптическую электронику. Пер. с англ. М. Высшая школа 1983, 398 с.

Эффект пространственной модуляции интенсивности люминесценции кристаллов

Методическое пособие

Составитель: Е.Ф. Мартынович

Иркутский филиал Института лазерной физики СО РАН
г. Иркутск, ул. Лермонтова, 130а, filial@ilph.irk.ru
Иркутский государственный университет