

文章编号: 0253-2239(2006)09-1404-5

双缺陷模一维光子晶体的双光子吸收增强研究*

沈 杰¹ 马国宏^{2,3} 章壮健¹ 华中一¹ 唐星海²

{ 1 复旦大学材料科学系, 上海 200433
2 新加坡国立大学物理系, 新加坡
3 上海大学物理系, 上海 200444 }

摘要: 采用真空镀膜工艺制备了具有 762 nm 和 800 nm 双缺陷模的含两个 CdS 缺陷层的 TiO₂/SiO₂ 一维光子晶体, 运用抽运-探测技术测量了其双光子吸收。对于两个缺陷模, 双光子吸收均得到很大的增强, 其中缺陷模为 800 nm 时的双光子吸收系数 307 cm/GW 要大于缺陷模为 762 nm 时的 116 cm/GW, 分别为单层 CdS 薄膜的 48 倍和 18 倍。这种双光子吸收的增强是由于光局域化导致一维光子晶体缺陷层内的电场强度增大而形成的。通过传输矩阵法计算了一维光子晶体的内部场强, 发现 800 nm 波长光入射时缺陷层内的电场强度要大于 762 nm 波长光入射时的电场强度值。

关键词: 光电子学; 双光子吸收; 抽运-探测; 光子晶体; 缺陷

中图分类号: O437 文献标识码: A

Research on Two-Photon Absorption Enhancement in One-Dimensional Photonic Crystals with Double Defect Modes

Shen Jie¹ Ma Guohong^{2,3} Zhang Zhuangjian¹ Hua Zhongyi¹ Tang Xinghai²

{ 1 Department of Material Science, Fudan University, Shanghai 200433
2 Department of Physics, National University of Singapore, Singapore
3 Department of Physics, Shanghai University, Shanghai 200444 }

Abstract: One-dimensional photonic crystals with two CdS defect layers which had two defect modes of 762 nm and 800 nm was fabricated by vacuum deposition process. Two-photon absorption coefficient was investigated by pump-probe measurement. The two-photon absorption coefficient was enhanced at two defect modes. 307 cm/GW two-photon absorption coefficient at defect mode of 800 nm was greater than 116 cm/GW at defect mode of 762 nm and they were 48 and 18 times as large as that of a single CdS thin film. The enhancement of two-photon absorption coefficients was due to the enhanced electric field intensity ascribed to light localization in the two CdS defect layers. The transfer matrix method was used to calculate the internal electric field intensity in the one-dimensional photonic crystal sample. It was found that the electric field intensity in defect layers at defect mode of 800 nm was larger than that of 762 nm.

Key words: optoelectronics; two-photon absorption; pump-probe; photonic crystals; defect

1 引 言

一维光子晶体是介电常量在空间呈一维周期性分布的微结构材料, 其主要特征是某些频率的光波在传播时受到抑制, 形成光子带隙。类似于晶体中的杂质或缺陷会在禁带中形成杂质能级, 在一维光

子晶体中掺杂缺陷层, 会在光子带隙中出现缺陷模。缺陷模的光局域化使得缺陷层内的电场强度比普通材料中的电场强度要大得多, 如果缺陷层是一种非线性光学材料, 那么其非线性效应将得到增强^[1~5], 因此带有非线性缺陷层的一维光子晶体可制成各种

* 上海市重点学科建设项目(T0104)资助课题。

作者简介: 沈 杰(1969~), 男, 上海人, 复旦大学材料科学系副教授, 博士, 主要从事薄膜技术方面的研究。

E-mail: shenjie@fudan.edu.cn

收稿日期: 2005-11-21; 收到修改稿日期: 2006-01-23

非线性光学器件。

在一维光子晶体中,如果有多个缺陷则会在禁带中形成多个缺陷模。通过改变缺陷层的数目、位置、厚度或折射率^[6,7],采用双周期结构^[8]或异质结构^[9]等方法可以得到多通道滤波器和多波长共振腔结构的有机发光二极管^[10]。然而关于多缺陷模式下的非线性光学性质报导甚少。我们曾对具有单个缺陷模的含 CdS 缺陷层的一维光子晶体进行抽运-探测测量,观察到双光子吸收增强现象^[11~13]。为了观察一维光子晶体在多缺陷模下的非线性光学性质,本文通过制备一个含两个 CdS 缺陷层的 TiO₂/SiO₂ 一维光子晶体,由抽运-探测技术测量了两个缺陷模下的 CdS 的双光子吸收效应,观察到两个缺陷模下的双光子吸收增强,并对光场局域化进行讨论。

2 实 验

双缺陷模 TiO₂/SiO₂ 一维光子晶体的结构如图 1 所示,其中 D1 和 D2 为两个 CdS 缺陷层,两边各有 4 个周期,中间为 7 层介质膜,也可以看作一个 25 层的 TiO₂/SiO₂ 一维光子晶体中第 9 层和第 17 层被 CdS 缺陷层所代替,记为 (HL)⁴D1(LH)³LD2(LH)⁴。具体的结构参量为: H 层为 TiO₂,厚度 $d_H = 86$ nm,折射率 $n_H = 2.21$; L 层为 SiO₂,厚度 $d_L = 127$ nm,折射率 $n_L = 1.45$; D1 和 D2 层为 CdS,厚度 $d_{D1} = 352$ nm, $d_{D2} = 362$ nm,折射率 $n_D = 2.26$ 。各介质层均用真空镀膜工艺制备。

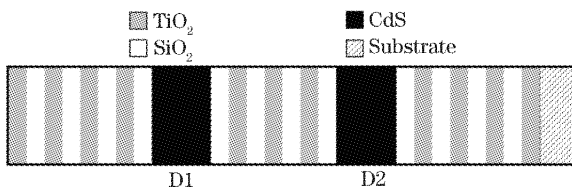


图 1 双缺陷模一维光子晶体的结构示意图,D1 和 D2 为两个 CdS 缺陷层

Fig. 1 Schematic diagram of the one-dimensional photonic crystal with two defect modes, D1 and D2 are two CdS defect layers

非线性效应测量采用抽运-探测技术,具体装置可见文献^[13]。由一个钛宝石激光器产生一个脉宽 200 fs、82 MHz 的中心波长为 800 nm 的激光脉冲(输出波长可调节范围为 760~830 nm),在激光器输出端用分束器将光束分为抽运光(Pump)与探测光(Probe),其中抽运光通过 1620 Hz 的斩波器和由计算机控制的光学延迟线,两束光通过透镜会聚于光子

晶体样品表面,光斑直径为 50 μm ,在样品后面加一孔径仅让探测光通过。抽运光强度小于 2 GW/cm²,探测光强度为抽运光的 1/10。调节光学延迟线至抽运光脉冲与探测光脉冲同时到达样品表面时,若存在双光子吸收将使样品的透射率下降。采用 0.5 mm 厚的 ZnSe 块材作参考样品,其双光子吸收系数数据报道为 3.5 cm/GW^[14](波长 780 nm)。在测量样品 762 nm 的缺陷模时,将激光器的输出波长调节到 762 nm。

3 结果与讨论

上述样品的透射谱测量结果如图 2 所示。图 2(a)为测量的双缺陷模一维光子晶体的透射谱,图 2(b)为用传输矩阵法计算的模拟结果。可以看到测量得到的光子禁带为 650~900 nm,两个透射共振峰(缺陷模)分别位于 762 nm 和 800 nm。计算模拟的结果与实验值曲线形状完全相符,光子禁带为 650~920 nm,两个缺陷模分别位于 767 nm 和 794 nm,可以看到计算模拟的光子带隙略宽于实验测量值,而透射峰的高度也高于实验值,这可能来自于制备过程中的误差。膜层厚度的误差会影响光子带隙与透射峰的位置,计算了每层膜厚度误差为 ± 1 nm 时的情况。当膜层厚度误差为 -1 nm,即 TiO₂ 和 SiO₂ 的厚度分别为 85 nm 和 126 nm,缺陷层 D1 和 D2 的厚度为 351 nm 和 361 nm 时,光子禁带的位置为 645~900 nm,两个透射峰位置为 761 nm 和 787 nm,761 nm 的透射峰和实验值 762 nm 相符,而另一个透射峰 787 nm 与实验值

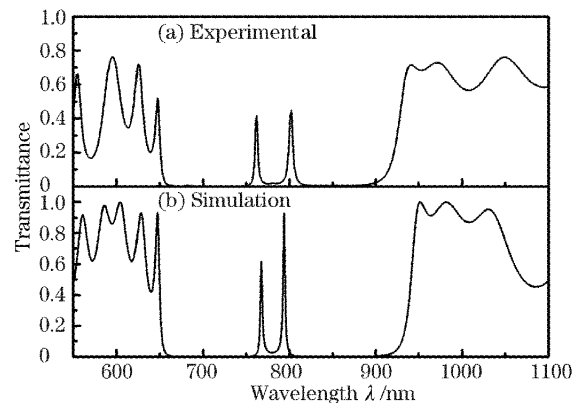


图 2 双缺陷模一维光子晶体的透射谱。(a)为测量结果,(b)为模拟计算结果

Fig. 2 Transmission spectrum of the one-dimensional photonic crystal with two defect modes. (a) Experimental result, (b) simulation result

800 nm相差较远;当膜层厚度误差为+1 nm,即TiO₂和SiO₂的厚度分别为87 nm和128 nm,缺陷层D1和D2的厚度为353 nm和363 nm时,光子禁带的位置为655~925 nm,两个透射峰位置为770 nm和797 nm,770 nm的透射峰和实验值762 nm相差较远,而另一个透射峰797 nm与实验值800 nm相符。综合考虑两个透射峰的位置,我们认为图2(b)模拟计算的结果还是可信的。

该样品的双缺陷模是由两个缺陷层共同产生的,这意味着并非是一个缺陷层产生一个缺陷模,而另一个缺陷层产生另一个缺陷模,而是每一个缺陷模都来自于两个缺陷层的共同作用,并且缺陷模之间的频率间隔与两个缺陷层之间的介质层数有关,间隔的介质层越多,两个缺陷模就越靠近。Huang等^[15]用紧束缚方法推导了由两个缺陷层产生双缺陷模的频率,设单个缺陷层产生的缺陷模频率为 ω ,则两个缺陷层将使 ω 分裂为两个频率 ω_1 和 ω_2 ,且

$$\omega_i = \omega \left(\frac{1 + J_0 \pm J_1 \pm J_2}{1 \pm J_2} \right)^{1/2}, \quad (i = 1, 2) \quad (1)$$

式中 J_0 为单个缺陷态作用项, J_1 和 J_2 分别为两个缺陷态重叠相互作用的耦合系数,当两个缺陷离得

越远时,缺陷态相互作用越弱, J_1 和 J_2 就越小,因此缺陷模频率 ω_1 和 ω_2 就越接近,频率间隔就越小,反之亦然。因此可以通过改变缺陷层之间的介质层数来调节两个缺陷模的频率。

图3(a)是入射光波长为800 nm时的样品随光强变化的瞬态时间谱。入射抽运光强分别为0.09 GW/cm²、0.18 GW/cm²、0.36 GW/cm²和0.72 GW/cm²。该信号的产生显然是来自于CdS层的双光子吸收^[12]。双光子吸收是指在强光激发下,介质分子同时吸收两个光子,从基态跃迁到两倍光子能量的激发态的过程。介质材料的吸收系数 $\alpha(I)$ 可表示为 $\alpha(I) = \alpha + \beta I$,其中 α 为线性吸收系数, β 为双光子吸收系数, I 为光强。在抽运-探测技术中,探测光入射到样品上,其透射光被光电倍增管接收后可得到样品的透射率。当探测光脉冲与抽运光脉冲同时到达样品表面时,如果存在双光子吸收,则探测光的透射率会下降,图3(a)和图3(b)中纵坐标中的 ΔT 即为探测光透射率的变化值。在图3(a)中随着光强的增加, ΔT 变大,说明确实为双光子吸收过程。

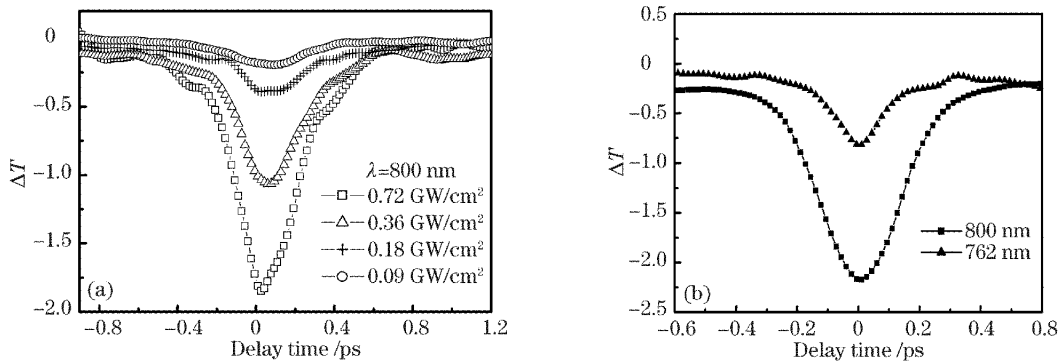


图3 (a)不同光强下的800 nm光入射时一维光子晶体的瞬态时间谱,(b)双缺陷模一维光子晶体的瞬态时间谱

Fig. 3 Transient transmission spectrum of probe beam for one-dimensional photonic crystal with the incident wavelength of 800 nm (a) with different intensity, (b) at defect modes of 762 nm and 800 nm

图3(b)为样品在缺陷模分别为762 nm和800 nm时瞬态时间谱,入射光强分别为0.9 GW/cm²(762 nm)和1.1 GW/cm²(800 nm)。从图中可以看到两个缺陷模都有双光子吸收信号。忽略CdS的线性吸收,以ZnSe体材料作参考样品可计算其双光子吸收系数 β :

$$\beta_s = \beta_r \frac{|\Delta T|_s L_r (1 - R_r)^3}{|\Delta T|_r L_s (1 - R_s)^3}, \quad (2)$$

式中下标s代表光子晶体样品中的CdS,下标r代表参考样品ZnSe。 L 为样品的相干长度, R 为反射率。由此可得光子晶体中的CdS的双光子吸收系数为

116 cm/GW(762 nm)和307 cm/GW(800 nm),分别是相应CdS体材料的18和48倍。

值得注意的是当波长为800 nm的光入射时双光子吸收要比波长为762 nm的光入射时更大一些,这可能与这两种波长的光在不同缺陷模下产生的光局域化作用不同有关。我们根据实验数据用传输矩阵法计算了上述样品在波长为762 nm和800 nm的入射光正入射条件下的CdS缺陷层内的平均电场强度,如图4(a)所示。当762 nm和800 nm波长入射光正入射时,在两个CdS缺陷层内的平均电场强度(设入射光为单位场强)均出现增强,其中800 nm

波长光入射时光子晶体缺陷层内的平均电场强度要略大于 762 nm 波长光入射时的电场强度,由此导致的双光子吸收信号也就要略大一些。由于两个缺陷层 D1 和 D2 都存在双光子吸收,因此总的双光子吸收信号应该是二者之和。在缺陷层 D1 处 762 nm 波长光入射时的电场强度和 800 nm 波长光入射时的电场强度基本相当,而在缺陷层 D2 处 800 nm 波长光入射时的电场强度要远大于 762 nm 波长光入射时的电场强度,由此导致 800 nm 波长光入射时

总的缺陷层平均电场强度要大于 762 nm 波长光入射的值。这种两个缺陷模式的光局域化作用不同的原因,可能和两个缺陷层的厚度不同有关。计算了当两个缺陷层厚度相同时($d_{D1} = d_{D2} = 357$ nm)的光子晶体的内部场强分布,如图 4(b)所示。其场强分布呈对称形状,两个缺陷层内的场强大小完全一致,然而较长的 800 nm 波长光入射在缺陷层内产生的电场强度仍高于较短的 762 nm 波长光入射的情况。

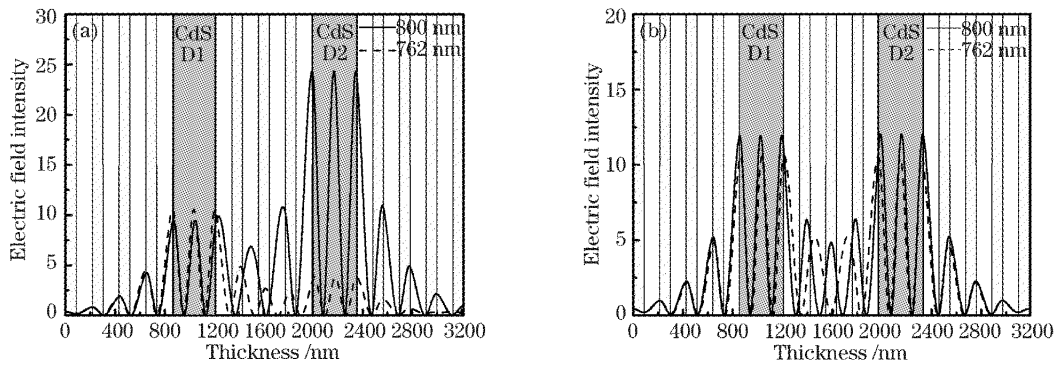


图 4 在 762 nm 和 800 nm 波长入射光条件下一维光子晶体内部电场强度分布。(a) $d_{D1} = 352$ nm, $d_{D2} = 362$ nm, (b) $d_{D1} = d_{D2} = 357$ nm

Fig. 4 Internal electric field distribution of the one-dimensional photonic crystal with incident wavelength at 762 nm and 800 nm (a) $d_{D1} = 352$ nm, $d_{D2} = 362$ nm, (b) $d_{D1} = d_{D2} = 357$ nm

4 结 论

采用真空镀膜工艺制备了具有 762 nm 和 800 nm 缺陷模的含两个 CdS 缺陷层的 $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$ 一维光子晶体。该样品的双缺陷模是由两个缺陷层共同产生的,通过改变缺陷层之间的介质层数可调节两个缺陷模的频率。采用抽运-探测技术测量其双光子吸收,对于两个缺陷模,均观察到 CdS 缺陷层的双光子吸收增强,其中入射光波长为 800 nm 时的双光子吸收系数为 307 cm/GW,而波长为 762 nm 时的双光子吸收系数为 116 cm/GW,分别是相应 CdS 体材料的 48 倍和 18 倍。这种双光子吸收的增强来源于缺陷层内的电场强度增大。通过传输矩阵法计算表明,由于两个缺陷层的厚度不同,不同缺陷层内的电场强度也不同,并且入射光波长为 800 nm 时缺陷层内的电场强度要大于波长 762 nm 时的值,因此入射光波长为 800 nm 时双光子吸收增强更大。

参 考 文 献

1 G. J. Schneider, G. H. Watsson. Nonlinear optical spectroscopy in one-dimensional photonic crystals [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2003, **83**(26): 5350~5352

2 T. Hattori, N. Tsurumachi, N. Muroi *et al.*. Enhancement of optical nonlinearity in one-dimensional photonic crystals [J]. *Prog. Crystal Growth and Charact.* 1996, **33**(1~3): 183~186

3 T. Hattori, N. Tsurumachi, H. Nakatsuka. Analysis of optical nonlinearity by defect states in one-dimensional photonic crystals [J]. *J. Opt. Soc. Am. B*, 1997, **14**(2): 348~355

4 J. Y. Ye, M. Ishikawa, Y. Yamane *et al.*. Enhancement of two-photon excited fluorescence using one-dimensional photonic crystals [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 1999, **75**(23): 3605~3607

5 H. Inouye, Y. Kanemitsu. Direct observation of nonlinear effects in a one-dimensional photonic crystals [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2003, **82**(8): 1155~1157

6 Tian Guoxun, Wu Yonggang, Wang Zhanshan *et al.*. Design and modification of double channel of one-dimensional photonic crystal [J]. *Acta Optica Sinica*, 2005, **25**(5): 661~664 (in Chinese)

田国勋, 吴永刚, 王占山等. 一维光子晶体的双通道位置设计及调整 [J]. *光学学报*, 2005, **25**(5): 661~664

7 Fang Yuntuan, Shen Tinggen, Tan Xilin. Study on one-dimensional photonic crystal with impurity defects [J]. *Acta Optica Sinica*, 2004, **24**(11): 1157~1160 (in Chinese)

方云团, 沈廷根, 谭锡林. 一维光子晶体掺杂缺陷模研究 [J]. *光学学报*, 2004, **24**(11): 1157~1160

8 Q. Qin, H. Lu, S. N. Zhu *et al.*. Resonance transmission modes in dual-periodical dielectric multilayer films [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2003, **82**(26): 4654~4656

9 Zhanshan Wang, Li Wang, Yonggang Wu *et al.*. Multiple channeled phenomena in heterostructures with defects mode [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2004, **84**(10): 1629~1631

10 S. Takahiro, Y. Taga, F. Hisayoshi *et al.*. Design of multiwavelength resonant cavities for white organic light-emitting

- diodes[J]. *J. Appl. Phys.*, 2003, **93**(1): 19~22
- 11 G. H. Ma, S. H. Tang, J. Shen *et al.*. Defect-mode dependence of two-photon-absorption enhancement in a one-dimensional photonic bandgap structure[J]. *Opt. Lett.*, 2004, **29**(15): 1769~1771
- 12 G. H. Ma, J. Shen, K. Rajiv *et al.*. Optimization of two-photon absorption enhancement in one-dimensional photonic crystals with defect states[J]. *Appl. Phys. B*, 2005, **80**(3): 359~363
- 13 Shen Jie, Ma Guohong, Zhang Zhuangjian *et al.*. Research on two-photon absorption enhancement of CdS in one-dimensional photonic band gap structures[J]. *Acta Optica Sinica*, 2005, **25**(8): 1121~1125 (in Chinese)
- 沈 杰, 马国宏, 章壮健 等. 用一维光子带隙结构增强硫化镉双光子吸收研究[J]. *光学学报*, 2005, **25**(8): 1121~1125
- 14 T. D. Krauss, F. W. Wise. Femtosecond measurement of nonlinear absorption and refraction in CdS, ZnSe and ZnS[J]. *Appl. Phys. Lett.*, 1994, **65**(14): 1739~1741
- 15 X. Q. Huang, Y. P. Cui. Degeneracy and split of defect states in photonic crystals[J]. *Chin. Phys. Lett.*, 2003, **20**(10): 1721~1724