



<http://dx.doi.org/10.35596/1729-7648-2019-125-7-95-100>

Оригинальная статья
Original paper

УДК 535.37+535.39

ОПТИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА МНОГОСЛОЙНЫХ ПЕРИОДИЧЕСКИХ СТРУКТУР $BaTiO_3:Eu/SiO_2$

ПАРАФИНЮК Д.А.¹, ГАПОНЕНКО Н.В.¹, РАЙЧЕНОК Т.Ф.²

¹Белорусский государственный университет информатики и радиоэлектроники, г. Минск, Республика Беларусь

²Институт физики им. Б.И. Степанова Национальной академии наук Республики Беларусь,
г. Минск, Республика Беларусь

Поступила в редакцию 18 ноября 2019

© Белорусский государственный университет информатики и радиоэлектроники, 2019

Аннотация. В работе представлены результаты исследования оптических свойств многослойных структур (брэгговских отражателей). Представлены спектры пропускания, отражения, люминесценции, возбуждения и кинетики люминесценции для брэгговских отражателей, сформированных на кварце с 6 и 12 чередующимися слоями $BaTiO_3:Eu/SiO_2$. Структуры демонстрируют фотонную запрещенную зону и ее смещение в длинноволновую область при увеличении числа пар слоев. В структурах наблюдается люминесценция европия с наиболее интенсивной полосой 615 нм. Обнаружено снижение интенсивности люминесценции европия при увеличении числа пар слоев в структуре.

Ключевые слова: интерференционные фильтры, брэгговские отражатели, люминесценция, европий, золь-гель.

Конфликт интересов. Авторы заявляют об отсутствии конфликта интересов.

Благодарности. Авторы выражают благодарность Д.В. Жигулину (филиал «Научно-технический центр «Белмикросистемы» ОАО «ИНТЕГРАЛ», управляющая компания холдинга «ИНТЕГРАЛ») за анализ образцов методами электронной микроскопии. Работа выполнена при поддержке гранта Государственного комитета по науке и технологиям Республики Беларусь Т19МЛДГ-005.

Для цитирования. Парафинюк Д.А., Гапоненко Н.В., Райченко Т.Ф. Оптические свойства многослойных периодических структур $BaTiO_3:Eu/SiO_2$. Доклады БГУИР. 2019; 7(125): 95-100.

THE OPTICAL PROPERTIES OF MULTILAYER PERIODIC STRUCTURES $BaTiO_3:Eu/SiO_2$

DARIA A. PARAFINYUK¹, NIKOLAY V. GAPONENKO¹, TAMARA. F. RAICHENOK²

¹Belarusian State University of Informatics and Radioelectronics, Minsk, Republic of Belarus

²B.I. Stepanov Institute of Physics of National Academy of Science of Belarus Minsk, Republic of Belarus

Submitted 18 November 2019

© Belarusian State University of Informatics and Radioelectronics, 2019

Abstract. This paper presents the study of the optical properties of multilayer periodic structures, such as Bragg reflector, with different synthesis conditions. Transmission, reflection, luminescence, luminescence excitation

spectra and kinetics of luminescence are presented for the Bragg reflectors formed on quartz with 6 and 12 alternating layers BaTiO₃:Eu/SiO₂. The structures demonstrate photonic band gap and its long wavelength shift with increasing number of layers. Europium luminescence with the most intensive band at 615 nm is observed from the structures. A decrease in the luminescence intensity with increasing the number of pairs of the layers in the structure is observed.

Keywords: interference filters, Bragg reflectors, luminescence, europium, sol-gel.

Conflict of interests. The authors declare no conflict of interests.

Gratitude. The authors are grateful to Zhigulin D.V (Belmicrosystems Scientific and Technical Center affiliate of INTEGRAL OJSC, management company of the INTEGRAL Holding) for the analysis of samples by electron microscopy. This work was supported by a grant from the State Committee for Science and Technology of the Republic of Belarus T19MLDG-005.

For citation. Parafinyuk D.A., Gaponenko T.V., Raichenok T.F. The optical properties of multilayer periodic structures BaTiO₃:Eu/SiO₂. Doklady BGUIR. 2019; 7(125): 95-100.

Введение

Фотонные кристаллы – структуры с периодическим изменением показателя преломления с периодом порядка длины волны электромагнитного излучения в оптическом диапазоне. Фотонные кристаллы обладают фотонной запрещенной зоной (полосой непрозрачности). Одномерные фотонные кристаллы – многослойные периодические пленочные структуры – нашли широкое применение в лазерной технике и оптическом приборостроении в качестве лазерных зеркал, просветляющих покрытий и др. Интенсивно исследуется люминесценция лантаноидов в одномерных фотонных кристаллах и микрорезонаторах, так как в таких структурах с модификацией плотности мод излучения наблюдается сужение полосы люминесценции, увеличение интенсивности люминесценции в узком телесном угле и изменение времени жизни [1–10]. Недавно было показано, что одномерные фотонные кристаллы могут быть получены золь-гель синтезом пленок BaTiO₃/SiO₂ [8–10]. В данной работе продолжено исследование пропускания и отражения многослойных пленочных структур BaTiO₃/SiO₂ и люминесценции европия в них в зависимости от условий синтеза.

Методика проведения эксперимента

На подложках кварцевого стекла были синтезированы образцы чередующихся слоев BaTiO₃:Eu/SiO₂, содержащие 6 или 12 слоев, то есть 3 или 6 пар слоев ксерогелей титаната бария и оксида кремния. Для формирования многослойной структуры были приготовлены золи титаната бария и оксида кремния. Исходными компонентами золя титаната бария BaTiO₃ являлись ацетат бария Ba(CH₃COO)₂·1/2H₂O и тетраизопроксититан Ti(OC₃H₇)₄. Для формирования ксерогеля оксида кремния использовался золь на основе тетраэтоксисилана. В золь титаната бария был добавлен европий с концентрацией 0,1 моль/л.

Пленки титаната бария наносились на подложку методом центрифугирования со скоростью 1500 оборотов/мин в течение 30 с, а диоксида кремния – со скоростью 2700 об./мин. Слои наносились поочередно. Каждый слой подвергался сушке при температуре 200 °С в течение 10 мин, затем термообработке в муфельной печи с температурой 450 °С в течение 30 мин. На рис. 1 приведена схема сформированного 6-слойного образца.

Спектры пропускания измеряли на спектрофотометре Cary-500 Scan UV-VIS-NIR (Varian, США и Австралия). Спектры отражения измеряли на спектрофотометре MS122 (PROSCAN Special Instruments, Беларусь). Кинетику затухания люминесценции измеряли с помощью спектрофлуориметра Fluorolog-3 (Horiba Scientific), снабженного ксеноновой лампой с длительностью импульса 1–3 мкс. Спектры фотолюминесценции (ФЛ) и возбуждения ФЛ регистрировали с использованием спектрофлуориметра SOLAR CM2203, снабженного

ксеноновой лампой высокого давления 150 Вт, при одинаковом фиксированном угле падения и регистрации 30° .

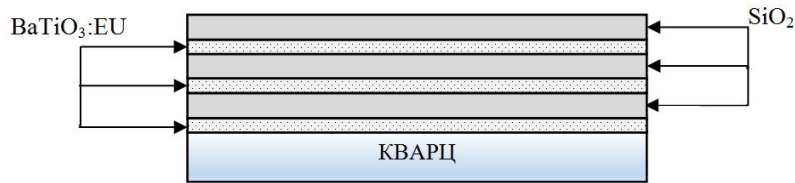


Рис. 1. Схема многослойной структуры BaTiO₃:Eu/SiO₂ (6 слоев)
Fig. 1. The scheme of multilayer structure BaTiO₃:Eu/SiO₂ (6 layers)

Результаты и их обсуждение

Изображение образца, содержащего 6 слоев, полученное методом сканирующей электронной микроскопии СЭМ, приведено на рис. 2.

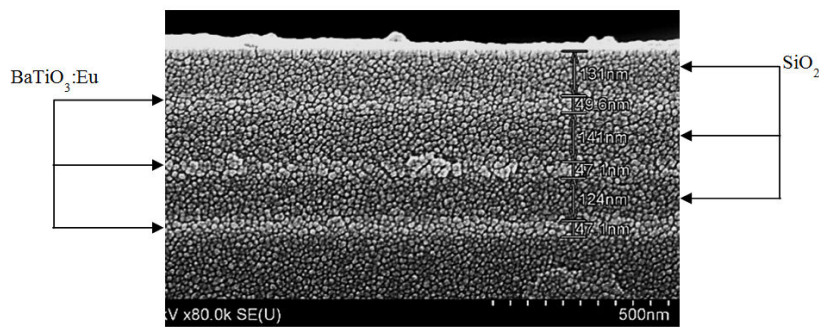


Рис. 2. СЭМ изображение образца BaTiO₃:Eu/SiO₂ (6 слоев)
Fig. 2. The SEM image of BaTiO₃:Eu/SiO₂ (6 layers)

На рис. 3 представлены оптические спектры пропускания и отражения многослойных структур BaTiO₃:Eu/SiO₂. Структуры демонстрируют полосу непрозрачности (фотонную запрещенную зону), обусловленную, как известно, интерференцией света на периодической структуре.

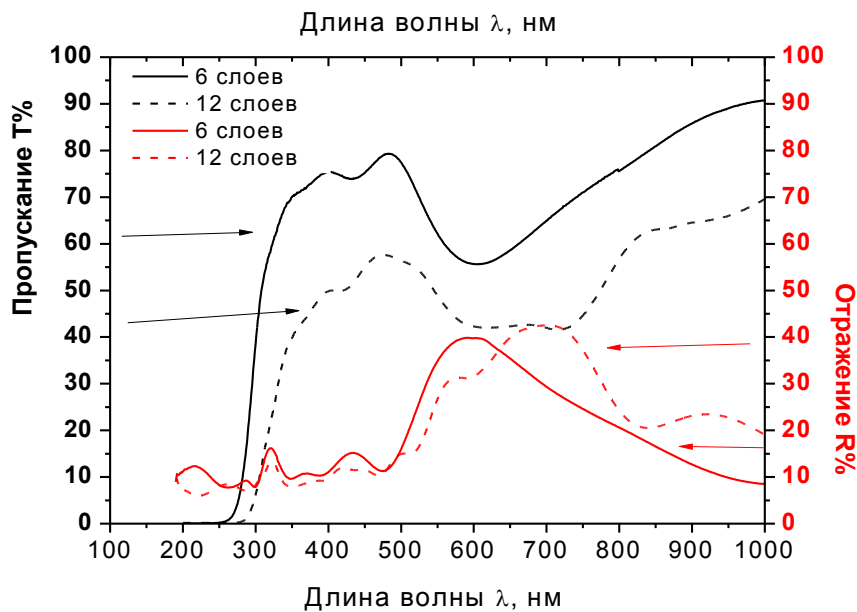


Рис. 3. Спектры пропускания и отражения многослойных структур BaTiO₃:Eu/SiO₂ (6 и 12 слоев)
Fig. 3. The transmission and reflection spectra of multilayer structures BaTiO₃:Eu/SiO₂ (6 and 12 layers)

Как видно из рис. 2, для образца, имеющего 6 слоев, экстремумы полосы непрозрачности лежат в области 600 нм, минимальное пропускание составляет 56 %, а максимум отражения – 38 %. При двухкратном увеличении числа пар слоев (для образца с 12 слоями) минимум пропускания смещается в длинноволновую область на 710 нм и составляет 42 %, совпадая с максимумом отражения.

Таким образом, многослойная структура $\text{BaTiO}_3:\text{Eu}/\text{SiO}_2$ формирует область непрозрачности (фотонную запрещенную зону) в видимом диапазоне, что обусловлено интерференцией света, а при увеличении количества слоев в структуре полоса непрозрачности смещается в длинноволновую область.

В данных структурах наблюдается люминесценция европия при комнатной температуре. На рис. 4, *a* и 4, *b* представлены спектры люминесценции и спектры возбуждения люминесценции сформированных многослойных структур, состоящих из 6 и 12 слоев. Длина волны возбуждения, соответствующая наиболее интенсивной люминесценции европия, составляет 260 нм – рис. 4, *a*. Наиболее интенсивной является полоса люминесценции 615 нм, что соответствует $^5\text{D}_0 \rightarrow ^7\text{F}_2$ переходу трехвалентного европия. Оказалось, что для шестислойной структуры интенсивность люминесценции в 1,5 раза выше, чем для 12-слойной. Возможно, ослабление люминесценции при увеличении числа пар слоев обусловлено перераспределением плотности мод излучения [3], что для данной структуры приводит к увеличению интенсивности люминесценции в направлении вдоль плоскости подложки (волноводный эффект), однако интерпретация этого результата требует дополнительных исследований угловых зависимостей люминесценции.

На рис. 5 представлена кинетика затухания люминесценции европия в образце $\text{BaTiO}_3:\text{Eu}/\text{SiO}_2$ (6 слоев), длина волны возбуждения люминесценции 264 нм, а длина волны регистрации 615 нм. Кинетика затухания двухэкспоненциальная с соответствующим процентным вкладом каждого свечения. Время жизни люминесценции европия в образце составляет: $\tau_1 = 4,33 \cdot 10^{-4}$ с (16 %); $\tau_2 = 9,13 \cdot 10^{-4}$ с (84 %).

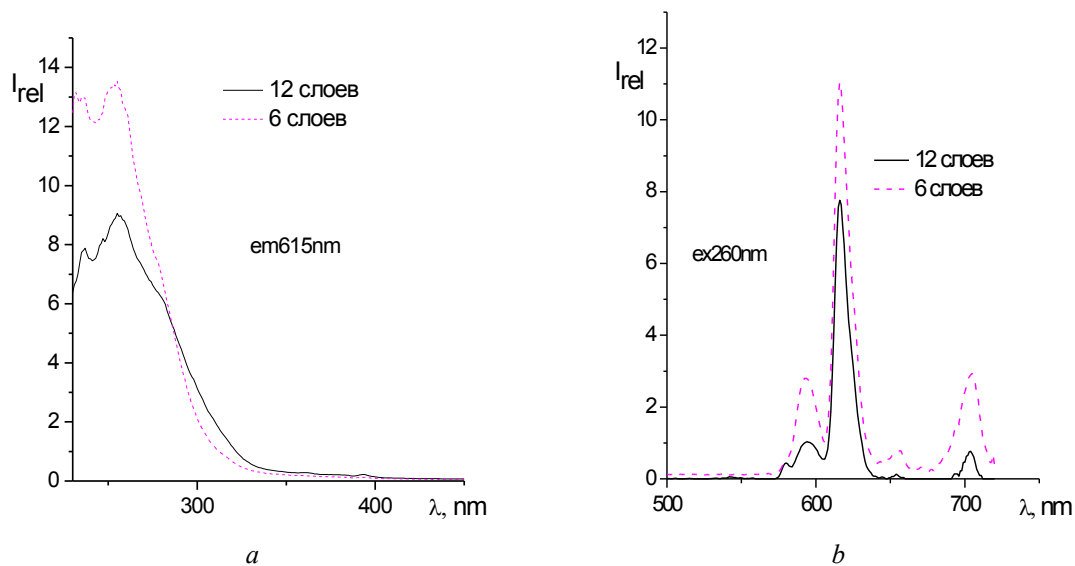


Рис. 4. Спектры возбуждения люминесценции (*a*) и люминесценции (*b*) $\text{BaTiO}_3:\text{Eu}/\text{SiO}_2$ 6 слоев и 12 слоев (длина волны излучения $\lambda_{\text{изл}} = 615$ нм, длина волны возбуждения $\lambda_{\text{возб}} = 260$ нм)

Fig. 4. The luminescence excitation spectrum (*a*) and luminescence spectrum (*b*) $\text{BaTiO}_3:\text{Eu}/\text{SiO}_2$ 6 and 12 layers (emission wavelength $\lambda_{\text{em}} = 615$ нм, excitation wavelength $\lambda_{\text{ex}} = 260$ нм)

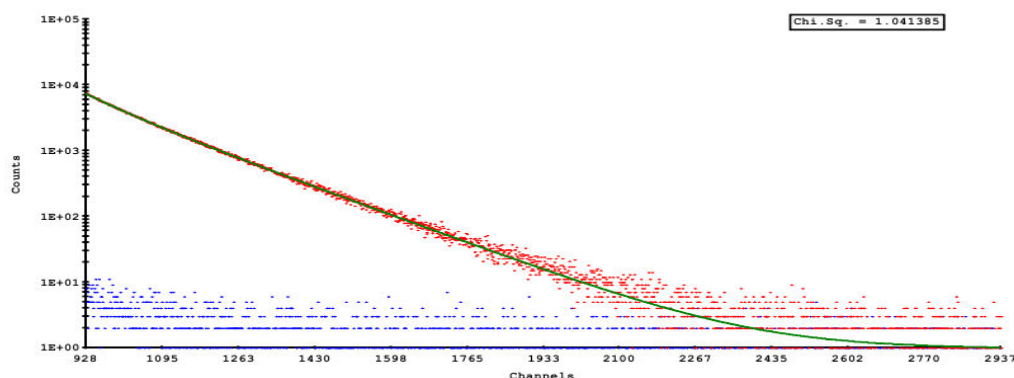


Рис. 5. Кинетика затухания люминесценции образца BaTiO₃:Eu /SiO₂ (6 слоев), длина волны излучения 615 нм
Fig. 5. Luminescence decay curve of BaTiO₃:Eu /SiO₂ (6 layers), radiation wavelength of 615 nm

Заключение

В работе представлены результаты оптических и морфологических исследований многослойных структур, сформированных из двух поочередно наносимых золь BaTiO₃ с ионами Eu и SiO₂, отличающихся количеством слоев (6 и 12 слоев).

Синтезированные золь-гель методом многослойные структуры, состоящие из набора чередующихся слоев BaTiO₃:Eu/SiO₂, демонстрируют фотонную запрещенную зону (полосу непрозрачности) в видимом диапазоне, которая смещается в длинноволновую область с увеличением числа пар слоев от трех до шести. Наряду с фильтрацией излучения структуры демонстрируют люминесценцию европия при комнатной температуре с наиболее интенсивной полосой 615 нм. Уменьшение интенсивности люминесценции при увеличении количества слоев в интерференционном фильтре может быть обусловлено увеличением плотности мод излучения 615 нм вдоль плоскости подложки, что представляет интерес для оптического дизайна преобразователей излучения.

Список литературы

1. Almeida, Rui M., and Sabine Portal. Photonic band gap structures by sol-gel processing. *Current Opinion in Solid State and Materials Science*. 2003; 7.2: 151-157.
2. Bellessa J., Rabaste S., Plenet J.C., Dumas J., Mugnier J., Marty O., Eu³⁺-doped microcavities fabricated by sol-gel process. *Appl. Phys. Lett.* 2001; 79: 2142-2144.
3. Gaponenko S.V., Demir H.V., *Applied Nanophotonics*, Cambridge University Press; 2018 (Cambridge University Press).
4. Vredenberg A.M., Hunt N.E.J., Schubert E.F., Jacobson D.C., Poate J.M., Zydzik G.J. Controlled atomic spontaneous emission from Er³⁺ in a transparent Si/SiO₂ microcavity. *Phys. Rev. Lett.* 1993; 71: 517-520. <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.71.517>
5. Dukin A.A., Feoktistov N.A., Golubev V.G., Medvedev A.V., Pevtsov A.B., Sel'kin A.V. Optical properties of a Fabry-Pérot microcavity with Er-doped hydrogenated amorphous silicon active layer. *Appl. Phys. Lett.* 2000; 77: 3009-3011. <https://doi.org/10.1063/1.1324725>
6. Lopez H.A., Fauchet P.M. Erbium emission from porous silicon one-dimensional photonic band gap structures. *Appl. Phys. Lett.* 2000; 77: 3704-3706. <https://doi.org/10.1063/1.1331082>
7. Zhou Y., Snow P.A., Russell P.St.J. Strong modification of photoluminescence in erbium-doped porous silicon microcavities. *Appl. Phys. Lett.* 2000; 77: 2440-2442. <https://doi.org/10.1063/1.1318230>
8. Gaponenko N.V., Kholov P.A., Sukalin K.S., Raichenok T.F., Tikhomirov S.A., Subasri R., Soma Raju K.R.C., Mudryi A.V. Optical properties of multilayer BaTiO₃/SiO₂ film structures formed by the sol-gel method. *Physics of the Solid State*. 2019; 61(3): 397-401.
9. Kamilava Yu.D., Kholov P.A., Gaponenko N.V., Raichenok T.F., Tikhomirov S.A., Martynov I.L., Osipov E.V., Chistyakov A.A., Kargin N.I. Sol-Gel Fabrication and luminescence properties of multilayer Eu-doped BaTiO₃/SiO₂ xerogel nanostructures. *International Journal of Nanoscience*. 2019; 18(3): 1940-1944.

10. Gaponenko N.V., Kholov P.A., Raichenok T.F., Prislowski S.Ya. Enhanced Luminescence of Europium in Sol-Gel Derived BaTiO₃/SiO₂ Multilayer Cavity Structure. *Optical Materials*. 2019; 96: 109265-109270. <https://doi.org/10.1016/j.optmat.2019.109265>

Вклад авторов

Парафинюк Д.А. выполнила изготовление образцов многослойных структур BaTiO₃:Eu/SiO₂ в соответствии с разработанной методикой научным коллективом ранее.

Гапоненко Н.В. определил задачи, которые необходимо было решить в ходе проведения исследований, а также принимал участие в интерпретации их результатов.

Райченко Т.Ф. провел измерения оптических спектров многослойных структур.

Authors contribution

Parafinyuk D.A. has performed the production of the samples of multilayer periodic structures BaTiO₃:Eu/SiO₂ in accordance with the developed method by scientific team ago.

Gaponenko T.V. has identified the tasks that needed to be solved during the research, and also participated in the interpretation of the research results.

Raichenok T.F. has measured the optical spectra of multilayer structures.

Сведения об авторах

Парафинюк Д.А., магистрант кафедры микро- и наноэлектроники Белорусского государственного университета информатики и радиоэлектроники.

Гапоненко Н.В., д.ф.-м.н., профессор, заведующий НИЛ 4.5 НИЧ Белорусского государственного университета информатики и радиоэлектроники.

Райченко Т.Ф., к.ф.-м.н., ведущий научный сотрудник Центра «Фотоника атомных и молекулярных структур» Института физики НАН Беларуси.

Information about the authors

Parafinyuk D.A., master student of the Micro- and Nanoelectronic Department, Belarusian State University of Informatics and Radioelectronics.

Gaponenko T.V, D.Sci, professor, head of SRL 4.5 R&D Department of Belarusian State University of Informatics and Radioelectronics.

Raichenok T.F, PhD, leading researcher of the Center «Photonics of Atomic and Molecular Structures» B.I. Stepanov Institute of Physics NAS of Belarus.

Адрес для корреспонденции

220013, Республика Беларусь,
г. Минск, ул. П. Бровки, д. 6,
Белорусский государственный университет
информатики и радиоэлектроники
тел. +375-17-293-88-75;
nik@nano.bsuir.edu.by
Гапоненко Николай Васильевич

Address for correspondence

220013, Republic of Belarus,
Minsk, P. Brovki st., 6,
Belarusian State University
of Informatics and Radioelectronics
tel. +375-17-293-88-75;
nik@nano.bsuir.edu.by
Gaponenko Nikolay Vasilyevich