

# Особенности поляризационной анизотропии в оптическом отражении и пропускании коллоидных фотонных кристаллов

© С.Г. Романов

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН,  
Санкт-Петербург, Россия

E-mail: sergeiromanov@mail.ru

(Поступила в Редакцию 6 мая 2009 г.

В окончательной редакции 22 сентября 2009 г.)

В линейно поляризованном свете измерены спектры пропускания и отражения коллоидных фотонных кристаллов с трехмерной и одномерно-двумерной фотонной энергетической структурой, а именно пленок опалов и Лэнгмюр–Блоджетт-кристаллов с контрастом показателя преломления  $\sim 1.5:1$ . Показано, что поляризационная анизотропия значительно усилена в области дифракционных резонансов как в прошедшем, так и в отраженном свете, а величина анизотропии в области резонанса может превышать 99%. Обнаружено влияние взаимодействия собственных мод фотонного кристалла на величину поляризационной анизотропии. Сделано предположение, что совпадение максимумов поляризационной анизотропии резонансного и нерезонансного отражения света в коллоидных кристаллах обусловлено неупорядоченностью их решеток. Общий характер полученных результатов подтвержден одинаковым проявлением поляризационной анизотропии в коллоидных кристаллах с различной симметрией решеток.

Работа поддержана грантом РФФИ № 05-02-16975-а и EU NoE Phoremot.

## 1. Введение

Линейные оптические свойства трехмерных (3D) анизотропных фотонных кристаллов (ФК) на основе коллоидных кристаллов [1] постоянно привлекают внимание исследователей, поскольку изменчивость их спектров отражения и пропускания при варьировании угла падения света и ориентации плоскости падения относительно решетки кристалла позволяет извлечь информацию о структуре кристалла и характере взаимодействия света с решеткой. Наиболее распространенными материалами для таких исследований являются опалы и кристаллы на их основе [2–4]. Многообразие свойств, демонстрируемых ФК, значительно возрастает, если измерения проводятся в поляризованном свете, поскольку добавляется анизотропия ФК по отношению к направлению поляризации падающего света [5–10].

В то же время фотонная зонная энергетическая структура опала, рассчитанная для бесконечного кристалла, не позволяет вывести зависимость от поляризации электромагнитной волны [11]. Однако была отмечена корреляция между шириной первой низкочастотной фотонной щели (ФЩ) для мод различной симметрии и экспериментальными данными по ширине полосы резонанса в спектрах отражения, полученных в свете, имеющем ориентацию вектора электрического поля в плоскости падения волны ( $p$ ) или перпендикулярно ( $s$ ) этой плоскости [5]. Отметим, что такой подход не может быть распространен на ФЩ более высокого порядка, так как они открываются между двумя одинаковыми по симметрии модами [11,12].

Для ФК конечного размера более обоснованным представляется искать причину поляризационной анизотропии в неодинаковой связи  $s$ - и  $p$ -поляризованного света с ФК на границе его раздела с окружающей средой [10].

Если исследуемый образец рассматривать как дифракционную решетку, то анизотропия дифракции в отражении определяется как снижение интенсивности дифракционного резонанса нулевого порядка в  $p$ -поляризованном свете в области критического угла дифракции решетки [13].

В случае заполненных иммерсионной жидкостью опалов с исчезающе малым контрастом показателя преломления, являющихся примером так называемой „пустой“ решетки [14], резонансы успешно интерпретируются в рамках дифракционной модели [15,16]. В этом случае дифракционная модель оказывается применимой и для объяснения экспериментальных данных по поляризационной анизотропии отраженного от опала света [8,17]. Однако для опалов, имеющих промежуточный контраст показателя преломления порядка  $1.5:1$ , например, заполненных воздухом, положение резонансов в области многоволновой дифракции не совпадает с предсказаниями брэгговской дифракционной модели в боровском приближении [15,18], и необходимы численные расчеты [7]. Более того, с дальнейшим ростом контраста (например, до величины  $\sim 2.5:1$  в инвертированном  $\text{SnS}_2$  опале) наблюдаемая дисперсия резонансов отклоняется от соотношения Брэгга в диапазоне нескольких десятков градусов по углу падения света [19]. Тем не менее обозначение резонансов в соответствии с номенклатурой плоскостей в решетке ФК является удобным приемом, которым мы будем пользоваться в настоящей работе.

Зададимся вопросом, можно ли использовать дифракционную модель, не учитывающую взаимодействие собственных оптических мод в 3D-ФК с промежуточным контрастом показателя преломления, для интерпретации поляризационных свойств ФК в области резонансов, связанных с дифракцией на плоскостях с высокими индексами Миллера? Недостаточность дифракционного

подхода для описания поляризационных свойств опалов можно проиллюстрировать на примере работы [20], в которой для объяснения эволюции оптических спектров авторы были вынуждены постулировать такие новые явления, как особый угол Брюстера для отражения на не параллельных поверхностях образца плоскостях решетки и специфически направленные потоки энергии.

Сложность экспериментального изучения поляризационной анизотропии в опалах с заметным контрастом показателя преломления связана с сосуществованием в одном и том же диапазоне углов падения света нескольких явлений, таких как перераспределение интенсивностей резонансов от различных плоскостей в области анти-кроссинга их дисперсий, снижение интенсивности отраженного  $p$ -поляризованного света во внерезонансном отражении от опала как от однородного материала при приближении к углу Брюстера; исчезновение дифракции нулевого порядка в отражении в  $p$ -поляризованном свете при критическом угле дифракции. Поэтому изучение поляризационной анизотропии в коллоидных ФК различной структуры позволило бы существенно облегчить разделение вкладов перечисленных выше эффектов в суммарный детектируемый сигнал.

В настоящей работе мы сравнили поляризованное отражение и пропускание опалов и Лэнгмюр–Блоджетт (ЛБ)-кристаллов, имеющих контраст  $\sim 1.5:1$ . Опалы — самоорганизующиеся коллоидные кристаллы, состоящие из одинаковых субмикронных сфер [2]. Напротив, выращивание коллоидных кристаллов ЛБ-методом можно охарактеризовать как принудительную кристаллизацию [21–22]. Поэтому симметрии решеток сравниваемых кристаллов значительно различаются.

В исследованных нами коллоидных кристаллах процедуры упрочнения решетки не применялись. Поэтому эффективный показатель преломления кристаллов оставался меньше, чем в упрочненных спеканием опалах [5,10]. Вследствие этого все три ранее упомянутых механизма изменения интенсивности отражения  $p$ -поляризованного света оказываются в принципе наблюдаемыми в доступном диапазоне углов падения света.

В частности, проведенные в работе исследования коллоидных ФК позволили 1) продемонстрировать зависимость поляризационной анизотропии в резонансах в прошедшем и отраженном свете от структуры коллоидного кристалла; 2) выявить влияние взаимодействия мод ФК на поляризационную анизотропию; 3) показать связь поляризационной анизотропии с упорядоченностью решетки коллоидного кристалла.

## 2. Техника эксперимента

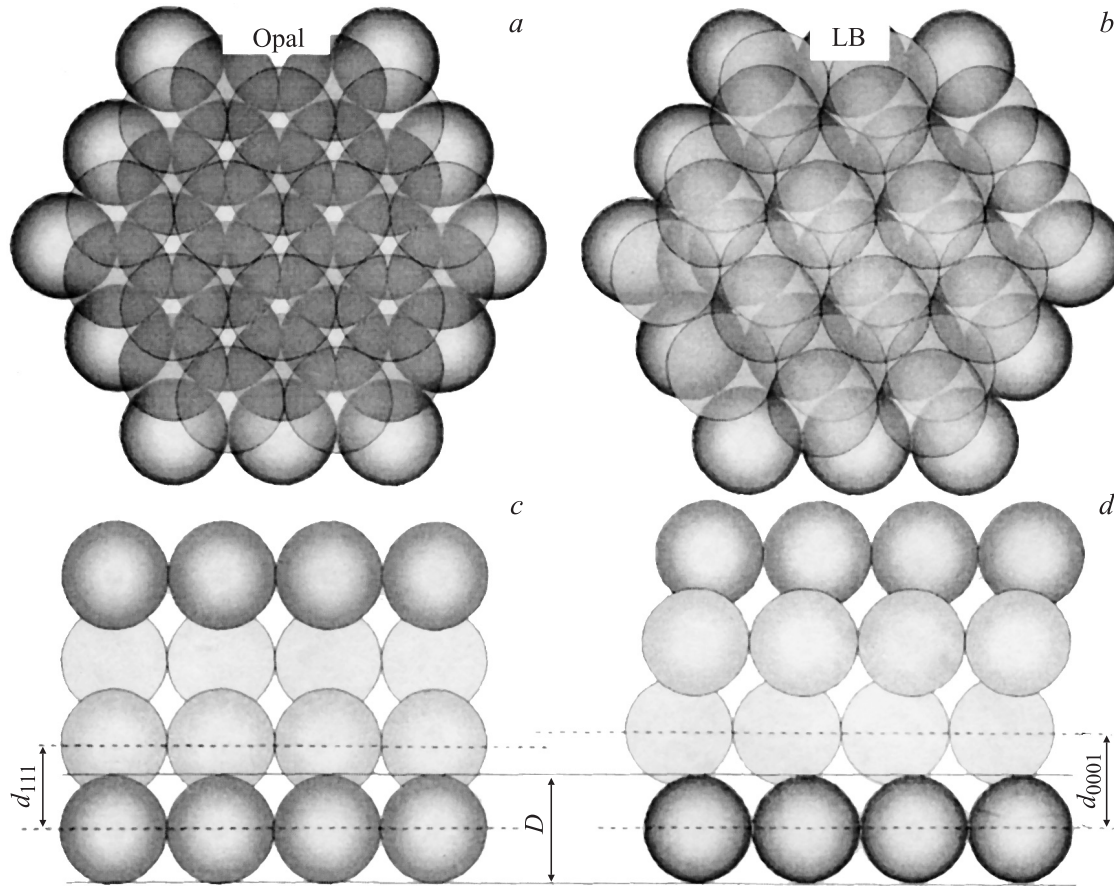
Для изготовления опалов были использованы сферы диаметром 369 nm, синтезированные из полиметилакрилата [24]. Пленки опала были приготовлены методом кристаллизации суспензии этих сфер на стеклянных подложках в вертикально перемещающемся мениске в условиях активации акустическими шумовыми вибрациями.

Пленки опалов, приготовленные таким методом, имеют решетку с симметрией, близкой к гранцентрированной кубической (ГЦК) [25]. Структуру опала можно представить как чередование монослоев, представляющих собой плотную гексагональную решетку сфер и являющихся плоскостями (111) ГЦК-кристалла (рис. 1, *a*). Эти плоскости сгруппированы в тройки  $\dots ABC \dots$ , в которых монослои последовательно смещены друг относительно друга в плоскости пленки (рис. 1, *c*). Не следует, однако, смешивать эту геометрическую модель с кристаллизацией пленки опала, которая на вертикально перемещающейся подложке происходит не послойно, а сразу по всей толщине пленки.

ЛБ-кристаллы были собраны из десяти монослоев силикатных сфер диаметром 519 nm. Каждый слой формировался на поверхности раздела субфаза–воздух и переносился как целое на медленно вытягиваемую из ванны стеклянную подложку [26]. Каждый нанесенный слой был высушен в потоке азота перед проведением следующего цикла нанесения. Количество монослоев сфер в приготовленном ансамбле определяется числом циклов переноса (рис. 1, *b, d*). При таком построении нет механизма, выстраивающего дальний порядок в чередовании ростовых монослоев, но в силу невыясненных пока обстоятельств периодичность расположения монослоев в стопке сохраняется (рис. 1, *d*). Поэтому в ЛБ-кристалле параметры 2D-решетки в слое не связаны напрямую с периодичностью стопки слоев, образующих 1D-решетку [27,28]. Наиболее простым 3D-аналогом ЛБ-кристалла является гексагональная решетка. Хотя в реальных ЛБ-кристаллах симметрия решетки понижается до моноклинной, последующее описание ЛБ-кристалла будем вести, используя четырехзначные индексы Миллера гексагональной решетки, что позволяет читателю с легкостью различать обсуждаемые образцы.

Образцы отжигу и спеканию не подвергались, поэтому предполагается сохранение сферичности полимерных и силикатных глобул в исследованных образцах. В случае опала упрочнение образцов является, по-видимому, следствием акустической вибрации, а в случае ЛБ-кристаллов — следствием сцепления молекул полимерного покрытия, осажденного на поверхность сфер для придания им гидрофобности.

Спектры пропускания и отражения измерялись при разных углах падения коллимированного пучка света диаметром 1 mm от галогенной лампы накаливания. Падающий на образец свет пропускали через призменный поляризатор. Прошедший через пленку или отраженный от пленки свет собирали линзой из телесного угла около  $0.5^\circ$  и после прохождения через поляризатор-анализатор фокусировали на входную щель спектрометра с фиксированной решеткой и ПЗС-детектором. Чтобы исключить поляризующее действие дифракционной решетки спектрометра, перед щелью была помещена четвертьволновая пластинка, превращающая линейно поляризованный свет в циркулярно поляризованный.



**Рис. 1.** Схема упаковки ростовых монслоев сфер в ГЦК-решетке опала (*a, c*) кристалла (LB) (*b, d*). *a, b* — вид сверху, *c, d* — в сечении пленки.  $D$  — диаметр сферы,  $d_{111}$  и  $d_{0001}$  — межплоскостное расстояние. *a, c* — плоскости (111), *b, d* — плоскость (0001).

Спектры измерялись при *p*- и *s*-поляризации вектора электрического поля световой волны. Угол падения  $\theta$  отсчитывался от нормали к поверхности пленки.

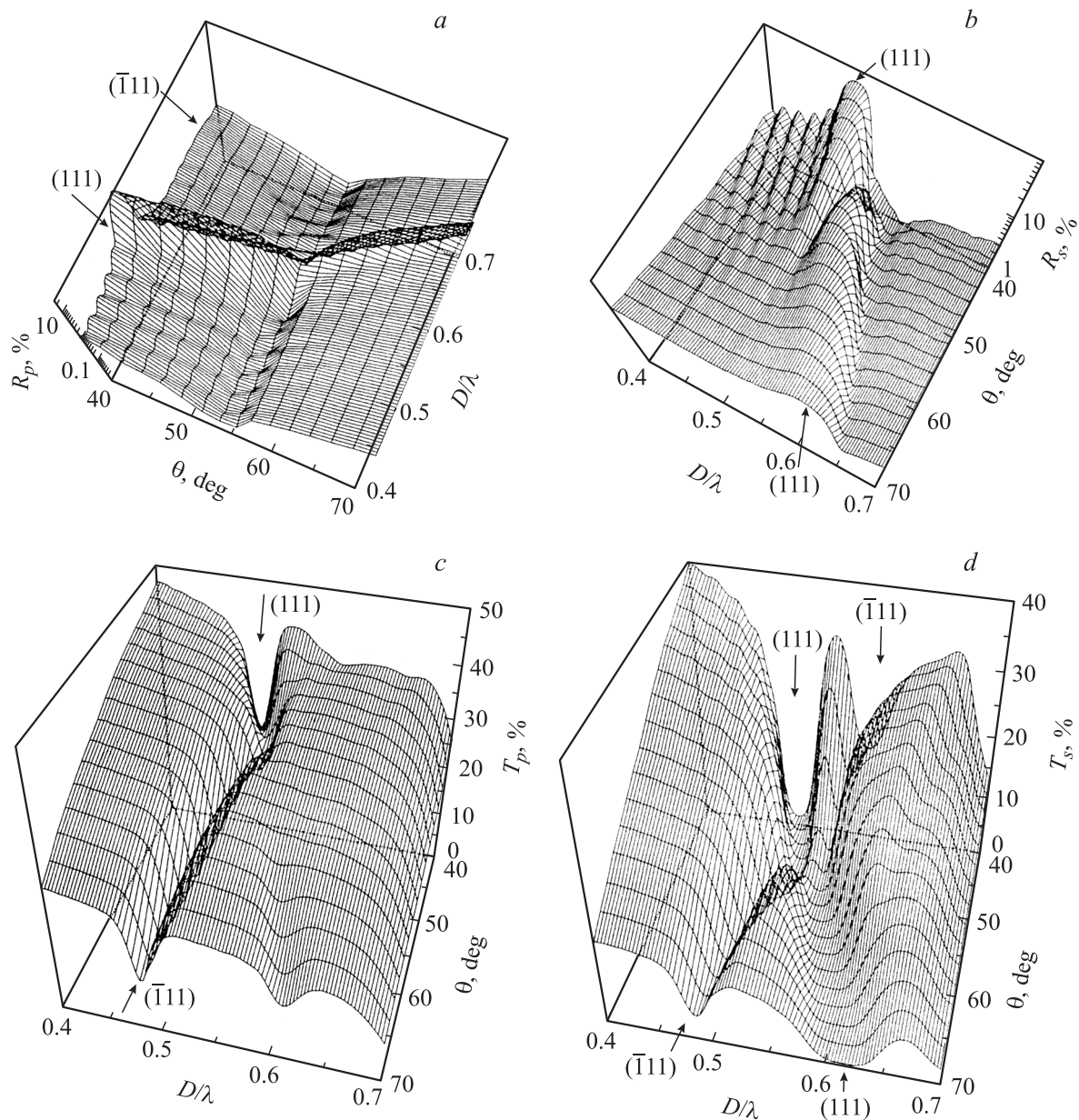
С целью сравнения результатов, полученных на кристаллах, собранных из сфер различных диаметров, спектры даны относительно приведенной частоты  $D/\lambda$ , где  $D$  — диаметр сфер. Резонансы обозначены в соответствии с индексами дифрагирующих плоскостей решеток и индексом, указывающим на поляризацию света. В исследованном спектральном диапазоне и при использованной геометрии сбора света в полученных спектрах видны только дифракционные резонансы нулевого порядка для различных плоскостей кристаллов.

В кристалле опала направление сканирования решетке при увеличении угла падения и индексы дифрагирующих плоскостей были определены по картине поверхностной дифракции. Брэгговская аппроксимация дисперсии (111)-резонанса была использована для определения межплоскостного расстояния  $d_{111} = 301$  nm и эффективного показателя преломления  $n_{\text{eff}} = 1.361$  [25]. Толщина пленки  $t = 7462$  nm была определена из периода осцилляций Фабри–Перо в спектрах пропускания и отражения. Детали этих оценок не приведены, так как они многократно описаны в литературе.

В ЛБ-кристалле, кроме дифракции на стопке ростовых плоскостей (0001), дополнительный резонанс, присутствующий в спектрах, был предположительно определен как дифракция на плоскостях семейства (10 $\bar{1}0$ ). Из угловой дисперсии (0001) резонанса были найдены параметры  $d_{0001} = 441$  nm и  $n_{\text{eff}} = 1.245$  для этой пленки. Как видно, плотность упаковки слоев в этом образце  $d_{0001}/D = 0.85$  меньше, чем в ГЦК-решетке опала, где  $d_{111}/D = 0.816$ , но значительно больше, чем в гексагональной решетке, для которой  $d_{0001}/D = 1$ . Фактически в настоящей работе описаны свойства одного из наиболее плотно упакованных ЛБ-образцов, поскольку для других образцов параметр  $d_{0001}/D$  может достигать 0.91.

### 3. Спектры отражения и пропускания опала в поляризованном свете

На рис. 2 представлены спектры поляризованного отражения и пропускания пленки опала, измеренные в диапазоне углов падения от 40 до 70°. Резонансы прослеживаются в этих спектрах во всем диапазоне углов падения, что необходимо для корректной оценки



**Рис. 2.** Спектры отражения (*a, b*) и спектры пропускания (*c, d*) в *p*- и *s*-поляризации света для пленки опала. Стрелки указывают резонансы от плоскостей решетки, пронумерованных индексами Миллера. *a, c* — *p*-поляризация, *b, d* — *s*-поляризация.

угловой зависимости поляризационной анизотропии. Соотнесение этих резонансов с дифракцией на плоскостях решетки опала хорошо известно [7,9,10,18,20].

Имеются два основных различия между спектрами отражения на рис. 2, *a* и *b*: 1) в *p*-поляризованном свете при  $\theta = 56^\circ$  отражение имеет минимум интенсивности как в резонансной полосе, так и вне ее; напротив, в *s*-поляризованном свете с углом падения изменяются только резонансы; 2) в *s*-поляризованном свете между  $44$  и  $58^\circ$  видно расщепление (111)- и  $(\bar{1}\bar{1}\bar{1})$ -резонансов, а в *p*-поляризации доминирует (111)-резонанс, не испытывающий взаимодействия с  $(\bar{1}\bar{1}\bar{1})$ -резонансом.

В пропускании наблюдаются те же (111)- и  $(\bar{1}\bar{1}\bar{1})$ -резонансы (рис. 2, *c, d*): 1) *p*-(111)-резонанс пропада-

ет при  $\theta = 50\text{--}56^\circ$ , но присутствует *p*- $(\bar{1}\bar{1}\bar{1})$ -резонанс; 2) в *s*-поляризованном свете присутствуют оба резонанса, причем их можно разрешить при всех углах падения света. Расщепление резонансов в *s*-поляризованном свете — антикроссинг дисперсий резонансов, который происходит в результате взаимодействия мод в ФК [18].

Следует отметить, что подобные спектры многократно обсуждались в литературе, однако, насколько известно автору, до сих пор не было проведено детального сопоставления поляризационной анизотропии в спектрах отражения и пропускания.

Количественный анализ показывает, что амплитуда отражения в максимуме *p*-(111)-резонанса снижается с ростом угла падения с 56% при  $\theta = 10^\circ$  до 0.66% при

$\theta = 56^\circ$  (рис. 2, *a*), однако разрешение этого резонанса сохраняется таким же, как и для  $10^\circ$ , из-за сравнимого снижения уровня внерезонансного отражения. Полноты ради следует отметить, что в спектрах также присутствуют  $p$ -( $\bar{1}11$ )-резонанс, видимый как слабое плечо, искажающее периодичность осцилляций Фабри–Перо. Очевидно, что спектры пропускания в  $p$ -поляризованном свете не комплиментарны спектрам отражения, поскольку вблизи  $\theta = 56^\circ$   $p$ -( $111$ )-резонанс отсутствует, но зато присутствует  $p$ -( $\bar{1}11$ )-резонанс (рис. 2, *c*).

Напротив, в  $s$ -поляризованном свете в диапазоне углов падения  $44$ – $58^\circ$  комплиментарность резонансов в спектрах отражения и пропускания сохраняется (рис. 2, *b, d*). Важно подчеркнуть, что минимум отражения в  $p$ -поляризованном свете наблюдается при  $\theta = 56^\circ$ , а центр угловой области антикроссинга дисперсий резонансов находится около  $\theta = 50^\circ$ .

#### 4. Спектры отражения и пропускания ЛБ-кристалла в поляризованном свете

Спектры поляризованного отражения и пропускания ЛБ-кристалла (рис. 3) в общих чертах согласуются со спектрами пленки опала. Подчеркнем только ключевые особенности: 1) снижение амплитуды  $p$ -( $0001$ )-резонанса с  $43\%$  ( $\theta = 10^\circ$ ) до  $0.55\%$  ( $52^\circ$ ) происходит одновременно с уменьшением амплитуды внерезонансного отражения (рис. 3, *a*); 2) в отражении  $s$ -поляризованного света присутствует только  $s$ -( $0001$ )-полоса (рис. 3, *b*); 3) в спектрах пропускания, измеренных в  $p$ -поляризованном свете, отсутствуют резонансы в диапазоне углов падения  $48$ – $50^\circ$  (рис. 3, *c*), что предполагает значительную анизотропию пропускания ЛБ-пленки из-за присутствия резонансной полосы в противоположной поляризации (рис. 3, *d*); 4) в спектрах пропускания либо при больших углах падения в  $p$ -поляризованном свете, либо при малых углах в  $s$ -поляризованном свете наблюдается слабый минимум ( $10\bar{1}0$ ) (рис. 3, *c, d*).

Анализ углового изменения резонансов в спектрах ЛБ-кристаллов осложнен двумя обстоятельствами: интенсивными осцилляциями Фабри–Перо и немонотонной дисперсией резонансной полосы отражения в  $p$ -поляризованном свете. Эту немонотонность можно трактовать как проявление антикроссинга дисперсий  $p$ -( $0001$ )- и  $p$ -( $10\bar{1}0$ )-резонансов. Таким образом, в противоположность опалу, антикроссинг в отражении ЛБ-кристалла наблюдается в  $p$ -поляризованном свете. При этом отражение в центре  $p$ -( $10\bar{1}0$ )-полосы достигает своего минимума  $0.54\%$  при  $\theta = 52^\circ$ , но резонансная полоса остается различимой на фоне нерезонансного отражения, которое также имеет минимум при данном угле падения. Важно отметить, что этот же угол приходится на середину углового диапазона антикроссинга дисперсий резонансов.

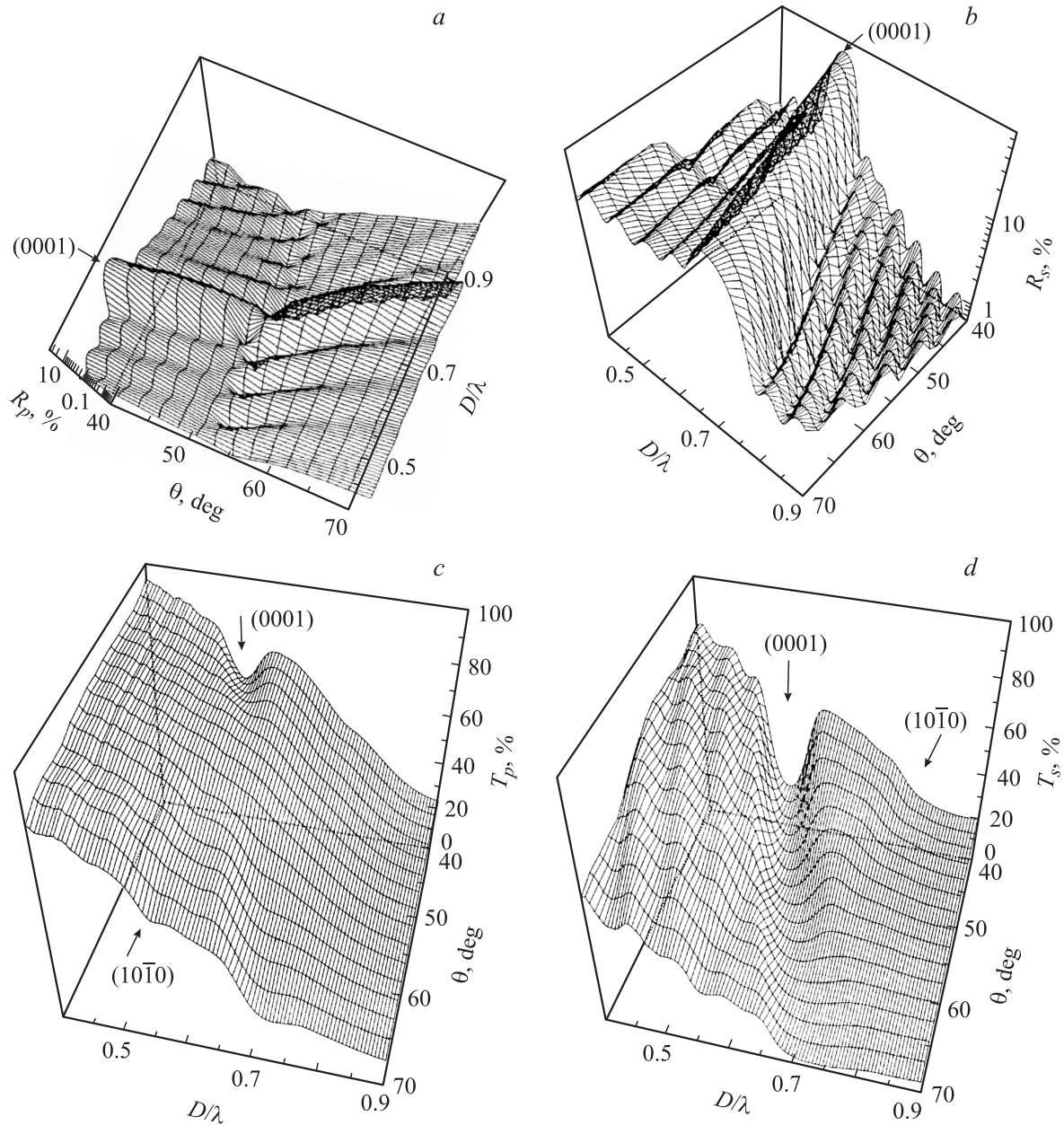
Как видно, различие строения решеток опала и ЛБ-кристалла проявляется в особенностях поведения их спектров в поляризованном свете. Следует отметить, что в ортогональных поляризациях спектральные положения резонансов, соответствующих одинаковым плоскостям, различаются в области антикроссинга дисперсий этих резонансов для обоих коллоидных ФК. Таким образом, поляризационная анизотропия в 3D-ФК проявляется не только как изменение амплитуды резонансов при изменении поляризации света, но и как спектральный сдвиг этих резонансов.

Еще один естественный вопрос можно задать по поводу некомплементарности резонансов в пропускании и отражении  $p$ -поляризованного света. Предположительно, разрешить это противоречие можно, приняв во внимание тот факт, что если абсолютная величина дифракционного резонанса в отражении составляет менее  $1\%$ , то минимум аналогичной амплитуды в спектре прошедшего света оказывается исчезающе малым на фоне потерь света, которые составляют до  $60\%$  ( $30\%$ ) пропускания в измеренных образцах опала (ЛБ-кристалла). Поскольку поглощение в материале исследованных кристаллов незначительно, эти потери приходится на дифракцию высокого порядка и рассеяние света на неоднородностях структуры. Ввиду слабой межслоевой корреляции плоскостей ( $0001$ ) ЛБ-кристалла спектры его пропускания в  $p$ -поляризованном свете выглядят значительно более сглаженными, чем аналогичные спектры пленки опала. В частности, в ЛБ-кристалле оба дифракционных резонанса пропадают в области антикроссинга их дисперсий.

#### 5. Угловая зависимость поляризационной анизотропии

Угловая дисперсия поляризационной анизотропии представлена на рис. 4. Здесь приведены отношения  $R_p/R_s$  и  $T_s/T_p$ , построенные по значениям соответствующих параметров в центрах дифракционных полос. Если соответствующий резонанс в спектре отсутствует, как, например, ( $111$ )-резонанс в спектре  $T_p$  опала при  $\theta = 56^\circ$ , то значение пропускания взято по величине пропускания на частоте резонанса, определенного из спектра  $T_s$ .

В опале максимум анизотропии в отражении достигается при  $\theta = 56^\circ$  (кривая 1 на рис. 4, *a*). При этом отраженный свет более чем на  $(R_s - R_p)/(R_s + R_p) > 99\%$  поляризован перпендикулярно плоскости падения. Формально этот угол может быть определен как критический угол дифракции от плоскостей ( $111$ ) решетки опала. Однако, построив аналогичное отношение для отражения, взятого на приведенной частоте  $D/\lambda = 0.37$ , т.е. при частоте меньшей, чем ( $111$ )-резонанс при  $\theta = 0^\circ$ , видим пик при  $\theta = 54^\circ$  (кривая 2 на рис. 4, *a*). Оценка угла Брюстера для отражения от пленки опала с  $n_{\text{eff}} = 1.361$  дает  $\theta_B = \arctg n_{\text{eff}} = 53.7^\circ$ , что заставляет



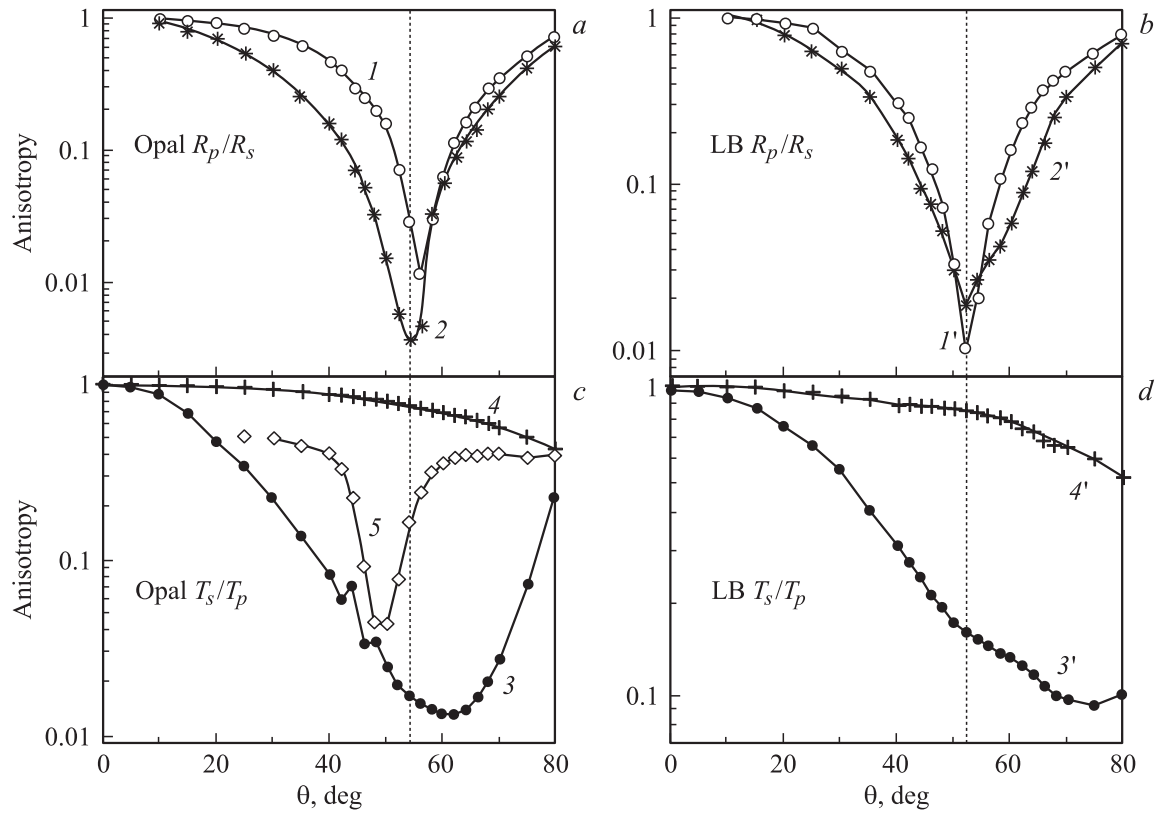
**Рис. 3.** Спектры отражения (*a, b*) и спектры пропускания (*c, d*) в *p*- и *s*-поляризации света для пленки ЛБ-кристалла. Стрелки указывают резонансы от плоскостей решетки, пронумерованных индексами Миллера. *a, c* — *p*-поляризация, *b, d* — *s*-поляризация.

усомниться в природе минимума на кривой 2. Хотя сдвиг минимума кривой 2 относительно минимума кривой 1 фиксируется уверенно, поскольку обе кривые определяются из одной и той же серии спектров отражения, обосновать, исходя из этих данных, качественно различный характер анизотропии дифракционного резонанса представляется затруднительным.

Аналогичная картина наблюдается для анизотропии отражения в ЛБ-кристалле. Здесь расчетное значение угла Брюстера составляет  $\theta_B = 51.2^\circ$  для пленки с  $n_{\text{eff}} = 1.245$ , что находится в хорошем согласии с минимумами отношений интенсивностей резонансов и величин отражения при  $D/\lambda = 0.37$  (рис. 4, *b*, кривые 1'

и 2' соответственно), наблюдаемыми при  $\theta_B = 52^\circ$ . Некоторая волнистость кривой 2' вызвана влиянием осцилляций Фабри–Перо в отражении.

Угловые диаграммы поляризационной анизотропии в пропускании значительно отличаются от аналогичных диаграмм в отражении. Свет, прошедший через пленку опала при резонансных условиях для плоскостей (111), оказывается *p*-поляризован более чем на  $(T_p - T_s)/(T_p + T_s) > 90\%$ , причем в широком диапазоне углов падения от  $43$  до  $73^\circ$  с максимумом анизотропии в  $97\%$  при  $\theta = 62^\circ$  (кривая 3 на рис. 4, *c*). При этом свет, прошедший через опал при нерезонансных условиях, поляризован намного слабее, а угловая зависимость



**Рис. 4.** Угловые зависимости поляризационной анизотропии в отражении (*a, b*) и пропускании (*c, d*) опала (*a, c*) и ЛБ-кристалла (*b, d*). 1, 3 — анизотропия (111) резонанса, 2, 4 — соответственно анизотропия в отражении и анизотропия в пропускании опала при  $D/\lambda = 0.37$ , 5 — анизотропия ( $\bar{1}\bar{1}\bar{1}$ ) резонанса; 1', 3' — анизотропия (0001) резонанса, 2', 4' — соответственно анизотропия в отражении и анизотропия в пропускании ЛБ-кристалла при  $D/\lambda = 0.37$ .

поляризации не отличается от стандартной зависимости для однородной пленки (кривая 4 на рис. 4, *c*) [29].

Анизотропия ( $\bar{1}\bar{1}\bar{1}$ )-резонанса достигает максимума при  $\theta \approx 50^\circ$  в полном соответствии с положением области антикроссинга дисперсий (111)- и ( $\bar{1}\bar{1}\bar{1}$ )-резонансов. При удалении от области антикроссинга анизотропия этого резонанса быстро спадает (кривая 5 на рис. 4, *c*). Поэтому наблюдаемую анизотропию ( $\bar{1}\bar{1}\bar{1}$ )-резонанса мы предлагаем рассматривать как наведенный эффект, являющийся следствием взаимодействия собственных мод опала в области антикроссинга (111)- и ( $\bar{1}\bar{1}\bar{1}$ )-резонансов.

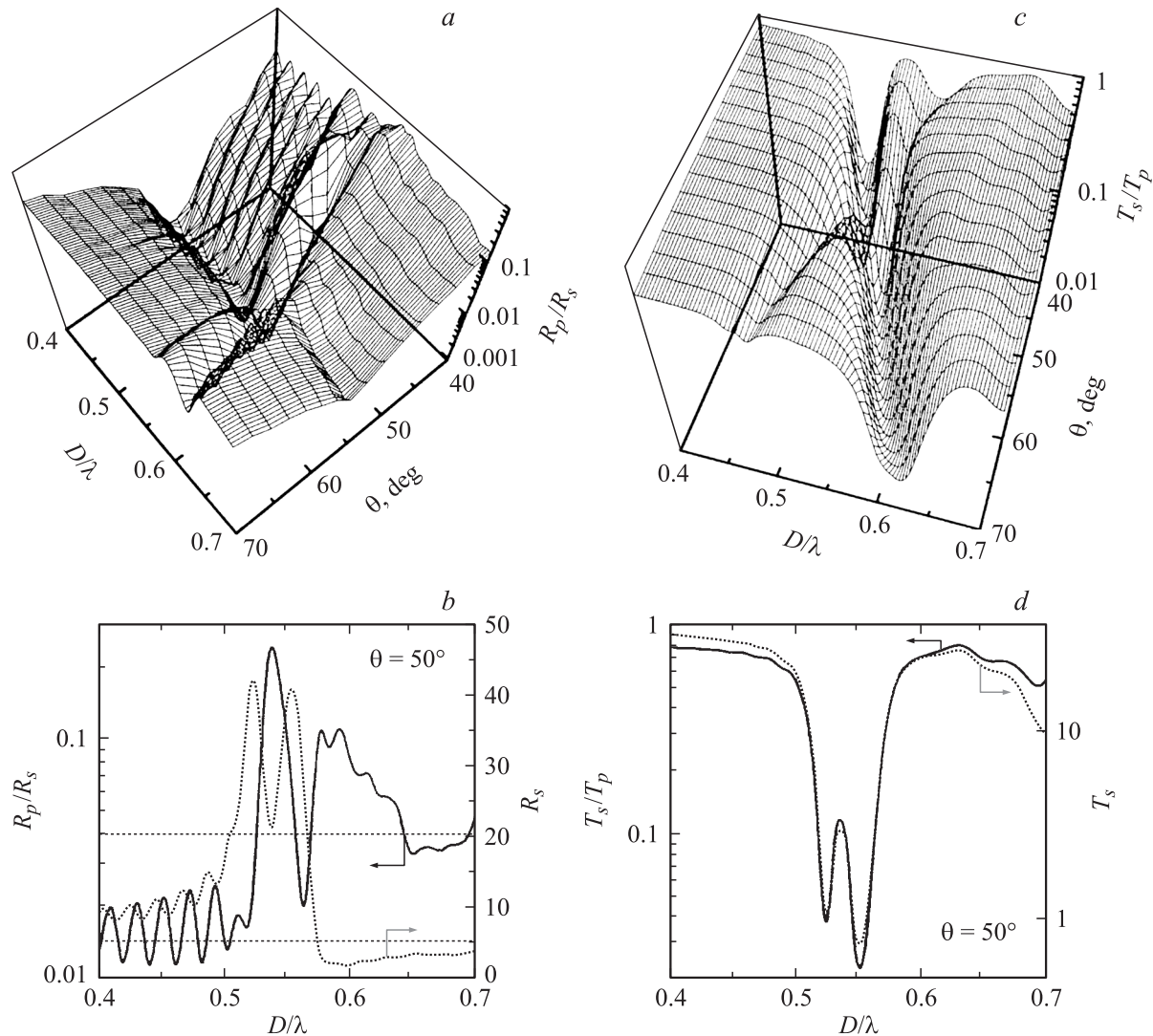
В ЛБ-кристалле поляризационная анизотропия прошедшего света в (1000)-резонансе возрастает с увеличением угла падения (кривая 3' на рис. 4, *d*) подобно анизотропии в нерезонансных условиях (кривая 4' на рис. 4, *d*), но значительно превосходит последнюю по величине.

Следует отметить, что вдали от резонансов поляризация прошедшего и отраженного света в опалах и ЛБ-кристаллах совпадает с поляризационной анизотропией однородных пластинок [29].

Изучаемые коллоидные кристаллы имеют заметный контраст показателя преломления. В случае слоисто-периодической системы [30,31] с аналогичным контра-

стом невозможно достичь критического угла дифракции, поэтому такие 1D-системы обладают всенаправленной ФЦ. Однако если такая структура погружена в среду с высоким показателем преломления, то критический угол вновь становится наблюдаемым в достижимом диапазоне углов падения [32]. В случае опала, на понижение отражения при углах падения около  $50^\circ$  обращали внимание нечасто [20,33,34], при этом вопрос о критическом угле отражения решеткой был рассмотрен, насколько нам известно, только однажды [10].

Распространение модели слоистой среды на дифракцию в коллоидных кристаллах связано с необходимостью выделения дифрагирующих плоскостей в 3D-решетке плотноупакованных сфер. На основе этой модели для определения критического угла  $\theta_c$  дифракции в опале было предложено соотношение  $\sin \theta_c = \sqrt{\varepsilon_0/(2\varepsilon_v)}$ , где  $\varepsilon_0$  — эффективная диэлектрическая проницаемость ФК, а  $\varepsilon_v$  — постоянная внешней среды [10]. Эта формула была экспериментально подтверждена для пленки опала, заполненной иммерсионной жидкостью. Для опала и ЛБ-кристалла, заполненных воздухом, эта формула оценивает критический угол дифракции как  $\theta_c = 74$  и  $62^\circ$  соответственно. Однако мы не нашли никаких особенностей ни в спектрах, ни в диаграммах анизотропии в соответствующем диапазоне



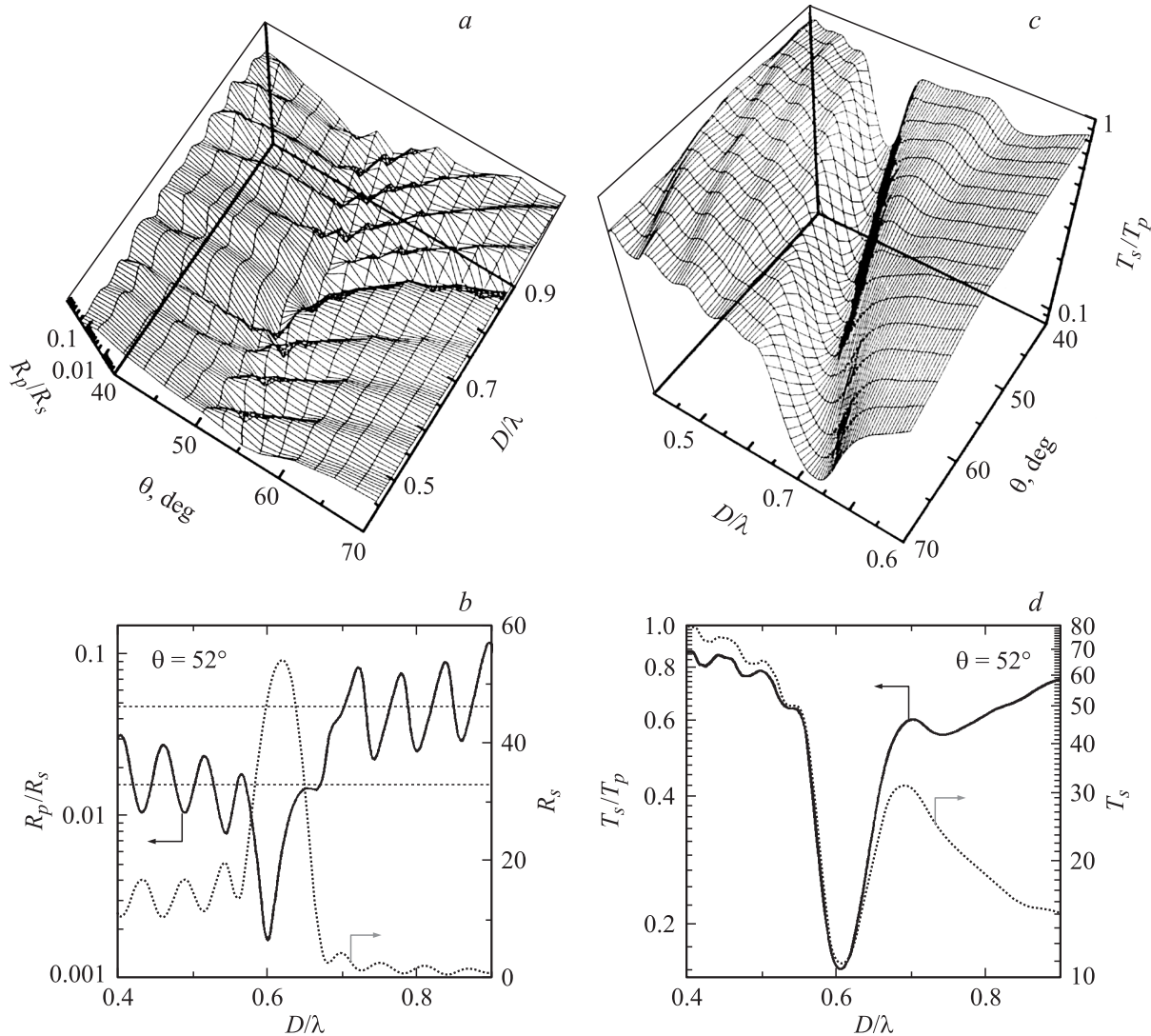
**Рис. 5.** Спектры поляризационной анизотропии в отражении (a) и пропускании (c) опала и сопоставление спектров анизотропии в отражении и пропускании со спектрами отражения и пропускания при  $\theta = 50^\circ$  в диапазоне антикроссинга дисперсий (111) и  $(\bar{1}\bar{1}1)$  резонансов (b и d соответственно). Горизонтальные линии на части b указывают усредненный уровень поляризации света в разных частотных диапазонах.

углов. Возникает противоречие: дифракция наблюдается уверенно, а критический угол дифракции не наблюдается. Для разрешения этого противоречия следует принять во внимание сложную геометрию межслоевых границ в решетках исследованных коллоидных кристаллов. Условие наблюдения критического угла дифракции является равенство угла между направлениями падающего и отраженного  $p$ -поляризованного света  $90^\circ$  на границе между дифрагирующими плоскостями в толще решетки (условие Брюстера). Поскольку в коллоидном кристалле эта граница составлена полусферами, даже небольшой беспорядок в расположении или форме сфер ведет к локальным нарушениям фронта отраженной волны, как в случае отражения от случайно неупорядоченной среды. В то же время для выполнения условия дифракции оказывается достаточной периодичность в модуляции

показателя преломления в среднем независимо от поляризации света, что вполне обеспечивается имеющимся уровнем упорядоченности исследованных коллоидных кристаллов. В согласии с этой гипотезой рассогласование продольного положения плоскостей (0001) в ЛБ-кристалле делает невозможным наблюдение критического угла дифракции. В опале, где упорядоченность решетки которого намного лучше, наблюдаемая поляризационная анизотропия резонанса в отражении заметно отличается от анизотропии эффективной среды.

Диаграммы анизотропии, представляющие отношение амплитуд резонансов (рис. 4), не дают адекватного представления о поляризационной анизотропии коллоидных кристаллов. Поэтому для полноты картины были построены отношения спектров, полученных в ортогональных поляризациях в отражении и пропускании.





**Рис. 6.** Спектры поляризационной анизотропии в отражении (*a*) и пропускании (*c*) ЛБ-кристалла и сопоставление спектров анизотропии в отражении и пропускании со спектрами отражения и пропускания при  $\theta = 52^\circ$  в диапазоне антикроссинга дисперсий (0001) и (10 $\bar{1}$ 0) резонансов (*b* и *d* соответственно). Горизонтальные линии на части *b* указывают усредненный уровень поляризации света в разных частотных диапазонах.

Спектры анизотропии в отражении опала показывают, что области антикроссинга дисперсий резонансов соответствует полоса меньшей анизотропии (рис. 5, *a*). Свет в максимуме этой полосы в 17 раз менее поляризован, чем вне резонансно отраженный свет. Этот максимум приходится точно посередине спектрального интервала расщепления (111)- и ( $\bar{1}\bar{1}1$ )-резонансов (рис. 5, *b*). Кроме того, отраженный свет почти в 3 раза сильнее поляризован на частотах ниже ФЩ, чем в области частот выше ФЩ. По-видимому, в области, где нет дифракционных резонансов, отраженный от опала свет с частотами, большими частоты основного брэгговского резонанса, испытывает многократные отражения на неоднородностях структуры.

В пропускании, наоборот, полосы анизотропии тривиально соответствуют минимуму пропускания (ср.

рис. 2, *d* и 5, *c*), показывая что прошедший свет *p*-поляризован в области резонанса из-за более сильного ослабления *s*-поляризованного света (рис. 5, *d*).

В ЛБ-кристалле полоса резонанса в спектре анизотропии в отражении незначительно отличается от анизотропии нерезонансного отражения (рис. 6, *a*). Более детальный анализ показывает, что максимуму *s*-(0001)-резонанса в отражении в направлении, определяемом углом  $\theta = 52^\circ$ , соответствует минимум спектра анизотропии (рис. 6, *b*). При изменении угла падения света этот минимум исчезает. Таким образом, в отличие от опала, антикроссингу дисперсий различных собственных мод в ЛБ-кристалле сопутствует усиление анизотропии. Сопоставляя с опалом, можно предположить, что если антикроссинг наблюдается в *s*-поляризации, то поляризационная анизотропия уменьшается.

В согласии со спектрами опала, анизотропия отражения при частотах, больших частоты (0001)-резонанса, оказывается примерно в 3 раза ниже, чем на меньших частотах, т.е. как и в опале, отражение формируется за счет рассеяния света.

Спектры анизотропии в пропускании ЛБ-кристалла, так же как и в опале, повторяют спектр пропускания в *s*-поляризации (рис. 6, *d*).

## 6. Заключение

В настоящей работе была экспериментально исследована поляризационная анизотропия оптического пропускания и отражения в ФК на основе коллоидных кристаллов. Сравнительное исследование анизотропии в ФК с решеткой различной симметрии позволило сделать следующие выводы.

1) Свет, прошедший через коллоидный ФК, становится линейно поляризованным преимущественно в плоскости падения, если его длина волны и направление распространения совпадают с условиями брэгговского резонанса нулевого порядка на параллельных поверхности пленки плоскостях кристалла, а именно на плоскостях (111) опала и плоскостях (0001) ЛБ-кристалла. Величина поляризационной анизотропии света в резонансе увеличивается с ростом количества плоскостей решетки, так как растет различие в ослаблении света разных поляризаций. В исследованной пленке опала, состоящей из 25 плоскостей (111), поляризация света в минимуме пропускания достигает 97% в диапазоне углов падения шириной 30°. За пределами полосы дифракции поляризация прошедшего света оказывается слабее на несколько порядков величины. Поскольку анизотропия велика в области резонанса, разупорядочение решетки должно уменьшать анизотропию.

2) Отраженный свет, напротив, поляризован преимущественно перпендикулярно плоскости падения. Показано, что величина поляризации света в резонансе близка к величине поляризации нерезонансно отраженного света для обоих исследованных типов кристаллов. Максимум поляризации света в резонансе (свыше 99%) достигается вблизи угла падения, определяемого условием Брюстера.

3) В нашем эксперименте критический угол в дифракции *p*-поляризованного света не наблюдался. В опале амплитуда *p*-(111)-резонанса в отражении уменьшается по мере приближения к углу Брюстера, однако разрешение этого резонанса по отношению к амплитуде нерезонансно отраженного света слабо изменяется с ростом угла падения света, не обнаруживая никаких особенностей. В ЛБ-кристалле тенденция такая же, но картина явления осложнена тем, что минимум отражения *p*-(0001)-резонанса и область антикроссинга дисперсий (0001)- и (10 $\bar{1}$ 0)-резонансов совпадают. Весьма вероятно, что доминирование угла Брюстера в поляризационной ани-

зотропии в отражении коллоидных кристаллов связано с неупорядоченностью решетки кристалла.

4) Сильное взаимодействие собственных мод 3D-ФК в области их антикроссинга приводит к наведенной поляризации резонанса в прошедшем свете для непараллельных поверхности кристалла плоскостей, как это видно на примере поляризации света в резонансах от плоскостей (111) и ( $\bar{1}$ 11) опала. В отражении взаимодействие собственных мод ФК ведет либо к уменьшению степени поляризации света в области резонанса (как в опале), либо к усилению анизотропии (как в ЛБ-кристалле). Знак изменения зависит от симметрии решетки, а изменение достигает порядка величины в обоих случаях. Это явление демонстрирует недостаточность дифракционной модели для описания поляризационной анизотропии света в оптических резонансах в случае ФК с достаточно большим значением контраста показателя преломления.

Автор благодарен М. Бардосовой за предоставление образцов ЛБ-кристаллов для измерений.

## Список литературы

- [1] I.I. Tarhan, G.H. Watson. Phys. Rev. Lett. **76**, 315 (1996).
- [2] Н.Д. Денискина, Д.В. Калинин, Л.К. Казанцева. Благородные опалы, их синтез и генезис в природе. Наука, Новосибирск (1980).
- [3] В.Г. Балакирев, В.Н. Богомолов, В.В. Журавлев, Ю.А. Кумзеров, В.П. Петрановский, С.Г. Романов, Л.А. Самойлович. Кристаллография **38**, 111 (1993).
- [4] Y. Xia, B. Gates, Y. Yin, Yu. Lu. Adv. Mater. **12**, 693 (2000).
- [5] J.F. Galisteo-Lopez, F. Lopez-Tejiera, S. Rubio, C. Lopez, J. Sanchez-Dehesa. Appl. Phys. Lett. **82**, 4068 (2003).
- [6] S.G. Romanov, C.M. Sotomayor Torres. Proc. SPIE **6182**, 61820H (2006).
- [7] A. Balestreri, L.C. Andreani, M. Agio. Phys. Rev. E **74**, 036 603 (2006).
- [8] A.V. Baryshev, A.B. Khanikaev, H. Uchida, M. Inoue, M.F. Limonov. Phys. Rev. B **73**, 033 103 (2006).
- [9] С.Г. Романов. ФТТ **49**, 512 (2007).
- [10] А.Г. Баженова, А.В. Селькин, А.Ю. Меньшикова, Н.Н. Шевченко. ФТТ **49**, 2010 (2007).
- [11] F. Lopez-Tejiera, T. Ochiai, K. Sakoda, J. Sanchez-Dehesa. Phys. Rev. B **65**, 195 110-1-8 (2002).
- [12] С.Г. Романов, М. Bardosova. ФТТ **52**, 000 (2010).
- [13] А. Ярив, П. Юх. Оптические волны в кристаллах. Мир, М. (1987).
- [14] M. Notomi. Phys. Rev. B **62**, 10 696 (2000).
- [15] В.А. Кособукин, ФТТ **47**, 1954 (2005).
- [16] A. Tikhonov, R.D. Coalson, S.A. Asher. Phys. Rev. B **77**, 235 404 (2008).
- [17] A.V. Baryshev, A.A. Kaplyanskii, V.A. Kosobukin, K.B. Samusev, D.E. Usvyat, M.F. Limonov. Phys. Rev. B **70**, 113 104 (2004).
- [18] S.G. Romanov, T. Maka, C.M. Sotomayor Torres, M. Müller, R. Zentel, D. Cassagne, J. Manzanares-Martinez, C. Jouanin. Phys. Rev. E **63**, 056 603-1-5 (2001).
- [19] T. Maka, D.N. Chigrin, S.G. Romanov, C.M. Sotomayor Torres. Progr. in Electromagnetics Research (PIER) **41**, 307 (2003).

- [20] A.V. Baryshev, A.B. Khanikaev, R. Fujikawa, H. Uchida, M. Inoe. *Phys. Rev. B* **76**, 014 305 (2007).
- [21] B. van Duffel, R.H.A. Ras, F.C. De Schryver, R.A. Schoonheydt. *J. Mater. Chem.* **11**, 3333 (2001).
- [22] M. Bardosova, P. Hodge, V. Smatko, R.H. Tredgold, D. Whitehead. *Acta Phys. Slovaca* **54**, 1 (2004).
- [23] S. Reculosa, S. Ravaine. *Chem. Mater.* **15**, 598 (2003).
- [24] M. Müller, R. Zentel, T. Maka, S.G. Romanov, C.M. Sotomayor Torres. *Chem. Mater.* **12**, 2508 (2000).
- [25] W. Khunsin, G. Kocher, S.G. Romanov, C.M. Sotomayor Torres. *Adv. Funct. Mater.* **18**, 2471 (2008).
- [26] M. Bardosova, P. Hodge, L. Pach, M.E. Pemble, V. Smatko, R.H. Tredgold, D. Whitehead. *Thin Solid Films* **437**, 276 (2003).
- [27] S.G. Romanov, M. Bardosova, M. Pemble, C.M. Sotomayor Torres. *Appl. Phys. Lett.* **89**, 43 105-7 (2006).
- [28] S.G. Romanov, M. Bardosova, I. Povey, D. Whitehead, M. Pemble, C.M. Sotomayor Torres. *Appl. Phys. Lett.* **96**, 133 101-3 (2007).
- [29] Г.С. Ландсберг. *Оптика* Изд. 6-е Физматлит. М. (2003).
- [30] D.N. Chigrin, A.V. Lavrinenko, D.A. Yarotsky, S.V. Gaponenko. *J. Lightwave Technol.* **17**, 2018 (1999).
- [31] Y. Fink, J.N. Winn, S. Fan, C. Chen, J. Michel, J.D. Joannopoulos, E.L. Thomas. *Science* **282**, 1679 (1998).
- [32] A.A. Dukin, N.A. Feoktistov, A.V. Medvedev, A.B. Pevtsov, V.G. Golubev, A.V. Selkin. *J. Opt. A: Pure Appl. Opt.* **8**, 625 (2006).
- [33] E. Pavarini, L.C. Andreani, C. Soci, M. Galli, F. Marabelli, D. Comoretto. *Phys. Rev. B* **72**, 045 102 (2005).
- [34] Y. Ono. *Appl. Opt.* **45**, 131 (2006).