

Дисперсия света в пленках фотонного кристалла опала

© П.В. Долганов, В.М. Масалов, Э.Н. Самаров, В.Е. Дмитриенко*, В.К. Долганов, Г.А. Емельченко

Институт физики твердого тела Российской академии наук,
142432 Черноголовка, Московская обл., Россия

* Институт кристаллографии им. А.В. Шубникова Российской академии наук,
117333 Москва, Россия

E-mail: pauldol@issp.ac.ru

(Поступила в Редакцию 29 декабря 2006 г.)

Измерены спектры селективного отражения света от пленок фотонного кристалла — синтетического опала. Обнаружено изменение показателя преломления на границах фотонной запрещенной зоны. Волновой вектор перенормируется из-за взаимодействия световой волны с периодической структурой кристалла, и соотношение между частотой и волновым вектором отклоняется от линейной зависимости. Полученная из этих данных ширина запрещенной зоны составляет около $1.7 \cdot 10^{14}$ Hz.

Работа выполнена при поддержке гранта IST-2-511616-NoE (PHOREMOST) и Российского фонда фундаментальных исследований (проекты № 05-02-16675 и 04-02-97263), гранта МК-2382.2007.2, Фонда содействия отечественной науке, ИНТАС 06-1000014-6462.

PACS: 42.70.Qs, 42.25.Fx

В последние годы фотонные кристаллы привлекают к себе большое внимание как благодаря своим уникальным оптическим свойствам, так и в связи со многими потенциальными приложениями [1–3]. Наиболее интересной особенностью фотонных кристаллов является брэгговская дифракция света, связанная с тем, что пространственная периодичность фотонных кристаллов составляет сотни нанометров, т.е. соизмерима с длиной волны видимого света. Другими словами, в оптическом спектре фотонных кристаллов существует запрещенная зона. Фотонные кристаллы с трехмерным упорядочением обладают наиболее сложной структурой и оптическими характеристиками. Селективное отражение света на периодических структурах фотонных кристаллов и связанные с этим явления в настоящее время интенсивно исследуются. Однако ряд вопросов оптики фотонных кристаллов остается невыясненным. В частности, измерение дисперсии света в наиболее известном трехмерном фотонном кристалле — опале с незаполненными пустотами — проведено не было.

В настоящей работе получены пленки опала различной толщины и проведены измерения дифракционных и интерференционных спектров на этих пленках. Вблизи границы запрещенной зоны наблюдается отклонение от линейной зависимости частоты $\omega(k)$ от волнового вектора фотона k .

Кубическая структура опала образована сферами SiO_2 с диаметром D от 200 до 10^3 nm [4–6]. В зависимости от размера сфер постоянная решетки a в опалах составляет величину от 300 до $1.5 \cdot 10^3$ nm. Геометрически структура опала достаточно простая. Сферы находятся в контакте друг с другом и образуют плотноупакованную гранецентрированную кубическую (ГЦК) структуру с четырьмя сферами SiO_2 в элементарной ячейке.

Целью данной работы является изучение структуры фотонных зон в кристаллах опала. Для этих исследова-

ний были приготовлены специальные образцы. Тонкие пленки опала получены осаждением из суспензии кварцевых частиц на вертикальную кремниевую подложку при испарении растворителя [7]. Для приготовления использовалась суспензия частиц SiO_2 в этаноле со средним диаметром $260 \text{ nm} \pm 3.5\%$, весовая концентрация составляла 0.815%. Толщину образца можно было контролировать изменением скорости испарения раствора. Полное время образования пленки составляло 4–5 дней.

В пленках опала плоскости (111) с гексагональной структурой параллельны кремниевой подложке. Были выращены образцы толщиной L от 3.3 до $4.8 \mu\text{m}$. Наблюдения в оптический микроскоп в отраженном свете позволили установить, что размеры доменов в плоскости пленки обычно составляли величину 40–100 μm . Измерения спектров проводились в отраженном назад свете (угол падения по отношению к плоскости пленки (111) составлял $\theta \approx 88^\circ$). Приводимый в работе спектр представляет собой спектр отражения, деленный на спектр лампы. Спектральное разрешение было существенно меньше, чем расстояние между интерференционными максимумами $\Delta\lambda$. Угловая расходимость падающего и отраженного пучков составляла около 2° . Измерения проводились с участков образца размером менее 50 μm .

На рис. 1 приведен пример спектра отражения света от пленки опала. Спектр состоит из дифракционной линии и интерференционного спектра света, отраженного от двух поверхностей пленки. В пленках опала отражение происходит от границы опала с воздухом (передняя поверхность пленки) и опала с кремнием (задняя поверхность пленки). Интенсивность интерференционного спектра существенно меньше с коротковолновой стороны от дифракционной линии (рис. 1). Это, по-видимому, связано с небольшим ориентационным разупорядочением образцов. Уменьшение угла падения θ для неориентированных участков приводит к уменьшению длины вол-

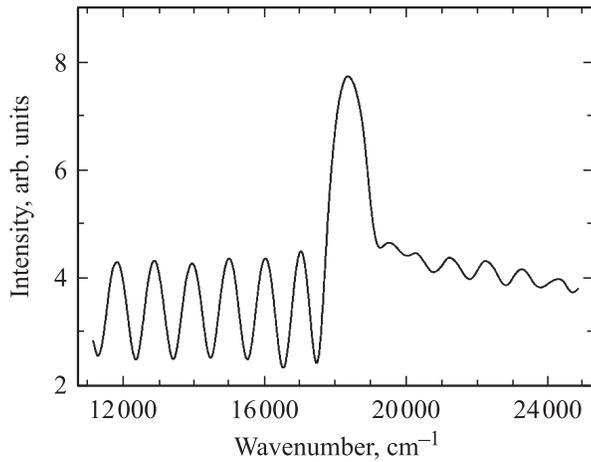


Рис. 1. Спектр отражения пленки опала. Спектр состоит из интенсивной полосы, связанной с дифракцией на периодической структуре, и интерференционного спектра света, отраженного от границ пленки. Пленка имеет число слоев SiO₂-сфер $N = 17$.

ны селективного отражения λ (так как $2dn \sin \theta = \lambda$). Поэтому эффекты разупорядочения в оптическом спектре более существенны с коротковолновой стороны от дифракционной полосы. Для того чтобы исключить ошибки, связанные с перекрытием дифракционной полосы со слабыми интерференционными минимумами и максимумами, с коротковолновой стороны от брэгговской линии мы использовали данные только при $\nu > 20\,000 \text{ cm}^{-1}$.

Условие брэгговской дифракции выполняется для волнового вектора $\nu_0 = (2dn_0 \sin \theta)^{-1}$, где d — межплоскостное расстояние, n_0 — средний показатель преломления среды, θ — угол падения. Для направления [111] в опале $d = D(2/3)^{1/2}$ или $d = a/(3)^{1/2}$. Показатель преломления опала может быть определен из среднего по объему значения диэлектрической проницаемости кварца n_S^2 в опале, т.е. $n_0 = (w_S n_S^2 + (1-w_S))^{1/2}$, где w_S — объемная доля кварца в опале. Для нашего искусственного опада $w_S = 0.55$. Объемная доля четырех сферических частиц в ГЦК элементарной ячейке $f = 2\pi D^3/3a^3$. Для сфер в контакте друг с другом это дает $f_C = \pi/3(2)^{1/2} \approx 0.74$. Меньшее значение w_S в нашем случае связано с тем, что в реальности сферы состоят из меньших частиц SiO₂ [5,6,8–10], между которыми также существуют пустоты. Используя значение показателя преломления кварца $n_S = 1.45$ [6], получаем для среднего показателя преломления опала $n_0 = 1.27$ и для среднего показателя преломления сфер $n_{SP} = 1.35$. Этим значениям n_0 и ν_0 соответствует период упорядочения (межплоскостное расстояние) 213 nm и диаметр сфер $D \approx 261 \text{ nm}$, что находится в согласии с независимыми измерениями. Рефлекс [111] является наиболее интенсивным в опаловой структуре. Например, интенсивность рефлекса [100] в ГЦК решетке всегда нулевая, а интенсивность рефлекса [200] нулевая при объемной доле кварца f_C [11]. Причина состоит в том,

что при $f = f_C$ плотность материала одна и та же в плоскостях, перпендикулярных направлению [100] и проходящих через центр ячейки, и на расстояниях $a/2$, $a/4$ от центра.

Структура фотонной зоны была восстановлена из измерений спектральной зависимости $n(\nu)$. Положения локальных максимумов ν_{\max} и минимумов ν_{\min} в интерференционных спектрах связаны с величиной эффективного показателя преломления n , который отличается от среднего показателя n_0 . Для пленки опала на кремниевой подложке, показатель преломления которой больше показателя преломления опала, $2n\nu_{\min}L = (m + 1/2)$ и $2n\nu_{\max}L = m$ (m — целое число). Процедура определения $n(\nu)$ была следующей. Используя значения n_0 и ν_{\max} вдали от дифракционной полосы, определяли величины m и L . Затем $n(\nu)$ в области вблизи фотонной полосы рассчитывалось из соотношений $2n\nu_{\min}L = (m + 1/2)$ и $2n\nu_{\max}L = m$. Отметим, что порядок m , для которого выполняется условие $L = md$, соответствует брэгговскому пику. Это значение m равно числу слоев SiO₂ в образце. Спектр на рис. 1 измерен на образце с $N = 17$. Измерение спектров образцов разной толщины позволило измерить $n(\nu)$ в различных участках фотонной зоны. На рис. 2 представлены спектральные зависимости $n(\nu)$ для пленок с числом слоев $N = 17$ и 23. В этой зависимости наблюдается характерная спектральная аномалия. Показатель преломления увеличивается с ростом ν , проходя через разрыв в области дифракционной полосы. Регулярное увеличение n с частотой, связанное с ультрафиолетовыми полосами поглощения кварца, меньше, чем аномалия на рис. 2. Данные $n(\nu)$ были использованы для построения дисперсии фотонных состояний. В схеме приведенных зон зависимость круговой частоты света ω от волнового вектора k/k_0 показана на рис. 3 для направления [111] фотонного кристалла опала (направление ΓL). Здесь $k_0 = 2\pi/d$ — волновой вектор, соответствующий границе зоны Бриллюэна опала.

Вблизи границы зоны появляется щель в спектре фотонов (рис. 3, *a, b*). Эта щель аналогична хорошо извест-

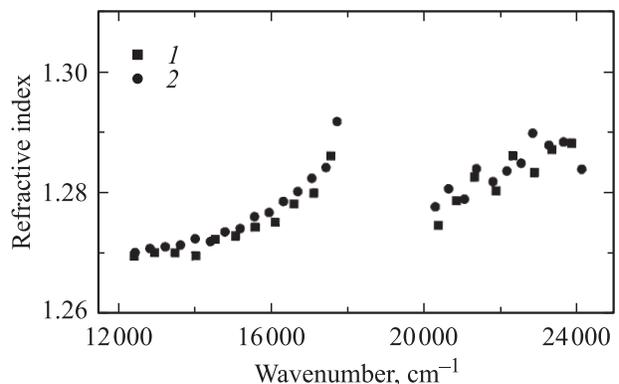


Рис. 2. Дисперсия показателя преломления для пленок опала разной толщины. Зависимость показателя преломления от волнового вектора испытывает разрыв в области фотонной полосы. Число слоев сфер SiO₂ в пленках $N = 17$ (1) и 23 (2).

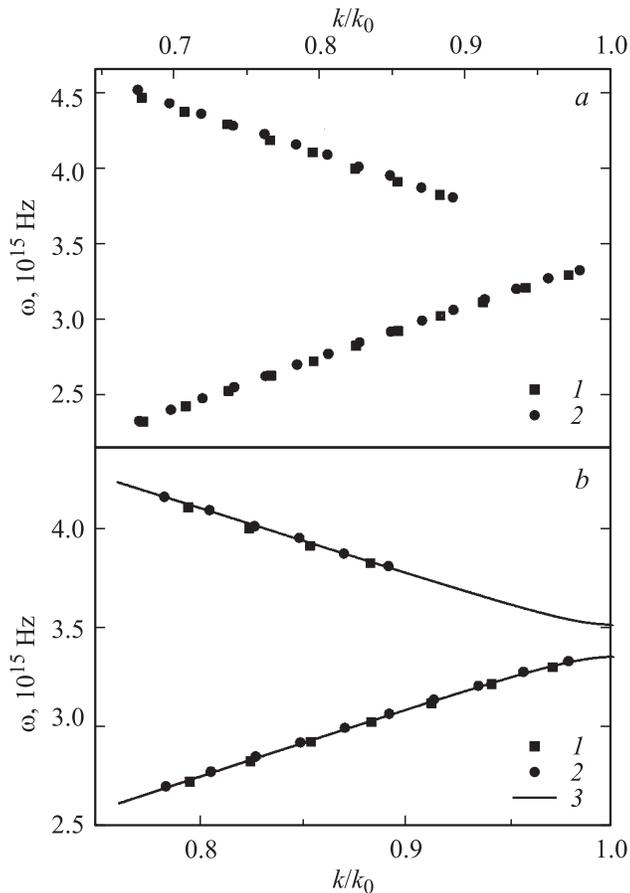


Рис. 3. Структура фотонной зоны в схеме приведенных зон (а) и зависимость $\omega(k)$ в увеличенном масштабе вблизи границы запрещенной зоны (б). Число слоев сфер SiO_2 в пленках $N = 17$ (1) и 23 (2). 3 — результат подгонки экспериментальных данных зависимостью (1).

ной в физике твердого тела запрещенной зоне в энергетическом спектре. Вдали от границы зоны наблюдается практически линейная дисперсия. Отклонение дисперсионной кривой от линейной зависимости начинается при $k/k_0 > 0.9$. Вблизи границы запрещенной зоны дисперсионная зависимость аппроксимировалась функцией

$$\omega(k) = A + \delta \pm \sqrt{A^2(1 - k/k_0)^2 + (\Delta\omega/2)^2}, \quad (1)$$

где $\Delta\omega$ — ширина запрещенной зоны. Вдали от границы зоны формула (1) учитывает слабое отклонение от линейной зависимости $\omega(k)$, связанное с ультрафиолетовыми полосами поглощения материала (параметр δ). Вблизи границы зоны $d\omega/dk \rightarrow 0$. Результаты подгонки экспериментальных данных выражением (1) с подгочными параметрами A , δ и $\Delta\omega$ приведены сплошными кривыми на рис. 3, б.

Ширина запрещенной зоны составляет величину около $1.7 \cdot 10^{14}$ Hz. Определенная таким образом ширина запрещенной зоны $\Delta\omega/\omega \approx 0.05$ согласуется с величиной, полученной из полуширины дифракционной по-

лосы [10]. Интенсивность дифракции и ширина запрещенной зоны определяются величиной модуля Фурье-гармоники для соответствующего рефлекса ϵ_r тензора диэлектрической проницаемости $\epsilon(\mathbf{r})$, где τ — вектор обратной решетки [12,13]. Величина ϵ_r для рефлекса [111] может быть оценена из ширины запрещенной зоны $\epsilon_r \approx \Delta\omega n^2/\omega$ [12–14]. Из наших данных получаем $\epsilon_{111} \approx 0.08$. Так как $\epsilon_r = 2n_0\Delta n$, предельные значения показателя преломления $n = n_0 \pm \Delta n$ на границах зоны составляют $n = 1.27 \pm 0.03$. Величины ϵ_r и Δn зависят от разницы показателей преломления кварца и воздуха. Для фотонных кристаллов, образованных опаловой матрицей с заполненными пустотами и узкой шириной запрещенной зоны [5,10,15], следует ожидать меньшей величины Δn .

Дисперсия $n(\tau)$ вблизи фотонной запрещенной зоны внешне напоминает дисперсию показателя преломления вблизи полосы поглощения. Однако физические причины, лежащие в основе этих двух дисперсионных зависимостей, существенно различны. Вблизи полосы поглощения изменяется показатель преломления материала образца. В фотонных кристаллах изменяется волновой вектор волны из-за ее взаимодействия с периодической структурой кристалла, что эквивалентно появлению эффективного показателя преломления, изменяющегося вблизи запрещенной зоны. Вдалеке от фотонной полосы средний показатель преломлений среды соответствует плоской волне. Ситуация существенно другая вблизи двух границ фотонной зоны, где собственные моды света соответствуют блоховским волнам. В опале вдоль направления [111] наибольшая оптическая плотность в плоскостях, проходящих через центры сфер (гексагональная плоскость), меньшая плотность посередине этих плоскостей. Блоховские волны вблизи двух границ полосы различаются положением максимумов электрического поля E блоховской волны по отношению к структуре опала. Например, вблизи длинноволновой границы зоны максимумы E располагаются в участках с максимальной оптической плотностью, благодаря чему эффективный показатель преломления увеличивается. Вблизи границ зоны фотонная плотность состояний $\rho(\omega)$ увеличивается благодаря более пологой зависимости ω от k/k_0 . Фазовая скорость света $v_p = \omega/k$ уменьшается при приближении к длинноволновому краю фотонной запрещенной зоны и увеличивается при приближении к ее коротковолновому краю. Групповая скорость фотонов $v_g = d\omega/dk$ приближается к нулю на обеих границах зоны. Такие свойства фотонов могут быть использованы для создания лазеров с низкими порогами [16,17].

Таким образом, интерференция света, отраженного от двух поверхностей фотонного кристалла, была использована для определения структуры фотонной зоны в пленках опала. В фотонном кристалле опала наблюдается изменение показателя преломления на границе фотонной зоны. В схеме приведенных зон частота света ω в зависимости от волнового вектора k демонстрирует наличие щели и нелинейное поведение вблизи границы зоны.

Эти особенности фотонного кристалла в опале заметны благодаря большой пространственной модуляции $n(\mathbf{r})$ в опаловой структуре. Для полного понимания структуры фотонных зон и связи структуры фотонных кристаллов с их оптическими свойствами необходимы дальнейшие экспериментальные исследования.

Список литературы

- [1] В.Н. Богомолов. УФН **124**, 171 (1978).
- [2] R. Biswas, C.T. Chan, M. Sigalas, C.M. Soukoulis, K.M. Ho. In: Photonic band gap materials / Ed. C.M. Soukoulis. Dordrecht, Kluwer (1996). P. 23.
- [3] T.F. Krauss. IEE Proc. Optoelectron **145**, 372 (1998).
- [4] J.V. Sander. Nature **204**, 1151 (1964).
- [5] В.Н. Богомолов, Д.А. Курдюков, А.В. Прокофьев, С.М. Самойлович. Письма в ЖЭТФ **63**, 496 (1996).
- [6] V.N. Bogomolov, S.V. Gaponenko, I.N. Germanenko, A.M. Kapitonov, E.P. Petrov, N.V. Gaponenko, A.V. Prokofiev, A.N. Ponyavina, N.I. Silvanovich, S.M. Samoilovich. Phys. Rev. E **55**, 7619 (1997).
- [7] S.I. Bozhko, A.N. Chaika, G.A. Emelchenko, V.M. Masalov, A.M. Ionov, A.N. Gruzintsev, G.M. Mikhailov, B.K. Medvedev. Appl. Surf. Sci. **234**, 93 (2004).
- [8] И.А. Карпов, Э.Н. Самаров, В.М. Масалов, С.И. Божко, Г.А. Емельченко. ФТТ **47**, 334 (2005).
- [9] И.И. Бардышев, А.Д. Мокрушин, А.А. Прибылов, Э.Н. Самаров, В.М. Масалов, И.А. Карпов, Г.А. Емельченко. Коллоид. журн. **68**, 20 (2006).
- [10] G.M. Gajiev, V.G. Golubev, D.A. Kurdyukov, A.V. Medvedev, A.B. Pevtsov, A.V. Sel'kin, V.V. Travnikov. Phys. Rev. B **72**, 205 115 (2005).
- [11] I.I. Tarhan, G.H. Watson. Phys. Rev. B **54**, 7593 (1996).
- [12] В.А. Беляков, Е.И. Демихов, В.Е. Дмитриенко, В.К. Долганов. ЖЭТФ **89**, 2035 (1985).
- [13] В.А. Беляков, В.Е. Дмитриенко. УФН **146**, 369 (1985).
- [14] P.G. de Gennes, J. Prost. The physics of liquid crystals. Oxford University Press, London (1994). 616 p.
- [15] Yu.A. Vlasov, M. Deutsch, D.J. Norris. Appl. Phys. Lett. **76**, 1627 (2000).
- [16] S. Noda, M. Imada, M. Okano, S. Ogawa, M. Mechizuki, A. Chutinan. IEEE J. Quantum Electron. **38**, 726 (2002).
- [17] M.H. Song, B. Park, K.C. Shin, T. Ohta, Y. Tsunoda, H. Hoshi, Y. Takanishi, K. Ishikawa, J. Watanabe, S. Nishimura, T. Toyooka, Z. Zhu, T.M. Swager, H. Takezoe. Adv. Mater. **16**, 779 (2004).