

Учреждение Российской академии наук
Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН

На правах рукописи

Рыбин Михаил Валерьевич

**Иммерсионная спектроскопия
фотонных кристаллов
на основе синтетических опалов**

01.04.07 – физика конденсированного состояния

АВТОРЕФЕРАТ
диссертации на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

Санкт-Петербург – 2009

Работа выполнена в *Учреждении Российской академии наук
Физико-техническом институте им. А.Ф. Иоффе РАН.*

Научный руководитель: *доктор физико-математических наук
Лимонов Михаил Феликсович*

Официальные оппоненты: *доктор физико-математических наук,
член-корр. РАН
Никитов Сергей Аполлонович*

*доктор физико-математических наук,
профессор
Акципетров Олег Андреевич*

Ведущая организация: *Центр фотохимии РАН*

Защита состоится 15 октября 2009 г. в 15 часов 00 минут на заседании диссертационного совета *Д 002.205.01* при *Учреждении Российской академии наук Физико-техническом институте им. А.Ф. Иоффе РАН*, расположенном по адресу: *194021, Санкт-Петербург, Политехническая ул., д. 26.*

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке *ФТИ им. А.Ф. Иоффе.*

Автореферат разослан 14 сентября 2009 г.

Отзывы и замечания по автореферату в двух экземплярах, заверенные печатью, просьба высылать по вышеуказанному адресу на имя ученого секретаря диссертационного совета.

Ученый секретарь
диссертационного совета,
кандидат физико-математических наук

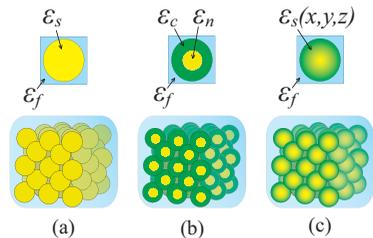
А.А. Петров

Общая характеристика работы

В последние два десятилетия исследования фотонных кристаллов (ФК) превратились в одну из самых «горячих» и актуальных тематик в физике твердого тела. ФК – это слабопоглощающие структуры, которые характеризуются модуляцией диэлектрической проницаемости в одном (1D), двух (2D), или трех (3D) измерениях с периодом, сравнимым с длиной электромагнитной волны. В результате периодической модуляции диэлектрической проницаемости в энергетическом спектре собственных электромагнитных состояний (блоховских мод) ФК возникают диапазоны, в которых распространение света запрещено независимо от направления (полная запрещенная фотонная зона) или в каких-либо определенных направлениях в кристаллической решетке (фотонные стоп-зоны). Следует отметить, что в большинстве теоретических и экспериментальных работ ФК рассматриваются как двухкомпонентные структуры, состоящие из двух однородных компонент с диэлектрическими проницаемостями ϵ_1 и ϵ_2 . Важным свойством двухкомпонентных ФК является полное просветление структуры, т.е. одновременное «выключение» всех стоп-зон при нулевом контрасте ($\epsilon_1 = \epsilon_2$), что исключает возможность селективного управления различными стоп-зонами путем модуляции диэлектрической проницаемости одной из компонент.

В 1995 г. группой сотрудников ФТИ им. А.Ф. Иоффе было экспериментально продемонстрировано, что в синтетических опалах возникают стоп-зоны в видимом спектральном диапазоне [1]. Вплоть до последнего времени структуры опаложидкий наполнитель рассматривались как двухкомпонентные ФК, образованные частицами α -SiO₂ и однородным наполнителем. При этом считалось, что хорошо известная неоднородность частиц α -SiO₂ не оказывает существенного влияния на оптические свойства опалоподобных ФК. Лишь недавно [2] было обнаружено, что в опалах фотонные стоп-зоны, связанные с системами плоскостей (111), (200) и (220), выключаются при различных значениях диэлектрической проницаемости наполнителя, что несовместимо с двухкомпонентной моделью ФК. Работа [2] положила начало новому направлению в изучении ФК – комплексным исследованиям многокомпонентных фотонных кристаллов (МФК), которые состоят из трех или более однородных компонент, или из неоднородных компонент (рис. 1).

Рис. 1. Схематическое представление двухкомпонентного ФК (а) и МФК (b, c), образованных плотноупакованными сферами. В трехкомпонентном ФК (b) сферы состоят из однородного ядра (с диэлектрической проницаемостью ϵ_n), покрытого однородной оболочкой (ϵ_c). Межсферное пространство содержит однородный наполнитель (ϵ_f). МФК, представленный на рис (c), состоит из неоднородных сфер, окруженных однородным наполнителем. В верхнем ряду приведены профили диэлектрической проницаемости рассеивателя.



Данная работа развивает экспериментальные и теоретические исследования МФК. Ее **актуальность** определяется тем, что модель идеального двухкомпонентного ФК является лишь первым приближением для любой рукотворной структуры (наглядным примером служит история исследования синтетических опалов), не говоря уже о многочисленных целенаправленно выращенных МФК. Исследование МФК позволяет обнаружить и изучить принципиально новые яркие физические эффекты и расширяет область применения ФК.

В основе экспериментальных исследований ФК опал-заполнитель, выполненных в данной работе, лежит метод иммерсионной спектроскопии. Метод состоит в заполнении матрицы опала смесью прозрачных жидкостей в различных пропорциях, что позволяет плавно менять диэлектрическую проницаемость заполнителя и, таким образом, «сканировать» область выключения стоп-зон. Применение метода иммерсионной спектроскопии привело к обнаружению тонких эффектов, описание которых может дать новый импульс развитию теории распространения и локализации света в неупорядоченных структурах.

Основными целями диссертационной работы являлись:

1. Экспериментальное исследование фотонной зонной структуры ФК опал-заполнитель в высокоэнергетической области спектра, поиск и интерпретация высокоиндексных (hkl) фотонных стоп-зон.
2. Изучение селективного выключения стоп-зон в ФК опал-заполнитель методом иммерсионной спектроскопии.
3. Детальное исследование формы и спектрального положения полосы (111) в спектрах пропускания в зависимости от контраста диэлектрической проницаемости между матрицей опала и заполнителем.
4. Разработка теоретических моделей, описывающих экспериментальные данные.

Научная новизна определяется, в первую очередь, тем, что в работе экспериментально обнаружено новое явление в ФК – трансформация полосы брэгговского отражения (непропускания) в брэгговский пик пропускания. Это явление было интерпретировано на основе концепции Фано [3]. Кроме того, широкополосный фон, наблюдаемый в спектрах пропускания опалоподобных ФК, впервые связывается с рассеянием Ми [4], индуцированным неоднородностью частиц α -SiO₂. Для объяснения экспериментально наблюдавшихся эффектов была разработана теоретическая «квази-3D» модель. Эти результаты позволили предложить новую картину рассеяния света в неупорядоченных 3D ФК.

Практическая ценность работы состоит в том, что полученные результаты демонстрируют широкие возможности управления световыми потоками с помощью ФК. В МФК реализуется селективное переключение (hkl) стоп-зон и, соответственно, селективное управление световыми пучками, распространяющимися на различных длинах волн. Эффекты, обусловленные резонансом Фано, открывают новые принципы управления световыми пучками с брэгговской длиной волны.

Основные положения, выносимые на защиту:

1. Многокомпонентные фотонные кристаллы обладают квазипериодической резонансной зависимостью условий выключения (hkl) фотонных стоп-зон от длины вектора обратной решетки. Вне резонанса любая (hkl) стоп-зона может

быть выключена подбором диэлектрической проницаемости одной из компонент. Для резонансной стоп-зоны такое выключение невозможно.

2. Синтетические опалы, состоящие из неоднородных квазисферических частиц $a\text{-SiO}_2$, относятся к классу многокомпонентных фотонных кристаллов.
3. Экспериментально определенные иммерсионные зависимости (hkl) стоп-зон в ФК опал-заполнитель описываются в рамках теории, основанной на анализе форм-фактора рассеяния для гранецентрированной кубической решетки. Для стоп-зоны (222) не наблюдается выраженной иммерсионной зависимости, что позволяет отнести эту стоп-зону к классу резонансных.
4. В спектрах пропускания ФК опал-заполнитель наблюдается резонанс Фано между узкой полосой, обусловленной рассеянием Брэгга на системе плоскостей (111), и широким фоном, связанным с остаточным рассеянием Ми на неоднородных по диэлектрической проницаемости частицах $a\text{-SiO}_2$.
5. Параметр Фано q , характеризующий форму брэгговской полосы (111) в спектрах пропускания, связан с контрастом между диэлектрической проницаемостью заполнителя и величиной, определяемой структурой опала. При нулевом контрасте ($q = 0$) в спектрах возникает брэгговский пик пропускания вместо обычно наблюдаемой полосы брэгговского отражения.

Апробация работы. Результаты работы докладывались на VI Всероссийской молодежной конференции по физике полупроводников и полупроводниковой опто- и наноэлектронике (С.-Петербург, 2004); 13th Int. Symp. «Nanostructures: Physics and Technology» (С.-Петербург, 2005); «PECS-VI: International Symposium on Photonic and Electromagnetic Crystal Structures» (Crete, Greece, 2005); симпозиуме «Нанопотоника» (Черноголовка, 2007); Международной зимней школе по физике полупроводников (Зеленогорск, 2008); I Всероссийской конференции «Многомасштабное моделирование процессов и структур в нанотехнологиях» (Москва, 2008); «SPIE Photonics Europe» (Strasbourg, France, 2008); Первом международном форуме по нанотехнологиям (Москва, 2008); «PECS VIII: 8th International Photonic & Electromagnetic Crystal Structures Meeting» (Sydney, Australia, 2009); «Annual international conference: Days on Diffraction» (С.-Петербург, 2009) и обсуждались на научных семинарах в СПбГУ, ФТИ им. А.Ф. Иоффе и ИРЭ РАН.

Достоверность и надежность результатов определяется: (i) применением высокоточных измерительных методик и современного оборудования; (ii) полной воспроизводимостью экспериментальных результатов; (iii) хорошим соответствием экспериментальных и расчетных результатов.

Публикации. По материалам диссертации опубликовано 9 статей в рецензируемых журналах из списка ВАК и 3 статьи в материалах международных конференций.

Личный вклад автора заключается в конструировании экспериментальной установки, измерении спектров, разработке пакета программ для обработки экспериментальных результатов и их анализе, участии в написании статей.

Структура и объем диссертации. Диссертация состоит из введения, пяти глав, заключения, двух приложений и списка цитируемой литературы (содержит 214 страниц, 60 рисунков и 246 библиографических ссылок).

Содержание работы

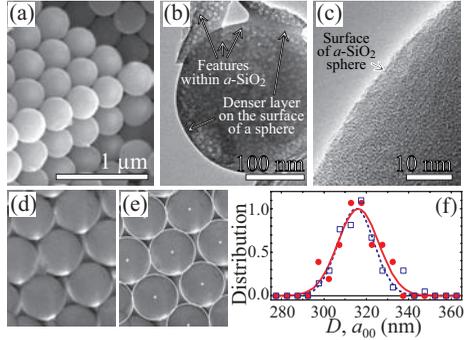
Во введении обоснована актуальность тематики, научная новизна и практическая ценность работы, сформулированы цели исследования, изложены основные положения, выносимые на защиту, описана структура диссертации.

Первая глава посвящена обзору литературы, в котором представлены основные работы, связанные с исследованием различных типов ФК, включая ФК с внедренными волноводами и микрорезонаторами. Существенное внимание уделено работам, посвященным изучению МФК (рис. 1), в первую очередь - опалоподобных МФК. Проанализированы основные теоретические методы, используемые для расчета оптических свойств ФК, такие как метод матриц переноса, метод плоских волн, ККР и другие. На основании литературных данных сформулированы цели и задачи диссертационной работы.

Во второй главе описаны основные экспериментальные методики, использованные в диссертационной работе. Измерения оптических спектров ФК проводились с помощью двухлучевого спектрофотометра PerkinElmer Lambda-650. В кюветном отделении спектрофотометра был смонтирован миниатюрный держатель образца (либо кюветы с образцом), основу которого составляет столик Федорова, используемый в установках для измерения дифракции рентгеновских лучей. Такой держатель обеспечивает возможность задавать любую ориентацию образца относительно поляризованного падающего пучка с угловой точностью не хуже 0.5° . В режиме иммерсионной спектроскопии образец помещался в заполненную жидкостью кювету с плоско-параллельными кварцевыми окнами. В качестве заполнителя использовалась дистиллированная вода ($\epsilon_{H_2O} = 1.778$, диапазон прозрачности от ~ 215 нм), пропилен-гликоль ($\epsilon_{PG} = 2.053$, прозрачность от ~ 265 нм), а также их смесь, что позволяло плавно менять проницаемость в интервале $1.778 \leq \epsilon_f \leq 2.053$. Величина ϵ_f контролировалась с помощью рефрактометра Аббе ИРФ-454Б2М (погрешность не превышала $7.5 \cdot 10^{-4}$).

Основные экспериментальные результаты были получены на образцах синтетических опалов, выращенных проф. М.И. Самойловичем (ЦНИТИ «Техномаш», г. Москва). Опалы представляют собой самоорганизующиеся структуры, состоящие из квазисферических спекшихся частиц аморфного диоксида кремния $a\text{-SiO}_2$. В процессе самоорганизации частицы $a\text{-SiO}_2$ стремятся образовать плотноупакованную структуру, которая в первом приближении описывается гранецентрированной кубической (ГЦК) решеткой. Изображения образца опала, а также отдельных частиц $a\text{-SiO}_2$, полученные методами сканирующей и просвечивающей электронной микроскопии (СЭМ и ПЭМ), приведены на рис. 2 (G. Yushin, Georgia Institute of Technology, USA). Эти изображения использовались для определения структурных параметров исследованных образцов и статистических характеристик ансамбля частиц $a\text{-SiO}_2$. Для обработки СЭМ-изображений был разработан алгоритм, позволяющий независимо определять диаметры частиц $a\text{-SiO}_2$ и координаты их центров (рис. 2e). Основу алгоритма составляет процедура распознавания объектов, границы которых обладают радиальной симметрией, с помощью преобразования исходного изображения, аналогичного преобразованию Хо [5]. На рис. 2(d-f) представлен пример такой обработки, в результате которой

Рис. 2. (a,d) СЭМ изображения опалов. (b,c) ПЭМ изображения частиц α -SiO₂. (e) Результат распознавания и обработки изображения (d) с помощью процедуры, основанной на преобразовании Хо: окружности и их центры отражают размер и положение частиц α -SiO₂. (f) Распределения диаметров частиц D (красные кружки) и расстояний между ближайшими центрами частиц a_{00} (синие квадраты), полученные обработкой данных массива из ~ 180 частиц α -SiO₂, фрагмент которого представлен на (d,e).



определены структурные параметры ростового слоя (111) образца опала: средний диаметр частиц α -SiO₂ $\bar{D} = 316$ нм, полуширина контура распределения $\sigma = 7\%$, среднее расстояние между центрами соседних частиц $\bar{a}_{00} = 315$ нм, коэффициент спекания частиц $\chi = 0.003$, фактор заполнения кристаллической решетки (в области поверхностного слоя) $f_0 = 0.75$. Эта величина из-за спекания частиц α -SiO₂ в опалах незначительно превышает теоретическое значение $f_0 = 0.74$, соответствующее модели точечного контакта недеформированных сфер в плотноупакованной ГЦК решетке.

В Третьей главе излагаются результаты поиска и исследования высокоиндексных (hkl) стоп-зон в ФК опал-заполнитель. Ранее в литературе были описаны стоп-зоны, принадлежащие семействам $\{111\}$, $\{200\}$ и $\{220\}$ (см., например, [2]). Поэтому в данной работе особенно тщательно изучалась высокоэнергетическая спектральная область – область существования еще не наблюдавшихся стоп-зон. Спектры пропускания исследовались в зависимости от: (i) ориентации светового пучка относительно ГЦК решетки опала, которая определялась углом падения θ_i ; (ii) поляризации света - p и s ; (iii) контраста диэлектрической проницаемости опал-заполнитель; (iv) толщины образцов. Измерения были выполнены для основных высокосимметричных направлений в ГЦК решетке, которые в обратном пространстве соответствуют следующим путям сканирования поверхности зоны Бриллюэна (ЗБ) (рис. 3а):

$$(A) \quad X \rightarrow Ug \rightarrow Lg \rightarrow Mg \rightarrow Kg \rightarrow L \quad (1a)$$

$$(B) \quad Lg \rightarrow Wg \rightarrow K \quad (1b)$$

$$(C) \quad Kg \rightarrow Wg \rightarrow X. \quad (1c)$$

Результаты обработки полученных спектров представлены на рис. 3б, где различными символами (легенда на рис. 3с) приведены положения $\mathfrak{S}(\mathbf{k})$ наблюдавшихся стоп-зон как функции угла θ_i , т.е. направления волнового вектора света \mathbf{k} . Совокупность экспериментальных данных $\mathfrak{S}(\mathbf{k})$ определяет измеренную фотонную зонную структуру ФК опал-заполнитель. Интерпретация результатов основывается на том, что образование определенной (hkl) стоп-зоны в низкоконтрастном

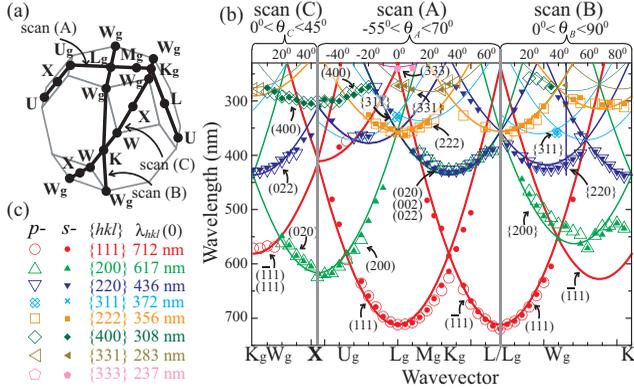


Рис. 3. 3D ГЦК решетки, на которой указаны три пути сканирования (A), (B) и (C). (b) Фотонная зонная структура $\mathfrak{S}(\mathbf{k})$ низкоконтрастного ФК опал-заполнитель. Цветные линии – рассчитанные значения $\lambda_{hkl}(\theta_{hkl})$. Значками приведены измеренные положения (hkl) стоп-зон в спектрах пропускания. (c) Система обозначений (hkl) стоп-зон в p - и s -поляризациях; расчетные значения $\lambda_{hkl}(0)$ для исследованного образца.

ФК однозначно связано с брэгговским отражением света от системы соответствующих (hkl) плоскостей. Поэтому для каждой системы (hkl) плоскостей был проведен расчет дисперсионной зависимости длины волны дифрагированного пучка по формуле Брэгга, которая для случая ГЦК решетки имеет вид:

$$\lambda_{hkl}(\theta_{hkl}) = 2d_{111}\sqrt{\varepsilon_{av}} \left(\frac{3}{h^2 + k^2 + l^2} \right)^{1/2} \cos \theta_{hkl}, \quad (2)$$

где $\theta_{hkl} = [\widehat{hkl}]$, \mathbf{k} – угол падения света на плоскость (hkl) , $d_{111} = \sqrt{2/3\bar{D}}$ – расстояние между соседними плоскостями (111) в ГЦК решетке, $\varepsilon_{av} = 0.75\tilde{\varepsilon}_s + 0.25\varepsilon_f$ – усредненное значение диэлектрической проницаемости ФК, образованного незначительно спекшимися сферами.

Из рис. 3b видно, что в случае низкоконтрастных ФК опал-заполнитель экспериментально определенная фотонная зонная структура $\mathfrak{S}(\mathbf{k})$ описывается расчетными дисперсионными зависимостями брэгговских длин волн $\lambda_{hkl}(\theta_{hkl})$, соответствующих дифракции света на системах плоскостей ГЦК-решетки. Таким образом, благодаря подробному исследованию и анализу спектров пропускания дополнительно к наблюдавшимся ранее семействам $\{111\}$, $\{200\}$, $\{220\}$ были обнаружены стоп-зоны, принадлежащие семействам $\{311\}$, $\{222\}$, $\{400\}$, $\{331\}$ и $\{333\}$. Для каждого из этих семейств были определены оптимальные условия наблюдения, т.е. геометрия рассеяния (угол θ_i), поляризация (p или s), диэлектрическая проницаемость заполнителя ε_f , толщина образца. Эти данные были использованы далее при исследовании иммерсионных зависимостей стоп-зон в ФК опал-заполнитель.

Четвертая глава посвящена изучению селективного выключения стоп-зон в МФК. В работе были подробно исследованы иммерсионные зависимости стоп-зон, принадлежащих семействам $\{111\}$, $\{200\}$, $\{220\}$, $\{311\}$ и $\{222\}$, т.е. зависимости интенсивности соответствующих полос в спектрах пропускания от диэлектрической проницаемости заполнителя ϵ_f . Иммерсионные зависимости стоп-зон $\{400\}$, $\{331\}$ и $\{333\}$ не удалось измерить с достаточной надежностью из-за их крайне слабой интенсивности.

Спектры пропускания, записанные в оптимальных условиях наблюдения (геометрия рассеяния, поляризация, толщина образца) и демонстрирующие ключевой для МФК эффект селективного выключения стоп-зон, приведены на рис. 4. Результаты обработки спектров представлены на рис. 5 и 6. На рис. 5 приведена фотонная зонная структура $\mathfrak{S}(\mathbf{k})$ ФК опал-заполнитель, экспериментально измеренная для трех значений ϵ_f . Отметим, что условия выключения выполняются одновременно для всех стоп-зон, принадлежащих определенному семейству $\{hkl\}$. Например, из рис. 5с видно, что при $\epsilon_f^0_{111} = 1.82$ выключенной оказывается как стоп-зона (111), так и стоп-зона $(\bar{1}11)$.

Из рис. 4 и 6 следует, что выключение стоп-зон $\{111\}$ и $\{220\}$ происходит в экспериментально исследованном диапазоне $1.778 \leq \epsilon_f \leq 2.053$ при $\epsilon_f^0_{111} = 1.82$ и $\epsilon_f^0_{220} = 1.93$. Стоп-зоны $\{200\}$ и $\{311\}$ не выключаются в этом диапазоне, однако демонстрируют явную тенденцию к выключению, поэтому путем экстраполяции экспериментальных данных (рис. 6) находим: $\epsilon_f^0_{200} = 1.63$ и $\epsilon_f^0_{311} = 1.75$. Альтернативный пример представляет собой стоп-зона (222), которая не обнару-

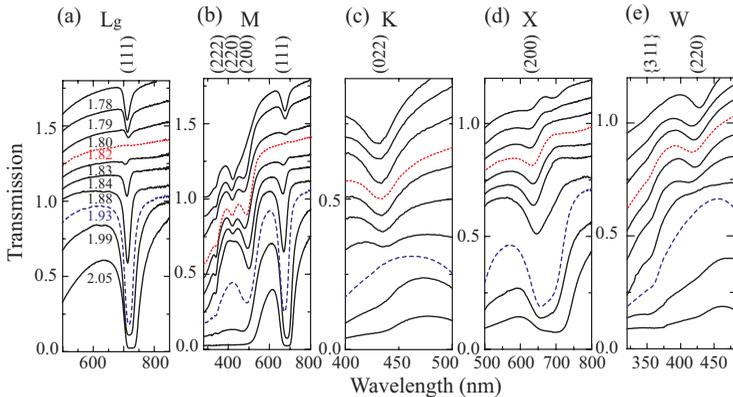


Рис. 4. Стоп-зоны в ФК опал-заполнитель. Представлены спектральные области и геометрии рассеяния (указаны особые точки на поверхности ЗБ), в которых наиболее четко проявляется иммерсионное поведение стоп-зон семейств $\{111\}$ (Lg, M), $\{200\}$ (M, X), $\{220\}$ (M, K, W), $\{311\}$ (W), $\{222\}$ (M). Значения диэлектрической проницаемости заполнителя приведены на панели (а) и относятся также к спектрам на панелях (b-e). Красным цветом выделены спектры, полученные при $\epsilon_f = 1.82$ (выключены стоп-зоны $\{111\}$), синим цветом – при $\epsilon_f = 1.93$ (выключены стоп-зоны $\{220\}$).

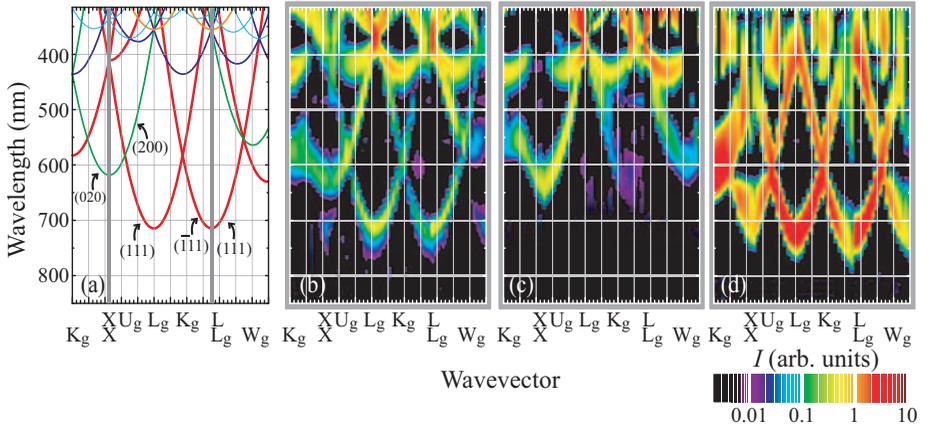


Рис. 5. (a) Рассчитанные значения $\lambda_{hkl}(\theta_{hkl})$ для трех путей сканирования, приведенных на рис. 3. (b-d) Фотонная зонная структура $\mathfrak{S}(\mathbf{k})$ ФК опал-заполнитель, приведенная в том же масштабе длин волн и волновых векторов, что и расчеты на панели (a). Измерения были выполнены для $\epsilon_f = 1.78$ (b), 1.82 (c), 2.05 (d) в линейной s - поляризации падающего света. Интенсивность фотонных стоп-зон отражает цветовая шкала в правом нижнем углу рисунка.

живает какой-либо тенденции к изменению интенсивности в зависимости от ϵ_f (рис. 6). Отметим, что стоп-зона (222) наблюдается в ограниченном диапазоне $1.778 \leq \epsilon_f \leq 1.95$ из-за наложения более интенсивных стоп-зон при $\epsilon_f > 1.95$.

Теоретическое описание селективного выключения стоп-зон в МФК основано на том, что существование (hkl) фотонной стоп-зоны обусловлено брэгговской дифракцией света на системе плоскостей (hkl) , и, соответственно, пропадание дифракции влечет за собой выключение стоп-зоны. Это утверждение справедливо в случае применимости двухволнового приближения: для структур с низким диэлектрическим контрастом и в отсутствие многоволновой брэгговской дифракции света. Следуя работе [2], запишем выражение для пространственной Фурье компоненты обратной диэлектрической проницаемости, т.е. для форм-фактора рассеяния $S(\mathbf{G}_{hkl})$, и приравняем его к нулю:

$$S(\mathbf{G}_{hkl}) = \frac{1}{V_0} \int_{V_0} d\mathbf{r} \frac{1}{\varepsilon(\mathbf{r})} \exp(-i\mathbf{G}_{hkl}\mathbf{r}) = 0, \quad (3)$$

где V_0 – объем примитивной ячейки ФК, $\varepsilon(\mathbf{r})$ – распределение диэлектрической проницаемости по ячейке, $\mathbf{G}_{hkl} = h\mathbf{b}_1 + k\mathbf{b}_2 + l\mathbf{b}_3$ – вектор обратной решетки. Форм-фактор рассеяния $S(\mathbf{G}_{hkl})$ определяет интенсивность брэгговской дифракции на плоскостях (hkl) как функцию вектора \mathbf{G} , а с учетом сферической симметрии рассеивателя как функцию $G = |\mathbf{G}|$. Таким образом, уравнение (3) одновременно задает и условия пропадания дифракции на (hkl) плоскостях, и условия выключения (hkl) стоп-зон.

Проанализируем уравнение (3) на примере простейшего МФК – трехкомпонентной структуры (рис. 1b). В этом случае интеграл вычисляется явно, и условия выключения стоп-зон записываются в виде зависимости от модуля вектора G , который будем рассматривать как непрерывно меняющийся параметр:

$$\varepsilon_f^0(G) = \frac{\varepsilon_n \varepsilon_c}{\varepsilon_n + (\varepsilon_c - \varepsilon_n) R(Gr_n)/R(Gr_c)}, \quad (4)$$

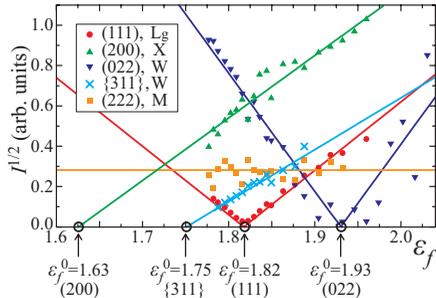
где $R(x) \equiv \sin(x) - x \cos(x)$ - функция Рэлея-Ганса. Из уравнения (4) следуют два важных вывода:

(i) В случае двухкомпонентного ФК (рис. 1a), т.е. при $\varepsilon_c = \varepsilon_n$, в уравнении (4) пропадает зависимость от G , поэтому все (hkl) стоп-зоны выключаются одновременно, а уравнение описывает оптически однородную среду $\varepsilon_f^0 = \varepsilon_n = \varepsilon_c$.

(ii) $\varepsilon_f^0(G)$ является квазипериодической функцией с резонансами $\varepsilon_f^0(G_{res}) \rightarrow \infty$, которые возникают при обращении знаменателя в нуль. Совпадение $G_{res} = G_{hkl}$ приводит к условию выключения (hkl) стоп-зон $\varepsilon_f^0(G_{hkl}) \rightarrow \infty$, которое нельзя реализовать на практике. Такие «невключаемые» стоп-зоны будем называть резонансными. Для дальнейшего анализа экспериментальных данных приведем значения $G_{111} = 7.70$, $G_{200} = 8.89$, $G_{220} = 12.57$, $G_{311} = 14.74$, $G_{222} = 2G_{111} = 15.40$ (в единицах обратного расстояния между центрами ближайших сфер a_{00}^{-1}). Эти величины определяются по формуле $G_{hkl} = \pi \sqrt{2(h^2 + k^2 + l^2)}$, справедливой для ГЦК решетки.

Для определения функции $\varepsilon_f^0(G)$, которая задает закон выключения (hkl) стоп-зон, необходимо смоделировать функцию $\varepsilon_s(r)$, описывающую профиль диэлектрической проницаемости частиц $a\text{-SiO}_2$, и воспользоваться уравнением (3) в случае произвольного МФК или уравнением (4) в случае трехкомпонентного МФК. Моделируя функцию $\varepsilon_s(r)$ мы исходили из данных СЭМ и ПЭМ (рис. 2), свидетельствующих о том, что поверхность частиц $a\text{-SiO}_2$ в исследованных нами опалах сплошная и, следовательно, приповерхностный слой должен иметь диэлектрическую проницаемость, близкую к величине $\varepsilon_{a\text{-SiO}_2} = 2.13$ для плавленого кварца. Из рис. 2 также следует, что плотная оболочка имеет малую толщину по сравнению с радиусом квазисферической частицы $a\text{-SiO}_2$ и быстро переходит в область пористого ядра. Учитывая эти факторы, мы использовали две модельные функции $\varepsilon_s(r)$ (вставка на рис. 7) - кусочно-линейную и ступенчатую.

Рис. 6. Иммерсионные зависимости стоп-зон в ФК опал-заполнитель. I - нормированная интенсивность (hkl) полосы в спектре пропускания. Прямые линии – результат линейной аппроксимации экспериментальных данных.



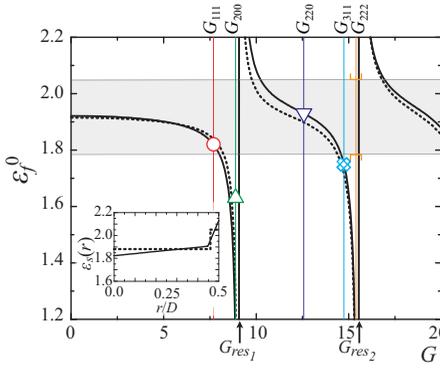


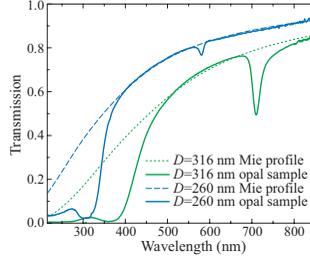
Рис. 7. Условия выключения стоп-зон в ФК опал-заполнитель: эксперимент и расчет. Символами обозначены экспериментально определенные значения $\varepsilon_f^0(G_{hkl})$ для стоп-зон $\{111\}$, $\{200\}$, $\{220\}$, $\{311\}$. Вертикальными цветными прямыми отмечены значения G_{hkl} для этих же семейств плоскостей, а также для $\{222\}$ (символы и цвета соответствуют рис. 3с). Черные кривые (непрерывная и пунктирная) – зависимости $\varepsilon_f^0(G)$, полученные в результате расчета. Профили модельных функций $\varepsilon_s(r)$ приведены на вставке.

пенчатую (случай трехкомпонентного ФК). Для этих моделей при усреднении функции $\varepsilon_s(r)$ по объему сферы получаем величину $\tilde{\varepsilon}_s = 1.92$, которая хорошо согласуется с литературными данными. В результате решения уравнения (3) с использованием кусочно-линейной модели $\varepsilon_s(r)$ и уравнения (4) с использованием ступенчатой модели $\varepsilon_s(r)$ были получены две функции $\varepsilon_f^0(G)$, каждая из которых достаточно хорошо описывает весь набор экспериментальных данных (рис. 7). Отметим, что второй резонанс функций $\varepsilon_f^0(G)$ ($G_{res2} = 15.54$ для кусочно-линейной модели и $G_{res2} = 15.58$ для трехкомпонентной модели) близок к значению $G_{222} = 15.40$, что и определяет невозможность выключения стоп-зон $\{222\}$. Таким образом, все экспериментальные результаты, связанные с селективным выключением стоп-зон в ФК опал-заполнитель полностью описываются в рамках изложенной теоретической модели. Наблюдавшиеся эффекты селективного переключения стоп-зон позволяют использовать это явление для создания оптических переключателей, работающих на разных брэгговских длинах волн.

В Пятой главе представлены результаты работы, основными целями которой являлись: (i) прецизионное исследование «процесса» выключения фотонных стоп-зон и (ii) выявление конкретных механизмов рассеяния света, определяющих форму спектра пропускания опалоподобных ФК. В результате этой работы был обнаружен новый эффект: трансформация брэгговской полосы отражения в брэгговский пик пропускания. Была предложена интерпретация этого явления, основанная на концепции резонанса Фано [3].

В спектрах пропускания опалоподобных ФК можно выделить две составляющие (рис. 8): (i) широкополосный фон, интенсивность которого уменьшается при смещении в коротковолновую область спектра (природа этого фона до настоящей работы не была установлена); (ii) относительно узкие линии, связанные с брэгговским отражением света от (hkl) систем плоскостей, т.е. с (hkl) фотонными стоп-зонами. Среди брэгговских линий наиболее интенсивной и хорошо разрешенной в спектрах опалов является линия (111) , которая и была выбрана в качестве объекта для исследования процесса выключения стоп-зон. Для получения детальной картины область выключения $\varepsilon_f^0_{111} \sim 1.82$ «сканировалась» с минимальным ша-

Рис. 8. Спектры пропускания двух образцов опала (диаметр частиц $a\text{-SiO}_2$ $\bar{D} = 260$ и 316 нм) в геометрии рассеяния $\Gamma \rightarrow Lg$ [нормальное падение света на ростовую плоскость (111)]. Штриховые кривые – результаты расчета пропускания неупорядоченного ансамбля изолированных сферических частиц тех же размеров с помощью теории Ми.

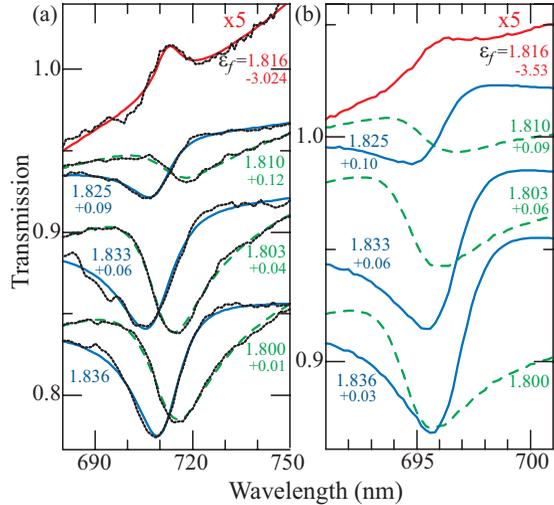


гом по диэлектрической проницаемости заполнителя $\Delta\varepsilon_f \approx 0.001 - 0.002$. Наиболее характерные спектры, отражающие иммерсионную зависимость линии (111), приведены на рис. 9а.

Из рис. 9а видно, что в спектрах пропускания линия (111) имеет ярко выраженную асимметрию, которая зеркально (в шкале длин волн) трансформируется при $\varepsilon_f = \varepsilon_f^0$: при $\varepsilon_f > \varepsilon_f^0$ (синий цвет) более затянутым является коротковолновое крыло, а при $\varepsilon_f < \varepsilon_f^0$ (зеленый цвет) – длинноволновое крыло. С приближением к области выключения наблюдается уменьшение интенсивности линии (111) и увеличение ее асимметрии. Изучение спектров пропускания при $\varepsilon_f \rightarrow \varepsilon_f^0$ принесло неожиданный результат: брэгговская полоса (111) не исчезает ни при каких значениях ε_f . Провал в спектрах пропускания на брэгговской длине волны трансформируется в пик пропускания, который наблюдается в крайне узком диапазоне $\varepsilon_f \approx 1.816 \pm 0.003$ (красный цвет).

Переворот контура асимметричной линии характерен для физических процессов, которые описываются в рамках резонанса Фано [3]. Резонанс Фано охваты-

Рис. 9. Резонанс Фано в спектрах пропускания ФК опал–заполнитель. (а) Черные кривые – измеренные спектры пропускания образца толщиной ~ 0.6 мм, $\bar{D} = 316$ нм в области брэгговской линии (111). Цветные кривые – результат аппроксимации экспериментальных спектров по формуле Фано (5). (b) результаты расчета спектров пропускания неупорядоченного ФК опал–заполнитель с использованием «квази-3D» модели. Величина смещения спектров по вертикали на (a,b) указана около каждого спектра вместе со значением ε_f .



вает процессы, при которых частица, проявляя волновые свойства, может при рассеянии переходить в одно и то же конечное состояние по двум разным каналам, один из которых порождает в спектре узкую линию, а другой – широкий фон. При этом возникает интерференция, обусловленная тем, что вдоль контура узкой линии фаза волны изменяется на $\sim \pi$, а у широкой полосы в этом же спектральном интервале амплитуду и фазу можно считать постоянными. Такая интерференция приводит к своеобразному поведению узкой линии в спектрах, например, при изменении параметров структуры. Для описания формы этой линии Фано получил простое выражение [3]:

$$F(\Omega) = \frac{(\Omega + q)^2}{\Omega^2 + 1}, \quad (5)$$

где q - параметр асимметрии, $\Omega = (\omega - \omega_B)/(\gamma_B/2)$, ω_B и γ_B - частота и ширина узкой линии. В зависимости от q в спектрах наблюдаются четыре характерных формы узкой линии (рис. 10b): провал, пик и два асимметричных профиля. Аппроксимация экспериментальных спектров по формуле Фано (5) с учетом фоновой компоненты, которая описывалась полиномом третьей степени, позволила идеально смоделировать всю трансформацию линии (111) (рис. 9а). На рис. 10а представлена полученная в результате этой процедуры зависимость $q(\varepsilon_f)$. Видно, что параметр q связан с контрастом диэлектрической проницаемости $\Delta\varepsilon_{111} = [\varepsilon_f - \varepsilon_{f,111}^0]$. При $q = 0$ ($\Delta\varepsilon_{111} = 0$) в спектрах возникает брэгговский пик пропускания вместо обычно наблюдаемой полосы брэгговского отражения. Таким образом, вся совокупность экспериментальных данных представляет собой характерную для резонанса Фано картину, включающую инверсию асимметричного контура в шкале длин волн и переворот самой линии в шкале интенсивностей. Для полноты этой картины необходимо определить механизм рассеяния света, который определяет фоновую компоненту в спектрах опалов, играющую роль широкой полосы в концепции Фано.

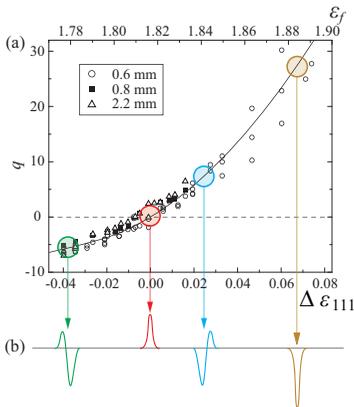


Рис. 10. Зависимость параметра Фано q от ε_f и $\Delta\varepsilon_{111}$, определенная в результате аппроксимации экспериментальных спектров, полученных на образцах толщиной $\sim 0.6, 0.8, 2.2$ мм. (b) Схематическое изображение формы узкой линии в случае резонанса Фано в зависимости от q . Четыре возможные формы линии определяются по формуле (5), а также наблюдаются в спектрах пропускания ФК опал-заполнитель при изменении ε_f . Цвета, отличающие формы линий, соответствуют рис. 9.

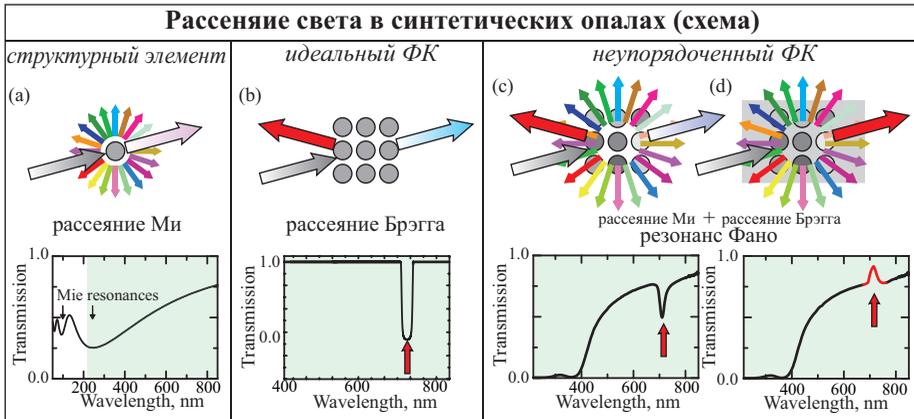


Рис. 11. Схематически представленная картина рассеяния света и спектры пропускания 3D ФК, состоящих из сферических частиц. (a) Рассеяние Ми на отдельной сферической частице. (b) Рассеяние Брэгга на упорядоченном ФК, образованном идентичными сферами. (c,d) Рассеяние света на неупорядоченном ФК, образованном неидентичными сферами: резонанс Фано между рассеянием Ми и Брэгга, приводящий к появлению брэгговского пика пропускания при $\varepsilon_f = \varepsilon_f^0$.

Идеальный ФК обладает стопроцентным пропусканием во всем диапазоне электромагнитных волн кроме узких спектральных областей (hkl) стоп-зон (без учета граничных эффектов), поэтому для описания фоновой компоненты необходимо рассмотреть ФК, структурные элементы которого имеют разброс по диэлектрической проницаемости и размеру. Рассмотрим последовательно (рис. 11): (i) Элементарный акт рассеяния на отдельном структурном элементе ФК (для сферических частиц – рассеяние Ми [4], рис. 11a). (ii) Процессы многократного рассеяния на идентичных структурных элементах, расположенных в узлах идеальной кристаллической решетки, которые приводят к формированию блоховских состояний (при этом спектр идеального ФК содержит лишь брэгговские полосы на фоне стопроцентного пропускания) (рис. 11b) (iii) Интерференцию блоховских мод с остаточным фоновым рассеянием, которое возникает из-за случайных фазовых сдвигов и вариации амплитуды первичных волн в неидеальном ФК. При этом в спектрах наблюдаются как брэгговские полосы, так и фоновое рассеяние (рис. 11c).

Данные СЭМ и ПЭМ (рис. 2) свидетельствуют о неидентичности структурных элементов, образующих опалы - частиц $a\text{-SiO}_2$, поэтому можно предположить, что фоновая компонента определяется нескомпенсированным рассеянием света на квазисферических частицах $a\text{-SiO}_2$ и описывается с привлечением теории Ми [4]. Для проверки этого предположения по теории Ми были рассчитаны спектры пропускания неупорядоченного (чтобы исключить брэгговскую компоненту) ансамбля сферических частиц с диаметрами, соответствующими исследованным

образцам (рис. 8). В длинноволновой области фоновое пропускание прекрасно описывается теоретическими кривыми, а в коротковолновой области наблюдается отклонение, которое может быть связано с высокоиндексными (hkl) стоп-зонами (рис. 3b).

Чтобы продемонстрировать определяющую роль рассеяния Ми в наблюдаемых эффектах, были проведены численные расчеты спектров в области брэгговской полосы (111) (рис. 9) с использованием предложенной «квази-3D» модели. На первом этапе вычислялись спектры пропускания отдельного 1D ростового слоя с помощью теории Ми, пренебрегая многократным рассеянием внутри слоя, что оправдано в случае низкого контраста. Коэффициенты пропускания и отражения слоя определялись через средние значения сечений рассеяния на сферах при варьировании диэлектрической проницаемости и диаметра частиц внутри слоя с нормальным распределением (рис. 2f). На втором этапе методом матриц переноса рассчитывались спектры пропускания неупорядоченного 3D ФК, сформированного из ростовых слоев, образующих ГЦК решетку. Итоговые спектры пропускания были получены путем усреднения спектров, рассчитанных для конкретных реализаций из большого ансамбля неупорядоченных 3D ФК. Результаты расчета полностью воспроизводят экспериментально наблюдавшуюся трансформацию брэгговской полосы (111), представленную на рис. 9.

Итак, феноменологическая обработка спектров пропускания ФК опал-заполнитель, основанная на концепции Фано, в совокупности с численными расчетами («квази-3D» модель) позволила прояснить картину рассеяния света в неупорядоченных ФК, важным элементом которой является интерференция между узкими брэгговскими линиями и широкополосным фоном. Спектральные свойства фона определяются параметрами структурных элементов, образующих ФК.

Основные результаты и выводы работы

1. Исследованы спектры пропускания ФК опал-заполнитель в зависимости от основных параметров эксперимента (поляризация и геометрия рассеяния) и образца (толщина, контраст диэлектрической проницаемости). В спектрах впервые наблюдались стоп-зоны $\{311\}$, $\{222\}$, $\{400\}$, $\{331\}$ и $\{333\}$.
2. Выполнен расчет дисперсионных зависимостей (hkl) стоп-зон в брэгговском приближении для ГЦК решетки. Установлено, что определенные из эксперимента дисперсионные зависимости (hkl) стоп-зон в низкоконтрастных опалах хорошо описываются в брэгговском приближении.
3. Разработана аналитическая модель, описывающая условия выключения (hkl) стоп-зон в трехкомпонентных ФК. Зависимость условий выключения (hkl) стоп-зон от длины вектора обратной решетки имеет квазипериодический резонансный характер. Вне резонанса любая стоп-зона может быть выключена подбором диэлектрической проницаемости одной из компонент. Для резонансной стоп-зоны такое выключение невозможно.
4. Экспериментально исследованы иммерсионные зависимости (hkl) стоп-зон в ФК опал-заполнитель. Определены значения диэлектрической проницаемо-

сти заполнителя, соответствующие выключению (hkl) стоп-зон: $\varepsilon_{f_{111}}^0 = 1.82$, $\varepsilon_{f_{200}}^0 = 1.63$, $\varepsilon_{f_{220}}^0 = 1.93$, $\varepsilon_{f_{311}}^0 = 1.75$. Стоп-зона (222) не меняет своей интенсивности при изменении диэлектрической проницаемости заполнителя, т.е. относится к классу резонансных. Разработанная аналитическая модель прекрасно описывает экспериментальные данные.

5. Продемонстрирована возможность селективного переключения (hkl) фотонных стоп-зон в МФК и, соответственно, селективного управления световыми пучками, распространяющимися на различных длинах волн.
6. Широкополосный фон, который наблюдается в спектрах пропускания ФК опал-заполнитель, связан с рассеянием Ми на ансамбле неидентичных квазисферических частиц $a\text{-SiO}_2$.
7. В спектрах пропускания опалоподобных ФК наблюдается резонанс Фано между узкой полосой, обусловленной рассеянием Брэгга на системе плоскостей (111), и широким фоном, связанным с рассеянием Ми на частицах $a\text{-SiO}_2$.
8. Параметр Фано q , определяющий форму брэгговской полосы (111), связан с величиной $\Delta\varepsilon_{111} = [\varepsilon_f - \varepsilon_{f_{111}}^0]$. При $q = 0$ ($\Delta\varepsilon_{111} = 0$) в спектрах возникает брэгговский пик пропускания вместо обычно наблюдаемой полосы брэгговского отражения. Кроме того, при $q = 0$ наблюдается зеркальная (в шкале длин волн) трансформация асимметричной полосы (111): при $q > 0$ более затянутым является коротковолновое крыло, а при $q < 0$ – длинноволновое крыло.
9. Теоретическая «квази-3D» модель описывает все экспериментально наблюдаемые эффекты, включая возникновение брэгговского пика пропускания вместо полосы непропускания. Не существует такого значения ε_f , при котором брэгговская полоса полностью пропадает в спектре неупорядоченного ФК.

Основные результаты диссертации отражены в следующих публикациях

статьи в рецензируемых журналах:

1. M. V. Rybin, A. V. Baryshev, M. Inoue, A. A. Kaplyanskiy, V. A. Kosobukin, M. F. Limonov, A. K. Samusev, A. V. Sel'kin. Complex interaction of polarized light with three-dimensional opal-based photonic crystals: Diffraction and transmission studies // *Photonics and Nanostructures (PNFA)* — 2006. — Vol. 4. — P. 146.
2. M. V. Rybin, K. B. Samusev, M. F. Limonov. High Miller-index photonic bands in synthetic opals // *Photonics and Nanostructures (PNFA)* — 2007. — Vol. 5. — P. 119.
3. М.В. Рыбин, К.Б. Самусев, М.Ф. Лимонов. Экспериментальное исследование фотонной зонной структуры синтетических опалов в условиях низкого диэлектрического контраста // *ФТТ*. — 2007. — Т. 49. — С. 2174.
4. М.В. Рыбин, К.Б. Самусев, М.Ф. Лимонов. Об уширении полос в спектрах пропускания синтетических опалов // *ФТТ*. — 2008. — Т. 50. — С. 421.
5. M. V. Rybin, A. V. Baryshev, A. B. Khanikaev, M. Inoue, K. B. Samusev, A. V. Sel'kin, G. Yushin, M. F. Limonov. Selective manipulation of stop-bands in multi-component photonic crystals: opals as an example // *Phys. Rev. B*. — 2008. — Vol. 77. — P. 205106.

6. М.Ф. Лимонов, А.В. Барышев, М. Иноэ, А.А. Каплянский, М.В. Рыбин, К.Б. Самусев, А.В. Селькин, А.Б. Ханикаев, Г.Н. Юшин. Многокомпонентные фотонные кристаллы: селективное управление световыми потоками и резонансные стоп-зоны // *Российские Нанотехнологии*. — 2008. — Т. 3, № 1-2. — С. 142.
7. К.Б. Самусев, Г.Н. Юшин, М.В. Рыбин, М.Ф. Лимонов. Структурные параметры синтетических опалов: статистический анализ данных электронной микроскопии // *ФТТ*. — 2008. — Т. 50. — С. 1230.
8. А.К. Самусев, М.В. Рыбин, М.Ф. Лимонов. Селективное переключение стоп-зон в двумерных многокомпонентных фотонных кристаллах // *ФТТ*. — 2009. — Т. 51. — С. 487.
9. M.V. Rybin, A.B. Khanikaev, M. Inoue, K.B. Samusev, M.J. Steel, G. Yushin, M.F. Limonov. Fano resonance between Mie and Bragg scattering in photonic crystals // *Phys. Rev. Lett.* — 2009. — Vol. 103. — P. 023901.

статьи в материалах международных конференций:

1. A.V. Baryshev, M. Inoue, A.A. Kaplyanskii, V.A. Kosobukin, M.F. Limonov, M.V. Rybin, A.K. Samusev, A.V. Sel'kin, H. Uchida. Optical polarization-resolved studies of photonic bandgap structure in synthetic opals // Proc. 13th Int. Symp. "Nanostructures: Physics and Technology" (St.Petersburg, Russia, 2005). — 2005. — P. 123.
2. A.V. Baryshev, A.A. Kaplyanskii, O.A. Kavtueva, V.A. Kosobukin, M.F. Limonov, M.V. Rybin, A.K. Samusev, D.E. Usvyat. Bragg diffraction of light as a powerful tool in the study of photonic crystals // Proceedings of SPIE. — Vol. 6258. — 2006. — P. 154.
3. M.F. Limonov, A.V. Baryshev, A.B. Khanikaev, M. Inoue, M.V. Rybin, A.K. Samusev, K.B. Samusev, A.V. Sel'kin, G. Yushin. Two-dimensional and 3D- multi-component photonic crystals: theory and experiment // Proceedings of SPIE. — Vol. 6989. — 2008. — P. 698906.

Цитированная литература

- [1] V.N. Astratov, V.N. Bogomolov, A.A. Kaplyanskii, A.V. Prokofiev, L.A. Samoilo-
vich, S.M. Samoilovich, Yu.A. Vlasov. Optical spectroscopy of opal matrices with
CdS embedded in its pores - quantum confinement and photonic band gap effects //
Nuovo Cimento D. — 1995. — Vol. 17. — Pp. 1349-1354.
- [2] A.V. Baryshev, A.B. Khanikaev, M. Inoue, P.B. Lim, A.V. Sel'kin, G. Yushin,
M.F. Limonov. Resonant Behavior and Selective Switching of Stop Bands in Three-
Dimensional Photonic Crystals with Inhomogeneous Components // *Phys. Rev.*
Lett. — 2007. — Vol. 99. — P. 063906.
- [3] U. Fano. Effects of Configuration Interaction on Intensities and Phase Shifts //
Phys. Rev. — 1961. — Vol. 124. — Pp. 1866-1878.
- [4] C.F. Bohren, D.R. Huffman. Absorption and scattering of light by small particles. —
Wiley, New York, 1983.
- [5] R.C. Gonzalez, R.E. Woods. Digital Image Processing. — Addison-Wesley Publishing
Company, 1992.