

На правах рукописи

Романов Сергей Геннадьевич

**Распространение света в неоднородных
коллоидных фотонных кристаллах**

01.04.07 – физика конденсированного состояния

АВТОРЕФЕРАТ

диссертации на соискание ученой степени
доктора физико-математических наук

Санкт-Петербург – 2013

Работа выполнена в Федеральном государственном бюджетном учреждении науки Физико-Технический Институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук

Официальные оппоненты:

Селькин Александр Викторович, доктор физико-математических наук, профессор, Федеральное государственное бюджетное учреждение науки Физико-Технический Институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук, ведущий научный сотрудник

Белов Павел Александрович, доктор физико-математических наук, Санкт-Петербургский национальный исследовательский университет информационных технологий, механики и оптики, заведующий лабораторией

Немов Сергей Александрович, доктор физико-математических наук, профессор, Санкт-Петербургский государственный политехнический университет, профессор

Ведущая организация: Санкт-Петербургский государственный университет

Защита состоится 14 марта 2013г. в часов минут на заседании диссертационного совета Д 002.205.01 при Федеральном государственном бюджетном учреждении Российской академии наук Физико-техническом институте им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук, расположенном по адресу: 194021, Санкт-Петербург, Политехническая ул., д. 26.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке Федерального государственного бюджетного учреждения Российской академии наук Физико-техническом институте им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук

Автореферат разослан

201 г

Ученый секретарь
диссертационного совета

Петров Александр Александрович

Общая характеристика работы

Взаимодействие электромагнитного (ЭМ) поля с заряженными частицами твердых тел приводит к проявлению веществом диэлектрических и магнитных свойств, описываемых в оптике в приближении однородной эффективной среды. Если размер структуры оказывается сопоставим с длиной световой волны, то проявляется резонансный характер взаимодействия поля и вещества, определяемый зависимостью диэлектрической и магнитной проницаемости от геометрии структуры. Так возникли концепции **фотонных кристаллов (ФК)** и **метаматериалов**. Совместно с **наноплазмоникой** эти направления составляют ядро современной **нанофотоники**. Ожидается, что в 21 веке фотоника будет основным двигателем научно-технического прогресса в области средств коммуникаций и информационных технологий. Этот прогноз обуславливает важность изучения фундаментальных основ оптических свойств ансамблей наноструктур.

Свое название ФК получили по аналогии с атомными кристаллами. «Фотонными атомами» (ФА) являются структурные элементы с оптическими свойствами, резко отличающимися от остальной среды. Классический пример ФА – это диэлектрическая сфера, имеющая резонансный отклик при освещении ее ЭМ волной. Такие возбуждения, называемые резонансами Ми, имеют топологию, схожую с электронными орбиталями атома. При объединении ФА в решетку формируются гибридные состояния Ми резонансов. Эти коллективные резонансы составляют фотонную энергетическую структуру (ФЭС) и проявляются в области длин волн, соизмеримых с периодом решетки ФА. Альтернативным методом описания ФЭС является представление о собственных модах ФК, т.е. о блоховских волнах, образующихся в результате интерференции падающей и отраженных решеткой волн. Если длина ЭМ волны существенно больше периода ФК, то для нее ФК является однородной средой, если много меньше – то распространение волны определяется законами геометрической оптики. Принципиальным отличием фотонов в ФК от свойств электронов в атомных кристаллах является то, что распространение фотонов поддерживается средой между ФА, а направление распространения потока света в ФК определяется законом сохранения импульса с точностью до вектора обратной решетки кристалла. Более того, фотоны заполняют все разрешенные по энергии состоя-

ния, то есть в ФЭС не имеется аналога уровню Ферми. Размерность ФЭС зависит от размерности профиля диэлектрической проницаемости.

Исчерпывается ли физика ФК аналогией с традиционными дифракционными решетками? Нет, поскольку в дополнение к эффектам в дальнем поле основным предметом изучения становится совокупность процессов взаимодействия света и вещества в пределах ФК. Функцией ФК в этом случае является структуризация электромагнитного вакуума, которая может быть использована для программируемой обработки светового потока в пространственных, спектральных и временных координатах и/или изменения характера взаимодействия излучения с веществом. Чем выше диэлектрический контраст между каркасом ФК и средой, тем сильнее отличие структуры поля в кристалле от его структуры в однородном диэлектрике.

Одно из первых исследований, положивших начало науке о ФК, было выполнено В.П. Быковым ^[1], теоретически исследовавшим скорость спонтанного излучения источника, расположенного внутри структуры с периодическим изменением показателя преломления (ПП). Как таковой, термин ФК был введен в обиход после публикаций Е. Яблоновича ^[2], который использовал аналогию ФК с электронными полупроводниками, и С. Джона ^[3], который подошел к идее ФК, рассматривая локализацию света в слабоупорядоченной неоднородной среде. Стоит отметить, что в настоящий момент именно квазипериодические и неупорядоченные среды рассматриваются как наиболее перспективные структуры с точки зрения дальнейшего развития ФК.

Впоследствии выяснилось, что принцип резонансного взаимодействия света со структурой широко используется в живой природе. Структурирование материала лежит в основе окрашивания диатомовых водорослей и панцирей насекомых, а также яркой игры красок на крыльях бабочек и покровных тканях многих животных.

Решающим фактором развития ФК послужила их экспериментальная реализация. Приготовление ФК видимого диапазона света с необходимостью является нанотехнологией. Если 1М и тонкие 2М ФК можно изготовить, используя стандартные литографические методы, то создание 2М и 3М ФК представляет собой нетривиальную задачу, решение которой дало импульс развития новым технологиям. Особняком стоят 2М кристаллы в виде ФК-волокон. Для изготов-

ления 3М ФК используют такие методы, как 2-фотонная полимеризация, многолучевая голография, анизотропное травление и 3М наноимпринтинг, а также клонирование или сварка тонких 2М ФК. Общей технологической проблемой является достижение однородности структуры в большом объеме. Как правило, такие 3М ФК оптического диапазона имеют линейные размеры ~0.1-1 мм, причем стоимость их изготовления быстро растет с ростом объема. ФК малого размера пригодны для построения интегральных оптических схем, однако, они явно недостаточны для изготовления макроскопических оптических элементов или для использования в источниках света и солнечных батареях.

Альтернативой нанолитографии является самоорганизация ансамбля одинаковых элементов. Оригинальный способ создания объемных наноструктурированных материалов был предложен в начале 70-х годов В.Н. Богомоловым ^[4], который использовал полости кристаллических диэлектрических матриц для стабилизации частиц диспергированного материала. В зависимости от размера и формы полостей, а также расстояния между ними, можно создавать ансамбли наноструктур с различной топологией. Вариативность этого метода позволяет реализовать множество разнообразных ансамблей наноструктур, используя частицы металлов, полупроводников и диэлектриков.

Наиболее доступные самоорганизующиеся кристаллы с подходящим для оптики периодом – это синтетические опалы, являющиеся аналогом природного минерала ^[5]. Опалы – это коллоидные кристаллы, состоящие из одинаковых по размеру субмикронных сфер, упакованных в гранецентрированную кубическую (ГЦК) решетку. В начале 80-х гг. В.Н. Богомоловым и Ю.А. Кумзеровым было предложено использовать опалы как матрицы для введения в их полости различных материалов ^[6]. Соискатель развил эту идею, предположив, что условием наблюдения коллективных явлений в структурированных средах, приготовленных на основе сверхпроводников, полупроводников и диэлектриков, является соизмеримость характерной длины распространяющегося возбуждения с периодом структуры (V.N. Bogomolov, Y.A. Kumzerov, S.G. Romanov, Concept of three-dimensional superlattices of nanostructures, Int. Conf. on Composite Mater., Moscow, USSR, 14-16.11.1990). Впервые ФК-свойства опала были обнародованы в работе групп, возглавляемых А.А. Каплянским и В.Н. Богомоловым в ФТИ им. Иоффе ^[7]. Соискатель независимо продемонстрировал аналогичный

результат (S.G. Romanov et al, Optical properties of ordered 3-dimensional arrays of structurally confined semiconductors, 7 Int. Conf. on II-VI compounds and devices, Edinburgh, UK, 13-18.08.1995).

В своей работе соискатель решал **трехмерную задачу дизайна коллоидных ФК, измерения их оптических свойств и объяснения физических механизмов взаимодействия света с такими структурами**. Соответственно, работы соискателя, с одной стороны, внесли заметный вклад в решение ряда насущных материаловедческих проблем, позволивших ввести в практику тонкие пленки опала и улучшить их структуру, а также приготовить многокомпонентные функциональные опалы. Создание более совершенных опалов стало ключом к детальному исследованию их оптических свойств. С другой стороны, решалась основная задача – расширение функциональных возможностей ФК на основе опалов. Методом решения этой задачи был выбран курс на создание **пространственно-неоднородных ФК**. Очевидно, что ЭМ поле в любом ФК конечных размеров является неоднородным из-за различия модовой структуры света в вакууме и внутри ФК. Оставалось только сделать неоднородность инструментом, пригодным для формирования оптического отклика ФК.

Реализацией этого подхода явились опубликованные в 2000г. соискателем 3М фотонные гетерокристаллы (ФГК), понимаемые как набор нескольких последовательно расположенных ФК с различной зонной структурой. В спектрах прошедшего ФГК света не просто суммируются резонансы составляющих их ФК, но также отражается согласование собственных мод этих ФК на границах их раздела и проявляются таммовские поверхностные состояния, могущие существовать на интерфейсе. Кроме того, создавая сверхструктуры из коллоидных кристаллов, можно уйти от прямой пропорциональности положения оптических резонансов и размера составляющих кристалл сфер. К сожалению, потенциал ФГК и по сей день остается нераскрытым из-за недостаточной теоретической разработки их свойств. Другой новой архитектурой пространственно-неоднородных ФК являются предложенные в 2008г. соискателем гибридные металло-диэлектрические плазмонно-фотонные кристаллы (ПФГК), состоящие из коллоидного ФК в контакте с тонкопленочным плазмонным кристаллом. В ПФГК в переносе света совместно участвуют блоховские моды диэлектрического и металлического электромагнитных кристаллов, а также проявляют себя

локальные плазмоны и резонансы Фабри-Перо. Причем, все эти резонансы взаимосвязаны, так как имеют общий геометрический параметр – размер сферы опала. Важно также отметить гибридизацию блоховских мод ФК и поверхностных плазмон-поляритонов, как одну из причин отличия отклика ПФГК от линейной суперпозиции свойств его компонентов.

Актуальность темы. Разработка концепции ФК как среды, обладающей фотонными запрещенными зонами (ФЗ) или направленными стоп-зонами в энергетическом спектре, позволила расширить представление о взаимодействии света со структурированным веществом, как о совокупности процессов дифракции и локализации света, гибридизации мод, замедления групповой скорости распространения излучения, изменения времени жизни атомов в возбужденном состоянии и многих других. Все эти явления присущи ФК любой размерности, однако, большинство новых фундаментальных результатов получено для 1М и 2М ФК. Наименее изученными остаются 3М ФК. Помимо технологических проблем, сложность состоит в том, что измеряемые свойства 3М ФК соответствуют проекции ФЭС на поверхность его зоны Бриллюэна, что делает невозможным селективное возбуждение отдельных мод ФК. Представленное в диссертации исследование распространения, рассеяния и генерации света в ФК значительно расширяет информацию о взаимодействии света со структурой ФК и вносит существенный вклад, как в понимание механизмов этих процессов, так и в разработку новых методик исследования оптических свойств ФК.

ФК явились тем звеном, которое соединило классические исследования оптических свойств отдельных наночастиц, наноструктур и их комплексов с работами по изучению свойств функциональных ансамблей таких наноструктур. В результате оформилась «нанофотоника», как научно-техническое направление, занимающееся формированием, управлением и преобразованием потоков электромагнитной энергии в масштабе расстояний, начиная от долей длины волны.

В свою очередь, изучение ФК сред положило начало прикладным работам в области (а) оптических процессоров, предполагающих значительное, до десятков микрон, уменьшение размеров устройств управления оптическим излучением; (б) сенсорных устройств, использующих замедление групповой скорости распространения излучения и локализацию света; (в) устройств управления потоком лучистой энергии, основанных на принципах волновой оптики и по-

вышающих эффективность солнечных элементов и источников света; (г) низкопороговых лазеров, использующих для генерации пики в спектре плотности оптических состояний; (д) устройств квантовой оптики, использующих микрорезонаторов с добротностью свыше 10^7 ; (е) нелинейных оптических устройств на ФК-волокнах, применяемых для генерации белого света и коррекции фронта фемтосекундных импульсов.

На этом фоне перспективы применения 3М ФК в оптоэлектронике остаются туманными, несмотря на их максимальные возможности в плане взаимодействия света со структурой. Не в последнюю очередь это связано с трудностями приготовления функциональных структур. Тем не менее, ведутся работы над созданием различного рода датчиков, а также ловушек света для фотоэлектрических преобразователей. В последнее время особое внимание уделяется фотонным стеклам, представляющим собой случайную упаковку одинаковых сфер, с прицелом на создание низкопороговых источников когерентного излучения. Стоит отметить, что промышленность (компания Merck) производит километры декоративного материала на основе пленочного опала, а компания BASF выпускает косметическую продукцию с включением коллоидных кристаллов. В этом плане, полученные соискателем результаты по созданию эффективных рассеивателей света, основанных на синергетическом эффекте дифракции, радиационного распада короткоживущих поверхностных плазмон-поляритонов и рассогласования мод на границе раздела в фотонном гетерокристалле, открывают многообещающие перспективы использования плазмонно-фотонных гетерокристаллов в солнечной энергетике.

Целью работы является экспериментальное изучение распространения и генерации ЭМ излучения в однокомпонентных и многокомпонентных неоднородных коллоидных фотонных кристаллах оптического диапазона, а также демонстрация возможности создания фотонных кристаллов с программируемыми оптическими свойствами.

Поставленная цель была достигнута через решение следующих задач:

- создание высокоупорядоченных тонкопленочных коллоидных кристаллов и разработки методов количественной оценки их кристалличности, а также их антиподов – 2М фотонных стекол;

- изучение спектральных зависимостей пропускания, отражения и рассеяния поляризованного света коллоидными ФК;
- разработка 3М гетерогенных ФК и исследование их оптических свойств;
- разработка гибридных плазмонно-фотонных гетеро-кристаллов и исследование их оптических свойств;
- исследование модификации излучения связанных с ФК источников света.

Объекты и методы исследования. Объектами исследования являются материалы – коллоидные кристаллы и структуры, полученные на их основе, а также процессы распространения и генерации ЭМ волн в ФК. Методами исследования являются: сканирующая электронная микроскопия для анализа исследуемых структур, количественный рентгеновский микроанализ состава ФК, измерение спектров прошедшего и отраженного линейно-поляризованного света в зависимости от угла падения света и ориентации плоскости падения, измерение спектров рассеянного света, измерение спектров и индикатрис фотолюминесценции, моделирование энергетической зонной структуры, спектров отражения и пропускания ФК, а также дисперсий резонансов.

Гипотеза. В основе проведенных исследований лежит предположение о том, что оптические свойства ФК для данного контраста показателя преломления зависят (1) от резонансных условия переноса света, (2) от согласования поля свободного пространства с оптическими модами ФК или согласования собственных мод различных кристаллов в гетеро- или гибридной структуре, и (3) от рассеяния света на дефектах кристалла.

Научная новизна. Все приведенные результаты и выводы являются оригинальными. Ссылками в тексте диссертации отмечены результаты, полученные в сотрудничестве с другими учеными.

- Предложен метод акустической шумовой активации кристаллизации опала, ведущий к 10-кратному улучшению регулярности решетки.
- Разработан сравнительный количественный метод оценки совершенства упаковки плоскостей с высокими индексами Миллера в решетках пленочных опалов по величине амплитуды Фурье-гармоник дифракционных резонансов в спектрах пропускания, полученных при вращении плоскости падения.
- Достигнуто заполнение полостей опала последовательным нанесением атомно-тонких слоев вещества и металл-органическим газофазным синтезом.

- Обнаружено антипересечение дисперсий собственных мод в спектрах опала.
- Продемонстрировано смешивание поляризаций в прошедшем и отраженном свете и предложена интерпретация эффекта, основанная на вращении плоскости поляризации вследствие биения блоховских мод ФК.
- Показано, что беспорядок решетки, пробой поляризационной анизотропии в области антипересечения мод опала и вращение плоскости поляризации света приводят к подавлению критического угла дифракции в отраженном свете.
- Предложена спектроскопия рассеянного света в упорядоченных 3М ФК, дополняющая спектроскопию прошедшего/отраженного света. Продемонстрировано, что рассеянный в пленке опала свет имеет поляризационную и пространственную анизотропию, одинаковую вероятность рассеяния вперед и назад, а ширина его угловой диаграммы увеличивается в стоп-зоне.
- Предложены и реализованы гетерогенные 3М ФК, суммирующие в своих спектрах дифракционные резонансы составляющих их кристаллов, найдено, что перестройка модовой структуры света на границе раздела двух ФК сопровождается рассеянием света и показана возможность создания фотоннокристаллических волноводов в трехслойных гетеро-структурах.
- Продемонстрировано, что усиление спонтанного излучения в излучении точечного изотропного источника в опале имеется при любой сколь угодно малой мощности накачки и рассмотрены механизмы этого явления.
- Показано, что индикатриса излучения изотропного источника света в 3М ФК определяется конфигурацией поверхностей равной частоты.
- Реализованы гетерогенные излучающие ФК типа источник-фильтр и показана возможность формирования диаграммы направленности излучения в таких структурах.
- Создан новый класс гибридных плазмонно-фотонных кристаллов с пространственно-неоднородным распределением поля, перенос света в которых определяется совместно блоховскими модами диэлектрического ФК, поверхностными плазмон-поляритонами плазмонного кристалла, Ми резонансами фотонно-плазмонных атомов и Фабри-Перо резонансами квазиволноводных металло-диэлектрических структур.

Достоверность и надежность результатов, а также сделанных на их основе выводов обеспечивается сочетанием новых и апробированных методик из-

мерений, соответствием результатов автора и приведенных в литературе данных, сопоставлением экспериментальных результатов, полученных на сходных объектах с использованием разных методов и разных приборов, а также математическим моделированием наблюдаемых свойств. Результаты прошли апробацию на многочисленных отечественных и международных конференциях и опубликованы в ведущих отечественных и зарубежных научных журналах.

Научная значимость диссертационной работы заключается в приоритетности созданных конфигураций фотонных кристаллов, а также в фундаментальном характере исследованных явлений и установленных закономерностей.

Практическая значимость полученных результатов определяется как существенным вкладом в развитие данной области нанофотоники, так и демонстрацией возможностей научно-технического внедрения нового вида оптических материалов на основе коллоидных ФК. Отметим такие результаты как:

- Разработка альтернативного метода кристаллизации пленок опала в условиях шумовой акустической вибрации и коллоидной эпитаксии, а также новых технологий синтеза вещества-наполнителя в полостях опала.
- Существенное расширение функциональности ФК на основе опалов вследствие реализации гетерогенных и гибридных опалов.
- Демонстрация ультраширокополосного, $\Delta\omega/\omega \sim 1$, независимого от поляризации и направления падения света рассеяния светового потока в плазмонно-фотонных гибридных гетерокристаллах, пригодных для создания фотонных ловушек в солнечных элементах.

В результате проведенного исследования заложены основы нового **научного направления** в физике конденсированного состояния – экспериментальной физики неоднородных фотонных кристаллов.

Апробация работы. Основные результаты работы докладывались на 85 международных конференциях, было сделано 27 приглашенных докладов. Результаты работы обсуждались на семинарах лаборатории физики анизотропных материалов, лаборатории спектроскопии твердого тела, низкоразмерном семинаре ФТИ им. А.Ф. Иоффе РАН. Соискатель выступал с приглашенными докладами в России, а также в 25 университетах и организациях за ее пределами.

Личный вклад автора. Содержание диссертации отражает персональный вклад автора в опубликованные работы. Ряд исследований выполнен на образ-

цах, приготовленных по инициативе соискателя в ФТИ им. А.Ф. Иоффе РАН, а также в университетах Манчестера, Вупперталя, Корка, Эрлангена, Майнца, Гамбурга, Дрездена и Эванстона. Теоретическое моделирование было проведено по просьбе соискателя в университетах Монпелье, Вупперталя, Корка, Карлсруэ и Эрлангена. В целом, соискатель сделал определяющий вклад в выбор направлений исследований, постановку задач, в планирование и проведение эксперимента, а также в интерпретацию полученных результатов.

Публикации. По теме диссертации имеется 152 печатные работы, в том числе 88 (из 118 общего числа статей соискателя) статей в реферируемых российских и иностранных научных журналах, 51 (из 75) публикаций в трудах российских и международных конференций, а также 12 (из 14) глав в книгах. Хирш-фактор соискателя равен 24. Сделано 105 докладов на конференциях с публикацией соответствующего количества тезисов.

Структура и объем диссертации. Диссертация состоит из введения, общей характеристики работы, семи глав, заключения и списка использованных источников (410 наименований). Общий объем диссертационной работы составляет 424 страницы, включая 265 рисунков и 8 таблиц.

На основе исследований, выполненных в диссертационной работе, на защиту выносятся следующие **основные результаты и научные положения:**

1. Фотонно-энергетическая структура коллоидных кристаллов формируется путем гибридизации локализованных резонансов составляющих их сфер.
2. Возбуждение хаотических волн на линии контакта суспензия-кристалл приводит к реализации режима коллоидной эпитаксии при самоорганизации сфер в вертикально движущемся мениске и улучшает кристалличность решетки опала.
3. Состояние поляризации света в 3М фотонном кристалле опала определяется распределением поля в его блоховских модах, зависит от взаимодействия мод, а также модифицируется беспорядком решетки.
4. Спонтанное излучение точечного источника света в кристалле опала распространяется в соответствии с конфигурацией поверхности постоянной частоты и усиливается в стоп-зоне.
5. Оптические свойства фотонных гетерокристаллов определяются линейной суперпозицией резонансов составляющих его фотонных кристаллов, пере-

стройкой модовой структуры света и частичной локализацией света на границах раздела кристаллов в гетероструктуре.

6. Однократное рассеяние фотонов между модами ФК определяет структуру спектров рассеянного света тонких упорядоченных пленок опала, вероятность рассеяния вперед и назад почти одинакова и возрастает в стоп-зоне.

7. Перенос света в гибридных плазмонно-фотонных кристаллах определяется геометрически связанными с решеткой резонансными механизмами: дифракцией света, дифракцией поверхностных плазмон-поляритонов, рассеянием света на локализованных плазмонных резонансах и резонансами Фабри-Перо пленочной структуры.

Содержание работы

Во введении обосновывается актуальность темы исследования, сформулированы цели и задачи работы, ее научная новизна, выдвинуты положения, выносимые на защиту, описана структура диссертации.

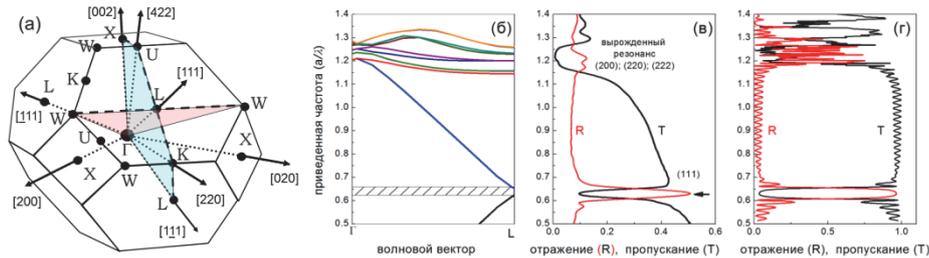


Рис.1. (а) Зона Бриллюэна ГЦК решетки. Оси кристаллической решетки сопоставлены направлениям в зоне Бриллюэна. Выделены фрагменты, в пределах которых производили большинство измерений. (б) Фрагмент ФЭС опала вдоль направления ΓL , рассчитанный методом плоских волн. Заштрихована область стоп-зоны. (в) Экспериментальные спектры пропускания и отражения пленки опала из полимерных сфер $D = 560$ нм с контрастом ИП 1.49 вдоль оси [111]. Резонансы обозначены индексами Миллера плоскостей, на которых происходит дифракция. (г) Спектры отражения и пропускания пленки опала, рассчитанные методом матрицы переноса (вычисления К. Busch). Ось частоты приведена относительно периода ГЦК решетки $a = \sqrt{2}D$.

В первой главе приведены общие данные о ФК, методах приготовления 3М ФК и теоретических подходах к интерпретации их свойств. Обоснован выбор тонких пленок опала, как основы для построения неоднородных ФК. Показано, что спектры отражения и пропускания тонких пленок опала согласуются с рас-

четом зонной энергетической структуры, а также со спектрами, полученными численным моделированием для гранцентрированной кубической (ГЦК) решетки плотноупакованных сфер (Рис.1). Сделан вывод о том, что опалы, обладающие стоп-зоной, являются анизотропными проводниками фотонов.

Во второй главе приводятся сведения о технологиях изготовления ФК на основе опалов, которые были применены в данной работе. Решающим обстоятельством, позволившим провести исследование оптических свойств в условиях преобладающего баллистического распространения света, явилось создание пленок опала с малой концентрацией дефектов, длина свободного пробега фотонов в которых превосходит толщину пленки (Рис.2).

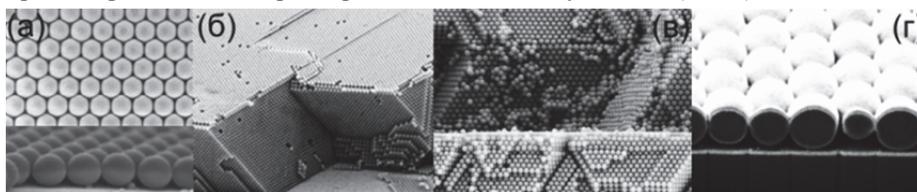


Рис.2. Изображения в сканирующем электронном микроскопе (а) монослоя 1063 нм сфер, (б) пленки опал из сфер 368 нм, (в) 3-слойного гетеро-опала из сфер 374-424-374 нм, (д) гибридного кристалла – монослоя 625 нм сфер покрытого 30 нм слоем Ag на подложке с 30 нм подслоем Ag.

В отличие от адиабатического переноса самоорганизующегося 3М коллоидного кристалла из жидкости на подложку, была предложена кристаллизация опала в движущемся мениске под воздействием акустических колебаний с шумовым спектром, а также была определена оптимальная, с точки зрения улучшения кристалличности, амплитуда осцилляций контактной линии мениска, равная нескольким постоянным решетки опала. Иллюстрацией такого способа является укладка песчинок в полосе прибора на берегу во время отлива. Этот прием позволил соединить принципы стохастического резонанса и коллоидной эпитаксии для кристаллизации опала. В результате, до 10 раз улучшилась периодичность расположения плоскостей с высокими индексами Миллера. Для получения численной оценки регулярности расположения плоскостей решетки опала было проведено сравнение амплитуд Фурье-гармоник в спектрах пропускания опала, измеренных при вращении плоскости падения света.

Для расширения возможностей конструирования коллоидных ФК был использован альтернативный самоорганизации метод Лэнгмюра-Блоджетт (ЛБ), основанный на принудительной сборке коллоидных кристаллов из монослоев сфер, кристаллизованных на границе раздела вода-воздух. Этим методом были приготовлены 2М и (2+1)М сборки одинаковых сфер, а также монослои различной упорядоченности из бинарных суспензий коллоидных сфер.

Проведен сравнительный анализ различных методов заполнения опалов материалами с высоким показателем преломления и краем оптического поглощения, находящимся в видимой или ультрафиолетовой части спектра. Сделан вывод о том, что молекулярное наслаивание, впервые примененное соискателем к опалам, является лучшим методом, обеспечивающее конформное заполнение полупроводником полостей опала и последующее инвертирование опала.

Рассмотрены различные методы послойного нанесения наночастиц металла или коллоидных квантовых точек на поверхность сфер, в частности, с использованием полиэлектролитов. Светоизлучающие опалы, кристаллизованные из таких наноракушек, были использованы для исследования излучения в ФК.

Обсуждено формирование гетерогенных опалов, состоящих из опалов с различной эффективной диэлектрической проницаемостью, а также приготовление гетерокристаллов путем сборки стопок из пленок опалов с различным периодом решетки (Рис.2в) или из коллоидных кристаллов с различной размерностью.

В завершение, описаны гибридные металло-диэлектрических фотонно-плазмонные кристаллы, приготовленные либо кристаллизацией опалов и/или монослоев сфер на тонкой пленке металла, либо нанесением пленки металла на поверхность монослоя/опала, а также комбинацией этих подходов (Рис.2г).

В третьей главе приводятся результаты исследования спектров пропускания и отражения пленок опалов в зависимости от ориентации кристалла, поляризации и угла падения света, а также приведены данные по поляризационной анизотропии и вращению поляризации. На основе эволюции спектров монослоев, сопровождающей увеличение расстояния между сферами и рост беспорядка в их упаковке, удалось проследить формирование ФЭС от Ми резонансов сфер в 2М фотонном стекле до зонной структуры спектра фотонов в 2М плоском ФК. Выдвинуто предположение о переходе от зонного механизма переноса света

модами решетки в ФК к прыжковому переносу света по локализованным резонансам сфер в фотонном стекле по мере разупорядочения монослоя (Рис.3).

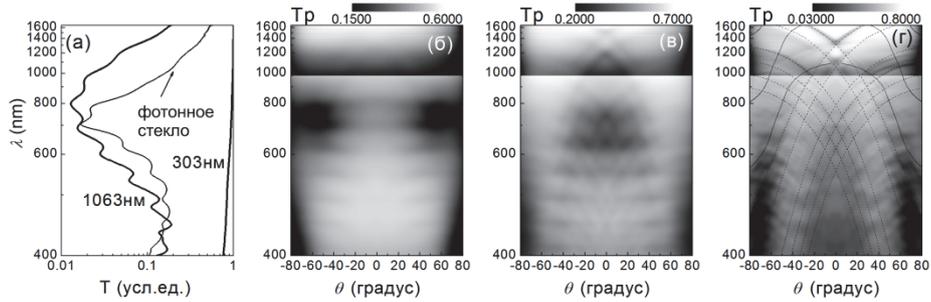


Рис.3. Формирование 2М ФК из 2М бинарного фотонного стекла, состоящего из сфер диаметрами 1063 и 303 нм. (а) Спектр пропускания неупорядоченного монослоя сфер в сравнении с расчетными спектрами рассеяния вперед одиночными сферами. (б-г) Изменение спектров пропускания бинарного монослоя сфер по мере упорядочения ансамбля. Линии на панели (г) – дифракция света в 2М решетке - монослое сфер.

Далее была продемонстрирована эволюция оптических спектров при сборке (а) стопки монослоев сфер методом Лэнгмюра-Блоджетт и (б) при кристаллизации опала на (111) ростовой плоскости. Оказалось, что, с одной стороны, при небольших углах падения дисперсии дифракционных резонансов в таких кристаллах похожи, но, с другой стороны, в ЛБ стопке отсутствует 3М дифракция. Это позволило определить отсутствие продольной корреляции в расположении монослоев в структуре последних, считавшихся до того аналогами опала, и приписать им (2+1)М размерность. Сходство же спектров опалов и ЛБ стопок вдоль нормали к гексагонально упакованным плоскостям сфер было объяснено исключением действия одного из индексов Миллера плоскостей ГЦК решетки опала при проекции 3М решетки на свою (111) плоскость.

Анизотропия спектров пленочных опалов была сопоставлена с симметрией его решетки. Оказалось, что дифракционные резонансы, рассчитанные в 2-волновом приближении (1М брэгговская дифракция) для ГЦК решетки успешно описывают ход дисперсии особенностей в спектрах опала. Систематическое отклонение наблюдаемых дисперсий от дисперсий резонансов ГЦК решетки указывает на искажение решетки пленок опалов, происходящее в результате направленности кристаллизации при вытягивании из суспензии. В спектрах

отражения/пропускания опалов было найдено антипересечение дисперсий резонансов в направлениях многоволновой дифракции. Это явление согласуется с расчетом ФЭС методом разложения по плоским волнам.

Численно смоделированные поляризованные спектры пропускания и отражения ГЦК решетки сфер были сопоставлены с экспериментальными спектрами опала и сборки Лэнгмюра-Блоджетт. Это позволило определить, какое влияние на оптические свойства опала оказывает неизбежный в любых реальных ФК беспорядок. Следствия беспорядка решетки – это существенное ослабление амплитуды спектральных особенностей, связанных с дифракционными резонансами и стоп-зоной, угловой сдвиг области антипересечения резонансов и подавление критического угла дифракции.

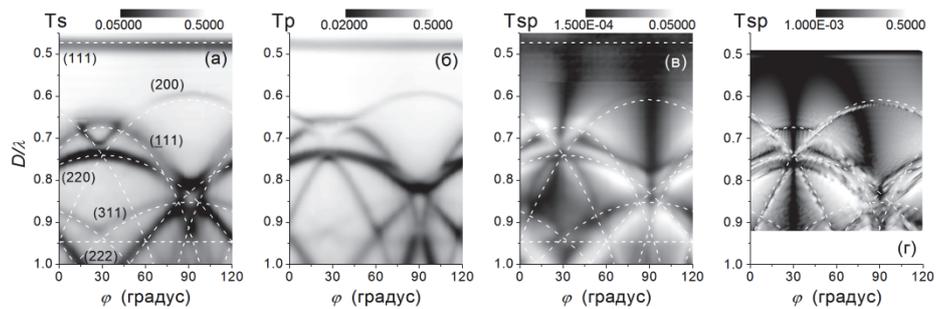


Рис.4. (а,б) Карты пропускания в s- и p-поляризованном свете при $\theta = 30^\circ$ в зависимости от азимутального вращения плоскости падения. Штриховые линии – дисперсии дифракционных резонансов в ГЦК решетке касающихся сфер, обозначенные индексами Миллера плоскостей. Опал с $n_{eff} = 1.37$ составлен из полимерных сфер $D = 560$ нм и имеет 25 (111) плоскостей в поперечном сечении. (в,г) Экспериментальная и расчетная (К. Busch) карты пропускания в скрещенных поляризациях.

В то же время, достигнутая упорядоченность решетки пленочных опалов оказались достаточно для того, чтобы такие явления, как пространственная анизотропия пропускания и отражения, поляризационная анизотропия, пробой поляризации в области антипересечения собственных мод и т.д., воспроизводили расчетные данные для идеальной ГЦК упаковки сфер. Например, тригональная симметрия решетки проявляется в оптическом отклике, если при измерении задействована только та область опала, где последовательность ...ABC... упаковки (111) плоскостей не нарушена, а толщина пленки строго однородна (Рис.4 а,б). В противном случае реализуется 6-кратная ось симметрии.

Экспериментально обнаружено и теоретически подтверждено явление смешивания поляризаций при прохождении светом опала (Рис.4 в,г). Показано, что этот эффект связан с распределением поля в блоховских модах опала и вызван биением соседних мод опала, имеющих различную групповую скорость. Предсказано, что направление вращения поляризации периодически изменяется с ростом толщины пленки, причем величина эффекта достигает 100% в зависимости от толщины пленки для некоторых направлений и частот.

В четвертой главе рассматривается рассеяние света в тонкопленочных опалах с преимущественно баллистическим характером распространения света. Как оказалось, рассеяние света в упорядоченных ансамблях частиц имеет особый характер, отличный от рассеяния в случайно-неупорядоченной среде, описываемого, например, моделью Хани-Гринштайна, или от диффузного рассеяния света в объемном опале. Суть отличий в том, что при малой концентрации дефектов значительная часть света переносится баллистически, а рассеянный из собственной моды решетки свет связывается с модами дефектов решетки или с другими собственными модами решетки. При этом реализуется равная вероятность рассеяния вперед и назад, гиперболическая индикатриса рассеяния и сохраняется пространственная анизотропия распространения в соответствии с симметрией решетки. Поэтому в спектрах рассеянного вперед света проявляются те же дифракционные резонансы, что и в пропускании, но в удвоенном количестве – как наборы резонансов для направлений падения света и детектирования рассеянного света (Рис.5а). Можно говорить также о сохранении в рассеянном свете таких особенностей баллистического распространения, как антипересечение дисперсий и поляризационная анизотропия (Рис.5 б-д).

В области (111) стоп-зоны рассеяние возрастает, так как вероятность для рассеянного фотона связаться с распространяющейся собственной модой в этом случае уменьшается. При этом показатель рассеяния - величина экспоненты в выражении, характеризующем ширину индикатрисы рассеянного света, возрастает (точки, Рис.5а). Спектр показателя рассеяния вперед воспроизводит до некоторой степени спектр пропускания пленки опала, а спектр показателя рассеяния назад – спектр отражения. Таким образом, упорядоченность ФК можно дополнительно характеризовать по диаграммам углового распределения рассеянного света.

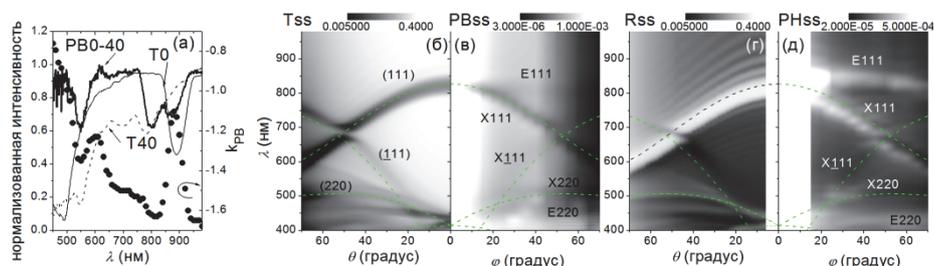


Рис.5. (а) Спектры пропускания при углах падения 0 и 40° и спектр рассеяния вперед на угол 40° (толстая линия). Точками показана кривая показателя рассеяния вперед. (б,в) Карты пропускания и рассеяния вперед и (г,д) отражения и рассеяния назад в s-поляризованном свете. Пунктиром показаны дисперсии брэгговских резонансов, обозначенные индексами Миллера. Индексы E hkl и X hkl соответствуют дифракционным резонансам в направлении падения и рассеяния света.

Рассеяние назад – это более сложный процесс, не являющийся дополнительным рассеянию вперед. В рассеянии назад комбинируются собственно рассеяние назад, происходящее из-за необходимости согласования модовых структур вакуума и ФК при падении света на опал, и аналога рассеяния вперед, происходящее при возврате света после рассеяния на дефектах решетки. Сочетание этих механизмов приводит к уширению полосы рассеяния назад и спектральному сдвигу максимума в рассеянии назад от минимума в рассеянии вперед.

В пятой главе обсуждаются особенности, вносимые в распространение потока света фотонными гетерокристаллами (ФГК). Последовательное соединение нескольких ФК позволяет создать материал, проходя который, свет последовательно перестраивается в моды различной конфигурации, т.е. на выходе суммируется обработка сигнала несколькими ФК. Если ФЩ двух ФК слегка перекрываются, то в области перекрытия групповая скорость переноса света уменьшается (Рис.6 а,б). Увеличивая частоту, можно перебрать несколько режимов распространения света через ФГК: (а) режим эффективной среды, (б) подавление распространения в ФЩ одной из частей ФГК и стоячая волна во второй половине ФГК, (в) однородный перенос света с малой групповой скоростью при выравнивании скоростей в обеих частях ФГК, дающий слабый минимум пропускания (интерфейсный минимум) (Рис.6в), (г) далее смена режимов повторяется, но уже в отношении другой фотонной щели. К сожалению, реали-

зация этой модели с тонкими пленками опала затруднена из-за сильного размытия (111) минимума.

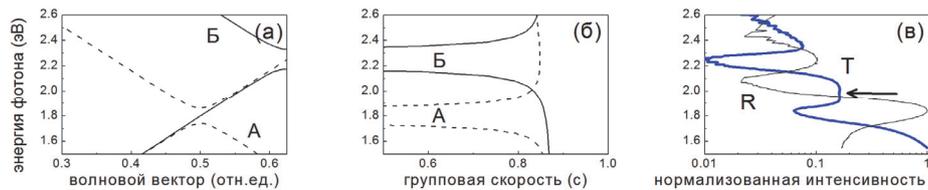


Рис.6. (а) Фрагмент ФЭС 2-слойного ФГК, состоящего из ФК А и Б. (б) Спектр групповой скорости света в АБ ФГК. (3) Спектры отражения и пропускания АБ ФГК вдоль [111] оси. Стрелкой указано положение особенности, связанной с пониженной групповой скоростью.

Как оказалось, наиболее заметное влияние на прохождение света оказывает рассеяние на интерфейсе. Согласно существующим качественным представлениям, при перестройке модовой структуры света происходит рассеяние падающего света, а из рассеянного света отбирается та компонента, которая удовлетворяет требованиям симметрии мод другого ФК. Результатом потерь на перестройку мод является прогрессирующее с ростом угла падения сглаживание дифракционных резонансов в спектрах ФГК. Если построить интерфейсную функцию, как отношение измеренных спектров пропускания ФГК к суперпозиции спектров его компонентов, то полосы в этой функции однозначно совпадают с дисперсией собственных мод обоих ФК (Рис.7 а-г). Это свойство можно использовать для построения ловушек света в солнечных элементах, так как источник рассеянного света находится в глубине структуры.

Тестирование ФГК с помощью спектроскопии рассеянного света также подтверждает, что основным источником рассеяния является интерфейс. Более того, рассеяние в ФГК теряет взаимность по отношению к обращению оптического пути. Парадоксально, но в гетеро-опале интенсивность рассеянного вперед света спадает с ростом угла рассеяния значительно быстрее, чем в одиночной пленке опала, а его амплитуда оказывается на 2-3 порядка величины меньше при той же дефектности опала. Таким образом, интерфейс оказывается барьером на пути распространения потока рассеянного света.

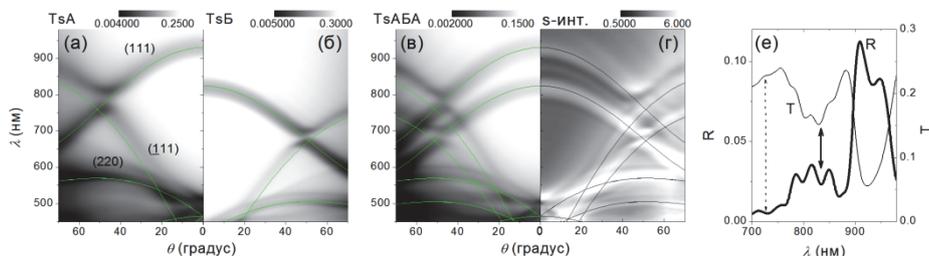


Рис.7. Карты пропускания (а,б) А и Б опалов по отдельности и (в) АБА ФГК в s-поляризованном свете. (г) Интерфейсная функция, показывающая повышенное рассеяние света в дифракционных резонансах. (е) Формирование волноводных мод в Б-слое АБА ФГК.

В спектрах 3-слойных ФГК АБА структур удалось найти признаки формирования плоского волновода, когда локализация света в среднем Б-слое обусловлена его большим эффективным показателем преломления в пределах спектральной ширины (111)Б стоп-зоны (Рис.7е). Более того, формирование волновода не ограничивается стоп-зоной. Например, в спектрах рассеяния 3-слойного ФГК при больших углах детектирования наблюдается максимум на частотах вырожденного (222), (200) и (220) резонансов, который можно интерпретировать как каналирование рассеянного света вдоль внутренней пленки, удержание света в которой обусловлено малой прозрачностью внешних пленок гетеро-опала на частотах этих дифракционных резонансов.

В шестой главе приведено описание различных светоизлучающих опалов, источниками света в которых являются кислородные дефекты SiO_2 сфер, органические красители и полупроводниковые квантовые точки, осажденные на поверхность сфер, или полупроводники каркаса инвертированных опалов. Уже на ранних этапах исследования удалось показать сосуществование двух процессов: уменьшения интенсивности излучения внедренного в опал источника света в стоп-зоне и усиления спонтанного излучения такого источника в стоп-зоне. Если подавление фотолюминесценции (ФЛ) с очевидностью повторяет контур брэгговского ослабления пропускания в стоп-зоне, то усиление проявляется с ростом мощности накачки (а) как полоса в стоп-зоне в отношении спектров ФЛ, измеренных при различной мощности накачки, и (б) как повышение мощности накачки, необходимой для насыщения ФЛ в стоп-зоне (Рис.8а).

Были разработаны две модели, объясняющие усиление спонтанного излучения при любой, сколь угодно малой мощности накачки. (1) В ФЭС опала со стоп-зоной имеются неоднородные моды, для которых направление волнового вектора и групповой скорости не совпадают в силу топологии поверхностей постоянной частоты вблизи стоп-зоны. Такие волны распространяются в направлении стоп-зоны с малой групповой скоростью (Рис.8б). Спонтанное излучение в медленные моды имеет большую вероятность по сравнению с излучением в быстрые моды. Плотность неоднородных мод мала, поэтому суммарный эффект усиления тоже невелик. (2) Излучение в локализованные моды дефектов опала. Часть дефектов имеет резонансную частоту в стоп-зоне опала. Если резонансные состояния таких дефектов перекрываются, то излучение связанных резонаторов распространяется в направлении стоп-зоны, причем медленнее, чем на частотах зоны пропускания. Поэтому, в среднем, происходит усиление спонтанного излучения.

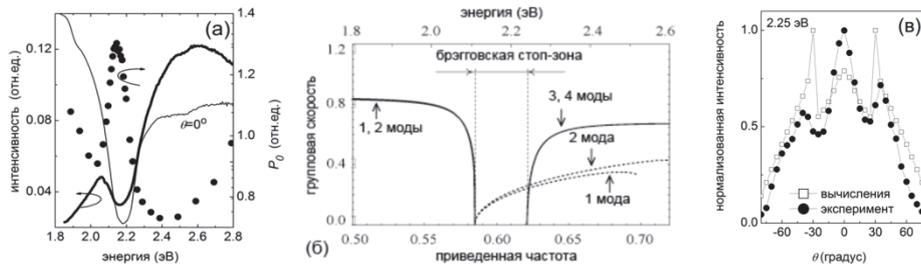


Рис.8. (а) Пик мощности возбуждения для насыщения ФЛ в области стоп-зоны. (б) Спектры групповой скорости однородных и неоднородных (пунктир) мод в опале. (в) Расчетная и экспериментальная индикатрисы излучения изотропного источника света в опале.

Индикатриса излучения изотропного источника в пленке опала имеет максимумы, которые можно описать с учетом топологии поверхностей постоянной частоты: угловое положение максимумов индикатрисы определяется седловыми точками этих поверхностей, а сами максимумы – фокусировкой излучения в этих точках. Эффект одинаков для излучателей в опалах и инвертированных опалах. В идеальной решетке эффект фокусировки дает узкие пики, а беспорядок решеток опалов размывает их в широкие максимумы (Рис.8в).

В ZnO-инвертированных опалах, обладающих более высоким контрастом показателя преломления и более широкой стоп-зоной по сравнению с обычным опалом, при увеличении мощности накачки вместо минимума ФЛ в стоп-зоне возникают полосы излучения (Рис.9 а,б). Дальнейшая перестройка и сужение этих полос отражает конкуренцию отдельных резонансов брэгговской решетки в пределах общей полосы усиления среды и в условиях насыщения ФЛ, ограниченной концентрацией кислородных вакансий в ZnO-каркасе (Рис.9в). Если же применить импульсное возбуждение и подобрать параметр решетки так, чтобы межзонный переход оказался на границе фотонной щели, то излучение в ZnO-опале приближается к режиму лазерной генерации (Рис.9 г,д).

Наконец, усиление спонтанного излучения было зафиксировано для 2-слойного ФГК типа источник-фильтр, в котором только одна часть ФГК была заполнена излучающими квантовыми точками. В зависимости интенсивности люминесценции от мощности накачки и угла детектирования обнаружилась полоса усиления, связанная с захватом рассеянного света на гетеро-интерфейсе.

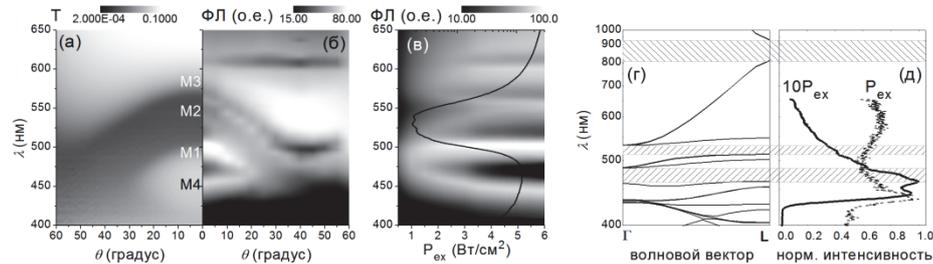


Рис.9. Карты (а) пропускания и (б) интенсивности ФЛ в инвертированном ZnO-опале. Наблюдается 4 полосы ФЛ кислородного дефекта ZnO. (в) Эволюция спектра ФЛ от мощности накачки в направлении нормали к пленке. (г) ФЭС инвертированного ZnO-опала. Фотонные щели выделены штриховкой. (д) Изменение спектра спонтанного излучения при большой мощности накачки за счет усиления при совпадении межзонного перехода в ZnO и края фотонной щели.

В седьмой главе представлена идея гибридных плазмонно-фотонных кристаллов (ПФГК). В структуре гетеро-опала один из диэлектрических ФК может быть заменен пленкой металла, как правило, пленкой серебра или золота. Такая пленка может быть плоской, и тогда в ней за счет связи с дифракционной решеткой опала наводятся поверхностные плазмон-поляритоны (ППП). Если же пленка нанесена на поверхность опала, то она имеет периодический профиль и

является плазмонным электромагнитным кристаллом (ПК) сама по себе. При этом ФК может быть на выбор или плоским 2М (монослой сфер) или 3М (опал). Таким образом, при сочетании плоской или профилированной пленки металла с 2М или 3М ФК получаются четыре базовые конфигурации ПФГК. В общем случае, в переносе света в ПФГК участвуют несколько резонансных механизмов: (а) дифракция света в ФК, (б) дифракция ППП в ПК, (в) локализованный плазмонный резонанс в металлической полусфере на поверхности сферы опала, (г) Фабри-Перо резонансы.

Ожидается, пленки металла существенно уменьшают пропускание гибридов и увеличивают отражение (Рис.10 а-г). При этом собственно поглощение света в металле может не превосходить 10%. Спектры отражения и пропускания ПФГК указывают на возбуждение волноводных мод, уносящих поток света вдоль пленки. Плоские пленки металла способствуют локализации света в коллоидном кристалле, уменьшая утечки света в подложку, и дополняют спектр собственных мод ФПК за счет ППП. Более того, локализация света в монослое приводит к усилению Ми резонансов сфер, которые доминируют в коротковолновой части спектров (Рис.10 в,г). Профилированные пленки металла определяют особенности спектров отражения и пропускания ПФГК. Характерными признаками ПК являются пик аномального пропускания, причиной которого является туннелирование поверхностных плазмон-поляритонов, усиленное в области высокой плотности плазмонных мод и полосы ППП (Рис.10 д,е).

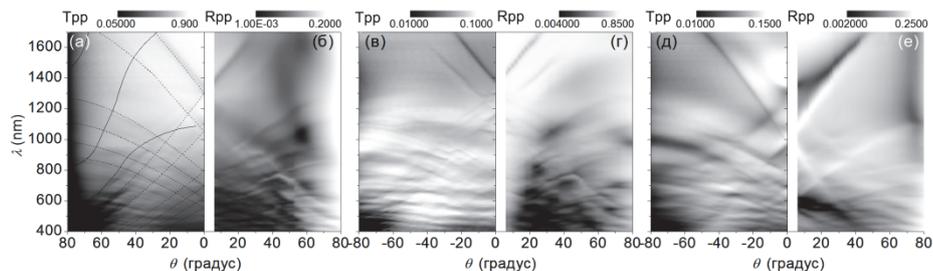


Рис.10. Спектры пропускания и отражения света для монослоя 1063 нм сфер (а,б) на стеклянной подложке, (в,г) на 50 нм Au пленке и (д,е) покрытого 30 нм слоем Ag в р-поляризованном свете.

Следует отметить, что резонансы в ПФГК нормированы на диаметр сферы. Поэтому локальный плазмонный резонанс имеет свою полосу в непосредствен-

ной близости от пика аномального пропускания, а дисперсии дифракционные резонансы ФК и ПК близки по положению. Столь тесное соседство различных механизмов переноса энергии открывает многообразие возможностей для управления спектром ПФГК. Например, в случае близости дисперсий блоховских мод ФК и ПК происходит их гибридизация, сопровождающаяся изменением частот резонансов и пространственного распределения поля. Наблюдается также компенсация дифракционных (200) и $(\bar{1}1)$ минимумов пропускания пленки опала полосами пропускания плазмонного кристалла (Рис.11).

Существенной особенностью ПФК является сильная неоднородность распределения поля, поскольку поверхностные плазмон-поляритоны локализованы на поверхности раздела металл-диэлектрик. Такая неоднородность велика даже для монослоев сфер.

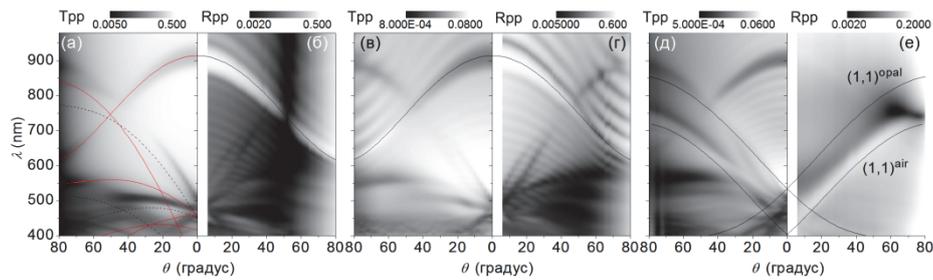


Рис.11. Спектры пропускания и отражения пленки опала из 431 нм ПММА сфер (а,б) на стеклянной подложке, (в,г) на 50 нм Au пленке, (д,е) покрытой 50 нм слоем Ag в р-поляризованном свете. (а) Дисперсии дифракционных резонансов ГЦК решетки в GLKL (линии) и GLUX (пунктир) сечениях зоны Бриллюэна. (е) Две ППП моды в профилированной пленке серебра (линии).

Интересным направлением оказалось совмещение пленки опала с металлическим зеркалом, отделенным микрорезонатором от брэгговского зеркала опала. При подборе частоты резонатора удалось реализовать дефектное состояние в (111) стоп-зоне опала, резонансное пропускание в котором как минимум на порядок величины превзошло пропускание лучших из приведенных в литературе плоскостных дефектов, непосредственно сформированных в объеме опала. Расчет показывает, что амплитуда поля в моде дефекта также на порядок величины превосходит при этом поля вне резонансных состояний, что делает эту модификацию перспективной для реализации эффективных источников света.

В целом, подход к управлению оптическими свойствами ФК, использующий изменение условий связи мод ФК с модами внешнего пространства при сохранении структуры и состава кристалла, представляется технологически предпочтительным для применения при изготовлении оптических процессоров.

Исследование гибридных гетеро-кристаллов позволило найти условия синергетического действия дифракционных и плазмонных механизмов для перенаправления потока падающего свет вдоль плоскости гетероструктуры. Например, было показано, что всенаправленное поляризационно-независимое и ультраширокополосное изменение направленности падающего потока света может быть достигнуто в гетероструктуре опал-золото-стопка Лэнгмюра-Блоджетт. Такая архитектура может быть востребована при разработке солнечных элементов для повышения эффективности использования падающего света.

Взаимодействие диэлектрических волноводных мод и поверхностных плазмон-поляритонов было усилено путем создания плоских плазмонных волноводов, в которых монослой сфер заключен между пленками металла. При этом, с одной стороны, увеличивается количество плазмон-поляритонных мод и они, взаимодействуя, испытывают антипересечения, что приводит к открытию в фотонном спектре запрещенных зон. С другой стороны, происходит формирование гибридных мод, состоящих из долгоживущих медленно распространяющихся возбуждений, локализованных преимущественно в диэлектрике, и короткоживущих быстрых мод, распространяющихся по поверхности металла. Это преобразование проявляется в спектрах в виде расщепления всех резонансов, включая пик аномального пропускания, на резонансы с разной добротностью. Таким образом, ПФГК предоставляют потенциальную возможность обработки света в спектральном, пространственном и временном доменах.

Основные результаты и выводы работы

В диссертационной работе проведено комплексное исследование оптических свойств коллоидных ФК различной архитектуры. Показано, каким образом в коллоидных ФК происходит управление потоком света, вызванное изменением спектра плотности оптических мод, направления распространения света и структуры электромагнитного поля. Прделанная работа продемонстрировала, каким образом можно сконструировать искусственные неоднородности, на

которых происходит локализация света и перестройка его модовой структуры или которые пригодны для осуществления резонансной связи света с ФК. Суммируя, можно утверждать, что создание неоднородных условий для распространения света в ФК может быть использовано для кардинальной перестройки оптических свойств и поэтому является мощным инструментом проектирования функциональных ФК. Важно отметить, что результаты работы, проделанной на коллоидных кристаллах, не ограничиваются этим модельным объектом, а могут быть обобщены на фотонные кристаллы любой природы. В целом, исследованный в диссертации метод сочетания между собой электромагнитных кристаллов, имеющих различные энергетические структуры и использующих преобразование фотонов в другие возбуждения, может быть положен в основу технологий программируемого преобразования светового потока.

В ходе исследования был разрешен ряд сопутствующих проблем: (а) улучшена кристалличность решетки опалов, (б) предложены оригинальные методики исследования оптических свойств опалов, (в) разработаны новые технологии заполнения полостей опалов веществом и (г) предложены новые архитектуры - гетерогенные и гибридные ФК, а также 2М тонкие фотонные стекла.

Глава 1. Опалы являются модельным объектом для исследования свойств 3М фотонных кристаллов.

Глава 2. Разработаны новые архитектуры фотонных кристаллов на основе коллоидных кристаллов.

2.1. Существенное, до 10 раз, улучшение регулярности расположения плоскостей решетки опала было достигнуто с помощью акустической шумовой вибрационной стимуляции кристаллизации пленок опалов и вследствие самоорганизации решетки опалов в условиях «коллоидной эпитаксии».

2.2. Количественная оценка регулярности упаковки плоскостей с высокими индексами Миллера в решетке опала была получена путем измерения амплитуд Фурье-гармоник пропускания как функции вращения плоскости падения для разных длин волн.

2.3. Наиболее однородное заполнение опала при внутриволостном синтезе вещества получено газозаполнением методами, в частности, атомным наслаиванием.

2.4. Предложены и приготовлены фотонные гетеро-кристаллы.

2.5. Предложены и приготовлены гибридные металло-диэлектрические плазмонно-фотонные кристаллы.

Глава 3. Исследована структура оптических спектров тонких пленок опалов.

3.1. ФЭС монослоя сфер формируется путем гибридизации Ми резонансов составляющих его диэлектрических сфер, т.е. резонансы в спектрах о 2М плоского ФК развиваются из резонансов 2М плоского фотонного стекла

3.2. При переходе от 2М фотонного стекла к 2М ФК происходит, предположительно, смена прыжкового механизма распространения фотонов на зонный механизм.

3.3. Характерные особенности оптических спектров 2М плоского ФК (монослоя сфер), (2+1)М ФК (стопки монослоев) и 3М ФК (опала) зависят от размерности решетки, но имеют в области $\lambda \sim D$ общие черты.

3.4. Антипересечение дисперсий резонансов в спектрах опалов соответствует спектру собственных мод в ФЭС ГЦК решетки сфер.

3.6. Симметрия решеток исследованных пленок опалов несколько отличается от ГЦК симметрии.

3.7. Структура поля в блоховских модах решетки опала напоминает конфигурацию плоской волны для некоторых частот и направлений распространения света. В этих случаях, несмотря на кубическую симметрию решетки опала, может наблюдаться вращение плоскости поляризации, обусловленное биениями соседних мод, имеющих разную групповую скорость.

3.8. Критический угол дифракции в опалах (и стопках монослоев) не наблюдается из-за рассеяния на дефектах решетки, пробоя поляризационной анизотропии в области антипересечения собственных мод, вращения поляризации и азимутальной анизотропии ФЭС.

Глава 4. Предложена спектроскопия рассеянного в пленках опалах света.

4.1. Рассеяние света в тонких, по сравнению с длиной свободного пробега фотона, пленках опалов отличается от рассеяния света в случайно-неупорядоченной среде тем, что рассеяние связывает между собой моды решетки.

4.2. Спектры рассеянного света в ~ 100 раз более чувствительны к влиянию дефектов решетки по сравнению со спектрами пропускания/отражения, так как источниками излучения для них является дефекты решетки.

4.3. Свет, рассеянный в пленке опала вперед и назад, имеет приблизительно равную интенсивность.

4.4. Дифракция света в решетке опала определяет структуру спектров однократно рассеянного вперед и назад света. С увеличением угла рассеяния растет вклад рассеяния высоких порядков.

4.5. Вероятность рассеяния в стоп-зоне увеличивается из-за уменьшения количества доступных для связи мод ФК. Ширина индикатрисы рассеяния является показателем рассеяния, т.е. количественной мерой прозрачности или опалесцентности пленок опала.

4.6. Пространственная анизотропия рассеяния определяется симметрией решетки опала.

4.7. Поляризационная анизотропия резонансов в спектрах рассеянного света повторяет поляризационную анизотропию баллистически распространяющегося света.

Глава 5. Предложены и исследованы фотонные гетеро-кристаллы.

5.1. В спектрах гетеро-кристалла суммируются дифракционные резонансы составляющих его фотонных кристаллов.

5.2. Перенос света в области перекрытия краев стоп-зон в гетеро-кристалле опала осуществляется с пониженной групповой скоростью.

5.3. На границе раздела кристаллов, составляющих гетеро-кристалл, происходит рассеяние света из-за частотного сдвига их ФЭС и соответствующего различия структуры мод одной и той же частоты. Рассеяние сглаживает дифракционные резонансы в спектрах гетеро-кристаллов при больших углах падения света и для плоскостей с большими индексами Миллера.

5.4. В гетеро-кристаллах интенсивность рассеянного вперед света уменьшается, а рассеянного назад – увеличивается.

5.5. В 3-слойных гетеро-кристаллах может происходить волноводное распространение света, поддерживаемое либо за счет увеличения показателя преломления внутреннего ФК вблизи его стоп-зоны, либо за счет формирования фотонно-кристаллического волновода между внешними брэгговскими зеркалами.

5.7. Предложены фотонные ловушки, механизм действия которых основан на рассеянии и удержании света у интерфейса в фотонном гетерокристалле.

Глава 6. Фотонный кристалл модифицирует излучение источника света.

- 6.1. Интенсивность спонтанного излучения ослаблена дифракционными резонансами аналогично подавлению интенсивности света от внешнего источника.
- 6.2. Спонтанное излучение в стоп-зоне испытывает усиление, так как оно связано с медленно распространяющимися неоднородными модами и/или локализованными модами дефектов.
- 6.3. Диаграмма излучения в пространстве определяется фокусировкой излучения на седловых точках изо-частотных контуров.
- 6.4. Излучение внутреннего источника в фотонном гетеро-кристалле рассеивается и усиливается на интерфейсе.
- 6.5. Локальное поле ФК оказывает стимулирующее влияние на спонтанное излучение источника, находящегося у поверхности ФК.

Глава 7. Предложены гибридные металло-диэлектрические кристаллы, состоящие из последовательно соединенных плазмонных и фотонных кристаллов.

- 7.1. Перенос света в фотонно-плазмонных кристаллах обеспечивают несколько резонансных механизмов – дифракционные резонансы в ФК, поверхностные плазмон-поляритоны в ПК, локализованные Ми резонансы металлических полусфер и Фабри-Перо резонансы пленочной структуры.
- 7.2. В гибридных плазмонно-фотонных кристаллах распределение поля неоднородно по сечению, так как поверхностные плазмон-поляритоны всегда локализованы у поверхности металла.
- 7.3. Изменяя архитектуру гибридных кристаллов, в частности, профилирование пленки металла (плоская или профилированная) или размерность ФК (2М плоский или 3М), можно в широких пределах изменять их оптические свойства, отдавая преимущество тому или иному механизму резонансного переноса света.
- 7.4. В области перекрытия блоховских мод фотонного и плазмонного кристаллов происходит их гибридизация. Можно достичь превалирования гибридных мод в оптических свойствах плазмонно-фотонного гибридного кристалла и открытия новых фотонных щелей, уменьшая объем ПФГК до размеров неоднородного слоя, в котором существуют эти моды, например, в плазмонном волноводе на основе монослоя сфер.
- 7.5. Оптические свойства ПФГК испытывают сильное изменение, если связь с континуумом мод внешнего пространства осуществляется с помощью резо-

нансного устройства связи. Полоса резонансного пропускания в стоп-зоне опала была получена путем формирования внешнего резонатора у его поверхности.

Основное содержание диссертации изложено в следующих работах:

в. Избранные главы в книгах

- [в1]. V. Bogomolov, Y. Kumzerov, S.G. Romanov. Fabrication of three-dimensional superlattices of nanostructures, in “*Physics of Nanostructures*” eds. J.H. Davies and A.R. Long, IOP Publishing, Bristol, pp.317-321, 1992
- [в2]. S.G.Romanov, C.M.Sotomayor Torres, Three-Dimensional Lattices of Nanostructures – Template Approach. In “*Handbook of Nanostructured Materials and Technology*”, ed. H.S. Nalwa, Acad. Press, v.4, ch.4, pp.231-323, 2000
- [в3]. S. G. Romanov, N. Gaponik, A. Eychmüller, A.L. Rogach, V. G. Solovyev, D.N. Chigrin, C. M. Sotomayor Torres, Light emitting opal-based photonic crystal heterojunctions, in “*Photonic Crystals*” eds. K. Busch, S.Lölkes, R. Wehrspohn, H. Föll, Wiley-VCH, Weinheim, pp.132-152, 2004
- [в4]. S.G. Romanov, Optical characterization of opal photonic hetero-crystals, in “*Frontiers of Multifunctional Integrated Nanosystems*” eds. E. Buzaneva and P. Scharff, Kluwer Acad. Publ., pp.309-330, 2004
- [в5]. S G. Romanov and U. Peschel, Emission of semiconductor nanocrystals in photonic crystal environment, in “*Nanocrystals*”, ed. Y. Masuda, SCIYO, Rijeka, ISBN 978-953-307-126-8, pp.65-107, 2010
- [в6]. S. G. Romanov, Hybrid Metal-Dielectric Plasmonic-Photonic Crystals on Colloidal Platforms, in “*Optical properties of photonic structures: interplay of order and disorder*”, eds. M. Limonov and R. De La Rue, Taylor & Francis, ch.8, pp. 471-488, 2012

а. Избранные статьи в рецензируемых журналах

- [а1]. В.Г. Балакирев, В.Н. Богомолов, В.В. Журавлев, Ю.А. Кумзеров, В.П. Петрановский, С.Г. Романов, Л.А. Самойлович, Трехмерные сверхрешетки в матрицах опалов, *Кристаллография*. **38**, 111-120 (1993)
- [а2]. S.G. Romanov, A.V.Fokin, V.V.Tretiakov, V.Y.Butko, V.I.Alperovich, N.P.Johnson, C.M.Sotomayor Torres. Optical properties of ordered 3-dimensional arrays of structurally confined semiconductors. *J.Cryst.Growth*, **159**, 857-860 (1996)

- [a3]. С.Г.Романов, А.В.Фокин, В.Ю.Бутко, В.В.Третьяков, С.М.Самойлович, К.М.С. Торрес, О возможности управления оптическими свойствами трехмерных "мягких" фотонных кристаллов на основе опалов, *ФТТ*, **38**, 3347-3360 (1996)
- [a4]. S.G. Romanov, N.P. Johnson, H.M. Yates, M.E. Pemble, V.Y. Butko, C.M. Sotomayor Torres, Enhancement of the photonic band gap in opals coated with semiconductor monolayers, *Appl. Phys. Lett.*, **70**, 2091-2093 (1997)
- [a5]. S.G. Romanov, 3-Dimensional Photonic Crystals at Optical Wavelengths, *J. Non-linear Optical Physics & Materials*, **7**, 181-200, (1998)
- [a6]. S.G. Romanov, A.V. Fokin, H.M. Yates, M.E.Pemble, N.P. Johnson, R.M De La Rue, Opal-based composites as photonic crystals, *IEE-proceedings Optoelectronics*, **147**, 138-144 (2000)
- [a7]. S.G. Romanov, A.V. Fokin, R.M. De La Rue, Anisotropied Photoluminescence in Incomplete 3-Dimensional Photonic Bandgap Environment, *Appl. Phys. Lett.*, **74**, 1821-1823 (1999)
- [a8]. S.G. Romanov, T. Maka, C.M.S. Torres, M. Müller, R. Zentel, Emission properties of dye-polymer-opal photonic crystals, *J. Lightwave Technol.*, **17**, 2121-2127 (1999)
- [a9]. S. G. Romanov, A.V. Fokin, R. M. De La Rue, Eu^{3+} Emission in an Anisotropic Photonic Bandgap Environment. *Appl. Phys. Lett.*, **76**, 1656-1658 (2000)
- [a10]. M.Müller, R.Zentel, T.Maka, S. G. Romanov, C.M.S. Torres, Dye-Containing Polymer Beads as Photonic Crystals, *Chem. Materials*, **12**, 2508-2512 (2000)
- [a11]. S. G. Romanov, H. M. Yates, M. E. Pemble, R. M De La Rue, Opal-Based Photonic Crystal with Double Photonic Bandgap Structure, *J. Phys.: Cond. Matter.*, **12**, 8221-8229 (2000)
- [a12]. S. G. Romanov, T. Maka, C.M. Sotomayor Torres, M. Müller, R. Zentel, Thin Film Photonic Crystals, *Synthetic Metals*, **116**, 475-479 (2001)
- [a13]. M. Müller, R. Zentel, T. Maka, S. G. Romanov, C. M. S. Torres, Photonic Crystal Films with High Refractive Index Contrast, *Adv. Mater.*, **12**, 1499-1503 (2000)
- [a14]. S. G. Romanov, T. Maka, C. M. Sotomayor Torres M. Müller, R. Zentel, D. Cassagne, J. Manzanares-Martinez, C. Jouanin, Diffraction of Light from Thin Film PMMA Opaline Photonic Crystals, *Phys. Rev. E*, **63**, 056603-1-5 (2001)
- [a15]. S. G. Romanov, T. Maka, C. M. S. Torres, M. Müller, R. Zentel, Suppression of spontaneous emission in incomplete opaline photonic crystals, *J.Appl.Phys.*, **91**, 9426-9428 (2002)

- [a16]. S. G. Romanov, D. N. Chigrin, V. G. Solovyev, T. Maka, N. Gaponik, A. Eychmüller, A. L. Rogach, C. M. Sotomayor Torres, Light emission in a directional photonic bandgap, *phys. stat. sol. (a)*, **197**, 662-672 (2003)
- [a17]. С.Г.Романов, А.В.Фокин, Изменение спонтанного излучения в стоп-зоне опала с увеличенным контрастом показателя преломления, *ФТТ*, **45**, 419-423 (2003)
- [a18]. M. Egen, R. Voss, B. Griesebock, R. Zentel, S. Romanov, C. S. Torres, Heterostructures of polymer photonic crystal films, *Chem. Materials*, **15**, 3786-3792 (2003)
- [a19]. S. G. Romanov, D.N. Chigrin, C. M. Sotomayor Torres, N. Gaponik, A. Eychmüller, A. L. Rogach, Emission stimulation in a directional bandgap of a CdTe-loaded opal photonic crystal, *Phys. Rev. E*, **69**, 046606-1-4 (2004)
- [a20]. N. Gaponik, A. Eychmüller, A.L. Rogach, V.G. Solovyev, C.M. Sotomayor Torres, S. G. Romanov, Structure-related optical properties of luminescent hetero-opals, *J. Appl. Phys.*, **95**, 1029-1035 (2004)
- [a21]. S.G. Romanov, C.M. Sotomayor Torres, Forward scattering of light in thin opal films, *Phys. Rev. E*, **69**, 046611-1-6 (2004)
- [a22]. P. T. Miclea Z. Liang, A. S. Susha, F. Caruso, C. M. Sotomayor Torres, S. G. Romanov, Reflectivity behaviour of opals of gold nanoparticles coated spheres, *Appl. Phys. Lett.*, **84**, 3960-3962 (2004)
- [a23]. С. Г. Романов, Структура спектров рассеяния в фотонных кристаллах на основе опала, *Письма в ЖЭТФ*, **79**, 751-756 (2004)
- [a24]. D. Wang, J. Li, C. T. Chan, V.A. Salgueiriño-Maceira, L. M. Liz-Marzan, S. Romanov, F. Caruso, Optical Properties of Nanoparticle-Based Metallodielectric Inverse Opals, *Small*, **1**, 122-130 (2005)
- [a25]. S.G. Romanov, Direct and Indirect Control upon the Photonic Band Gap Dispersion in Opals Coated with Gold Nanoparticles, *Fullerenes, Nanotubes and Carbon Nanostructures*, **13**, 319-329, Suppl. 1 (2005)
- [a26]. S. G. Romanov, A. S. Susha, C. M. Sotomayor Torres, Z. Liang, F. Caruso, Surface plasmon resonance in gold nanoparticle infiltrated dielectric opals, *J. Appl. Phys.*, **97**, 086103-1-3 (2005)
- [a27]. S. G. Romanov, C. M. Sotomayor Torres, J. Ye, R. Zentel, Light propagation in triple-film hetero-opals, *Progress Solid State Chemistry*, **33**, 279-286 (2005)
- [a28]. S.G. Romanov, C.M. S. Torres, M.Egen, R.Zentel, Light scattering in opal hetero-junction, *Photonics & Nanostructures – Fundamentals & Applications*, **4**, 59-68 (2006)

- [a29]. С. Г. Романов, Анизотропия распространения света в тонких пленках опалов, *ФТТ*, **52**, 495–504 (2007)
- [a30]. S.G. Romanov, M. Bardosova, M. Pemble, C.M. Sotomayor Torres, (2+1)-dimensional photonic crystals from Langmuir-Blodgett colloidal multilayers, *Appl. Phys. Lett.*, **89**, 43105-1-3 (2006)
- [a31]. S.G. Romanov, M. Bardosova, D.E. Whitehead, I. Povey, M. Pemble, C.M. Sotomayor Torres, Erasing diffraction orders – opal versus Langmuir-Blodgett colloidal crystals, *Appl. Phys. Lett.*, **90**, 133101-1-3 (2007)
- [a32]. W. Khunsin, S. G. Romanov, C. M. Sotomayor Torres, J. Ye, R. Zentel, Optical transmission in triple-film hetero-opals, *J. Appl. Phys.*, **104**, 013527-1-8 (2008)
- [a33]. S.G. Romanov, Anisotropy of weak light scattering in thin opal films, *J. Appl. Phys.*, **103**, 093117-1-9 (2008)
- [a34]. S.G. Romanov, M. Bardosova, I. Povey, M. Pemble, C.M. Sotomayor Torres, Understanding of transmission in the range of high-order photonic bands in thin opal film, *Appl. Phys. Lett.*, **92**, 191106-1-3 (2008)
- [a35]. W. Khunsin, G. Kocher, S. G. Romanov, C. M. Sotomayor Torres, Quantitative analysis of lattice ordering in thin film opal-based photonic crystals, *Adv. Funct. Mater.*, **18**, 2471-2479 (2008)
- [a36]. W. Khunsin, M. Scharrer, L. K. Aagesen, M. A. Anderson, R. P. H. Chang, C. M. Sotomayor Torres, S. G. Romanov, Resonance amplification of defect emission in ZnO-inverted opal, *Optics Letters*, **34**, 1519-1521 (2009)
- [a37]. С.Г. Романов, М. Bardosova, Поляризационная анизотропия оптического пропускания в опалах и Лэнгмюр--Блоджетт-кристаллах, *ФТТ*, **52**, 495–504 (2010)
- [a38]. С.Г. Романов, Особенности поляризационной анизотропии в оптическом отражении и пропускании коллоидных фотонных кристаллов, *ФТТ*, **52**, 788-798 (2010)
- [a39]. B. Ding, M. Bardosova, I. Povey, M. E. Pemble, S.G. Romanov, Engineered light scattering in colloidal photonic heterocrystals, *Adv. Funct. Mater.*, **20**, 853-860 (2010)
- [a40]. B. Ding, M. E. Pemble, A. V. Korovin, U. Peschel, S.G. Romanov, 3-dimensional photonic crystals with active surface – gold film-terminated opals, *Phys. Rev. B*, **82**, 035119-1-9 (2010)

- [a41]. S. G. Romanov, U. Peschel, M. Bardosova, S. Essig, K. Busch, Suppression of the critical angle of diffraction in thin film colloidal photonic crystals, *Phys. Rev. B*, **82** 115403-1-11 (2010)
- [a42]. A. S. Romanova, A.V. Korovin, С. Г. Романов, Опалы с тонкопленочным металлическим дефектом – гибридные коллоидные плазмонно-фотонные кристаллы, *ФТТ*, **53**, 1097-1105 (2011)
- [a43]. S. G. Romanov, A. Regensburger, A. V. Korovin, U. Peschel, Hybrid colloidal plasmonic photonic crystals, *Adv. Mater.*, **23** 2515-2533 (2011)
- [a44]. B. Ding, M. Bardosova, M. E. Pemble, A.V. Korovin, U. Peschel, S. G. Romanov, Broadband omnidirectional light diversion in hybrid plasmonic-photonic crystals, *Adv. Func. Mater.*, **21**, 4182-4192 (2011)
- [a45]. W. Khunsin, A. Amann, G. Kocher, S. G. Romanov, S. Pullteap, H. C. Seat, E. P. O'Reilly, R. Zentel, C. M. Sotomayor Torres, Noise-assisted crystallization of opal films, *Adv. Func. Mater.*, **22**, 1812-1821 (2012)
- [a46]. S.G. Romanov, S. Orlov, A. V. Korovin, G. P. Chuiko, A. Regensburger, A. S. Romanova, A. Kriesch, U. Peschel, Probing guided modes in a monolayer colloidal crystal on a flat metal film, *Phys. Rev. B*, DOI: 10.1103/PhysRevB.00.005100 (2012)
- [a47]. А.С. Романова, А.В. Коровин, С.Г. Романов, Влияние размерности на спектры гибридных плазмонно-фотонных кристаллов, *ФТТ*, в печати (2013)

б. Избранные статьи в сборниках трудов конференций

- [61]. S.G. Romanov, S. Orlov, A. V. Korovin, O. Zhuromskyy, U. Peschel, N. Vogel, K. Landfester, C. K. Weiss, Interplay of Mie and Bragg resonances in partly ordered monolayers of colloidal particles, *Proc. SPIE*, eds. H.R. Miguez, S.G. Romanov, L.C. Andreani, C. Seassal, **8425**, 84250M-1-12 (2012)
- [62]. S. G. Romanov, A. V. Korovin, M. R. Bahrami, U. Peschel, Hybrid architectures – enabling 4-dimensional plasmonic-photonic crystals, *Proc. SPIE*, eds. H.R. Miguez, S.G. Romanov, L.C. Andreani, C. Seassal, **8425**, 842514-1-9 (2012)
- [63]. J. Küchenmeister, C. Wolff, K. Busch, U. Peschel, S. G. Romanov, Cross-polarization coupling – an abandoned property of 3-dimensional photonic crystals, *Proc. Metamaterials 2012 – 6th Int. Congr. on Advanced Electromagnetic Materials in Microwaves and Optics*, 621-623 (2012)

[64]. S. G. Romanov, S. Orlov, A. V. Korovin, U. Peschel, N. Vogel, K. Landfester, C. K. Weiss, Light transport in ordered and randomized photonic-plasmonic hybrid crystals, *Proc. Metamaterials 2012 – 6th Int. Congr. on Advanced Electromagnetic Materials in Microwaves and Optics*, 621-623 (2012)

Цитируемая литература

¹ В.П. Быков, Спонтанное излучение в периодической структуре, *ЖЭТФ*, **62**, №2, 505-513 (1972)

² E. Yablonovitch, Inhibited spontaneous emission in solid-state physics and electronics, *Phys. Rev. Lett.*, **58**, 2059-2062 (1987)

³ S. John, Strong localization of photons in certain disordered dielectric superlattices, *Phys. Rev. Lett.*, **58**, 2486-2489 (1987)

⁴ В.Н.Богомолов, Жидкости в ультратонких каналах, *УФН*, **124**, 77 (1972)

⁵ J. V. Sanders, *Nature*, Colour of precious opal, No.**4964**, 1151-1153 (1964)

⁶ В.Н. Богомолов, В.В. Журавлев, А.И. Задорожний, Е.В.Колла, Ю.А. Кумзеров, Вольт-амперные характеристики регулярной системы слабо-связанных сверхпроводящих частиц, *Письма в ЖЭТФ*, **36**, 298-300 (1982)

⁷ V.N. Astratov, V.N. Bogomolov, A.A. Kaplyanskii, A.V. Prokofiev, L.A. Samoilovich, S.M. Samoilovich, Yu.A. Vlasov, Optical Spectroscopy of Opal Matrices with CdS Embedded in its Pores: Quantum Confinement and Photonic Band Gap Effects, *Il Nuovo Cimento*, **17D**, 1349-1354 (1995)