

Структура спектров рассеяния света в фотонных кристаллах на основе опала

С. Г. Романов¹⁾

Физико-Технический институт им. А. Ф. Иоффе РАН, 194021 С.Петербург, Россия

Поступила в редакцию 22 марта 2004 г.

После переработки 29 апреля 2004 г.

Изучены спектры потерь света при фиксированном угле падения коллимированного пучка на поверхность анизотропного фотонного кристалла на основе опала при различных углах наблюдения. Показано, что структура спектров рассеянного вперед и назад света связана с наличием нескольких направленных фотонных запрещенных зон. Продемонстрировано усиление рассеяния назад и подавление рассеяния вперед в частотной области фотонных запрещенных зон. Сделано предположение о наблюдении полосы рассеяния, связанной с локализацией фотонов на краю фотонной щели.

PACS: 78.67.—n

Проникновение света из свободного пространства в фотонный кристалл (PhC) зависит от возбуждения световой волны собственных мод PhC. Этот процесс определяется симметрией PhC, направлением падения луча и поляризацией света, но при этом часть мод PhC остается невозбужденной. Поскольку процесс связывания происходит через многократное рассеяние, то некоторая доля интенсивности падающей электромагнитной (ЭМ) волны при этом теряется. Напротив, фотоны, рассеянные на дефектах внутри одномерного PhC, переносятся всеми его модами. Сравнение параметров фотонной зонной структуры, полученных из эксперимента по отношению к внешнему и внутреннему источникам света представляет собой несомненный интерес. Введение дополнительного источника света в PhC связано со значительными технологическими трудностями, а полученные данные являются сложной функцией положения эмиттера в элементарной ячейке, условий возбуждения и спектрального состава излучения. Альтернативный источник – дефекты решетки – приводит к появлению мод, которые не являются собственными модами идеальной решетки. В результате излучение в неидеальной решетке переносится как диффузно, так и баллистически. Очевидно, что этот недостаток присущ любым экспериментально реализованным PhC в силу их неидеальной упорядоченности.

При незначительной концентрации дефектов имеется пограничная ситуация, когда моды PhC с идеально упакованной и слегка разупорядоченной решетками различаются незначительно. При этом упру-

гое рассеяние можно рассматривать как возмущение, ведущее к перескоку фотона в другую собственную моду упорядоченного PhC, то есть к перераспределению светового потока внутри PhC. Запрещенные зоны (PBG) образуются в результате установления замкнутых в пространстве траекторий фотонов [1]. Поскольку в трехмерных (3D) PhC рассеяние в моды свободного пространства незначительно, это предопределяет сильное влияние решетки на рассеянный свет. В частности, в случае направленной PBG можно ожидать зависимость рассеяния от направления наблюдения как следствие анизотропии самого PhC.

Модельным 3D PhC с направленной PBG является искусственный опал. В последнее время синтезированы пленочные опалы [2] с концентрацией дефектов, уменьшенной более чем в 100 раз по сравнению с ювелирными опалами, имевшими до 1 дефекта на 100 элементарных ячеек [3]. В пленках опалов длина свободного пробега фотонов [4] соизмерима или превосходит толщину кристалла, то есть преобладает баллистическое распространение фотонов. Следовательно, существенная доля рассеянного света переносится однократно рассеянными фотонами [5], которые ведут себя как фотоны, испущенные внутренним источником, излучающим в соответствии с симметрией PhC [4].

Известные данные по влиянию дефектов на распространение света в опалах относятся, в основном, к массивным опалам с большой плотностью дефектов [6, 7, 4], а собственно рассеянный свет редко являлся предметом изучения [6, 8]. Тем не менее, в последних работах определены важные параметры, такие как длина аттенюации света в PBG опала и длина свободного пробега фотонов вне PBG. Данные

¹⁾e-mail: sergeiromanov@list.ru

по пленочным опалам на настоящее время фрагментарны [9]. Наши эксперименты продемонстрировали принципиальное отличие спектров рассеянного света в массивных и пленочных опалах. Например, в пленках структура спектров рассеянного вперед света определяется PBG в направлениях падения и детектирования света [5], в то время как в массивных опалах – только PBG в направлении выхода [4].

В настоящей работе продемонстрирована связь спектров рассеяния с упорядоченностью решетки опала. Рассмотрена структура спектров света, рассеянного от пленки (BS) и позади нее (FS) и проведено сравнение спектральных особенностей рассеянного света со спектрами пропускания как функции ориентации решетки опала.

Пленки опала были приготовлены либо высушиванием суспензии полимерных сфер одинакового диаметра на стеклянной подложке, либо кристаллизацией в мениске при вытягивании подложки из суспензии. Отжиг при 80°C используется для стабилизации опала. В обоих случаях сферы кристаллизуются в гранецентрированную кубическую решетку с (111) ростовой плоскостью параллельной подложке. Пленки, кристаллизованные в мениске, обладают более совершенной решеткой, что подтверждается наблюдением картины поверхностной дифракции [10]. Для сравнения были отобраны три типа образцов, из них два были приготовлены высушиванием в нормальных условиях (тип 1) или при повышенной влажности (тип 2), а последний – кристаллизацией в мениске (тип 3). Диаметры сфер были 325, 300 и 348 нм, соответственно для пленок типа 1, 2 и 3.

Измерения спектров рассеянного света проводились при освещении образца галогенной лампой накаливания, свет которой был собран в параллельный пучок диаметром 1 мм. Спектры FS и BS были измерены при нормальном падении зондирующего пучка ($\theta = 0^\circ$). Рассеянный свет собирался из конуса угловым размером около 10° . Угол α между осью конуса и осью [111] решетки опала изменяли с шагом 5° от 0 до 85° в рассеянии вперед и от 35° до 85° при рассеянии назад (рис.1). Пропускание света измерялось в стандартной конфигурации, когда угол падения равен углу пропускания: $\theta = \alpha$. Ориентация решетки опала в пленке типа 3 была проведена при помощи картины поверхностной дифракции таким образом, что изменение угла детектирования происходило вдоль направления LKL' зоны Бриллюэна [9].

Акт рассеяния, приводящий к изменению направления распространения фотонов, может произойти как при входе луча в PhC, так и на дефекте внутри PhC. В силу малой толщины пленки и макроскопи-

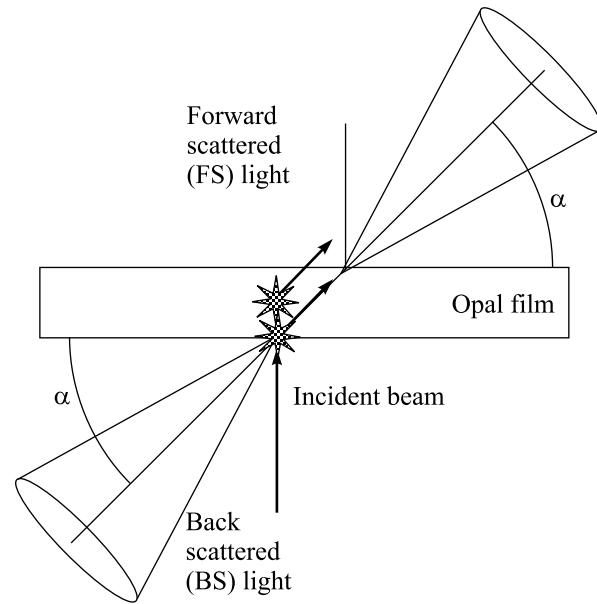


Рис.1. Схема сбора света, рассеянного вперед и назад при перпендикулярном падении луча на поверхность пленки опала. Преломление лучей на границах не показано

ческим способе сбора света не было проведено экспериментального разделения вкладов в детектируемый сигнал от этих двух источников.

Сравнение FS спектров опалов различной степени упорядоченности для углов $\theta = 0^\circ$, $\alpha = 40^\circ$ и спектров пропускания для $\theta = 0^\circ$ и 40° представлено на рис.2. Предполагая, что относительная ширина PBG минимума $\Delta\omega/\omega_{0n}$, где $\hbar\omega_{0n}$ – центральная частота n -й PBG в спектре пропускания, прямо связана с кристаллическостью решетки, можно указать на зависимость спектров рассеяния от упорядоченности. В случае слабоупорядоченной пленки опала типа 1 (рис.2а) (111) PBG-минимум имеет $\Delta\omega/\omega_{01} \approx 0.17$, а его положение слабо зависит от угла. Как оказалось, FS спектр этого образца не имеет особенностей, связанных с PBG. В случае более совершенной решетки опала типа 2 с $\Delta\omega/\omega_{01} \approx 0.095$ (рис.2б), FS-спектр имеет расщепленный для данного угла наблюдения минимум, положение полос которого хорошо совпадает с $\hbar\omega_0$ PBG вдоль направлений падения и детектирования света. Еще лучше сформирован спектр опала типа 3 (рис.2с), имеющего $\Delta\omega/\omega_{01} \approx 0.08$, что близко к теоретической величине $\Delta\omega/\omega_{01} \approx 0.063$ [11]. Полосы в FS-спектре этого опала сравнимы с шириной минимумов спектра пропускания.

Потери на рассеяние вперед в слабоупорядоченных пленках растут с повышением частоты. Напротив, в пленках с меньшей концентрацией дефектов интенсивность FS света не изменяется по спектру

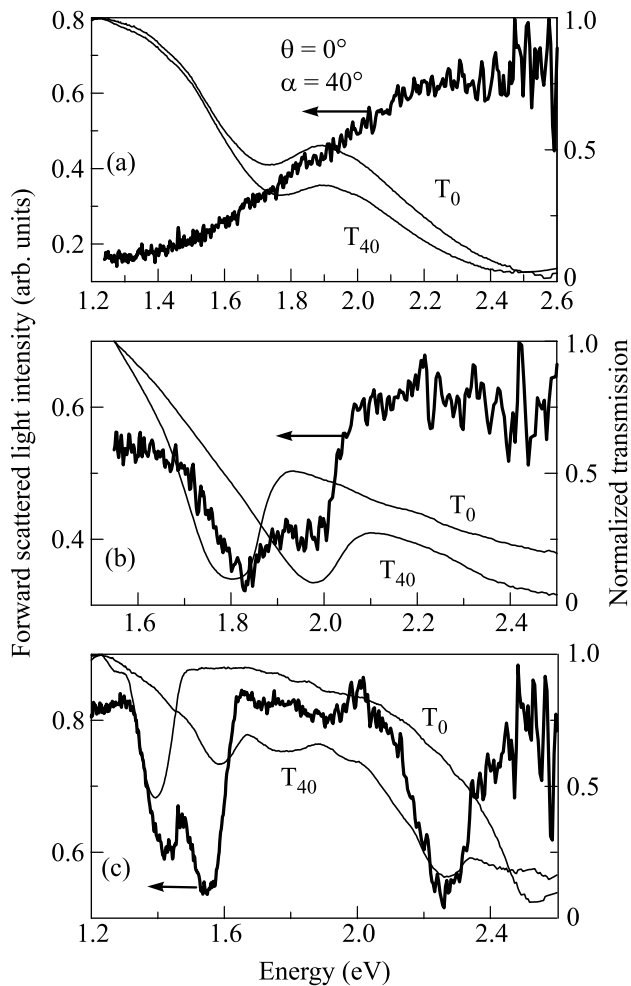


Рис.2. Спектры рассеяния вперед (FS) при $\theta = 0^\circ$, $\alpha = 40^\circ$ для пленок трех типов (утолщенные линии), соответственно панели (a), (b) и (c) в сравнении с их спектрами пропускания (T) для $\theta = 0^\circ$ (T_0) и $\theta = 40^\circ$ (T_{40})

вне PBG, что говорит в пользу преобладания частотнонезависимого механизма рассеяния. Такое поведение исключает из рассмотрения рэлеевское рассеяние, которое принималось в качестве основного механизма потерь в слабоупорядоченных опалах [3].

Свет, прошедший сквозь среду с беспорядком, имеет баллистическую и диффузную компоненты. Если длина свободного пробега превосходит толщину пленки, то даже однократно рассеянный фотон может достичь детектора баллистически. В этом случае можно рассматривать однократно рассеянные фотоны как носители информации о направленной PBG, вместо баллистической компоненты спектра пропускания. Таким образом, спектр FS-света вдоль заданного направления составлен из однократно и многократно рассеянных фотонов. Спектр однократно рас-

сеянных фотонов имеет модуляцию интенсивности в соответствии со спектральным положением PBG [5], а многократно рассеянные фотоны составляют бесструктурный фон. В соответствии с этим различия FS-спектров опалов 1, 2 и 3 типов вызваны маскирующим вкладом диффузной компоненты. В дальнейшем мы рассмотрим только спектры образцов типа 3, поскольку в них диффузная компонента минимальна.

Спектры рассеяния естественно сравнивать со спектрами пропускания опала. Минимумы спектров пропускания в направлении LKL' соответствуют дифракции на плоскостях (111) и $(\bar{1}\bar{1}1)$, а также на плоскостях (220) [12]. Соответствие наблюдаемых спектров пропускания диаграмме оптических мод опала – это предмет отдельного исследования [10]. Зависимость $\hbar\omega_0$ PBG опала от угла наблюдения в спектрах пропускания хорошо описывается в брэгговском приближении. Спектр пропускания при $\theta = 0^\circ$ имеет ярко выраженный минимум с $\hbar\omega_{01} = 1.39$ эВ (рис.1с), соответствующий дифракционному резонансу на плоскостях (111) ГЦК решетки опала или взвешенной суперпозиции щелей между 1 и 4 зонами и 2 и 3 зонами, а также резкий спад при $\hbar\omega > 2.2$ эВ. По мере увеличения угла детектирования (111) минимум смещается в сторону высоких частот, а начиная с угла $\theta \geq 20^\circ$, появляется минимум от дифракции на плоскостях $(\bar{1}\bar{1}1)$ на частоте $\hbar\omega_{02}$, хотя фотонная щель в этом направлении не открывается. Отклонение от брэгговской модели проявляется из-за двухплоскостной дифракции в области углов падения от 40 до 50°, что, с учетом преломления света в опале, соответствует направлению ГК зоны Бриллюэна. Еще один минимум появляется в пропускании, начиная с $\theta = 35^\circ$, около $\hbar\omega_{03} = 2.3$ эВ и остается практически на той же частоте по мере роста угла. Этот минимум может быть отнесен к ослаблению пропускания между 7 и 8 модами опала [13].

Сравним FS- и BS-спектры образцов типа 3. Уменьшение интенсивности FS света происходит для тех направлений и частот, которые обусловлены PBG (рис.2с). Увеличение интенсивности BS света происходит в двух полосах, одна расположена вблизи низкочастотного края PBG вдоль направления падения света и не зависит от угла α , а другая смещается в сторону высоких частот с ростом угла α (рис.3а). Последняя полоса спектра BS комплиментарна дисперсионному минимуму спектра FS (рис.3б), в то время как первая смещена на 0.091 эВ по отношению к ненаправленному минимуму в FS-спектре.

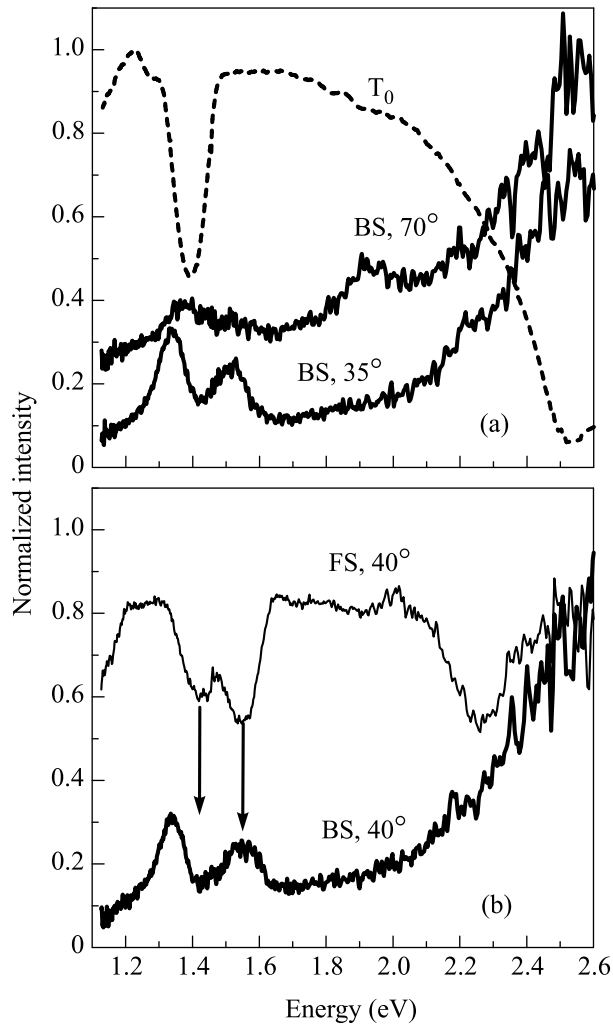


Рис. 3. (а) Спектры рассеяния назад (BS) при $\alpha = 35^\circ$ и 70° (утолщенные линии, кривые сдвинуты по оси ординат) в сравнении со спектром пропускания при $\theta = 0^\circ$ (штриховая кривая). (б) Спектры BS и FS при $\theta = 0^\circ$ и $\alpha = 40^\circ$

Угловая дисперсия особенностей в спектрах FS и BS показана на рис. 4 в сравнении с дисперсией минимумов спектра пропускания. Дисперсионная полоса в FS-спектре хорошо удовлетворяет брэгговской модели, хотя отчетливо выражен ее сдвиг по отношению к соответствующему минимуму спектра пропускания. Наиболее очевидным отличием спектров FS от спектров пропускания является отсутствие минимума от дифракции на плоскостях $(\bar{1}11)$. Имеет ли это различие фундаментальную природу или связано с недостаточной разрешающей способностью спектров рассеяния, пока не ясно. В спектрах BS видна полоса за счет (111) PBG, а также можно построить и часть ветки от $(\bar{1}11)$ PBG, хотя соответствующие ей полосы очень слабы (рис. 2с). Интересно отметить,

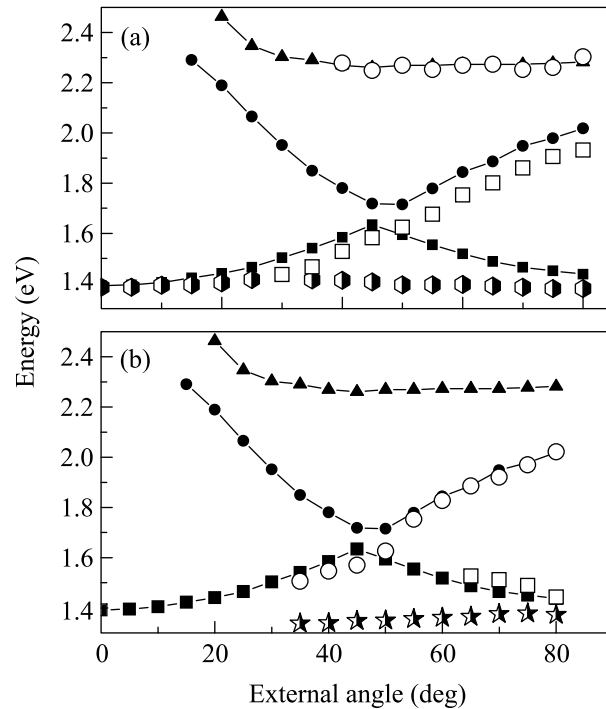


Рис. 4. (а) Угловая дисперсия минимумов в спектре пропускания (черные символы на панелях (а) и (б)): квадраты – PBG между 2 и 3 зонами, круги – между 5 и 6 зонами, треугольники – между 7 и 8 зонами. Минимумы в спектре FS (светлые символы): квадраты – за счет дифракции на плоскостях (111) , круги – на плоскостях (220) . (б) Максимумы в спектре BS (светлые символы): круги – дифракция на плоскостях (111) , квадраты – на плоскостях $(\bar{1}11)$. Полузаполненные символы на обеих панелях соответствуют недисперсионным полосам

что систематического сдвига полосы BS от положения (111) PBG не обнаружено. В FS- и BS-спектрах имеется полосы, слабо зависящие от угла наблюдения (рис. 4а). Обе они соответствуют рассеянию света вдоль направления падения, но дисперсии этих полос не совпадают.

По-видимому, основным механизмом рассеяния света, детектируемого позади пленки опала, является рассеяние на дефектах, в то время как потери на границе воздух–опал проявляются, скорее, в рассеянии назад. Минимумы в спектре FS света – это уменьшение потерь в рассеянном вперед свете за счет влияния PBG опала. Уменьшение рассеяния вперед в минимуме, соответствующем PBG вдоль направления падения света, это следствие дифракционного отражения в направлении $[111]$, центральная частота которого однозначно фиксирована углом падения света. Аналогично, уменьшение интенсивности FS света на частотах (111) PBG вдоль направления детектирова-

ния – это следствие уменьшения числа оптических мод в фотонной щели. Необходимость акта рассеяния для наблюдения обоих минимумов в спектре FS видна из простого соображения: для наблюдения минимума вдоль направления падения луча необходим поток, распространяющийся внутри PhC коллинеарно падающему лучу, а для проявления минимума вдоль направления детектирования необходимо распространение вторичного потока вдоль направления, заданного углом α . Как видно из рис.5а, суммирование рассеянного света по всем углам приводит к

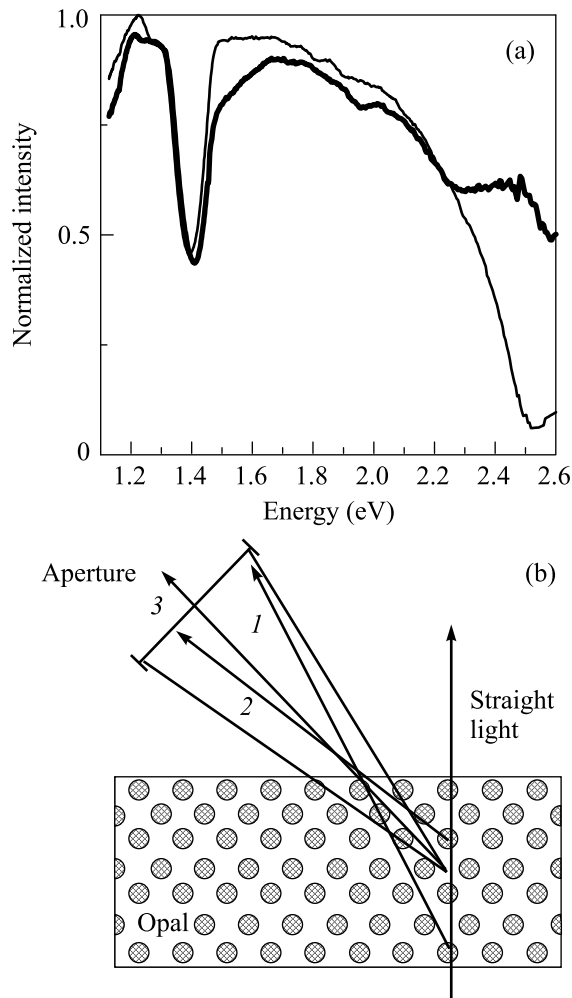


Рис.5. (а) Спектр FS, просуммированный по всем углам α (утолщенная линия) и спектр пропускания при $\theta = 0^\circ$. (б) Схема, поясняющая красный сдвиг дисперсионного минимума в спектрах FS

затягиванию высокочастотного края PBG минимума вдоль направления падения света и отсутствию направленных минимумов. Подобное поведение согласуется с численным моделированием рассеяния в слегка разупорядоченном 2D PhC [14].

Красный сдвиг частоты фотонной щели в FS по отношению к щели в спектре пропускания может быть объяснен как с точки зрения различной кривизны зон PhC выше и ниже частоты PBG [14], так и чисто геометрическими факторами при рассмотрении траекторий фотонов, рассеянных в пленке опала и попадающих в апертуру детектора. Из схемы рис.5б видно, что в детектор попадают лучи, рассеянные на разной глубине. При этом луч 1 имеет меньший угол рассеяния, чем луч 2 и, следовательно, в направлении его распространения PBG сдвинута по частоте меньше, чем в направлении луча 2. Интенсивности рассеянного света складываются с весовым фактором, учитывающим диаграмму направленности рассеяния в направлениях 1 и 2. Поскольку интенсивность изменяется с углом как $I \sim 1/\alpha^{3/2}$, можно сделать вывод об эффективно красном сдвиге наблюдаемого положения PBG по отношению к направлению распространения луча 3, для которого номинально определяется угол детектирования.

Зависящая от угла детектирования полоса в BS-спектре сопряжена с аналогичной полосой в спектре FS, то есть она является полосой дифракционного отражения света вдоль направления детектирования. Источником света в этом случае являются как потери на границе воздух–опал, так и рассеяние на приповерхностных дефектах. Положение данной полосы менее подвержено влиянию геометрии сбора света, поскольку распространение света из глубины опала в данном направлении подавлено.

Недисперсионная полоса в спектрах BS характеризует потери на связывание падающего света с PhC в области края фотонной щели. Следует отметить, что ее максимум лежит на краю PBG вдоль оси [111], так как он совпадает по частоте с максимумом первой производной спектра пропускания при $\theta = 0^\circ$. Можно предположить, что эта полоса BS вызвана изменением пропускания PhC: много ниже частоты PBG пропускание PhC аналогично пропусканию однородной среды, в пределах PBG свет от PhC отражается, а на краю PBG рассеяние значительно возрастает за счет локализации оптических мод. Из двух механизмов усиления рассеяния назад: слабой локализации, являющейся следствием интерференции рассеянных фотонов [15], и сильной локализации на краю PBG [16] предпочтение следует отдать последнему, так как слабая локализация не зависит от частоты и видна в ограниченном диапазоне углов рассеяния относительно нормали к поверхности из-за резкого уменьшения интерференционного вклада по мере роста длины оптического пути. Следует отметить, что недисперсионный минимум FS, во-первых

сдвинут относительно не зависящего от угла максимума BS света, а, во-вторых, они являются проявлением различных процессов распространения света в PhC.

В заключение следует подчеркнуть, что изучение рассеяния света в PhC имеет и практический и фундаментальный интерес, так как оно связано как с оптимизацией потерь света в возможных оптических приборах, так и с исследованием распространения света в PhCs. В настоящей работе проведены обсуждение и классификация структуры спектров света, рассеянного в 3D PhC на основе опалов. Показано, что связанные с углом наблюдения дифракции уменьшают потери на рассеяние вперед, что компенсируется увеличением интенсивности в потоке, рассеянном назад. Напротив, не зависящие от угла особенности спектров потерь некомплементарны друг другу. Не зависящий от угла минимум в спектре FS – это уменьшение интенсивности света, проникающего в PhC в диапазоне частот PBG в направлении падающего луча вследствие дифракционного его отражения. Недисперсионная полоса в спектре BS – это результат замедления скорости переноса потока света к краю PBG. При этом разделить вклады в уменьшение рассеяния вперед за счет локализации на краю фотонной щели и за счет дифракции пока не удалось из-за перекрытия частотных интервалов действия этих механизмов.

Настоящая работа поддержана грантом Российского фонда фундаментальных исследований # 02-02-17865 и программой Немецкого Исследовательского общества (DFG) SPP1113.

1. P. St. J. Russel, T. A. Brick, and F. D. Llooyd-Lucas, in *Confined Electrons and Photons: New Physics and Applications*, Eds. E. Burstein and C. Weisbuch, Plenum Press, 1995, p. 585-633.
2. Y. Xia, B. Gates, and Y. Yin, *Adv. Mater.* **12**, 693 (2000).
3. Yu. A. Vlasov, V. N. Astratov, A. V. Baryshev et al, *Phys. Rev.* **E61**, 5784 (2000).
4. A. F. Koenderink and W. L. Vos, *Phys. Rev. Lett.* **91**, 213902 (2003).
5. S. G. Romanov and C. M. Sotomayor Torres, to be published in *Phys. Rev. E*.
6. V. N. Astratov, A. M. Adawi, S. Fricker et al, *Phys. Rev.* **B66**, 165215 (2002).
7. Y. A. Vlasov, M. A. Kalitievski, V. V. Nikolaev, *Phys. Rev.* **B60**, 1555 (1999).
8. J. Huang, N. Eradat, M. E. Raikh et al, *Phys. Rev. Lett.* **86**, 4815 (2001).
9. J. F. Galisteo-Lopez, E. Palacios-Lidon, and E. Castillo-Martinez, et al, *Phys. Rev.* **B68**, 115109 (2003).
10. S. G. Romanov, D. N. Chigrin, and C. M. Sotomayor Torres, in preparation.
11. A. Reynolds, F. Lo'pez-Tejeira, D. Cassagne et al., *Phys. Rev.* **B60**, 11422 (1999).
12. R. C. Schroden, M. Al-Daous, C. F. Blanford et al., *Chem. Mat.* **14**, 3305 (2002).
13. H. Miguez, V. Kitaev, and G. A. Ozin, *Appl. Phys. Lett.* **84**, 1239 (2004).
14. M. A. Kalitievski, J. Manzanares-Martinez, D. Cassagne et al., *Phys. Rev.* **B66**, 113101 (2002).
15. P. van Albada and A. Lagendijk, *Phys. Rev. Lett.* **55**, 2692 (1985).
16. S. John, *Phys. Rev. Lett.* **58**, 2487 (1987).