

ЭФФЕКТ ФОТОННОЙ ЗАПРЕЩЕННОЙ ЗОНЫ В ОПТИЧЕСКОМ ДИАПАЗОНЕ НА ТВЕРДОТЕЛЬНЫХ SiO_2 КЛАСТЕРНЫХ РЕШЕТКАХ – ОПАЛАХ

*В.Н.Богомолов, Д.А.Курдюков, А.В.Прокофьев, С.М.Самойлович**

*Физико-технический институт им. А.Ф.Иоффе РАН
194021 Санкт-Петербург, Россия*

**Московский государственный университет им. М.В.Ломоносова
117234 Москва, Россия*

Поступила в редакцию 9 февраля 1996 г.

Показано, что синтетические опалы – кубические гранецентрированные решетки кластеров SiO_2 – представляют собой системы, обладающие рядом свойств фотонных кристаллов в области видимого света. Заполняя пустоты в таких решетках различными материалами, можно варьировать степень оптического контраста среды и получать кристаллы как типа решетки шаров, так и ее трехмерной реплики. Показано, что при одинаковом оптическом контрасте и при наличии дополнительной оптической неоднородности шаров решетка шаров обладает меньшей прозрачностью, чем ее реплика на основе однородных сред. В решетке шаров достигнута глубина модуляции показателя преломления 1.266.

PACS: 78.20.-e

В настоящее время наблюдается рост интереса к созданию систем типа фотонных кристаллов благодаря перспективам их возможного практического применения в качестве систем, например, с подавленным спонтанным излучением в области фотонной запрещенной зоны (ФЗЗ) [1]. Однако на пути создания таких систем до сих пор имеется ряд нерешенных проблем. В частности, пока не получены фотонные кристаллы для области видимого света.

Фотонные кристаллы, имеющие ФЗЗ в микроволновом, миллиметровом и субмиллиметровом диапазонах, реализованы на модельных системах [2-4]. Для изучения свойств фотонных кристаллов в субмикронной области (видимый свет) в настоящее время начали исследоваться коллоидные системы из полистироловых сфер при их самоупорядочении в жидкой дисперсионной среде [5]. Использование таких жидких систем существенно упрощает их исследование и, тем более, применение. Твердотельные фотонные кристаллы более удобны для исследования и практического применения. Они дают возможность варьировать как тип структуры, так и контраст показателя преломления n_1/n_2 ("оптический контраст") в широких пределах путем заполнения пустот различными веществами, что практически невозможно в случае коллоидных систем, параметры существования которых жестко фиксированы.

Важным обстоятельством является то, что получение полной ФЗЗ конечной ширины для любых направлений кристалла связано с целым рядом условий, которые удалось выполнить пока только для модельных систем специальной геометрии в микроволновом диапазоне [1]. Для коллоидных систем из полистироловых сфер [5] реализованы лишь кристаллы, аналогичные, согласно терминологии [1], "полуметаллам" (с частично перекрывающимися валентной зоной и зоной проводимости). Для полистироловой коллоидной системы (решетка шаров) малый контраст показателя преломления сфер и жидкости обуслови-

васт и малость расстояний между валентной зоной и зоной проводимости. Для получения кристаллов с хотя бы соприкасающимися зонами (pseudogap [1]) необходим переход к репликам ГЦК решетки элементов с более низкой, чем у шаров, симметрией и с контрастом показателя преломления больше 2 [1]. При учете сказанного выше решение задач получения и исследования систем типа реплик нам представляется более перспективным на твердых системах.

Нами получены монокристаллы синтетических опалов, обладающие оптически совершенной структурой, и показано, что такие кристаллы представляют собой перспективный объект для исследования проблемы создания твердотельных фотонных кристаллов.

Опалы – решетки плотноупакованных сфер SiO_2 с подрешетками пустот между ними объемом до 25%, доступных для заполнения другими веществами (кластерные решетки). Сферы могут иметь субструктуру (внутренние пустоты). Пустоты внутри сфер могут быть как открытыми, так и закрытыми в зависимости от технологии приготовления опалов. В соответствии с этим эффективный показатель преломления SiO_2 сфер может меняться в пределах от $n = 1.46$ (плавленый кварц) и до более низких значений. Такая жесткая, термически и химически устойчивая система позволяет вводить в пустоты между сферами многие материалы как в жидком, так и в твердом состоянии, что открывает возможность создания систем типа трехмерных реплик и существенного увеличения оптического контраста – параметра, имеющего важное значение для свойств таких кристаллов. Возможность плавного изменения оптического контраста позволяет изучать поведение ФЗЗ в зависимости от степени контраста, а также эффекты рассеяния света фоновым кристаллом, которое в области видимого света становится существенным из-за резкого увеличения рассеяния при уменьшении длины волны. Опалы как системы с рядом свойств, присущих фотонным кристаллам, позволяют также изучать поведение запрещенной зоны для двух типов решеток – решетки шаров (ГЦК) и ее трехмерной реплики (решетки пустот, заполненных оптически однородной средой с большим показателем преломления, чем у сфер).

Технология приготовления позволяет варьировать параметры опалов – изменять размер сфер, их пористость и, следовательно, показатель преломления. В данной работе были использованы два образца опала с различными размерами сфер, степенью их перекрывания и средними показателями преломления.

Образец опала №1 имел, согласно нашим данным по жидкостной порометрии, следующие параметры: объемная доля закрытых пустот внутри сфер – 26%, что уменьшает их средний показатель преломления до 1.342, объемная доля пустот, доступных для заполнения жидкостью (определяющая объем реплики), – около 25%. Уменьшение показателя преломления сфер по сравнению с показателем преломления SiO_2 позволило исследовать на этом образце плавный переход от решетки шаров к ее реплике. Изменение контраста достигалось пропиткой опала водными растворами глицерина различной концентрации (до $n = 1.474$) и водой при повышенных температурах (до $n = 1.30$). В данной работе в связи с близостью контраста показателя преломления к 1, использовалась величина относительного оптического контраста $\alpha = (1 - n_1/n_2)100\%$, где n_1 – эффективный показатель преломления сфер, n_2 – показатель преломления пустот, заполненных жидкостью или воздухом.

На рис.1 представлены спектры пропускания в логарифмическом масштабе опалов с различным оптическим контрастом вдоль направления $\langle 111 \rangle$.

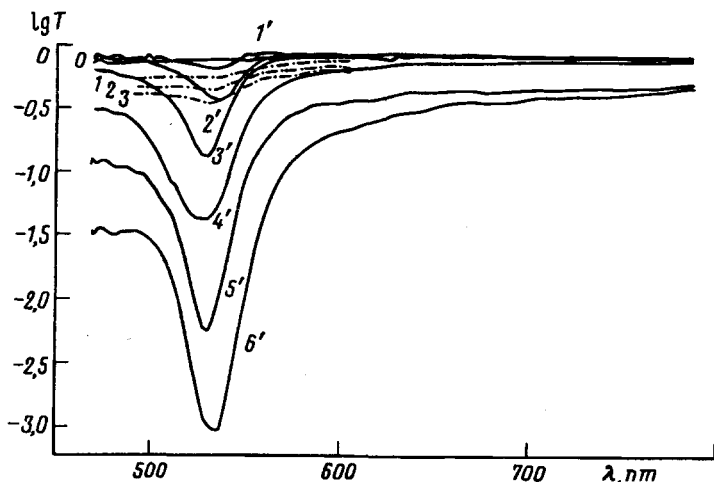


Рис.1. Спектры пропускания в логарифмическом масштабе образца опала №1, пустоты которого заполнены жидкостями с различными показателями преломления. Соответствующие относительные оптические контрасты α для кривых: 0 – 0; 1 – 3.0; 2 – 1.7; 3 – 0.7; 1' – 1.2; 2' – 2.1; 3' – 3.1; 4' – 5.3; 5' – 7.5; 6' – 9.8. Штриховые линии относятся к решетке сфер, сплошные – к решетке реплик

Ориентация кристалла определялась, исходя из направления роста и картины отражения света от поверхности. Кривые имеют минимумы пропускания света в интервале 530–540 нм (ФЗЗ). Небольшое смещение минимумов по длине волны соответствует изменению эффективного показателя преломления среды при изменении контраста. Исходя из закона брэгговского отражения, расстояние между плоскостями (111) для данного образца равно 197 нм, что соответствует постоянной решетки 341 нм и эффективному диаметру сфер 240 нм.

Штриховые линии (кривые 1–3) относятся к решетке шаров, кривые 1–6 – к решетке пустот, заполненных жидкостью (реплике), кривая 0 (с отсутствием провала в области ФЗЗ) отнесена к среде с нулевым относительным оптическим контрастом ($\alpha = 0$). При этом показатель преломления жидкости в пустотах 1.344 был близок к показателю преломления сфер 1.342. Видно, что при увеличении оптического контраста в ту или другую сторону относительно $\alpha = 0$ пропускание в области ФЗЗ резко уменьшается, достигая для контраста $\alpha = 10\%$ ослабления пропускания (глубины провала) почти двух порядков. На рис.2 изображены зависимости глубины провала $\Delta \lg T$ (кривая 1) в области ФЗЗ и пропускания T при $\lambda = 630$ нм (кривая 2, определяемая эффектом рассеяния света на этой длине волны) от относительного оптического контраста α . В точке нулевого контраста отсутствует брэгговское отражение и глубина провала становится равной нулю. Эта точка является границей между решеткой шаров и ее репликой. На рис.2 эта граница изображена вертикальной пунктирной линией. Слева от нее кривые пропускания относятся к решетке шаров и нанесены штриховой линией. Пропускание света вне области ФЗЗ для длины волны 630 нм на рис.2 (кривая 2) достигает максимума не при нулевом контрасте, а при $\alpha = 2\%$. При нулевом контрасте можно было бы

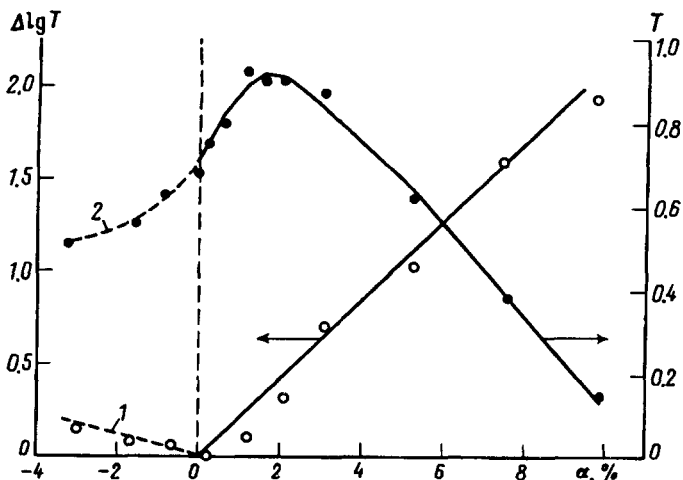


Рис.2. Зависимость от знака и величины относительного оптического контраста α глубина провала в области ФЗЗ $\Delta \lg T$ (кривая 1) и пропускания T на длине волны 630 нм (кривая 2) для образца №1. Вертикальная штриховая линия разделяет решетку шаров (штрихи) от решетки-реплики (сплошные линии)

ожидать максимального пропускания, но в действительности пропускание при $\alpha = 0$ меньше, что, по-видимому, связано с рассеянием света на пузырьках воздуха внутри SiO_2 сфер. Как видно из рис.2, решетка-реплика обладает большей прозрачностью, чем решетка сфер при одинаковых абсолютных величинах относительного оптического контраста. Очевидно, что распространение света в оптически неоднородной среде, когда масштаб неоднородности сравним с длиной волны, должно зависеть от геометрии среды, определяемой знаком относительного оптического контраста (решетка сфер или ее реплика) и радиусом кривизны, разделяющей поверхности.

Нами был исследован образец другого типа (образец №2), у которого структура соответствует другому среднему показателю преломления сфер SiO_2 , равному 1.266. Опал имел следующие параметры: объемная доля пустот внутри сфер - 38%, что дает эффективный показатель преломления сфер 1.266, объемная доля пустот, доступных для жидкости (соответствующая объему решетки-реплики), - 11%. Из сравнения показателей преломления различных жидкостей и показателя преломления сфер в данном образце (1.266) следует, что в данном случае мы не можем получить оптические характеристики системы в области решетки шаров с помощью заполнения пустот жидкостями. Для этого требовались бы жидкости с показателем преломления, меньшим 1.266. Однако нами было выполнено измерение образцов с водой при температуре около 75°C , при которой показатель преломления воды равен 1.30 ($\alpha = 5\%$, см. рис.2). Простой возможностью получить решетку шаров оставалось заполнение пустот воздухом ($n = 1$, $\alpha = -26.6\%$). Пропускание образца с таким контрастом также отмечено на вставке рис.3. Из-за отсутствия промежуточных точек пропускание в области отрицательных α изображено штриховой линией.

На рис.3 показаны логарифмические спектры пропускания пластинки опала толщиной 0.145 мм с различными наполнителями пустот при 20°C : водой

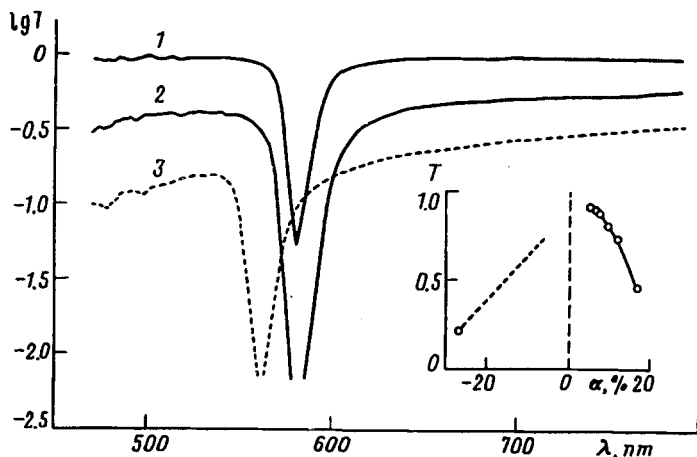


Рис.3. Спектры пропускания в логарифмическом масштабе образца опала №2, пустоты которого заполнены жидкостями с различными показателями преломления и имеющего, соответственно, относительные оптические контрасты α для кривых: 1 - 5.0; 2 - 16.4; 3 - 26.6. Штриховые линии относятся к решетке сфер, сплошные - к решетке реплик. На вставке - зависимость пропускания T при 630 нм от знака и величины относительного оптического контраста α

($n = 1.333$), глицерином ($n = 1.473$) и воздухом ($n = 1$). Кристалл имел ориентацию поверхности параллельно плоскости (111). Спектр имеет ФЗЗ в области 560–580 нм. Расстояние между плоскостями (111) равно 219 нм, что соответствует постоянной решетки 378 нм при среднем диаметре сфер 266 нм. Как в случае образца, заполненного водой, так и глицерином, мы имеем дело с решеткой пустот (репликой), поскольку показатель преломления жидкостей выше, чем показатель преломления сфер SiO_2 , которые вследствие закрытости внутренних пор содержат воздух. Пример решетки шаров представляет собой опал, подрешетка пустот которого заполнена воздухом (точка на штриховой кривой на вставке к рис.3). Разрывы на кривых пропускания на рис.3 в случае заполнения пустот глицерином и воздухом (кривые 2 и 3) связаны с ограниченной возможностью измерения малых интенсивностей проходящего света в области ФЗЗ.

На вставке для оценки рассеяния света образцом №2 вне ФЗЗ приведена зависимость оптического пропускания при $\lambda = 630$ нм от относительного контраста показателя преломления. Как видно, при уменьшении контраста рассеяние уменьшается - растет пропускание. Из вставки и рис.2 (кривая 2) наглядно видно отличие образцов №1 и №2. В случае образца №2 использование жидкостей с показателем преломления больше 1.266 не дало нам возможности изучать плавный переход от решетки сфер к решетке типа реплики. Точка нулевого контраста для данного образца может быть оценена с помощью рис.3 по величине глубины провала для кривой 1 (опал с водой). Глубина провала для этого образца - около 1.12 порядка. Это соответствует оптическому контрасту около 5% по данным рис.2 (кривая 1) для образца №1. Точка нулевого контраста для образца №2 отмечена на рис.3 вертикальной штриховой линией. Ее положение соответствует показателю преломления сфер 1.266.

Слева от этой линии предполагаемая кривая относится к решетке шаров и, как и на всех рисунках, изображается штрихом.

Системы на основе опалов представляют интерес в связи с тем, что могут быть созданы варианты решеток-реплик на основе ГЦК элементов, геометрия которых, по-видимому, может быть изменена по сравнению со сферической технологическими методами. Вместе с возможностью заполнения пустот (решетка-реплика) материалами с большими показателями преломления (дающими n_1/n_2 около 2) это, согласно [1], обеспечивает образование сквозной ФЗЗ. Одним из таких наполнителей мог бы быть материал типа TiO_2 с $n = 2.6$, что при показателе преломления сфер в опале, полученном в данной работе, 1.266 может дать величину контраста показателя преломления n_1/n_2 около 2.1. Однако исследование и систем с псевдо-ФЗЗ и возможностей их практического использования, по нашему мнению, представляет также определенный интерес.

Неоднородные, но с правильной структурой, кластерные решетки представляют собой новые оптические среды. Такие структуры, по-видимому, должны вести себя аналогично и по отношению к распространению звуковых волн, когда длина волны звука близка к масштабу структуры.

Работа была частично поддержана Программой ФТН (грант 1-006).

-
1. E.Yablonovitch, J.Modern Optics. 41, 173 (1994).
 2. E.Yablonovitch, T.J.Gmitter, and K.M.Leung, Phys. Rev. Lett. 67, 2295 (1991).
 3. E.Özbay, E.Michel, G.Tuttel et al., Appl. Phys. Lett. 64, 2059 (1994).
 4. E.Özbay, E.Michel, G.Tuttel et al., Opt. Lett. 19, 1155 (1994).
 5. İ.İ.Tarhan, M.P.Zinkin, and G.H.Watson, Opt. Lett. 20, 1571 (1995).