

*А. Г. Баженова, Ю. Н. Лазарева, А. Ю. Меньшикова,
А. В. Селькин, В. Г. Федотов, Н. Н. Шевченко, А. В. Якиманский*

**КРИСТАЛЛООПТИКА ОПАЛОПОДОБНЫХ ФОТОННЫХ КРИСТАЛЛОВ:
ЭФФЕКТЫ МНОГОВОЛНОВОЙ ДИФРАКЦИИ И ФОРМИРОВАНИЕ
СПЕКТРОВ БРЭГГОВСКОГО ОТРАЖЕНИЯ СВЕТА**

[Работа выполнена при поддержке ФЦНТП (госконтракт 02.513.12.3025), Научной программы Президиума РАН «Органические и гибридные наноструктурированные материалы для фотоники» и Научной программы СПбНЦ РАН на 2008 г.]

Исследованы особенности распространения, отражения и преломления электромагнитных волн в пространственно ограниченных трёхмерных фотонных кристаллах (ФК), обладающих высоким диэлектрическим контрастом. При разных углах падения θ измерены спектры отражения света от опалоподобного ФК, изготовленного из сфер полистирола, и проанализированы причины возникновения в контуре брэгговского отражения дублетной структуры, которая наблюдается в довольно узком интервале углов $50^\circ < \theta < 64^\circ$. Показано, что такая структура обусловлена многоволновой брэгговской дифракцией света в трёхмерном ФК и формируется за счет возбуждения дополнительных мод, связанных с существованием наклонных по отношению к поверхности ФК кристаллических плоскостей.

Ключевые слова: фотонные кристаллы, дифракция, брэгговское отражение.

*A. Bazhenova, Yu. Lazareva, A. Menshikova,
A. Selkin, V. Fedotov, N. Shevchenko, A. Yakimansky*

**CRYSTAL OPTICS OF OPAL-LIKE PHOTONIC CRYSTALS:
MULTIPLE DIFFRACTION EFFECTS
AND BRAGG REFLECTION SPECTRA FORMATION**

Propagation, reflection and refraction of electromagnetic waves in spatially finite 3D photonic crystals (PhC) of high dielectric contrast are studied. The angle-of-incidence dependent light reflectance spectra of an opal-like PhC made up of polystyrene spheres has been measured and the reasons for the doublet structure appearance within the Bragg reflectance contour have been analyzed, the doublet structure was observed in a quite narrow range of incidence angles $50^\circ < \theta < 64^\circ$. The structure is shown to be due to the multiple Bragg diffraction of light in a 3D PhC and shaped as a result of the additional mode excitation induced by the crystal planes inclined to the lateral ones.

Keywords: photonic crystals, diffraction, Bragg reflection.

Фотонные кристаллы (ФК) представляют собой пространственно-периодические твердотельные структуры, диэлектрическая проницаемость которых меняется с периодом, сравнимым с длиной волны света. Взаимодействие электромагнитного поля с такими структурами сопровождается рядом ярких дифракционных оптических явлений, которые могут быть сопоставлены с сильной модификацией энергетического спектра собственных электромагнитных мод структуры [4, с. 537; 7, с. 1]. Повышенный интерес к таким системам связан

с возможностью эффективного управления распространением света внутри ФК [2, с. 1; 3, с. 190; 6, с. 4] и с новыми перспективными приложениями в лазерной технике и оптоэлектронике, использующими наноструктурированные материалы [5, с. 1686]. С чисто научной точки зрения, ФК являются новыми нетривиальными объектами, позволяющими проводить интересные исследования, относящиеся к фундаментальным проблемам взаимодействия света с конденсированной средой [1, с. 2010].

Физика ФК в значительной мере базируется на известных уравнениях электродинамики, и рецепты решения практических задач, относящихся к таким системам, в принципе, известны [7, с. 13; 9, с. 257]. Однако, как правило, такие рецепты носят общий характер, подразумевают громоздкие численные расчеты и не обеспечивают ясное понимание механизмов взаимодействия света с пространственно ограниченными ФК-структурами. На сегодняшний день не разработаны (или не вполне исследованы) достаточно простые модели, позволяющие проводить расчеты и анализ реальных оптических спектров (отражения, пропускания, дифракции и люминесценции), по существу, содержащих в себе главную информацию о ФК. В частности, остаются не вполне выясненными динамические аспекты сильной модификации спектра брэгговского отражения света в условиях многоволновой дифракции, т. е. при резонансном рассеянии света одновременно на нескольких системах пересекающихся узловых плоскостей [1, с. 2011; 10, с. 9872]. Дальнейшее развитие физики ФК, а также областей их практического применения сильно зависит от эффективности теоретического описания фундаментальных оптических явлений, связанных с такими кристаллами, и от постановки надежных экспериментов с использованием совершенных образцов, структура и состав которых могут контролируемым образом изменяться.

В настоящей работе исследованы особенности распространения и преломления электромагнитных волн в пространственно ограниченных опалоподобных ФК, обладающих высоким диэлектрическим контрастом, и рассмотрены механизмы формирования спектров брэгговского отражения света от таких ФК. Основное внимание уделено изучению спектров брэгговского отражения света от латеральной поверхности роста (111) в условиях, когда спектры формируются в результате резонансной дифракции света одновременно на двух системах кристаллических плоскостей (111) и $(11\bar{1})$. При этом обсуждаются резонансные явления, обусловленные модификацией структуры фотонной запрещенной зоны (ФЗЗ) с учетом эффектов многоволновой брэгговской дифракции (МБД).

В качестве модельных экспериментальных объектов исследования использованы плёнки опалоподобных ФК, сформированные из монодисперсных частиц полистирола диаметром ~ 300 нм. Характерная толщина пленок составляла 18-20 монослоёв. Измерения спектров проводились при разных углах падения для s-состояний поляризации внешнего света.

На рис. 1 изображены экспериментальные спектры брэгговского отражения, полученные при трёх углах падения света $\theta = 37^\circ$, 54° и 63° . Общий характер изменения спектрального положения брэгговского пика отражения следует закону Брэгга: с увеличением θ пик смещается в коротковолновую сторону. Однако обращает на себя внимание тот факт, что в некотором интервале изменения угла падения ($\sim 50^\circ$ – 60°) пик отражения становится дублетным (рис. 1,

спектр при $\theta = 54^\circ$). При этом, как показывают детальные измерения, такая дублетная структура формируется за счет провала, который, в отличие от брэгговского пика, смещается с увеличением θ в длинноволновую сторону. Возникновение дублетной структуры брэгговского контура отражения указывает на трёхмерный характер периодичности исследуемого ФК (происходит одновременная дифракция света на системах взаимно непараллельных кристаллических плоскостей).

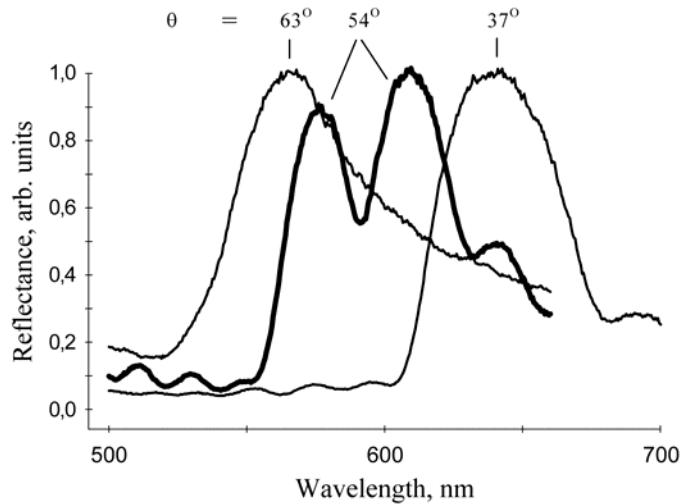


Рис. 1. Экспериментальные спектры брэгговского отражения s-поляризованного света от опалоподобного фотонного кристалла (изготовленного из полистирола) с отражающей поверхностью (111) при разных углах θ падения света на кристалл

Основные наблюдаемые дифракционные явления, связанные с трёхмерной периодичностью ФК, могут быть описаны (не только качественно, но и с достаточной точностью количественно) в рамках формализма усеченных блоховских состояний [8, с. 111]. Такой формализм подразумевает разложение блоховской амплитуды по минимальному количеству векторов \mathbf{G}_{hkl} обратной решётки, характеризующихся индексами (h, k, l) кристаллических плоскостей гранцентрированной кубической (г. ц. к.) решётки и определяющих основной (резонансный) вклад в рассеяние света. В актуальном для наших расчетов случае в качестве таких векторов следует использовать векторы \mathbf{G}_{000} , \mathbf{G}_{111} и $\mathbf{G}_{11\bar{1}}$. Численные расчеты спектров выполнены с использованием характерных значений структурных и диэлектрических параметров опалоподобных ФК [3, с. 94], изготовленных из сферообразных частиц полистирола.

Рассчитанные спектры брэгговского отражения света (s-поляризация) от полуограниченного опалоподобного ФК с отражающей (латеральной) поверхностью (111) для трех углов падения θ представлены на рис. 2 [левая колонка, $\theta = 51^\circ$ (a), $\theta = 57^\circ$ (b) и $\theta = 63^\circ$ (c)]. Спектры рассчитаны для случая, когда плоскость падения перпендикулярна кристаллической плоскости $(11\bar{1})$. Эти спектры сопоставляются с результатами расчета энергетических спектров собственных электромагнитных мод для тех же значений углов θ [правая колонка, (a'), (b') и (c')]. По вертикальной оси отложено безразмерное отношение a_{00}/λ

ближайшего расстояния a_{00} между шарами ФК-структуры к длине волны λ света в вакууме. Вдоль горизонтальной оси правой колонки отложено отношение $\text{Re } K_Z / G_{111}$, где $\text{Re } K_Z$ — вещественная часть проекции K_Z волнового вектора на нормаль к поверхности (координатная ось Z), а G_{111} — минимальная длина вектора обратной решётки в направлении $[111]$ ($G_{111} = 2\pi\sqrt{3/2}a_{00}$).

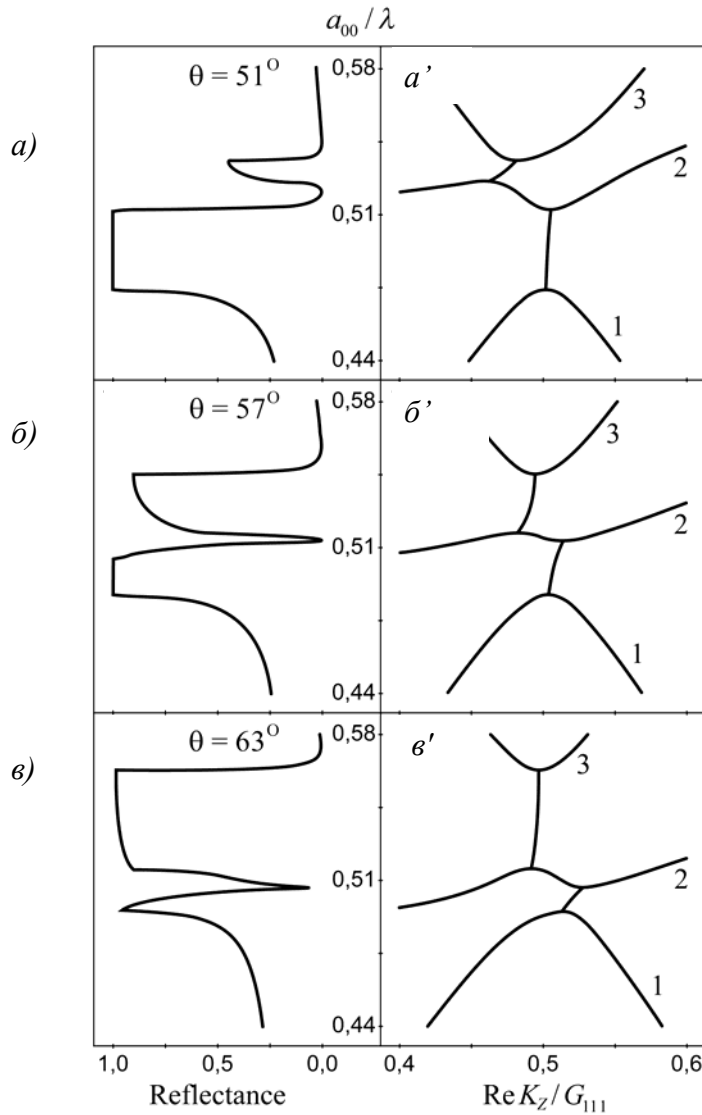


Рис. 2. Рассчитанные спектры брэгговского отражения света (слева) и соответствующие им дисперсионные зависимости (справа) собственных электромагнитных мод полуограниченного фотонного кристалла с отражающей поверхностью (111) для различных углов падения θ с учётом одновременной дифракции на двух системах кристаллических плоскостей (111) и $(11\bar{1})$. a_{00} — расстояние между ближайшими сферическими частицами образца, λ — длина волны света в вакууме, $\text{Re } K_Z$ — проекция вещественной части волнового вектора моды на нормаль к поверхности, G_{111} — длина вектора обратной решётки в направлении $[111]$ (ось Z)

Теоретические спектры рис. 2 соответствуют случаю идеальной полуограниченной периодической структуры, когда поглощением и диффузным рассея-

нием света в рассматриваемой системе можно пренебречь. Диссипативные каналы отвода энергии и дополнительное упругое рассеяние электромагнитного поля приводят к сглаживанию резких спектральных особенностей и к уменьшению максимальных значений коэффициента отражения. В количественных расчетах такие процессы можно учесть феноменологически путем введения мнимых добавок к диэлектрической проницаемости материала ФК-структуры [8, с. 111].

Рассчитанные кривые коэффициента отражения демонстрируют яркий эффект, обусловленный многоволновым характером дифракции, а именно — возникновение провала в спектре брэгговского отражения в относительно узком интервале углов падения света. Как видно из рис. 2, провал смещается в длинноволновую сторону с увеличением θ , в то время как в целом полоса брэгговского отражения сдвигается в коротковолновую сторону. Этот факт полностью коррелирует с результатами нашего эксперимента.

Физический смысл обсуждаемого явления становится ясным в результате сопоставления спектров отражения [панели (а), (б), (в)] с соответствующими энергетическими спектрами собственных состояний электромагнитного поля в полуграниченном ФК (панели (а'), (б'), (в')). Из рис. 2 хорошо видно, что провал в контуре отражения возникает в той области частот, где возбуждаются дополнительные моды (кривые 2), связанные с вкладом в брэгговскую дифракцию света кристаллических плоскостей $(11\bar{1})$, наклонных по отношению к латеральной поверхности ФК.

Исключение в расчетах наклонных кристаллических плоскостей приводит к исчезновению спектральных провалов в отражении. Тогда контур отражения формируется за счет мод типа 1 и 3, представляя собой полосу со 100% плато в максимуме, которое занимает спектральный интервал, соответствующий ширине ФЗЗ обычной одномерной брэгговской структуры.

Возбуждение в трёхмерной ФК структуре дополнительных мод, попадающих в основную ФЗЗ между дисперсионными ветвями 1 и 3, означает, что в пределах ФЗЗ осуществляется перенос энергии в глубь ФК и возникает дополнительная дифракция света в направлении, отличные от тех, которые определяются стандартным законом отражения—преломления (сохранением тангенциальной составляющей волновых векторов волн, участвующих в рассеянии). В процессе формирования отраженной световой волны в пределах ФЗЗ часть падающего потока энергии проходит через границу кристалла, тем самым ослабляя отраженный поток. В результате коэффициент отражения становится меньше единицы, что проявляется в виде спектрального провала в контуре отражения на тех частотах, где наиболее эффективно возбуждаются моды типа 2.

Спектральное положение $\lambda_{(\min)}$ провала в рассчитанной (см. рис. 2) полосе брэгговского отражения для идеальной г. ц. к. решётки можно оценить [8, с. 112] в приближении слабой пространственной модуляции диэлектрической проницаемости ФК (приближение “пустой” решётки):

$$\lambda_{(\min)} = a_{00} \sqrt{2/3} \left(\sqrt{2} \sin \theta + \sqrt{\varepsilon_0 - \sin^2 \theta} \right), \quad (1)$$

где $\varepsilon_0 = \varepsilon_a f + \varepsilon_b(1 - f)$ — средняя диэлектрическая проницаемость ФК, состоящего из материала сфер с диэлектрической проницаемостью ε_a (для полистирола $\varepsilon_a = 2,522$) и материала «пустот» ε_b (для вакуума $\varepsilon_b = 1$), а $f = \pi / (3\sqrt{2}) \approx 0,74$ — коэффициент объемного заполнения ФК структуры касающимися сферами. Фактически в таком же приближении получается и формула Брэгга для положения $\lambda_{(\max)}$ пика отражения:

$$\lambda_{(\max)} = a_{00} \sqrt{8/3} \left(\sqrt{\varepsilon_0 - \sin^2 \theta} \right). \quad (2)$$

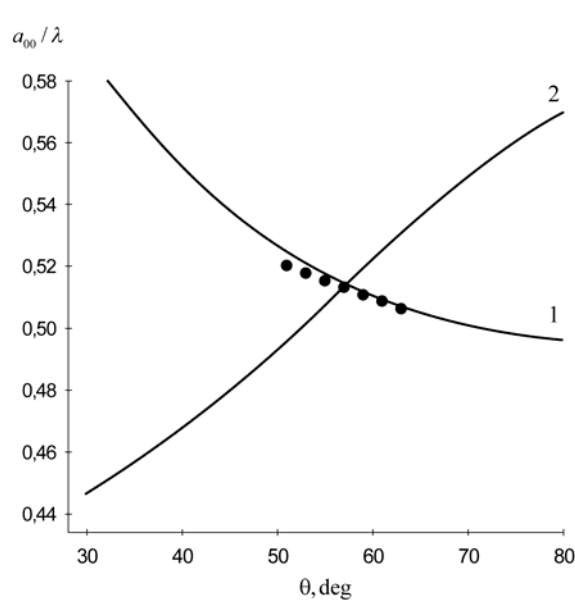


Рис. 3. Спектральные положения провалов (кривая 1, символы в виде кружков) и пиков (кривая 2) брэгговского отражения в зависимости от угла θ падения света: 1 — расчёт на основе анализа дисперсионных кривых собственных мод, порождаемых наклонными плоскостями $(11\bar{1})$, 2 — согласно формуле Брэгга (дифракция на плоскостях (111)), символы — из рассчитанных спектров отражения

На рис. 3 сплошными кривыми показаны рассчитанные с использованием формул (1) и (2) зависимости от θ безразмерных отношений $a_{00}/\lambda_{(\min)}$ (кривая 1) и $a_{00}/\lambda_{(\max)}$ (кривая 2). На этом же рисунке точками представлена соответствующая кривой 1 зависимость спектральных положений провалов, взятых из количественных расчетов теоретических спектров брэгговского отражения типа тех, что приведены на левой колонке рис. 2. Как видим, точки достаточно близко расположены к сплошной кривой, построенной по формуле (1). Учитывая реальную погрешность измерений углов и провалов в эксперименте (особенно, когда за счет несовершенств ФК-структуры спектральные особенности не так ярко выражены, как на рис. 2) можно утверждать, что предложенный на основании формулы (1) способ аппроксимации экспериментальных провалов в контурах брэгговского отражения света имеет важное практическое значение для диагностики и характеристики исследуемых ФК.

Особую роль играет точка пересечения кривых I и 2 с координатами $a_{00}/\lambda_* = 3/(4\sqrt{\epsilon_0})$ и $\theta_* = \arcsin \sqrt{\epsilon_0/3}$, связанными соотношением

$$(a_{00}/\lambda_*) \sin \theta_* = \sqrt{3}/4. \quad (3)$$

Эта точка легко находится в эксперименте путем построения угловых зависимостей пика брэгговского отражения в р-поляризации света и провала в полосе многоволновой дифракции [1, с. 2012]. Она примечательна тем, что представляет собой некий структурный инвариант ФК: если соотношение (3) не выполняется, то можно говорить о нарушении кубической симметрии опалоподобного ФК.

В связи с определением положений провалов из спектров отражения (точки на кривой I , рис. 3), следует заметить, что предложенная процедура аппроксимации достаточно надёжна лишь в той области углов падения, где провал в контуре отражения находится в пределах основной ФЗЗ, формируемой плоскостями (111). За пределами основной ФЗЗ спектральная особенность, связанная с дифракцией света на плоскостях $(11\bar{1})$, проявляется в виде пика, интенсивность которого ослабевает по мере удаления угла θ от значения θ_* . Так, провал в спектре отражения на рис. 2, a уже не носит резонансный характер, а формируется как область между двумя максимумами: основным — от дифракции на плоскостях (111) и дополнительным — от дифракции на $(11\bar{1})$. При этом теоретическая зависимость I [формула (1)] в большей степени соответствует спектральному положению дополнительного пика, а не провала.

З а к л ю ч е н и е . Таким образом, в результате сопоставления теоретических контуров брэгговского отражения света с энергетическим спектром собственных мод предложен физически ясный механизм формирования сложной структуры спектра МБД. А именно — наблюдаемая в эксперименте при некоторых углах падения света дублетная структура полос отражения связана с появлением внутри ФЗЗ разрешённых собственных состояний электромагнитного поля, индуцируемых дифракцией света на кристаллических плоскостях с индексами, отличными от (111). Дублетная структура в спектрах возникает, когда одновременно выполняются условия брэгговского резонанса как для системы латеральных плоскостей (111), так и для системы наклонных плоскостей $(11\bar{1})$, т. е. когда реализуются условия МБД. Механизм формирования МБД света от ФК становится ясным из сопоставления модельных теоретических спектров брэгговского отражения с соответствующими зависимостями частот собственных электромагнитных мод ФК от нормальной составляющей K_z волнового вектора \mathbf{K} .

Брэгговская дифракция света на наклонных плоскостях приводит к сильной модификации энергетического спектра электромагнитного поля в пределах ФЗЗ. Поэтому в спектре коэффициента отражения и возникает специфический провал (дублетная структура). С другой стороны, из-за существования отражающей поверхности ФК нарушаются привычные условия дифракции Брэгга, при которых мнимая часть волнового вектора эванесцентной моды должна быть

коллинеарна вектору $\mathbf{G}_{11\bar{1}}$. В результате коэффициент отражения оказывается меньше единицы в области ФЗЗ даже для идеальной ограниченной поверхностью ФК структуры. В отсутствие дифракции на наклонных плоскостях свет полностью (100%) отражается во всей области ФЗЗ.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Баженова А. Г., Селькин А. В., Меньшикова А. Ю., Шевченко Н. Н. Поляризационное подавление брэгговских рефлексов при отражении света от фотонных кристаллов // Физика твёрдого тела. 2007. Т. 49. Вып. 11. С. 2010–2021.
2. Baryshev A. V., Khanikaev A. B., Inoue M., Lim P. B., Sel'kin A. V., Yushin G., Limonov M. F. Resonant behavior and selective switching of stop bands in three-dimensional photonic crystals with inhomogeneous components // Physical Review Letters. 2007. V. 99. P. 063906-1-063906-4.
3. Joannopoulos J. D., Johnson S. G., Winn J. N., Meade R. D. Photonic crystals. Molding the flow of light (2nd edition). Princeton: Princeton University Press, 2008. 288 p.
4. John S. Localization of light in disordered and periodic dielectrics // NATO ASI Series B. 1995. V. 340. P. 523–584.
5. Lopez C. Material aspects of photonic crystals // Advanced Materials. 2003. V. 15. №. 20. P. 1679–1704.
6. Mazurenko D. A., Kerst R., Dijkhuis J. I., Akimov A. V., Golubev V. G., Kurdyukov D. A., Pevtsov A. B., Sel'kin A. V. Ultrafast optical switching in three-dimensional photonic crystals // Physical Review Letters. 2003. V. 91. №. 21. P. 213903-1-213903-4.
7. Sakoda K. Optical properties of photonic crystals // Springer series in optical sciences. V. 80. Berlin: Springer, 2001. 253 p.
8. Sel'kin A. V. Structural characterization of photonic crystals by Bragg reflection spectroscopy // Proceedings of 12th International Symposium «Nanostructures: Physics and Technology». 2004.
9. Taflove A., Hagness S. C. Computational electrodynamics: The finite-difference time-domain method (2nd edition). London: Artech House, 2000. 852 p.
10. Vos W. L., Van Driel H. M. Multiple Bragg wave coupling in photonic band-gap crystals // Physical Review B. 2000. V. 62. №. 15. P. 9872–9875.

REFERENCES

1. Bazhenova A. G., Sel'kin A. V., Men'shikova A. JU., Shevchenko N. N. Poljarizacionnoe podavlenie brjeggovskih reflektsov pri otrazhenii sveta ot fotonnykh kristallov // Fizika tvjordogo tela. 2007. T. 49. Vyp. 11. S. 2010–2021.
2. Baryshev A. V., Khanikaev A. B., Inoue M., Lim P. B., Sel'kin A. V., Yushin G., Limonov M. F. Resonant behavior and selective switching of stop bands in three-dimensional photonic crystals with inhomogeneous components // Physical Review Letters. 2007. V. 99. P. 063906-1-063906-4.
3. Joannopoulos J. D., Johnson S. G., Winn J. N., Meade R. D. Photonic crystals. Molding the flow of light (2nd edition). Princeton: Princeton University Press, 2008. 288 p.
4. John S. Localization of light in disordered and periodic dielectrics // NATO ASI Series B. 1995. V. 340. P. 523–584.
5. Lopez C. Material aspects of photonic crystals // Advanced Materials. 2003. V. 15. №. 20. P. 1679–1704.
6. Mazurenko D. A., Kerst R., Dijkhuis J. I., Akimov A. V., Golubev V. G., Kurdyukov D. A., Pevtsov A. B., Sel'kin A. V. Ultrafast optical switching in three-dimensional photonic crystals // Physical Review Letters. 2003. V. 91. №. 21. P. 213903-1-213903-4.
7. Sakoda K. Optical properties of photonic crystals // Springer series in optical sciences. V. 80. Berlin: Springer, 2001. 253 p.

ФИЗИКА

8. *Sel'kin A. V.* Structural characterization of photonic crystals by Bragg reflection spectroscopy // Proceedings of 12th International Symposium «Nanostructures: Physics and Technology». 2004.

9. *Taflove A., Hagness S. C.* Computational electrodynamics: The finite-difference time-domain method (2nd edition). London: Artech House, 2000. 852 p.

10. *Vos W. L., Van Driel H. M.* Multiple Bragg wave coupling in photonic band-gap crystals // Physical Review B. 2000. V. 62. №. 15. P. 9872–9875.