

04,09

## Оптическая анизотропия фотонных кристаллов кубической симметрии, индуцированная многоволновой дифракцией света\*

© Т.А. Уклеев<sup>1,2</sup>, Н.Н. Шевченко<sup>3</sup>, Д.И. Юрасова<sup>3</sup>, А.В. Селькин<sup>1,2</sup>

<sup>1</sup> Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе,  
194021 Санкт-Петербург, Россия

<sup>2</sup> Санкт-Петербургский государственный университет,  
199034 Санкт-Петербург, Россия

<sup>3</sup> Институт высокомолекулярных соединений РАН,  
199004 Санкт-Петербург, Россия

E-mail: t.ukleev@gmail.com

Экспериментально и теоретически изучены спектры брэгговского отражения света от опалоподобных фотонных кристаллов в условиях резонансного усиления многоволновой дифракции света. В качестве объектов исследования использованы фотонно-кристаллические структуры, изготовленные из монодисперсных глобул полистирола. Показано, что сигнал отражения, регистрируемый во взаимно ортогональных конфигурациях поляризатора и анализатора, связан с собственной оптической анизотропией кристалла и представляет собой специфическое проявление многоволновой брэгговской дифракции света в трехмерных фотонных кристаллах.

Работа подготовлена при поддержке программы президиума РАН № 7 „Актуальные проблемы фотоники, зондирование неоднородных сред и материалов“.

DOI: 10.21883/0000000000

### 1. Введение

Известно, что обычные кристаллы кубической симметрии по своим оптическим свойствам, как правило, изотропны (по крайней мере, в рамках классической кристаллооптики, когда не учитываются тонкие эффекты пространственной дисперсии) [1,2]. Этот факт тесно связан с возможностью описания общих оптических свойств кристаллов путем введения тензора диэлектрической проницаемости, не зависящего от пространственных координат. При этом характерный масштаб а неоднородности (например, размер постоянной решетки) должен быть существенно меньшим по отношению к длине волны  $\lambda$  света. Однако в случае пространственно структурированных систем типа фотонных кристаллов (ФК), для которых  $a \approx \lambda$ , принципиальное значение имеет пространственная модуляция диэлектрической проницаемости [3,4]. Поэтому связь симметрии оптических свойств ФК с симметрией его кристаллической решетки может быть существенно иной по сравнению с обычными кристаллами. В частности, ФК кубической симметрии, в отличие от своих симметричных аналогов из класса обычных кристаллов, могут демонстрировать заметные эффекты оптической анизотропии [5].

В настоящей работе исследованы спектры брэгговского отражения света от опалоподобных ФК (относящихся к классу симметрии  $O_h$ ) в зависимости от ориентации плоскости падения относительно кристаллографических

осей ФК. В качестве объектов экспериментального изучения использовались полимерные ФК, изготовленные из частиц полистирола. Основное внимание обращено на эффект узкополосной оптической анизотропии ФК, проявляющийся в виде резонансного усиления отраженного сигнала в скрещенных состояниях поляризатора и анализатора ( $p-s$  или  $s-p$  конфигурации). Данные измерений сопоставлены с теоретическими расчетами, выполненными в рамках динамической теории многоволновой дифракции света применительно к ФК [6].

### 2. Эксперимент

Исследованные нами образцы опалоподобных ФК представляли собой пленки (толщиной около  $5 \mu\text{m}$ ), сформированные из монодисперсных частиц полистирола в виде глобул диаметром  $\sim 280 \text{ nm}$ . Тонкие пленки получали путем нанесения капли дисперсии капли (сухой остаток — 1%) объемом  $150-200 \mu\text{l}$  на покровные стекла, предварительно обезжиренные хромовой смесью. Стекла помещали на выверенный по уровню горизонтальный предметный столик. Водные дисперсии латексов высыхали при температуре  $55-60^\circ\text{C}$  в течение  $15-20 \text{ min}$ . Частицы полистирола синтезировали методом безэмульгаторной эмульсионной сополимеризации стирола с метакриловой кислотой под действием персульфата калия [7-9]. При этом в поверхностном слое частиц локализуются полимерные цепи, обогащенные звеньями метакриловой кислоты, степень ионизации карбоксильных групп которых и, следовательно, поверхностный заряд, варьировали путем изменения pH

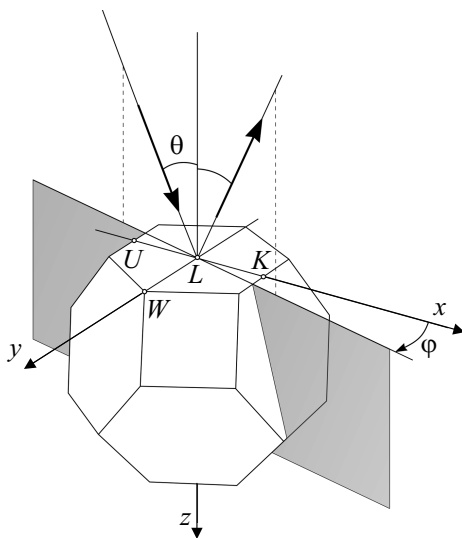
\* Доклад на XIV Международной конференции „Физика диэлектриков“ (Санкт-Петербург, 29 мая–2 июня 2017 г.).

Материалы конференции частично опубликованы в выпуске № 3 за 2018 г. журнала „Физика твердого тела“.

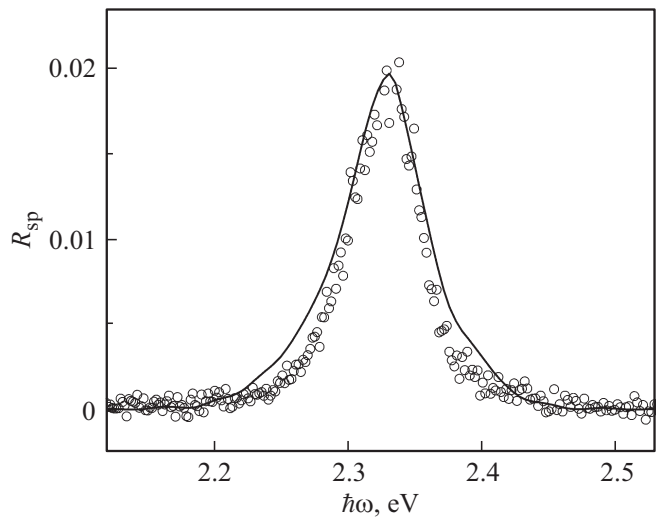
дисперсионной среды, что позволило оптимизировать условия формирования полимерных ФК [7].

Спектры брэгговского отражения света изучались на установке, собранной на базе спектрометра МДР-23 (рабочий спектральный диапазон 400–850 nm, обратная линейная дисперсия 1.3 nm/mm). В качестве источника белого света служила лампа накаливания, луч от которой коллимировался с помощью диафрагм и линз таким образом, что угол сходимости пучка не превышал 3°. Световой пучок направлялся на образец, закрепленный на гониометре из комплекта поставки эллипсометра ЛЭФ-3М. Ориентация образца относительно плоскости падения–отражения света осуществлялась путем контролируемого (с точностью до 1°) азимутального вращения ФК-пленки в вертикальной плоскости, перпендикулярной плоскости падения и совпадающей с отражающей поверхностью образца (111). Отраженный от поверхности образца свет через систему линз направлялся на входную щель спектрометра, ширина которой варьировалась в пределах 100–200 μm. Световой поток на выходе спектрометра регистрировался с помощью фотоэлектронного умножителя ФЭУ-79 в режиме счета фотонов, электрический сигнал после прохождения через предусилитель и блок сопряжения обрабатывался компьютером, а записанный спектр в цифровом виде сохранялся в файле.

Спектры отражения регистрировались в поляризованном свете в конфигурациях анализатора–поляризатора  $s-s$ ,  $p-p$ ,  $p-s$  и  $s-p$  при разных углах падения  $\theta$ . При этом азимутальная ориентация образца менялась в соответствии с геометрией рис. 1 (т.е. в эксперименте азимутальный угол  $\varphi$  отсчитывался от плоскости, перпендикулярной системе наклонных кристаллических



**Рис. 1.** Геометрия отражения света от опалоподобного ФК:  $\theta$  — угол падения,  $\varphi$  — азимут плоскости падения, отсчитываемый от базисной плоскости, перпендикулярной наклонным кристаллическим плоскостям  $(1, 1, \bar{1})$ .

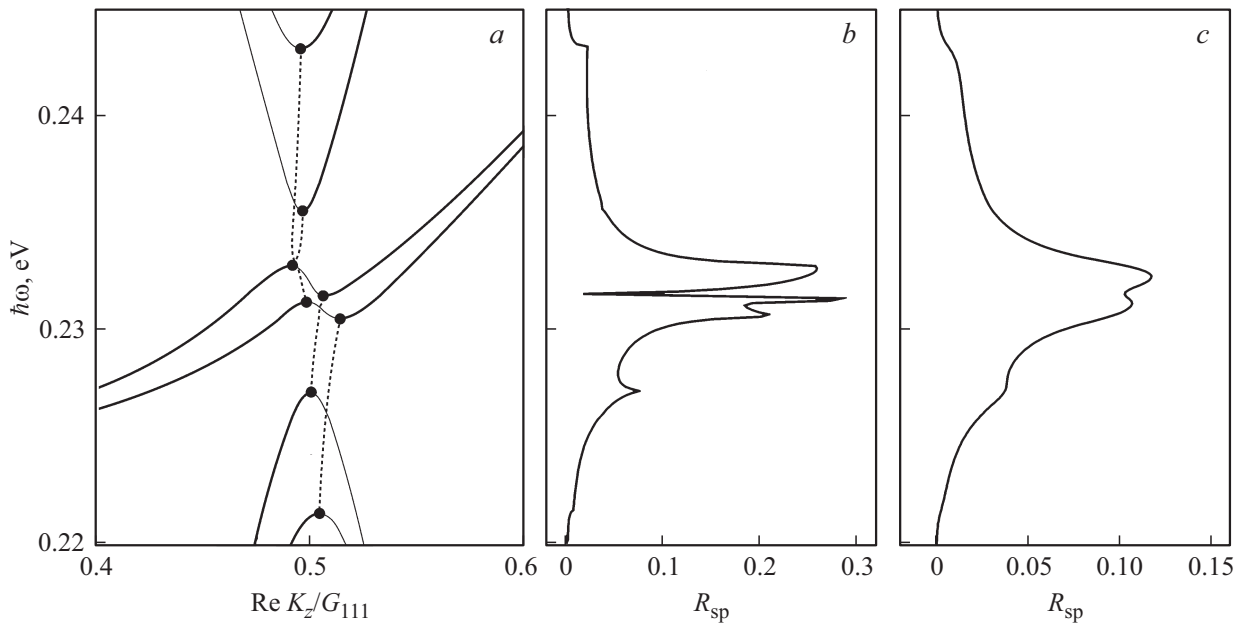


**Рис. 2.** Спектр брэгговского отражения света от опалоподобного полимерного ФК в конфигурации анализатора–поляризатора  $s-p$  при угле падения  $\theta = 56^\circ$  и азимуте плоскости падения  $\varphi = 15^\circ$ . Точки — эксперимент, сплошная кривая — теоретический расчет.

плоскостей  $(1, 1, \bar{1})$ ). Ориентация образца, соответствующая значению  $\varphi = 0^\circ$ , контролировалась с помощью сканирующего электронного микроскопа. Более точно такая ориентация устанавливалась предложенным нами ранее методом [10], основанным на анализе спектров брэгговского отражения в  $s-s$  конфигурации поляризатора–анализатора.

На рис. 2 (экспериментальные точки) представлен спектр  $R_{SP}$  брэгговского отражения света от исследуемого ФК, измеренный в  $s-p$  конфигурации анализатора–поляризатора при угле падения  $\theta = 56^\circ$  и азимутальной ориентации образца  $\varphi = 15^\circ$ . Сравнение изображенного на рис. 2 спектра со спектром отражения  $R_{SS}$ , измеренным при тех же значениях углов  $\theta$  и  $\varphi$ , показало, что максимум коэффициента отражения  $R_{SP}$  формируется в той спектральной области, где наиболее существенны эффекты многоволновой дифракции света [6]. Поэтому естественно связать возникновение заметного сигнала  $R_{SP}$  в выбранной конфигурации отражения света с проявлением многоволновой дифракции.

Коэффициент отражения  $R_{SP}$  практически равен нулю при любых значениях угла падения  $\theta$ , если плоскость падения света перпендикулярна одновременно системам латеральных  $(1, 1, 1)$  и наклонных  $(1, 1, \bar{1})$  кристаллических плоскостей (рис. 1, азимут плоскости падения  $\varphi = 0^\circ$ ). Сигнал в скрещенных,  $p-s$  и  $s-p$ , состояниях анализатора–поляризатора также отсутствует, когда угол  $\varphi$  кратен  $60^\circ$ . Однако при промежуточных значениях  $\varphi$  в небольшом интервале углов падения вблизи  $\theta \approx 55^\circ$  в спектрах  $R_{PS}$  и  $R_{SP}$  „недиагональных“ коэффициентов отражения обнаруживается узкий пик отражения, свидетельствующий об оптической анизотропии ФК. Наиболее интенсивный кросс-поляризационный



**Рис. 3.** Сопоставление энергетического спектра электромагнитных мод (а) полуограниченного опалоподобного ФК с рассчитанными спектрами недиагональных коэффициентов отражения  $R_{SP}$  при константах затухания  $\Gamma = 0$  meV (b) и  $\Gamma = 13$  meV (c); угол падения  $\theta = 56^\circ$ , азимут плоскости падения  $\varphi = 15^\circ$ .

сигнал регистрируется при азимутальной ориентации образца вблизи  $\varphi \approx 15^\circ$ .

В связи с представленными на рис. 2 экспериментальными данными следует отметить, что измеряемый сигнал  $R_{SP}$  формируется на довольно заметном по отношению к пику отражения фоне рассеянного света, достигающем значения порядка 1% от интенсивности падающего света (на рис. 2 этот фон вычтен из спектра). Такой фон, по-видимому, указывает на определенную степень структурной неупорядоченности образца, связанной с технологией приготовления ФК пленок.

### 3. Теория и обсуждение результатов

Как следует из результатов наших предыдущих исследований [6], посвященных изучению механизмов формирования брэгговских спектров отражения света от фотонных кристаллов, принципиальные детали таких спектров могут быть описаны не только качественно, но и с хорошей точностью количественно, в рамках динамической теории многоволновой дифракции света. Суть подхода заключается в выделении в разложении напряженности электрического поля  $\mathbf{E}_{\mathbf{K}}(\mathbf{r})$  блоховской моды по векторам  $\mathbf{G}$  обратной решетки тех слагаемых, которые дают преобладающий вклад в дифракцию света в исследуемой области спектра. В рассматриваемом нами случае

$$\mathbf{E}_{\mathbf{K}}(\mathbf{r}) = \sum_{hkl} \mathbf{A}_{\mathbf{K}-\mathbf{G}_{hkl}} e^{j(\mathbf{K}-\mathbf{G}_{hkl}) \cdot \mathbf{r}}, \quad (1)$$

где  $\mathbf{K}$  — волновой вектор моды,  $\mathbf{A}_{\mathbf{K}-\mathbf{G}_{hkl}}$  — не зависящие от пространственных координат  $\mathbf{r}$  амплитуды,  $(hkl)$  —

индексы кристаллических плоскостей, которые принимают значения  $(0, 0, 0)$ ,  $(1, 1, \pm 1)$ ,  $(0, 2, 0)$ . Тогда пространственный профиль диэлектрической функции  $\varepsilon(\mathbf{r})$  кристалла следует задавать разложением

$$\varepsilon(\mathbf{r}) = \sum_{hkl} \varepsilon_{hkl} e^{j\mathbf{G}_{hkl} \cdot \mathbf{r}} + c.c., \quad (2)$$

включающим в себя соответствующие пространственные гармоники с фурье-амплитудами  $\varepsilon_{hkl}$ . Численные значения коэффициентов  $|\varepsilon_{hkl}|$  рассчитываются на основании полученных экспериментально средней диэлектрической проницаемости  $\varepsilon_0 \equiv \varepsilon_{000}$  ФК-среды и фактора заполнения  $f$  материала ФК структурными элементами (в данном случае частицами полистирола с диэлектрической проницаемостью  $\varepsilon_a = 2.555$  [11] на длине волны  $\lambda = 532$  nm). Для исследованного образца  $\varepsilon_0 = 2.186$ ,  $f = 0.78$ .

На рис. 3, а изображен рассчитанный энергетический спектр собственных мод, формируемых в полуограниченном ФК в геометрии отражения рис. 1 при угле падения  $\theta = 56^\circ$  и азимутальной ориентации плоскости падения  $\varphi = 15^\circ$ . Энергетический спектр построен для модели идеального, структурно упорядоченного ФК. Участки дисперсионных кривых, выделенные жирными линиями, соответствуют электромагнитным состояниям с положительными значениями проекции групповой скорости  $v_z = \partial\omega/\partial K_z$  на внутреннюю нормаль к поверхности кристалла (считается, что ось  $z$  декартовой системы координат направлена вдоль этой нормали). Именно такие моды с  $v_z > 0$  участвуют в распространении света вглубь полубесконечной среды.

Моды с  $v_z < 0$ , обозначенные тонкими сплошными линиями, могут возбуждаться только в случае ФК-пластинки конечной толщины, когда существенно отражение от задней грани пластинки (в этой связи см. [12]). Пунктирные кривые на рис. 3, *c*, соединяющие точки экстремумов, помеченные жирными точками, также представляют собой решения дисперсионного уравнения. Однако эти решения соответствуют эванесцентным модам, локализованным вблизи внутренней поверхности ФК. Такие моды характеризуются комплексными значениями волнового вектора  $\mathbf{K}$  (на рисунке, ради простоты, изображены только вещественные части  $z$ -проекции  $\mathbf{K}$ ).

Дисперсионные кривые рис. 3, *a* говорят о том, что внутри ФК осуществляется многомодовый характер распространения света: на каждой частоте  $\omega$  внешнего света в непосредственной области брэгговского резонанса может возбуждаться, по крайней мере, 6 мод (если речь идет о полубесконечной среде или достаточно толстой ФК-пластинке). Ситуация в определенном смысле ассоциируется с эффектами в кристаллооптике с учетом пространственной дисперсии, когда речь идет о добавочных [1] световых волнах.

В реальных образцах ФК заметную роль могут играть процессы затухания электромагнитных состояний, связанные с дополнительным упругим рассеянием света и поглощением энергии. Такого рода затухание (экстинкцию) можно феноменологически учесть в дисперсионных уравнениях собственных электромагнитных мод, вводя мнимую добавку  $i \cdot \Gamma/2$  к частоте  $\omega$ . Тогда величина  $\tau \equiv 1/\Gamma$  играет роль времени жизни электромагнитной моды ФК. Такой подход для описания затухания в области брэгговских резонансов ФК представляется более ясным с физической точки зрения по сравнению с формальным введением [10] мнимой добавки  $i\epsilon_0''$  к средней диэлектрической проницаемости  $\epsilon_0$ . В связи с этим, отметим, что по порядку величины  $\epsilon_0'' \approx \epsilon_0\Gamma/\omega_0$ , где  $\omega_0$  — характерная частота брэгговского резонанса.

Теоретические спектры  $R_{SP}$  брэгговского отражения света рассчитывались в рамках подхода [13] (впервые предложенного в [14]), обобщенного в настоящей работе на случай, когда  $TE$ - и  $TM$ -классификация собственных мод теряет смысл. Рассчитанные для выше указанных углов  $\theta$  и  $\varphi$  спектры отражения при значениях  $\Gamma = 0$  и  $\Gamma = 13 \text{ meV}$  представлены на рис. 3, *b* и 3, *c* соответственно.

В идеальном случае, когда  $\Gamma = 0$ , спектр отражения  $R_{SP}$  содержит спектральные особенности в виде резких пиков и провалов. Из сопоставления этого спектра с соответствующими дисперсионными кривыми собственных мод (рис. 3, *a*) видно, что особенности в спектрах проявляются вблизи пороговых частот, на которых групповая скорость мод обращается в ноль и в перенос энергии включаются дополнительные каналы рассеяния (ср. с общими утверждениями о возникновении спектральных особенностей разного типа в сечении многоканального рассеяния [15]).

С увеличением  $\Gamma$  (рис. 3, *c*) резкие особенности в спектре  $R_{SP}$  постепенно сглаживаются и при значении  $\Gamma = 50 \text{ meV}$ , позволяющем воспроизвести экспериментальный спектр рис. 2 (эксперимент — точки, расчет — сплошная линия), кривая отражения  $R_{SP}$  выглядит в виде практически симметричного контура с максимумом.

Следует отметить, что полуширина теоретического контура отражения при достаточно больших значениях параметра  $\Gamma$  оказывается близкой к вводимому в расчет значению  $\Gamma$ , что, в частности, демонстрирует рис. 2. Поскольку экспериментальный контур отражения  $R_{SP}$  хорошо совпадает с теоретическим, то для оценки времени жизни  $\tau$  электромагнитной моды в ФК можно использовать простое измерение полуширины наблюдаемого контура отражения. В случае исследованного нами образца ФК получаем значение  $\tau \approx 0.08 \text{ ps}$ .

Анализ измеренных спектров отражения в  $s-s$  и  $p-p$  конфигурациях эксперимента, как правило [10], указывает также на незначительную одноосную деформацию образцов в кристаллографическом направлении, перпендикулярном поверхности ФК-пленки. Однако такая деформация в силу симметричных соображений сама по себе не может быть причиной появления сигнала отражения  $R_{SP}$ . Поэтому выводы, которые мы делаем в настоящей работе, относятся и к недеформированным кубическим ФК-структурам.

## 4. Заключение

Полученные нами результаты показывают, что несмотря на высокую симметрию опалоподобных фотонных кристаллов, их оптические свойства обладают сильной анизотропией, что выражается особенно ярко в условиях многоволновой брэгговской дифракции. При азимутальной ориентации плоскости падения, которая не соответствует наиболее симметричным направлениям распространения света в ФК (угол  $\varphi$  не кратен  $60^\circ$ ), собственные моды электромагнитного поля становятся эллиптически поляризованными и  $TE$ ,  $TM$ -классификация таких мод теряет смысл. В результате при  $p$ - или  $s$ -поляризации падающего луча отраженный свет приобретает эллиптическую поляризацию, что проявляется экспериментально в виде резонансного сигнала отражения в скрещенных состояниях поляризатора и анализатора. Таким образом, можно заключить, что обсуждаемый эффект представляет собой новое, специфическое проявление многоволновой брэгговской дифракции в трехмерных фотонных кристаллах.

## Список литературы

- [1] В.М. Агранович, В.Л. Гинзбург. Кристаллооптика с учетом пространственной дисперсии и теория экситонов. Наука, М. (1979). 432 с.
- [2] Е.Ф. Гросс, А.А. Каплянский. ДАН СССР **132**, 98 (1960).

- [3] J.F. Galisteo-López, M. Ibisate, R. Sapienza, L.S. Froufe-Pérez, Á. Blanco, C. López. *Adv. Matter.* **23**, 30 (2011).
- [4] *Optical Properties of Photonic Structures: Interplay of Order and Disorder* / Eds M.F. Limonov, R.M. De La Rue. CRC Press, Boca Raton, FL, USA (2012). 566 p.
- [5] С.Г. Романов. *ФТТ* **52**, 788 (2010).
- [6] V.G. Fedotov, A.V. Sel'kin, T.A. Ukleev, A.Yu. Men'shikova, N.N. Shevchenko. *Phys. Status Solidi B* **248**, 2175 (2011).
- [7] А.Ю. Меньшикова, В.М. Shabsels, N.N. Shevchenko, A.G. Bazhenova, A.V. Pevtsov, A.V. Sel'kin, A.Yu. Bilibin. *Colloids Surf. A* **298**, 27 (2007).
- [8] А.Ю. Меньшикова, Н.Н. Шевченко, И.В. Бугаков, А.В. Якиманский, А.В. Селькин. *ФТТ* **53**, 1091 (2011).
- [9] Н.Н. Шевченко, Б.М. Шабсельс, А.Ю. Меньшикова, Г.А. Панкова, Р.Ю. Смыслов, Н.Н. Сапрыкина, А.В. Селькин, Т.А. Уклеев. *Российские нанотехнологии* **7**, 105 (2012).
- [10] А.Г. Баженова, А.В. Селькин, А.Ю. Меньшикова, Н.Н. Шевченко. *ФТТ* **49**, 2010 (2007).
- [11] А.П.Бабичев, Н.А. Бабушкина, А.М. Братковский и др. *Физические величины: Справочник* / Под ред. И.С. Григорьева, Е.З. Мейлихова. Энергоатомиздат, М. (1991). С. 785.
- [12] В.Г. Федотов, А.В. Селькин. *ФТТ* **53**, 1077 (2011).
- [13] V.G. Fedotov, T.A. Ukleev, A.Yu. Men'shikova, N.N. Shevchenko, A.V. Sel'kin. *Proc. of SPIE* **8425**, 1 (2012).
- [14] A.V. Sel'kin. In: *Proc. of 12<sup>th</sup> Int. Symp. Nanostructures: Physics and Technology*. Ioffe Institute, SPb (2004). p. 111.
- [15] Л.Д. Ландау, Е.М. Лифшиц. *Квантовая механика*. ФИЗМАТЛИТ, М. (2004). С. 745.