

# 准完全带隙胶体非晶光子晶体\*

何拥军<sup>1,4)</sup> 苏惠敏<sup>1)</sup> 唐芳琼<sup>2)</sup> 董鹏<sup>3)</sup> 汪河洲<sup>1)†</sup>

<sup>1)</sup> 中山大学超快速激光与光谱学国家重点实验室, 广州 510275)

<sup>2)</sup> 中国科学院感光化学研究所, 北京 100101)

<sup>3)</sup> 石油大学重质油加工国家重点实验室, 北京 102200)

<sup>4)</sup> 广东省电力集团公司通信中心, 广州 510600)

(2000 年 11 月 20 日收到, 2000 年 12 月 17 日收到修改稿)

三维面心立方结构的固有的高对称性使其只具备非完全光子带隙, 而非晶结构可降低对称性导致准完全光子带隙的出现. 实验结果表明非晶胶状晶体具有准完全光子带隙. 非晶胶状光子晶体中的光子带隙的禁带宽度与波长均不随光入射到样品池的角度的变化而明显变化. 其禁带宽度比  $\text{SiO}_2$  小球面心单晶的禁带宽度宽得多.

关键词: 光子带隙, 非晶, 光谱

PACC: 4270Q, 7820P, 6140, 8110D

## 1 引 言

在过去的 50 年中, 随着半导体的发展, 电子技术在人们的日常生活中起着重要作用. 近年来, 在通信和信息处理领域光子正逐步取代电子作为信息的载体. 因为与电子相比光子有一系列的优点, 例如高速、大容量等. 但现在的全光器件的体积较大阻止了它的更广泛应用. 光子晶体不仅是进一步提高全光器件集成度的关键, 同时还具有一系列崭新特性. 如抑制自发辐射, 无阈值激射, 和直角光导波等都可在光子晶体中实现<sup>[1-3]</sup>. 这些崭新的性质激起了人们对它的理论和实验研究的广泛兴趣. 自 1990 年理论研究指出金刚石结构有完全光子带隙以来<sup>[4]</sup>, 三维光子晶体的理论研究和实验制作一直受高度重视. 实验制作方面多数报道都在微波、毫米波和红外波段<sup>[5-9]</sup>. 在光学波段, 被研究得较早和较深入的三维结构是各向同性聚苯乙烯或  $\text{SiO}_2$  小球自排形成的面心立方晶体<sup>[10-16]</sup>, 因为它相对较容易制作. 但是理论计算和实验研究都表明, 由于面心立方的高对称性, 导致的各向同性介质面心立方单晶仅仅具有非完全光子带隙. 两套面心原子形成的金刚石结构, 降

低了对称性得到完全光子带隙<sup>[4]</sup>. 降低结构的对称性有很多的方法, 准晶具有完全带隙是典型的例子<sup>[17, 18]</sup>. 本文报道另一种降低对称性的结构——三维非晶光子晶体. 即我们观察到  $\text{SiO}_2$  小球自排的胶体非晶态晶体中存在准完全光子带隙.

## 2 实 验

我们制备了一系列不同分散度的亚光学波长直径  $\text{SiO}_2$  小球, 然后用于制作自排胶体. 自排的结果与小球的分散度、粒径、浓度、样品池的体积、及 pH 值等因素有关. 通常, 高浓度 ( $> 3.5\%$ ) 条件下形成的是面心结构<sup>[10]</sup>. 本研究中小球的浓度高于 25%, 因此只出现了面心结构. 本文主要报道两种分散度的  $\text{SiO}_2$  小球自排结果. 第一种小球平均直径为 220nm 和直径标准差为 4%, 其透射电镜照片见图 1(a), 可以自排得面心结构单晶. 自排过程在刚开始时样品呈乳白色, 长成的单晶如彩色玻璃一样透明且有随方向彩色反光. 在生长过程, 透明的晶体与未成晶体的乳白色区之间有明显的分界线, 此分界线由样品池底逐渐上移. 另一种的小球直径标准差为 8%, 其透射电镜照片见图 1(b), 非晶态结构出现于

\* 国家自然科学基金(批准号: 19934002 和 19874083), 教育部重点基金(批准号: 99096) 和广东省自然科学基金(批准号: 980283) 资助的课题.

† 通信联系人 E-mail: stswzh@zsu.edu.cn

此样品中,实验中的透射光谱用日本岛津的 UV240 分光光度计进行测量.

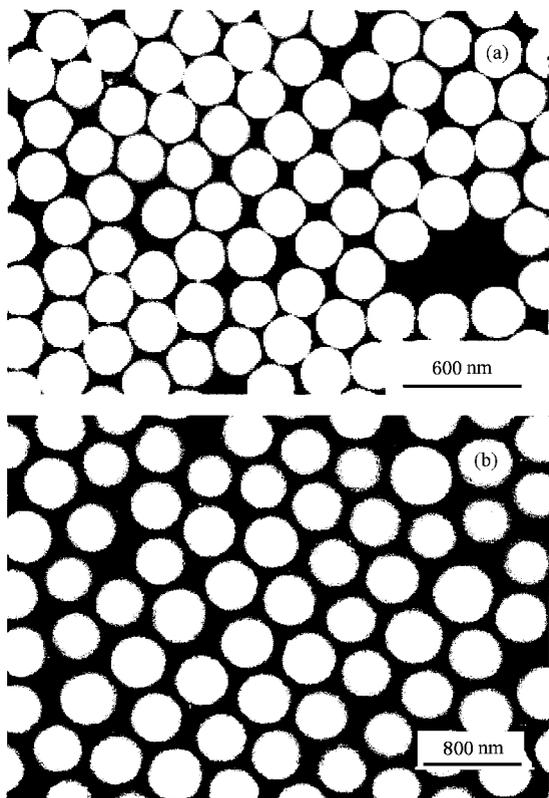


图 1 SiO<sub>2</sub> 小球的透射电镜照片(直径标准差 (a)4% (b)8%)

### 3 结果与讨论

在我们制作的众多样品中,在其中 SiO<sub>2</sub> 小球直径标准差为 8% 的一个样品中观察到新现象,此样品池厚度为 1 mm,浓度是 25%.通常在 SiO<sub>2</sub> 小球排成面心单晶中很容易观察到清晰的 Kossel 环,而此样品不出现清晰的 Kossel 环.随着光入射到样品池的角度,即入射光线与样品池表面法线的夹角(下边简称入射角)的变化,其透射谱的禁带位置并不像通常的低分散 SiO<sub>2</sub> 小球所排成面心单晶那样移动.此外,其禁带宽度达 90 nm,远大于 SiO<sub>2</sub> 小球排成面心单晶的禁带宽度.

在半导体中,非晶半导体被证实是短程有序的结构而不是键长不一的连续网络模型<sup>[19,20]</sup>,因为半导体中原子是全同的.然而在光子晶体中,键长不一的连续网络模型可以实现,因为小球粒径分布可控.直径标准差较大的小球密排成的面心结构就是连续

网络模型的非晶面心结构.虽然此实验的样品因是液态无法用电子显微镜来直接观察其结构,但一系列池厚相关的实验结果已能定性说明.随后的内容将说明在 1mm 池中的颗粒间距远远小于较薄池中的间距.当球间的距离小到一定值时,密堆积形成,由于较大的小球粒径分布导致密堆积形成连续网络结构非晶面心晶体结构.随后段落再详细论述.

当 SiO<sub>2</sub> 小颗粒的直径的标准差为 4% 时,自排所得胶状晶体是面心单晶晶体.面心单晶晶体的禁带波长随着入射角的变化而变化,见图 2 和图 3 所示.这是面心单晶晶体的非完全带隙的典型性质.我们用了多种池厚制作了系列样品,图 2 和图 3 是其中两典型厚度,我们观察到随池厚增厚,带隙波长紫移.池厚达一定值时波长不再移动.这是由于在薄池中,小球与样品池壁间相互作用力平衡了相当的小球重力,使小球能以较大球间距排列.在厚池中,小球数量多、重力大,池壁与小球间的相互作用力小于

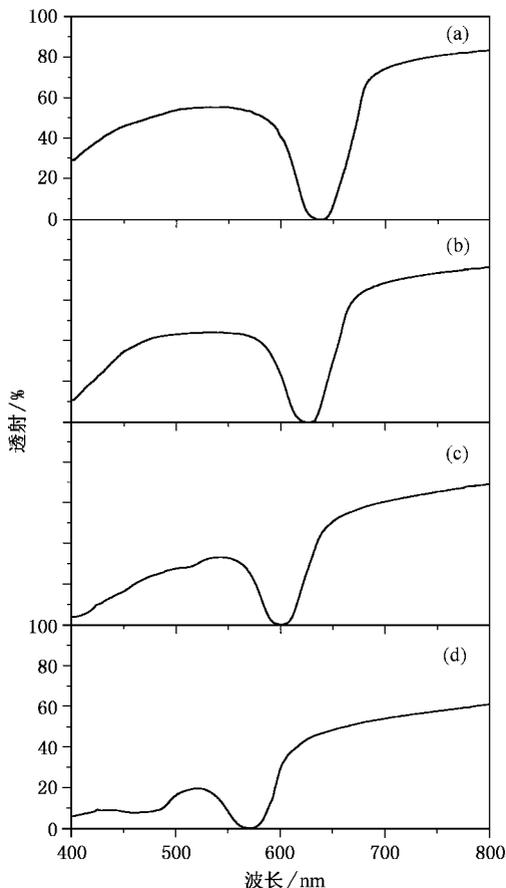


图 2 样品池厚度为 0.07 mm 的直径标准差为 4% 的 SiO<sub>2</sub> 小球胶体单晶的透射谱(光的入射角 (a)0° (b)20° (c)30° (d)45°)

小球重力,致使池的下半部分所形成的晶体的晶格常数较小,出现密排状态.池厚对自排球间距的影响与池中的高度对自排球间距的影响相当.

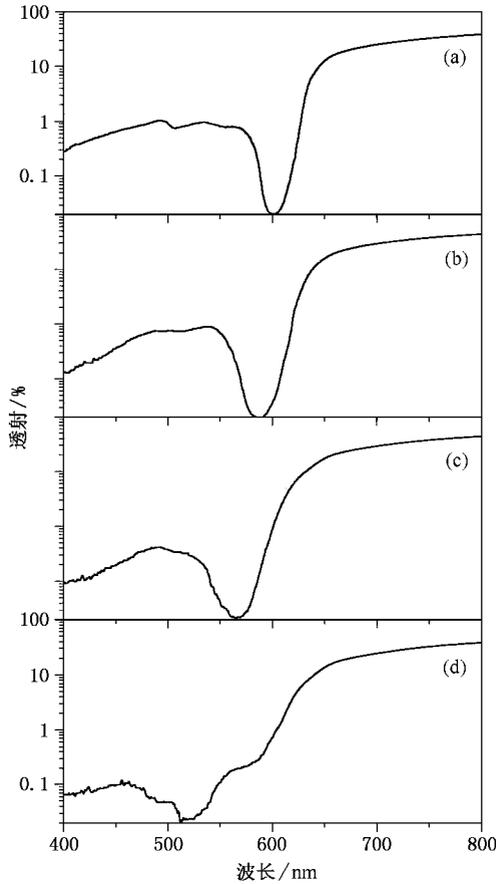


图3 样品池厚度为1mm的直径标准差为4%的SiO<sub>2</sub>小球胶体单晶的透射谱(光的入射角(a)0°(b)20°(c)30°(d)45°)

图4是池厚为1mm的直径标准差为8%的SiO<sub>2</sub>胶状晶体的透射谱.一个崭新的现象出现在此样品中,禁带的波长和宽度都不再随着入射角的变化而明显变化.这说明该池中的晶体不再是完全带隙的面心单晶,不管入射角为何值,禁带的波长都位于770nm附近,禁带的宽度约为90nm,这比SiO<sub>2</sub>颗粒的面心单晶的禁带带宽大很多.禁带的透过率最小值略大于单晶的禁带处透过率.在禁带的长波一侧的最大透过率为48%,短波一侧的最大值为2.1%.

仔细比较不同入射角的实验结果,禁带的精细结构会随着入射角有所变化.当保持入射角度不变而改变入射位置时,禁带的精细结构的变化与改变入射角的情况相似.我们多次重复测试,所得的禁带

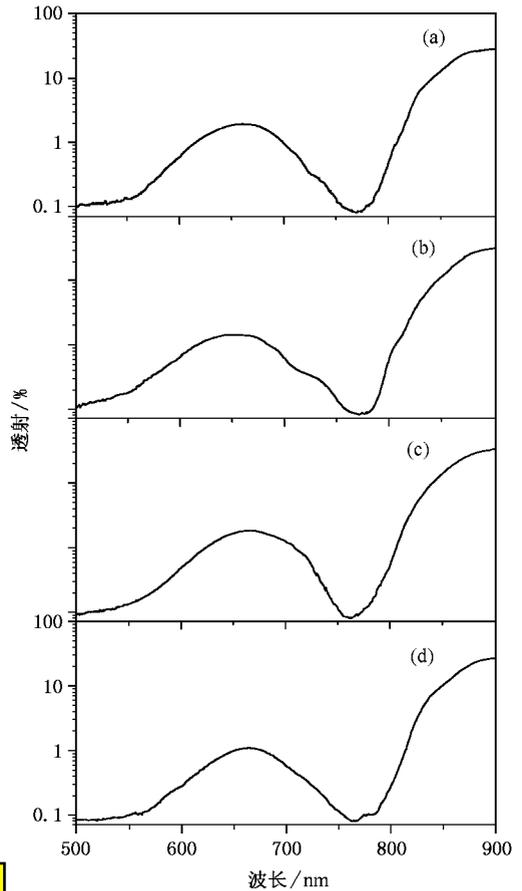


图4 样品池厚度为1mm的直径标准差为8%的SiO<sub>2</sub>小球胶体晶体的透射谱(光的入射角(a)0°(b)20°(c)30°(d)45°)

的精细结构都不一致,带隙深度也不一.这说明带隙的精细结构与晶体的位置和方向都有关.因为我们的测试位置和方向无法两者同时完全重复,所以精细结构不能重复.

以上实验结果说明在非晶面心结构中出现了准完全带隙.对此结果可作如下讨论.在面心单晶中,透过谱中的带隙波长和结构明显地依赖入射到晶体内(111)面的入射角.通常SiO<sub>2</sub>小球的胶体单晶的(111)面,也就是第一布里渊区(FBZ)的L点,平行于样品池的表面,而W点是离FBZ中心的最远点.换句话说(111)面是平行于样品池表面的密集面.从布拉格散射观点来看,因为面间距最大,对应于(111)面带隙应该位于最长波长处.因此,正如图2和图3中的曲线(a)所示,垂直于样品池表面的入射所对应的禁带在最长波长处.随着入射到晶体内(111)面的入射角的增大带隙蓝移.与此不同,在非晶面心结构中,不管入射角如何变化,带隙宽度和位置都不随入射角的变化而明显变化.

## 4 结 论

实验结果表明, 非晶胶状晶体中能出现准完全光子带隙. 实验结果展示非晶光子晶体中的光子带

隙的波长带宽都不随光入射到晶体内(111)面的入射角变化而明显变化. 带隙宽度约为 90 nm, 这比 SiO<sub>2</sub> 胶体面心单晶的带隙宽度大得多. 这种准完全带隙出自非晶胶状晶体的不一的键长降低了面心单晶网络的对称性.

- [ 1 ] E. Yablonovitch , *Phys. Rev. Lett.* , **58** ( 1987 ) 2059.
- [ 2 ] J. D. Joannopoulos , P. R. Villeneuve , S. Fan , *Nature* , **386** ( 1997 ) , 143.
- [ 3 ] O. Painter , R. K. Lee , A. Scherer , A. Yariv , J. D. O'Brien , P. D. Dapkus , I. Kim , *Science* , **284** ( 1999 ) , 1819.
- [ 4 ] K. M. Ho , C. T. Chan , C. M. Soukoulis , *Phys. Rev. Lett.* , **65** ( 1990 ) 3152.
- [ 5 ] S. Y. Lin , J. G. Fleming , D. L. Hetherington , B. K. Smith , R. Biswas , K. M. Ho , M. M. Sigalas , W. Zubrzycki , S. R. Kurtz , Jim Bur , *Nature* , **394** ( 1998 ) 251.
- [ 6 ] S. Noda , K. Tomoda , N. Yamamoto , A. Chutinan , *Science* , **289** ( 2000 ) 604.
- [ 7 ] E. Ozbay , E. Michel , G. Tuttel , R. Biswas , M. Sigalas , K. M. Ho , *Appl. Phys. Lett.* , **64** ( 1994 ) 2059.
- [ 8 ] E. Ozbay , E. Michel , G. Tuttel , R. Biswas , K. M. Ho , J. Bostak , D. M. Bloom , *Opt. Lett.* , **19** ( 1994 ) , 1155 ; E. Ozbay , *J. Opt. Soc. Am.* , **B13** ( 1996 ) , 1945.
- [ 9 ] A. Blanco , E. Chomski , S. Grabtchak , M. Ibisate , S. John , S. W. Leonard , C. Lopez , F. Meseguer , H. Miguez , J. P. Mondia , G. A. Ozin , O. Toader , H. M. van Driel , *Nature* , **405** ( 2000 ) 437.
- [ 10 ] E. Yablonovitch , T. J. Gmitter , *Phys. Rev. Lett.* , **63** ( 1989 ) , 1950.
- [ 11 ] K. M. Leung , Y. F. Liu , *Phys. Rev. Lett.* , **65** ( 1990 ) 2646.
- [ 12 ] I. I. Tarhan , G. H. Watson , *Phys. Rev. Lett.* , **76** ( 1996 ) 315.
- [ 13 ] D. B. Mei , H. G. Liu , B. Y. Cheng , Z. L. Li , D. Z. Zhang , P. Dong , *Phys. Rev.* , **B58** ( 1998 ) 35.
- [ 14 ] D. B. Mei , P. Dong , H. Q. Li , B. Y. Cheng , D. Z. Zhang , *Chin. Phys. Lett.* , **15** ( 1998 ) 77.
- [ 15 ] Z. L. Li , P. G. Ni , B. Y. Cheng , C. J. Jin , D. Z. Zhang , P. Dong , X. C. Guo , *Chin. Phys. Lett.* , **17** ( 2000 ) 112.
- [ 16 ] Y. S. Chan , C. T. Chan , Y. Z. Lin , *Phys. Rev. Lett.* , **80** ( 1998 ) , 956.
- [ 17 ] M. E. Zoorob , M. D. B. Chariton , G. J. Parker , J. J. Baumberg , M. C. Netti , *Nature* , **404** ( 2000 ) 740.
- [ 18 ] T. Yoshiyama , I. Sogami , N. Ise , *Phys. Rev. Lett.* , **53** ( 1984 ) , 2153.
- [ 19 ] D. E. Polk , *J. Non - Cryst. Solids* , **5** ( 1971 ) 365.
- [ 20 ] J. Tauc , *Amorphous and Liquid Semiconductors* ( Plenum Press , London and New York , 1974 ) 45.

# COLLOIDAL AMORPHOUS CRYSTAL WITH A QUASI-COMPLETE PHOTONIC BAND GAP\*

HE YONG-JUN<sup>1)†</sup> SU HUI-MIN<sup>1)</sup> TANG FANG-QIONG<sup>2)</sup> DONG PENG<sup>3)</sup> WANG HE-ZHOU<sup>1)</sup>

<sup>1)</sup>*State Key Laboratory of Ultrafast Laser Spectroscopy, Zhongshan University, Guangzhou 510275, China*

<sup>2)</sup>*Institute of Photographic Chemistry, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100101, China*

<sup>3)</sup>*State Key Laboratory of Heavy Oil, University of Petroleum, Beijing 102200, China*

<sup>4)</sup>*Guangdong Electric Power Telecommunication Centre, Guangzhou 510600, China*

( Received 20 November 2000 ;revised manuscript received 17 December 2000 )

## ABSTRACT

The experimental results demonstrate that an amorphous colloidal crystal possesses a quasi - complete photonic band gap. The bandwidth and the wavelength of the forbidden gap in the amorphous crystal do not change along with the variation of the incident angle. The bandwidth of the stop band is much larger than that in the silica colloidal single crystal. The results also show that quasi - complete photonic band gap can be observed in an amorphous colloidal crystal with a low refractive index. The quasi - complete photonic band gap results from the fact that the symmetry of lattice is decreased in amorphous colloidal crystal.

**Keywords** : photonic band gap , amorphous crystal , transmission spectra

**PACC** : 4270Q , 7820P , 6140 , 8110D

\* Project supported by the National Natural Science Foundation of China( Grant Nos. 19934002 and 19874083 ), the Natural Science Foundation of Guangdong Province( Grant No.980283 ) and the Natural Science Foundation of Education Ministry of China( Grant No.99096 ).

† Corresponding author Email : stswzh@zsu.edu.cn