

高质量三维胶体光子晶体中慢光速与超光速的实验研究^{*}

刘海英 蒙自明 戴峭峰 吴立军 兰 胜[†] 刘颂豪

(华南师范大学信息光电子科技学院, 光子信息技术实验室, 广州 510006)

(2008年9月3日收到 2008年11月17日收到修改稿)

利用飞秒脉冲自相关技术研究了高质量三维胶体光子晶体中的慢光速和超光速效应。实验中使用的胶体光子晶体是采用压力控制的绝热沉积技术(PCIHVD)制备的、由聚苯乙烯小球组成的人工蛋白石结构。由于其中的缺陷和位错密度很低, 它们具有很高的通带透过率和陡峭的能带边缘。测量了从通带到带边直至带隙中央群速度的变化, 在只有 20 层左右小球的样品中观察到低至 $0.43c$ 的慢光速以及高至 $1.34c$ 的超光速现象。此外, 利用时域有限差分(FDTD)方法对短脉冲在三维光子晶体中的群速度进行了数值模拟, 并且和实验结果进行了比较。

关键词: 三维胶体光子晶体, 慢光速, 超光速, 脉冲自相关

PACC: 4270Q, 7820P

1. 引言

电磁波在介电常数周期性变化的电介质中传输时, 当波长和结构周期(或晶格常数)相比拟时, 电磁波受到相干散射而出现禁戒带隙, 这种介电常数周期性变化的电介质结构通常称为光子晶体^[1,2]。因为光子晶体结构可以有效地剪裁光子的态密度和材料的色散曲线, 因此自 1987 年提出以来受到了普遍关注和广泛研究^[3-5]。光子晶体通过对光子态密度的调制, 可以改变(增强或抑制)原子的自发辐射速率、控制光的传播行为、增强光与物质的相互作用从而提高材料的非线性效应。由于光子带隙的存在, 色散曲线在光子晶体的带边趋于平坦, 导致群速度迅速减小, 形成所谓的慢光速现象。这种慢光速现象是增强光与物质相互作用、提高光学非线性的物理基础, 具有非常重要的实际应用^[6-9]。因此, 从实验研究的角度, 人们非常关心两个方面的问题。其一, 如何制备高质量的光子晶体以便获得非常显著的慢光速效应; 其二, 如何精确测量光子晶体带边的群速度。从理论上讲, 当光子晶体的组成和结构确定之

后, 带边群速度的大小主要依赖于光传播方向上光子晶体的周期数, 即样品的厚度。但是, 如果考虑到在实际制备样品中会不可避免地引入缺陷, 问题就变得比较复杂了。缺陷的存在引入了非相干散射, 如果缺陷密度较大, 那么由相干散射形成的慢光速效应将会变得不再显著。迄今为止, 测量光子晶体群速度的方法主要有脉冲渡越时间测量和白光迈克尔逊干涉等^[10-13]。相对来说, 脉冲渡越时间测量可以直接得到脉冲在光子晶体中的群速度, 直观可靠。

如上所述, 高质量的光子晶体对于获得显著的慢光速效应至关重要。目前采用电子束曝光和反应离子束刻蚀获得的三维或准三维光子晶体其质量的确已经达到了相当高的水平。但是, 由于工艺复杂且设备昂贵^[14-16], 这种制备方法在短期内很难普遍推广使用。相比之下, 采用自组装方法制备的胶体光子晶体由于方法简单且成本低廉而受到人们的广泛关注^[17,18]。这种胶体光子晶体主要以聚苯乙烯小球的悬浮液为主体, 采用重力、毛细作用以及对流等物理机理组装成蛋白石结构的光子晶体。尽管这种光子晶体的折射率差较小, 只能形成所谓的方向带隙, 但是, 由于聚苯乙烯材料的非线性系数较大, 它们在超快全光

* 国家自然科学基金(批准号: 10674051)、广东省自然科学基金(批准号: 06025082)和广东省高等院校创新团队项目(批准号: 06CXTD005)资助的课题。

† E-mail: slan@scnu.edu.cn

开关器件的制作中已经显示出非常明显的优势^[19]。

正是由于胶体光子晶体在超快全光开关器件中的应用,我们非常关注高质量胶体光子晶体的制备。最近,在借鉴压力控制的绝热沉积技术(PCIHVD)的基础上^[17],我们成功地获得了具有较高通带透过率和陡峭带边的高质量胶体光子晶体^[20]。上面提到,如果不能有效地控制缺陷的密度,那么慢光速现象将变得不再显著。也就是说,此时脉冲在光子晶体中的延迟时间将不再随样品厚度的增加而增加。在我们制备的光子晶体样品中,由于缺陷的体密度较低,通带的透过率可以达到80%以上,所以在较薄的样品中已经可以观测到比较显著的光学延迟。相应地,

在光子带隙中可以观察到非常明显的超光速现象。

2. 群速度的实验测量

我们在实验中使用的光子晶体样品是采用PCIHVD技术制备的、由聚苯乙烯小球(折射率 $n=1.59$,直径 $d=360\text{ nm}$)组成的人造蛋白石结构。样品制备在玻璃衬底上,为了便于比较,我们在实验中使用了厚度分别为16层和23层的两个样品,它们的表面和断面形貌(电子显微镜照片)如图1所示。可以看到,无论是在样品表面还是体内,聚苯乙烯小球均整齐排列,缺陷和位错的密度很低。

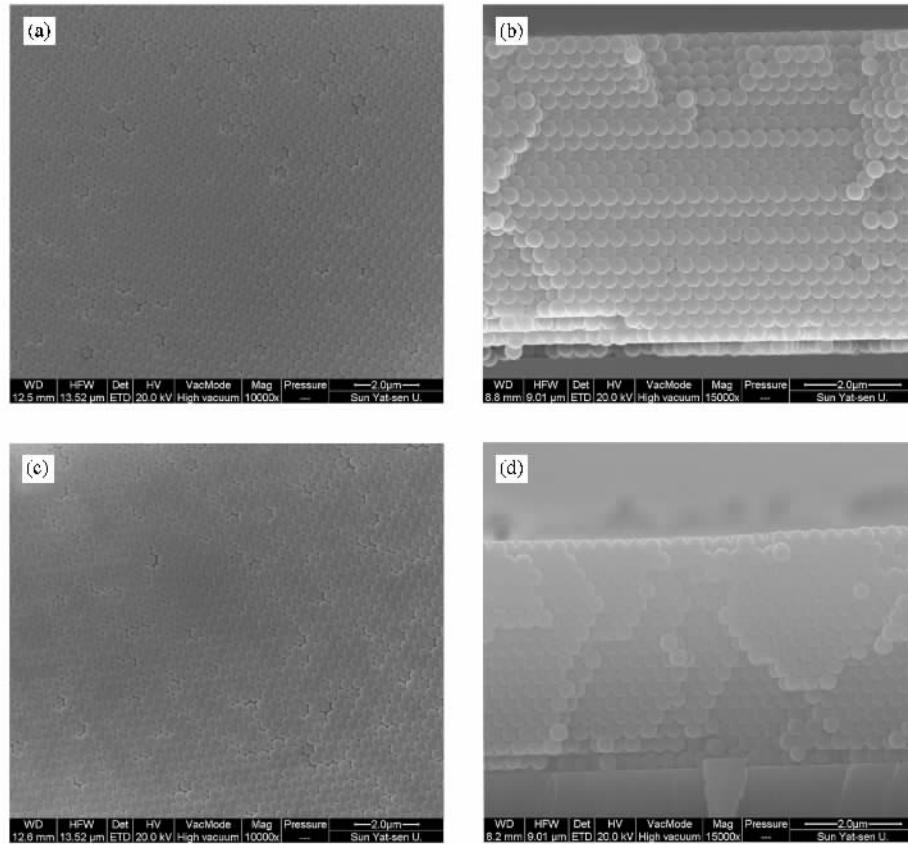


图1 不同厚度胶体光子晶体的电子显微镜图像 (a)23层样品的表面 (b)23层样品的侧面 (c)16层样品的表面 (d)16层样品的侧面

除了形貌特征外,我们还测量了光子晶体样品的透射谱,如图2所示。可以看到,两个样品的带隙中心均位于825 nm左右,两边通带的透过率高达0.8以上,同时带隙底部的透过率小于0.2。此外,光子晶体带边的微分透过率($dT/d\lambda$)更是达到0.07/nm,与文献[17]中报道的结果类似。这样陡峭的带边结合聚苯乙烯的高非线性系数使得它们非常适合

于制作超快全光开关器件。16层样品和23层样品透射谱的带隙和陡度稍有差别。在完全理想情况下(不考虑缺陷和位错等),样品的层数越多,则带隙的透过率越小,并且随着样品层数的增加,透过率迅速减小。但是,在实际制备的样品中由于缺陷和层错的存在,往往当样品的层数增加到一定数值后,带底透过率的下降就变得不再显著^[10]。

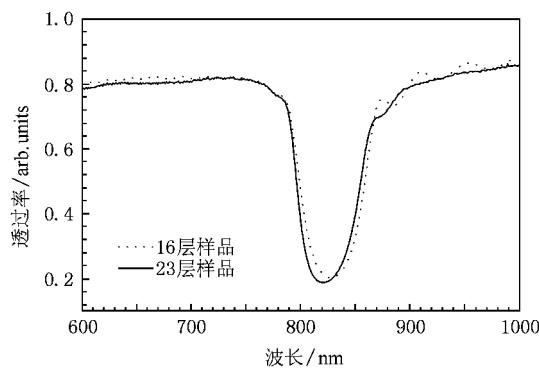


图 2 不同厚度胶体光子晶体的透射谱

我们采用飞秒脉冲自相关技术来测量脉冲在光子晶体中的群速度,实验装置如图 3 所示。钛宝石飞秒脉冲激光器产生重复频率为 76 MHz、脉冲宽度为

130 fs 的脉冲,光斑尺寸大约为 1 mm^2 。脉冲经过光子晶体样品后与参考脉冲在 BBO 晶体中叠加。我们利用相位匹配条件产生二次谐波的自相关技术,可以得到脉冲在光子晶体中的渡越时间。在光路中有样品和没有样品时,脉冲到达 BBO 的时间有所不同。根据脉冲自相关零点的变化可以得到脉冲经过光子晶体样品的时间延迟 Δt ,由延迟时间 $\Delta t = L \left(\frac{1}{v_g} - \frac{1}{c} \right)$ 可以推出脉冲在光子晶体中的群速度,其中 c 是真空中的光速, L 是样品的厚度。当脉冲中心频率位于光子晶体带边时,由于存在较大的群速度色散,脉冲在经过光子晶体后会产生一定的形变。尽管如此,如果延迟时间比较明显,我们仍然可以准确地估计脉冲在光子晶体中的群速度 v_g 。

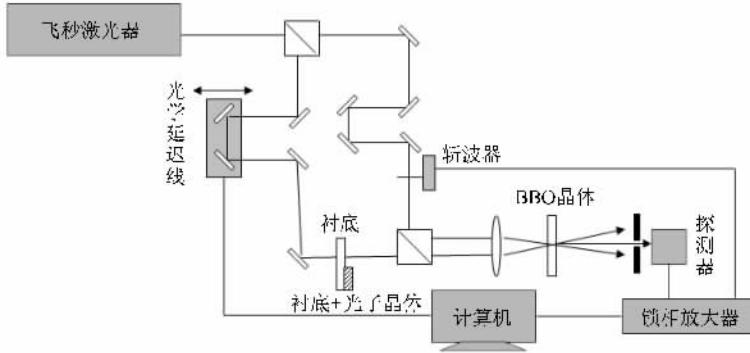


图 3 利用飞秒脉冲自相关技术测量光子晶体群速度的实验装置图

3. 实验结果和讨论

实验中我们利用飞秒激光器的调谐功能测量了短波长带边附近群速度随波长的变化。由于 23 层的样品具有很好的均匀性,我们首先来看 23 层样品的实验结果。图 4 给出了脉冲的自相关迹。图中空心圆圈表示光路上没有光子晶体样品(纯玻璃衬底)时脉冲的自相关迹,而空心三角则代表光路上有光子晶体样品(玻璃衬底 + 光子晶体)时脉冲的自相关迹。由于噪声的存在,直接确定脉冲自相关迹的零点比较困难。为此,我们采用双曲正割函数(脉冲原来的波形)来拟合自相关曲线进而得到脉冲自相关迹零点的准确位置。没有光子晶体和有光子晶体的拟合结果分别如图 4 中虚线和实线所示。实验中在同一个样品位置,对于每一个波长,我们通常是测量两次。除了微小的噪声,两次测量的曲线基本相同,经过拟合后曲线的峰值是相同的。对于同一个样品的

不同位置,由于位错和缺陷的密度不同,群速度的测定值会稍有差别。我们给出的是所有测量位置中质量最好的,即慢光速和超光速最明显的位置。我们比较了五个具有代表性的波长。当脉冲中心波长移至光子晶体带边时,经过光子晶体后脉冲会发生不同程度的衰减。为了直观比较,我们把所有的自相关迹都进行了归一化处理。可以看到,在光子晶体带边群速度随波长发生较大的变化。当脉冲的中心波长位于光子晶体的带边时,经过样品后脉冲自相关迹的零点提前显示 v_g 变小。反之,当脉冲中心波长移至带隙中央时,经过样品后脉冲自相关迹的零点滞后,显示 v_g 超过光速 c 。

对于 23 层的样品,从图 4 中可以看到,当脉冲波长从短波方向靠近带边时,自相关迹的零点逐渐提前,说明脉冲经过光子晶体样品后时间延迟逐渐增大,群速度逐渐减小。如图 4(b) 所示,776 nm 的脉冲在经过光子晶体后自相关迹的零点提前了 18 fs。当脉冲波长移至 791 nm 时,脉冲零点提前达到极大

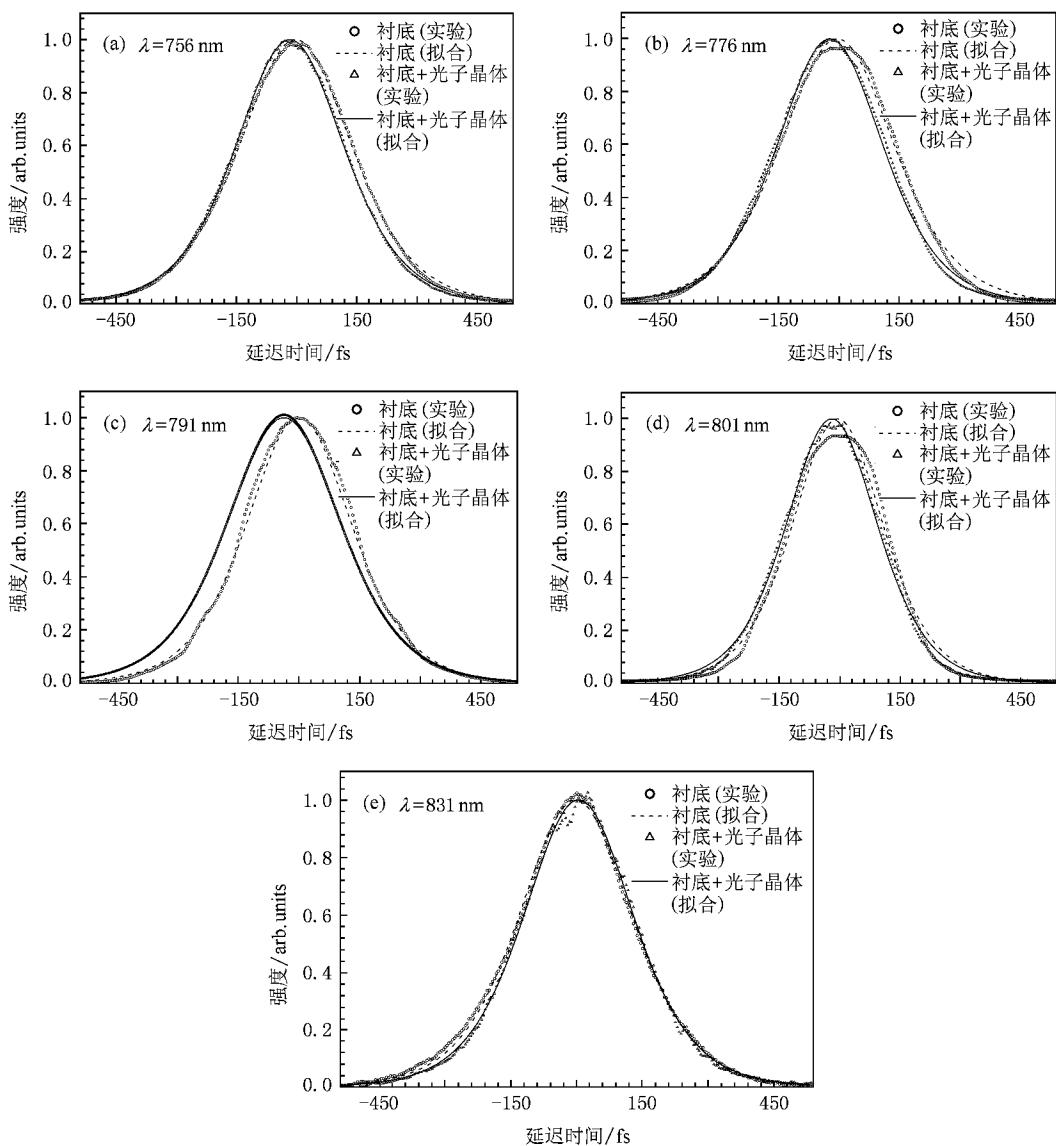


图 4 脉冲通过 23 层样品和没有样品的自相关迹的实验曲线和拟合结果 ,脉冲的中心波长分别为(a) 756 nm ;(b) 776 nm ;(c) 791 nm ;(d) 801 nm ;(e) 831 nm

值 37 fs , 即群速度达到极小值, 如图 4(c) 所示。随着脉冲波长的进一步增加, 在带隙中央我们观察到脉冲经过光子晶体后自相关迹的零点出现滞后, 意味着超光速现象的出现, 如图 4(e) 所示。在带隙中央处由于透过率比较低, 脉冲的波形稍微变形, 但是我们仍然可以准确地找出脉冲自相关迹零点的变化。在实验中, 由于玻璃衬底厚度的均匀性会影响时间延迟的测量结果, 于是我们测量了玻璃衬底不同区域(3 个不同位置)的时间延时, 发现衬底的厚度比较均匀, 对时间延迟结果影响甚微, 尤其是拟合后的曲线基本上没有差别。衬底厚度均匀性的变化有可能使得测量到的时间延迟产生很小的偏差, 但是对

于群速度随波长变化的结果基本上没有影响。

我们比较了厚度不同的两个样品的群速度测量结果, 如图 5 所示。为了直观地了解不同波长处群速度和带隙的对应关系, 图中同时给出了样品透射谱曲线。从图 5 可以看到, 在光子晶体带边附近脉冲的群速度发生了明显的变化。随着样品厚度的增加, 可以观察到明显的慢光速现象。当脉冲的中心波长为 791 nm 时, 实验测得 16 层样品的群速度为 $0.49c$, 对应的群折射率为 $n_g = 2.04$ 。相比之下, 23 层样品的群速度更是减小到 $0.43c$, 对应的群折射率则增大至 $n_g = 2.33$ 。当脉冲的中心波长进一步移至带隙中央时, 16 层样品的群速度增大至 $0.98c$, 对应的群

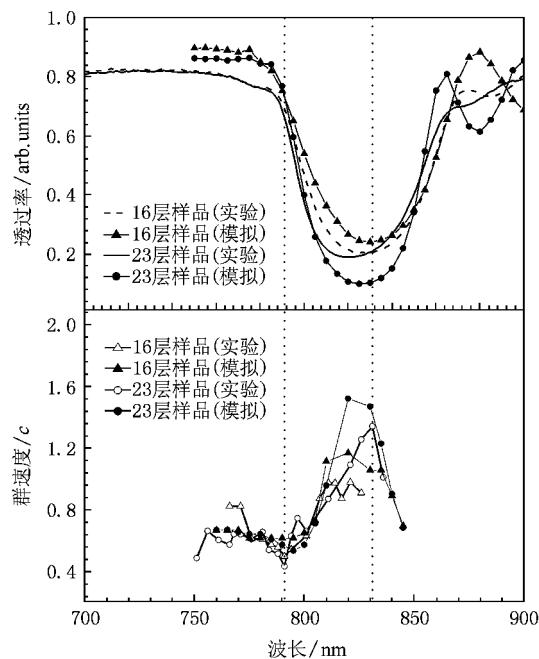


图5 两个样品中透射率和脉冲群速度随波长的变化,图中垂直的点线分别是最大慢光速波长(791 nm)和最大超光速波长(831 nm)

折射率减小为 $n_g = 1.02$,这时,23层样品的群速度迅速增大至 $1.34c$,对应的群折射率急剧减小至 $n_g = 0.75$ 。我们知道,聚苯乙烯小球的折射率为 $n_a = 1.59$,考虑到在密堆 fcc 结构中小球的体积填充因子为 $\beta = 0.74$,我们可以得到样品的等效折射率为 $n_{eff} = 1.437$ 。因此,在23层的样品中,带边的群速度 v_g 最小达到了 $0.62c/n_{eff}$,带隙的群速度最高达到了 $1.93c/n_{eff}$ 。在我们的薄样品中,带边的慢光速小于之前文献报道的结果^[12,13]。尽管在这些文献中样品的厚度都大于1000层,但是由于缺陷密度较大,其中的慢光速效应已经不再显著,脉冲经过光子晶体样品后的自相关迹形变相当严重,直接影响到脉冲群速度测量的准确性^[12]。对于厚度相当的薄样品来说,Freyman小组^[10]利用白光干涉的方法观察到的最小群速度仅为 $0.6c$,慢光速效应并不明显。另一方面,样品的折射率对比度也影响群速度的大小。考虑到这个因素,我们的结果和 Galisteo-López 小组^[11]利用白光干涉测量的结果比较接近。我们的实验是利用脉冲自相关技术直接测量脉冲经过光子晶体的时间延迟,通常来讲这种实验方法适合于厚样品。然而,由于样品的质量较好,我们在很薄的样品中同样观测到了明显的脉冲延迟。此外,我们得到的自相关信号相比于文献[12]中给出的信号平滑很多,而且

测量得到的慢光速比较小。

为了进一步验证实验结果的可靠性,我们用美国 Rsoft 公司开发的光子晶体数值模拟软件对短脉冲在三维光子晶体中的群速度进行了时域有限差分(FDTD)模拟计算。在数值模拟中取光子晶体结构的[111]方向为 z 轴方向,该方向的网格尺寸为晶格常数的六分之一。 x 轴和 y 轴方向的网格尺寸为晶格常数的四分之一,计算区域的边界采用完美匹配边界条件(PML)。由于计算机内存的限制,我们无法采用更高的网格精度,因此透射谱数值模拟结果与实验测量结果仍然存在一定的偏差。但是它们在我们感兴趣的短波长带边和带隙区域还是基本符合的。在数值模拟中我们通过比较没有样品和有样品时脉冲到达探测器的时间差来推算出脉冲在光子晶体中的群速度。从图5可以看出实验测得的群速度在短波长带边和带隙的变化规律与 FDTD 数值模拟的结果是基本一致的。此外,尽管在数值模拟和实验测量中群速度极小值和极大值出现的波长稍有不同,但是群速度的整体变化趋势是一致的,即在带边出现慢光速,在带隙出现超光速。从图5中还可以看到数值模拟的群速度略大于实验测量的数值,这可能是因为在数值模拟中网格划分精度的影响。另外,我们看到随着样品层数的增加,慢光速和超光速效应变得愈加明显。但是,当层数增大到一定数量后,群速度的变化不再显著。在实际的样品生长过程中,随着厚度增加缺陷密度通常也会同时增加。

在光子晶体中,带隙是由于晶格对光子的多次相干散射产生的。在带边可以观察到群速度的减小,并且随着样品厚度的增加群速度应该变得越来越小。但实际样品中由于缺陷和位错的存在,即便是在很厚的样品中也很难观测到很小的群速度。为了更好地理解缺陷和位错引起的非相干散射对光子晶体慢光速效应的影响,一些小组^[10-13]通过在光子晶体中引入损耗来等效地模拟非相干散射对群速度的影响。

4. 结论

我们利用 PCIHVD 技术制备了高质量的三维胶体光子晶体样品,并且利用脉冲自相关的技术研究了其中的慢光速和超光速现象,在带边观测到低至 $0.43c$ 的慢光速同时在带隙观测到高至 $1.34c$ 的超光速,显示我们的样品具有很好的均匀性和很低的

缺陷密度. 同时, 实验结果与 FDTD 数值模拟的结果非常符合. 我们的实验结果说明, 在光子晶体带边要

获得明显的慢光速和非线性增强效应, 样品的质量比样品厚度具有更加关键的作用.

- [1] Yablonovitch E 1987 *Phys. Rev. Lett.* **58** 2059
- [2] John S 1987 *Phys. Rev. Lett.* **58** 2486
- [3] Noda S , Baba T 2003 *Roadmap on Photonic Crystals* (London , Kluwer Academic Publishers)
- [4] Joannopoulos J D , Villeneuve P R , Fan S H 1997 *Nature* **386** 143
- [5] Painter O , Lee R K , Scherer A , Yariv A , O'Brien J D , Dapkus P D , Kim I 1999 *Science* **284** 1819
- [6] Gersen H , Karle T J , Engelen R J P , Bogaerts W , Korterik J P , van Hulst N F , Krauss T F , Kuipers L 2005 *Phys. Rev. Lett.* **94** 0739030
- [7] Sauvan C , Lalanne P , Hugonin J P 2005 *Phys. Rev. B* **71** 165118
- [8] Lan S , Nishikawa S , Hiroshi Ishikawa , Wada O 2001 *J. Appl. Phys.* **90** 4321
- [9] Liu H Y , Lan S , Wu L J , Guo Q , Hu W , Liu S H 2007 *Appl. Phys. Lett.* **90** 213507
- [10] Freymann G V , John S , Wong S , Kitaev V , Ozin G A 2005 *Appl. Phys. Lett.* **86** 053108
- [11] Galisteo-López J F , Galli M , Patrini M , Balestreri A , Andreani L C , López C 2006 *Phys. Rev. B* **73** 125103
- [12] Vlasov Yu A , Petit S , Klein G , Hönerlage B , Hirlmann Ch 1999 *Phys. Rev. E* **60** 1030
- [13] Imhof A , Vos W L , Sprak R , Lagendijk A 1999 *Phys. Rev. Lett.* **83** 2942
- [14] Russell P St J 1986 *Phys. Rev. A* **33** 3232
- [15] Zengerle R 1987 *J. Mod. Opt.* **34** 1589
- [16] Netti M C , Charlton M D B , Parker G J , Baumberg J J 2000 *Appl. Phys. Lett.* **76** 991
- [17] Zheng Z Y , Liu X Z , Luo Y H , Cheng B Y , Zhang D Z , Meng Q B , Wang Y R 2007 *Appl. Phys. Lett.* **90** 051910
- [18] Norris D J , Vlasov Y A 2001 *Adv. Mater.* **13** 371
- [19] Liu Y H , Hu X Y , Zhang D X , Cheng BY , Zhang D Z , Meng Q B 2005 *Appl. Phys. Lett.* **86** 151102
- [20] Feng T H , Dai Q F , Wu L J , Guo Q , Hu W , Lan S 2008 *Chin. Phys. B* **17** 4533

Experimental investigation of the slow light and superluminal effects in high-quality three-dimensional colloidal photonic crystals^{*}

Liu Hai-Ying Meng Zi-Ming Dai Qiao-Feng Wu Li-Jun Lan Sheng[†] Liu Song-Hao

(Laboratory of Photonic Information Technology , School for Information and Optoelectronic Science and Technology , South China Normal University , Guangzhou 510006 , China)

(Received 3 September 2008 ; revised manuscript received 17 November 2008)

Abstract

We investigated by time-of-flight technique the slow light and superluminal effects in high-quality three-dimensional (3D) colloidal photonic crystals (PCs) with opal structure , fabricated by pressure controlled isothermal vertical deposition technique. They produce high transmission in the pass bands and sharp band edges due to low volume density of defects and dislocations. The variation of the group velocity across the short-wavelength band edge was measured. Group velocity as low as $0.43c$ was observed near the band edge while group velocity as high as $1.34c$ was found in the band gap. We have also simulated the transportation of ultrashort pulses through 3D PCs and compared the simulation results with the experimental ones.

Keywords : three-dimensional colloidal photonic crystal , slow light , superluminal , autocorrelation

PACC : 4270Q , 7820P

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 10674051) , the Natural Science Foundation of Guangdong Province of China (Grant No. 06025082) , and the Program for Innovative Research Team of the Higher Education in Guangdong (Grant No. 06CXTD005).

† E-mail :lan@scnu.edu.cn