

# 聚苯乙烯微粒光子晶体的反常透过特性\*

陈红艺 郭红莲† 倪培根 张琦 程丙英 张道中

(中国科学院物理研究所和凝聚态物理中心光物理实验室,北京 100080)

(2002 年 12 月 4 日收到)

在实验上发现了  $3\mu\text{m}$  聚苯乙烯(PS)小球光子晶体在 350nm 至 900nm 波长上的透过率的周期扰动.根据透过率曲线的周期扰动的峰谷值判断,这种周期性透过率特性是基于 PS 小球的 whispering-gallery-mode(WGM)共振,而不是源于米氏散射或布拉格衍射.实验表明,周期性排列小球在非带隙区域对光的传输同样有一定的影响.这一结果对光子晶体薄膜的应用提供了新的可能性.

关键词:光子晶体,透过率,whispering-gallery-mode 共振

PACC:4210,4225B,4270

## 1. 引 言

近年来,随着三维光子晶体制作技术的不断进步,对三维光子晶体的各种光学现象的研究也越来越多.这对于深入了解光子晶体的光传输特性以及开拓新的应用领域有重要意义.在这些研究中,对自组织形成的三维光子晶体薄膜的光学特性的研究则更深入一些<sup>[1-19]</sup>.这是因为这种光子晶体比较容易制成单晶的晶相结构,用它们做的实验结果可以与理论预言作很好的比较.另一方面,由于薄膜的透光特性好,在带隙及非带隙区域可以得到细致的透过率谱结构.这样会更加明了各种不同的光学现象的起因.比如周期结构的布拉格反射,它是光子带隙存在的根本原因,米氏散射(Mie scattering)<sup>[20]</sup>在传播波长与球直径相当时起重要的散射作用;whispering-gallery-mode(WGM)共振模在小球折射率比周围介质非常高的情形下,有非常强的导波特性的.一般这些光学现象在光子带隙及带隙边缘较为明显.本文报道在远离光子带隙的短波段也观察到了峰间间隔随波长变化的光子晶体透射谱的周期扰动.其结果与 Furukawa 和 Tenjimbayashi 在一串周期排列聚苯乙烯(PS)小球中观测到导波耗散的结果起因相同<sup>[21]</sup>;即它们的周期都满足 WGM 的共振条件.

## 2. 实 验

实验是在三层的三维 PS 微粒光子晶体薄膜上完成的.光子晶体薄膜是在显微镜盖玻片制成的样品池中用自组织法制成的.样品池直径为 8mm,深度为  $180\mu\text{m}$ .使用的 PS 小球为 Duke 公司(Duke Scientific Corp.)的产品.小球直径为  $3.063\mu\text{m}$ ,标准误差为  $\pm 0.027\mu\text{m}$ .将原浓度的 PS 小球(1.0%)悬浮液滴入样品池,然后将样品池放入玻璃器中让其中的液体慢慢挥发,待液体完全挥发前,再滴入同样浓度的 PS 悬浮液.以上过程重复几次,直到在样品池中心区域形成三层的光子晶体薄膜为止.图 1 给出了扫描电子显微镜下拍摄到的平行于样品池表面的晶格结构.为便于辨别其结构,我们选取了一块有裂隙的地方进行观察.图中六边形代表(111)面,四边形代表(110)面.

图 1 表明,这个光子晶体薄膜具有面心立方的结构,它的第一个光子带隙位于波长为  $7\mu\text{m}$  左右.薄膜透过率的测试是在微区透射光谱仪上进行的.样品的照明光源为 50W 卤钨灯.实验时,首先使照明灯光通过前后共焦放置的 2 个 10 倍的显微镜物镜.通过调节后物镜与前物镜之间的相对位置,使得在后物镜的出光方向后约 20cm 处形成灯丝的像.在灯丝像处放一个焦距为 10cm 的聚光透镜,将光聚入

\* 国家自然科学基金(批准号:1989380)资助的课题.

† 通信联系人.

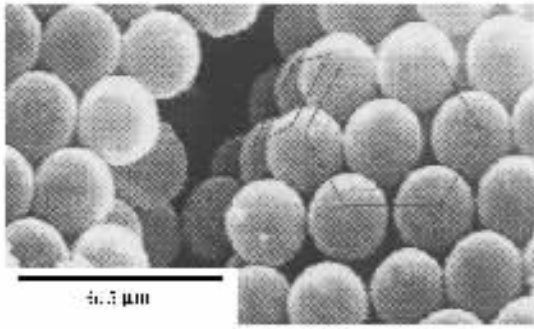


图1 自组织聚苯乙烯微结构的扫描电子显微镜照片(六边形表示(111)平面,平行四边形表示(110)平面)

光谱仪狭缝.光谱仪的分光信号由光电倍增管接收,由倍增管输出的信号被接入SR510锁相放大器.锁相放大器的参考信号来源于放置在灯源和前物镜之间的斩波器.在共焦显微透镜和斩波器之间放入一个 $\phi 5\text{mm}$ 的小孔光阑,以减小光束发散角和光学噪声.锁相放大器的输出信号和光谱仪的光栅转动通过微型计算机接收和控制.在测量时,将样品池放置于共焦物镜的焦点上,微调样品池与后聚光物镜的位置,使得样品成像在聚光透镜前方并且最清晰.实验中,可以横向或上下移动样品池以测量光子晶体薄膜不同区域的透过率特性.我们在近紫外到近红外波段(350—900nm)测量了光子晶体薄膜的透过率.

### 3. 实验结果与分析

去除本底以后光子晶体薄膜的透过率  $T$  随波长  $\lambda$  变化的关系曲线如图2所示.由图2可以清楚看出,1)透过率曲线存在明显的周期扰动.2)变化周期不是一个常数,它随波长的增加而变大.3)这种周期变化的调制幅度不大.当移动样品池测量光子晶体薄膜不同位置的透过率时,得到了完全类似的结果.在不同样品池中制备的光子晶体薄膜的透过率也有完全类似的周期变化关系.

每次测量中,出现峰值的波长位置都相同.这种周期扰动可能有三种起因,即光子晶体薄膜的布拉格衍射、Mie 散射峰结构以及 WGM 导波模式.首先分析光子晶体薄膜的布拉格衍射.PS 小球光子晶体为面心立方结构,紧贴玻璃基片的一面为(111)面.这一晶面的面间距  $d_{111} = \sqrt{8/3}r = 2501\text{nm}$ .由布拉格衍射条件  $2nd\cos\theta = m\lambda$ .其中,  $\lambda$  为真空中波长,  $m$

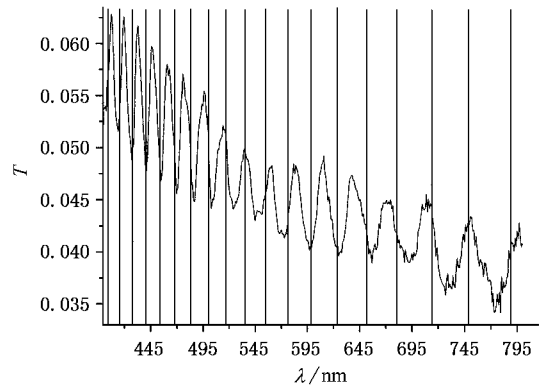


图2 400到800nm范围内光子晶体薄膜的透过率曲线(图中竖线为根据WGM共振条件  $2\pi nr = m\lambda$  计算的共振峰位置)

为正整数,  $n$  为介质平均折射率,为  $n = \sqrt{n_1^2 V_1 + n_2^2 V_2}$ .其中,  $n_1, V_1$  分别为空气的折射率和体积占有分数,  $n_2, V_2$  为PS体材料的折射率和体积占有分数.体材料的  $n_2 = 1.59^{[22]}$ ,可算得  $n = 1.44$ . $\theta$  为入射光线与法线夹角,实验中,  $\theta$  值近似为零度.以610nm附近的峰值为例,根据布拉格衍射公式,610nm处相邻的两波峰值的波长差应为46nm和55nm.根据实验数据,它与相邻两侧的波峰值之间的波长差分别为26nm和29nm.由此可知布拉格衍射决定的峰峰之间的波长差远大于实验测量到的值.另的波长处的峰峰差和由布拉格衍射理论计算结果的差异也非常明显.可见这种周期性的透过率的周期扰动不可能是由这一晶面的布拉格衍射形成.别的方向上的布拉格衍射由于偏角太大,显微光谱仪探测不到这一信号.另一方面,布拉格衍射的强度随着  $m$  值,即衍射级次的增大急剧减小,而我们实验观察到的透过率起伏的幅度从短波到长波变化缓慢.可见,透过率的周期性扰动的起因应与晶格的布拉格衍射无关.

下面进一步讨论由通常的米氏散射造成这种现象的可能性.对半径和折射率一定的介质小球米氏散射截面随波长的改变会有所起伏.当波矢与小球直径的乘积为1时,散射截面最大.而在我们的实验条件下,这一乘积接近20,已经接近几何光学的范围,因此散射截面要降低很多.另外,米氏散射截面仅对于单个小球的计算有效,对于周期紧排列的小球,米氏散射的结果已不再适用.因此可以认为实验中明显的周期性扰动应与单个米氏散射没有直接关系.

第三种起因是WGM共振腔模的导波传播.单

个的聚苯乙烯小球可以认为是一个介电球体共振腔.当球在空气中处于悬浮状态时,由于球体的折射率比周围空气的折射率要大,满足共振条件的波在球内发生全内反射而不易逸出.当小球与另一相同直径的小球接触时,小球之间产生偶极相互作用,使得具有共振模频率的光波从一个球体传入另一个球体,这就形成了共振腔模的导波传播.在球形波导之间形成共振模的传播,其波长需要满足  $2\pi nr = m\lambda$  这一条件.其中  $n$  为小球的有效折射率,  $r$  为小球半径,  $m$  为正整数,  $\lambda$  为真空中光波长.理论上给出的相邻  $m$  值的导波模之间的波长差  $\Delta\lambda_m = \lambda_m / (m \pm 1)$  与实验值符合得很好.同样以 610nm 处的峰值为例,它与相邻两峰之间的波长差为 26nm 和 29nm,正好与  $m$  值为 24 的共振峰与两侧的共振峰的波长差一致.这说明我们观察到的透过率的扰动是来源于 WGM 共振模的传播.需要指出的是从实验测得的一连串波峰值之间的波长差值可以推断出小球的折射率与体材料的折射率符合得很好,这与 Furukawa 和 Tenjimbayashi 的实验结果有些不同,从他们的结果推断出的小球的有效折射率小于体材料的折射率.

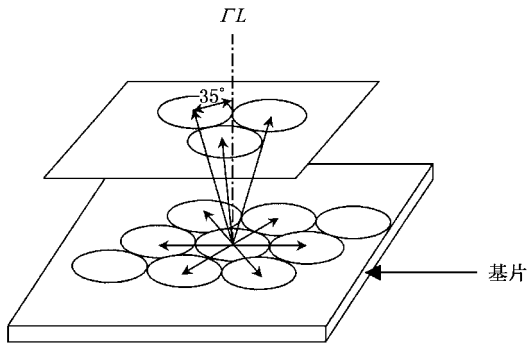


图3 WGM的传播路径(每一个圆代表一个球,箭头代表了9个导波通道.以中心小球为例,它在(111)平面内有6个最近邻小球,还有3个小球以120°对称分布在圆锥上,圆锥锥角为偏离 $\Gamma L$ 方向35°)

正如前面所提出的两连接小球之间会发生共振

模式的传播.如图3所示,薄膜中紧贴玻璃衬底的小球最近邻的小球有9个.若以中心小球的球心为原点,则其中三个最近邻小球的球心分布在以原点为顶点以 $\Gamma L$ 方向为轴的锥面上,且这三个球均匀分布在垂直于轴的截面与此锥面的截圆上,与 $\Gamma L$ 方向的夹角为35°.这就形成了三个对称的导波通道.另6个最近邻的小球分布在垂直于 $\Gamma L$ 方向且通过原点的平面内,它们的球心相对于原点的连线之间的夹角为60°,形成6个简并导波通道.在光子晶体薄膜中沿 $\Gamma L$ 方向的透射强度为大的本底信号,而小的周期扰动则可能是由光沿着偏离 $\Gamma L$ 方向35°的3个简并导波通道和垂直于 $\Gamma L$ 方向的6个简并导波通道传播的结果.显然偏离 $\Gamma L$ 方向35°的导波方向由于与本底信号传播的方向相近,沿这些方向传播的光可以被聚光镜收集.而对于偏离 $\Gamma L$ 方向90°的导波通道,则由于导波方向与本底信号传播方向垂直,沿这些方向传播的光不能被聚光镜收集.

需要指出的是图2中由WGM共振条件计算出的共振峰位与实验值之间在长波段存在一定的差别,这是因为WGM共振公式是一种简化的形式,只有当 $m$ 值较大时,即在短波段,WGM共振条件才能用 $2\pi nr = m\lambda$ 近似.其精确解应由球形介质谐振器的亥姆霍兹方程解出<sup>[23]</sup>,但由于此方程较为复杂,且很难给出数值解,故用一简化的形式跟实验作一比较,显然这种近似会带来一定的误差.

## 4. 结 论

我们首次在实验上观察到光子晶体非带隙区域由于WGM共振导致的光子晶体透过率的周期性扰动,并确认起因是周期性排列小球WGM共振模的导波传播.这个结果表明,由周期排列的小球构成的光子晶体,在其非光子能隙区域的光子传输有其独特的性能.它会对这类材料的应用提供新的可能性.

- [1] Srinivasarao M, Collings D, Philips A and Sanjay Patel 2001 *Science* **292** 79
- [2] Wijnhoven J E and Vos W L 1998 *Science* **281** 302
- [3] Ye Y H, LeBlanc F, Haché A and Truong V V 2001 *Appl. Phys. Lett.* **78** 52
- [4] Rengarajan R, Jiang P, Colvin V and Mittleman D 2000 *Appl. Phys. Lett.* **77** 3517

- [5] Romanov S G 1998 *J. Nonlinear Opt. Phys. & Mater.* **7** 181
- [6] Zhang W Y, Lei X Y, Wang Z L, Zheng D G, Tam W Y, Chan C T and Sheng P 2000 *Phys. Rev. Lett.* **84** 2853
- [7] Thijssen M S, Sprik R, Wijnhoven J E, Megens M, Narayanan T, Lagendijk A and Vos W L 1999 *Phys. Rev. Lett.* **83** 2730
- [8] Xia Y N, Gates B, Yin Y D and Lu Y 2000 *Adv. Mater.* **12** 693
- [9] Cheng B Y, Ni P G, Jin C J, Li Z L, Zhang D Z, Dong P and Guo

- X C 1999 *Opt. Commun.* **170** 41
- [ 10 ] Zhao X M , Xia Y N , Qin D and Whitesides G M 1997 *Adv. Mater.* **9** 251
- [ 11 ] Richel A and Johnson N P 2000 *Appl. Phys. Lett.* **76** 1816
- [ 12 ] Hirayama H , Hamano T and Aoyagi Y 1996 *Appl. Phys. Lett.* **69** 791
- [ 13 ] Kosaka H , Kawashima T , Tomita A , Notomi M , Tamamura T , Sato T and Kawakamib S 1999 *Appl. Phys. Lett.* **74** 1370
- [ 14 ] Pertrov E P , Bogonolov V N , Kalosha I I and Gaponenko S V 1998 *Phys. Rev. Lett.* **81** 77
- [ 15 ] Koroteev N I , Magnitskii S A , Tarasishin A V and Zheltikov A M 1999 *Opt. Comm.* **159** 191
- [ 16 ] Brown E R , Parker C D and Yablonovitch E 1993 *J. Opt. Soc. Am. B* **10** 404
- [ 17 ] Fan S H , Villeneuve P R and Joannopoulos J D 1997 *Phys. Rev. Lett.* **78** 3294
- [ 18 ] Kopp V I 1998 *Opt. Lett.* **23** 1707
- [ 19 ] Miguez H , Lopez C , Meseguer F , Blanco A , Vazquez L , Mayoral R , Ocana M , Fomes V and Mifsud A 1997 *Appl. Phys. Lett.* **71** 1148
- [ 20 ] Ridorikis E , Sigalas M M , Economou E M and Sonkoulis C M 2000 *Phys. Rev. B* **61** 13458
- [ 21 ] Furukawa H and Tenjimbayashi K 2002 *Appl. Phys. Lett.* **80** 192
- [ 22 ] Bass M , Stryland E W , Williams D R and Wolfe W L 1995 *Handbook of Optics* ( McGRAW-HILL , INC. ) II p34.7
- [ 23 ] Li Y 1988 *The theory and application of electromagnetic resonator* ( Publishing House of Electronics Industry ) p54 ( in Chinese [ 李英 1988 电磁介质谐振器理论与应用( 电子工业出版社 )第 54 页 ]

## The abnormal transmittance of polystyrene photonic crystals<sup>\*</sup>

Chen Hong-Yi Guo Hong-Lian Ni Pei-Gen Zhang Qi Cheng Bing-Ying Zhang Dao-Zhong

( *Optical Physics Laboratory , Institute of Physics and Centre for Condensed Matter Physics ,  
Chinese Academy of Sciences , Beijing 100080 , China* )

( Received 4 December 2002 )

### Abstract

The periodic disturbance in transmittance of the polystyrene photonic crystal with a diameter of  $3\mu\text{m}$  is observed in our experiment. According to the peak-to-peak intervals of the periodic disturbance , it can be seen that the periodic disturbance does not come from Mie scattering or Bragg diffraction , but from the propagation of whispering gallery mode in polystyrene spheres. The results show new potential applications of photonic crystals.

**Keywords** : photonic crystal , transmittance , resonance of whispering-gallery-mode

**PACC** : 4210 , 4225B , 4270

<sup>\*</sup> Project supported by the National Natural Science Foundation of China( Grant No. 1989380 ).