

Основное содержание диссертации отражено в следующих работах:

1. Yu.A. Vlasov, V.N. Astratov, A.V. Baryshev, A.A. Kaplyanskii, O.Z. Karimov and M.F. Limonov. "Manifestation of Intrinsic Defects in Optical Properties of Self-organized Opal Photonic Crystal", *Physical Review* **E 61**, 5, 5784 (2000).
2. А.В. Барышев, А.В. Анкудинов, А.А. Каплянский, В.А. Кособукин, М.Ф. Лимонов, К.Б. Самусев, Д.Е. Усвят. «Оптическая характеристика синтетических опалов», *ФТТ* **44**, 1573 (2002).
3. A.V. Baryshev, A.A. Kaplyanskii, V.A. Kosobukin, M.F. Limonov, K.B. Samusev, and D.E. Usvyat. «Three-dimensional Bragg diffraction in growth-disordered opals», *Nanostructures: Physics and Technology*, p. 120 (St Petersburg, June, 2002).
4. A.V. Baryshev, A.A. Kaplyanskii, V.A. Kosobukin, M.F. Limonov, K.B. Samusev, and D.E. Usvyat. Bragg diffraction of light in high-quality synthetic opals, p. 162 (ICSNN 2002, July, Toulouse, France).
5. А.В. Барышев, А.А. Каплянский, В.А. Кособукин, М.Ф. Лимонов, К.Б. Самусев, Д.Е. Усвят. «Наблюдение Брэгговской дифракции света в искусственных опалах», стр. 91 (Международный оптический конгресс «Оптика XXI век», С. Петербург, 2002).
6. А.В. Барышев, А.А. Каплянский. «Структурный беспорядок в фотонных кристаллах на основе синтетических опалов», стр. 15, (ВМН конференция по физике полупроводников и полупроводниковой опто- и наноэлектронике, С.-Петербург, 1999).
7. A.V. Ankudinov, A.V. Baryshev, Yu.E. Kitaev, M.F. Limonov, G.N. Yushin. «Structural disorder in photonic crystals of synthetic opals», p. 25 (Optics-99, International symposium, 1999).

Цитируемая литература:

1. E. Yablonovitch. *Phys. Rev. Lett.* **58**, 2059 (1987); S. John. *Phys. Rev. Lett.* **58**, 2486 (1987).
2. V.N. Astratov, V.N. Bogomolov, A.A. Kaplyanskii, A.V. Prokofiev, L.A. Samoilovich, S.M. Samoilovich, Yu.A. Vlasov. *Nuovo Cimento* **D17**, 1349 (1995).
3. Yu.A. Vlasov, X.-Z. Bo, J.C. Sturm, and D.J. Norris. *Nature* **414**, 289 (2001).
4. A.A. Zakhidov, R.H. Baughman, Z. Iqbal, C. Cui, I. Khairulin, S.O. Dantas, J. Marti, V.G. Ralchenko. *Science* **282**, 897 (1998).
5. В.Г. Голубев, В.А. Кособукин, Д.А. Курдюков, А.В. Медведев, А.Б. Певцов. *ФТП* **35**, 6, 710 (2001).
6. Денискина Н.Д., Калинин Д.В., Казанцева Л.К. *Благородные опалы, их синтез и генезис в природе*. Новосибирск, Наука (1980).
7. C. Kittel. *Introduction to Solid State Physics*. USA, John & Sons Inc. (1955).

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Актуальность темы. Исследование фотонных кристаллов – одно из самых молодых направлений в физике твердого тела. Фотонными кристаллами называются слабопоглощающие структуры, которые характеризуются периодической модуляцией диэлектрической проницаемости $\epsilon(x,y,z)$ с периодом, сравнимым с длиной электромагнитных волн, и запрещенной зоной в частотном спектре собственных электромагнитных состояний [1]. Образование фотонной запрещенной зоны связано с брэгговской дифракцией блоховских световых волн на периодически модулированной диэлектрической решетке и описывается теоретически по аналогии с образованием электронной зонной структуры. В зависимости от симметрии кристаллической структуры и от глубины модуляции диэлектрической проницаемости возможно образование одномерных стоп-зон в некоторых заданных направлениях в кристалле, либо трехмерной (полной) запрещенной фотонной зоны для всех направлений распространения света.

Проблематика, связанная с фотонными кристаллами, включает в себя целый ряд оригинальных задач фундаментального и прикладного характера, таких как изучение новых возможностей управления световыми потоками, подавление спонтанного излучения из образца, локализованные фотонные состояния. Фотонные кристаллы рассматриваются как перспективные материалы для использования в лазерных технологиях, для создания принципиально новых систем оптической связи и обработки информации (оптический компьютер).

Следует отметить, что создание трехмерных фотонных структур для видимой области спектра представляет собой сложную технологическую задачу. В настоящее время известно лишь несколько типов структур, обладающих фотонными стоп-зонами в видимой области. В 1995 г. группой сотрудников ФТИ им. А.Ф. Иоффе было экспериментально продемонстрировано, что в опалах (структуры, образованные плотноупакованными шарами аморфного кварца $a\text{-SiO}_2$ с диаметром порядка сотен нанометров) возникают стоп-зоны, наблюдаемые непосредственно в оптических спектрах [2]. Эта публикация положила начало активным исследованиям фотонных структур на основе опалов [3], инвертированных опалов [4], а также композитов опал/полупроводник [5]. Однако в этих работах измерения стоп-зон проводились лишь при распространении света вдоль нескольких высокосимметричных кристаллографических направлений, что недостаточно для получения фотонной структуры опалов во всей зоне Бриллюэна (аналогичная ситуация сложилась с исследованием других фотонных структур для видимой области, зонные структуры которых также не изучены). Таким образом, экспериментальное измерение фотонной зонной структуры опалов является актуальной задачей, какой была в свое время задача определения электронной зонной структуры полупроводников и других твердых тел.

Основными целями настоящей работы являлись:

- Экспериментальное исследование запрещенной фотонной зоны синтетических опалов во всех высокосимметричных точках на поверхности зоны Бриллюэна, т.е. определение фотонной зонной структуры опалов.
- Детальное сравнение экспериментальных данных с зависимостями, полученными из теории брэгговской дифракции световых волн на различных «атомных» плоскостях кристаллической решетки опалов.
- Изучение трехмерной дифракции света на синтетических опалах.
- Исследование реальной кристаллической структуры опалов.

Научная новизна работы заключается в следующем:

- Экспериментально определена фотонная зонная структура опалов.
- В настоящей работе впервые проведено детальное исследование трехмерной дифракции света в синтетических опалах и её спектральной зависимости. (В опубликованных ранее работах по оптическим свойствам опалов авторы ограничивались исследованием спектров пропускания и отражения света.)
- Впервые продемонстрировано, что дифракционные картины позволяют визуализировать фотонную структуру синтетических опалов.

Основные положения, выносимые на защиту:

1. В структуре синтетических опалов ростовые гексагональные слои (111) имеют высокую степень упорядоченности на макроскопическом масштабе (сотни микрон). Наиболее однородные области исследованных образцов имеют двойникованную гранецентрированную кубическую (ГЦК) структуру с коэффициентом корреляции упаковки $p = 0.8$. Неоднородность структуры опалов наблюдается вдоль оси их роста [111].
2. Фотонные кристаллы на основе синтетических опалов представляют собой трехмерную дифракционную решетку для видимого света. Рассеяние света на опалах наблюдается в виде характерных систем дифракционных рефлексов и является аналогом рассеяния рентгеновских лучей в твердых телах.
3. В картинах рассеяния монохроматического света интенсивные рефлексы являются результатом брэгговской дифракции на системах «атомных» плоскостей {111} в двойникованной гранецентрированной кубической структуре опалов.
4. Зависимость фотонных стоп-зон от волнового вектора света \mathbf{K} (закон дисперсии запрещенной фотонной зоны) определяется условиями брэгговской дифракции света на системах плотноупакованных плоскостей {111} двойникованной гранецентрированной кубической структуры опалов.
5. Дифракционные картины позволяют визуализировать красную границу запрещенной фотонной зоны опалов. Полосы в спектрах пропускания полностью обусловлены дифракцией света на опалах.

Достоверность и надежность результатов работы обеспечены хорошим согласованием данных, полученных разными методиками (дифракция, отражение, пропускание света и атомно-силовая микроскопия (АСМ)), а также совпадением экспериментальных данных с результатами теоретических расчетов.

тонным стоп-зонам) коррелируют со спектрами брэгговской дифракции света на структуре опалов. Это соответствие было проверено экспериментально в разделе 3.2. Следовательно, мы можем перекинуть мост между спектроскопическими исследованиями фотонной зонной структуры и визуальными наблюдениями дифракционных картин. Действительно, в дифракционных экспериментах визуально наблюдаются различные проявления фотонной зонной структуры опалов. Более того, изучая на экране пространственную картину дифракции, мы получаем информацию не только об энергии стоп-зон, но и об ориентации соответствующих им брэгговских плоскостей, т.е. такую информацию, которую невозможно извлечь из одного отдельно взятого спектра пропускания. Таким образом, эксперименты по изучению дифракции света на структуре синтетических опалов позволяют фактически *визуализировать* фотонную стоп-зону, т.е. непосредственно на экране наблюдать фотонную зонную структуру при освещении образца вдоль различных кристаллографических направлений.

В заключении перечислены основные выводы и результаты работы.

1. Проведено комплексное исследование структуры синтетических опалов. Установлено, что ростовые гексагональные слои (111) имеют высокую степень упорядоченности расположения сферических частиц $\alpha\text{-SiO}_2$ на макроскопическом масштабе (сотни микрон). Структура опалов вдоль оси роста (направление [111]) неоднородна из-за случайного расположения ростовых слоёв (111) относительно друг друга. Наиболее однородные области исследованных образцов имеют двойникованную гранецентрированную кубическую структуру с коэффициентом корреляции упаковки $p = 0.8$.
2. Экспериментально показано, что фотонные кристаллы на основе синтетических опалов представляют собой трехмерную дифракционную решетку для видимого света. Рассеяние света на опалах наблюдается в виде характерных систем дифракционных рефлексов (пятен либо окрашенных полос) и является аналогом рассеяния рентгеновских лучей на кристаллических структурах.
3. Экспериментальные результаты хорошо описываются теорией дифракции света в опалах (В.А.Кособукин, Д.Е.Усвят). В картинах рассеяния света интенсивные рефлексы являются результатом брэгговской дифракции на плоскостях {111} двойникованной гранецентрированной кубической решетки. Спектрально-угловое уширение рефлексов обусловлено одномерным беспорядком в упаковке ростовых слоев вдоль оси роста образца.
4. Измерены спектры оптического пропускания при распространении света по всем основным кристаллографическим направлениям в двойникованной гранецентрированной кубической структуре синтетических опалов. На основе измеренных спектров пропускания впервые определена фотонная зонная структура синтетических опалов на всей поверхности зоны Бриллюэна.
5. Дисперсия запрещенной фотонной зоны в опалах хорошо описывается соотношением, соответствующим условию брэгговской дифракции света на системах плоскостей двойникованной гранецентрированной кубической решетки с доминирующей ролью плоскостей {111}.
6. Результаты измерения спектров пропускания хорошо согласуются с результатами дифракционных экспериментов. Дифракционные картины позволяют визуализировать красную границу запрещенной фотонной зоны опалов.

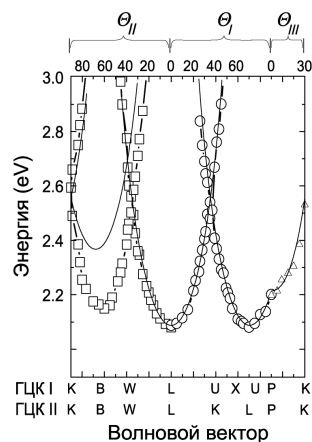


Рис. 11. Экспериментальная зависимость энергетического положения минимумов полос в спектрах пропускания. Кружки – сканирование (с1), квадратики – (с2), треугольники – (с2). Непрерывные кривые - расчет.

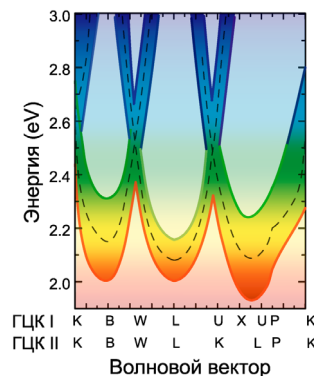


Рис. 12. Дисперсии фотонных стоп-зон при сканировании «модельной» зоны Бриллюэна синтетического опала с двойникованной ГЦК структурой (параметры образца $d_{(111)} \cdot n_{eff} \approx 300$ nm).

На основе спектров пропускания построена схема фотонной зонной структуры синтетических опалов (рис.12). На этом рисунке сплошными линиями показаны края фотонных стоп-зон $E_{min}(K)$ и $E_{max}(K)$ (которые определялись по ширине полос в спектрах пропускания), а штриховой кривой - дисперсионная зависимость центров стоп-зон $E_0(K)$. Между кривыми $E_{min}(K)$ и $E_{max}(K)$ дана интенсивная цветовая заливка, иллюстрирующая энергетическое положение стоп-зон в видимом спектральном диапазоне для образца с параметром $d_{(111)} \cdot n_{eff} \approx 300$ nm. Слабый цветовой фон отражает наличие диффузного рассеяния на дефектах структуры опалов.

В разделе 5.5 обсуждается соотношение между фотонной зонной структурой и брэгговской дифракцией света. Поскольку оптическое поглощение в опалах мало, то спектр пропускания $T(K, K')$ в области брэгговской дифракции является дополнительным к спектру отражения и, следовательно, выражается формулой

$$T(K, K') = 1 - \sum_b I(K' - K), \quad (5)$$

где $I(K' - K)$ – интенсивность дифракции – формула (2), а суммирование по векторам обратной решетки b означает учет всех процессов брэгговской дифракции, определяемых уравнением $K' = K + b$. Таким образом, теоретически наблюдаемые полосы в спектрах пропускания (соответствующие фо-

Практическая ценность диссертационной работы состоит в следующем:

- В работе показано, что на основе исследования дифракции света и спектров пропускания удается получить важную информацию о ростовых особенностях реальной структуры опалов.

- Предложен простой метод визуализации фотонной зонной структуры путем наблюдения трехмерных картин дифракции света на синтетических опалах.

- Продемонстрировано, что синтетические опалы в принципе позволяют управлять световыми потоками. (Пример расщепления падающего светового пучка на несколько дифрагированных, в зависимости от геометрии рассеяния и длины волны.)

Апробация работы. Основные результаты диссертации докладывались на российских и международных конференциях: International symposium «Optics-99» (Санкт-Петербург, 1999); APS March meeting Abstracts (USA, 1999); BMN конференция по физике полупроводников и полупроводниковой опто- и наноэлектронике (Санкт-Петербург, 1999); 10th International Symposium Nanostructures: Physics and Technology (St.-Petersburg, 2002); International conference on superlattices, nano-structures and nano-devices, ICSNN 2002 (France, Toulouse, 2002); Международный оптический конгресс «Оптика XXI век» (Санкт-Петербург, 2002) и обсуждались на научных семинарах в Санкт-Петербургском Государственном Университете, Физико-Техническом Институте им. А.Ф. Иоффе РАН, Технологическом Университете г. Тойохаши (Япония).

Публикации. По материалам диссертации опубликовано 7 печатных работ.

Структура и объем диссертации. Диссертация состоит из введения, пяти глав, заключения, приложения и списка цитируемой литературы (содержит 172 страницы, 71 рисунок и 68 библиографических ссылок).

СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

Во введении даны определение фотонных кристаллов и их классификация, обоснована актуальность тематики и описана структура диссертации.

В первой главе представлены обзор литературы, содержащий краткое теоретическое описание электронной зонной структуры в твердых телах и фотонной зонной структуры в диэлектриках с периодической модуляцией диэлектрической проницаемости; результаты работ, посвященных экспериментальным исследованиям фотонных кристаллов на основе коллоидных систем, синтетических опалов, композитов опал-полупроводник и инвертированных опалов; данные по оптическим исследованиям природных опалов. На основе анализа литературных данных сформулированы цель и задачи диссертационной работы.

Во второй главе описаны технология роста синтетических опалов, способ подготовки исходных образцов к оптическим исследованиям, а также использованные экспериментальные методики. В данной работе исследовались образцы синтетических опалов, выращенные С. М. Самойловичем в Институте синтеза минерального сырья (г. Александров) по технологии [6].

В разделе 2.1 рассматриваются возможные типы упаковки частиц $\alpha\text{-SiO}_2$, образующих трехмерную структуру опалов в процессе их гравитационного осаждения. При осаждении частиц $\alpha\text{-SiO}_2$ вдоль оси роста образцов может формироваться неоднородная структура, поэтому особое внимание уделяется описанию способов распиливания исходных образцов на пластинки, каждая из которых соответствовала определенной области исходного неоднородного образца.

В разделе 2.2 представлены схемы регистрации оптических спектров. Впервые в «трехмерной» схеме (рис.1) оптические спектры дифрагированного света регистрировались с помощью подвижного детектора, пространственное положение которого изменялось в эксперименте. Для графического представления результатов дифракционных картины фотографиялись с экрана.

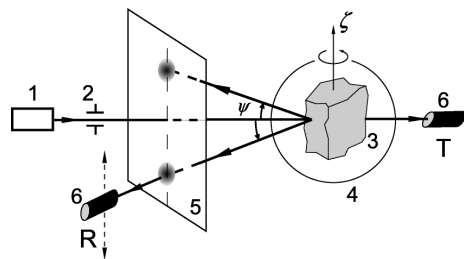


Рис.1. «Трехмерная» схема эксперимента: 1 – источник света, 2 – коллиматор, 3 – образец, 4 – сферический сосуд, 5 – экран, 6 – подвижный детектор (R, T – в измерениях спектров дифракции и пропускания, соответственно).

Третья глава посвящена изложению результатов исследования структурных свойств синтетических опалов с помощью различных методик.

В разделе 3.1 представлена подробная информация о реальной структуре образцов синтетических опалов – рис.2. Были определены направления кристаллографических осей решетки опалов в образцах (рис.2b). Установлено, что в наиболее однородных образцах девиация угла между «локальной» нормалью к ростовым слоям (111) и макроскопической осью роста образца ζ не превышает 5° . Исследование расположения сфер $\alpha\text{-SiO}_2$ в нескольких соседних ростовых слоях показывает, что в опалах, как правило, реализуется ABCABC... упаковка плоскостей (111), что соответствует ГЦК решетке. Кроме того, наблюдались сбои при

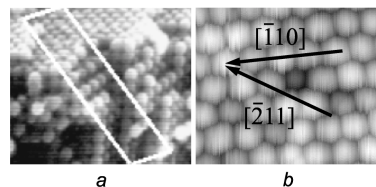


Рис. 2. Поверхность синтетического опала: а – случайный скол, б – ростовой слой (111) и точечный дефект. Стрелками показаны кристаллографические направления в терминах ГЦК решетки.

декс особой точки обозначает её принадлежность либо к ЗБ ГЦК I, либо к ЗБ ГЦК II):

$$L_{i,II} \rightarrow U_{i,K_{II}} \rightarrow X_i \rightarrow L_{II} \rightarrow U_i \rightarrow P_{i,II}, \quad (c1)$$

угол сканирования $0^\circ \leq \theta_i \leq 90^\circ$;

сканирование II включает следующие точки:

$$L_{i,II} \rightarrow W_{i,II} \rightarrow M_{i,II} \rightarrow K_{i,II}, \quad 0^\circ \leq \theta_{II} \leq 90^\circ; \quad (c2)$$

сканирование III:

$$P_{i,II} \rightarrow K_{i,II}, \quad 0^\circ \leq \theta_{III} \leq 30^\circ. \quad (c3)$$

В разделе 5.3 представлены результаты измерения спектров пропускания белого света. Для примера на рис.10 показаны спектры, полученные при сканировании (с1). При изменении угла падения θ_i света на образец полоса «непропускания», соответствующая фотонной стоп-зоне и связанная с брэгговской дифракцией света на ростовой системе слоёв (111), смещается от $\approx 595 \text{ nm}$ ($\theta_i = 0^\circ$, $L_{i,II}$ -точка в ЗБ) до границы регистрации спектрометра 400 nm , $\theta_i \approx 50^\circ$.

При углах $\theta_i \geq 20^\circ$ в спектрах наблюдается вторая полоса, эволюция которой также происходит по закону Брэгга, но для наклонного падения света на систему неростовых плоскостей $(\bar{1}\bar{1}1)$. В условиях низкого контраста (глава 2) в спектрах наблюдаются лишь полосы, обусловленные дифракцией света на системах плоскостей типа {111}. Обнаружено, что полосы непропускания, связанные с системами неростовых плоскостей {111}, имеют меньшую интенсивность и значительно уширены по сравнению с полосой, обусловленной ростовой системой (111). Результаты обработки спектров пропускания представлены на рис.11 и рис. 12.

В разделе 5.4 сопоставляются данные эксперимента и расчета. Показано (рис.11), что экспериментальная дисперсионная зависимость энергетического положения центров стоп-зон $E_0(\mathbf{K})$ (определенных по минимумам полос в спектрах пропускания) хорошо описывается совокупностью теоретических зависимостей для стоп-зон, обусловленных брэгговской дифракцией на плоскостях типа {111} двойникованной гранецентрированной кубической решетки опалов.

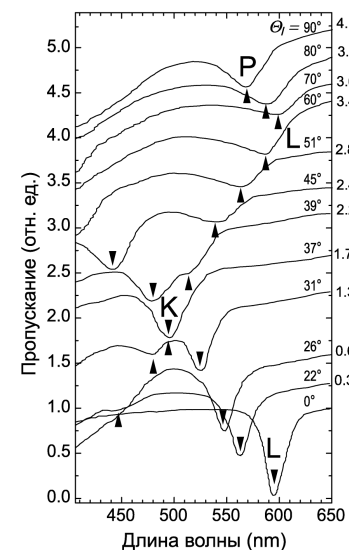
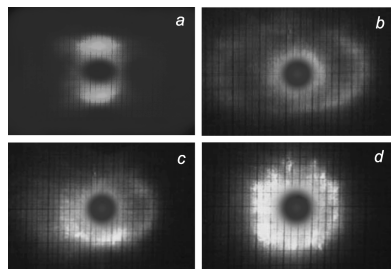


Рис. 10. Спектры пропускания в плоскости сканирования I.

Рис. 8. Картины дифракции света на различных областях исходного образца ($\lambda = 578 \text{ nm}$, желтый цвет). *a, b* – дифракция на наиболее упорядоченной области образца в геометриях $[\bar{2}11]$ и $[\bar{1}10]$ соответственно. *c* – дифракция на незначительно разупорядоченной области образца. *d* – дифракция на сильно разупорядоченной области образца.



В пятой главе представлены результаты экспериментального и теоретического исследования фотонной зонной структуры синтетических опалов. Фотонной зонной структурой мы называем совокупность дисперсионных зависимостей фотонных стоп-зон, т.е. зависимостей энергии и ширины стоп-зон от волнового вектора света \mathbf{K} , измеренных по всем высокосимметричным направлениям в зоне Бриллюэна (ЗБ). Дисперсия фотонных стоп-зон изучалась с помощью измерения спектров оптического пропускания белого света через ориентированный образец, который можно было поворачивать относительно падающего светового пучка (рис. 1). Однозначная связь характерных полос в спектрах пропускания с фотонными стоп-зонами была установлена в разделе 3.3.

Раздел 5.1 посвящен описанию прямой и обратной решетки синтетических опалов с учетом двойникования их ГЦК структуры. Вводится «модельная» ЗБ двойникованной структуры опалов, которая получается при аддитивном наложении ЗБ решеток ГЦК I и ГЦК II.

В разделе 5.2 показано, что для построения полной фотонной зонной структуры опалов достаточно провести сканирование «модельной» ЗБ по трем её сечениям (рис. 9). Это означает, что необходимо измерить три серии спектров пропускания образца по различным направлениям распространения белого света в нём и при условии, что в каждой из серий световой пучок лежит в одной из плоскостей сканирования. Для этого образец ориентировался тремя различными способами так, чтобы его поворот вокруг вертикальной оси (рис. 1) обеспечивал эти сканирования. Сканирование I в «модельной» ЗБ можно записать в следующем виде (ин-

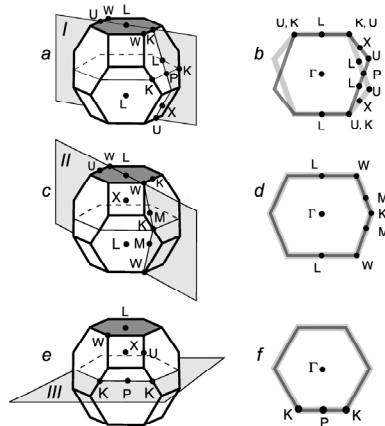


Рис. 9. *a, c, e* – схемы сечения зоны Бриллюэна ГЦК решетки. *b, d, f* – сечения «модельной» зоны Бриллюэна плоскостями I, II и III соответственно.

упаковке отдельных слоев, т.е. дефекты упаковки слоев в ГЦК решетке. Было установлено, что вариации диаметра шаров $\alpha\text{-SiO}_2$ по всему объему для каждого из исследованных нами исходных образцов малы (не более 5%), а концентрация дефектов больше в областях, соответствующих ранним стадиям роста.

В разделе 3.2 представлены спектры пропускания пластинок, вырезанных из исходного образца перпендикулярно оси его роста ζ (см. вставку на рис. 3а – способ распиливания образца на части, именуемые ниже (111)-пластинками). На рис. 3а приведены спектры пропускания неполяризованного белого света (111)-пластинками, выпиленными из образца с радиусом шаров $\alpha\text{-SiO}_2$ $R \approx 135 \text{ nm}$, при распространении света по нормали к поверхности (111). Во всех спектрах наблюдалась характерная полоса, для которой положение, ширина и глубина зависят от номера пластинки, т.е. от координаты Z в исходном образце (см. вставку рис. 3а).

Максимальная по ширине и минимальная по глубине провала полоса в спектре пропускания отвечает нижней пластинке (кривая 1 на рис. 3а), т.е. ранней стадии роста. При переходе к средним областям образца наблюдается сужение полосы, положение ее минимума смещается в длинноволновую сторону, глубина провала растет. Для (111)-пластинки, вырезанной из верхней части образца, на рис. 3б представлены спектры пропускания при разных углах падения света ϑ , причем угол $\vartheta = 0^\circ$ соответствует нормальному падению. Установлено, что длина волны, определяющая положение минимумов в спектрах пропускания опала в зависимости от угла падения ϑ (рис. 3б), описывается условием Брэгга:

$$\lambda_B = 2d \cdot n_{\text{eff}} \cos \vartheta, \quad (1)$$

где $d = d_{(111)} = \sqrt{8/3} \cdot R$ – межплоскостное расстояние, $R \approx 135 \text{ nm}$, $n_{\text{eff}} = 1.36$ – эффективный показатель преломления опала, погруженного в глицерин.

Кроме спектров пропускания были измерены также спектры отражения при наклонном падении пучка белого света на (111)-пластинку. Было установлено, что полосы отражения и «непропускания» лежат в одной спектральной области, что свидетельствует об их одинаковой природе.

Раздел 3.3 посвящен теоретическому анализу стоп-зоны в рамках модели диэлектрической сверхрешетки (одномерного фотонного кристалла), построенной из периодически чередующихся слоев с диэлектрическими постоянными ϵ_A и ϵ_B . Анализ показал, что 1) наблюдаемый в спектрах пропускания провал обусловлен наличием стоп-зоны; 2) при наклонном падении света под сравнительно малыми углами к нормали основные параметры стоп-зоны сохраняются; 3) всякий сбой когерентности структуры приводит к появлению конечной величины пропускания в области стоп-зоны.

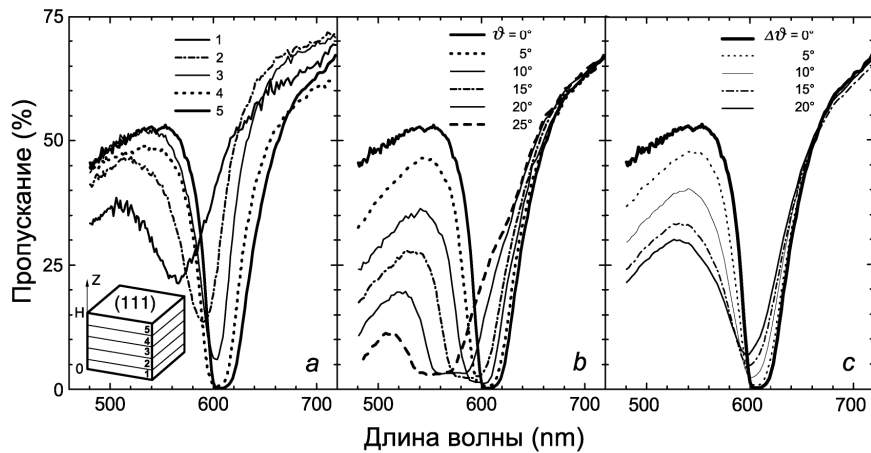


Рис. 3. Спектры пропускания пластинок опала. а – спектры, измеренные при нормальном падении света для: 1 – нижняя пластинка в образце, 2 - 4 – пластинки из средней части; 5 – верхняя пластинка. б – спектры пропускания пластинки 5 при разных углах падения ϑ . с – экспериментальный спектр пропускания верхней (111)-пластинки при нормальном падении светового пучка $\Delta\vartheta = 0$ и спектры пропускания, рассчитанные при следующих среднеквадратичных значениях угла разориентации кристаллитов относительно плоскости (111): $\Delta\vartheta = 5^\circ$, $\Delta\vartheta = 10^\circ$, $\Delta\vartheta = 15^\circ$, $\Delta\vartheta = 25^\circ$.

В разделе 3.4 приводится интерпретация эффектов, описанных в разделе 3.2. Увеличение ширины и уменьшение провала полосы (рис. 3а) объясняются неоднородным уширением, связанным с неупорядоченностью структуры, образованной разориентированными кристаллитами. Из выражения (1) следует, что к коротковолновому сдвигу стоп-зоны может приводить любое отклонение направления падения света на ростовую плоскость (111) от нормали к ней либо уменьшение величины $d \cdot n_{\text{eff}}$. Были проведены расчеты спектрального коэффициента пропускания при разных значениях угла разориентации кристаллитов относительно плоскости (111) (рис. 3с). Из сравнения рис. 3а и рис. 3с видно, что модель в целом хорошо описывает особенности спектров. Некоторое расхождение в коротковолновом смещении полос на рис. 3а, с в области $\lambda < 570 \text{ nm}$ может быть связано с уменьшением показателя преломления n_{eff} в неупорядоченной нижней части образца по сравнению с верхней из-за избыточной доли пустот между шарами a-SiO_2 и внутри самих шаров.

В разделе 3.5 на основе спектров отражения анализируется структура ростовой поверхности (111). Угловое уширение отраженного пучка связывается с незначительной разориентацией разных областей поверхности относительно оси роста ζ , что согласуется с данными АСМ (раздел 3.1).

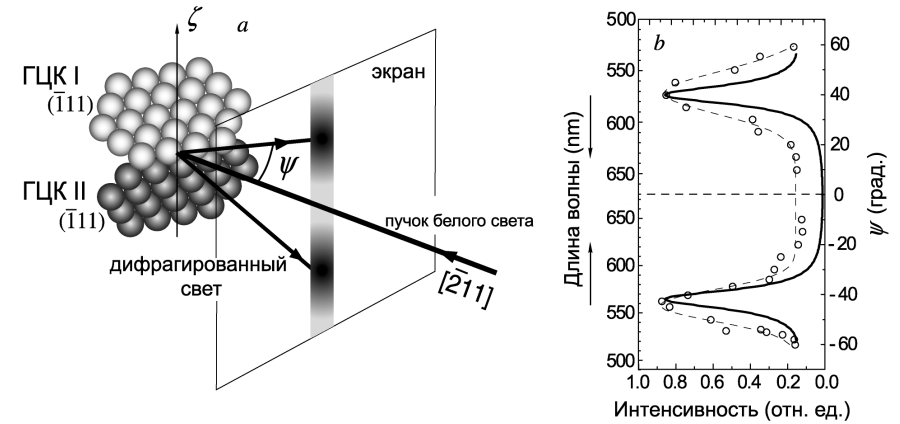


Рис. 7. а - схема эксперимента в геометрии $[211]$, показаны плоскости $(\bar{1}11)$ решеток ГЦК I и ГЦК II, образующих двойник. б – эксперимент (кружки и штриховая линия) - спектрально-угловая зависимость интенсивности рассеяния белого света в геометрии $[211]$, т.е. зависимость интенсивности спектрального максимума рассеянного света от угла ψ . Расчет усредненного структурного фактора $\langle S(\Delta\mathbf{K}, p=0.8) \rangle$ - непрерывная линия. На вставке показана геометрия рассеяния света от двух систем плоскостей типа $(\bar{1}11)$.

Сравнение экспериментальных данных и расчетных зависимостей структурного фактора $\langle S(\Delta\mathbf{K}, p) \rangle$ (рис. 7б) позволило определить параметр $p=0.8$ для наших образцов. Если под ГЦК решеткой понимать структуру с пятью и более слоями ненарушенной упаковки $ABCABC\dots$, то при $p=0.8$ доля двойников с ГЦК решеткой составляет 70% от общего объема.

Зависимость дифракционной картины от упорядоченности структуры.

В работе была исследована дифракция света в различных участках исходного образца, упорядоченность которого менялась по оси его роста (см. главу 3). Аналогично рентгеновским картинам дифракции, полученные оптические картины представляют собой симметричные системы дифракционных рефлексов.

На рис. 8 представлена трансформация дифракционной картины при сканировании исходного образца монохроматическим пучком. Видно, что дифракционная картина, соответствующая разупорядоченной части образца, аналогична дебаеграмме, но в отличие от дебаеграммы конус дифрагированного света наблюдается в обратной геометрии и только для одной системы плоскостей.

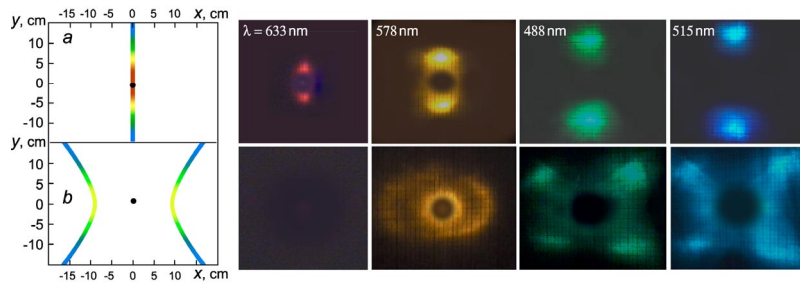


Рис. 6. Слева – теоретически смоделированная картина дифракции белого света на плоской гексагональной решетке (изображена проекция дифракционной картины на экране – см. рис. 1). Волновой вектор падающего пучка лежит в плоскости решетки и параллелен: a – направлению $[211]$ в терминах ГЦК решетки, b – направлению $[\bar{1}10]$ в терминах ГЦК решетки (см. рис. 2). Справа – экспериментальные картины дифракции лазерного пучка в тех же геометриях рассеяния. В расчете и в эксперименте $R = 135$ nm, $n_{\text{eff}} \approx 1.36$, расстояние от образца до экрана 6 см.

Дифракция белого света, двойникование структуры опала.

В работе проведен анализ дифракционных картин с учетом ориентации различных плоскостей в ГЦК структуре. Показано, что интенсивные пики обусловлены *брэгговской дифракцией* на плоскостях типа $\{111\}$ *двойникованной* структуры синтетических опалов (отметим, что ГЦК решетка обладает четырьмя неэквивалентными системами плоскостей типа $\{111\}$, а именно (111) , $(\bar{1}11)$, $(1\bar{1}1)$ и $(11\bar{1})$, причем три последние системы применительно к структуре опалов мы будем называть «неростовыми»). Двойникование структуры опалов связано со случайной упаковкой ростовых слоев (111) , при которой возникают два типа «зеркальных» упаковок $ABCABC\dots$ и $CBACBA\dots$, образующих двойник с решетками ГЦК I и ГЦК II. В геометрии $[211]$ луч света падает на две системы плоскостей $(\bar{1}11)$, принадлежащих этим двум решеткам (рис.7а). Плоскости $(\bar{1}11)$ образуют с осью $[211]$ угол $\pm 19,5^\circ$, при этом угол зеркального отражения от этих плоскостей луча, распространяющегося вдоль направления $[211]$, равен $\pm 39^\circ$, а брэгговская длина волны, определяемая по формуле (1), составляет $\lambda_B \approx 565$ nm. Эти значения прекрасно совпадают с параметрами двух симметричных пиков на рис.7б: $\psi \approx \pm 40^\circ$, $\lambda \approx 570$ nm. Аналогично было продемонстрировано, что четыре интенсивных дифракционных пика, наблюдаемых на фоне двух «окрашенных» полос в геометрии $[\bar{1}10]$, обусловлены брэгговской дифракцией света на четырех плоскостях типа $\{111\}$ двойникованной структуры синтетических опалов.

Четвертая глава посвящена теоретическому (раздел 4.1) и экспериментальному (разделы 4.2 – 4.5) исследованию дифракции света на синтетических опалах.

В разделе 4.1 приведены общие положения теории дифракции света на опалах (В.А.Кособукин и Д.Е.Усвят). Брэгговская дифракция электромагнитных волн видимого диапазона в общих чертах аналогична дифракции рентгеновских лучей. В случае упругого рассеяния (дифракции) волновые векторы падающей и рассеянной волн \mathbf{K} и \mathbf{K}' связаны соотношением $\mathbf{K}' = \mathbf{K} + \mathbf{b}$, где \mathbf{b} – вектор обратной решетки. Интенсивность дифракции монохроматической световой волны от полупространства, заполненного рассеивающей средой, выражается как

$$I(\mathbf{K}' - \mathbf{K}) = A \cdot |\varepsilon(\mathbf{K}' - \mathbf{K})|^2 \cdot S(\mathbf{K}' - \mathbf{K}), \quad (2)$$

где $\varepsilon(\mathbf{K}' - \mathbf{K})$ – компоненты Фурье периодической диэлектрической функции $\varepsilon(\mathbf{r}) = \varepsilon(\mathbf{r} + \mathbf{a})$, \mathbf{a} – вектор трансляции прямой решетки. Картину дифракции определяет структурный фактор вида

$$S(\mathbf{K}' - \mathbf{K}) = S(\Delta\mathbf{K}) = \frac{1}{N} \sum_{i,r} \exp[-i(\Delta\mathbf{K}) \cdot (\mathbf{R}_i - \mathbf{R}_r)], \quad (3)$$

где $\Delta\mathbf{K} = \mathbf{K}' - \mathbf{K}$ – вектор рассеяния, \mathbf{R}_i – положения рассеивателей, т.е. шаров $a\text{-SiO}_2$, N – число рассеивателей. С учетом особенностей и параметров структуры опалов, описанных в главе 3, для вычисления структурного фактора $S(\Delta\mathbf{K})$ была предложена модель, в которой:

- гексагональные ростовые слои (111) рассматриваются как идеальные двумерные плотноупакованные структуры;
- одномерный беспорядок в чередовании слоев (111) вдоль оси роста ζ характеризуется коэффициентом корреляции упаковки ρ , выражающем вероятность того, что три следующих друг за другом плотноупакованных слоя занимают три разные положения из совокупности A, B, C [7];
- структурный фактор представлен в виде произведения регулярного внутрислоевого S_{\parallel} и нерегулярного межслоевого S_{\perp} факторов:

$$S(\Delta\mathbf{K}, \rho) = S_{\parallel}(\Delta\mathbf{K}) \cdot S_{\perp}(\Delta\mathbf{K}, \rho); \quad (4)$$

- численные расчеты выполнены для структуры опала с параметрами $R = 135$ nm (радиус шаров $a\text{-SiO}_2$), $n_{\text{eff}} \approx 1.36$. Эксперименты, описанные ниже в главах 4 и 5, были проведены именно на таком образце.

Спектральные особенности дифракции белого света на структуре с одномерным беспорядком описываются теорией рассеяния на *двухмерной* упорядоченной решетке (слое), т.е. внутрислоевым структурным фактором $S_{\parallel}(\Delta\mathbf{K})$. Эта теория предсказывает появление «окрашенных» *полос* дифрагированного белого света. Для расчета интенсивности дифрагированного света вдоль окрашенной полосы необходим учет межслоевого структурного

фактора $S_{\perp}(\Delta\mathbf{K}, p)$. При упорядочении упаковки гексагональных слоев (111) вдоль оси роста ζ (переход к *трехмерной* упорядоченной решетке) интенсивность рассеянного света в окрашенных полосах перераспределяется так, что эти полосы вырождаются в монохроматические дифракционные *пятна* (рефлексы), соответствующие условию брэгговского отражения света на различных плоскостях решетки.

В разделах 4.2-4.5 приводятся результаты экспериментальных исследований дифракции света на синтетических опалах в зависимости от ориентации, длины волны (изучалось рассеяние как монохроматического, так и белого света) и от упорядоченности структуры. Выбор образца для исследований с параметром $d_{(111)} \cdot n_{\text{eff}} = R\sqrt{8/3} \cdot n_{\text{eff}} \approx 300 \text{ nm}$ обусловлен тем, что его фотонные стоп-зоны попадают в видимую область спектра.

Ориентационная зависимость дифракции света на опалах.

Дифракция света изучалась в двух основных геометриях рассеяния – во-первых, при падении света на ростовую плоскость (111) и, во-вторых, при падении света на образец перпендикулярно оси роста [111].

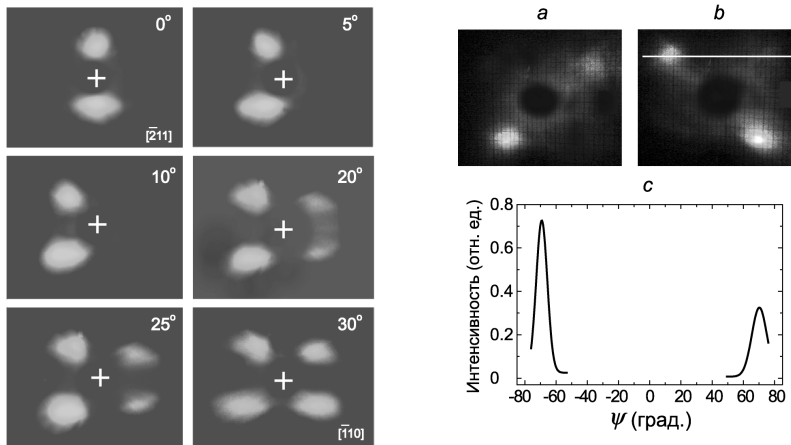


Рис. 4. Трансформация картины дифракции при переходе от геометрии $[211]$ к $[110]$ (поворот образца на 30° относительно оси роста ζ), $\lambda = 515 \text{ nm}$, фотографии с плоского экрана.

Рис. 5. *a, b* – дифракционные картины в геометрии $[110]$, полученные при освещении разных областей образца, $\lambda = 515 \text{ nm}$. *c* – интенсивность рассеянного света, измеренная вдоль белой линии на рис. *b*.

В случае падения света на ростовую плоскость (111) (по нормали [111] или при наклонном падении) наблюдается *единственное* дифракционное

пятно на длине волны λ , удовлетворяющей условию Брэгга (1). Угловая ширина этого дифракционного пятна при монохроматическом освещении составляет $\approx 5^\circ$.

При освещении образца перпендикулярно оси его роста [111], т.е. при распространении светового пучка в ростовой плоскости (111), наблюдались более сложные картины дифракции. Было установлено, что типичные картины дифракции повторяются при вращении образца вокруг оси роста с периодом 60° , следуя симметрии двумерной решетки гексагонального слоя (111). Поэтому полную картину дифракции можно получить при вращении образца на 30° вокруг оси [111], т.е. при изменении направления падения света на образец от геометрии $[110]$ к геометрии $[211]$ (рис. 2*b*). На рис. 4 показаны картины дифракции, наблюдавшиеся на экране (см. рис.1) при освещении образца зеленым монохроматическим светом, $\lambda = 515 \text{ nm}$. В геометрии $[211]$ типичная дифракционная картина состоит из двух пятен, симметрично смещенных вдоль оси роста относительно падающего луча. При повороте образца на 30° два пятна трансформируются в четыре пятна (геометрия $[110]$). Следует отметить, что в большинстве экспериментов наблюдалась примерно одинаковая интенсивность всех пятен (угловая ширина дифракционного пятна составляет $\approx 10^\circ$). Однако при освещении некоторых областей образца в геометрии $[110]$ наблюдались пары «диагональных» пятен разной интенсивности (рис. 5). Заметим, что «типичная» картина дифракции в геометрии $[110]$ (рис.4) получается простым наложением двух «нетипичных» картин, приведенных на рис. 5*a, b*. Этот эффект связан с двойникованием структуры опалов, которая будет обсуждаться ниже.

Зависимость дифракции от длины волны, красная граница дифракции.

Из теории следует, что длина волны дифрагированного света и угол рассеяния взаимосвязаны. На рис.6*a, b* схематически (в цвете) приведены результаты расчета углов дифракции света различных длин волн на образце опала в геометриях $[211]$ и $[110]$ и экспериментальные картины, наблюдавшиеся при освещении образца монохроматическим светом видимого диапазона. Видно, что с уменьшением полярного угла $|\psi|$ (см. схему на

рис.7*a*) длина волны дифрагированного света увеличивается. Угол $\psi = 0^\circ$ определяет красную границу дифракции λ_{max} . Свет с длиной волны $\lambda > \lambda_{\text{max}}$ не дифрагирует и свободно проходит сквозь образец, причем величина λ_{max} зависит от геометрии рассеяния, например $\lambda_{\text{max}}^{[211]}$ (красный свет) $>$ $\lambda_{\text{max}}^{[110]}$ (желтый цвет).