

文章编号 1004-924X(2007)10-1478-05

# Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>/SiO<sub>2</sub> 三维光子晶体的制作及光学性能

刘成有<sup>1</sup>, 宁丹<sup>1</sup>, 王瑞庭<sup>2</sup>, 倪政国<sup>3</sup>

(1. 通化师范学院 物理系, 吉林 通化 134002; 2. 吉林大学 数学学院, 吉林 长春 130022;  
3. 空军航空大学 军事仿真技术研究所, 吉林 长春 130022)

**摘要:**利用自我复制的方法制作了可见光谱区的三维光子晶体,用反射光谱研究了光子晶体的光学特性。采用平面波理论计算了光子晶体的光子禁带(PBG),实验结果与理论符合得较好。采用两步生长法将荧光染料(rhodamine 590)置于光子晶体内部,实验结果表明,染料的荧光光谱受到了光子晶体的强烈调制。

**关键词:**光子晶体;光子禁带;荧光光谱

**中图分类号:**O734 **文献标识码:**A

## Fabrication and optical properties of three-dimensional Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>/SiO<sub>2</sub> photonic crystal

LIU Cheng-you<sup>1</sup>, NING Dan<sup>1</sup>, WANG Rui-ting<sup>2</sup>, NI Zheng-guo<sup>3</sup>

(1. Department of Physics, Tonghua Normal College, Tonghua 134002, China;

2. College of Mathematics, Jilin University, Changchun 130022, China;

3. Institute of Military Simulation Technology, Aviation University of Air Force, Changchun 130022, China)

**Abstract:** Three-dimensional (3D) photonic crystals in the visible spectral region were fabricated by an auto-cloning technique. The optical properties of the crystals were studied by measuring the reflection spectra, and the Photonic Bandgap (PBG) was calculated using a plane-wave-expansion method. The experimental results coincide well with the theory. A two-step deposition method was used to insert rhodamine 590 into the photonic crystal, the result shows that the photoluminescence spectra is strongly modified by the photonic crystal.

**Key words:** photonic crystal; Photonic Bandgap (PBG); photoluminescence (PL) spectra

## 1 引言

光子晶体的研究是近年来科学界一个比较热门的课题,1987年,E. Yablonovitch 和 S. John 分

别提出了“光子晶体”的概念<sup>[1-2]</sup>。即如果使材料的折射率或介电常数在空间呈周期性变化,且这种变化的周期与光波长相当,则由于散射和干涉作用,在材料内部将形成所谓的光子禁带(PBG),处于该频段内的光子将不能通过这种具有周期性结构的材料,这种现象与晶体中电子的行为相类

收稿日期:2007-06-06;修订日期:2007-07-03.

基金项目:吉林省科学技术厅科技发展计划资助项目(No. 20040335-1)

似,这种具有光子禁带的周期性电介质结构的材料称为光子晶体。

光子晶体可以控制光的传输行为,它将在光电集成、光通信、光子晶体激光器等领域有着重要的应用<sup>[3-7]</sup>。由于工作于可见光区的光子晶体折射率周期性变化的空间周期与光波长同数量级,所以光子晶体的制作,尤其是三维光子晶体的制作非常困难。迄今为止,三维光子晶体的制作一般是以生长或化学合成技术建构薄膜或纳米颗粒,然后采用钻孔或堆积的方式得到光子晶体;另一种方式是使用分辨率比传统微米级更高的深紫外曝光显影技术。除此之外,近年来各国积极发展的电子束微影法,也是非常重要的纳米制作技术。目前大部分光子晶体的制作都需配合电子束显影法才能完成。近年来由 Kawakami 研究小组率先提出的自我复制法(Auto-cloning Techniques)得到了较快的发展<sup>[6]</sup>,该技术利用电子束微影及干蚀刻技术,先在硅基板上刻化出图形,再利用溅射镀膜的技术交替地镀上不同厚度的两种材料(Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 与 SiO<sub>2</sub>)。由于基板上的直线图形具有宽度上的变化,因此堆栈上去的薄膜不仅具有折线形的堆积,并有折线宽度上的变化。其中,宽度较窄的部分为光子晶体波导。在垂直方面,堆积的厚度也具有不同的变化。这些水平与垂直周期性变化的结构刚好使得可见光的波长落于光子晶体能隙之中,而波导区的周期性变化设计成可让光波通过。因此,光在波导中传播时,上下与左右皆有光子晶体结构将光波局限于波导之中。利用该方法制作三维光子晶体并对其光学特性的研究工作在我国还未见报道。

本文将报道利用自我复制方法组装可见-紫外区三维光子晶体的实验研究,以 Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 和 SiO<sub>2</sub> 作为组装材料,采取多层沉积的方法得到光子晶体。光子晶体的微结构由原子力显微镜与扫描电镜评价,光学特性由光子晶体的反射谱获得。为进一步考察光子晶体的光调制效应,将染料(Rhodamine 590)置于光子晶体内部,由光激发后染料的发光光谱受到光子晶体的调制作用来研究光子晶体的光限制效应。

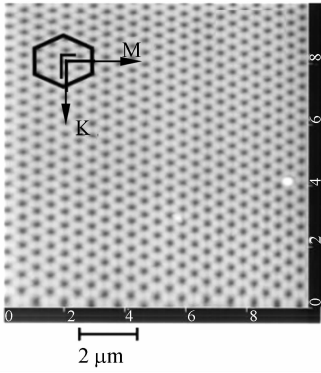
## 2 实 验

利用磁控溅射方法在 InP(001)基板上覆盖

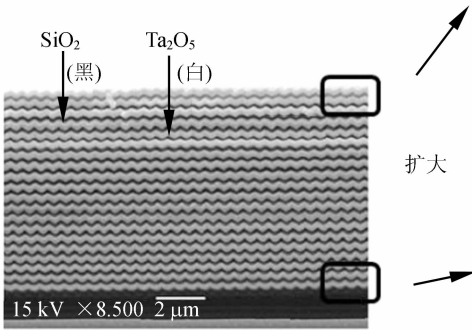
一层 1 μm 厚的 SiO<sub>2</sub> 薄膜,然后采用电子束刻蚀方法在 SiO<sub>2</sub> 表面刻蚀具有三角形排列的圆孔,圆孔中心距离定义为晶格常数  $d$ ,本文将生长两种不同晶格常数的样品( $d=500, 300$  nm)。孔的直径及深度为 100 nm,在这样具有三角形排列的圆孔的基板上采用磁控溅射的方法交替的沉积 20 个周期的 SiO<sub>2</sub>/Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 薄层,每一次 SiO<sub>2</sub> 层沉积结束后,都有来自于样品上方的射频溅射进行刻蚀整形,以保证样品三维结构的完美。生长舱充有 Ar/O<sub>2</sub> 气体,当沉积 SiO<sub>2</sub> 层时,生长舱压力为 0.8 Pa; Ar : O<sub>2</sub> 气体比为 4.8 : 0.2,射频功率 400 W,沉积 Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 层时,生长舱压力为 0.3 Pa, Ar : O<sub>2</sub> 气体比为 4.0 : 1,射频功率 400 W; SiO<sub>2</sub> 层刻蚀整形时,生长舱压力为 0.5 Pa, Ar : O<sub>2</sub> 气体比为 4.8 : 0.2,射频功率 200 W,每一层的生长及刻蚀时间要根据生长速度进行调整以保证光子晶体的三维结构。光子晶体的光学特性由解理面的反射光谱测定,来自于 halogen 灯的白光经一起偏器后由物镜聚焦入射到光子晶体的解理面上,光斑直径约为 5 μm,反射光经同一物镜收集后由望远系统准直导入单色仪,分光后的光信号由 CCD 检测。为了研究光子晶体的光调制特性,在已生长 10 个周期的光子晶体表面滴入一滴溶于甲醇的若丹明 590 染料,染料的横向尺寸约为 1 mm,经自然干燥后重新送入生长舱第二次生长,经过与第一次完全相同的生长后,得到内置荧光体的三维光子晶体样品。He-Cd(325 nm)激光用来激发染料发光,经过光子晶体调制的光信号由分光仪分光后由 CCD 检测。所有经光子晶体作用后的荧光光谱均与无光子晶体作用时的进行比较。

## 3 结果和讨论

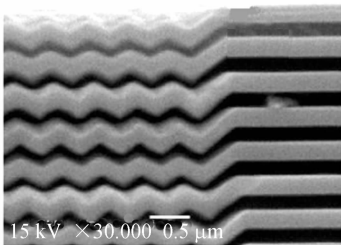
图 1(a)给出了原子力显微(AFM)镜观察到的光子晶体( $d=500$  nm)的表面形貌,图 1(b)给出了光子晶体沿 InP 基板解理方向解理后,由扫描电镜(SEM)观察到的光子晶体的侧面图,图 1(c)及(d)为由解理面观察到的光子晶体顶部及底部的放大图,图 1(c)的右面为在 SiO<sub>2</sub> 表面没经过电子束刻蚀的平面上直接生长得到的多层膜结构,可以看到一个较完美的三维光子晶体结构。



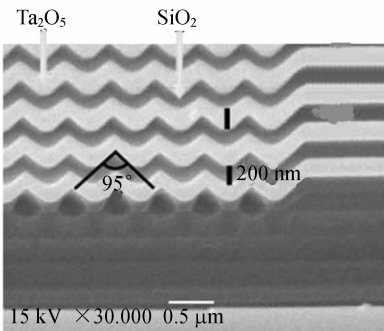
(a)由原子力显微镜观察到的光子晶体形貌图  
(a) AFM image of top surface



(b)扫描电镜观察到的光子晶体解理面的图  
(b) SEM image of cleaved facet



(c)光子顶部放大图  
(c) Amplified image taken from the top



(d)光子底部放大图  
(d) Amplified image taken from the bottom

图 1 晶格常数为 500 nm 的三维光子晶体图像  
Fig. 1 Images of a 3D photonic crystal ( $d=500\text{ nm}$ )

利用晶格常数为  $d=300\text{ nm}$  的样品,研究了三维光子晶体的光学特性,图 2 给出了光子晶体在两个相互垂直方向解理后,所进行反射光谱的测量示意图,解理面的法线方向定义为  $\Gamma-K$  和  $\Gamma-M$  方向,竖直方向定义为  $\Gamma-A$  方向。当入射光波的电场强度矢量位于与基板平行的面内时为  $TE$  波,而与之垂直的方向的为  $TM$  波。

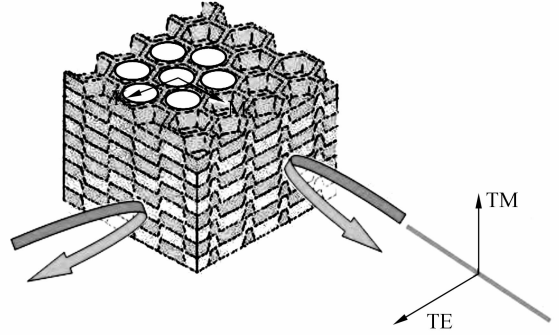


图 2 沿解理面进行反射光谱测量的示意图  
Fig. 2 Illustration of reflection spectrum measurement

图 3 是白光入射后所得到的反射光谱。由图 3 可见,在反射光谱中出现了两个反射峰,而且可以看到反射峰的位置与光矢量的振动方向有关。

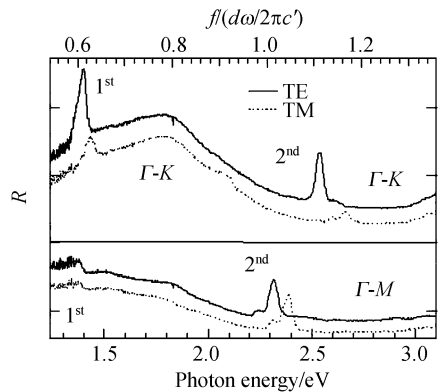


图 3 沿  $\Gamma-K$  和  $\Gamma-M$  方向解理后所得到的反射光谱  
Fig. 3 Reflection spectra along  $\Gamma-K$  and  $\Gamma-M$  direction from the cleaved facets of a 3D photonic crystal.

平面波理论近似给出的结果如图 4 所示,取  $\text{SiO}_2$  和  $\text{Ta}_2\text{O}_5$  的折射率分别为 1.46 和 2.15,  $\Gamma-A$  方向为光子晶体堆积方向,比较图 3 的实验结果与图 4 的理论计算,可以看到反射峰的位置与理论计算的一些特殊点相对应。

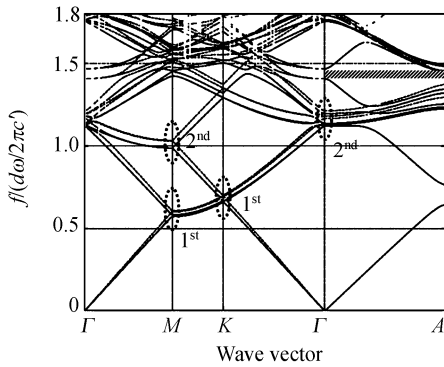


图 4 3D SiO<sub>2</sub>/Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 光子晶体光子禁带的理论计算结果  
Fig. 4 Calculated band structure of 3D SiO<sub>2</sub>/Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> photonic crystal

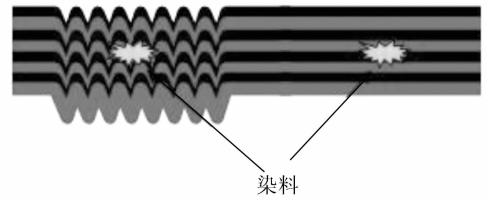
出现在图 3 的第一个峰值是光子晶体沿  $\Gamma$ -K 和  $\Gamma$ -M 方向的光子禁带引起的。第二个反射峰是由于光子价带变平,出现了 K 空间的某些奇异点,与这些奇异点对应的光子群速度为零,从而导致该频率所对应光子的高反射。反射峰的位置与光矢量的振动方向有关,这来源于两个方向的不同对称性。

为了综合考察三维光子晶体的光调制特性,将一荧光染料用两次生长法置于三维光子晶体中间,作为比较,也以同样的方法将染料置于生长光子晶体基板区域外侧,如图 5(a)所示,左边相当于三维光子晶体区,右边则为一维光子晶体区,白色圆点为置于其中的染料。

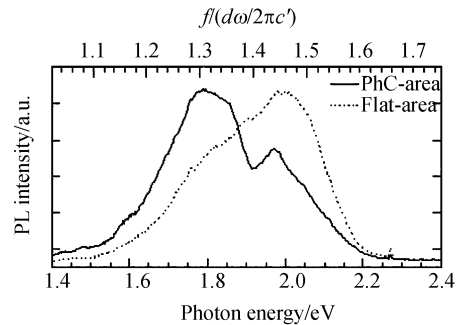
图 5(b)给出了在样品顶部所得到的染料荧光光谱,每条谱线都在强度上进行了归一化处理,虚线来源于由一维光子晶体顶部激发后得到的染料荧光光谱,实线来源于由三维光子晶体顶部激发后得到的染料荧光光谱,比较二者可以发现,三维光子晶体的一个明显光限制区出现在 1.908 eV(650 nm);图 5(c)给出了由三维光子晶体侧面得到的荧光光谱,与实验结果比较可以发现,在光子晶体侧面激发所得到的荧光光谱的峰值刚好出现在光子晶体顶部荧光光谱的光强极小值区。可以得出染料发出的、处于三维光子价带内的光子在三维光子晶体的 Z 方向受到了限制,从而导致了该区域内的光子沿光子晶体的侧面输出。图 5(b)也明显地体现了一维光子晶体和三维光子晶体的光传播特性的差异。

实验结果表明,由于存在光子禁带,光子晶体内部传播的光将受到光子晶体的调制作用,利用

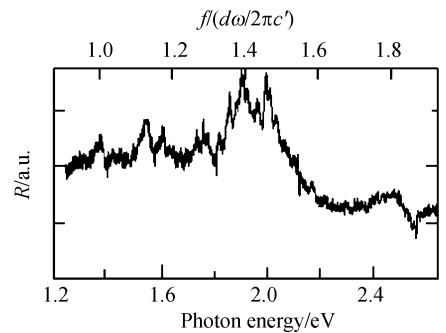
适当的材料组装三维光子晶体,可能得到在一定方向上对某一波长的光的完全限制,并使该波长的光在另一方向上输出增加。



(a)染料被分别置入三维光子晶体内部及一维多层膜内部  
(a) Rhodamine 590 embedded in a 3D photonic crystal and a flat area



(b)图中实线及虚线分别表示由多层膜样品顶部及三维光子晶体顶部得到的荧光光谱  
(b) Normalized PL spectra from the top of the flat area (dots) and the top of 3D photonic crystal (line)



(c)由三维光子晶体侧面得到的荧光光谱  
(c) PL spectra from the side facet of 3D photonic crystal

图 5 在光子晶体内部置入染料及所得到的荧光光谱图  
Fig. 5 Illustration of sample structure with rhodamine 590 and its PU spectra

## 4 结 论

利用自我复制的方法制作了可见光谱范围内的三维光子晶体,光子晶体的光学特性由反射

光谱进行了评价。利用两次生长方法将荧光染料置于光子晶体内部,研究了三维光子晶体与一维光子晶体的光学特性的差异,结果表明了三维光子晶体对荧光光谱的调制作用。

### 参考文献:

- [1] YABLONOVITCH E. Inhibited spontaneous emission in solid-state physics and electronics [J]. *Phys. Rev. Lett.*, 1987, 58:2059-2062.
- [2] JOHN S. Strong localization of photons in certain disordered dielectric superlattices [J]. *Phys. Rev. Lett.*, 1987, 58:2486-2489.
- [3] THHOMAS F, KRAUSS, RICHARD M, *et al.*. Two-dimensional photonic-bandgap structures operating at near-infrared wavelengths [J]. *Nature*, 1996, 383: 699 - 702 .
- [4] LIN S Y, HIETALA V M, WANG L, *et al.*. Highly dispersive photonic band-gap prism[J]. *Opt. Lett.*, 1996, 21: 1771-1773.
- [5] HACHE A, BOURGEOIS M. Ultrafast all-optical switching in a silicon-based photonic crystal [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2000, 18: 4089-4091.
- [6] SATO T, MIURA K, ISHINO N, *et al.*. Photonic crystal for the visible range fabricated by autocloning technique and their application [J]. *Optical and Quantum Electronics*, 2002, 34: 63-70.
- [7] 董贤子, 段宣明. 双光子三维微结构快速制备技术[J]. *光学 精密工程*, 2007, 15(4): 441-446.  
DONG X Z, DUAN X M. High speed two-photon laser nanofabrication of three-dimensional microstructures[J]. *Opt. Precision Eng.*, 2007, 15(4): 441-446. (in Chinese)

作者简介:刘成有(1959—),男,通化师范学院物理系教授,主要研究方向为半导体材料的低维结构生长及光电性能评价,光子晶体,材料的非线性光学性能评价等。E-mail:cyliu20032003@yahoo.com.cn