

文章编号: 0258-7025(2010)Supplement 1-0334-05

# 双光束三次曝光法制作三维光子晶体模板

蒲利春<sup>1</sup> 汪光宇<sup>2</sup> 胡 南<sup>1</sup> 魏 鹃<sup>1</sup>  
(<sup>1</sup> 重庆理工大学光电信息学院, 重庆 400054)  
(<sup>2</sup> 四川理工学院理学院, 四川 自贡 643000)

**摘要** 针对光子晶体研究领域的重点、难点问题,分析了单色电磁波在周期性电介质中传播的偏微分方程和激光全息记录法实现光子晶体模板的理论基础。借助全息光栅理论,设计了三维光子晶体的晶格结构,用双光束三次曝光法制作了红光 632.8 nm 的三维面心立方光子晶体模板,探讨了影响光子晶体模板成品质量的对比度、旋转精度控制、折射率改变等问题的解决思路。在制作过程中使用双光束三次曝光法,排除了对记录光束偏振方向的调整,达到了在制作大面积光子晶体模板中简化系统光路,稳定系统性能的目的。

**关键词** 光子晶体;激光全息技术;模板;三维晶格结构

中图分类号 TN256 文献标识码 A doi: 10.3788/CJL201037s1.0334

## Producing Three-Dimensional Photonic Crystal Templates by Double-Beam Three Exposures Methods

Pu Lichun<sup>1</sup> Wang Guangyu<sup>2</sup> Hu Nan<sup>1</sup> Wei Juan<sup>1</sup>

(<sup>1</sup> College of Optoelectronic Information, Chongqing University of Technology, Chongqing 400054, China)  
(<sup>2</sup> School of Mathematics and Physics, Sichuan College of Technology, Sichuan, Zigong 643000, China)

**Abstract** Based on the major and difficult issues in the area of researching on photonic crystals, The partial differential equations of the monochrome electromagnetic wave transmitted in periodical dielectric medium and the theoretical basis for the laser holography to achieve photonic crystal templates are analyzed. With holographic grating theory, crystal lattice structure of the three-dimensional photonic crystals is designed. 632.8 nm red light crystal templates of the three-dimensional face-centered cubic photonic with double-beam three exposures methods are produced. The contrast ration, the rotation accuracy control and the index of refraction change influenceing the quality of photonic crystal templates end-product and how to solve are discussed. During the work process, double-beam three exposures methods are used to eliminate the modulation of recording beam polarized direction. At last, system of optical path and system performance during the work process of producing large area photonic crystal templates to eliminate the modulation of recording beam polarized direction are simplified and stabilized, seperately.

**Key words** photonic crystal; holographic technology; templates; three-dimensional structure

## 1 引 言

光子晶体是一种介电常数(或者说折射率)在空间呈周期性变化的材料,主要表现为频率落在光子禁带中的光波在一定方向上无法传播。操纵光波的流动是人类多年的梦想和追求,光子晶体的产生使这种梦想成为可能。光子晶体被科学界和产业界称

为“光半导体”或“未来的半导体”,是未来信息技术的核心。

自 Yablonovitch 等<sup>[1]</sup>和 John<sup>[2]</sup>提出光子晶体的概念以来,引起了各国政府、学术机构以及高新技术产业界的高度重视。美国、英国、欧共体和日本等纷纷投入巨资研究光子晶体,并开发它的应用。光

收稿日期: 2010-04-27; 收到修改稿日期: 2010-06-03

基金项目: 重庆理工大学基金(2007zD01)资助课题。

作者简介: 蒲利春(1959—),男,教授,硕士生导师,主要从事非线性光学和原子与分子物理学等方面的研究。

E-mail: cqplc@cqut.edu.cn

子晶体还是《Science》杂志在1998年底预计的未来六大研究热点之一。当前,国内外研究机构研制三维光子晶体的主要制备方法是:蘸笔纳米光刻术、胶体微球自组装、多光束相干全息、相位光栅、多光子聚合、掠角度沉积技术、自克隆技术、电子束直写和反应离子束刻蚀的联用等方法<sup>[3]</sup>。其中多光束相干全息法是制备三维光子晶体的较好方法<sup>[4,5]</sup>,通过它可以制作具有许多晶格类型的三维光子晶体,比如面心立方、金刚石结构和体心立方等,且他们都能通过调整各个光束的相位和偏振而得到,其中相位光栅法和多光束相干法<sup>[6~10]</sup>是解决各个光束之间相对相位和偏振控制问题的简便方法。但多光束相干全息法存在以下问题:首先受激光束波长的限制,至今不能制备出完全光子带隙在可见光区的三维光子晶体;再者如何在三维光子晶体中引入缺陷等功能性模块仍然是一个比较棘手的问题<sup>[3]</sup>。本文根据具有完全带隙的三维光子晶体可以在空间所有方向上对光子的传播进行调制等内容,致力于三维光子晶体制备方法和工艺的研究。借助于全息光栅理论,设计用双束非对称光线入射,采用连续三次曝光获得三维面心立方光子晶体模板的制作方法,并在实验室中制得了三维面心立方光子晶体模板。

## 2 光子晶体模板制作的理论基础

### 2.1 单色电磁波在周期性电介质中传播的偏微分方程

频率为 $\omega$ 的单色电磁波在周期性电介质中传播的电场 $\mathbf{E}(\mathbf{r})$ 的偏微分方程,可以由麦克斯韦方程组、介电常数周期性变化方程 $\epsilon(\mathbf{r})=\epsilon(\mathbf{r}+\mathbf{a})$ 导出

$$\nabla[\nabla \cdot \mathbf{E}(\mathbf{r})] - \left[ \nabla^2 + \frac{\omega^2}{c^2} \epsilon_i(\mathbf{r}) \right] \mathbf{E}(\mathbf{r}) = \frac{\omega^2}{c^2} \bar{\epsilon}(\mathbf{r}) \mathbf{E}(\mathbf{r}), \quad (1)$$

式中 $\bar{\epsilon}(\mathbf{r})$ 为相对介电常数的平均值, $\epsilon_i(\mathbf{r})$ 为相对介电常数的空间变化分量, $\mathbf{E}(\mathbf{r})$ 是单色电磁波的电矢量,它们是空间 $(\mathbf{r})$ 的函数。

电子在原子晶体中运动时,电子波函数满足定态薛定谔方程

$$\left[ -\frac{\hbar^2}{2m} \nabla^2 + V(\mathbf{r}) \right] \psi(\mathbf{r}) = E \psi(\mathbf{r}). \quad (2)$$

对比(1),(2)式得, $\epsilon_i(\mathbf{r})$ 与势能 $V(\mathbf{r})$ 相对应,而 $\frac{\omega^2}{c^2} \bar{\epsilon}(\mathbf{r})$ 类似于薛定谔方程中的能量 $E$ 。而(1)式左边的矢量项 $\nabla[\nabla \cdot \mathbf{E}(\mathbf{r})]$ 是薛定谔方程所没有的。故电子的波函数遵循的是标量波理论,而光子晶体

的电磁波遵循的是矢量波理论。(1)式给出了光子晶体的所有信息,如占空比、折射率比、入射光波的波长和晶格结构等。求解(1)式,可得到一个类似于能带结构的光子能带图。

### 2.2 激光全息记录法实现光子晶体模板的理论基础

激光全息记录法实现光子晶体模板的基本原理:当几束相干光叠加时,相干区域会形成类似晶格结构的干涉图案,置于干涉场中的记录介质由于感光程度不同,使折射率产生周期性变化,形成光子晶体,其晶格结构由相干光的光学参数、入射方向和介质折射率共同确定,简述如下:

设 $N$ 束相干光相干区域的电场分量为

$$\mathbf{E}_0(\mathbf{r}) = \sum_{n=0}^{N-1} \mathbf{E}_{0n}(\mathbf{r}) \exp(i\mathbf{k}_n \cdot \mathbf{r}), \quad (3)$$

式中 $\mathbf{E}_{0n}$ 代表第 $n$ 束光的振幅和偏振方向, $\mathbf{k}_n$ 为波矢, $\mathbf{r}$ 为位置矢量。电磁波在线性均匀介质中某一时刻的平均光强为

$$I(\mathbf{r}) \propto \sum_{n,m=0}^{N-1} \mathbf{E}_{0n}(\mathbf{r}) \cdot \mathbf{E}_{0m}(\mathbf{r}) \exp[i(\mathbf{k}_n - \mathbf{k}_m) \cdot \mathbf{r}], \quad (4)$$

由(4)式可知,干涉图案的平移对称性由傅里叶分量 $\mathbf{E}_{0n}(\mathbf{r}) \cdot \mathbf{E}_{0m}(\mathbf{r}) \exp[i(\mathbf{k}_n - \mathbf{k}_m) \cdot \mathbf{r}]$ 确定,即晶格格点和晶格结构的平移对称性分别由傅里叶分量系数 $\mathbf{E}_{0n}(\mathbf{r}) \cdot \mathbf{E}_{0m}(\mathbf{r})$ 和 $(\mathbf{k}_n - \mathbf{k}_m) \cdot \mathbf{r}$ 确定。如果确定了相干光的入射方向和他们之间的夹角,并使得波矢差 $(\mathbf{k}_n - \mathbf{k}_m)$ 满足设计制作的晶体倒格矢条件,干涉图样的光强极大点就是晶格格点,即得到激光全息记录法制作的光子晶体模板。理论证明,至少四束光干涉才能形成三维干涉图案<sup>[1]</sup>,而四束光干涉图案的对称性由14个傅里叶分量确定<sup>[11]</sup>。

## 3 双光束三次曝光法制作全息光子晶体模板

全息光子晶体模板制作过程主要考虑相干光的入射方向、偏振方向、光束之间的夹角、光强比和介质折射率变化等参量对光子晶体的晶格结构的影响。

### 3.1 全息光子晶体模板的设计

全息光栅是依据双缝干涉条纹分布特征和光栅衍射理论设计的,是在全息干板上记录两平面相干光波的干涉条纹,它的特征是刻痕(曝光)和非刻痕(不曝光)均匀、呈直线分布<sup>[12]</sup>。

借助全息光栅理论设计三维光子晶体模板,用两束非对称光线入射(一束光线垂直于记录介质平

面,一束光线倾斜于记录介质平面)到记录介质平面上,得到的光栅平面平行于这两束光的角平分线,即干涉条纹倾斜。将记录介质平面以一定角度  $\theta$  绕  $z$  轴(或垂直于记录介质平面的光束)旋转,且连续曝光三次以上,如图 1 所示(Buru plate 和 Rotating dive 简记为 BP 和 RD)。

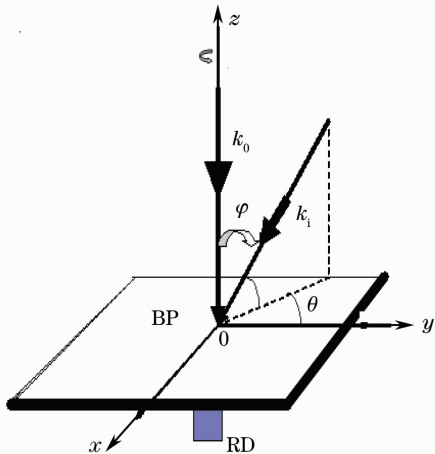


图 1 双光束三次曝光光路示意图

Fig. 1 Schematic diagram of exposures three times with double light beam

多次曝光得到的干涉面就会在介质空间某点叠加,该点的曝光量最大,这样就会在介质内部形成周

期性排列的光强极大点,即光子晶体晶格的格点。由 2.2 节理论基础知,若要实现三维光子晶体晶格结构,至少要选择四束光同时干涉。由(4)式得四束光同时干涉的光强分布为

$$I(\mathbf{r}) = \sum_{n,m=0}^3 E_{nm} \exp[i(\mathbf{k}_n - \mathbf{k}_m) \cdot \mathbf{r}], \quad (5)$$

在图 1 基础上展开(5)式可知,四束光干涉只有三个独立的波矢差  $k_{nm}$  ( $m=0, n=1,2,3$ ),另外三个波矢差  $k_{nm}$  ( $n,m=1,2,3, m \neq n$ ) 可由三个独立波矢差组合得到,故产生的晶格结构对称性主要由三个独立波矢差决定。取  $k_{0n}$  为已知,当  $k_{0n} \cdot \mathbf{r} = (k_0 - k_n) \cdot \mathbf{r} = 2\pi L_n$  ( $L_n$  为整数),  $k_{0n}$  与光子晶体结构的倒格矢对应,干涉图案光强分布的极大点位置就是晶格的格点位置。

由图 1 可见,一束光  $k_0$  垂直入射到记录介质上,另外三束光  $k_n$  ( $n=1,2,3$ ) 以相同的人射角  $\varphi$  对称入射(三束光在记录介质平面上的投影的夹角两两互成  $120^\circ$ )。独立波矢差  $k_{0n}$  由四束光的入射方向  $\varphi$  唯一确定。

根据上述分析,结合固体物理理论,可导出制作面心立方光子晶体所需的四束记录光波矢方向、波矢差及其产生的光子晶体模板的晶格常数(推导过程略),如表 1 所示。

表 1 面心立方晶格的四束光波矢方向的选取与晶格常数

Table 1 Lattice constant and four light vector direction's selection of face-centered cubic grid

Vector of incident light	Poor sagittal wave	Angle between $k_i$ and $k_0$	Lattice constant
$k_0 = 2\pi/a(-3/2 \quad -3/2 \quad -3/2)$	$k_0 - k_1 = 2\pi/a(1 \quad -1 \quad -1)$		
$k_1 = 2\pi/a(-5/2 \quad -1/2 \quad -1/2)$	$k_0 - k_2 = 2\pi/a(-1 \quad 1 \quad -1)$	$\cos \varphi_1 = \frac{7}{9}$	$a = 3\sqrt{3}\lambda/2$
$k_2 = 2\pi/a(-1/2 \quad -5/2 \quad -1/2)$	$k_0 - k_3 = 2\pi/a(-1 \quad -1 \quad 1)$	$\varphi_1 \approx 38.9^\circ$	
$k_3 = 2\pi/a(-1/2 \quad -1/2 \quad -5/2)$			

### 3.2 三维光子晶体模板的制作过程

制作光路如图 2 所示,其中 M1, M2, M3 为反射镜,BS 为可调分光镜,SF1, SF2 为扩束滤波器, L1, L2 为准直透镜。

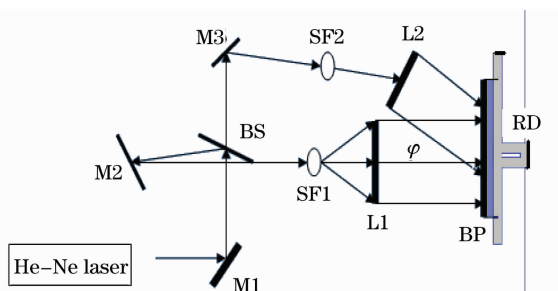


图 2 制作全息光子晶体模板的光路示意图

Fig. 2 Schematic diagram of making templates of holographic photonic crystal

仪器选用:He-Ne 激光器一台(红光:632.8 nm),曝光定时器一台,平面反射镜两个,透反比为 1:1 的分束镜 1 个,扩束镜,准直镜各 2 个,旋转干板支架一个(注:实验中选用带刻度的转盘,精度 0.1),光学平台一个,光具座、玻璃干板、显影液、定影液等作图辅助材料若干。光刻胶为重氮萘醌(DNQ)正性光刻胶,记录介质为涂上光刻胶的玻璃干板,光刻胶厚度约为  $8 \mu\text{m}$ 。

制作过程中,激光被可调分光镜分为两束,分别经 SF1, L1 和 SF2, L2 后成为两束平行光,扩束后的光斑直径约为 4.5 cm。其中一束平行光垂直入射到记录平面,另一束以  $\varphi = 38.9^\circ$  斜入射到记录平面<sup>[13]</sup>,并使这两束平行光在记录平面处重合(图 2)。

旋转干板支架及两条入射光束,需要与实验平台严格平行,并且要保证两条平行光束的中心与旋

转干板支架的转轴中心重合(注:三次曝光仅是记录介质随旋转干板支架绕定轴转动,不改变其他光学仪器的位置、方向)。光在整个光路的传播过程中,偏振方向要保持近似不变。一次曝光过后,将旋转干板支架沿逆时针方向旋转 120°,进行第二次曝光,之后再沿同方向旋转干板支架 120°,进行第三次曝光。每次曝光的时间为 30 s,曝光量约为 70 mJ/cm<sup>2</sup>。当三次曝光完成之后,将记录介质置于质量分数为 1%的 NaOH 溶液中显影 50 s。最后用去离子水反复冲洗,放置干燥箱中烘干,制得三维光子晶体模板,如图 3 所示。

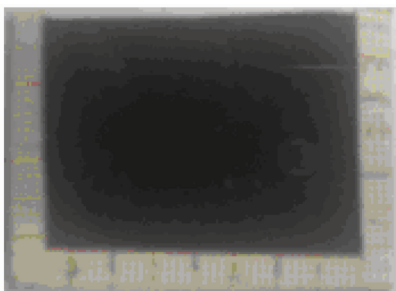


图 3 三维光子晶体模板

Fig. 3 3D photonic crystal templates

为了在记录介质中得到对比度较大的干涉图案,制作过程中两束光的光强要调整到相等。图 4 是光子晶体模板放大 10000 倍后的扫描电镜 (SEM)图。图 4 显示模板效果较好。

表 2 是光子晶体模板的基本参数。

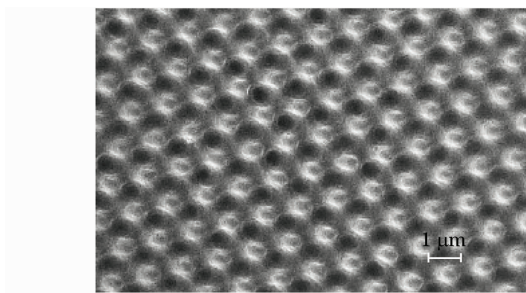


图 4 三维光子晶体模板放大 10000 倍的图

Fig. 4 3D photonic crystal templates view of slot with magnification of 10000

表 2 光子晶体模板的基本参数

Table 2 Basic parameters of photonic crystal templates

Element name	Photonic crystal templates
Upper base /cm	4.75
Lower base /cm	4.75
High /cm	3.6
Area /cm <sup>2</sup>	17.1
Time of three-exposures /s	30×3

## 4 双光束三次曝光法制作三维光子晶体模板的讨论

### 1) 对比度问题

制作过程中需要曝光三次,导致线偏振光经过光栅后偏振方向发生改变,使得干涉图案的对称性改变且对比度减小,从而影响光子晶体结构在光刻胶上的制作。从光强分布(5)式可以计算出干涉图案最大对比度仅为 0.6,对比度较小,制作三维光子晶体时需要对记录材料进行改进,并需严格控制曝光显影时间,否则无法得到三维光子晶体结构。制作过程中可以通过改进材料工艺等方法来提高干涉图案的对比度。如贝尔实验室的 Shu Yang 等<sup>[14]</sup>制作三维光子晶体(可见光时)在光刻胶中添加三乙胺,消除了非相干背景光对对比度的影响,效果好。

### 2) 旋转精度控制

制作过程中,干版的转角要求十分精确,否则,干涉图案的周期性会受到影响。从记录介质表面上看,由于旋转角度的不精确会引起光子晶格周期的变化,即呈现出波浪状的周期性变化。晶格结构的这种周期性变化会对光子禁带产生影响。要消除其影响,必需使两次旋转误差控制在最小的范围内。光子晶格周期性变化条纹的间隔  $\xi$  可表示为

$$\xi = \frac{a}{2 \tan(\beta/2)}, \quad (6)$$

式中  $a$  为光栅周期, $\beta$  为由两次旋转不精确引入的误差角。当  $\beta=0.1^\circ$  时, $\xi \approx 573a \gg a$ ,即由于旋转误差而导致的晶格结构变化的周期远大于晶格常数,影响可以忽略。制作过程中选用精度值为  $0.1^\circ$  的带刻度的转盘作为干版支架,能严格地控制三次曝光的旋转角度,达到设计要求。

### 3) 折射率改变对晶格结构的影响

由于光刻胶的折射率较空气大(约为空气折射率的 1.60 倍),两束平行相干光在光刻胶中的夹角比在空气中的小,这就造成晶格结构的对称性发生改变。平行于光刻胶表面的晶格周期因与折射率无关不改变,但垂直于光刻胶方向的周期会随光束间夹角的减小而增大。对于制作面心立方光子晶体模板,两束光的夹角需为  $38.9^\circ$ 。光刻胶的折射率约为 1.60,当两束光在空气中的夹角为  $90^\circ$  时,其在光刻胶中的夹角仅为  $37.0^\circ$ ,无法满足制作条件。由两种介质折射率不同而引起的晶格结构的改变可通过采用在记录介质上增加棱镜,用棱镜耦合方法来消除折射率改变对晶格结构的影响。

## 5 结 论

双光束三次曝光法制作大面积的三维光子晶体模板,分辨率是百纳米量级尺度。和多光束同时干涉的一步法相比,选用的双光束三次曝光法使用的光学元件少,光路简单且稳定,所有光线的调整都可以在同一平台上水平方向完成,在光路中引入大孔径的透镜可得面积较大的平行光,设计灵活,因而是一种简便易行的制作大面积三维光子晶体模板的有效方法。但是,由于两束光需要旋转多次且连续曝光,其对比度低、抗干扰性差、过程较复杂,尤其在制作三维晶体时需要使用棱镜将光耦合到光刻胶中,其固定在记录介质上比较困难。目前,要制作出可见光波段具有完全光子禁带的大面积光子晶体模板依然是一个挑战。

## 参 考 文 献

- 1 E. Yablonovitch, T. J. Gmitter, K. M. Leung. Phonic band structure: the face-centered-cubic case employing nonspherical atoms [J]. *Phys. Rev. Lett.*, 1991, **67**(17): 2295
- 2 Sajeev John. Strong localization of photons in certain disordered dielectric superlattices [J]. *Phys. Rev. Lett.*, 1987, **58**(23): 2486
- 3 Ni Peigen. Progress in the fabrication and application of photonic crystals[J]. *Acta Physica Sinica*, 2010, **59**(1): 340~350  
倪培根. 光子晶体制备技术和应用研究进展[J]. *物理学报*, 2010, **59**(1): 340~350
- 4 M. Gampbell, D. N. Sharp, M. T. Harrison *et al.*. Synthesis of ordered macroporous hydrogels by chemical modification [J]. *Nature*, 2000, **404**, 53
- 5 Y. G. Zhong, S. A. Zhu, H. M. Su *et al.*. Photonic crystal with diamondlike structure fabricated by holographic lithography [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2005, **87**(6): 061103
- 6 Lijun Wu, Y. C. Zhong, C. T. Chan *et al.*. Fabrication of large area two-dimensional and three-dimensional polymer photonic crystals using single refracting prism holographic lithography [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2005, **86**(24): 241102
- 7 S. Jeon, J. U. Park, R. Girelli *et al.*. Three-dimensional alumina nanotemplate [S]. *PNAS*, 2004, 101: 1248
- 8 Z. Poole, D. Xu, K. P. Chen *et al.*. Holographic fabrication of three-dimensional orthorhombic and tetragonal photonic crystal templates using a diffractive optical element [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2007, **91**(25): 251101
- 9 Zhong Yongchun, Zhu Shaoan, Wang Hezhou *et al.*. Fabrication of photonic crystals with different surface orientation by holographic lithography[J]. *Acta Physica Sinica*, 2006, **55**(2): 688~691  
钟永春, 朱少安, 汪河洲 等. 全息制作不同晶面取向光子晶体模板[J]. *物理学报*, 2006, **55**(2): 688~691
- 10 Liu Huan, Yao Jianquan, Li Enbang. Simulated calculation and analysis of the forbidden band for fabricating two-and three-dimensional photonic crystal structures using holographic lithography[J]. *Acta Physica Sinica*, 2006, **55**(5): 2286~2292  
刘欢, 姚建铨, 李恩邦. 激光全息法制作二、三维光子晶体的模拟计算及禁带分析[J]. *物理学报*, 2006, **55**(5): 2286~2292
- 11 L. Z. Cai, X. L. Yang, Y. R. Wang. Formation of three-dimensional periodic microstructures by interference of four noncoplanar beams [J]. *J. Opt. Soc. Am. A.*, 2002, **19**: 2238~2244
- 12 N. D. Sharp, M. Campbell, R. E. Dedman *et al.*. Photonic crystal for the visible spectrum by holographic lithography [J]. *Opt. Quantum Electron.*, 2002, **34**(1): 3~12
- 13 Wang Xia, Tan Yongyan. Quasicrystals fabricated by holographic lithography[J]. *Acta Physica Sinica*, 2006, **55**(10): 5398~5402  
王霞, 谭永炎. 准晶结构的激光全息人工制作[J]. *物理学报*, 2006, **55**(10): 5398~5402
- 14 Shu Yang, Mischa Megens, Joanna Aizenber *et al.*. Creating periodic three-dimensional structures by multibeam of visible laser [J]. *Chem. Mater.*, 2002, 14: 2831