

学校编码: 10384

学号: B200324009

分类号_____密级_____

UDC _____

廈門大學

博 士 学 位 论 文

大面积全息光子晶体模板的制作技术及其在
LED 中的应用

Fabrication techniques of large-area holographic photonic
crystal templates and its applications to LED

刘 影

指导教师姓名: 刘 守 教授

吴正云 教授

专 业 名 称: 凝 聚 态 物 理

论文提交日期: 2006 年 6 月

论文答辩时间: 2006 年 8 月

学位授予日期:

答辩委员会主席: _____

评 阅 人: _____

2006 年 8 月

厦门大学学位论文原创性声明

兹呈交的学位论文，是本人在导师指导下独立完成的研究成果。
本人在论文写作中参考的其他个人或集体的研究成果，均在文中以明确方式标明。本人依法享有和承担由此论文产生的权利和责任。

声明人（签名）：

年 月 日

摘 要

目前被人们称为可控制光子流动的半导体——光子晶体，由于其潜在的科学价值和应用前景受到各国科研人员的关注，仅从 2003 年到 2005 年，在《Nature》和《Science》两刊物上发表的相关论文达 21 篇。国内外大学的一些研究小组相继采用不同的方法对光子晶体的结构、理论、制备技术及其崭新的物理性质等进行了研究并取得了重大进展。

牛津大学 M. Campbell 等人在《Nature》上提出利用全息术制作可见光的三维光子晶体受到了广泛得重视。该方法制作光子晶体直接、成本低、速度快、有实用意义。但全息术实现光子晶体需要三束光（二维）或四束光（三维）干涉，目前国内普遍采用的制作系统存在着光路复杂、系统稳定性差、所制得的光子晶体面积小等缺点，使其应用仍然局限于实验室中。因此如何实现大面积、廉价、大批量地制备光子晶体，是使其得到真正意义上的应用的唯一途径。本研究针对这个课题从理论到实验方案，对制备方法进行了深入研究，并取得了以下成果：

1. 计算模拟分析全息术实现光子晶体过程中，利用光刻胶作为记录介质，将三维结构记录下来的曝光、显影过程；模拟分析光强比、偏振态、对比度等对制作全息光子晶体模板的影响；给出实现 fcc 结构光子晶体的优化制作参数。
2. 提出用双光束干涉多次曝光的方法实现三维结构光子晶体。理论分析证明该方法可实现与四束光同时曝光法相同的三维晶格结构。
3. 提出利用全息光学元件（HOE）实现光子晶体结构。对 HOE 上的全息衍射光栅凹槽深度及其矢量方向与入射光偏振方向的夹角进行最优化设计，给出最佳制作方案并制作出符合 fcc 结构光子晶体要求的全息衍射光学元件；对制作全息光子晶体模板的记录光路进行优化设计，其中包括对光束比（全息衍射光栅的衍射效率）、曝光量、显影时间等参数的优化设计。根据设计参数，制作出具有 fcc 结构的全息光子晶体模板。
4. 提出一套利用厚玻璃进行折射率匹配的制作系统，消除了在制作三维光子晶体过

程中由于记录介质折射率引起的相干光束间夹角减小的问题。

5. 提出一套利用 HOE 制作大面积二维光子晶体的无透镜系统，并利用该系统将二维光子晶体制作于 GaN 基蓝光发光二极管芯片表面（ITO 电流扩展层），提高了其光提取效率。初步实验证明，无透镜系统用于在发光二极管芯片表面制作大面积二维光子晶体的可行性。

本工作的创新点包括以下三点：

1. 首次提出利用双光束三次曝光法制作三维结构的全息光子晶体模板。由于在制作过程中仅使用两束光干涉，排除了对记录光束偏振方向的调整，简化了实验光路。
2. 提出利用全息光学元件制作大面积全息光子晶体模板。首次系统地计算分析了全息光栅的衍射效率及衍射光偏振方向与光栅凹槽深度的关系。给出制作某种特定结构光子晶体所需的全息光学元件的设计方案及流程。
3. 提出一套制作大面积二维光子晶体的无透镜系统。首次提出采用球面波作为实现二维结构的光源，消除了用于产生平行光的准直透镜对光斑孔径的限制及对光能量的吸收，减小了杂散光的引入。

关键词：全息术；光子晶体；发光二极管

Abstract

Photonic crystals have attracted great attention due to their potential scientific value and wide applications. Only from 2003 to 2005, 21 papers were published in “Nature” and “Science”. Different methods have been used to research the structures, theories, fabrication techniques and brand-new physical characters of photonic crystals by the research groups all over the world, and great progresses have been obtained.

M. Campbell et al presented that 3D photonic crystal can be fabricated using 3D holographic technique. With its inherent flexibility, low cost and high fabrication speed, this technique makes the use of photonic crystals more practical. However, because the fabrication system usually needs three (for 2D) or four (for 3D) beams interference, it has the disadvantages of complex optical setup, unstable system, and small crystal size. Thus the application of photonic crystal is mainly limited in laboratory research. In this dissertation, theoretical analysis and experiments on fabrication techniques of photonic crystals are deeply discussed and some valuable results are obtained. The main contents are as follows:

1. The exposure and developing processes of recording 3D structure in photoresist is simulated by computer. The influences of intensity ratio, polarization states and contrast on fabricating holographic photonic crystal template are analyzed. The optimized parameters of fabricating fcc structure photonic crystal are presented.
2. A two-beam multi-exposure holographic technique for fabricating three-dimensional photonic crystals is proposed. Theoretical analysis proves that it can obtain the same structures as four-beam system does.
3. It demonstrates that photonic crystal can be fabricated using a holographic optical element (HOE). The influences of grating depth and polarization angles of incident beams on diffraction efficiency and polarization of diffracted beams are calculated, and an optimized HOE for fabricating fcc structure photonic crystal is presented.

The recording setup of fabricating holographic photonic crystal template, including beam intensity (the first-order diffraction efficiencies of holographic gratings), exposure dose, development times, et al, is designed. According to the optimized parameters, an fcc structure holographic photonic crystal template is fabricated.

4. In order to prevent the change of the angles between the interference beams when the beams propagate from air to photoresist, a thick-glass-matching system is proposed in this dissertation.
5. A lensless system for fabricating large-area 2D photonic crystal using HOE is proposed. 2D lattice structure is fabricated on the surface of LED using this system, and the light extraction efficiency of the LED is enhanced. The experimental results prove the feasibility of the lensless system in fabricating large-area 2D photonic crystal on the surface of LED.

The innovative points of this dissertation are as follows:

1. It is proposed, for the first time, that 3D holographic photonic crystal template can be fabricated using two-beam interference with three exposures.
2. It is proposed that large-area holographic photonic crystal can be fabricated using HOE. The influence of grating depth and polarization angle on diffraction efficiency and polarization of first-order diffracted beams are analyzed systematically for the first time. The design and fabrication process of HOE for certain structure photonic crystal are presented.
3. A set of lensless system for fabricating large-area photonic crystal is proposed. Spherical wave are used as the light source to fabricate 2D photonic crystal, for the first time. The size limitation and light energy absorption brought by collimating lens are eliminated in this system.

Keywords: holography, photonic crystal, light emitting diode (LED)

目 录	
第一章 绪论	1
§ 1.1 光子晶体的理论基础.....	1
§ 1.1.1 光子晶体的概念.....	1
§ 1.1.2 光子晶体的理论基础.....	2
§ 1.2 光子晶体的特征及其应用.....	4
§ 1.2.1 光子晶体的特征.....	4
§ 1.2.2 光子晶体的应用.....	5
§ 1.3 光子晶体的制备方法.....	11
§ 1.3.1 精密机械加工法.....	12
§ 1.3.2 逐层叠加法.....	12
§ 1.3.3 胶体自组织法.....	13
§ 1.3.4 反蛋白石结构法.....	14
§ 1.3.5 激光全息记录法.....	14
§ 1.4 本课题的提出及主要研究内容.....	15
[参考文献].....	18
第二章 全息术实现光子晶体的模拟分析	22
§ 2.1 国内外用全息术实现光子晶体的研究进展.....	22
§ 2.2 全息术实现光子晶体的理论基础.....	32
§ 2.3 计算机模拟全息光子晶体模板在光刻胶中的制作.....	35
§ 2.3.1 光刻胶作为全息记录材料的机理.....	35
§ 2.3.2 光刻胶记录光子晶体结构的过程模拟.....	36
§ 2.4 本章小结.....	47
[参考文献].....	48
第三章 全息光子晶体模板的制作技术	51

§ 3.1 双光束多次曝光法制作全息光子晶体模板.....	51
§ 3.1.1 理论依据.....	51
§ 3.1.2 制作工艺.....	54
§ 3.1.3 关于该方法的几点讨论.....	56
§ 3.2 利用全息光学元件制作光子晶体模板.....	60
§ 3.2.1 全息衍射光栅相关参数的选取.....	62
§ 3.2.2 HOE 及三维光子晶体模板的制作工艺.....	74
§ 3.2.3 利用 HOE 制备二维光子晶体模板.....	85
§ 3.3 本章小结.....	87
[参考文献].....	89
第四章 制作二维光子晶体的无透镜系统及其在LED中的应用.....	90
§ 4.1 利用HOE制作大面积2D光子晶体模板的无透镜系统.....	90
§ 4.2 光子晶体提高LED外量子效率的基本原理.....	96
§ 4.3 2D光子晶体在LED表面的制作.....	100
§ 4.3.1 在光刻胶中制作2D光子晶体结构.....	102
§ 4.3.2 ITO电流扩展层刻蚀工艺.....	103
§ 4.3.3 测试结果与讨论.....	105
§ 4.4 本章小结.....	106
[参考文献].....	107
第五章 总结与展望.....	109
§ 5.1 本文工作总结.....	109
§ 5.2 未来工作讨论.....	110
[参考文献].....	113
攻读博士学位期间发表的学术论文及专利.....	114
致谢.....	116

Contents

1 Introduction.....	1
§ 1.1 Basic theory of photonic crystals.....	1
§ 1.1.1 Definition of photonic crystals.....	1
§ 1.1.2 Basic theory of photonic crystals.....	2
§ 1.2 Characteristics and applications of photonic crystals.....	4
§ 1.2.1 Characteristics of photonic crystals.....	4
§ 1.2.2 Applications of photonic crystals.....	5
§ 1.3 Fabrication technique of photonic crystals.....	11
§ 1.3.1 Drilling holes.....	12
§ 1.3.2 Layer-by-layer micromachining.....	12
§ 1.3.3 Self-organization of colloids.....	13
§ 1.3.4 Anti-opal.....	14
§ 1.3.5 Holographic lithograph.....	14
§ 1.4 Contents of our investigations.....	15
Reference.....	18
2 simulation analysis of photonic crystal fabrication process using holographic lithograph.....	22
§ 2.1 Development of fabrication using holographic lithograph in the word.....	22
§ 2.2 Basic theory of photonic crystal fabrication using holographic lithograph.....	32
§ 2.3 Computer simulation of fabrication process of holographic photonic crystal template in photoresist.....	35
§ 2.3.1 Mechanism of photoresist as holographic recording material.....	35
§ 2.3.2 Simulation of recording process of photonic crystals structure in	

photoresist.....	36
§ 2.4 Conclusion.....	47
References.....	48
3 Fabrication technique of holographic photonic crystal template.....	51
§ 3.1 Fabricating photonic crystal template using two-beam multi-exposure holographic technique.....	51
§ 3.1.1 Theory.....	51
§ 3.1.2 Fabrication technique.....	54
§ 3.1.3 Discussing about this technique.....	56
§ 3.2 Fabricate photonic crystal using HOE.....	60
§ 3.2.1 Parameter choose of holographic diffraction gratings.....	62
§ 3.2.2 Fabrication technique of HOE and photonic crystal template.....	74
§ 3.2.3 Fabrication of 2D photonic crystal template using HOE.....	85
§ 3.3 Conclusion.....	87
References.....	89
4 Lensless system of fabricating 2D photonic crystal and its application to LED.....	90
§ 4.1 Lensless system of fabricating large-area 2D photonic crystal.....	90
§ 4.2 Basic theory of 2D photonic crystal increasing light extraction from LED.....	96
§ 4.3 Fabrication of 2D photonic crystals on the surface of LED.....	100
§ 4.3.1 2D photonic crystal fabricated in photoresist.....	102
§ 4.3.2 ITO etching technique.....	103
§ 4.3.3 Experiment results discussing.....	105
§ 4.4 Conclusion.....	106

Reference	107
5 Summary and prospect	109
§ 5.1 Summary of this dissertation.....	109
§ 5.2 The work that should be developed.....	110
Reference.....	113
Publication list	114
Acknowledgements	116

厦门大学博硕士学位论文摘要库

第一章 绪论

电子作为信息和能量的载体，在 20 世纪的发展中做出了巨大的历史性贡献。20 世纪中期开始的以半导体为代表的电子带隙材料的出现带来了从日常生活到高科技革命性的影响。但是随着科技的飞速进步，让人们曾经欢欣鼓舞的半导体器件已经不能满足社会发展的需要。主要原因有两个，首先，电子电路的小型化使得电路中的电阻增大，造成了电能的大量浪费；其次，基于已有的技术和概念，“电子”载体的功能受到“瓶颈”效应的限制，已经到了它的极限。而光子有着电子所没有的优势：速度更快，可携带更多的信息且没有相互作用，因此，利用光子作为信息和能量的载体，将把信息高科技推向超高速、超大容量的宽带范畴，成为三“T”信息化社会中不可替代的佼佼者。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了可能。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。他对光通讯、微波通讯、光电子集成以及国防科技等领域将产生重大影响。可以预见，光子晶体技术的发展终将导致光学、光电子学、信息科学革命性的变革。

§ 1.1 光子晶体简介

§ 1.1.1 光子晶体的概念

光子晶体(Photonic crystals)的概念是由E. Yablonovitch^[1]和S. John^[2] 两人于 1987 年首次独立提出的，它是一种介电常数（或者说折射率）在空间呈周期性变化的材料。

众所周知，在半导体材料中原子排列的晶格结构产生的周期性电势场影响着在其中运动的电子的性质，使其形成能带结构。由于介电常数的周期性调制，电磁波在光子晶体中的传播可以用类似于电子在半导体中运动的能带结构来描述。具体表现为：一定频率的光波在光子晶体的特定方向上被散射，不能透过，形成光子禁带（或称光子带隙），频率落在光子禁带中的光波在一定方向上无法传播。这种具有光子禁带的周期性介电材料即为光子晶体或光子带隙材料 (Photonic bandgap materials)。

按介电常数的周期性变化及其出现的空间维度，光子晶体可分为一维、二维、三维光子晶体，如图 1.1 所示。

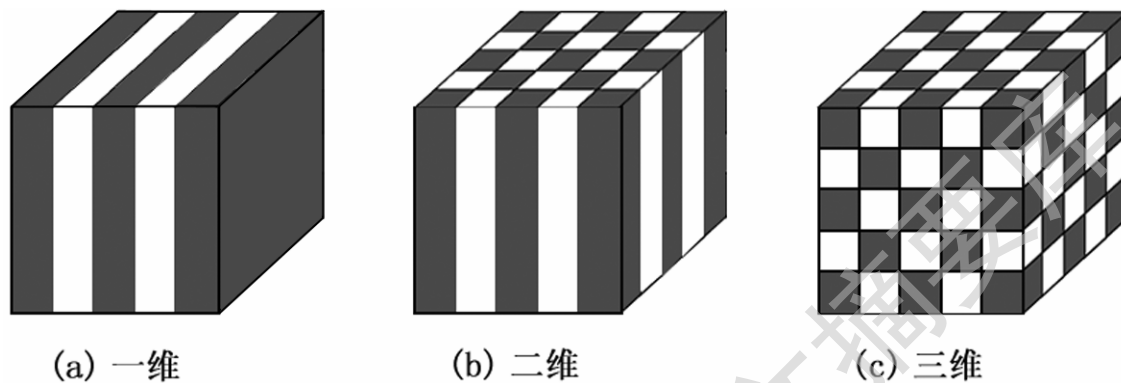


图 1.1 光子晶体空间结构示意图

一维光子晶体如图1.1(a)所示，是两种介电常数的介质呈多层周期分布的结构，如传统的多层介质膜平面反射镜或分布布拉格反射镜（distributed Bragg reflectors(DBR)）就可以看作是一种一维光子晶体。

二维光子晶体如图1.1(b)所示，一般为介电常数 ϵ_a 的介质柱在介电常数 ϵ_b 的介质中呈二维周期排列。

三维光子晶体是最容易实现完全光子禁带的结构，它的介电常数在三维方向呈周期性排列，如图1-1(c)所示。

§ 1.1.2 光子晶体的理论基础

电子在原子晶体中的运动时，电子波函数满足薛定谔方程：

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2m} \nabla^2 + V(\mathbf{r}) \right] \psi(\mathbf{r}) = E \psi(\mathbf{r}) \quad (1.1)$$

其中， $V(\mathbf{r})$ 为在位置 \mathbf{r} 处的周期性势能函数， $\psi(\mathbf{r})$ 为位置 \mathbf{r} 处电子的波函数， E 为能量的本征值。由于势能函数为周期性函数，能量 E 只有取某些值时方程才有解，某些能量区域内方程无解，这些区域就称为电子的能量禁带。

频率为 ω 的单色电磁波在周期性电介质中的传播可以用麦克斯韦方程组表示：

$$\nabla \times \mathbf{E}(\mathbf{r}) = -j\omega\mu\mathbf{H}(\mathbf{r}) \quad (1.2)$$

$$\nabla \times \mathbf{H}(\mathbf{r}) = j\omega\varepsilon\mathbf{E}(\mathbf{r}) \quad (1.3)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{E}(\mathbf{r}) = \rho / \varepsilon \quad (1.4)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{H}(\mathbf{r}) = 0 \quad (1.5)$$

其中, $\varepsilon = \varepsilon_0\varepsilon(\mathbf{r})$, ε_0 为自由空间的介电常数, $\varepsilon(\mathbf{r})$ 为相对介电常数。在介电常数周期性变化的介质中,

$$\varepsilon(\mathbf{r}) = \varepsilon(\mathbf{r} + \mathbf{a})$$

其中, \mathbf{a} 为光子晶体的基本格矢。通常情况下, 对于无磁性介质, $\mu = \mu_0$ 。取(1.2)式的旋度并利用(1.3)式消去 $\mathbf{H}(\mathbf{r})$ 得:

$$\frac{1}{\varepsilon(\mathbf{r})} \nabla \times [\nabla \times \mathbf{E}(\mathbf{r})] = \frac{\omega^2}{c^2} \mathbf{E}(\mathbf{r}) \quad (1.6)$$

其中, $c = \frac{1}{\sqrt{\varepsilon_0\mu_0}}$, 为真空中的光速。

同理可以得到 $\mathbf{H}(\mathbf{r})$ 满足的方程:

$$\nabla \times \left[\frac{1}{\varepsilon(\mathbf{r})} \nabla \times \mathbf{H}(\mathbf{r}) \right] = \frac{\omega^2}{c^2} \mathbf{H}(\mathbf{r}) \quad (1.7)$$

利用矢量分析公式得:

$$\nabla \times (\nabla \times \mathbf{E}) = \nabla(\nabla \cdot \mathbf{E}) - \nabla^2 \mathbf{E} \quad (1.8)$$

将 $\varepsilon(\mathbf{r})$ 展开成

$$\varepsilon(\mathbf{r}) = \varepsilon(\mathbf{r} + \mathbf{a}) = \varepsilon_{av} + \varepsilon_{spatial}(\mathbf{r}) \quad (1.9)$$

其中, ε_{av} 为相对介电常数 $\varepsilon(\mathbf{r})$ 的平均值, $\varepsilon_{spatial}(\mathbf{r})$ 为相对介电常数的空间变化分量。将(1.8), (1.9)两式代入到(1.6)式, 得到电场 \mathbf{E} 的偏微分方程

$$\nabla(\nabla \cdot \mathbf{E}) - \left[\nabla^2 + \frac{\omega^2}{c^2} \varepsilon_{spatial}(\mathbf{r}) \right] \mathbf{E}(\mathbf{r}) = \frac{\omega^2}{c^2} \varepsilon_{av} \mathbf{E}(\mathbf{r}) \quad (1.10)$$

对比(1.10)式与薛定谔方程(1.1)式不难看出, $\varepsilon_{spatial}(\mathbf{r})$ 与势能 $V(\mathbf{r})$ 相对应, 而 $\omega^2\varepsilon_{av}/c^2$ 类似于薛定谔方程中的能量 E 。(1.10)式左边的矢量项 $\nabla(\nabla \cdot \mathbf{E})$ 是薛定谔方程所没有的,

因此电子的波函数遵循的是标量波理论，而电磁波遵循的是矢量波理论。(1.10)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，晶格结构等。这样，通过求解(1.10)式，就可以得到一个类似于能带结构的光子能带图。图1.2为面心立方晶格结构的光子晶体能带图，灰色区域为即光子禁带区域^[3]。

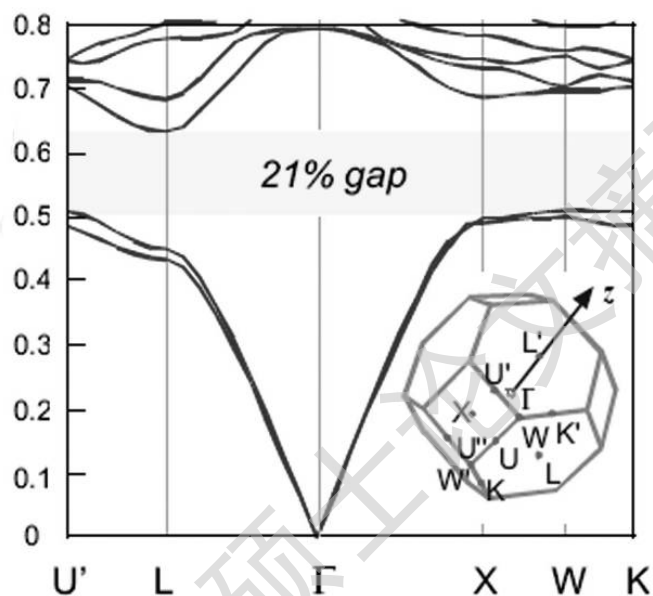


图 1.2 光子晶体能带图^[3]

§ 1.2 光子晶体的特征及其应用

§ 1.2.1 光子晶体特征

光子晶体主要有以下三个特征

1、光子禁带 光子晶体的最基本特征是它具有光子禁带^[3]，频率落在光子禁带中的电磁波是被禁止传播的。如果在空间所有方向都无法传播就称为完全光子禁带，如果只有部分方向无法传播则称为部分光子禁带。光子禁带依赖于光子晶体的结构和介电常数比。光子晶体结构对称性越差，其能带简并度越低，越容易出现完全光子禁带^{[5]-[7]}；介电常数比越大，越可能实现完全光子禁带。

2、控制自发辐射 处于激发态的原子有向基态跃迁的倾向，并以光子的形式释放出能量，这就是原子的自发辐射。自发辐射的比例与光子态的数目成正比，而在

Degree papers are in the "[Xiamen University Electronic Theses and Dissertations Database](#)". Full texts are available in the following ways:

1. If your library is a CALIS member libraries, please log on <http://etd.calis.edu.cn/> and submit requests online, or consult the interlibrary loan department in your library.
2. For users of non-CALIS member libraries, please mail to etd@xmu.edu.cn for delivery details.

厦门大学博硕士论文摘要库