

ДЕФОРМАЦИЯ ФОТОННОЙ ЗОНЫ В НЕИДЕАЛЬНОМ ФОТОННОМ КРИСТАЛЛЕ СИНТЕТИЧЕСКОГО ОПАЛА

*М. В. Васнецов^а, В. А. Пасько^а, Т. Н. Орлова^а, Д. А. Плутенко^а,
А. Д. Кудрявцева^{б*}, Н. В. Чернега^б*

^а *Институт физики Национальной академии наук Украины
03028, Киев, Украина*

^б *Физический институт им. П. Н. Лебедева Российской академии наук
117924, Москва, Россия*

Поступила в редакцию 19 сентября 2017 г.

Для синтетического опала как трехмерного фотонного кристалла в рамках модели слабой разупорядоченности выполнен анализ дифракции Брэгга в различных приближениях. Для однодоменного кристалла проведен расчет фотонной зоны в режиме отражения вдоль оси (111). В мультидоменном случае показано значительное уширение фотонной зоны, появление асимметрии и сдвиг фотонной зоны в коротковолновую область. Результаты сравниваются с экспериментальными зависимостями.

DOI: 10.7868/S0044451018050024

1. ВВЕДЕНИЕ

Интерес к метаматериалам обусловлен их специфическими свойствами, возникающими благодаря искусственно созданной периодической структуре с размерами базисного элемента от единиц до тысяч нанометров. За счет такой структуры, в какой-то мере напоминающей кристалл, но с заменой атомов (ионов) кристаллической решетки на значительно большие элементы, удастся реализовать такие свойства вещества, как, например, отрицательная рефракция [1]. Если размер периода структуры попадает в диапазон длин волн видимого излучения, то такую среду принято называть фотонным кристаллом. Основной особенностью фотонных кристаллов является наличие запрещенной (фотонной) зоны для некоторого спектрального участка. Это означает, что прозрачный материал «не пропускает» в себя некоторые длины волн падающего светового излучения. В той же мере, при наличии внутренних источников, излучение с этими длинами волн не может возникать внутри и выходить наружу из фотонного кристалла [2].

По аналогии с запрещенной энергетической зоной в кристаллических телах подразумевается, что фотонная запрещенная зона «запирает» прохожде-

ние света в фотонном кристалле, независимо от направления распространения. Однако в соответствии со структурой кристалла области фотонных зон возникают для определенных пространственных направлений и в общем случае не формируют единую запрещенную зону [3].

Одним из актуальных направлений в исследовании фотонных кристаллов является анализ оптических свойств трехмерных кристаллов в виде регулярно упакованных сферических глобул аморфного SiO₂ (синтетический опал). В отличие от природного материала с такой структурой (опал), синтетический опал имеет незаполненные промежутки между глобулами. Структура синтетического опала в идеальном случае имеет вид кубической гранецентрированной решетки (ГЦК).

Процесс изготовления (синтеза) опала включает в себя химическую реакцию, сопровождающуюся осаждением сферических частиц (глобул) аморфного SiO₂ [4]. В процессе осаждения и самоорганизации кристалла плотноупакованных глобул неизбежно возникают многочисленные дефекты, а также образование кластеров, что приводит к доменной структуре кристалла. Нарушение регулярности упаковки глобул может нарушить кристаллическую решетку вплоть до полной потери упорядоченности. В таком случае материал превращается в «фотонное стекло».

* E-mail: akudr@sci.lebedev.ru

В случае, когда пространство между глобулами не заполнено иммерсионной жидкостью, контраст между диэлектрическими проницаемостями материала (силиката) и воздуха настолько велик, что образцы опала выглядят белыми и непрозрачными. Поэтому наблюдение фотонной зоны возможно только в отражении либо в пропускании для тонких (меньше 500 мкм) образцов. Для толстых образцов зарегистрировать присутствие фотонной зоны удастся в спектре люминесценции, благодаря тому, что свечение происходит из приповерхностного слоя [5].

При заполнении жидкостью пустот между глобулами прозрачность образцов значительно возрастает и становится возможным наблюдать как саму фотонную полосу в спектрах пропускания, так и рассеяние за счет дефектов [6]. В коротковолновой области всегда наблюдается сильное подавление пропускания, обычно объясняемое рассеянием на частицах с размерами, близкими к длине волны проходящего света [7].

Сочетание периодичности структуры фотонного кристалла с эффектами, вносимыми разупорядоченностью, приводит к деформации фотонной зоны. При этом помимо общего искажения полосы [7, 8] возможно появление особенностей типа слабой локализации [9].

Для практического использования фотонных кристаллов необходим учет их реальных свойств, что определяет актуальность исследований проблемы [10, 11]. Поэтому целью настоящей работы является анализ особенностей распространения света в пространственно-периодической структуре типа опала с учетом неоднородностей структуры различного типа.

2. РАСЧЕТ РАСПРЕДЕЛЕНИЯ ПЛОТНОСТИ И ДИЭЛЕКТРИЧЕСКОЙ ПРОНИЦАЕМОСТИ В РАМКАХ МОДЕЛИ СЛОИСТОЙ СРЕДЫ

В случае, когда период структуры опала в плоскости $\langle 111 \rangle$ (примем как плоскость XU) составляет менее половины длины волны падающего света в среде, обычная дифракция (режим пропускания) отсутствует. Таким образом, взаимодействие света со средой сводится лишь к процессу дифракции Брэгга вдоль оси Z . Это позволяет провести усреднение, полагая материал однородным по поперечным координатам (x, y) . Максимум отражения (и соответственно минимум пропускания, т. е. запрещенная зона) достигается при выполнении условия Брэгга

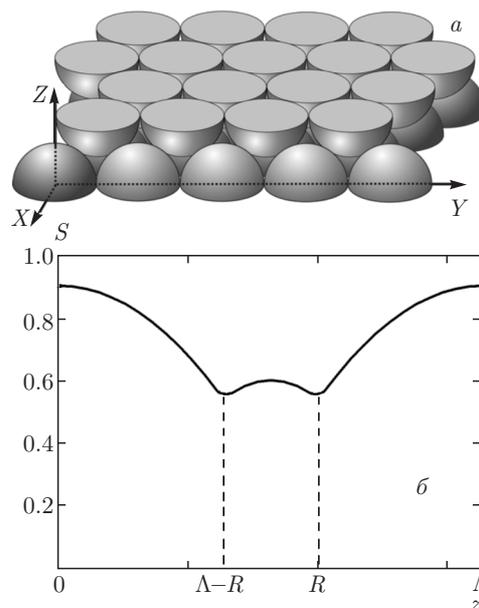


Рис. 1. а) Вид вложенных друг в друга полусфер, образующих период структуры опала вдоль оси Z . б) Расчетное распределение плотности на периоде Λ . Показаны обе функции распределения, для нижнего и верхнего полусфер (максимумы соответственно при $z = 0$ и $z = \Lambda$). В области перекрытия полусфер (штриховые линии на графике) их плотности складываются, образуя центральный максимум

$$\lambda_B = 2n_{eff}\Lambda \cos \theta_B, \quad (1)$$

где λ_B — длина волны (в вакууме), θ_B — угол Брэгга (в среде), Λ — период следования слоев глобул, а n_{eff} — эффективный (усредненный) показатель преломления опала, с учетом вклада иммерсии, заполняющей межглобулярные промежутки.

Для упрощения рассматриваемой задачи дифракции на трехмерной периодической структуре ГЦК-решетки синтетического опала мы применим модель слоистой среды с распределением плотности $S(z)$ вдоль оси Z , с условием периодичности $S(z) = S(z + \Lambda)$. Затем проводим расчет диэлектрической проницаемости такой среды и определяем величины основных гармоник в фурье-разложении. (Расчет амплитуд гармоник может проводиться как с учетом влияния иммерсии, так и с учетом неоднородности плотности глобул.)

Период структуры опала, актуальный для дифракции Брэгга и формирования запрещенной зоны, представляет собой два вложенных слоя полусфер, как показано на рис. 1а. При этом вследствие заполнения межглобулярного объема, усредненная по поперечным координатам плотность материала будет иметь зависимость по высоте слоя

$$\begin{aligned}
 S(z) &= S_v + \frac{\pi(S_g - S_v)}{2\sqrt{3}} \left(1 - \frac{z^2}{R^2}\right), & 0 \leq z < \Lambda - R, \\
 S(z) &= S_v + \frac{\pi(S_g - S_v)}{2\sqrt{3}} \left(2 - \frac{z^2 + (z - \Lambda)^2}{R^2}\right), & \Lambda - R \leq z \leq R, \\
 S(z) &= S_v + \frac{\pi(S_g - S_v)}{2\sqrt{3}} \left(1 - \frac{(z - \Lambda)^2}{R^2}\right), & R < z < \Lambda,
 \end{aligned} \quad (2)$$

где S_g и S_v — плотности глобул и материала между глобулами, R — радиус глобулы, а период Λ составит $2R\sqrt{2/3}$. Соответствующий график распределения представлен на рис. 1б для $S_g = 1$, $S_v = 0$.

Из полученного результата (2) следует исчезновение модуляции плотности $S(z)$ при $S_g = S_v$. В случае различия S_g и S_v разложение в ряд Фурье-функции (2)

$$S(z) = \sum_{l=0}^{\infty} S_l \cos \frac{2\pi lz}{\Lambda} \quad (3)$$

дает следующие значения амплитуд гармоник (приведены только первое, второе и среднее значения):

$$S_0 = S_v + \frac{\pi}{3\sqrt{2}} (S_g - S_v), \quad (4)$$

$$\begin{aligned}
 S_1 &= (S_g - S_v) \frac{2}{9\pi^2} \times \\
 &\times \left[2\sqrt{3} \sin \left(\frac{\pi\sqrt{6}}{2} \right) - 3\pi\sqrt{2} \cos \left(\frac{\pi\sqrt{6}}{2} \right) \right], \quad (5)
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 S_2 &= (S_g - S_v) \frac{1}{18\pi^2} \times \\
 &\times \left[\sqrt{3} \sin \left(\pi\sqrt{6} \right) - 3\pi\sqrt{2} \cos \left(\pi\sqrt{6} \right) \right]. \quad (6)
 \end{aligned}$$

Вычисление коэффициентов в (4) для среднего значения плотности приводит к соотношению

$$S_0 \approx 0.74S_g + 0.26S_v. \quad (7)$$

В ситуации, когда $S_g < S_v$, происходит инверсия плотности и знаки первой и второй гармоник меняются на противоположные.

Расчет усредненной плотности композитного материала (аморфной двуокиси кремния и жидкости, заполняющей поры в опале) может быть применен для нахождения оптических свойств иммерсированного опала. Переход к распределению диэлектрической проницаемости выполняется заменой функции распределения плотности $S(z)$ непосредственно на

функцию распределения диэлектрической проницаемости материала $\varepsilon(z)$. Затем можно определить величину модуляции показателя преломления $n(z)$ с учетом того, что $\varepsilon(z) = [n(z)]^2$. Для первой гармоники модуляции диэлектрической проницаемости, ответственной за резонанс Брэгга, находим

$$\varepsilon_1 \approx 0.18(\varepsilon_g - \varepsilon_{im}), \quad (8)$$

где ε_g и ε_{im} — соответственно проницаемость материала глобулы и иммерсия между глобулами.

Отметим, что в реальной ситуации плотность материала глобулы распределена неравномерно по радиусу, что вызвано условиями формирования глобул [12]. На этом основании получает объяснение экспериментальный факт, что выравнивание среднего показателя преломления материала и иммерсионной жидкости (минимум в рассеянии) не совпадает с исчезновением фотонной зоны в спектре пропускания.

Для случая идеальной упаковки глобул в ГЦК-решетку расчет брэгговского отражения от слоистой среды может быть проведен с использованием метода связанных волн Когельника [13]. Для нормального падения условие Брэгга связывает длину волны с периодом среды соотношением (1)

$$\lambda_B = 2n_{eff}\Lambda, \quad n_{eff} \approx (0.74n_g^2 + 0.26n_{im}^2)^{1/2}$$

— средний показатель преломления среды, а дифракционная эффективность (коэффициент отражения) определяется формулой

$$\eta = \left(\frac{k_0^2 \varepsilon_1}{4k} \right)^2 \frac{\text{sh}^2(\sigma d)}{\sigma^2 \text{ch}^2(\sigma d) + \left(\frac{\delta}{2} \right)^2 \text{sh}^2(\sigma d)}, \quad (9)$$

где

$$\sigma = \left[\left(\frac{k_0^2 \varepsilon_1}{4k} \right)^2 - \left(\frac{\delta}{2} \right)^2 \right]^{1/2}, \quad (10)$$

k_0, k — волновые числа тестирующего излучения соответственно в вакууме и среде ($k = n_{eff}k_0$), ε_1 — амплитуда модуляции диэлектрической проницаемости, определенная выше (8), d — толщина среды, а параметр $\delta = K - 2k$ является мерой отстройки от точного резонанса Брэгга, т. е. невязкой между длинами векторов решетки $K = 2\pi/\Lambda$ и излучения в среде. Для дальнейшего удобства сравнения расчетов в разных приближениях выразим фазовый набег за счет отстройки δd через рассогласование длины волны $\Delta\lambda = \lambda - \lambda_B$ и количество слоев N :

$$\begin{aligned}
 \delta d &= 2\pi \left(\frac{2n_{eff}}{\lambda_B} - \frac{2n_{eff}}{\lambda} \right) d \approx \\
 &\approx 4\pi n_{eff} \frac{\Delta\lambda}{\lambda_B} \frac{d}{2n_{eff}\Lambda} = 2\pi N \frac{\Delta\lambda}{\lambda_B}. \quad (11)
 \end{aligned}$$

В случае малости параметра модуляции показателя преломления по отношению к параметру отстройки,

$$(k_0^2 \varepsilon_1 / 4k)^2 \ll (\delta/2)^2,$$

выражение (9) стремится к виду

$$\eta \rightarrow \left(\frac{k_0^2 \varepsilon_1 d}{4k} \right)^2 \left[\frac{\sin(\sigma d)}{\sigma d} \right]^2. \quad (12)$$

Для реальных образцов синтетического опала формы наблюдаемых полос отражения и пропускания (запрещенные зоны) существенно отличаются от приближения (12). Причиной этого является нарушение упорядоченности структуры фотонного кристалла. Ниже рассмотрим общую модель рассеяния света в фотонном кристалле со слабой разупорядоченностью и сделаем выводы из нее для наблюдаемой формы фотонной полосы.

3. РАССЕЯНИЕ СВЕТА В СЛАБОРАЗУПОРЯДОЧЕННОМ ФОТОННОМ КРИСТАЛЛЕ

В модели слаборазупорядоченного фотонного кристалла примем, что каждый элементарный рассеиватель находится не в точно определенной позиции узла идеального кристалла, а имеет некоторое от него отклонение, которое можно описать статистически. Дифракцию проходящего света на таком кристалле будем рассматривать как результат однократного рассеяния в усреднении по всем возможным реализациям векторов отклонений.

Рассмотрим кристалл как составной из многих одинаковых рассеивателей, которые создают почти упорядоченную (слаборазупорядоченную) структуру. Под такой будем подразумевать, что рассеиватели находятся в точках пространства

$$\mathbf{r}_{nmp} + \boldsymbol{\xi}_{nmp},$$

где узлы решетки

$$\mathbf{r}_{nmp} = n\mathbf{a} + m\mathbf{b} + p\mathbf{c},$$

\mathbf{a} , \mathbf{b} , \mathbf{c} — векторы ребер примитивной ячейки, n , m , p — индексы (целые числа множества \mathbf{Z}), а $\boldsymbol{\xi}_{nmp}$ — отклонение, которое описывается статистически и для которого выполняется усреднение $\langle \boldsymbol{\xi}_{nmp} - \boldsymbol{\xi}_{n'm'p'} \rangle = 0$. (Под угловыми скобками подразумеваем математическое ожидание или усреднение по ансамблю реализаций.) Критерием слабой разупорядоченности будем считать условие малости

среднего квадрата разницы отклонений по отношению к расстоянию между рассеивающими центрами:

$$\langle (\boldsymbol{\xi}_{nmp} - \boldsymbol{\xi}_{n'm'p'})^2 \rangle \ll (\mathbf{r}_{nmp} - \mathbf{r}_{n'm'p'})^2, \quad (13)$$

$$(n, m, p) \neq (n', m', p').$$

Также будем считать, что статистическое распределение отклонений однородно, т. е. для любой функции f , зависящей от разности отклонений $\xi = \xi_{nmp} - \xi_{n'm'p'}$, усреднение по реализациям инвариантно относительно трансляций, т. е. является функцией F от разности индексов

$$\langle f(\xi_{nmp} - \xi_{n'm'p'}) \rangle = F(n - n', m - m', p - p'). \quad (14)$$

Будем считать также, что размеры кристалла из элементарных рассеивателей ограничены и функцию, описывающую границы кристалла, будем обозначать как $\Omega(\mathbf{r})$, она равна единице в точках, где кристалл присутствует, и нулю там, где он отсутствует. Размер кристалла будем считать много больше размера единичного рассеивателя и расстояний между соседними рассеивателями. Тогда функцию распределения оптической плотности ансамбля $s(\mathbf{r})$ (заданную в Приложении А (А.4)) можно выразить через функцию для единичного рассеивателя $s_p(\mathbf{r})$ как сумму

$$s(\mathbf{r}) = \Omega(\mathbf{r}) \sum_{n,m,p \in \mathbf{Z}} s_p[\mathbf{r} - (\mathbf{r}_{nmp} + \boldsymbol{\xi}_{nmp})]. \quad (15)$$

Не разделяя процессы когерентной дифракции и широкоугольного рассеяния, мы можем представить ослабление проходящего пучка как сумму вкладов рассеяния во все порядки, кроме нулевого. Как показано в Приложении А, в приближении скалярного поля в дальней зоне индикатриса рассеяния имеет вид (см. (А.16))

$$J_s(\hat{\mathbf{r}}) = 2\pi^2 k_0 \int_{\mathcal{R}^3} \tilde{s}(k_0 \hat{\mathbf{r}} - \mathbf{k}) \sum_{l=0}^{\infty} \Theta^l \tilde{E}_i(\mathbf{k}) d\mathbf{k}^3, \quad (16)$$

где $\hat{\mathbf{r}}$ — единичный вектор направления, $\tilde{s}(\mathbf{k})$ — фурье-образ функции оптической плотности (15), Θ — оператор, определенный в Приложении А. Ограничимся приближением слабой дифракции, чему соответствует первый член суммы в интеграле (16)

$$J_s(\hat{\mathbf{r}}) = 2\pi^2 k_0 E_i \tilde{s}[k_0(\hat{\mathbf{r}} - \hat{\mathbf{n}})], \quad (17)$$

где $\hat{\mathbf{n}}$ — направление падающей волны (единичный вектор).

Рассмотрим теперь интенсивность рассеянной волны в дальней зоне $I_s(\mathbf{r}) = J_s(\mathbf{r})J_s^*(\mathbf{r})$, усредненную по случайным реализациям отклонений

$$I_s(\hat{\mathbf{r}}) = 4\pi^4 k_0^2 |E_i|^2 \langle |\tilde{s}[k_0(\hat{\mathbf{r}} - \hat{\mathbf{n}})]|^2 \rangle. \quad (18)$$

(Различные элементы выборки реализаций отличаются друг от друга только расположением рассеивающих центров, сам же элементарный рассеиватель и форма кристалла остаются неизменными.) Следующим шагом решения является выяснение вида функции оптической плотности (15).

В случае фотонного кристалла из одинаковых однородных сферических частиц радиуса R фурье-образ функции оптической плотности элементарного рассеивателя $s_p(\mathbf{r})$ можно выразить как

$$\tilde{s}_p(\mathbf{k}) = (2\pi)^{-3} k_0^2 \frac{4\pi\mu}{k^3} [\sin(kR) - kR \cos(kR)], \quad (19)$$

где параметр μ определен как

$$\mu = \frac{\varepsilon_p}{\varepsilon_m} - 1,$$

ε_p — диэлектрическая проницаемость частицы.

Как показано в Приложении В, статистическое усреднение в формуле (18) можно провести, используя введенную в Приложении В функцию разупорядоченности. В зависимости от типа разупорядоченности функция разупорядоченности может быть различной. В случае модели случайного сдвига рассеивателя по отношению к соседнему фурье-образ функции разупорядоченности $\Psi(\mathbf{k}', \mathbf{k})$ от двух векторов \mathbf{k}' и \mathbf{k} рассмотрен в Приложении В, и имеет вид (см. (В.6))

$$\tilde{\Psi}(\mathbf{k}', \mathbf{k}) = 2\alpha \left(\frac{k}{2\pi}\right)^2 \left(\frac{\alpha^2 k^4}{4} + k'^2\right)^{-2}, \quad (20)$$

где α — константа неупорядоченности, введенная в Приложении В, через которую выражается среднеквадратичное отклонение разницы сдвигов рассеивателей ξ по отношению к расстоянию между рассеивателями $\langle \xi^2 \rangle = 3\alpha |\Delta \mathbf{r}|$.

Интенсивность рассеянной волны теперь можно выразить через фурье-образ функции разупорядоченности $\Psi(\mathbf{k}', \mathbf{k})$:

$$I_s(\hat{\mathbf{r}}) = \frac{(2\pi)^7}{4} k_0^2 |E_i|^2 |(\mathbf{a}, \mathbf{b}, \mathbf{c})|^{-1} |\tilde{s}_p(\mathbf{k})|^2 \times \int_{\mathcal{R}^3} \tilde{\Psi}(\mathbf{k}', \mathbf{k}) \sum_{n,m,p \in Z} \tilde{\Omega}'(\mathbf{k} - \mathbf{k}' - \mathbf{k}_{nmp}) d\mathbf{k}', \quad (21)$$

где в подынтегральном выражении (21) вектор $\mathbf{k} = k_0(\hat{\mathbf{r}} - \hat{\mathbf{n}})$ привязан к направлению падающей волны, а \mathbf{k}_{nmp} — вектор обратной решетки структуры кристалла.

Будем считать, что рассеиватель не поглощает. Ослабление падающего пучка в таком случае можно выразить как рассеяние волны во все стороны. Интенсивность по сечению пучка будем считать постоянной, сечение пучка совпадает с сечением кристалла σ .

Для оптически тонкого кристалла, т. е. для малого рассеяния проходящей волны, можно ввести коэффициент ослабления интенсивности волны I как $\kappa = W_s/W_0$ (здесь W_0 — мощность освещающей волны, W_s — мощность рассеянной волны):

$$\kappa = \frac{(2\pi)^7}{4} |(\mathbf{a}, \mathbf{b}, \mathbf{c})|^{-1} \iint_{\mathcal{O}} |\tilde{s}_p(\mathbf{k})|^2 d\hat{\mathbf{k}} \times \int_{\mathcal{R}^3} \Psi(\mathbf{k}', \mathbf{k}) d\mathbf{k}' \sum_{n,m,p \in Z} \tilde{\Omega}'(\mathbf{k} - \mathbf{k}' - \mathbf{k}_{nmp}) \sigma^{-1}, \quad (22)$$

где $\mathbf{k} = k_0(\hat{\mathbf{k}} - \hat{\mathbf{n}})$ и $(n, m, p \neq 0, 0, 0)$. Формула (22) в данной работе — общее аналитическое выражение для ослабления пучка. Она учитывает все брэгговские максимумы (рефлексы от кристаллических плоскостей), свойства единичного рассеивателя, форму и размер кристалла, а также слабую разупорядоченность структуры. Однако полученное выражение слишком громоздко и требует больших вычислительных мощностей для полного расчета. Поэтому актуальны некоторые упрощения для частных случаев.

4. МОДЕЛЬ ТОНКОГО РАССЕЙВАТЕЛЯ ДЛЯ ПЕРВОГО БРЭГГОВСКОГО МАКСИМУМА ВДОЛЬ ОСИ $\langle 111 \rangle$

Для рассмотрения слабаразупорядоченной среды воспользуемся формулой (22) только для первого брэгговского максимума (вдоль направления $\langle 111 \rangle$, совпадающего с осью Z). Ограничение первым брэгговским максимумом приводит к тому, что мы берем только один член из суммы ряда в (22) ($n = 0, m = 0, p = -1$). Будем также считать поперечный размер фотонного кристалла большим. Тогда функция $\tilde{\Omega}'(k - k' - k_{nmp})$ в поперечных направлениях (по отношению к оси Z) вырождается в дельта-функцию, что существенно упростит выражение (22). Продольный размер d (толщина кристалла) ограничен принятым условием малой дифракционной эффективности. Угловое уширение дифракционных максимумов, возникающее за счет разупорядоченности, примем малым по сравнению с угловым расстоянием между максимумами. Подробный анализ для этого случая вынесен в Приложение С.

В принятых упрощениях коэффициент ослабления пучка (22) принимает вид (в данном случае он же и коэффициент отражения η)

$$\kappa(\lambda) = (2\pi)^4 d^2 |(\mathbf{a}, \mathbf{b}, \mathbf{c})|^{-2} \times |F(2\pi/\Lambda)|^2 \Lambda^2 G(\Delta\lambda N/\lambda_B), \quad (23)$$

где $\Lambda = \sqrt{2/3} D$ — толщина слоя, D — диаметр глобулы, $\lambda_B = 2n_{eff}\Lambda$ — длина волны первого брэгговского максимума, $\Delta\lambda = \lambda - \lambda_B$, N — количество слоев, а $F(K)$ — фурье-образ глобулы:

$$F(K) = (2\pi)^{-3} k^2 \frac{4\pi}{K^3} \frac{\Delta\varepsilon}{\varepsilon} \times \left[\sin\left(\frac{KD}{2}\right) - \frac{KD}{2} \cos\left(\frac{KD}{2}\right) \right]. \quad (24)$$

Формула (23) содержит функцию, которую будем называть функцией отклика $G(\xi)$, она имеет следующий вид (см. (С.10)):

$$G(\xi) = \frac{\gamma}{\pi^2\gamma^2 + \xi^2} + \frac{(\xi^2 - \pi^2\gamma^2) - e^{-2\pi^2\gamma} [(\xi^2 - \pi^2\gamma^2) \cos(2\pi\xi) - 2\pi\gamma\xi \sin(2\pi\xi)]}{2\pi^2(\pi^2\gamma^2 + \xi^2)^2}. \quad (27)$$

На рис. 2 показаны контуры селективного отражения, полученные методом связанных волн, согласно формуле (9), с параметрами $\varepsilon = 2$, $\Delta\varepsilon = 2 \cdot 10^{-2}$, $d = 25\lambda_B$, а также по формуле (23) для идеальной упаковки ($\gamma = 0$) и для слабого разупорядочения ($\gamma = 0.1$) с теми же параметрами модуляции.

Сравнение показывает практическое совпадение результатов расчета разными методами для правильной периодической упаковки, что гарантирует адекватность модели, и влияние нарушения периодичности в виде исчезновения боковых лепестков, снижения отражения в максимуме и уширения контура. При этом нарушения симметрии контура отражения не происходит.

5. СЛАБОРАЗУПОРЯДОЧЕННАЯ СРЕДА, МУЛЬТИДОМЕННОЕ ПРИБЛИЖЕНИЕ

Следующим шагом рассмотрения дифракции на иммерсированном синтетическом опале (при выполнении условия малости контраста диэлектрической проницаемости) является мультидоменная модель, т. е. анализ взаимодействия проходящей волны с последовательностью доменов, ориентированных под разными углами к направлению распространения

$$G(\xi) = \gamma \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\text{sinc}^2(\pi t)}{(\pi\gamma)^2 + (\xi - t)^2} dt, \quad (25)$$

где γ — параметр дефазировки, определяемый через длину дефазировки L_s , на которой среднее квадратичное отклонение положения слоев глобул становится равным расстоянию между слоями, $\gamma = d/L_s$.

В случае идеальной периодичности $\gamma \rightarrow 0$ и функция отклика (25) принимает вид $\text{sinc}^2(\pi\xi)$, т. е. форма контура совпадает с приближением случая слабой модуляции (12). При заметном нарушении периодичности, $\gamma \gg (2\pi)^{-1}$, вид функции приближается к контуру Лоренца

$$G(\xi) \rightarrow \frac{\gamma}{(\pi\gamma)^2 + \xi^2}. \quad (26)$$

В общем случае аналитическое выражение для интеграла (25) имеет вид

волны. В этом случае условие Брэгга для дифракции на домене запишется как

$$\lambda_B = 2n_{eff}\Lambda \cos\psi, \quad (28)$$

где ψ — угол отклонения оси $\langle 111 \rangle$ домена от направления проходящего пучка. Таким образом, длина волны Брэгга для наклоненного домена сдвигается всегда в коротковолновую сторону, что приводит к общему «неоднородному» уширению и сдвигу спектральных полос отражения и пропускания. При этом в каждом из доменов происходит собственное рассмотренное выше «однородное» уширение полосы за счет нарушения порядка упаковки глобул. К этому следует добавить, что за счет дифракции на наклонных доменах в отраженном пучке происходит угловое уширение. Поэтому результат разупорядочения ориентации доменов удобнее представить через функцию пропускания, которую можно сопоставлять с результатами эксперимента. Полагая количество слоев в доменах примерно одинаковым, а дифракционную эффективность η малой, запишем функцию пропускания T последовательности доменов как рекуррентное соотношение

$$T_i(\lambda) = T_{i-1}(\lambda)[1 - \eta(\psi_i)]. \quad (29)$$

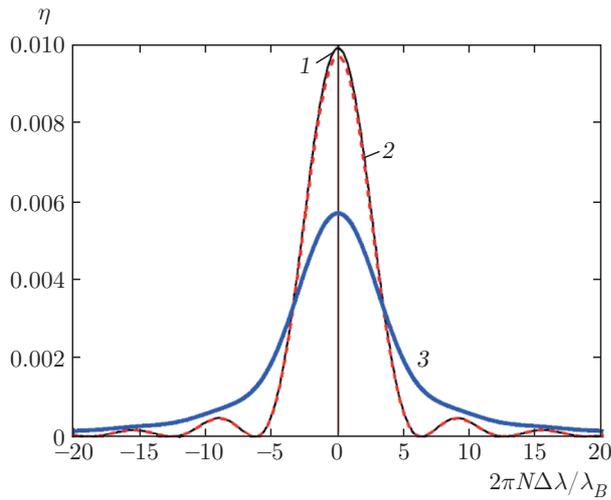


Рис. 2. Сравнение результатов расчета контура дифракционного отражения в случае малой модуляции ($\approx 1\%$ дифракционной эффективности в максимуме контура) по методу связанных волн (кривая 1), и с учетом разупорядочения слоев, штриховая кривая 2 для идеальной упаковки слоев, $\gamma = 0$, кривая 3 для нарушения периодичности, $\gamma = 0.1$. Контраст диэлектрической проницаемости $\Delta\epsilon$ в обоих случаях был взят равным $2 \cdot 10^{-2}$, толщина среды d составляет 71 слой глобул ($N = 71$)

Угол разориентации ψ полагаем случайным и малым. Для выражения фазового набег через отстройку длины волны от значения, соответствующего $\psi = 0$, запишем с учетом (28)

$$\lambda_B(\psi) \approx \lambda_B - \lambda_B \frac{\psi^2}{2}, \quad (30)$$

т. е. функция отклика $G(\xi)$ (25) для наклонного домена получает вид

$$G(\xi + v) = \gamma \oint \frac{\text{sinc}^2(\pi x)}{(\pi\gamma)^2 + (\xi + v - x)^2} dx, \quad (31)$$

где $v = N\psi^2/2$.

Контур распределения по углам отклонения будем считать гауссовым и независимым от направления отклонения. Таким образом, усредненная функция отклика приобретает вид (бесконечный верхний предел интегрирования используем с гарантией малости среднего угла разориентации ($\langle\psi^2\rangle \ll 1$))

$$G_\Omega(\xi) = \frac{2}{\langle\psi^2\rangle} \int_0^\infty \psi \exp\left(-\frac{\psi^2}{\langle\psi^2\rangle}\right) G(\xi + v) d\psi, \quad (32)$$

с подстановкой $\varpi = 2/N\langle\psi^2\rangle$ и заменой $x = N\psi^2/2$ получим

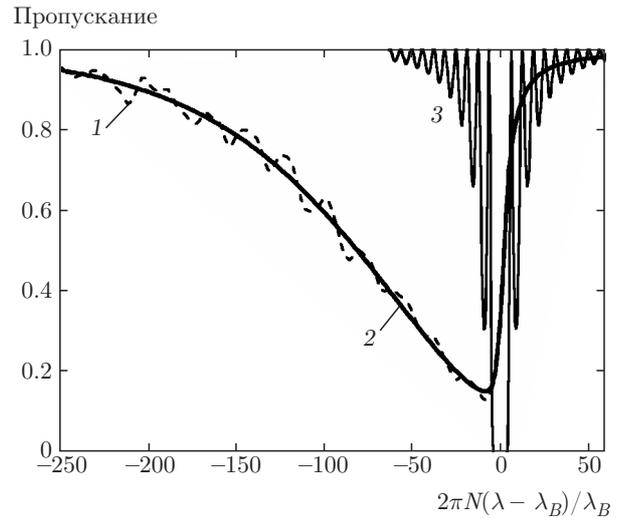


Рис. 3. Расчет контура пропускания мультидоменного образца: штриховая кривая 1 — реализация в соответствии с формулой (29) для последовательности 10^3 случайно-ориентированных доменов, кривая 2 для усреднения по формуле (33), контур 3 соответствует идеальному образцу

$$G_\Omega(\xi) = \varpi \int_0^\infty e^{-x\varpi} G(\xi + x) dx. \quad (33)$$

Здесь параметр ϖ служит мерой разброса угла ориентации доменов от направления тестирующего пучка.

Расчеты спектрального контура пропускания показаны на рис. 3 для случайной реализации последовательности 10^3 доменов (29) и для усреднения процесса по формуле (33). Параметры расчета были выбраны следующими: степень нарушения периодичности $\gamma = 0.1$, разброс углов $\varpi = 0.1$.

Контур пропускания существенно различаются для сочетания параметров γ (однородного уширения) и ϖ (угловой разориентации). Однако общим является появление заметной асимметрии спектральной функции пропускания, как «выедания» коротковолновой области и смещения минимума по отношению к расчетному положению длины волны Брэгга. Ширина контура может значительно превышать «однородное» уширение и существенно искажать фотонную зону.

6. УЧЕТ ДИФFUЗНОГО РАССЕЯНИЯ И ВСЕХ БРЭГГОВСКИХ РЕФЛЕКСОВ

В случае, когда длина разупорядоченности будет много меньше размера кристалла, на ширину брэгговского максимума размер кристалла влиять не бу-

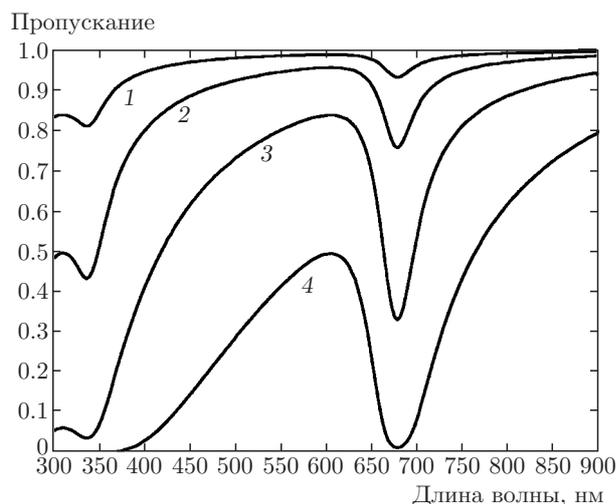


Рис. 4. Расчет пропускания для монодоменного образца толщиной 2 мм с параметрами рассеяния $D = 300$ нм, $n = 1.38$, $\mu = 0.00573$ (контур 1), $\mu = 0.01146$ (контур 2), $\mu = 0.02292$ (контур 3), $\mu = 0.04584$ (контур 4)

дет. В таком приближении ослабление проходящего пучка вдоль оси Z будет экспоненциальным:

$$I(z) = I_0 \exp(-\chi z). \quad (34)$$

Константа затухания χ выражается через интеграл рассеянной энергии по всем направлениям O :

$$\chi = \frac{(2\pi)^7}{4} |(\mathbf{a}, \mathbf{b}, \mathbf{c})|^{-2} \oint\limits_O |\tilde{s}_p(\mathbf{k})|^2 d\hat{\mathbf{k}} \times \sum_{n,m,p \in Z} \tilde{\Psi}(\mathbf{k} - \mathbf{k}_{nmp}, \mathbf{k}), \quad (35)$$

где $\mathbf{k} = k_0(\hat{\mathbf{k}} - \hat{\mathbf{n}})$ и $(n, m, p \neq 0, 0, 0)$.

Расчет пропускания показан на рис. 4, для принятой модели с функцией разупорядоченности, определенной в виде (20) и для различных значений контраста диэлектрической проницаемости $\mu = (\varepsilon_g - \varepsilon_{im})/\varepsilon_{im}$.

Помимо развития фотонной зоны, соответствующей основному резонансу Брэгга на $\lambda_B = 677$ нм, фиксируется также особенность на длине волны 338 нм, в области второго резонанса Брэгга (а также рефлексы от других кристаллических плоскостей).

Результат расчета дает следующую качественную форму искажения фотонной полосы: коротковолновый край более резкий, а длинноволновый затянут, в противоположность эффекту углового разупорядочения доменов. Помимо этого, общее пропускание опала резко снижается из-за рассеяния

в коротковолновой области. Естественно, проходящий пучок изменяет свою расходимость, и в практическом измерении функции пропускания необходимо выделять малый телесный угол.

Таким образом, использованные подходы для описания дифракции Брэгга и образования запрещенной фотонной зоны в неидеальном синтетическом опале показали несколько качественно различных эффектов деформации полосы пропускания. Нарушение строгой упорядоченности в единичном домене уширяет форму полосы, но оставляет ее симметричной относительно расчетной длины волны Брэгга. Угловое разупорядочение доменов приводит к существенному уширению, асимметрии и сдвигу фотонной зоны в коротковолновую область. Учет диффузного рассеяния дает существенное снижение пропускания в коротковолновой области и асимметрично-уширенную полосу фотонной зоны.

7. ЭКСПЕРИМЕНТ

Экспериментальное исследование было выполнено с образцом синтетического опала толщиной 2.5 мм и поперечными размерами 6×8 мм² с размерами глобул 300 нм (диаметр D). Образец после трехчасового отжига при температуре 300 °С погружался в кювету с иммерсионной жидкостью и выдерживался до достижения стационарного спектра пропускания (обычно время пропитки составляло 20–30 ч). Для измерения спектров использовался Perkin Elmer Lambda 25 UV/vis спектрометр. Ориентация образца (поверхность $\langle 111 \rangle$) была перпендикулярной к тестирующему пучку спектрофотометра. Спектральный диапазон работы спектрометра позволял уверенно наблюдать только первую фотонную зону, находящуюся вблизи 660 нм (положение зоны зависит от показателя преломления иммерсионной жидкости). Для иммерсирования использовались гидрофобные жидкости гомологического семейства алканов (пентан, гексан, гептан, декан, а также их смеси). Этот выбор обусловлен хорошей воспроизводимостью результатов и закономерностью отклика. Отметим, что при использовании гидрофильных жидкостей (гомологический ряд спиртов) наблюдались существенные флуктуации положения минимума пропускания [14]. Наиболее близким показателем преломления к показателю материала глобул $n_g = 1.361$ обладал пентан ($n = 1.358$). Слабый контраст диэлектрической проницаемости приводил к появлению минимума в спектре пропускания на 660 нм симметричной фор-

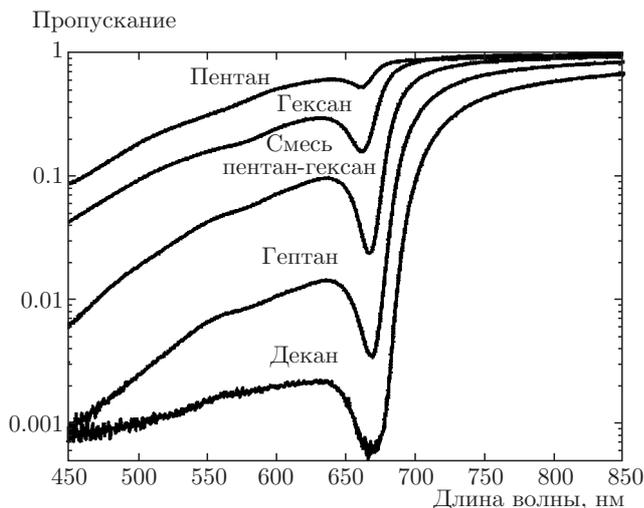


Рис. 5. Спектры пропускания, полученные при иммерсировании образца алканами, соответствующие показатели преломления для пентана 1.358, гексана 1.375, гептана 1.388, смеси гептан-гексан 1.382 и декана 1.41. Использована логарифмическая шкала для выделения слабого пропускания образцов в коротковолновой области

мы, и постепенное убывание пропускания в области коротких волн. Иммерсирование образца гексаном с показателем преломления 1.375 реализует контур со ступенчатым скачком в пропускании. Дальнейшее увеличение показателя преломления иммерсионной жидкости существенно усиливает подавление пропускания в коротковолновой области. Спектры пропускания образцов, иммерсированных различными алканами, представлены на рис. 5.

8. РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Проведенный анализ дифракции и рассеяния света в неидеальном фотонном кристалле синтетического опала был выполнен на основе модели, в которой форма полосы фотонной зоны определяется усредненной совокупной взаимной расфазировкой волн от каждого рассеивателя из-за его отклонения от точного положения в узле решетки. Общий подход последовательно применен к случаям уединенного домена с учетом нарушения строгой периодичности упаковки глобул, для совокупности слегка разориентированных доменов, и для диффузного рассеяния в образце. Сравнение с расчетом для идеальной упаковки одинаковых глобул показывает следующие особенности деформации фотонной зоны. Нарушение строгой периодичности в единичном домене уширяет форму полосы пропускания, боковые максимумы исчезают. При этом кон-

тур остается симметричным по отношению к длине волны резонанса Брэгга. Асимметрия и уширение контура возникают вследствие наклона домена (оси $\langle 111 \rangle$ ГЦК-упаковки) относительно падающего пучка. В общем рассмотрении рассеяния в ансамбле слаборазупорядоченных рассеивателей проявляются особенности уширения фотонной зоны в зависимости от функции разупорядочения. Помимо основного рефлекса от периодической упаковки слоев $\langle 111 \rangle$ расчет дает возможность обнаружить дифракцию Брэгга второго порядка, а также рефлексы от других кристаллографических плоскостей. Отметим, что аналитическое решение задачи рассеяния в виде выражения (22) выполнено впервые. Результаты близки к полученным расчетам в модели послыонного численного интегрирования [15], для случая образцов, по толщине близких к однодоменным.

Сравнение полученных результатов с измеренными полосами пропускания в синтетическом опале показывает, что для относительно тонких образцов, близких к однодоменному случаю, реализуется сценарий сочетания брэгговской дифракции и широкоугольного диффузного рассеяния. При этом полоса имеет асимметричный вид с более резкой границей со стороны коротких длин волн. Для более толстых образцов становится доминирующим влияние мультидоменности и форма полосы приближается к ступенчатой с резким подавлением пропускания в коротковолновой области.

Сочетание всех эффектов приводит к реализации формы фотонной зоны, существенно отличающейся от идеального случая. Сравнение с результатами эксперимента позволяет оценить степень разупорядоченности структуры образца.

Естественно, не все факторы, приводящие к наблюдаемым формам полос, учтены в предложенной модели рассеяния. В частности, не рассматривается вторичное рассеяние, т. е. дифракция уже рассеянного излучения на структуре кристалла. В этом смысле, оптическая толщина среды должна быть меньше «длины рассеяния» фотона. (Длину рассеяния можно условно определить как расстояние, на котором интенсивность проходящего пучка убывает в два раза). Далее, существенным фактором является различие размеров и оптической плотности глобул (в модели все глобулы считаются одинаковыми). Дополнительные эффекты могут быть также связаны с депolarизацией излучения, что не включено в рассмотрение.

Отметим, что решение проблемы распространения света в периодической слаборазупорядоченной среде весьма актуально для круга задач использова-

ния фотонных кристаллов, в частности, для лазерной генерации в подобных структурах при наличии усиления в среде.

ПРИЛОЖЕНИЕ А

Рассмотрим ансамбль рассеивателей конечного размера в оптически линейной однородной среде без поглощения. Падающее поле, т. е. свободно распространяющуюся монохроматическую волну с волновым вектором \mathbf{k}_0 и волновым числом k_0 , будем выражать в скалярном приближении через комплексную амплитуду $E_i(\mathbf{r})$, учитывая осциллирующую пространственную зависимость $\exp(i\mathbf{k}_0 \cdot \mathbf{r})$, где \mathbf{r} — радиус-вектор. Поле при наличии рассеивателя будем выражать через $E(\mathbf{r})$, рассеянное поле опишем как

$$E_s(\mathbf{r}) = E(\mathbf{r}) - E_i(\mathbf{r}).$$

Обозначим диэлектрическую проницаемость окружающей среды ε_m . Рассеиватель в среде можно задать в общем виде распределением диэлектрической проницаемости $\varepsilon(\mathbf{r})$.

Для падающей волны волновое уравнение для комплексной амплитуды E_i имеет вид

$$(\Delta + k_0^2)E_i(\mathbf{r}) = 0, \quad (\text{A.1})$$

а для поля с наличием ограниченного рассеивателя

$$(\Delta + k^2(\mathbf{r}))E(\mathbf{r}) = 0, \quad (\text{A.2})$$

где $k^2(\mathbf{r}) = k_0^2 \varepsilon(\mathbf{r}) / \varepsilon_m$.

Рассеянное поле выразится из соотношения (A.1) и (A.2):

$$(\Delta + k_0^2)(E(\mathbf{r}) - E_i(\mathbf{r})) = -s(\mathbf{r})E(\mathbf{r}), \quad (\text{A.3})$$

где

$$s(\mathbf{r}) = k_0^2 [\varepsilon(\mathbf{r}) / \varepsilon_m - 1]. \quad (\text{A.4})$$

Для нахождения рассеянной волны решим задачу определения полного поля $E(\mathbf{r})$ через падающую волну $E_i(\mathbf{r})$ аналогично подходу, описанному в работе [16]. Перейдем к фурье-образам (разложению по плоским волнам), т. е. фурье-образ падающей волны имеет вид

$$\tilde{E}_i(\mathbf{k}) = (2\pi)^{-3} \int_{\mathcal{R}^3} E_i(\mathbf{r}) \exp(-i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}) d\mathbf{r}, \quad (\text{A.5})$$

и преобразуем (A.3) к виду (здесь и далее знак тильды обозначает фурье-преобразование):

$$\tilde{E}(\mathbf{k}) = \tilde{E}_i(\mathbf{k}) + \Theta \tilde{E}(\mathbf{k}), \quad (\text{A.6})$$

где \mathbf{k} — вектор пространства волновых векторов с соответствующим волновым числом k , а Θ — линейный оператор пространства функций трех переменных \mathcal{R}^3 , определенный как

$$\Theta \tilde{E}(\mathbf{k}) \equiv (k^2 - k_0^2)^{-1} \int_{\mathcal{R}^3} \tilde{s}(\mathbf{k} - \mathbf{k}') \tilde{E}(\mathbf{k}') d\mathbf{k}', \quad (\text{A.7})$$

где в соответствии с (A.3)

$$\tilde{s}(\mathbf{k}) = (2\pi)^{-3} \int_{\mathcal{R}^3} s(\mathbf{r}) \exp(-i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}) d\mathbf{r}. \quad (\text{A.8})$$

Теперь фурье-образ рассеянной волны можно выразить через фурье-образ падающей волны (A.5) как ряд последовательных приближений:

$$\tilde{E}_s(\mathbf{k}) = \sum_{l=1}^{\infty} \Theta^l \tilde{E}_i(\mathbf{k}). \quad (\text{A.9})$$

Введем индикатрису рассеяния в дальней зоне $J_s(\hat{\mathbf{r}})$, где $\hat{\mathbf{r}}$ — направление рассеяния, как функцию

$$J_s(\hat{\mathbf{r}}) = \lim_{r \rightarrow \infty} [k_0 r \exp(-ik_0 r) E_s(\hat{\mathbf{r}})], \quad (\text{A.10})$$

где теперь $E_s(\hat{\mathbf{r}})$ — обратное фурье-преобразование (A.9). Таким образом, произведение $J_s(\hat{\mathbf{r}}) J_s^*(\hat{\mathbf{r}})$ будет представлять энергетическую характеристику рассеяния в дальней зоне.

Для рассмотрения рассеяния в дальней зоне сначала рассмотрим интеграл вида

$$\Phi(\mathbf{r})|_{r \rightarrow \infty} = \int_{\mathcal{R}^3} (k^2 - k_0^2)^{-1} f(\mathbf{k}) \exp(i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}) d\mathbf{k}, \quad (\text{A.11})$$

или в более детальном выражении

$$\begin{aligned} \Phi(\mathbf{r})|_{r \rightarrow \infty} = & \int_{-\infty}^{\infty} k^2 dk \int_0^{\pi/2} \sin k_\theta dk_\theta \int_0^{2\pi} (k^2 - k_0^2)^{-1} \times \\ & \times f(k, k_\theta, k_\varphi) \exp\{ikr[\sin \theta \sin k_\theta \cos(\varphi - k_\varphi) + \\ & + \cos \theta \cos k_\theta]\} dk_\varphi. \end{aligned} \quad (\text{A.12})$$

После взятия методом перевала интеграла (A.12) по переменным dk_θ, dk_φ (θ и φ — соответственно меридиональный и сагитальный углы) имеем

$$\begin{aligned} \Phi(\mathbf{r})|_{r \rightarrow \infty} = & -2\pi i \int_{-\infty}^{\infty} (k^2 - k_0^2)^{-1} \frac{k}{r} f(k, \theta, \varphi) \times \\ & \times \exp(ikr) dk, \quad \theta < \pi/2, \end{aligned} \quad (\text{A.13})$$

$$\begin{aligned} \Phi(\mathbf{r})|_{r \rightarrow \infty} = & 2\pi i \int_{-\infty}^{\infty} (k^2 - k_0^2)^{-1} \frac{k}{r} \times \\ & \times f(k, \pi - \theta, \varphi + \pi) \exp(-ikr) dk, \quad \theta > \pi/2. \end{aligned}$$

Эти интегралы возьмем с помощью вычетов, для $\theta < \pi/2$ необходимо сделать обход в верхней полуплоскости, а для $\theta > \pi/2$ — в нижней. Но поскольку полюса лежат на действительной оси, их необходимо обойти. Обход будем делать таким образом, чтобы в конечном итоге рассеянная волна состояла только из расходящейся волны, т. е. проведем так, если бы k_0 было не действительным числом, а содержало бесконечно малую мнимую прибавку $\text{Im } k_0 > 0$. Далее так и будем полагать. В результате имеем

$$\Phi(\mathbf{r})|_{r \rightarrow \infty} = \frac{2\pi^2}{r} \exp(ik_0 r) f(k_0, \theta, \varphi). \quad (\text{A.14})$$

В применении к рассматриваемой задаче определения рассеяния в дальней зоне используем полученное преобразование (A.14) в выражении для индикатрисы (A.10) при подстановке в него (A.9):

$$J_s(\hat{\mathbf{r}}) = \lim_{r \rightarrow \infty} \left[k_0 r \exp(-ik_0 r) \times \int_{\mathcal{R}^3} \exp(i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}) \sum_{l=1}^{\infty} \Theta^l \tilde{E}_i(\mathbf{k}) d\mathbf{k} \right]. \quad (\text{A.15})$$

В результате получим, что индикатриса $J_s(\hat{\mathbf{r}})$ выражается через падающее поле следующим образом:

$$J_s(\hat{\mathbf{r}}) = 2\pi^2 k_0 \int_{\mathcal{R}^3} \tilde{s}(k_0 \hat{\mathbf{r}} - \mathbf{k}) \sum_{l=0}^{\infty} \Theta^l \tilde{E}_i(\mathbf{k}) d\mathbf{k}, \quad (\text{A.16})$$

где интегрирование проводится по пространству волновых векторов, $d\mathbf{k} = dk_x dk_y dk_z$. Смысл проведенных преобразований заключается в том, что получено выражение (A.16) для рассеяния в дальней зоне, содержащее оператор Θ . Для ситуации слабого рассеяния (приближение Рэлея – Ганса) всеми слагаемыми в подынтегральной сумме (A.16), за исключением $l = 0$, можно пренебречь.

ПРИЛОЖЕНИЕ В

Функция разупорядоченности

Ввиду малости единичного рассеивателя по отношению к размеру кристалла из (15) и (A.8) имеем

$$\tilde{s}(\mathbf{k}) = \tilde{s}_p(\mathbf{k}) \sum_{n,m,p \in Z} \Omega(\mathbf{r}_{nmp} + \boldsymbol{\xi}_{nmp}) \times \exp[-i\mathbf{k}(\mathbf{r}_{nmp} + \boldsymbol{\xi}_{nmp})], \quad (\text{B.1})$$

где функция $\Omega(\mathbf{r}_{nmp})$ обращает в нуль члены суммы с индексами, соответствующими узлам решетки за

пределами кристалла (точнее, в (B.1) положениям смещенных рассеивателей за пределами идеального кристалла). Ввиду условия слабой разупорядоченности (13) получим статистически усредненную зависимость по всем возможным реализациям взаимных смещений рассеивателей $\boldsymbol{\xi}_{nmp} - \boldsymbol{\xi}_{n'm'p'}$:

$$\langle |\tilde{s}(\mathbf{k})|^2 \rangle = |\tilde{s}_p(\mathbf{k})|^2 \times \sum_{n,m,p,n',m',p' \in Z} \Omega(\mathbf{r}_{nmp}) \Omega(\mathbf{r}_{n'm'p'}) \times \exp[-i\mathbf{k} \cdot (\mathbf{r}_{nmp} - \mathbf{r}_{n'm'p'})] \times \langle \exp[-i\mathbf{k} \cdot (\boldsymbol{\xi}_{nmp} - \boldsymbol{\xi}_{n'm'p'})] \rangle. \quad (\text{B.2})$$

Принимая во внимание однородность статистического распределения отклонений (14), можно ввести функцию разупорядоченности таким образом:

$$\Psi(\mathbf{r}_{nmp}, \mathbf{k}) = \langle \exp[-i\mathbf{k} \cdot (\boldsymbol{\xi}_{n+n',m+m',p+p'} - \boldsymbol{\xi}_{n'm'p'})] \rangle, \quad (\text{B.3})$$

где усреднение проводится по ансамблю всех возможных реализаций отклонений и не зависит от n', m', p' ввиду однородности статистического распределения отклонений. Будем считать, что отклонение рассеивателя случайно относительно близлежащих соседей и не зависит от более далеких. Будем также считать распределение случайных отклонений изотропным и однородным. Для разности отклонений $\boldsymbol{\xi} = \boldsymbol{\xi}_{nmp} - \boldsymbol{\xi}_{n'm'p'}$ получим в таком случае соотношение

$$\langle \boldsymbol{\xi}^2 \rangle = 3\alpha |\Delta \mathbf{r}|, \quad (\text{B.4})$$

т. е. квадрат среднеквадратичного отклонения рассеивателей зависит линейно от расстояния между соответствующими узлами $\Delta \mathbf{r} = \mathbf{r}_{nmp} - \mathbf{r}_{n'm'p'}$, α — параметр разупорядоченности, имеющий размерность длины. Именно этот вариант статистического распределения использован в рассматриваемой модели рассеяния.

Из (B.3) получим в компактном виде

$$\Psi(\mathbf{r}_{nmp}, \mathbf{k}) = \exp\left(-\frac{\alpha |\mathbf{r}_{nmp}| |\mathbf{k}|^2}{2}\right) \quad (\text{B.5})$$

и соответствующий фурье-образ как функцию от двух независимых векторов \mathbf{k}' и \mathbf{k} :

$$\tilde{\Psi}(\mathbf{k}', \mathbf{k}) = 2\alpha \left(\frac{k}{2\pi}\right)^2 \left(\frac{\alpha^2 k^4}{4} + k'^2\right)^{-2}, \quad (\text{B.6})$$

где k' и k — модули соответствующих векторов. Теперь остается выразить $\langle |\tilde{s}(\mathbf{k})|^2 \rangle$ в (B.2) через функцию разупорядоченности (B.3):

$$\langle |\tilde{s}(\mathbf{k})|^2 \rangle = |\tilde{s}_p(\mathbf{k})|^2 \times \sum_{n,m,p \in Z} \Omega'(\mathbf{r}_{nmp}) \exp(-i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_{nmp}) \Psi(\mathbf{r}_{nmp}, \mathbf{k}), \quad (\text{B.7})$$

где

$$\Omega'(\mathbf{r}) = \sum_{n,m,p \in Z} \Omega(\mathbf{r} + \mathbf{r}_{nmp}) \Omega(\mathbf{r}_{nmp})$$

— квадратичная функция ограничения размера кристалла. Для дальнейшего анализа необходимо перейти в (B.7) от суммирования по узлам решетки к суммированию по узлам обратной решетки. Рассмотрим для этого сумму вида

$$C_{NMP}(\mathbf{k}) = \sum_{n=-N}^N \sum_{m=-M}^M \sum_{p=-P}^P \exp(-i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_{nmp}), \quad (\text{B.8})$$

где вектор узла имеет вид

$$\mathbf{r}_{nmp} = \mathbf{a}n + \mathbf{b}m + \mathbf{c}p, \quad (\text{B.9})$$

и распишем (B.8) в виде

$$C_{NMP}(\mathbf{k}) = \frac{\sin(\mathbf{k} \cdot \mathbf{a}(2N+1)/2)}{\mathbf{k} \cdot \mathbf{a}/2} \times \frac{\sin(\mathbf{k} \cdot \mathbf{b}(2M+1)/2)}{\mathbf{k} \cdot \mathbf{b}/2} \times \frac{\sin(\mathbf{k} \cdot \mathbf{c}(2P+1)/2)}{\mathbf{k} \cdot \mathbf{c}/2}. \quad (\text{B.10})$$

При устремлении N, M, P в бесконечность выражение (B.10) становится суммой дельта-функций. Чтобы определить их мощность, получим при интегрировании (B.10)

$$\int_{\mathcal{R}^3} \frac{\sin(\mathbf{k} \cdot \mathbf{a}(N+1/2))}{\mathbf{k} \cdot \mathbf{a}/2} \frac{\sin(\mathbf{k} \cdot \mathbf{b}(M+1/2))}{\mathbf{k} \cdot \mathbf{b}/2} \times \frac{\sin(\mathbf{k} \cdot \mathbf{c}(P+1/2))}{\mathbf{k} \cdot \mathbf{c}/2} d\mathbf{k} = (2\pi)^3 |(\mathbf{a}, \mathbf{b}, \mathbf{c})|^{-1}. \quad (\text{B.11})$$

Таким образом, при стремлении N, M, P в бесконечность в (B.8) получаем выражение, содержащее сумму дельта-функций:

$$\sum_{n,m,p \in Z} \exp(-i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_{nmp}) = (2\pi)^3 |(\mathbf{a}, \mathbf{b}, \mathbf{c})|^{-1} \times \sum_{n,m,p \in Z} \delta(\mathbf{k} - \mathbf{k}_{nmp}), \quad (\text{B.12})$$

где

$$\mathbf{k}_{nmp} = n\mathbf{k}_a + m\mathbf{k}_b + p\mathbf{k}_c, \quad (\text{B.13})$$

$$\mathbf{k}_a = 2\pi[\mathbf{b} \times \mathbf{c}]/(\mathbf{a}, \mathbf{b}, \mathbf{c}), \quad (\text{B.14})$$

$$\mathbf{k}_b = 2\pi[\mathbf{c} \times \mathbf{a}]/(\mathbf{a}, \mathbf{b}, \mathbf{c}), \quad (\text{B.15})$$

$$\mathbf{k}_c = 2\pi[\mathbf{a} \times \mathbf{b}]/(\mathbf{a}, \mathbf{b}, \mathbf{c}). \quad (\text{B.16})$$

Рассмотрим теперь интеграл типа

$$F(\mathbf{k}) = \int_{\mathcal{R}^3} \sum_{n,m,p \in Z} \delta(\mathbf{r}_{nmp} - \mathbf{r}) \times \exp(-i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}) f(\mathbf{r}) d\mathbf{r}. \quad (\text{B.17})$$

С использованием фурье-преобразования и затем обратного фурье-преобразования имеем

$$F(\mathbf{k}) = (2\pi)^{-3} \int_{\mathcal{R}^3} \int_{\mathcal{R}^3} \int_{\mathcal{R}^3} \sum_{n,m,p \in Z} \delta(\mathbf{r}_{nmp} - \mathbf{r}) \times \exp(i\mathbf{k}' \cdot \mathbf{r} - i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - i\mathbf{k}' \cdot \mathbf{r}') f(\mathbf{r}') d\mathbf{r}' d\mathbf{k}' d\mathbf{r}. \quad (\text{B.18})$$

Принимая во внимание (B.12), один из интегралов проинтегрируем по $d\mathbf{r}$, в результате

$$F(\mathbf{k}) = |(\mathbf{a}, \mathbf{b}, \mathbf{c})|^{-1} \int_{\mathcal{R}^3} \int_{\mathcal{R}^3} \sum_{n,m,p \in Z} \delta(\mathbf{k}' - \mathbf{k} + \mathbf{k}_{nmp}) \times \exp(-i\mathbf{k}' \cdot \mathbf{r}') f(\mathbf{r}') d\mathbf{r}' d\mathbf{k}', \quad (\text{B.19})$$

и после интегрирования по $d\mathbf{r}'$ получим

$$F(\mathbf{k}) = (2\pi)^3 |(\mathbf{a}, \mathbf{b}, \mathbf{c})|^{-1} \int_{\mathcal{R}^3} d\mathbf{k}' \times \sum_{n,m,p \in Z} \delta(\mathbf{k}' - \mathbf{k} + \mathbf{k}_{nmp}) \tilde{f}(\mathbf{k}'). \quad (\text{B.20})$$

В конечном результате

$$\sum_{n,m,p \in Z} \exp(-i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_{nmp}) f(\mathbf{r}_{nmp}) = (2\pi)^3 |(\mathbf{a}, \mathbf{b}, \mathbf{c})|^{-1} \sum_{n,m,p \in Z} \tilde{f}(\mathbf{k} - \mathbf{k}_{nmp}), \quad (\text{B.21})$$

где \mathbf{r}_{nmp} и \mathbf{k}_{nmp} определены в (B.9) и (B.13).

Возвращаясь к выражению (В.7), запишем его в преобразованном виде, используя формулу (В.21):

$$\langle |\tilde{s}(\mathbf{k})|^2 \rangle = (2\pi)^3 |\mathbf{a}, \mathbf{b}, \mathbf{c}|^{-1} |\tilde{s}_p(\mathbf{k})|^2 \times \int_{\mathcal{R}^3} \tilde{\Psi}(\mathbf{k}', \mathbf{k}) d\mathbf{k}' \sum_{n,m,p \in Z} \Omega'(\mathbf{k} - \mathbf{k}' - \mathbf{k}_{nmp}), \quad (\text{В.22})$$

где $\tilde{\Omega}'(\mathbf{k})$ — фурье-образ $\Omega'(\mathbf{k})$,

$$\tilde{\Omega}'(\mathbf{k}) = (2\pi)^3 |\mathbf{a}, \mathbf{b}, \mathbf{c}|^{-1} |\tilde{\Omega}(\mathbf{k})|^2 \quad (\text{В.23})$$

и

$$\tilde{\Psi}(\mathbf{k}, \mathbf{k}') = (2\pi)^3 \int_{\mathcal{R}^3} \exp(-i\mathbf{r} \cdot \mathbf{k}') \Psi(\mathbf{r}, \mathbf{k}) d\mathbf{r}. \quad (\text{В.24})$$

Таким образом, полученным здесь результатом является общее выражение для функции (В.22) через функцию разупорядоченности, функцию единичного рассеивателя и формфактор кристалла.

ПРИЛОЖЕНИЕ С

Приближение одного резонанса Брэгга

Для практически важного случая дифракции на основном брэгговском резонансе (дифракционном отражении вдоль оси $\langle 111 \rangle$) возможен дальнейший анализ полученного общего выражения (22).

Рассмотрение ГЦК-опала с ориентацией направления $\langle 111 \rangle$ вдоль оси Z определяет

$$\mathbf{a} = (D, 0, 0)^T, \quad \mathbf{b} = \left(\frac{1}{2} D, \frac{\sqrt{3}}{2} D, 0 \right)^T, \\ \mathbf{c} = \left(\frac{1}{2} D, \frac{\sqrt{3}}{6} D, \sqrt{\frac{3}{2}} D \right)^T,$$

а следовательно, $|\mathbf{a}, \mathbf{b}, \mathbf{c}| = D^3/\sqrt{2}$ (здесь символ T означает транспонирование). Распространение волны вдоль оси Z определено равенством $\hat{\mathbf{n}} = \hat{\mathbf{z}}$. Будем считать, что поперечные размеры кристалла равны $d_x d_y$, а толщина кристалла d . Рассмотрение только первого брэгговского максимума оставляет только один ненулевой индекс, т.е. $(m, n, p) = (0, 0, -1)$: $\mathbf{k}_{0,0,-1} = -\hat{\mathbf{z}}K$, где $K = 2\pi/\Lambda$ (Λ — толщина слоя).

Ввиду высокой угловой селективности пиков дифракции (вследствие слабой разупорядоченности) функцию $|\tilde{s}_p(\mathbf{k})|^2$ можно вынести в (22) за знак интеграла, а интегрирование по сфере \mathcal{O} рассмотреть как интеграл по плоскости k_x, k_y , т.е. $\mathbf{k} = \hat{\mathbf{x}}k_x + \hat{\mathbf{y}}k_y - \hat{\mathbf{z}}K$, что приводит выражение (22) к виду

для коэффициента отражения (дифракционной эффективности η):

$$\eta = \frac{(2\pi)^7}{4} |\mathbf{a}, \mathbf{b}, \mathbf{c}|^{-1} \frac{|\tilde{s}_p(K)|^2}{k_0^2} \times \int_{-\infty}^{\infty} dk_x \int_{-\infty}^{\infty} dk_y \int_{\mathcal{R}^3} \tilde{\Psi}(\mathbf{k}', \mathbf{k}) \times \tilde{\Omega}'[(K - 2k_0)\hat{\mathbf{z}} + \hat{\mathbf{x}}k_x + \hat{\mathbf{y}}k_y - \mathbf{k}'] d\mathbf{k}'. \quad (\text{С.1})$$

Для прямоугольного кристалла функцию $\Omega(\mathbf{r})$, ограничивающую кристалл, можно записать в виде

$$\Omega(\mathbf{r}) = [\theta(x - d_x/2) - \theta(x + d_x/2)] \times [\theta(y - d_y/2) - \theta(y + d_y/2)] [\theta(z - d) - \theta(z)], \quad (\text{С.2})$$

где θ — функция Хэвисайда. С учетом определения функции $\Omega'(\mathbf{r})$ выполнение фурье-преобразования (В.23) приводит к результату для функции $\tilde{\Omega}'(\mathbf{k})$:

$$\tilde{\Omega}'(\mathbf{k}) = (2\pi)^{-3} |\mathbf{a}, \mathbf{b}, \mathbf{c}|^{-1} \left| \frac{\sin(d_x k_x/2)}{k_x/2} \right|^2 \times \left| \frac{\sin(d_y k_y/2)}{k_y/2} \right|^2 \left| \frac{\sin(d k_z/2)}{k_z/2} \right|^2. \quad (\text{С.3})$$

При поперечном сечении, намного превышающем размеры между рассеивающими центрами, и однородной засветке поверхности переход к пределу $kd_x, kd_y \rightarrow \infty$ приводит к дельта-функциям в выражении (С.3), мощность которых определим из известного соотношения

$$\int_{-\infty}^{\infty} \frac{\sin^2 t}{t^2} dt = \pi,$$

и сведем (С.3) к упрощенной форме

$$\tilde{\Omega}'(\mathbf{k}) = (2\pi)^{-1} d_x d_y |\mathbf{a}, \mathbf{b}, \mathbf{c}|^{-1} \times \left| \frac{\sin(d k_z/2)}{k_z/2} \right|^2 \delta(k_x) \delta(k_y). \quad (\text{С.4})$$

Выполнение интегрирования по dk'_x и dk'_y убирает дельта-функции, таким образом, получаем

$$\eta = \frac{(2\pi)^7}{4} |\mathbf{a}, \mathbf{b}, \mathbf{c}|^{-2} \frac{|\tilde{s}_p(K)|^2}{k_0^2} \times \int_{-\infty}^{\infty} dk_x \int_{-\infty}^{\infty} dk_y \int_{-\infty}^{\infty} \Psi(\hat{\mathbf{x}}k_x + \hat{\mathbf{y}}k_y + \hat{\mathbf{z}}k'_z, \mathbf{k}) \times \left| \frac{\sin[d(K - 2k_0 - k'_z)/2]}{(K - 2k_0 - k'_z)/2} \right|^2 dk'_z. \quad (\text{С.5})$$

Теперь, с учетом результата (С.6) найдем

$$\begin{aligned} \int_{-\infty}^{\infty} dk_x \int_{-\infty}^{\infty} dk_y \tilde{\Psi}(\hat{x}k_x + \hat{y}k_y + \hat{z}k'_z, \mathbf{k}) &= \int_{-\infty}^{\infty} dk_x \times \\ &\times \int_{-\infty}^{\infty} dk_y 2\alpha \left(\frac{K}{2\pi}\right)^2 \left(\frac{\alpha^2 K^4}{4} + k_x^2 + k_y^2 + k_z'^2\right)^{-2} = \\ &= 2\alpha\pi \left(\frac{K}{2\pi}\right)^2 \int_0^{\infty} \left(\frac{\alpha^2 K^4}{4} + \xi + k_z'^2\right)^{-2} d\xi = \\ &= 2\alpha\pi \left(\frac{K}{2\pi}\right)^2 \left(\frac{\alpha^2 K^4}{4} + k_z'^2\right)^{-1}. \quad (\text{C.6}) \end{aligned}$$

В итоге получим для дифракционной эффективности следующее выражение:

$$\begin{aligned} \eta &= (2\pi)^5 |(\mathbf{a}, \mathbf{b}, \mathbf{c})|^{-2} |\tilde{s}_p(K)|^2 \alpha \int_{\mathcal{R}} \left(\frac{\alpha^2 K^4}{4} + k_z'^2\right) \times \\ &\times \left| \frac{\sin[d(K - 2k_0 - k'_z)/2]}{(K - 2k_0 - k'_z)/2} \right|^2 dk'_z. \quad (\text{C.7}) \end{aligned}$$

Определим понятие длины дефазировки L_s как расстояние, на котором среднеквадратичное отклонение (вдоль одной оси) становится равным толщине слоя Λ :

$$\alpha L_s = \Lambda^2, \quad (\text{C.8})$$

и безразмерный параметр дефазировки γ

$$\gamma = d/L_s. \quad (\text{C.9})$$

Тогда при замене переменных $t = (2\pi)^{-1} L_s k'_z$, $\xi = (2\pi)^{-1} d(K - 2k_0) = N\Lambda\Delta\lambda/\lambda_B$ (N — количество слоев) можно выполнить следующее преобразование:

$$\begin{aligned} \alpha \int_{\mathcal{R}} \left(\frac{\alpha^2 K^4}{4} + k_z'^2\right)^{-1} \left| \frac{\sin[d(K - 2k_0 - k'_z)/2]}{(K - 2k_0 - k'_z)/2} \right|^2 dk'_z &= \\ &= \Lambda^2 L_z^2 \gamma \int_{\mathcal{R}} \frac{\text{sinc}(\pi t)}{(\pi\gamma)^2 + (\xi - t)^2}. \quad (\text{C.10}) \end{aligned}$$

Конечный результат с учетом выражений (А.4) и (А.8) получим в виде формулы (23) основного текста.

ЛИТЕРАТУРА

1. V. M. Shalaev, *Nature Phot.* **1**, 41 (2007).
2. E. Yablonovitch, *Phys. Rev. Lett.* **58**, 2059 (1987).
3. J. D. Joannopoulos, S. G. Johnson, J. N. Winn, and R. D. Meade, *Photonic Crystals: Molding the Flow of Light* (2nd ed.), Princeton University Press, Princeton NJ (2008).
4. W. Stöber, A. Fink, and E. Bohn, *J. Coll. Interf. Sci.* **26**, 62 (1968).
5. A. N. Gruzintsev, G. A. Emelchenko, V. M. Masalov, M. Romanelli, C. Barthou, P. Benalloul, and A. Maître, *Inorganic Mater.* **44**, 159 (2008).
6. N. V. Bogomolov, S. V. Gaponenko, A. M. Kapitonov, A. V. Prokofiev, A. N. Ponyavina, N. I. Silvanovich, and S. M. Samoilovich, *Appl. Phys. A* **63**, 613 (1996).
7. V. N. Bogomolov, S. V. Gaponenko, I. N. Germanenko, A. M. Kapitonov, E. P. Petrov, N. V. Gaponenko, A. V. Prokofiev, A. N. Ponyavina, N. I. Silvanovich, and S. M. Samoilovich, *Phys. Rev. E* **55**, 7619 (1997).
8. Yu. A. Vlasov, V. N. Astratov, A. V. Baryshev, A. A. Kaplyanski, O. Z. Karimov, and M. F. Limonov, *Phys. Rev. E* **61**, 5784 (2000).
9. Yu. A. Vlasov, M. A. Kaliteevski, and V. V. Nikolaev, *Phys. Rev. B* **60**, 1555 (1999).
10. A. A. Miskevich and V. A. Loiko, *J. Quant. Spectr. Rad. Tran.* **151**, 260 (2015).
11. I. Maurin, E. Moufarej, A. Laliotis, and D. Bloch, *JOSA B* **32**, 1761 (2015).
12. A. V. Baryshev, A. B. Khanikaev, M. Inoue, P. B. Lim, A. V. Sel'kin, G. Yushin, and M. F. Limonov, *Phys. Rev. Lett.* **99**, 063906 (2007).
13. H. Kogelnik, *Bell Syst. Tech. J.* **48**, 2910 (1969).
14. M. V. Vasnetsov, T. N. Orlova, V. Yu. Bazhenov, A. S. Shevchuk, A. D. Kudryavtseva, and N. V. Tcherniega, *Appl. Phys. B* **116**, 541 (2014).
15. M. V. Rybin, A. B. Khanikaev, M. Inoue, K. B. Samusev, M. J. Steel, G. Yushin, and M. F. Limonov, *Phys. Rev. Lett.* **103**, 023901 (2009).
16. M. I. Mischenko, L. D. Travis, and A. A. Lacis, *Scattering, Absorption and Emission of Light by Small Particles*, Cambridge University Press (2002).