К теории дифракции света в фотонных кристаллах с учетом межслоевой неупорядоченности

© В.А. Кособукин

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук,
194021 Санкт-Петербург, Россия

E-mail: Vladimir.Kosobukin@mail.ioffe.ru

(Поступила в Редакцию 13 января 2005 г.)

На основе электродинамического метода функций Грина построена аналитическая теория брэгговской дифракции поляризованного света в фотонных кристаллах, имеющих плотноупакованную структуру. Для фотонных кристаллов на основе опалов вычислена интенсивность брэгговской дифракции, в которой учитываются периодическая модуляция диэлектрической проницаемости, наличие оптической границы кристалла и межслоевой неупорядоченности, обычно возникающей при росте образцов. Подробно исследовано влияние на дифракцию структурного беспорядка, обусловленного случайной упаковкой ростовых слоев. Для получающейся случайной двойникованной ГЦК структуры вычислены усредненные структурный фактор и сечения рассеяния (дифракции), зависящие от линейной поляризации падающей и рассеянной волн. Численными примерами показано, что представленная теория применима для анализа и обработки экспериментальных картин дифракции реальных фотонных кристаллов с одномерно разупорядоченной плотноупакованной структурой.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант № 04-02-17592).

1. Введение

Явление дифракции волн разной физической природы (рентгеновских лучей, нейтронов, электронов) лежит в основе методов изучения атомной структуры кристаллов [1] и неупорядоченных твердых тел [2]. В то же время брэгговская дифракция волн в периодических структурах (кристаллах) является причиной образования запрещенных зон энергетического спектра [1,3]. Главным признаком периодических диэлектрических структур, называемых фотонными кристаллами, является наличие стоп-зон, т. е. запрещенных зон электромагнитного спектра для определенных направлений в кристалле, или полной запрещенной зоны для всех направлений [4]. Этими обстоятельствами обусловлен огромный интерес к созданию и исследованию фотонных кристаллов, обладающих запрещенными зонами в разных областях спектра, от микроволновой [5,6] до видимой [6–9].

В рентгеновском спектре стоп-зоны чрезвычайно узкие, а образование полной запрещенной зоны невозможно, так как пространственная модуляция диэлектрической проницаемости, определяющая ширину стоп-зон, имеет величину $\sim 10^{-5}$ [3]. Как следствие в рентгеноскопии кристаллов имеют дело с угловыми (дирекционными) измерениями картин дифракции [1], а не со спектроскопией стоп-зон. В противоположность этому для фотонных кристаллов первостепенный интерес представляет наличие достаточно широких запрещенных полос в видимом и длинноволновых диапазонах энергетического спектра. Для изучения таких запрещенных зон используются спектроскопические методы, преимущественно методы отражения и пропускания (см., например [6–8,10,11]).

Исследования брэгговской дифракции света в фотонных кристаллах, которые начались совсем недавно [12–14], обнаруживают качественно новые эффекты по сравнению с рентгеноструктурным анализом атомных кристаллов. В частности, было продемонстрировано [14], что брэгговские рефлексы в видимом свете не только дают прямую информацию о пространственной структуре фотонного кристалла, но служат индикатором образования энергетических стоп-зон для определенных направлений в кристалле. Следовательно, обращение к дифракционному эксперименту позволяет эмпирически выделить каналы брэгговской дифракции, ответственные за образование конкретных стоп-зон. В связи с этим актуальным становится анализ основных особенностей дифракции света, на которые в реальных фотонных кристаллах влияют преломление света, разупорядоченность структуры и т. д.

Цель данной работы — построение теории брэгговской дифракции видимого света для реальных фотонных кристаллов и вычисление практически важных наблюдаемых величин. Теория формулируется в аналитической форме на основе метода электродинамических функций Грина, при этом разделяются эффекты преломления света на границе кристалла и дифракции света на брэгговских плоскостях в кристалле. Применительно к фотонным кристаллам на основе опалов рассматривается также влияние на брэгговскую дифракцию ростового межслоевого беспорядка. Содержание статьи заключается в следующем. В разд. 2 рассматривается общая постановка задачи, в разд. 3 вычисляется интенсивность дифракции линейно поляризованных волн в фотонном кристалле. Структурный фактор анализируется в разд. 4 для отдельных слоев и ГЦК решеток, а в разд. 5 — для случайной упаковки слоев.

2. Общие соотношения

Функцию диэлектрической проницаемости идеального фотонного кристалла представим в виде

$$\varepsilon(\mathbf{r}) = \varepsilon_0 + \Delta\varepsilon(\mathbf{r}). \tag{1}$$

Здесь фоновая постоянная

$$\varepsilon_0 = \frac{1}{V}\int\limits_V d\mathbf{r}\cdot\varepsilon(\mathbf{r}) \tag{2}$$

соответствует усреднению по объему кристалла V. Вклад $\Delta\varepsilon(\mathbf{r}) = \Delta\varepsilon(\mathbf{r}+\hat{\mathbf{a}}_i)$, периодичный с векторами основных трансляций кристаллической решетки $\hat{\mathbf{a}}_i$, отвечает за процессы брэгговской дифракции. При этом справедливо разложение в ряд Фурье

$$\Delta\varepsilon(\mathbf{r}) = \sum_{\mathbf{b}(\neq 0)} \Delta\varepsilon_{\mathbf{b}} e^{i\mathbf{b}\cdot\mathbf{r}},$$

$$\Delta\varepsilon_{\mathbf{b}} = \frac{1}{\mathrm{v}_0}\int\limits_{\mathrm{v}_0} d\mathbf{r}\cdot e^{-i\mathbf{b}\cdot\mathbf{r}}\Delta\varepsilon(\mathbf{r}) = \Delta\varepsilon^*_{-\mathbf{b}}, \tag{3}$$

где v_0 — объем элементарной ячейки, $\mathbf{b}$ — вектор обратной решетки, при этом $\Delta\varepsilon_{\mathbf{b}=0} = 0$. Кинематика процессов дифракции определяется ориентацией кристаллографических (брэгговских) плоскостей, каждая из которых перпендикулярна своему вектору $\mathbf{b}$. При разупорядочении кристалла представление (3), выражающее наличие дальнего порядка, становится неприменимым, однако ближний порядок и связанные с ним особенности дифракции сохраняются, и это находит применение для структурного анализа некристаллических твердых тел [2].

Будем считать, что фотонный кристалл занимает полупространство ($z > 0$), в котором диэлектрическая функция выражается формулой (1), а фоновая постоянная — формулой (2). В нулевом приближении ($\Delta\varepsilon = 0$) учитываем только фоновую диэлектрическую проницаемость с помощью функции $\varepsilon^0(z)$, которая равна ε_1, если $z < 0$, и ε_0, если $z > 0$. Наличие скачка диэлектрического фона $\varepsilon^0(z)$ определяет оптическую границу фотонного кристалла $z = 0$, от которой свет отражается зеркально независимо от ориентации кристаллографических плоскостей. Для монохроматического (с частотой ω) света электрическое поле $\mathbf{E}^0$ и тензорная функция Грина $\hat{G}^0$ нулевого приближения, а также полное поле $\mathbf{E}$ определяются следующими уравнениями электродинамики:

$$\left[\mathrm{rot\,rot} - k_0^2\varepsilon^0(z)\,\hat{I}\,\right]\left\{\mathbf{E}^0(\mathbf{r}),\ \hat{G}^0(\mathbf{r},\mathbf{r}'),\ \mathbf{E}(\mathbf{r})\right\} = \left\{0,\ \hat{I}\delta(\mathbf{r}-\mathbf{r}'),\ k_0^2\Delta\varepsilon(\mathbf{r})\mathbf{E}(\mathbf{r})\right\}. \tag{4}$$

Здесь $k_0 = \omega/c$, c — скорость света в вакууме, $\hat{I}$ — единичная матрица с элементами $I_{\alpha\beta} = \delta_{\alpha\beta}$, α и β — декартовы индексы, $\delta_{\alpha\beta}$ — символ Кронекера, $\Delta\varepsilon(\mathbf{r}) = 0$ вне кристалла. Решения уравнений (4) $\mathbf{E}^0(\mathbf{r})$ и $\hat{G}^0(\mathbf{r},\mathbf{r}')$, удовлетворяющие на поверхности $z = 0$ максвелловским граничным условиям по z, приведены в Приложении I.

При наличии возмущения $\Delta\varepsilon(\mathbf{r})$ полное электрическое поле излучения вне фотонного кристалла ($z < 0$) выражается соотношением

$$E_\alpha(\mathbf{r}) = E^0_\alpha(\mathbf{r}) + k_0^2\sum_\beta\int d\mathbf{r}'\cdot G^0_{\alpha\beta}(\mathbf{r},\mathbf{r}')\cdot\Delta\varepsilon(\mathbf{r}')\cdot\tilde{E}_\beta(\mathbf{r}'); \tag{5}$$

здесь и далее тильдой обозначается поле в кристалле ($z' > 0$). Полное поле, учитывающее дифракцию света на рельефе $\Delta\varepsilon(\mathbf{r})$, определяется интегральным уравнением

$$\tilde{E}_\beta(\mathbf{r}) = \tilde{E}^0_\beta(\mathbf{r}) + k_0^2\sum_\gamma\int d\mathbf{r}'\cdot\tilde{G}^0_{\beta\gamma}(\mathbf{r},\mathbf{r}')\cdot\Delta\varepsilon(\mathbf{r}')\cdot\tilde{E}_\gamma(\mathbf{r}'). \tag{6}$$

При решении уравнений (4)–(6) предполагаем, что из среды с $z < 0$ на поверхность кристалла $z = 0$ под углом θ (рис. 1, a) падает волна с линейной поляризацией σ (далее p или s), амплитудой E^{inc}_σ и волновым вектором

$$\mathbf{K} = \boldsymbol{\kappa} + \mathbf{e}_z k_1, \quad \boldsymbol{\kappa} = \sqrt{\varepsilon_1}k_0\sin\theta(\mathbf{e}_x\cos\varphi + \mathbf{e}_y\sin\varphi),$$
$$k_1 = \sqrt{\varepsilon_1}\,k_0\cos\theta. \tag{7}$$

Здесь и далее $\mathbf{e}_\alpha$ — декартовы орты „оптической“ системы координат, θ — полярный и φ — азимутальный углы. При $z < 0$ первое из уравнений (4) имеет решение

$$E^0_\alpha(\mathbf{r}) = E^{\mathrm{inc}}_\sigma e^\sigma_\alpha(\mathbf{K})\exp(i\boldsymbol{\kappa}\cdot\boldsymbol{\rho}) \times\left[\exp(ik_1z) + r^0_\sigma(\kappa)\exp(-ik_1z)\right] \tag{8}$$

для касательных ($\alpha = x, y$) компонент поля и $E^0_z(\mathbf{r}) = (i/k_1^2)d(\boldsymbol{\kappa}\cdot\mathbf{E}^0)/dz$ для нормальной компоненты, где $\mathbf{r} = (\boldsymbol{\rho}, z)$, $\boldsymbol{\rho} = (x, y)$. Орты поляризации поля (8) выражаются формулами

$$\mathbf{e}^p(\mathbf{K}) = \left(\mathbf{e}_x\cos\varphi + \mathbf{e}_y\sin\varphi\right)\cos\theta - \mathbf{e}_z\sin\theta,$$
$$\mathbf{e}^s(\mathbf{K}) = -\mathbf{e}_x\sin\varphi + \mathbf{e}_y\cos\varphi \tag{9}$$

для p- и s-поляризованной волн соответственно. Коэффициенты отражения r^0_σ этих волн от границы $z = 0$ имеют вид

$$r^0_p = \frac{\varepsilon_1 k - \varepsilon_0 k_1}{\varepsilon_1 k + \varepsilon_0 k_1}, \quad r^0_s = \frac{k_1 - k}{k_1 + k}, \tag{10}$$

где $k(\kappa) = \sqrt{\varepsilon_0 k_0^2 - \kappa^2}$. В кристалле ($z > 0$) касательные компоненты поля, входящего в (6) в качестве внешнего, равны

$$\tilde{E}^0_\alpha(\mathbf{r}) = E^{\mathrm{inc}}_\sigma t^0_\sigma(\boldsymbol{\kappa})e^\sigma_\alpha(\mathbf{Q})\exp(i\mathbf{Q}\cdot\mathbf{r}), \tag{11}$$

где $t^0_\sigma = 1 + r^0_\sigma$. Связь между векторами

$$\mathbf{Q} = \boldsymbol{\kappa} + \mathbf{e}_z k, \quad k = \sqrt{\varepsilon_0}\,k_0\cos\vartheta \tag{12}$$

и $\mathbf{K}$ из (7) определяется законом преломления света $\sqrt{\varepsilon_1}\sin\theta = \sqrt{\varepsilon_0}\sin\vartheta = \kappa/k_0$ (условием сохранения вектора $\boldsymbol{\kappa}$) на границе $z = 0$ (рис. 1, a), причем орты $\mathbf{e}^\sigma(\mathbf{Q})$

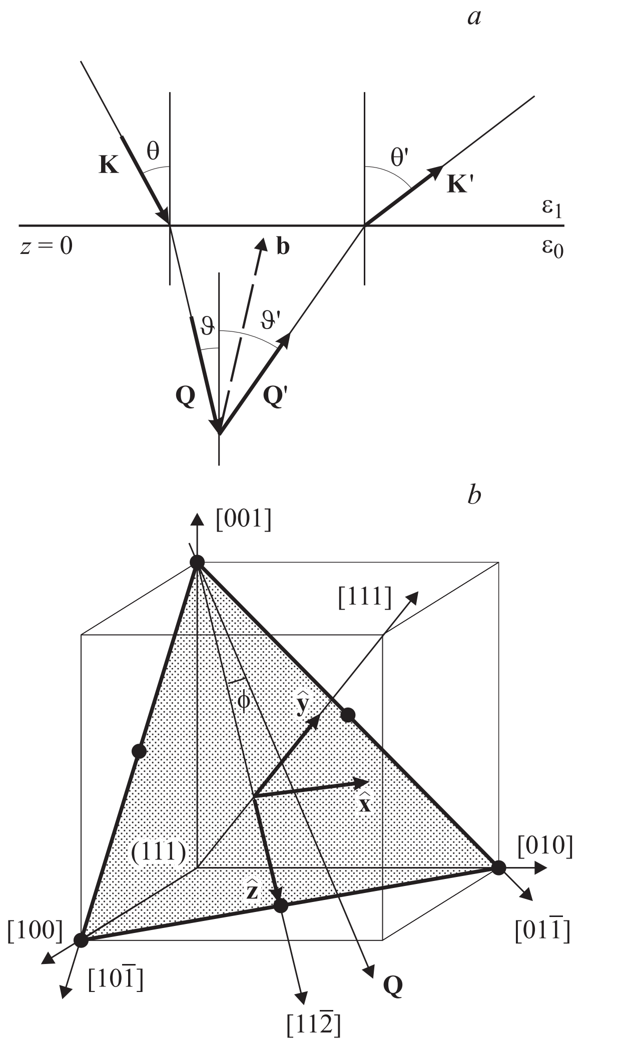

Рис. 1. Геометрия задачи. a — преобразование волн при дифракции света в кристалле. Волновому вектору $\mathbf{K}(\mathbf{K}')$ падающей (вторичной) волны соответствует вектор $\mathbf{Q}(\mathbf{Q}')$ внутри кристалла, причем $\mathbf{Q}+\mathbf{b}=\mathbf{Q}'$, где $\mathbf{b}$ — вектор обратной решетки. b — основные направления и плоскости, используемые при анализе дифракции света в ГЦК решетке опалов.

получаются из (9) при замене угла $\theta \to \vartheta$. Волновые векторы рассеянной волны $\mathbf{Q}'$ внутри кристалла и $\mathbf{K}'$ вне его получаются путем замен $\varphi \to \varphi'$, $\vartheta \to \pi - \vartheta'$ и $\theta \to \pi - \theta'$ в выражениях вида (7), (9) для $\mathbf{K}$ и (12) для $\mathbf{Q}$, где углы ϑ' и θ' отсчитываются от отрицательного направления орта $\mathbf{e}_z$. Для упругого процесса дифракции $|\mathbf{Q}'| = |\mathbf{Q}| = \sqrt{\varepsilon_0}k_0$ и $|\mathbf{K}'| = |\mathbf{K}| = \sqrt{\varepsilon_1}k_0$.

3. Наблюдаемые оптические величины

Брэгговская дифракция волн представляет собой разновидность когерентного упругого рассеяния, которое проявляется при длинах волн, сопоставимых с пространственным периодом рассеивающей среды. При анализе атомной структуры обычно является достаточным борновское приближение теории рассеяния (дифракции) [2]. Это справедливо и для опалоподобных фотонных кристаллов, обладающих малым оптическим контрастом $|\Delta\varepsilon|/\varepsilon_0 \ll 1$. Вычислим наблюдаемые характеристики дифракции в низшем по $\Delta\varepsilon$ (борновском) приближении, положив $\tilde{\mathbf{E}} \approx \tilde{\mathbf{E}}^0(\mathbf{r}) = \tilde{\mathbf{E}}^0(\mathbf{Q})\exp(i\mathbf{Q}\cdot\mathbf{r})$ с учетом (11) в выражениях (5) и (6). Тогда $\tilde{\mathbf{E}}$ имеет ту же поляризацию σ, что и внешнее поле $\mathbf{E}^0$. Поле вне кристалла $\mathbf{E}' = \mathbf{E} - \mathbf{E}^0$ найдем из (5), используя представление (I.1) для функции Грина $\hat{G}^0(\mathbf{r}, \mathbf{r}')$. Вычисление интеграла по $\boldsymbol{\kappa}$ в (I.1) методом стационарной фазы [15,16] приводит к следующему асимптотическому выражению для поля излучения в обратную полусферу ($z < 0$, $\sqrt{\varepsilon_1}k_0 r \gg 1$):

$$E'_\alpha(\mathbf{r}) = -\frac{i\sqrt{\varepsilon_1}k_0^3\cos\theta'}{2\pi}\,\frac{e^{i\sqrt{\varepsilon_1}k_0 r}}{r}\sum_\beta D^0_{\alpha\beta}(0^-, 0^+; \boldsymbol{\kappa}')$$

$$\times \left(\int_V d\mathbf{r}'\cdot\Delta\varepsilon(\mathbf{r}')e^{-i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}'}\right)\tilde{E}^0_\beta(\mathbf{Q}). \qquad (13)$$

Для задачи излучения из кристалла тензорная функция Грина $\hat{D}^0(z, z'; \boldsymbol{\kappa})$ в смешанном $(z, \boldsymbol{\kappa})$-представлении дается формулами (I.3), (I.4), (I.6) и (I.7) из Приложения I. Вектор $\boldsymbol{\kappa}'$ выражается формулой (7) через углы θ' и φ' вектора $\mathbf{K}'$, направленного в точку наблюдения $\mathbf{r} = (\boldsymbol{\rho}, z) = r\left[(\mathbf{e}_x\cos\varphi' + \mathbf{e}_y\sin\varphi')\sin\theta' - \mathbf{e}_z\cos\theta'\right]$ вне кристалла. В (13) введен вектор рассеяния света внутри кристалла

$$\mathbf{q} = \mathbf{Q}' - \mathbf{Q}. \qquad (14)$$

Определив волновые векторы $\mathbf{Q}$ и $\mathbf{Q}'$ формулой (12), для безразмерных величин

$$\xi_\alpha = \frac{1}{k_0\sqrt{\varepsilon_0}}\,q_\alpha \qquad (15)$$

в „оптической“ системе координат с ортами $\mathbf{e}_\alpha$ получаем

$$\xi_x = \sin\vartheta'\cos\varphi' - \sin\vartheta\cos\varphi,$$

$$\xi_y = \sin\vartheta'\sin\varphi' - \sin\vartheta\sin\varphi,$$

$$\xi_z = -(\cos\vartheta' + \cos\vartheta). \qquad (16)$$

Вычислим вне кристалла ($z \to -\infty$) величины вектора Пойнтинга $S^{\mathrm{inc}}_\sigma = c\sqrt{\varepsilon_1}\,|\mathbf{E}^{\mathrm{inc}}_\sigma|^2/8\pi$ падающей волны (8) с поляризацией σ и $S'_{\sigma'} = c\sqrt{\varepsilon_1}|\mathbf{E}'_{\sigma'}|^2/8\pi$ рассеянной волны (13) с поляризацией σ'. Их отношения $S'_{\sigma'}/S^{\mathrm{inc}}_\sigma$ определяют сечения рассеяния (дифракции)

$$\frac{dW(\sigma\to\sigma')}{d\Omega'} = \frac{k_0^4}{16\pi^2}\left|\int_V d\mathbf{r}\cdot\Delta\varepsilon(\mathbf{r})e^{-i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}}\right|^2\cdot\left|t^0_\sigma(\kappa)\right|^2$$

$$\times\, w_{\sigma\sigma'}(\mathbf{Q}, \mathbf{Q}')\cdot\left|t^0_{\sigma'}(\kappa')\right|^2 \qquad (17)$$

во всех каналах $\mathbf{K}$, $\sigma \to \mathbf{K}', \sigma'$, определяемых поляризациями падающей σ и дифрагировавшей σ' волн.

В (17) $d\Omega' = \sin\theta' d\theta' d\varphi'$ — элемент телесного угла, а величины

$$w_{ss} = \cos^2(\varphi' - \varphi),$$

$$w_{pp} = \cos^2\theta' \left[\cos\vartheta \cos(\varphi' - \varphi) - \sin\vartheta \operatorname{tg}\vartheta'\right]^2,$$

$$w_{sp} = \cos^2\theta' \sin^2(\varphi' - \varphi), \ w_{ps} = \cos^2\vartheta \sin^2(\varphi' - \varphi) \quad (18)$$

вычислены с учетом функций (I.4), (I.6) и (I.7). Согласно (17) и (18), при дифракции света в плоскости падения света на кристалл ($\varphi' = \varphi$, $w_{sp} = w_{ps} = 0$) деполяризация отсутствует.

Согласно (17), основные особенности дифракции определяются величиной

$$\left| \int_V d\mathbf{r} \cdot \Delta\varepsilon(\mathbf{r}) \cdot e^{-i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}} \right|^2 = \mathrm{v}_0 V \left|\Delta\varepsilon_{\mathbf{q}}\right|^2 S(\mathbf{q}), \qquad (19)$$

которая включает структурный фактор

$$S(\mathbf{q}) = \left| \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{\mathbf{n}} e^{-i\mathbf{q}\cdot\mathbf{R}_{\mathbf{n}}} \right|^2 = \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{n},\mathbf{n}'} e^{-i\mathbf{q}\cdot(\mathbf{R}_{\mathbf{n}} - \mathbf{R}_{\mathbf{n}'})}, \quad (20)$$

где N — число ячеек в объеме кристалла $V = \mathrm{v}_0 N$. Форм-фактор

$$\Delta\varepsilon_{\mathbf{q}} = \frac{1}{\mathrm{v}_0} \int_{\mathrm{v}_0} d\mathbf{r} \cdot \Delta\varepsilon(\mathbf{r}) \cdot e^{-i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}} \qquad (21)$$

получается при интегрировании по кристаллической ячейке Вигнера–Зейтца объема v_0 с центром $\mathbf{R}_{\mathbf{n}} = 0$. При этом для ГЦК решетки, построенной из плотноупакованных диэлектрических шаров одного размера, $\varepsilon_0 = \varepsilon_i f + \varepsilon_e(1-f)$ согласно (2), где $\varepsilon_i (\varepsilon_e)$ — диэлектрическая постоянная внутри (вне) шаров, $f = \pi\sqrt{2}/6 \approx 0.74$ — фактор заполнения.

Угловая зависимость и частотный спектр интенсивности рассеяния определяются величинами (17). Обсудим на их основе брэгговскую дифракцию света при наличии случайной упаковки ростовых слоев, характерной для самоорганизующихся систем, таких как синтетические опалы [12–14,17] и родственные им фотонные кристаллы [18]. При росте опалов монодисперсные шары a-SiO_2 субмикронного диаметра a образуют плотноупакованные (гексагональные) слои. Такие двумерные кристаллы образуют плотную упаковку в направлении оси роста трехмерной структуры. При этом гексагональные слои могут занимать одно из положений A, B, C, известных для ГЦК решетки [1]. В получающейся плотноупакованной структуре положения двух последовательных слоев разные, а сдвиг слоя из одного положения (например, A) в соседнее положение B или C определяется вектором трансляции $\mathbf{u}_{\mathrm{I}}$ или $\mathbf{u}_{\mathrm{II}}$. В идеальной ГЦК решетке реализуется только один из этих векторов, а в реальных опалах выбор вектора трансляции $\mathbf{u}_{\mathrm{I}}$ или $\mathbf{u}_{\mathrm{II}}$ является вероятностным событием.

Случайный характер чередования слоев A, B и C предполагает, что наблюдаемые величины (17) следует усреднить, причем в случае плотной упаковки одинаковых шаров усредняется только структурный фактор (20). Суммирование по узлам $\mathbf{n} = (\mathbf{n}_{\parallel}, l)$ в (20) разделим на внутрислоевое (по $\mathbf{n}_{\parallel}$) и межслоевое (по l) и используем представление $\mathbf{R}_{\mathbf{n}'-\mathbf{n}} \equiv \mathbf{R}_{\mathbf{n}'_{\parallel}-\mathbf{n}_{\parallel},0} + \mathbf{R}_{0,l'-l}$, где $l(l')$ — номер слоя. Случайный вектор $\mathbf{R}_{0,l=1}$ может принимать два значения: $\mathbf{u}_{\mathrm{I}}$ или $\mathbf{u}_{\mathrm{II}}$. Для случайной упаковки усреднение структурного фактора (20) дает

$$\langle S(\mathbf{q})\rangle = S_{\parallel}(\mathbf{q})\langle S_{\perp}(\mathbf{q})\rangle = S_{\parallel}(\mathbf{q}) \left\langle \frac{1}{L} \sum_{l,l'=1}^{L} e^{-i\mathbf{q}\cdot\mathbf{R}_{0,l-l'}} \right\rangle. \quad (22)$$

Здесь $S_{\parallel}(\mathbf{q})$ — сумма вида (20), относящаяся к регулярному слою, L — число слоев вдоль оси роста структуры.

4. Дифракция на регулярной структуре

Нашей дальнейшей задачей является вычисление величин, наблюдаемых при дифракции света в опалах с учетом неупорядоченности, и их детальный анализ применительно к экспериментам [12–14]. Обсудим сначала особенности брэгговской дифракции света на двух возможных регулярных ГЦК решетках $\ldots ABCABC \ldots$ и $\ldots ACBACB \ldots$, которые далее называем ГЦК-I и ГЦК-II. Будем считать ГЦК-I основной ГЦК решеткой и относить к ней рассматриваемые кристаллографические плоскости и направления, показанные на рис. 1, *b*. Решетки ГЦК-I и ГЦК-II, имеющие общий гексагональный слой, получаются путем трансляций этого слоя на вектор $\mathbf{a}_3$, равный $\mathbf{u}_{\mathrm{I}}$ или $\mathbf{u}_{\mathrm{II}}$ соответственно.

Плотноупакованные (гексагональные) слои служат структурными элементами при построении как идеальных ГЦК решеток, так и случайных плотных упаковок. Поэтому рассмотрим сначала входящий в (22) структурный фактор $S_{\parallel}(\mathbf{q})$ двумерной решетки, которая определяется двумя внутрислоевыми базисными векторами $\hat{\mathbf{a}}_i$ с $i = 1, 2$. Суммирование по узлам слоя $\mathbf{n}_{\parallel}$ в (20) дает

$$S_{\parallel}(\mathbf{q}) = \prod_{i=1,2} S_i(\mathbf{q}) = \prod_{i=1,2} \frac{1}{N_i} \frac{\sin^2(N_i \mathbf{q}\cdot\hat{\mathbf{a}}_i/2)}{\sin^2(\mathbf{q}\cdot\hat{\mathbf{a}}_i/2)}, \qquad (23)$$

где N_i — число узлов в направлении $\hat{\mathbf{a}}_i$. При $N_i \to \infty$ каждый сомножитель в (23) переходит в 2π-периодическую дельта-функцию

$$S_i(\mathbf{q}) = 2\pi \sum_{m_i} \delta(\mathbf{q}\cdot\hat{\mathbf{a}}_i - 2\pi m_i), \qquad (24)$$

где m_i — целые числа. Для регулярной упаковки гексагональных слоев (ГЦК структура) послойное суммирование по l в (22) дает

$$S_{\perp}(\mathbf{q}) = \frac{1}{L} \frac{\sin^2(L\mathbf{q}\cdot\hat{\mathbf{a}}_3/2)}{\sin^2(\mathbf{q}\cdot\hat{\mathbf{a}}_3/2)} \xrightarrow[L\to\infty]{} 2\pi \sum_{m_3} \delta(\mathbf{q}\cdot\hat{\mathbf{a}}_3 - 2\pi m_3), \qquad (25)$$

где m_3 — целые числа.

В случае трехмерной идеальной решетки максимумы структурного фактора (22) соответствуют нулям дельта-функций, входящих в (24) и (25), т.е. уравнениям Лауэ $\mathbf{q}\cdot\hat{\mathbf{a}}_i = 2\pi m_i$ с $i = 1, 2, 3$. Последние служат для кинематического анализа процессов дифракции в идеальной кристаллической решетке. Для этой решетки определим обратную решетку с базисными векторами $\hat{\mathbf{b}}_i$ и по ним разложим вектор рассеяния (14). Учитывая тождество $(\hat{\mathbf{a}}_i\cdot\hat{\mathbf{b}}_j) = 2\pi\delta_{ij}$, убеждаемся, что три уравнения $\mathbf{q}\cdot\hat{\mathbf{a}}_i = 2\pi m_i$ эквиваленты условиям дифракции

$$\mathbf{q} = \mathbf{b} \equiv \sum_i m_i \cdot \hat{\mathbf{b}}_i \qquad (26)$$

или $\mathbf{Q}'-\mathbf{Q} = \mathbf{b}$, которые зависят от набора индексов (m_1, m_2, m_3). В безразмерных величинах (15) и $\boldsymbol{\beta} = \mathbf{b}a/(2\pi)$ уравнение (26) принимает вид

$$\boldsymbol{\xi} = \Lambda\boldsymbol{\beta} = \Lambda\sum_i m_i\boldsymbol{\beta}_i, \qquad (27)$$

где $\Lambda = \lambda/(a\sqrt{\varepsilon_0})$, $\lambda = 2\pi/k_0$ — длина волны света в вакууме, a — фиксированное расстояние между узлами гексагонального слоя. При $m_1 = m_2 = m_3 = 0$ дифракция отсутствует: $\mathbf{Q}' = \mathbf{Q}$ $(\vartheta' = \vartheta,\ \varphi' = \varphi)$ согласно (26). Набор (m_1, m_2, m_3) с хотя бы одним ненулевым индексом определяет потенциально возможный максимум интенсивности (рефлекс), обусловленный дифракцией на системе кристаллических плоскостей, перпендикулярных вектору $\mathbf{b}$ из (26). Существенно, что m_i не являются индексами Миллера (hkl) дифрагирующей плоскости и перпендикулярного к ней вектора $\mathbf{b}(hkl)$.[1] При заданных значениях ϑ, φ решения уравнений (26) или (27) определяют углы ϑ', φ' для направления распространения дифрагировавшего света в кристалле. Вследствие ограничения $|\xi_\alpha| \le 2$ в (27) при увеличении индексов (m_1, m_2, m_3) уменьшается величина $\lambda/(a\sqrt{\varepsilon_0})$, при которой может появиться этот рефлекс.

Чтобы исчерпывающе проанализировать кинематику дифракции света в опалах, достаточно рассмотреть две геометрии падения света (A и B). В случае A свет падает в плоскости (111) ГЦК решетки, т.е. $\mathbf{Q}\parallel(111)$, рис. 1, *b*. В этой геометрии, исследовавшейся недавно в экспериментах [12–14], можно выделить особенности, характерные для дифракции света на слоях с двумерной гексагональной решеткой. В случае B свет падает на плоскость (111) наклонно. В геометрии B, используемой в большинстве работ по оптике опалов, проявляются эффекты дифракции света на одномерной решетке, образованной плоскостями (111).

Случай A. Предположим, что волновой вектор падающей волны $\mathbf{Q}\parallel(111)$ составляет угол ϕ с направлением $[11\bar{2}]$ в ГЦК решетке, как на рис. 1, *b*. Выразив базисные векторы (II.1) в „оптической“ системе координат с $\mathbf{e}_z = \mathbf{Q}/Q$, имеем

$$\boldsymbol{\beta} = -\mathbf{e}_x\frac{2}{\sqrt{3}}\left[m_1\sin\left(\phi+\frac{\pi}{3}\right)+m_2\sin\left(\phi-\frac{\pi}{3}\right)\right] + \mathbf{e}_z\frac{2}{\sqrt{3}}\left[m_1\cos\left(\phi+\frac{\pi}{3}\right)+m_2\cos\left(\phi-\frac{\pi}{3}\right)\right] + \mathbf{e}_y\alpha\left(m_3-\frac{m_1+m_2}{3}\right) \qquad (28)$$

в уравнении (27), где $\alpha = a/A$, A — расстояние между слоями, причем $\alpha = \sqrt{3/2}$ для ГЦК решетки. Подставив (16) и (28) в (27), находим, что x- и z-компоненты векторного уравнения (27) не зависят от α, т.е. формально имеют тот же вид, что в случае изолированного слоя $(\alpha\to 0)$. Эта пара уравнений инвариантна относительно поворотов вектора $\mathbf{Q}$ на углы ϕ, кратные $\pi/3$, если для каждого из эквивалентных положений гексагонального слоя сделан соответствующий выбор индексов m_1 и m_2. В случае $\mathbf{Q}\parallel[11\bar{2}]$ $(\phi = 0)$ эти уравнения $\xi_x = \Lambda(m_2 - m_1)$, $\xi_z = \Lambda(m_1+m_2)/\sqrt{3}$ с $m_1 = m_2 = -1$ дают решения $\varphi'_1 = \pi/2$ и $\varphi'_2 = 3\pi/2$ и условие брэгговской дифракции на слое

$$\lambda_{[11\bar{2}]}(\vartheta') = \frac{a\sqrt{3\varepsilon_0}}{2}(1+\cos\vartheta'). \qquad (29)$$

Выражение (29) описывает дисперсию света по углу $0 < \vartheta' < \pi/2$, образованному в обратной полусфере направлением дифракции в плоскости $(\bar{1}10)$ и плоскостью (111), причем $a\sqrt{3\varepsilon_0}/2 < \lambda < a\sqrt{3\varepsilon_0}$.

Чтобы рассмотреть дифракцию света на трехмерных ГЦК решетках, добавим третье уравнение $\xi_y = \Lambda\alpha(3m_3 - m_1 - m_2)$ из (27), которое с учетом (29) при $m_1 = m_2 = -1$ дает

$$\mathrm{tg}\,\frac{\vartheta'}{2} = \frac{\sqrt{3}\alpha}{2\sin\varphi'_{1,2}}\left(m_3+\frac{2}{3}\right). \qquad (30)$$

Для решетки ГЦК-I уравнение (30) имеет два решения: $\vartheta'_1 = 70.5^\circ$ при $\varphi'_1 = \pi/2$, $m_3 = 0$ и $\vartheta'_2 = 39^\circ$ при $\varphi'_2 = 3\pi/2$, $m_3 = -1$. Соотношение (II.4) показывает, что этим решениям соответствует дифракция света на плоскостях (002) и $(\bar{1}\bar{1}1)$ соответственно. При других значениях m_3 из (30) следует, что $\vartheta' > \pi/2$, т.е. свет дифрагирует в прямую полусферу. Аналогично, для решетки ГЦК-II в обратной полусфере получаются два

[1] Для описания брэгговской дифракции в настоящей работе используются следующие системы координат. 1) „Оптическая“ система с ортами $\mathbf{e}_\alpha$, в которой задаются волновые векторы (7) и (12) (рис. 1, *a*). 2) Кристаллографическая система с ортами $\hat{\mathbf{X}}\parallel[100]$, $\hat{\mathbf{Y}}\parallel[010]$ и $\hat{\mathbf{Z}}\parallel[001]$, относительно которой определяются индексы Миллера основной ГЦК решетки (рис. 1, *b*). 3) Система с ортами $\hat{\mathbf{x}}$, $\hat{\mathbf{y}}$ и $\hat{\mathbf{z}}$, в которой разделяются эффекты дифракции на гексагональных слоях и их упаковке согласно представлению (22). Индексы Миллера, с помощью которых определяются системы кристаллических плоскостей (hkl) и направление волнового вектора $\mathbf{Q}$ в кристалле, мы относим к основной ГЦК решетке; при этом (hkl) выражается формулой (II.4) через индексы $\{m_i\}$ из уравнения (26). Для решетки ГЦК-II, которая получается при зеркальном отражении основной решетки ГЦК-I в плоскости (111), удобно рассматривать уравнение (26), используя систему координат, орты которой получаются путем инверсии ортов $\hat{\mathbf{x}}$, $\hat{\mathbf{y}}$ и $\hat{\mathbf{z}}$. Тогда при заданном направлении $\mathbf{Q}$ параметры $\{m_i\}$ и индексы Миллера (hkl) плоскостей, ответственных за дифракцию в решетках ГЦК-I и ГЦК-II, будут отличаться знаком.

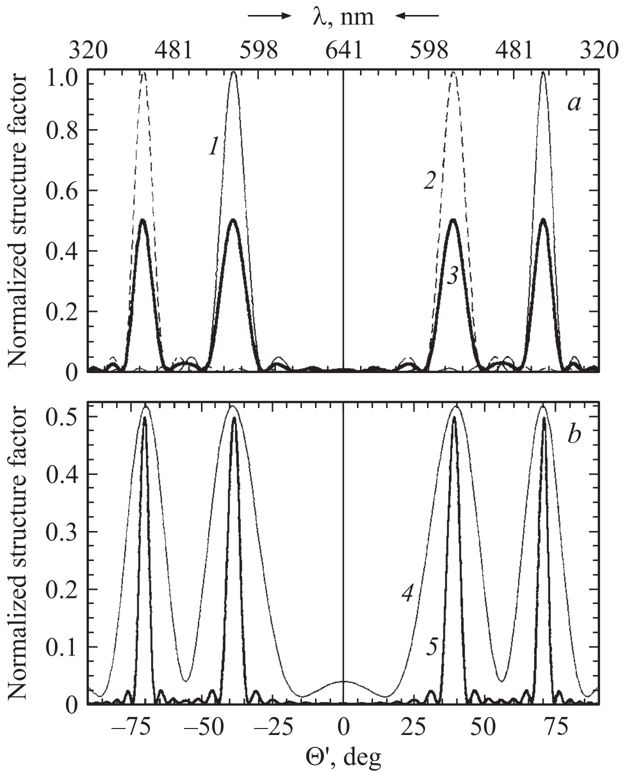

Рис. 2. Зависимости нормированных структурных факторов $S_\perp^{\mathrm{I,II}}/L$ от угла Θ' при $\mathbf{Q} \parallel [11\bar{2}]$ для структур ГЦК-I и ГЦК-II, состоящих из L гексагональных слоев. a — величины $S_\perp^{\mathrm{I}}/L$ (*1*), $S_\perp^{\mathrm{II}}/L$ (*2*) и $(S_\perp^{\mathrm{I}} + S_\perp^{\mathrm{II}})/(2L)$ (*3*) при $L = 10$; b — величина $(S_\perp^{\mathrm{I}} + S_\perp^{\mathrm{II}})/(2L)$ при $L = 5$ (*4*) и $L = 20$ (*5*). Вычислено по формуле (25) при $a\sqrt{\varepsilon_0} = 370\,\mathrm{nm}$, что в случае опала с $\sqrt{\varepsilon_0} = 1.37$ соответствует радиусу $a/2 = 135\,\mathrm{nm}$ шаров a-SiO$_2$. Зависимость брэгговской длины волны λ от угла Θ', равного $\Theta' = \vartheta'$ при $\varphi' = \pi/2$ и $\Theta' = -\vartheta'$ при $\varphi' = 3\pi/2$, определяется формулой (29).

решения, зеркально симметричные предыдущим относительно плоскости (111): $\vartheta_1' = 39^\circ$ при $\varphi_1' = \pi/2$, $m_3 = 1$ и $\vartheta_2' = 70.5^\circ$ при $\varphi_2' = 3\pi/2$, $m_3 = 0$.

На рис. 2 показаны угловые зависимости нормированных структурных факторов для решеток ГЦК-I и ГЦК-II, состоящих из небольшого числа гексагональных слоев L. Величины $S_\perp^{\mathrm{I,II}}(\mathbf{q})/L$ рассчитаны по формуле (25) как функции угла $\Theta' = \vartheta'$ при $\varphi' = \pi/2$, т.е. выше плоскости (111), и $\Theta' = -\vartheta'$ при $\varphi' = 3\pi/2$ (ниже этой плоскости), а шкала $\lambda(\Theta')$ соответствует формуле (29). Из рис. 2, a видны максимумы величины $S_\perp^{\mathrm{I}}/L$ при найденных из (30) значениях углов $\Theta' = -39^\circ$ и $\Theta' = 70.5^\circ$, а максимумы $S_\perp^{\mathrm{II}}/L$ — при $\Theta' = -70.5^\circ$ и $\Theta' = 39^\circ$. На рис. 2 показаны также величины $(S_\perp^{\mathrm{I}} + S_\perp^{\mathrm{II}})/(2L)$, которые выражают форм-фактор смеси ГЦК-I и ГЦК-II структур, имеющих общую ростовую ось и одинаковое число слоев L. Как видно из рис. 2, b, уширение всех дифракционных максимумов $|\Delta\Theta'| \sim 1/L$ связано с малым числом слоев в ГЦК структурах: согласно (25), $S_\perp^{\mathrm{I,II}}(\mathbf{q})/L = 1$ при $L = 1$.

Случай B. При падении света под углом $\vartheta \neq \pi/2$ к направлению $[111]$ в плоскости, образующей угол ϕ с направлением $[11\bar{2}]$, выразим величину (28) в ортах $\mathbf{e}_x' = \mathbf{e}_x$, $\mathbf{e}_y' = \mathbf{e}_z$, $\mathbf{e}_z' = -\mathbf{e}_y$

$$\boldsymbol{\beta} = -\mathbf{e}_x' \frac{2}{\sqrt{3}} \left[m_1' \sin\left(\phi + \frac{\pi}{3}\right) + m_2' \sin\left(\phi - \frac{\pi}{3}\right) \right] + \mathbf{e}_y' \frac{2}{\sqrt{3}} \left[m_1' \cos\left(\phi + \frac{\pi}{3}\right) + m_2' \cos\left(\phi - \frac{\pi}{3}\right) \right] + \mathbf{e}_z' \alpha \left(\frac{m_1' + m_2'}{3} - m_3' \right). \tag{31}$$

Отсюда следует, что при $m_1' = m_2' = 0$ дифракция не зависит от ϕ. При этом уравнение (27) с $\boldsymbol{\beta} = -m_3'\alpha\mathbf{e}_z'$ определяет при $m_3' \geq 1$ дифракцию на одномерной цепочке бесструктурных плоскостей по закону зеркального отражения от них ($\vartheta' = \vartheta$ и $\varphi' = \varphi$). Брэгговские длины волн

$$\lambda(\vartheta) = \frac{2}{m_3'} \frac{a\sqrt{\varepsilon_0}}{\alpha} \cos\vartheta \tag{32}$$

соответствуют периоду a/α такой структуры в однородной среде с диэлектрической постоянной ε_0. При $m_3' = 1$ из (32) находим длинноволновую границу

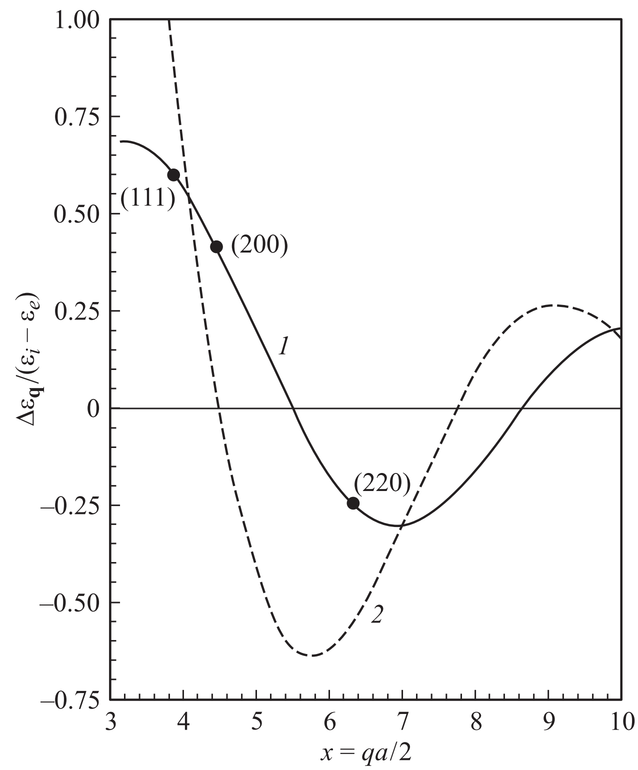

Рис. 3. Зависимость от $x = |\mathbf{q}|a/2$ величины $\Delta\varepsilon_{\mathbf{q}}/(\varepsilon_i - \varepsilon_b)$ из (33) (кривая *1*) в сравнении с функцией $F(x) = (\pi/\sqrt{2})(\sin x - x\cos x)/x^3$ (кривая *2*). Вычислено для ГЦК решетки ($f = 0.74$). Точки (hkl) на кривой *1* соответствуют условиям $|\mathbf{q}| = |\mathbf{b}(hkl)|$ с векторами обратной решетки $\mathbf{b}(hkl)$, относящимися к плоскостям (111), (200) и (220).

$\lambda(0) = 2a\sqrt{2\varepsilon_0/3}$ дифракции на системе плоскостей с $\mathbf{b} \parallel [111]$ в ГЦК решетке, а при $m_3' \geq 2$ — верхние границы $\lambda(0)/m_3'$ для дифракции более высоких порядков. Эти выводы одинаковы для решеток ГЦК-I и ГЦК-II. Заметим, что дифракция типа $m_1' = m_2' = 0$ и $m_3' = 1$ проявляется в спектрах отражения (пропускания) света от ростовой плоскости (111) опалов, которые исследуются в большинстве работ. Картина дифракции существенно усложняется при уменьшении длины волны, когда $m_1' \neq 0$ или $m_2' \neq 0$ в (31).

Согласно (17), для того чтобы максимум структурного фактора, заданный вектором $\mathbf{b}$, был наблюдаемым, необходимо чтобы соответствующая величина $|\Delta\varepsilon_{\mathbf{b}}|^2$ была достаточно большой. Простейшая оценка форм-фактора $\Delta\varepsilon_{\mathbf{b}}$ получается из (21) в изотропном приближении, когда многогранная элементарная ячейка Вигнера–Зейтца ГЦК решетки заменяется шаром равновеликого объема $v_0 = a^3/\sqrt{2}$. Вычисление интеграла (21) дает

$$\Delta\varepsilon_{\mathbf{q}} = (\varepsilon_i - \varepsilon_e)\left[F\left(\frac{qa}{2}\right) - F\left(\frac{qa}{2f^{1/3}}\right)\right]. \quad (33)$$

Здесь $F(x) = (\pi/\sqrt{2})(\sin x - x\cos x)/x^3$, f — фактор заполнения ГЦК решетки шарами, $\varepsilon_i(\varepsilon_e)$ — диэлектрическая проницаемость внутри (вне) шаров. Кривая *1* на рис. 3 показывает нормированный форм-фактор $F(x) - F(x/f^{1/3})$ в сравнении с форм-фактором отдельного шара $F(x)$ (кривая *2*). Точки (hkl) на кривой *1* дают величины $\Delta\varepsilon_{\mathbf{b}}/(\varepsilon_i - \varepsilon_e)$, вычисленные из (33) при $\mathbf{q} = \mathbf{b}(hkl)$ для плоскостей (111), (200) и (220). Далее рассмотрим каким образом особенности дифракции света, рассмотренные выше для ГЦК решетки, модифицируются при учете ростовой неупорядоченности опалов.

5. Дифракция на случайной плотной упаковке слоев

Для случайной упаковки L гексагональных слоев среднее значение входящего в (22) структурного фактора записывается в виде [19]

$$\langle S_\perp(\mathbf{q})\rangle = \sum_{l=-L+1}^{L-1}\left(1 - \frac{|l|}{L}\right)\langle e^{-i\mathbf{q}\cdot\mathbf{R}_{0,l}}\rangle. \quad (34)$$

Как указано выше, при плотной упаковке гексагональных слоев последующий слой получается путем трансляции предыдущего на вектор $\mathbf{u}_\mathrm{I}$ или $\mathbf{u}_\mathrm{II}$. Введем коэффициент корреляции упаковки p, равный вероятности того, что векторы двух последовательных трансляций слоев одинаковы. При $p = 0$ образуется трехмерная гексагональная плотноупакованная (ГПУ) решетка, а при трансляциях на вектор $\mathbf{u}_\mathrm{I}(\mathbf{u}_\mathrm{II})$ с вероятностью $p = 1$ образуется структура ГЦК-I (ГЦК-II). Если $0 < p < 1$, то получается статистическая смесь ГЦК и ГПУ структур с дефектами упаковки. В последнем случае матрица

$$\hat{M}(\mathbf{q}) = \begin{pmatrix} pe^{-i\mathbf{q}\cdot\mathbf{u}_\mathrm{I}} & (1-p)e^{-i\mathbf{q}\cdot\mathbf{u}_\mathrm{II}} \\ (1-p)e^{-i\mathbf{q}\cdot\mathbf{u}_\mathrm{I}} & pe^{-i\mathbf{q}\cdot\mathbf{u}_\mathrm{II}} \end{pmatrix} \quad (35)$$

определяет среднее значение фазового множителя $\langle e^{-i\mathbf{q}\cdot\mathbf{R}_{0,l=1}}\rangle = (1/2)\mathbf{e}^T \cdot \hat{M}(\mathbf{q}) \cdot \mathbf{e}$, где $\mathbf{e}$ — матрица-вектор, транспонирование которой дает $\mathbf{e}^T = (1, 1)$, причем $\mathbf{e}^T \cdot \mathbf{e} = 2$. Учитывая, что при $l > 0$

$$\langle e^{-i\mathbf{q}\cdot\mathbf{R}_{0,l}}\rangle = \frac{1}{2}\mathbf{e}^T \cdot \hat{M}^l(\mathbf{q}) \cdot \mathbf{e}, \quad (36)$$

из (34) получаем

$$\langle S_\perp(\mathbf{q})\rangle = \frac{1}{2}\mathbf{e}^T \cdot \left\{\hat{I} + \sum_{l=1}^{L-1}\left(1 - \frac{l}{L}\right)\left[\hat{M}^l + \left(\hat{M}^*\right)^l\right]\right\} \cdot \mathbf{e}. \quad (37)$$

Суммирование в этой формуле с точностью до членов порядка $1/L \ll 1$ $(L \to \infty)$ дает

$$\langle S_\perp(\mathbf{q})\rangle = \frac{1}{2}\mathbf{e}^T \cdot \left[\left(\hat{I} - \hat{M}\right)^{-1} + \left(\hat{I} - \hat{M}^*\right)^{-1} - \hat{I}\right] \cdot \mathbf{e}, \quad (38)$$

где $\hat{I}$ — единичная матрица. Используя элементы матрицы (35), получаем

$$\langle S_\perp(\mathbf{q})\rangle = \frac{p(1-p)\sin^2\Delta\psi}{(1-2p)\sin^2\psi_0 + p^2(1 - 2\cos\psi_0\cos\Delta\psi + \cos^2\Delta\psi)}, \quad (39)$$

где

$$\Delta\psi = \frac{1}{2}\mathbf{q}\cdot(\mathbf{u}_\mathrm{I} - \mathbf{u}_\mathrm{II}), \quad \psi_0 = \frac{1}{2}\mathbf{q}\cdot(\mathbf{u}_\mathrm{I} + \mathbf{u}_\mathrm{II}). \quad (40)$$

В случае *A*, когда $\mathbf{Q} \parallel [11\bar{2}]$ и $\mathbf{u}_\mathrm{I,II} = a(\hat{\mathbf{y}}/\alpha \pm \hat{\mathbf{z}}/\sqrt{3})$, из выражений (39), (40) находим усредненный структурный фактор

$$\langle S_\perp(\mathbf{q})\rangle = \frac{3}{2}\,\frac{p(1-p)}{(2p-1)(\cos 2\psi_0 - 1) + p^2(2\cos\psi_0 + 5/2)} \quad (41)$$

на длине волны (29), причем $\psi_0 = 4\pi\,\mathrm{tg}(\vartheta'/2)/(\alpha\sqrt{3})$. Заметим, что в соответствии с этим выводом в формуле (13) из [12], являющейся частным случаем (41), знаки котангенса следует поменять на знаки тангенса.

Структурный фактор (41), нормированный на единицу в максимумах, показан на рис. 4, *a* для плотных $(\alpha = \sqrt{3/2})$ случайных упаковок с разными коэффициентами корреляции p. Кривые *1–3* дают зависимость (41) от угла Θ', который равен ϑ' при $\varphi' = \pi/2$ и $-\vartheta'$ при $\varphi' = 3\pi/2$, а также от длины волны (29). Видно, что при увеличении p в области $p > 0.5$ функция $\langle S_\perp\rangle$ существенно меняется, приближаясь при $1 - p \ll 1$ к сумме угловых зависимостей, характерных для ограниченных по толщине решеток ГЦК-I и ГЦК-II. Это следует из рис. 4, *b*, где дано сравнение нормированной величины $\langle S_\perp\rangle$, вычисленной для случайной упаковки с $p = 0.8$ (кривая *4*), со структурным фактором $(S_\perp^\mathrm{I} + S_\perp^\mathrm{II})/L$,

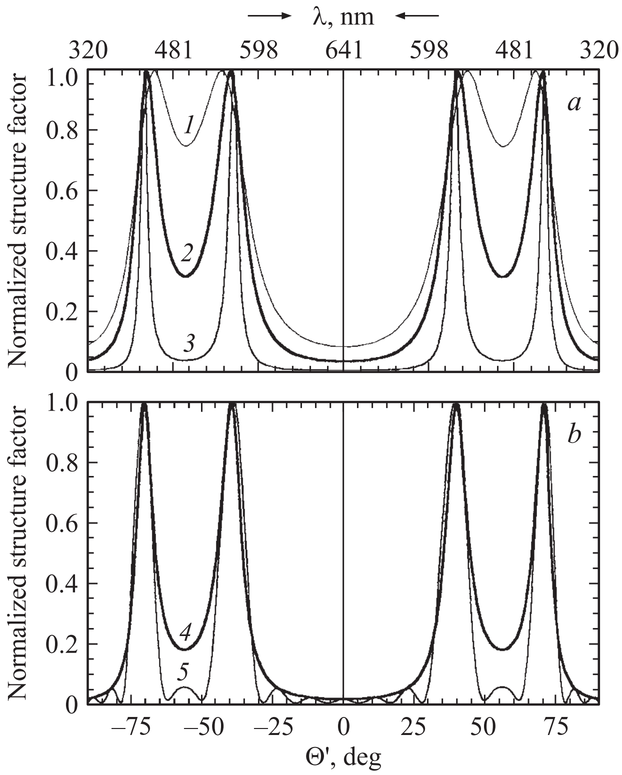

Рис. 4. Зависимость усредненного структурного фактора от Θ' при $\mathbf{Q} \parallel [11\bar{2}]$. a — нормированные функции $\langle S_\perp \rangle$ из (41) для случайных упаковок гексагональных слоев с $p = 0.65$ (*1*), $p = 0.75$ (*2*) и $p = 0.9$ (*3*). b — нормированная функция $\langle S_\perp \rangle$ из (41) для случайной упаковки слоев с $p = 0.8$ (*4*) в сравнении с функцией $(S^{\mathrm{I}}_\perp + S^{\mathrm{II}}_\perp)/L$ из (25) для смеси структур ГЦК-I и ГЦК-II с числом слоев $L = 10$ (*5*). Вычислено при $\alpha = \sqrt{3/2}$ и тех же значениях параметров, что на рис. 2. Брэгговская длина волны λ связана с углом Θ' формулой (29).

соответствующим смеси ГЦК-I и ГЦК-II структур с числом слоев $L = 10$ (кривая *5*). В области максимумов указанные зависимости весьма близки друг к другу. Учитывая, что для угловой зависимости $\langle S_\perp \rangle$ с $p = 0.8$ ранее было получено хорошее согласие с экспериментом [12], на основании близкого сходства с ней можно констатировать наличие согласия с экспериментом и для угловой зависимости $(S^{\mathrm{I}}_\perp + S^{\mathrm{II}}_\perp)/(2L)$ с $L = 10$. Последнее означает, что для опалов, использовавшихся в экспериментах [12], характерное число гексагональных слоев в ГЦК доменах можно оценить как $\bar{L} \cong 10$.

Таким образом, в случайной плотной упаковке гексагональных слоев чередуются области регулярности (домены) ГЦК структур $\ldots ABCABC \ldots$ и $\ldots ACBACB \ldots$. Чередование таких доменов означает образование двойникованной структуры [12], причем из-за случайных сбоев регулярной упаковки длина доменов, образующих двойник, является случайной величиной. При значениях коэффициента корреляции упаковки p, близких к единице, имеются домены с достаточно большим числом слоев L, которые дают в дифракционных картинах особенности, характерные для ГЦК решеток. Как показано выше, это позволяет оценивать из угловых зависимостей интенсивности дифракции не только коэффициент корреляции p [12], но и характерный размер ГЦК доменов. В связи с этим представляется актуальным теоретически найти функцию распределения ГЦК доменов по длинам при заданной величине p и вычислить среднее значение длины и ее дисперсию с учетом сосуществования ГЦК и ГПУ доменов, дефектов упаковки и т. д.

В заключение заметим, что обсуждавшиеся эффекты межслоевой неупорядоченности не должны проявляться в стандартной геометрии зеркального отражения света от плоскостей (111), т. е. при дифракции с $m'_1 = m'_2 = 0$ на длинах волн (32). Действительно, в этом случае $\mathbf{u}'_{\mathrm{I}} = \mathbf{u}'_{\mathrm{II}}$ и $\langle e^{-i\mathbf{q}\cdot\mathbf{R}_{0,l}} \rangle = e^{-il\mathbf{q}\cdot\mathbf{u}'_{\mathrm{I,II}}}$ в формуле (34), т. е. вклад данного процесса дифракции в структурный фактор (34) не зависит от случайной упаковки слоев, если слои расположены эквидистантно. Однако эффекты двойникования структуры должны проявиться в незеркальных процессах с $m'_1 \neq 0$ или $m'_2 \neq 0$.

6. Заключительные замечания

В настоящей работе развита теория брэгговской дифракции линейно поляризованного света в фотонных кристаллах с учетом его преломления на диэлектрической границе и эффектов межслоевой неупорядоченности образца. Вычислены величины, наблюдаемые методами дифракции (в зависимости от направления рассеяния) и спектроскопии (в зависимости от частоты зондирующего света). Теория может использоваться для анализа кристаллической сверхструктуры опалов и для уточнения количественных характеристик картин визуализации стоп-зон фотонных кристаллов [14]. Результаты проведенного анализа интенсивности дифракционных максимумов находятся в хорошем согласии с недавними наблюдениями дифракции [12], показавшими наличие случайной двойникованной ГЦК структуры в синтетических опалах. Сравнивая с данными экспериментов [12] результаты теории, полученные для двух моделей доменов с ГЦК решеткой, мы оценили характерный размер таких доменов в направлении роста образца. В представленной теории использовано борновское приближение для рассеяния света, т. е. она строго применима для описания эффектов простой дифракции в фотонных кристаллах с относительно слабой модуляцией диэлектрической проницаемости, таких как опалы. Однако эта теория допускает прямое обобщение, основанное на самосогласованном решении уравнений для электромагнитного поля в кристалле. Последнее необходимо в сравнительно редких случаях множественной брэгговской дифракции [20] или при описании дифракции в фотонных кристаллах с очень большой модуляцией диэлектрической постоянной.

Автор благодарен М.Ф. Лимонову и А.В. Селькину за полезные обсуждения.

Приложение I. Решение электродинамической задачи. При наличии диэлектрического тензора с компонентами $\varepsilon^0(z,\omega)\delta_{\alpha\beta}$, где функция $\varepsilon^0(z,\omega)$ равна ε_1 при $z<0$ и ε_0 при $z>0$, компоненты функции Грина, являющейся решением второго из уравнений (4), выражаются интегральным представлением Фурье

$$G^0_{\alpha\beta}(\mathbf{r},\mathbf{r}';\omega)=\int\frac{d^2\kappa}{(2\pi)^2}\exp\big[i\boldsymbol{\kappa}\cdot(\boldsymbol{\rho}-\boldsymbol{\rho}')\big]D^0_{\alpha\beta}(z,z';\boldsymbol{\kappa},\omega). \tag{I.1}$$

Здесь $\mathbf{r}=(\boldsymbol{\rho},z)$, $\boldsymbol{\rho}=\rho(\mathbf{e}_x\cos\phi+\mathbf{e}_y\sin\phi)$, $\boldsymbol{\kappa}=\kappa(\mathbf{e}_x\cos\varphi+\mathbf{e}_y\sin\varphi)$,

$$D^0_{\alpha\beta}(z,z';\boldsymbol{\kappa},\omega)=\sum_{\mu,\nu}T_{\alpha\mu}(\varphi)d^0_{\mu\nu}(z,z';\kappa,\omega)T_{\beta\nu}(\varphi) \tag{I.2}$$

для заданного направления волнового вектора $\boldsymbol{\kappa}$. Ненулевые элементы матрицы поворота на угол φ равны $T_{xx}=T_{yy}=\cos\varphi$, $-T_{xy}=T_{yx}=\sin\varphi$ и $T_{zz}=1$. Тензор с компонентами (I.2) имеет вид

$$\hat{D}^0=\begin{pmatrix} d^0_{xx}\cos^2\varphi+d^0_{yy}\sin^2\varphi & (d^0_{xx}-d^0_{yy})\sin\varphi\cos\varphi & d^0_{xz}\cos\varphi\\ (d^0_{xx}-d^0_{yy})\sin\varphi\cos\varphi & d^0_{xx}\sin^2\varphi+d^0_{yy}\cos^2\varphi & d^0_{xz}\sin\varphi\\ d^0_{zx}\cos\varphi & d^0_{zx}\sin\varphi & d^0_{zz}\end{pmatrix}. \tag{I.3}$$

Компоненты $d^0_{\alpha\beta}(z,z';\kappa,\omega)$ получаются из второго уравнения (4) с волновым вектором $\boldsymbol{\kappa}=\mathbf{e}_x\kappa$ $(\varphi=0)$ и оператором $\{\partial/\partial\mathbf{r}\}=\{i\kappa,0,d/dz\}$. Они разделяются для p-поляризации с индексами x и z и s-поляризации с индексом y. Функции $d^0_{\alpha\beta}(z,z')$ при $z=0$ удовлетворяют максвелловским граничным условиям по z и выражаются через коэффициенты отражения r^0_σ из (10) и $t^0_\sigma=1+r^0_\sigma$.

Приведем выражения для компонент функции Грина $d^0_{\alpha\beta}(z,z';\kappa,\omega)$, записывая их символически в виде $d^0_{\alpha\beta}(m,m')$, где m и m' — номер среды (1 или 2), включающей соответственно координату точки наблюдения z и источника z', т.е. $m=1$ при $z<0$ и $m'=2'$ при $z'>0$. Для s-поляризованных волн имеем

$$d^0_{yy}(1,2')=\frac{i}{2k_1}t^0_s\exp(-ik_1z+ikz'), \tag{I.4}$$

$$d^0_{yy}(2,2')=\frac{i}{2k}\Big\{\exp[ik|z-z'|]-r^0_s\exp[ik(z+z')]\Big\}, \tag{I.5}$$

а для p-поляризованных —

$$d^0_{xx}(1,2')=\frac{ik_1}{2k_0^2\varepsilon_1}t^0_p\exp(-ik_1z+ikz'). \tag{I.6}$$

$$d^0_{zz}(1,2')=\frac{\kappa}{k_1}d^0_{xz}(1,2')=\frac{\kappa}{k}d^0_{zx}(1,2')=\frac{\kappa^2}{k_1k}d^0_{xx}(1,2'), \tag{I.7}$$

$$d^0_{xx}(2,2')=\frac{ik}{2k_0^2\varepsilon_0}\Big\{\exp[ik|z-z'|]-r^0_p\exp[ik(z+z')]\Big\}, \tag{I.8}$$

$$d^0_{zx}(2,2')=-\frac{i\kappa}{2k_0^2\varepsilon_0}\Big\{\mathrm{sgn}(z-z')\exp[ik|z-z'|]+r^0_p\exp[ik(z+z')]\Big\}, \tag{I.9}$$

$$d^0_{xz}(2,2')=-\frac{i\kappa}{2k_0^2\varepsilon_0}\Big\{\mathrm{sgn}(z-z')\exp[ik|z-z'|]-r^0_p\exp[ik(z+z')]\Big\}, \tag{I.10}$$

$$d^0_{zz}(2,2')=\frac{ik}{2k_0^2\varepsilon_0}\left(\frac{\kappa}{k}\right)^2\Big\{\exp(ik|z-z'|)+r^0_p\exp[ik(z+z')]\Big\}-\frac{\delta(z-z')}{\varepsilon_0k_0^2}. \tag{I.11}$$

Приложение II. В настоящей работе используются базисные векторы

$$\hat{\mathbf{a}}_1=\frac{a}{2}(-\hat{\mathbf{x}}+\sqrt{3}\,\hat{\mathbf{z}}),\quad \hat{\mathbf{a}}_2=\frac{a}{2}(\hat{\mathbf{x}}+\sqrt{3}\,\hat{\mathbf{z}}),$$
$$\hat{\mathbf{a}}_3=a\left(\frac{1}{\sqrt{3}}\hat{\mathbf{z}}+\frac{1}{\alpha}\hat{\mathbf{y}}\right), \tag{II.1}$$

выражение в ортах $\hat{\mathbf{x}}\parallel[\bar{1}10]$, $\hat{\mathbf{y}}\parallel[111]$ и $\hat{\mathbf{z}}\parallel[11\bar{2}]$ ГЦК решетки, рис. 1, *b*. Векторы $\hat{\mathbf{a}}_1$ и $\hat{\mathbf{a}}_2$ определяют узлы решетки гексагонального слоя с междоузельным расстоянием a. Введение базисного вектора трансляции $\hat{\mathbf{a}}_3$, зависящего от параметра $\alpha=a/A$, позволяет рассматривать множество решеток, которые топологически эквиваленты ГЦК решетке, но имеют разные расстояния A между гексагональными слоями. Предельными случаями этих структур являются ГЦК решетка при $A=a\sqrt{2/3}$ $(\alpha=\alpha_{\max}=\sqrt{3/2})$ и изолированные слои при $A\to\infty$, $\alpha\to0$.

На основе (II.1) для базисных векторов обратной решетки находим

$$\hat{\mathbf{b}}_1=\frac{2\pi}{a}\left(-\hat{\mathbf{x}}+\frac{1}{\sqrt{3}}\hat{\mathbf{z}}-\frac{\alpha}{3}\hat{\mathbf{y}}\right),$$
$$\hat{\mathbf{b}}_2=\frac{2\pi}{a}\left(\hat{\mathbf{x}}+\frac{1}{\sqrt{3}}\hat{\mathbf{z}}-\frac{\alpha}{3}\hat{\mathbf{y}}\right),\quad \hat{\mathbf{b}}_3=\frac{2\pi}{a}\alpha\hat{\mathbf{y}}. \tag{II.2}$$

При $\alpha\to0$ (II.2) переходят в векторы

$$\hat{\mathbf{b}}^0_1=\frac{2\pi}{a}\left(-\hat{\mathbf{x}}+\frac{1}{\sqrt{3}}\hat{\mathbf{z}}\right),$$
$$\hat{\mathbf{b}}^0_2=\frac{2\pi}{a}\left(\hat{\mathbf{x}}+\frac{1}{\sqrt{3}}\hat{\mathbf{z}}\right),\quad \hat{\mathbf{b}}^0_3=0, \tag{II.3}$$

которые соответствуют модели изолированного слоя. Индексы m_i в разложении (26) вектора обратной решетки $\mathbf{b}$ по базисным векторам (II.2) связаны с индексами Миллера (hkl) плоскости, перпендикулярной вектору $\mathbf{b}$, следующими соотношениями

$$h:k:l=(m_1-m_2+m_3):(-m_1+m_2+m_3):(-m_1-m_2+m_3). \tag{II.4}$$

Список литературы

[1] Ч. Киттель. Введение в физику твердого тела. Мир, М. (1986).
[2] Дж. Займан. Модели беспорядка. Мир, М. (1982).
[3] Дж. Слэтер. Диэлектрики, полупроводники, металлы. Мир, М. (1969). Гл. 6.
[4] J.D. Joannopoulos, R.D. Meade, J.N. Winn. Photonic Crystals. Molding of Flow of Light. Princeton Univ. Press, Princeton (1995).
[5] E. Yablonovitch. Phys. Rev. Lett. **58**, *20*, 2059 (1987); E. Yablonovitch, T.J. Gmitter, K.M. Leung. Phys. Rev. Lett. **67**, *17*, 2295 (1991); E. Yablovovitch, T.J. Gmitter, R.D. Meade, A.M. Rappe, K.D. Brommer, J.A. Joannopoulos. Phys. Rev. Lett. **67**, *24*, 3380 (1991).
[6] Confined Electrons and Photons. New Physics and Applications / Eds E. Burstein, C. Weisbuch, Plenum Press, N.Y. (1995).
[7] A. Blanco, E. Chomski, S. Grabtchak, et al. Nature **405**, 437 (2000).
[8] V.N. Astratov, V.N. Bogomolov, A.A. Kaplyanskii, A.V. Prokofiev, L.A. Samilovich, S.M. Samoilovich, Y.A. Vlasov. Nuovo Cimento D **17**, 1349 (1995).
[9] K. Buch, S. John. Phys. Rev. B **58**, *3*, 3896 (1998).
[10] А.В. Барышев, А.В. Анкудинов, А.А. Каплянский, В.А. Кособукин, М.Ф. Лимонов, К.Б. Самусев, Д.Е. Усвят. ФТТ **44**, *9*, 1573 (2002).
[11] А.В. Барышев, А.А. Каплянский, В.А. Кособукин, М.Ф. Лимонов, А.П. Скворцов. ФТТ **46**, *7*, 1291 (2004).
[12] А.В. Барышев, А.А. Каплянский, В.А. Кособукин, М.Ф. Лимонов, К.Б. Самусев, Д.Е. Усвят. ФТТ **45**, *3*, 434 (2003).
[13] A.V. Baryshev, A.A. Kaplyanskii, V.A. Kosobukin, M.F. Limonov, K.B. Samusev, D.E. Usvyat. Physica E **17**, 426 (2003).
[14] A.V. Baryshev, A.A. Kaplyanskii, V.A. Kosobukin, K.B. Samusev, D.E. Usvyat, M.F. Liminov. Phys. Rev. B **70**, *11*, 113 104 (2004).
[15] Г. Джеффрис, Б. Свирлс. Методы математической физики. Т. 3. Мир, М. (1969).
[16] В.А. Кособукин. ФТТ **39**, *3*, 560 (1997).
[17] V.N. Astratov, A.M. Adavi, S. Fricker, M.S. Skolnick, D.M. Whittacker, P.N. Pusey. Phys. Rev. B **66**, *16*, 165 215 (2002).
[18] R.M. Amos, J.G. Rarity, P.R. Tapster, T.J. Shepherd, S.C. Kitson. Phys. Rev. B **61**, *3*, 2929 (2000).
[19] W. Loose, B.J. Ackerson. J. Chem. Phys. **101**, *9*, 7211 (1994).
[20] H.M. van Driel, W.L. Vos. Phys. Phys. Rev. B **62**, *15*, 9872 (2000).