

ДИФРАКЦИЯ И РАССЕЯНИЕ  
ИОНИЗИРУЮЩИХ ИЗЛУЧЕНИЙ

УДК 548.73

ЧИСЛЕННОЕ МОДЕЛИРОВАНИЕ ИЗОБРАЖЕНИЙ ФОТОННЫХ  
КРИСТАЛЛОВ С ПОМОЩЬЮ ЖЕСТКИХ РЕНТГЕНОВСКИХ ЛУЧЕЙ  
В СХЕМЕ НА ПРОСВЕТ. БЛИЖНЕЕ ПОЛЕ

© 2014 г. В. Г. Кон, Н. В. Цвигун\*

Национальный исследовательский центр “Курчатовский институт”, Москва  
E-mail: kohnvict@yandex.ru

\* Институт кристаллографии РАН, Москва

Поступила в редакцию 03.04.2013 г.

Развит метод расчета прохождения жесткого рентгеновского излучения через идеальный и хорошо ориентированный фотонный кристалл, состоящий из плотно упакованных сфер вещества. Метод основан на использовании приближенного решения параксиального уравнения на малых расстояниях. Получена рекуррентная формула для распространения излучения на один период кристалла. Разработана компьютерная программа для численного моделирования изображений фотонных кристаллов в ближнем поле, в частности сразу за кристаллом. Расчет выполнен для силикатных сфер диаметром 500 нм. Показано, что метод стандартного фазового контраста не применим к данным объектам, так как в объеме кристалла происходит весьма сильное изменение интенсивности, обусловленное рассеянием излучения на отдельных сферах.

DOI: 10.7868/S002347611401007X

## ВВЕДЕНИЕ

Фотонными кристаллами называются естественные или искусственные материалы с периодическим изменением электронной плотности при условии, что значение периода находится в интервале от десятых долей микрометра до одного микрометра. Естественными кристаллами такого типа являются опалы. Благородные опалы состоят из глобул кремнезема  $\text{SiO}_2 \cdot n\text{H}_2\text{O}$ , упорядоченных в трехмерную решетку. Искусственные фотонные кристаллы часто изготавливаются из силикатных  $\text{SiO}_2$  сфер нужного размера, плотно упакованных в трехмерной решетке. По этой причине их называют синтетическими опалами.

Существуют фотонные кристаллы других типов, в том числе двумерные и одномерные. Применяется несколько разных способов синтеза искусственных фотонных кристаллов, но наиболее простым и массовым является метод самосборки коллоидных частиц на вертикальной поверхности [1]. При этом стараются реализовать ситуацию, когда все коллоидные частицы имеют вид сфер одинакового радиуса и образуют плотно упакованную структуру.

При плотной упаковке одинаковых сфер на плоскости возникает треугольная (гексагональная) структура, в которой центры трех соседних сфер образуют равносторонний треугольник со стороной, равной диаметру сферы  $D$ . Каждая сфера образует шесть таких треугольников со всеми своими соседями. При упаковке второго слоя сферы ложатся в центры треугольников, но за-

полняют только три из шести возможных позиций. Различия возникают при упаковке третьего слоя. В нем сферы могут занимать те же позиции, что и в первом слое. Такую структуру в литературе называют *ABABAB*. Она представляет собой гексагональную плотноупакованную решетку. В горизонтальной плоскости сферы заполняют ряды с периодом  $D$  вдоль выбранного ряда и с периодом  $p = D \cos 30^\circ = 0.866D$  перпендикулярно ряду, причем сферы в соседних рядах сдвинуты друг относительно друга на  $D/2$ . Период по вертикали равен  $h = D(8/3)^{1/2}$ .

В другом варианте упаковки сферы третьего слоя заполняют центры треугольников, которые оставались пустыми во втором слое. Таким образом, третий слой не эквивалентен первому. Эта структура получила название *ABCABC*. Она представляет собой гранецентрированную кубическую решетку, в которой горизонтальная плоскость соответствует направлению 111.

Обе структуры практически одинаково плотные и обе реализуются в синтетических опалах, а часто и сосуществуют. К сожалению, метод самосборки коллоидных частиц практически всегда создает кристаллы с большим количеством дефектов случайного типа. Поэтому большое значение имеет развитие методов диагностики структуры фотонных кристаллов. С обзором существующих методик можно ознакомиться в [1].

Наиболее интересными являются методы, использующие рентгеновское излучение мощных синхротронных источников с высокой интенсив-

ностью в рентгеновском диапазоне. В частности, широко используется метод малоугловой рентгеновской дифракции, в котором экспериментально детектируют структуру дифракционных пятен от небольшого участка кристалла на большом расстоянии от него ([2–5] и ссылки в них). При этом структура дифракционных пятен позволяет выявить симметрию решетки и возможные дефекты, но никакой информации о самом процессе рассеяния излучения не дает.

Альтернативным является метод наблюдения прямого изображения фотонных кристаллов с разрешением, позволяющим видеть изображения отдельных периодов структуры локально в каждой точке [6, 7]. Это стало возможным благодаря методу **HRXRM** (high resolution x-ray microscopy) [7, 8], основанному на использовании составной рентгеновской преломляющей линзы (**CRL**) [9, 10]. С помощью CRL можно не только фиксировать увеличенное распределение интенсивности излучения сразу за кристаллом, но и получать дифракционную картину на коротком расстоянии, а именно, в фокальной плоскости линзы.

Развитие экспериментального метода **HRXRM** сделало актуальной задачу теоретического расчета распределения интенсивности излучения сразу за кристаллом, т.е. в ближнем поле. В литературе нет сообщений о результатах решения такой задачи. Стандартные методы рентгеновской дифракции в обычных кристаллах неприменимы, так как кристалл имеет очень большой период по сравнению с длиной волны излучения, и условие Брэгга выполняется для большого числа векторов обратной решетки, а рассеяние на одной сфере никак нельзя считать слабым.

Ситуация близка к электронной трансмиссионной микроскопии или эффекту каналирования быстрых частиц в кристалле [11]. С другой стороны, задачу можно решать методом, близким к применяемому при расчете рентгеновского фазового контраста [12]. Однако этот метод должен быть модифицирован, чтобы учесть сильное рассеяние излучения в объеме фотонного кристалла. Настоящая работа посвящена развитию метода расчета прохождения жесткого рентгеновского излучения через толстый фотонный кристалл.

## ПОСТАНОВКА ЗАДАЧИ И МЕТОД РАСЧЕТА

Пучки синхротронного излучения от источников третьего поколения имеют очень малую угловую расходимость, которой можно пренебречь в задаче о прохождении пучка на малое расстояние порядка толщины объекта. При распространении параллельного пучка (плоской волны) через фотонный кристалл хороший контраст получается только при определенной ориентации кристалла. Этот факт легко понять из аналогии с эффектом каналирования. Ясно, что это должна быть ори-

ентация с малым периодом по направлению пучка.

Пусть на входную поверхность фотонного кристалла в форме пластины, которая перпендикулярна направлению пучка, совпадающего с осью  $z$  декартовой системы координат, падает когерентная монохроматическая волна рентгеновского излучения, амплитуда электрического поля в которой равна

$$E(x, y, z) = A(x, y, z) \exp(ikz), \quad k = 2\pi/\lambda, \quad (1)$$

где  $\lambda$  – длина волны излучения. Если волна плоская, то амплитуда волны на входной поверхности ( $z = 0$ ) постоянна, пусть  $A(x, y, 0) = 1$ . Задача – вычислить распределение амплитуды волны на выходной поверхности кристалла, т.е. после прохождения пучка излучения через кристалл.

Для жестких рентгеновских лучей с высокой точностью выполняется парааксиальное приближение, поэтому вместо уравнения Максвелла для амплитуды электрического поля достаточно решить парааксиальное уравнение для волновой функции  $A(x, y, z)$  [13], которое запишем в виде

$$\frac{dA}{dz} = -ik\eta\rho(x, y, z)A + \frac{i}{2k} \left( \frac{d^2 A}{dx^2} + \frac{d^2 A}{dy^2} \right). \quad (2)$$

Для простоты предположим, что фотонный кристалл состоит из плотно упакованных сфер химически однородного материала, например  $\text{SiO}_2$ . При этом комплексный параметр  $\eta = \delta - i\beta = 1 - n$ , где  $n$  – комплексный показатель преломления материала, т.е. с учетом поглощения. Функция  $\rho(x, y, z)$  равна единице в точках, где есть вещество, внутри сфер, и равна 0 в точках, где его нет.

Для произвольной функции  $\rho(x, y, z)$  задача оказывается очень сложной. Но для короткого периода кристалла по направлению пучка, в наиболее интересном случае, можно сделать дополнительное приближение. Будем считать, что на расстоянии, равном периоду  $h$ , изменение волновой функции пренебрежимо мало. Тогда (2) можно усреднить по периоду и заменить функцию  $k\eta\rho(x, y, z)$  на

$$a(x, y) = k\eta s(x, y), \quad s(x, y) = \frac{1}{h} \int_0^h dz' \rho(x, y, z'). \quad (3)$$

В таком приближении коэффициент в первом члене правой части (2) не зависит от  $z$  и от него можно избавиться подстановкой  $A = B_{\text{exp}}(-iaz)$ . Вместо (2) получаем

$$\frac{dB}{dz} = \frac{i}{2k} \left( \frac{d^2 B}{dx^2} + \frac{d^2 B}{dy^2} \right) + O(z). \quad (4)$$

Второе слагаемое правой части уравнения не выписано в явном виде. Оно содержит все члены, получающиеся при дифференцировании  $\exp(-iaz)$

по координатам  $x$  и  $y$ . При этом оно содержит члены, пропорциональные  $z$ , и  $z^2$ . Важно, что при малом значении  $z$  именно линейные по  $z$  члены существенны в первую очередь.

При решении уравнения начало координат на оси  $z$  можно выбирать произвольным образом. Каждый раз будем выбирать начало в такой точке  $z_0$ , где уже известно значение  $B(x, y, z_0)$ , т.е. в (4) координату  $z$  надо понимать как расстояние от точки, в которой уже известно решение. Следующее приближение состоит в том, что при интегрировании на малое расстояние вдоль оси  $z$  можно пренебречь вторым членом в (4), потому что он приведет к изменениям второго порядка малости.

В таком приближении получаем параболическое уравнение для пустого пространства, решение которого хорошо известно [13]. Его можно записать в виде свертки по координатам  $x$  и  $y$  известного решения  $B(x, y, 0)$  с пропагатором Кирхгофа  $P_2(x, y, z) = P(x, z)P(y, z)$ , где

$$P(x, z) = \frac{1}{(i\lambda z)^{1/2}} \exp\left(i\pi \frac{x^2}{\lambda z}\right). \quad (5)$$

Для исходной волновой функции  $A(x, y, z)$  уравнение имеет вид

$$A(x, y, z) = \exp(-ia(x, y)z) \times \int dx' dy' P_2(x - x', y - y', z) A(x', y', 0). \quad (6)$$

Физический смысл полученного решения можно сформулировать следующим образом. Пусть известно решение (2) в плоскости  $(x, y)$  внутри объекта в какой-то точке  $z_0$  на оптической оси. Выбирая начало координат в этой точке, можно получить решение на некотором небольшом расстоянии от нее, т.е. в точке  $z_0 + z$ , используя (6). Следовательно, уравнение (6) имеет смысл рекуррентного соотношения, которое надо использовать многократно и следить за тем, чтобы каждый раз значение интервала распространения  $z$  было не слишком велико.

Отметим, что (6) эффективно описывает два процесса. Сначала волновая функция переносится на расстояние  $z$  по пустому пространству, затем она умножается на фазовый множитель, который учитывает набег фазы, полученный за счет того, что лучи проходили в веществе. Этот набег фазы точно совпадает с тем, какой получается при использовании приближения геометрической оптики. Но (6) не сводится к геометрической оптике, так как дополнительно содержит свертку, соответствующую дифракции излучения при распространении на расстояние  $z$  в вакуумном пространстве.

В стандартном методе рентгеновского фазового контраста уравнение (6) применяют к полной толщине объекта. Если до объекта и после объек-

та существуют большие расстояния пустого пространства, то множитель, описывающий свертку, не играет существенной роли. Он просто прибавляет к расстоянию до объекта толщину кристалла, а сам объект как бы соответствует пластине нулевой толщины, но с правильным изменением фазы в соответствии с геометрической оптикой.

Можно показать, что более точным является приближение, в котором половина толщины объекта прибавляется к расстоянию до объекта и половина — к расстоянию после. А фазовый множитель в теории фазового контраста является трансмиссионной функцией и описывает объект. Но если рассматривать уравнение (6) как рекуррентное, то толщину объекта надо разделить на равные части (слои) и в каждом слое умножение на фазовый множитель, соответствующий слою, можно делать в середине слоя.

При этом сначала рассчитывается распространение по пустому пространству на половину толщины слоя, потом — много раз умножение на фазовый множитель и распространение на толщину всего слоя, а в конце цикла — снова на половину толщины слоя. В случае фотонного кристалла минимальная толщина такого слоя соответствует периоду кристалла  $h$  по оси  $z$ . Но можно рассматривать и более толстые слои. Аналитическую оценку точности рассматриваемого приближения сделать достаточно сложно. Можно рассмотреть некоторые варианты объектов, для которых существует аналитическое (точное) решение уравнения (2). Такой случай рассмотрен, но ввиду его сложности не будем в данной работе приводить анализ этого случая.

Важно отметить, что отброшенные в (4) члены пропорциональны не только расстоянию распространения  $z$ , но и производным по координатам  $x, y$  от функции  $a(x, y)$ . В случае фотонного кристалла эти производные равны бесконечности на границах сфер. Хотя производные расходятся только на линиях и являются большими в узкой области, но именно эти области дают основной вклад в изображение. В связи с этим проблема оценки точности приближения в случае фотонных кристаллов является сложной задачей. Заметим, что для справедливости приближения геометрической оптики также требуется малость производных от сдвига фазы по поперечным координатам.

### КОНКРЕТНЫЙ ПРИМЕР

Для практической реализации описанного метода расчета рассмотрен фотонный кристалл, состоящий из сфер  $\text{SiO}_2$  диаметром  $D$  и имеющий структуру типа  $ABABAB$ . Направление пучка (ось  $z$ ) совпадает с осью гексагональной симметрии. Период кристалла по оси  $z$  равен  $h = D(8/3)^{1/2}$ . На рис. 1 показана функция  $s(x, y)$  в виде черно-бело-

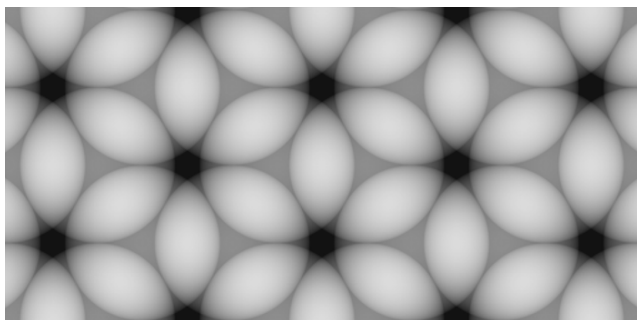


Рис. 1. Функция  $s(x, y)$  на расчетной области.

го линейного контраста в пределах расчетной области. Черный цвет соответствует  $s = 0$ , белый  $s = 1$ .

Для расчетов свертки двух функций использовалось правило, согласно которому фурье-образ свертки равен произведению фурье-образов ее функций. Для расчета фурье-образов использовалась процедура быстрого преобразования Фурье (FFT) на сетке точек  $2048 \times 1024$ . При этом сначала вычислялся фурье-образ комплексной волновой функции на расчетной сетке. Затем он умножался на фурье-образ пропагатора Кирхгофа, который имеет аналитический вид. Затем делалось обратное преобразование Фурье. Ответ получался в той же расчетной области, имеющей размер, равный  $2D$  по вертикали и  $4D$  по горизонтали. Период структуры по вертикали равен  $D$ , а по горизонтали  $1.732D$ .

Особенностью данной структуры является наличие трех пустых мест около каждой сферы, которые не заполняются в соседних слоях. В результате кристалл имеет пустотные каналы на всю толщину, т.е. на произвольное число слоев. Границы этих каналов имеют гексагональную симметрию с очень резким изменением электронной плотности. Поэтому данный случай является наиболее сложным для расчета и наиболее интересным с физической точки зрения.

Так как структура периодическая, а рассеяние (преломление) лучей происходит на очень малые углы, то при распространении на малое расстояние нет смысла рассматривать большую область, содержащую много периодов, поскольку структуру всегда можно периодически размножить. Более того, размножение необходимо делать на каждом итерационном шаге. Причина в том, что метод FFT вычисляет результат таким образом, как будто за пределами расчетной области волновая функция равна нулю, т.е. как будто перед кристаллом стоит щель.

Результат показывает дифракцию на щели, которой нет в периодическом кристалле. Метод FFT на малых расстояниях распространения хорошо описывает дифракцию на щели только

вблизи ее краев, и почти не искажает волновую функцию в центре расчетной области. Этим обстоятельством удалось воспользоваться. После каждой итерации (распространения на один период по оси  $z$ ) в распределении комплексной волновой функции выделялся центральный период поперечного распределения (элементарная ячейка), затем остальная часть расчетной области перепределялась из условия периодичности.

Такая процедура позволяла не накапливать искажения волновой функции за счет дифракции на щели. Интересно, что точно так же можно поступить при распространении волновой функции по пустому пространству за кристаллом в том случае, когда волновая функция периодически меняется с малым периодом. Если формально рассматривать бесконечные поперечные размеры кристалла, то периодичность волновой функции сохраняется на любых расстояниях. Заметим, что таким образом невозможно получить распределение интенсивности на очень больших расстояниях после кристалла, так как для этого необходимо очень много итераций.

С другой стороны, при распространении на малое расстояние нельзя увеличивать шаг сетки точек. Этот шаг должен быть в несколько раз (в идеале в десятки раз) меньше диаметра первой зоны Френеля, равного  $2(\lambda z)^{1/2}$ . Кроме того, для сфер малого диаметра трансмиссионная функция  $\exp[-ia(x, y)z]$ , а затем и волновая  $A(x, y)$  вблизи краев очень резко изменяются, и для правильного описания изменения тоже необходим мелкий шаг.

В данной работе интерес представляло только ближнее поле, распределение интенсивности сразу за кристаллом для различных значений толщины кристалла, которая задается числом периодов. На очень больших расстояниях для получения дифракционной картины от кристалла требуется использование другой схемы расчета. Этот вопрос будет обсуждаться в отдельной работе.

## РЕЗУЛЬТАТЫ РАСЧЕТА

Компьютерная программа была написана с учетом возможности ее использования при распространении как по фотонному кристаллу, так и по пустому пространству. Так как плоская волна не меняется при распространении, то начальное состояние волновой функции задавалось в виде трансмиссионной функции  $T(x, y) = \exp[-ia(x, y)z]$ , где  $z = h$ , т.е. для слоя, равного одному периоду кристалла. Затем в цикле проводилось заданное число итераций, каждая из них включала в себя две операции: распространение по пустому пространству на один период и умножение на  $T(x, y)$ .

Результат в виде комплексной волновой функции записывался в файл на каждой итерации. Эту функцию можно было использовать для продол-

жения расчета и построения графиков. При этом на последней итерации цикла умножение на  $T(x, y)$  не проводилось, а расстояние распространения можно было изменять на произвольное. В режиме продолжения расчета перед циклом волновая функция считывалась из файла и умножалась на  $T(x, y)$ . На каждой итерации программа показывала двумерные карты распределения интенсивности, а также графики распределения интенсивности по центральным сечениям (вертикали и горизонтали).

Наиболее информативными являются черно-белые карты двумерного распределения интенсивности излучения. Чтобы не терять информацию, карты строились с линейной шкалой градаций серого так, чтобы черный цвет всегда соответствовал минимальному значению, а белый — максимальному. Сами значения  $I_{\min}$  и  $I_{\max}$  монотонно изменялись в зависимости от числа итераций (числа периодов).

На рис. 2 показаны результаты расчета для  $\lambda = 1 \text{ \AA}$  и  $D = 500 \text{ нм}$  в виде карт, показывающих центральные фрагменты размером  $1024 \times 512$  точек для 5, 10, 20 и 40 итераций, их число показано на картинках. Первоначально  $I_{\min} = I_{\max} = 1$ . С ростом числа итераций интенсивность усиливается в одних местах и ослабляется в других. Видно, что усиление происходит по границам сфер, а в тех частях, где много материала, интенсивность ослабляется. Причиной ослабления является не поглощение, а рассеяние, отклонение лучей в область границы. Выйти из этой области лучам мешают соседние сферы.

При малом числе итераций видны четкие интерференционные полосы, характерные для интерференции лучей, испытавших преломление в объекте, и лучей, проходящих мимо объекта, но контраст очень слабый. С ростом числа итераций такие полосы размываются в результате многократного рассеяния, но возникают другие, с большим периодом.

На рис. 3 показаны графики зависимости значений интенсивностей  $I_{\min}$ ,  $I_{\text{mid}}$  и  $I_{\max}$  от числа итераций. Среднее значение изменяется очень слабо, и это полностью определяется поглощением. На кривых минимального и максимального значений заметен излом почти линейных зависимостей примерно на 25-й итерации. Максимальное значение растет быстрее, чем убывает минимальное. Причиной является то, что области с максимальной интенсивностью занимают меньшую площадь и находятся в области пустотных каналов.

Результат расчета показал, что стандартный метод фазового контраста, в котором не учитывается изменение интенсивности на всей толщине образца, применять к фотонному кристаллу не следует, потому что существенное изменение ин-

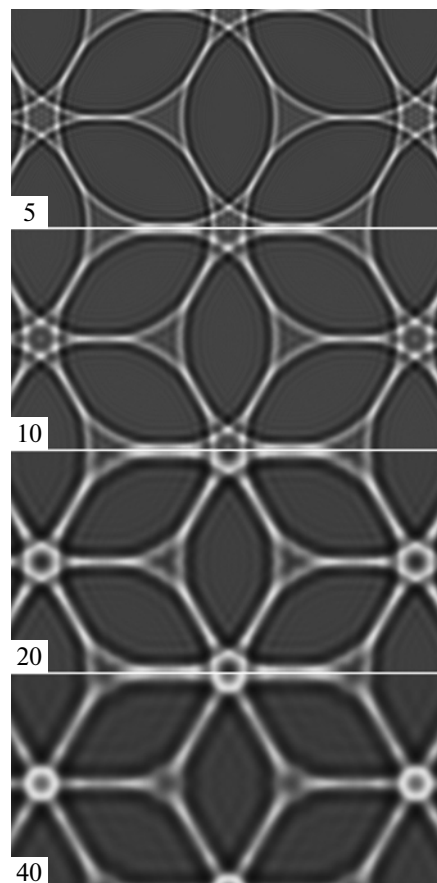


Рис. 2. Карты распределения интенсивности излучения для разных толщин кристалла. Толщина измеряется числом периодов, которое показано на панелях.

тенсивности происходит уже для фотонного кристалла толщиной в несколько периодов. Интересно, что происходит при еще больших толщинах кристалла. Такой расчет легко сделать, но в настоящее время совершенных фотонных кристаллов с числом слоев более 100 не существует. С другой

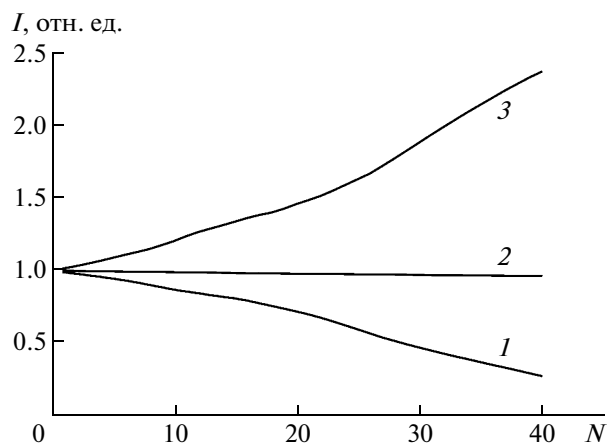


Рис. 3. Значения интенсивностей  $I_{\min}$  (1),  $I_{\text{mid}}$  (2) и  $I_{\max}$  (3) в зависимости от числа итераций  $N$ .

стороны, необходим более тщательный анализ накопления ошибки расчета. Этот вопрос выходит за рамки поставленной задачи и будет рассмотрен в следующей работе.

Работа выполнена при частичной финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант № 13-02-00469), Министерства образования и науки Российской Федерации (соглашение № 8364), и проекта ВМБФ № 05K10CHG в рамках германско-российского сотрудничества.

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Климонтовский С.О., Абрамова В.В., Сеницкий А.С., Третьяков Ю.Д.* // *Успехи химии*. 2011. Т. 80. С. 1244.
2. *Самусев А.К., Синев И.С., Самусев К.Б. и др.* // *ФТТ*. 2012. Т. 54. С. 1946.
3. *Gulden J., Yefanov O.M., Mancuso A.P. et al.* // *Phys. Rev. B*. 2010. V. 81. P. 224105.
4. *Абрамова В.В., Сеницкий Н.А., Григорьева Н.А. и др.* // *ЖЭТФ*. 2009. Т. 136. С. 37.
5. *Job H.J., Thijssen J.H.J., Petukhov A.V. et al.* // *Adv. Mater.* 2006. V. 18. P. 1662.
6. *Bosak A., Snigireva I., Napolskii K.S., Snigirev A.* // *Adv. Mater.* 2010. V. 22. P. 3256.
7. *Snigireva I., Bosak A., Snigirev A.* // *AIP Conf. Proc.* 2011. V. 1365. P. 289.
8. *Snigireva I., Vaughan G.B. M., Snigirev A.* // *AIP Conf. Proc.* 2011. V. 1365. P. 188.
9. *Snigirev A., Kohn V., Snigireva I., Lengeler B.* // *Nature*. 1996. V. 384. P. 49.
10. *Lengeler B., Schroer C.G., Richwin M. et al.* // *Appl. Phys. Lett.* 1999. V. 74. P. 3926.
11. *Каган Ю., Кононец Ю.В.* // *ЖЭТФ*. 1970. Т. 58. С. 226.
12. *Snigirev A., Snigireva I., Kohn V. et al.* // *Rev. Sci. Instrum.* 1995. V. 66. P. 5486.
13. *Кон В. Г.* // *ЖЭТФ*. 2003. Т. 124. С. 224.