arXiv:2302.01812v1 [cond-mat.soft] 3 Feb 2023

粒子的取向无序和位置无序对光子带隙的影响

Zichen Qin, [1] Tao Liu, [1] 和 Duanduan Wan[1], *

[1] *School of Physics and Technology, Wuhan University, Wuhan 430072, China*

近期一项研究 [PRL, 126, 208002 (2021)] 探讨了热噪声导致的无序性如何影响自组装光子晶体中的光子带隙（PBG）。研究对象是由自组装棒阵列构成的二维光子晶体，其中棒具有正方形横截面。研究发现，该系统的光子带隙可在很大的堆积密度范围内存在。与直觉相反，在中等堆积密度下，自组装系统的横磁（TM）带隙可能大于其对应理想系统的带隙；在理想系统中，棒排列于完美的正方晶格中，且取向完全相同。由于形状各向异性，自组装系统中的无序性包含两种类型，即粒子的位置无序和取向无序。在本研究中，我们进一步考察光子带隙仅受位置无序或取向无序影响的情况。我们发现，与完美情况相比，仅引入取向无序会使横电（TE）带隙减小，而对横磁（TM）带隙没有明显影响。相反，仅引入位置无序会显著减小横电带隙，而横磁带隙则可能增大或减小，具体取决于参数范围。我们还讨论了同时存在两种无序的热（即自组装）系统。本研究有助于更好地理解取向无序和位置无序对光子带隙的作用，并可能有益于通过自组装方法实现光子晶体的光子带隙工程。

I. 引言

胶体的自组装特性，即胶体颗粒自行排列成有序结构，具有内在的物理意义，并在功能材料工程中具有潜在应用价值 [1, 2]。合成技术的最新进展使各种各向异性粒子得以制备 [3–11], , 由此形成了种类繁多的自组装超晶格。对硬胶体的模拟（例如，参考文献 [12–23]）预测，各种各向异性形状还能形成更多复杂结构。当粒子间距与光波长相匹配时，研究人员已探索利用胶体自组装制备具有光子带隙（光子带隙）的光子晶体（例如，参考文献 [6, 7, 24–26]）。这种自下而上的方法具有诸多优势，例如成本低、能耗低、可通过调节粒子尺寸改变光子带隙频率，且能够大面积制备晶体[27–29]。通过自组装方法制备的光子晶体已在实验中实现，也已有相关理论方案提出（例如，参考文献 [30–36]）。

关于自组装方法，一个不可避免的问题是：自组装胶体结构中由热噪声引起的“无序性”会如何影响其光子带隙。近期一项研究探讨了二维自组装结构，即具有圆形或方形截面、长度无限的平行介电棒，并发现一般而言，与棒排列成相应完美晶格的系统相比，自组装（即热）结构中的无序性会降低光子带隙[37]。然而，对于具有正方形横截面的棒，在中等堆积密度下，有趣的是，其横磁（TM）带隙可能大于排列成完美正方晶格的棒所形成的系统的带隙。由于这种违反直觉的现象只出现在具有正方形横截面的棒中，而不出现在具有圆形截面的棒中，我们认为这可能与正方形横截面的形状各向异性有关。形状各向异性会使自组装系统中的粒子产生两种无序性（即取向无序和位置无序），因此，单独的取向无序或位置无序会如何影响光子带隙，仍有待探明。

为了解答这一问题，我们在本研究中进一步考察了具有正方形横截面的棒状粒子系统。具体而言，我们考虑四种情形：完美情形，即棒状粒子排列成完美的正方晶格且没有旋转；随机取向情形，即棒状粒子同样排列在完美的正方晶格中，但取向随机；随机位置情形，即棒状粒子的位置随机，但取向相同；以及热情形，即棒状粒子的取向和位置均随机（示例见图1）。我们发现，与完美情形相比，仅引入取向无序会减小横电（TE）带隙，但对横磁（TM）带隙没有明显影响。相反，仅引入位置无序会显著减小横电带隙，而横磁带隙则可能增宽或变窄，具体取决于参数范围。我们还讨论了取向和位置两种无序性并存的热（即自组装）系统。本研究有助于更深入地理解取向无序和位置无序对光子带隙的影响，并可能进一步促进通过自组装方法实现的光子晶体光子带隙工程。

*电子邮箱：ddwan@whu.edu.cn

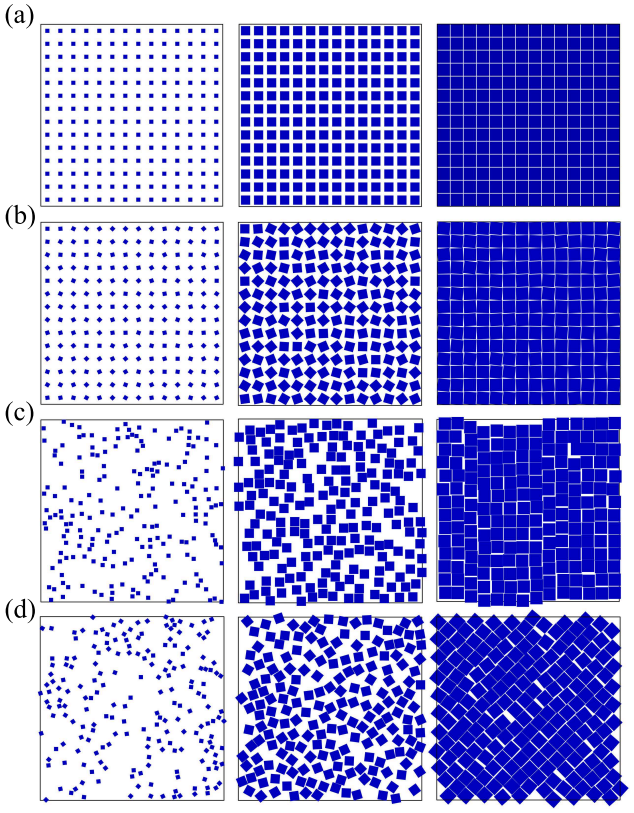

图 1 $N = 196$ 。四种情形下方形截面棒的平衡构型快照。蓝色正方形表示介电棒的截面，白色表示空气。(a) 完美情况。(b) 随机取向情况。(c) 随机位置情形。(d) 热情形。堆积密度为 $\phi = 0.1$、0.5、0.9（从左至右）。

II. 方法

我们采用具有周期性边界条件的蒙特卡罗（MC）模拟，生成具有正方形横截面的 $N = 196$ 棒状粒子的二维结构；模拟使用HOOMD-blue [38, 39]中的硬粒子蒙特卡罗模块。对于随机取向情形，在给定堆积密度下，我们将棒状粒子的中心置于完美的正方晶格中，然后通过蒙特卡罗步随机旋转棒状粒子。对于随机位置情形和热情形，我们在较低堆积密度下初始化系统，再通过蒙特卡罗步缓慢压缩至目标堆积密度，随后使系统达到平衡。两种情形的区别在于，随机位置情形只需进行平移蒙特卡罗移动。更多模拟细节见参考文献 [13, 37] 。我们使用开源代码MIT PHOTONICBANDS [40] 中实现的超胞法，计算平衡态构型的光子能带结构。我们还使用有限元软件包 COMSOL Multiphysics 对少数样本的能带结构进行计算，以作交叉验证。实际计算中，为了考虑.....的存在

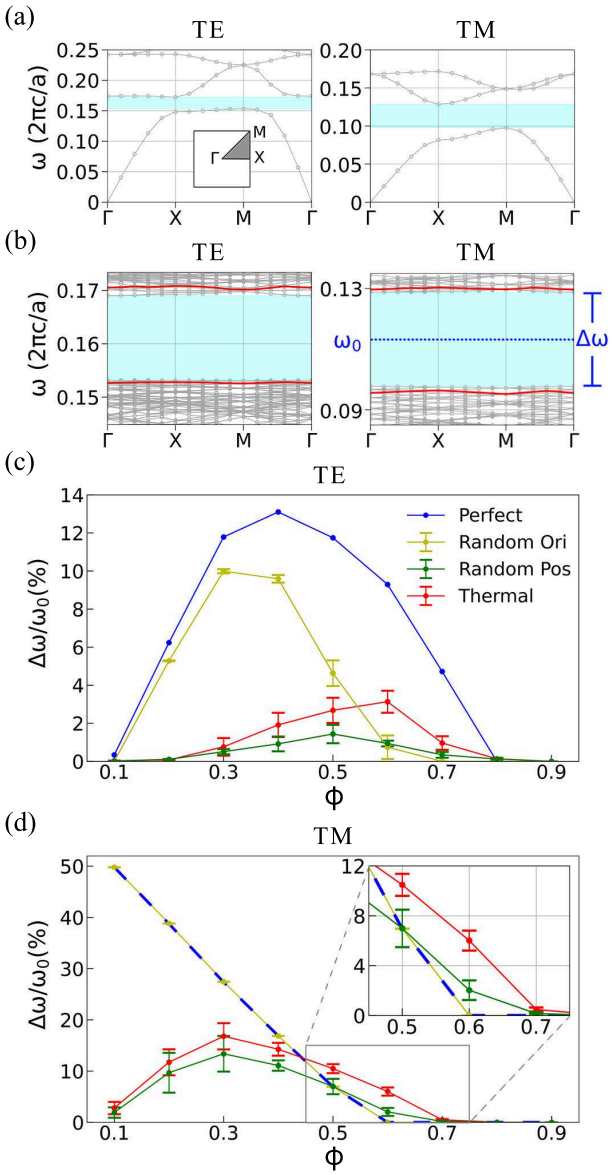

图 2。空气中方形截面平行介电棒阵列的光子能带结构和带隙，棒的边长为 a （a 也是长度单位）（$\epsilon = 1$）。(a) 完美情况下 TE 和 TM 模式能带结构的一个示例，其中 $\epsilon = 20$ 和 $\phi = 0.3$。插图显示周期结构的第一布里渊区，并标出了对称点。浅蓝色区域表示观察到的带隙。(b) 随机取向情况下 N =196 根棒的快照对应的结果，参数与 (a) 中相同。红线表示第（$N-5$）和第（$N+6$）条能带。所示带隙（浅蓝色区域）是这两条能带之间所有带隙中的最大带隙。带隙的中心频率记为 ω_0，带隙宽度为 $\Delta\omega$ （蓝色标注）。(c-d) 带隙大小 $\Delta\omega/\omega_0$ 随 ϕ 的变化，分别对应 TE 模式 (c) 和 TM 模式 (d)，其中 $\epsilon = 20$。(d) 中的插图为放大图。除完美情况外，带隙大小是对五个独立模拟快照取平均得到的。误差棒表示标准差。

可能出现缺陷模式，因此我们报告的不是第 N 条与第 $(N+1)$ 条能带之间的带隙，而是第 $(N-5)$ 条与第 $(N+6)$ 条能带之间所有带隙中尺寸最大的带隙$\Delta\omega$，其中 N 为粒子数。

III. 结果与讨论

图1显示了上述四种情形中，在若干选定堆积密度下，N =196 根方形截面棒的平衡构型。在完美情况下，棒不存在位置无序或取向无序（图1(a)）。在随机取向/位置情形下，棒仅存在取向无序/位置无序（图1(b)和(c)）。在热情形下，棒存在两种无序性（图1(d)）。

为研究位置无序和取向无序对光子带隙的影响，我们首先绘制四种情形下相对带隙大小随堆积密度的变化关系（相对带隙大小定义为$\triangle\omega/\omega_0$，其中 $\triangle\omega$ 为光子带隙的宽度，ω_0 为中心频率），介电常数为 $\epsilon = 20$ （见图2）。为与先前的研究 [37]保持一致，我们选择 $\epsilon = 20$ 。可以看到，这四条曲线基本分为两组：上方两条曲线分别代表完美情况和随机取向情况，下方两条曲线分别代表随机位置情形和热情形。对于 TE偏振，完美情况始终具有最大的光子带隙。以完美情况为基础，引入取向无序后得到随机取向情况，其对应曲线位于完美情况曲线的正下方。再看下方两条曲线，可以发现随机位置情形的光子带隙较小；再次引入取向无序，得到热情形后，光子带隙增大，其对应曲线位于随机位置情形曲线的正上方。值得注意的是，当棒排列在完美晶格中时，引入取向无序可能导致光子带隙减小。然而，对于具有位置无序的系统，引入取向无序总能使光子带隙增大。

对于 TM偏振，情况与 TE偏振类似，另一个有趣的现象是，在所有堆积密度下，完美情况和随机取向情况的光子带隙几乎相同，如图 2(d) 中两条重叠的线所示。此外，尽管在大多数堆积密度下，完美情况的带隙大小最大，但在接近$\phi = 0.6$的堆积密度下，其带隙大小可能小于热情形，甚至小于随机位置情形，这与先前的发现一致 [37]。

为了深入了解为何 TM偏振下完美情况和随机位置情形的带隙大小几乎相同，而 TE偏振下却并非如此，我们绘制了光子带隙附近模式的电场强度，见这些

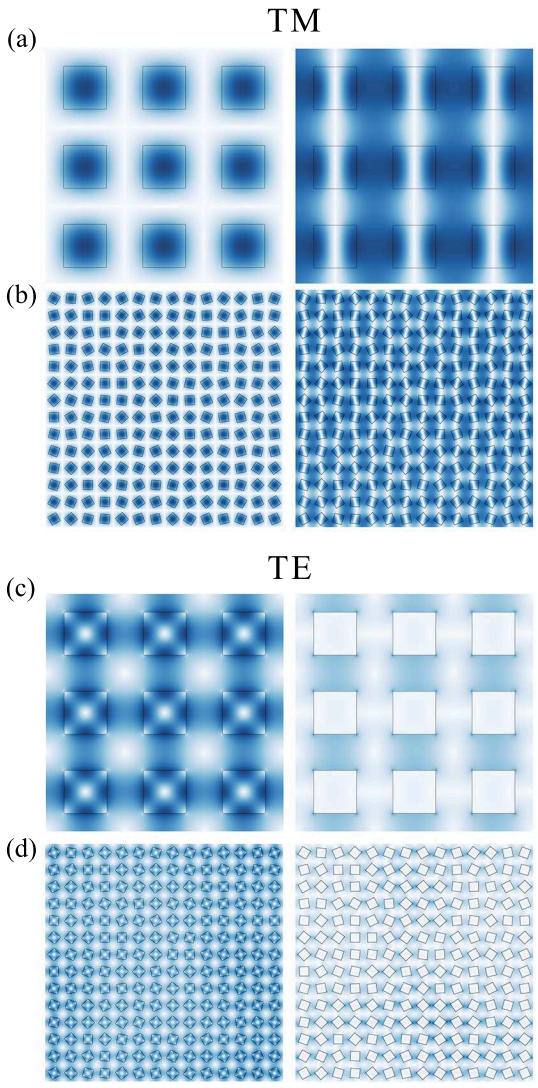

图 3. TM偏振（a 和 b）及 TE偏振（c 和 d）的电场强度，其中 $\epsilon = 20$ 和 $\phi = 0.3$。(a) 完美情况下（图 1(a)，右）第一能带的 M点（左）和第二能带的 X点（右）。为便于观察，图中显示了 3×3 个周期。(b) 随机取向情况下（图 1(b)，右），带隙前（左）和带隙后（右）的模式示例，其中 $N = 196$ 。(c-d) 与 (a) 和 (b) 相同，但对应 TE偏振。

图 3 中的两种情况。对于 TM偏振，在完美情况中、光子带隙之前，我们观察到电场更集中于粒子方形截面内部的一个圆形区域，并且随着远离中心而逐渐减弱（图 3(a)，左）。在随机取向情况下，带隙之前各模式的粒子周围电场分布与此类似；由于电场在杆边界处连续，粒子旋转对整体场分布影响很小（图 3(b)，左）。对于光子带隙之后的模式，这两种情况下的场分布也表现出相似的特征，即场分布

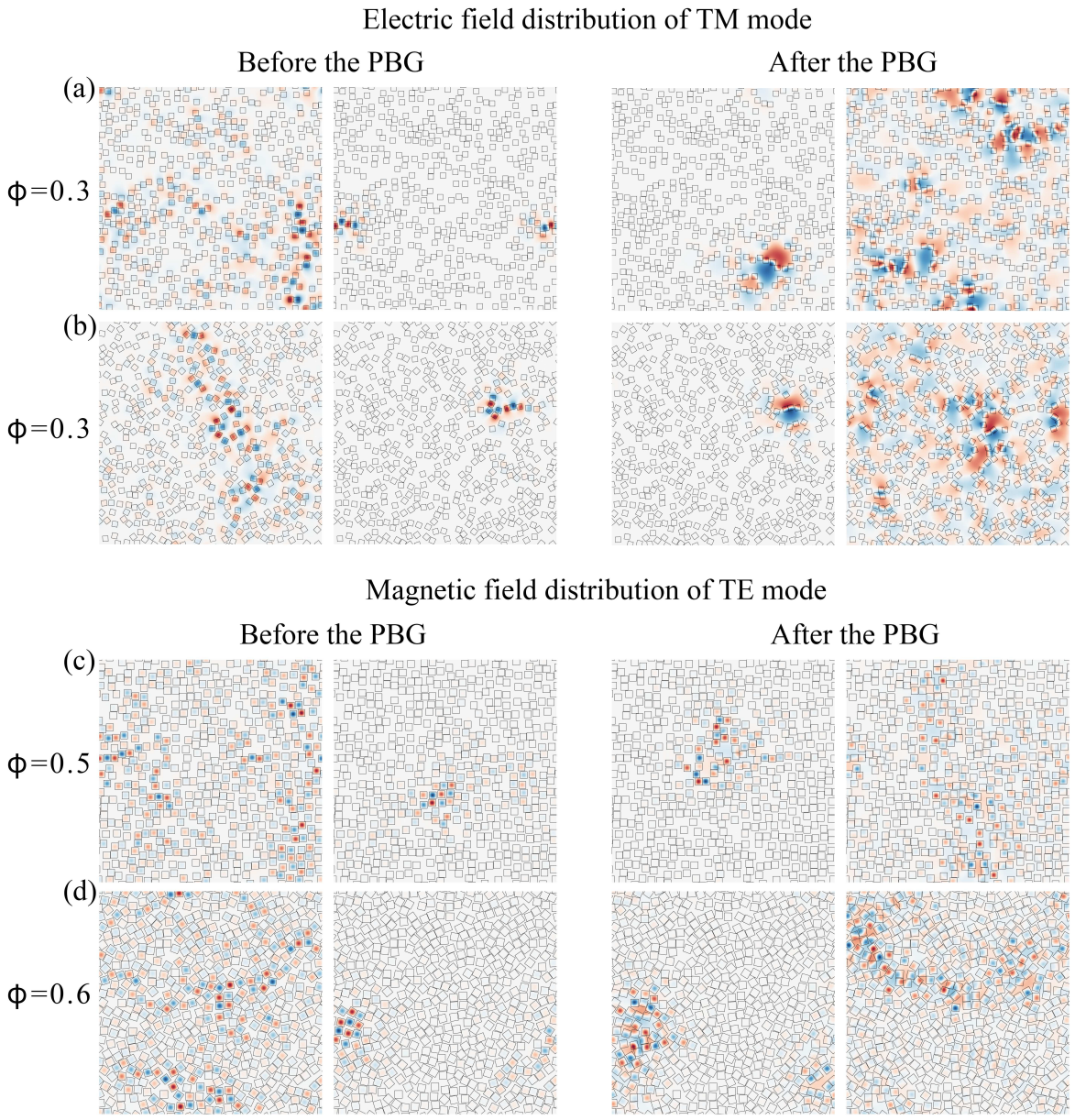

图 4. 含有 $N = 500$ 根棒的系统中随机位置情形和热情形的电磁场分布。从左至右依次为光子带隙前的扩展模、光子带隙前的局域模、光子带隙后的局域模以及光子带隙后的扩展模。(a) $\phi = 0.3$ 时的随机位置情形。(b) $\phi = 0.3$ 时的热情形。(c) $\phi = 0.5$ 时的随机位置情形。(d) $\phi = 0.6$ 时的热情形。

在每个粒子上都呈偶极状，整体分布则呈现强弱相间的条纹区域（图 3(a) 和 (b)，右）。相比之下，对于 TE偏振，电场在垂直于杆边界的方向上并不连续，因此粒子的取向对整体场分布有更显著的影响。例如，当两个粒子呈顶点对顶点排列时，它们之间的电场会增强（图 3(d)，右）。

对于随机位置和热情形（图 2 (c) 和 (d) 中下面两行），为确认

带隙的存在，我们分别在图 4(a) 和 (b) 中展示了光子带隙附近一些 TM 模式的电场分布，并在图 4(c) 和 (d) 中展示了光子带隙附近一些 TE 模式的磁场分布。光子带隙附近局域模和扩展模的存在有助于验证光子带隙。其他二维系统中也观察到了光子带隙附近的局域模和扩展模（例如，参考文献 [41, 42]）。

为了更好地理解随机取向和随机位置情形，我们考察了更广泛的 ϵ。图 5 绘出了相对带隙大小随

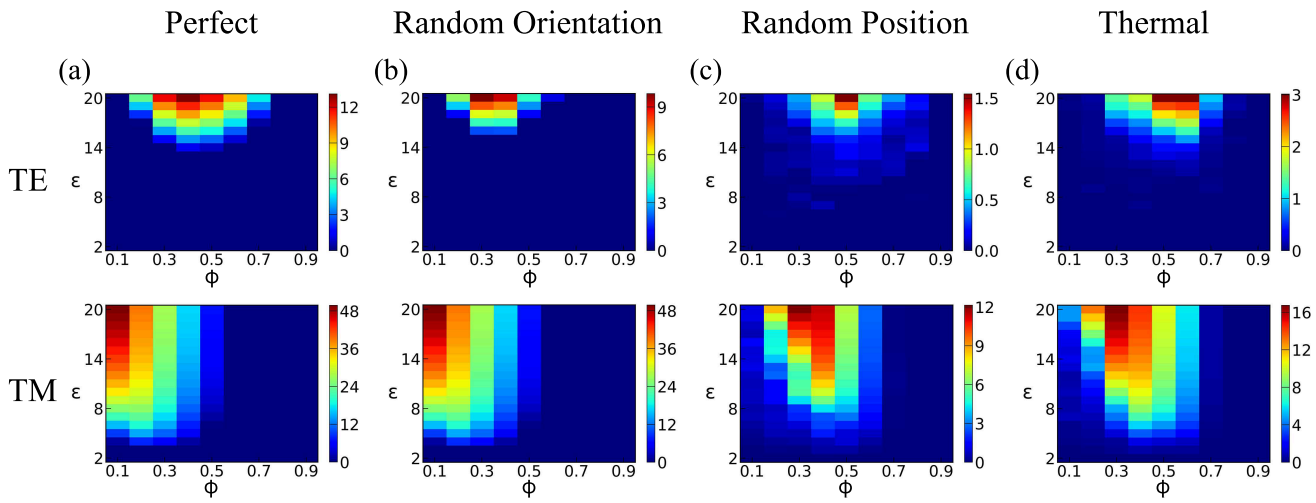

图 5. TE 和 TM 模式的带隙大小（ $\Delta\omega/\omega_0$的百分比）随 ϕ 和 ϵ 的变化。(a) 完美情况。(b) 随机取向情况。(c) 随机位置情形。(d) 热情形。

ϕ 和 ϵ 在四种情形下的变化关系，其中 $\phi \in [0.1, 0.9]$ 与图 2 中相同，且 $\epsilon \in [2, 20]$。从图中可以看出，在相同的 ϕ 值下，带隙大小随 ϵ 的增加而增大，且 $\epsilon = 20$ 对应的带隙大小最大。对带隙大小进行详细比较后发现，结果与 $\epsilon = 20$的情况相似。对于 TE偏振，引入位置无序和取向无序总会导致光子带隙减小；同时引入这两种无序时，其带隙大小总是大于位置无序情形下的带隙大小，并且在某些堆积密度下可能超过取向无序情形下的带隙大小，但仍小于完美情况下的带隙大小。对于 TM偏振，在所有研究的参数值下，随机取向情形与完美情况下的带隙大小几乎相同。在大多数堆积密度下，随机位置情形的光子带隙小于完美情况下的光子带隙，但在某些中等堆积密度下可能更大。对于热情形，与我们在 TE偏振中发现的情况一样，其光子带隙始终大于随机位置情形下的光子带隙。

IV. 结论

总之，我们研究了具有正方形横截面的介电棒构成的二维无序光子晶体中的光子带隙，以及两种典型的无序形式：粒子位置无序和取向无序。我们发现，与取向无序相比，带隙大小对位置无序敏感得多。基于此，我们可以将取向无序视为一种微扰。然而，在不同条件下，这种微扰可能产生不同的影响，甚至可能截然相反。对于完美情况下的 TE偏振，这种微扰会导致光子带隙缩小；而对于随机位置情形下的 TE偏振和 TM偏振，它总会使带隙增大。对于完美情况下的 TM偏振，这种微扰对带隙大小则没有明显影响。由于具有各向异性粒子形状的系统都存在位置无序和取向无序，未来可以研究其他粒子形状。我们希望本研究能帮助人们理解光子带隙对位置无序和取向无序的依赖关系，并进一步助力通过自组装方法实现光子晶体的光子带隙工程。

致谢

本研究得到了中国国家自然科学基金（项目编号：12274330、11904265）和武汉曙光知识创新计划（项目编号：2022010801020125）的资助。

[1] V. N. Manoharan，《胶体物质：堆积、几何与熵》，《科学》349，1253751（2015）。[2] M. A. Boles、M. Engel 和 D. V. Talapin，《胶体纳米晶体的自组装：从复杂结构到功能材料》，Chem. Rev. 116，11220（2016）。[3] J. Henzie、M. Gr¨unwald、A. Widmer-Cooper、P. L. Geissler 和 P. Yang，均一多面体银纳米晶体的自组装：最密堆积与奇异超晶格，《自然·材料》11，131（2012）。

[4] K. L. Young、M. L. Personick、M. Engel、P. F. Dama-s ceno、S. N. Barnaby、R. Bleher、T. Li、S. C. Glotzer、B. Lee 和 C. A. Mirkin，采用定向熵力方法将各向异性纳米粒子组装成超晶格，《德国应用化学》52，13980（2013）。[5] J. Gong、R. S. Newman、M. Engel、M. Zhao、F. Bian、S. C. Glotzer 和 Z. Tang，金纳米晶体形状依赖的有序化及其大尺度超晶格，《自然·通讯》8，14038（2017）。[6] J. D. Forster、J.-G. Park、M. Mittal、H. Noh、C. F. Schreck、C. S. O'Hern、H. Cao、E. M. Furst 和 E. R. Dufresne，光学尺度哑铃颗粒组装成致密光子晶体，《ACS Nano》5，6695（2011）。[7] I. D. Hosein、S. H. Lee 和 C. M. Liddell，基于二聚体的三维光子晶体，《Adv. Funct. Mater.》20，3085（2010）。[8] J.-M. Meijer、A. Pal、S. Ouhajji、H. N. Lekkerkerker、A. P. Philipse 和 A. V. Petukhov，观察到胶体超球体三维晶体中的固-固转变，《自然·通讯》8，14352（2017）。[9] K. Miszta、J. de Graaf、G. Bertoni、D. Dorfs、R. Bres-cia、S. Marras、L. Ceseracciu、R. Cingolani、R. van Roij、M. Dijkstra 和 L. Manna，悬浮的支化胶体纳米晶体层级自组装成超晶格结构，《Nat. Matter.》10，872（2011）。[10] D. J. Kraft、R. Ni、F. Smallenburg、M. Hermes、K. Yoon、D. A. Weitz、A. van Blaaderen、J. Groenewold、M. Dijk-stra 和 W. K. Kegel，表面粗糙度定向的斑块颗粒自组装成胶体胶束，《Proc. Natl. Acad. Sci. USA》109，10787（2012）。[11] M. He、J. P. Gales，´Etienne Ducrot、Z. Gong、G.-R. Yi、S. Sacanna 和 D. J. Pine，胶体金刚石，《Nature》585，524（2020）。[12] O. Gang 和 Y. Zhang，以形状分相塑造相态，《ACS Nano》5，8459（2011）。[13] A. Haji-Akbari、M. Engel、A. S. Keys、X. Zheng、R. G. Petschek、P. Palffy-Muhoray 和 S. C. Glotzer，密堆积四面体的无序、准晶与晶相，《Nature》462，773（2009）。[14] S. Torquato 和 Y. Jiao，柏拉图立体与阿基米德立体的致密堆积，《Nature》460，876（2009）。[15] U. Agarwal 和 F. A. Escobedo，多面体颗粒的介相行为，《自然·材料》10，230（2011）。[16] P. F. Damasceno、M. Engel 和 S. C. Glotzer，多面体预测性自组装成复杂结构，《科学》337，453（2012）。[17] R. Ni、A. P. Gantapara、J. de Graaf、R. van Roij 和 M. Dijkstra，胶体硬超球体的相图：从立方体经球体到八面体，《Soft Matter》8，8826（2012）。[18] M. Marechal、R. J. Kortschot、A. F. Demir¨ors、A. I mhof 和 M. Dijkstra，碗形颗粒新型胶体模型体系的相行为与结构，《Nano Lett.》10，1907（2010）。[19] D. Chen、Y. Jiao 和 S. Torquato，截角四面体的平衡相行为与最大随机拥挤态，《J. Phys. Chem. B》118，7981（2014）。[20] D. Wan 和 S. C. Glotzer，形中之形：粒子如何在空腔内排列，《Soft Matter》14，3012（2018）。[21] D. Wan，受限空间中胶体粒子的构型熵，《Phys. Rev. E》106，034609（2022）。[22]D. Klotsa、E. R. Chen、M. Engel 和 S. C. Glotzer，形状空间中胶体的中间晶体结构，Soft Matter 14, 8692 (2018)。[23] D. Wan、C. X. Du、G. van Anders 和 S. C. Glotzer，凸形与凹形硬粒子系统中的面心立方-体心立方相变，J. Phys. Chem. B 123, 9038 (2019)。[24] Y.-H. Ye、F. LeBlanc、A. Hach´e 和 V.-V. Truong，自组装的高晶体质量三维胶体光子晶体结构，Appl. Phys. Lett. 78, 52 (2001)。[25] Y. A. Vlasov、X.-Z. Bo、J. C. Sturm 和 D. J. Norris，硅光子带隙晶体的芯片上自然组装，Nature 414, 289 (2001)。[26] E. Sowade、T. Blaudeck 和 R. R. Baumann，喷墨打印液滴内球形胶体光子晶体的自组装，Cryst. Growth Des. 16, 1017 (2016)。[27] J. H. Moon 和 S. Yang，三维光子晶体的化学方面，Chem. Rev. 110, 547 (2010)。[28] S.-H. Kim、S. Y. Lee、S.-M. Yang 和 G.-R. Yi，用于光子学的自组装胶体结构，NPG Asia Mater. 3, 25 (2011)。[29] Y. Zhao、L. Shang、Y. Cheng 和 Z. Gu，球形胶体光子晶体，Acc. Chem. Res. 47, 3632 (2014)。[30] T. Ding、Y. Long、K. Zhong、K. Song、G. Yang 和 C.-H. Tung，改变胶体光子晶体的对称性：实现完整光子带隙的一种途径，J. Mater. Chem. C 2, 4100 (2014)。[31] A.-P. Hynninen、J. H. J. Thijssen、E. C. M. Vermolen、M. Dijkstra 和 A. van Blaaderen，在可见光区域具有带隙的光子晶体自组装途径，Nat. Matter. 6, 202 (2007)。[32] L. A. Woldering、L. Abelmann 和 M. C. Elwenspoek，基于硅截角四面体构建的金刚石晶格晶体中预测的光子带隙，J. Appl. Phys. 110, 043107 (2011)。[33] H. Pattabhiraman、G. Avvisati 和 M. Dijkstra，采用简单相互作用势的胶体自组装形成的新型烧绿石型晶体及其光子带隙，Phys. Rev. Lett. 119, 157401 (2017)。[34] Y. Wang、I. C. Jenkins、J. T. McGinley、T. Sinno 和 J. C. Crocker，光学尺度下具有金刚石对称性的胶体晶体，Nat. Commun. 8, 14173 (2017)。[35] S. Changizrezaei 和 C. Denniston，胆甾相液晶中金刚石胶体晶体的光子能带结构，Phys. Rev. E 96, 032702 (2017)。[36] Q.-L. Lei、R. Ni 和 Y.-Q. Ma，由胶体螺旋外消旋混合物自组装形成的手性光子晶体，ACS Nano 12, 6860 (2018)。[37] D. Wan 和 S. C. Glotzer，自组装胶体晶体中光子带隙大小对无序性的意外依赖，Phys. Rev. Lett. 126, 208002 (2021)。[38] J. A. Anderson、J. Glaser 和 S. C. Glotzer，Hoomd-blue：用于高性能分子动力学和硬粒子蒙特卡罗模拟的 Python 软件包，Comput. Mater. Sci. 173, 109363 (2020), http://codeblue.umich.edu/hoomd-blue。[39] J. Glaser、T. D. Nguyen、J. A. Anderson、P. Lui、F. Spiga、J. A. Millan、D. C. Morse 和 S. C. Glotzer，图形处理器上通用分子动力学模拟的强扩展性，Comput. Phys. Commun. 192, 97 (2015)。

[40]S. Johnson 和 J. Joannopoulos，平面波基下麦克斯韦方程组的分块迭代频域方法，Opt. Express 8, 173 (2001)。

[41] M. Florescu、S. Torquato 和 P. J. Steinhardt，《具有大型完整光子带隙的设计型无序材料》，Proc. Natl. Acad. Sci. USA 106，20658（2009）。[42] J. Ricouvier、P. Tabeling 和 P. Yazhgur，《作为自组装非晶光子带隙材料的泡沫》，Proc. Natl. Acad. Sci. USA 116，9202（2019）。