

带壳颗粒复合介质光学双稳的温度效应

吴亚敏[†] 陈国庆

(江南大学理学院, 无锡 214122)

(2008 年 6 月 2 日收到, 2008 年 8 月 7 日收到修改稿)

研究非稀释极限下带壳的球形颗粒复合介质体系光学双稳的温度效应. 其中带壳颗粒是由具有线性响应的核和非线性响应的壳层组成. 由于复合体系中的空间局域场是不均匀的, 所以应用自洽平均场理论, 解析推导核内电场平方的空间平均值与外电场的关系表达式, 并对不同温度及不同结构参数下的光学双稳进行了数值计算. 结果表明, 双稳与温度 T 、结构参数 k 和体积分数 f 有关. 在 k 和 f 一定时, 随温度的升高, 双稳效应因上阈值减小、下阈值增大而逐渐减弱, 直至双稳消失; 在 T 和 f 一定时, 随结构参数的增大, 上、下阈值都增大, 而上阈值的增速较大从而导致双稳区域宽度加大.

关键词: 带壳颗粒, 复合介质, 光学双稳, 温度效应

PACC: 7820W, 4265P

1. 引言

由于复合介质的光学双稳行为在光逻辑、光信息存储、光开关装置等方面有着广阔的应用前景, 引起了人们的极大关注, 研究工作广泛展开^[1-4]. 理论上通常采用求解局域场和外场的关系来研究光学双稳. 例如, Bergman 等^[3]应用变分法研究稀释极限下线性球形颗粒置入非线性基质中组成的复合介质的光学双稳现象. Gao 等^[5,6]应用谱表示和自洽平均场理论研究二组分复合介质的光学双稳现象, 发现非线性球形颗粒复合介质还存在三稳态和双重双稳态现象. 理论研究还发现, 可以通过调整复合介质中颗粒的形状来获得较低的双稳外场阈值^[7]. 环境温度对双稳也有很大的影响, 陆兴中等^[8]应用谱表示方法研究了二组分复合介质光学双稳的温度效应. 众所周知, 金属颗粒与基质之间存在着界面效应, 由于颗粒表面粗糙存在空气或颗粒表面氧化等原因, 颗粒表面常形成一层性质不同于颗粒和基质的膜, 即颗粒带壳. 而且, 随着技术手段的进步, 为了达到特定目的, 研究人员常采用胶体化学法、液相还原法等方法, 将一些光电功能材料吸附在金属颗粒表面, 形成包覆层^[9], 再将其掺入基质, 制成具有特异性能的二组分复合介质. 另外, 带壳颗粒的外壳可以保护内

核不发生物理、化学变化, 提高稳定性. 通过调整内核直径与壳层厚度的比值, 还可实现对带壳颗粒复合介质光电性质的调节. 所以, 研究带壳颗粒复合介质的光电性质, 更具实际意义和发展前景. 据我们所知, 理论工作者已在这方面做了许多工作, 但大部分工作都集中在研究核是非线性、壳是线性的情况^[7,10-16]. 由于这种情况下, 在均匀的外电场中, 核内的电场仍是均匀的, 其局域场与外电场的关系是容易求得的, 所以其光学双稳现象得以研究^[12-14].

本文综合考虑温度及壳层对复合体系光学双稳的影响, 重点研究了核是线性的而壳是非线性^[17]的带壳颗粒复合介质的光学双稳现象. 在这种情况下, 空间局域场不再是均匀的, 要精确求解局域场与外电场的关系实际是不可能的, 在此, 我们采用平均场^[18,19]方法, 把不均匀的局域场 $|E|_s^2$ 近似为平均场 $|E|^2$, 然后通过自洽的方法求解 $|E|^2$ 来研究双稳, 发现温度对带壳颗粒光学双稳的影响是明显的, 壳的厚度也起到了调节双稳阈值的显著作用. 研究结果可为光学双稳器件的研发和应用提供理论依据.

2. 理论模型

首先构建一个三组分复合介质模型: 在线性介

[†] 通信联系人. E-mail: wxwym2098@163.com

电常数为 ϵ_m 的介质中无规分布着一定数量的带壳球形颗粒. 带壳颗粒所占的体积分数为 f , 基质的体积分数为 $1-f$. 颗粒核的半径为 r_0 , 线性介电常数为 ϵ_c , 同心壳层的外半径为 R ($R > r_0$) 线性介电常数为 ϵ_s . 在准静态近似条件下, 认为颗粒尺寸远小于入射波长, 忽略法拉第定律中的感应项^[11]. 根据拉普拉斯方程, 求得颗粒核、壳和基质中的电势表达式^[20]

$$\begin{aligned}\phi_c &= -E_0 \text{Arcos}\theta, \quad r < r_0, \\ \phi_s &= -E_0 \left(Br - \frac{Cr_0^3}{r^2} \right) \cos\theta, \quad r_0 < r < R, \\ \phi_m &= -E_0 \left(r - \frac{GR^3}{r^2} \right) \cos\theta, \quad r > R, \quad (1)\end{aligned}$$

式中

$$\begin{aligned}A &= \frac{9\epsilon_m\epsilon_s}{Q}, \\ B &= \frac{3\epsilon_m(\epsilon_c + 2\epsilon_s)}{Q}, \\ C &= \frac{3\epsilon_m(\epsilon_c - \epsilon_s)}{Q}, \\ G &= \frac{P}{Q},\end{aligned}$$

及

$$\begin{aligned}P &= (\epsilon_c + 2\epsilon_s) \chi (\epsilon_s - \epsilon_m) \\ &\quad + (\epsilon_c - \epsilon_s) \chi (2\epsilon_s + \epsilon_m) k, \\ Q &= (\epsilon_c + 2\epsilon_s) \chi (\epsilon_s + 2\epsilon_m) \\ &\quad - \chi (\epsilon_c - \epsilon_s) \chi (\epsilon_m - \epsilon_s) k. \quad (2)\end{aligned}$$

式中 $k = (r_0/R)$ ($0 \leq k \leq 1$) 为结构参数, 其大小反映壳层的厚度.

由电场强度和电势的关系, 可以求得颗粒核、壳和基质中的电场分布

$$\begin{aligned}E_c &= E_L A \hat{e}_x, \\ E_s &= E_L B \hat{e}_x + E_L \left(-\frac{Cr_0^3}{r^3} \hat{e}_x + \frac{3Cr_0^3 x}{r^4} \hat{e}_r \right), \\ E_m &= E_L \hat{e}_x + E_L \left(-\frac{GR^3}{r^3} \hat{e}_x + \frac{3GR^3 x}{r^4} \hat{e}_r \right). \quad (3)\end{aligned}$$

由于在非稀释极限情况, 颗粒之间的偶极相互作用不能忽略, 所以, 在上式中引入洛伦兹(Lorentz)局域场 E_L 替代外电场 E_0 (方向沿 x 轴方向).

考虑到壳层具有三阶非线性, 于是壳层内的电位移矢量(D)和电场强度(E)关系为

$$D_s = \tilde{\epsilon}_s E = (\epsilon_s + \chi_s |E|^2) E, \quad (4)$$

其中 χ_s 为壳的三阶非线性极化率, 以前的大多数工

作^[3,10]都假定其是弱非线性的, 即(4)式右边的第二项(非线性项) $\chi_s |E|^2$ 比第一项(线性项) ϵ_s 小得多, 在此我们不作这样的假定. 为了研究双稳特性, 必须求解线性核或非线性壳内的局域场, 然而, 当壳是非线性时, 局域场是不均匀的, 无法精确求解. 为此, 采用平均场近似, 该方法的有效性在于研究非线性问题中已得到证实^[21]. (2)式中的 ϵ_s 用(4)式中的 $\tilde{\epsilon}_s$ 代替, 即

$$\begin{aligned}\tilde{\epsilon}_s &= \epsilon_s + \chi_s |E|^2 \\ &\approx \epsilon_s + \chi_s |E|_s^2, \quad (5)\end{aligned}$$

于是, 求得局域场平方的空间平均值与外场的关系为^[15]

$$|E|_c^2 = \left| \frac{9\epsilon_m \tilde{\epsilon}_s}{\tilde{Q} - f\tilde{P}} \right|^2 E_0^2, \quad (6)$$

$$\begin{aligned}|E|_s^2 &= \left(\left| \frac{\chi (\tilde{\epsilon}_c + 2\tilde{\epsilon}_s) \epsilon_m}{\tilde{Q} - f\tilde{P}} \right|^2 \right. \\ &\quad \left. + 2k \left| \frac{\chi (\tilde{\epsilon}_c - \tilde{\epsilon}_s) \epsilon_m}{\tilde{Q} - f\tilde{P}} \right|^2 \right) E_0^2, \quad (7)\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}\tilde{P} &= (\tilde{\epsilon}_c + 2\tilde{\epsilon}_s) \chi (\tilde{\epsilon}_s - \epsilon_m) \\ &\quad + (\tilde{\epsilon}_c - \tilde{\epsilon}_s) \chi (2\tilde{\epsilon}_s + \epsilon_m) k, \\ \tilde{Q} &= (\tilde{\epsilon}_c + 2\tilde{\epsilon}_s) \chi (\tilde{\epsilon}_s + 2\epsilon_m) \\ &\quad - \chi (\tilde{\epsilon}_c - \tilde{\epsilon}_s) \chi (\epsilon_m - \tilde{\epsilon}_s) k, \\ \tilde{G} &= \frac{\tilde{P}}{\tilde{Q}}.\end{aligned}$$

由(6)(7)式给出的局域场与外场的关系可以用来研究带壳金属颗粒复合介质中的光学双稳现象.

其次, 假定金属组分具有 Drude 线性介电常数

$$\epsilon = 1 + \delta\epsilon_c - \frac{\omega_p^2}{\omega(\omega + i\omega_c)}, \quad (8)$$

式中 $\delta\epsilon_c$ 是考虑束缚电子对介电常数的贡献, ω_p 是等离子体频率, ω_c 是碰撞频率, 温度对介电常数的影响主要来源于 ω_c . ω_c 由二部分组成^[22], 即

$$\omega_c = \omega_{cp} + \omega_{ce}. \quad (9)$$

ω_{cp} 为电子-声子散射的贡献, 采用德拜模型^[22]

$$\omega_{cp} = \frac{\omega_p^2 \epsilon_0}{\alpha(0)} \frac{1}{10 + \left(\frac{T}{\theta}\right)^5} \int_0^{T/\theta} \frac{y^4}{e^y - 1} dy, \quad (10)$$

式中 θ 是德拜温度, $\alpha(0)$ 是当 $T = \theta$ 时的直流电导率. ω_{ce} 为电子-电子散射的贡献, 与金属的费米能相关^[23]

$$\omega_{ce} = \frac{1}{12}\pi^3 \frac{\Gamma\Delta}{\hbar E_F} \left[(k_B T)^2 + \left(\frac{\hbar\omega}{2\pi} \right)^2 \right]. \quad (11)$$

式中 Γ 和 Δ 分别表示费米面的平均散射概率和倒逆散射.

3. 数值计算和讨论

以带壳 Ag 颗粒与 MgF_2 组成的三组分复合介质为对象, 数值研究其光学双稳行为. 在这个模型中,

Ag 组分具有 (8) 式形式的 Drude 线性介电常数, 选取壳层的介电常数为 $\epsilon_s = 1$, 壳层的非线性极化率为 $\chi_s = 1 \times 10^{-8} (\text{m/V})^2$, 其他参数的选取参照文献 [24].

图 1 画出了同一结构参数下, 不同温度时的双稳曲线. 从图中可看出, 双稳的上下阈值都随温度而变化, 随着温度的升高, 上阈值减小, 下阈值增大, 阈值宽度变窄, 并在某一温度处双稳消失.

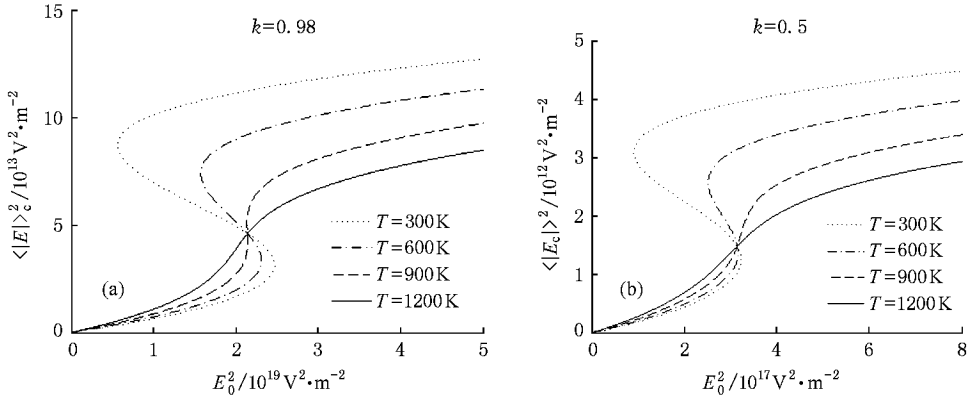


图 1 不同温度下, 局域场与外场的关系 ($f=0.05$) (a) $k=0.98$ (b) $k=0.5$

阈值宽度随温度的变化关系如图 2 所示. 图 2 清晰地显示出, 在一定的结构参数下, 随温度的升高, 阈值宽度越来越小, 直至消失. 这是因为, 在以金属为核的带壳颗粒复合体系中, 形成光学双稳的必要条件是金属核的介电常数具有大的负实部和小的

虚部, 而随温度的升高, 介电常数实部负值变小, 虚部变大, 这样便不利于双稳的出现. 从图中可看出, 在不同的结构参数下, 这种双稳的上下阈值及阈值宽度随温度的变化趋势是一致的, 但随着结构参数的增大, 双稳消失的临界温度在提高.

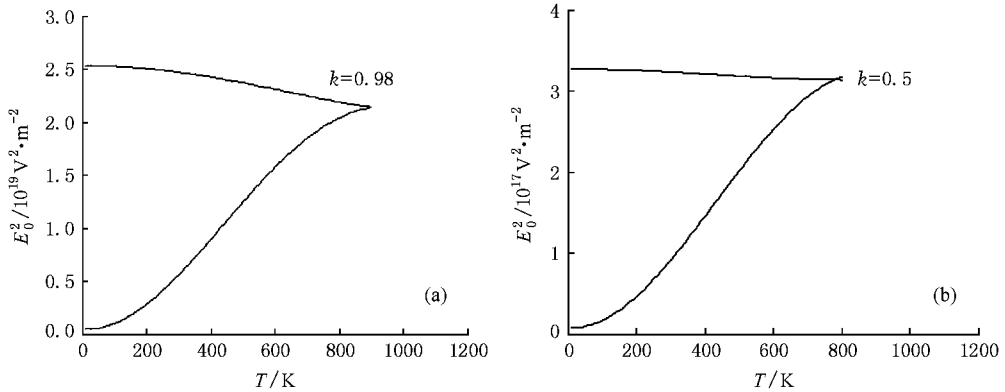


图 2 阈值随温度的变化 ($f=0.05$) (a) $k=0.98$ (b) $k=0.5$

如图 3 所示, 在同一温度下, 不同的结构参数对应的光学双稳的上下阈值是不同的. 从图 3 可以看出, 在温度 $T=300 \text{ K}$ 时, 随着结构参数的增大, 上下阈值都在增大, 但上阈值的增幅大于下阈值的增幅,

这样, 阈值宽度随结构参数的增大而变宽. 在文中所选参数情况下, 结构参数大即壳层厚有利于双稳的出现, 我们发现双稳阈值的变化除了与金属核的介电常数有关外, 还与基质与壳层的线性介电常数的

大小有关,以上是选取基质与壳层的介电常数比金属核的介电常数的负实部小许多时的结果,若选取其他的数值将会得到不同的结果,原因在于阈值位置是由 $\text{Re}(\tilde{Q} - f\tilde{P}) = 0$ 决定的,因此,对应不同的参数情况,其结果将不尽相同.当然,当结构参数 k 取 1 时,也即不存在壳层时,由于非线性不存在,故双稳消失.

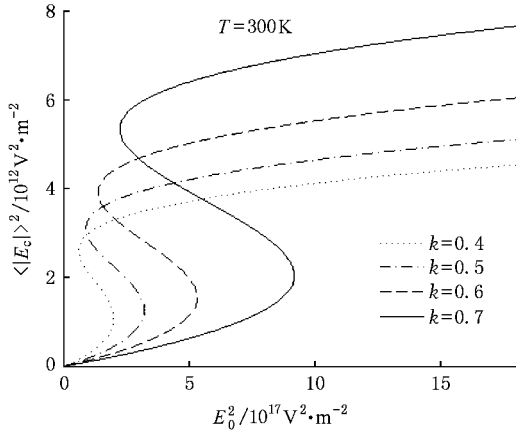


图3 不同结构参数下,局域场与外场的关系($f = 0.05$, $T = 300 \text{ K}$)

考虑非稀释极限情况,研究体积分数对双稳的影响,结果如图4所示.图中显示随体积分数的增

大,双稳阈值宽度变窄,也即体积分数的增大不利于双稳的出现.

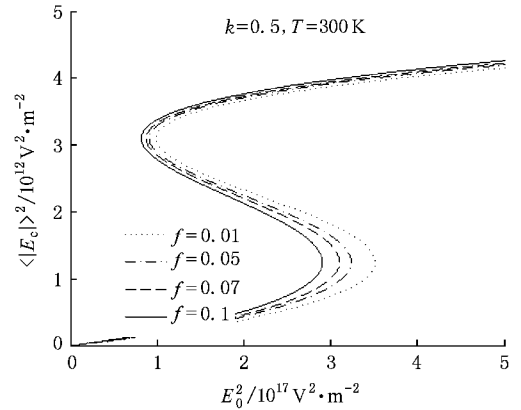


图4 体积分数对双稳阈值的影响

4. 结 论

采用自洽平均场理论研究带非线性壳层的线性金属颗粒无规置入线性介质中组成的三分复合体系的光学双稳效应,着重讨论了温度和壳层的厚度对光学双稳上下阈值及阈值宽度的影响.结果表明,降低温度、增厚壳层有利于双稳的产生,这对光学双稳器件的研制和开发有一定的理论指导意义.

- [1] Leung K M 1986 *Phys. Rev. A* **33** 2461
- [2] Abraham E, Smith S D 1982 *Rep. Prog. Phys.* **45** 815
- [3] Bergman D J, Levy O, Stroud D 1994 *Phys. Rev. B* **49** 129
- [4] Haus J W, Kalyaniwalla N, Ingua R, Bowden C W 1989 *J. Appl. Phys.* **65** 1420
- [5] Gao L, Gu L P, Li Z Y 2003 *Phys. Rev. E* **68** 66601
- [6] Gao L, Gu L P, Huang Y Y 2004 *Solid State Commun.* **129** 593
- [7] Kalyaniwalla N, Haus J W, Ingua R, Birnboim M H 1990 *Phys. Rev. A* **42** 5613
- [8] Lu X Z, Gao L 2004 *Acta Phys. Sin.* **53** 4373 (in Chinese) [陆兴中、高雷 2004 物理学报 **53** 4373]
- [9] Wang Y, Tan Y, Ding S H, Li L, Qian W P 2006 *Acta Chim. Sin.* **64** 2291 (in Chinese) [王毅、谈勇、丁少华、李鹏、钱卫平 2006 化学学报 **64** 2291]
- [10] Levy O 1995 *J. Appl. Phys.* **77** 1696
- [11] Neuendorf R, Quinten M, Kreibig U 1996 *J. Chem. Phys.* **104** 6348
- [12] Yuen K P, Yu K W 1997 *J. Phys.: Condens. Matter* **9** 4669
- [13] Pan T, Huang J P, Li Z Y 2001 *Physica B* **301** 190
- [14] Pinchuk A 2003 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **36** 460
- [15] Gao L 2003 *Phys. Lett. A* **318** 119
- [16] Gu L P, Gao L 2005 *Physica B* **368** 279
- [17] Yuen K P, Yu K W 1997 *J. Opt. Soc. Am. B* **64** 1387
- [18] Yu K W, Hui P M, Lee H C 1996 *Phys. Lett. A* **210** 115
- [19] Wan W M V, Lee H C, Hui P M, Yu K W 1996 *Phys. Rev. B* **54** 3946
- [20] Scaife B K 1989 *Principles of Dielectrics* (Clarendon, Oxford)
- [21] Yu K W 1998 *Solid State Commun.* **105** 689
- [22] Ujihara K 1972 *J. Appl. Phys.* **43** 2376
- [23] Chiang H P, Leung P T, Tse W S 1997 *Solid State Commun.* **101** 45
- [24] Nicorovici N A, McKenzie D R, McPhedran R C 1995 *Opt. Commun.* **117** 151

Effect of temperature on optical bistability of coated granular composites

Wu Ya-Min[†] Chen Guo-Qing

(*School of Science, Jiangnan University, Wuxi 214122, China*)

(Received 2 June 2008 ; revised manuscript received 7 August 2008)

Abstract

We study the intrinsic optical bistability (OB) of nondilute suspensions of coated spherical particles with a metallic core and a nonlinear dielectric shell. In this kind of system, as the spatial local field is not uniform, it cannot be obtained exactly. In this connection, we establish the self-consistent mean field approximation, and obtain the spatial average of the local field squared in the core as a function of the external applied field. Numerical results show that the optical bistability (OB) is dependent on the temperature T , the structural parameter k , and the volume fraction f . For given k and f , the width of optical bistability decreases with increasing temperature. At further increasing of T , OB is found to vanish. On the other hand, for given T and f , the bistable region gradually increases as the structural parameter k increases, accompanied with the increase in both the upper and lower threshold fields. More exactly, the increase of the bistable region mainly results from the rapid increase in the upper threshold field.

Keywords : coated granular, composite media, optical bistability, temperature effect

PACC : 7820W, 4265P

[†] Corresponding author. E-mail : wxwym2098@163.com