

# 金属/电介质颗粒复合介质光学双稳的温度效应

陈国庆<sup>1)</sup> 吴亚敏<sup>1)</sup> 陆兴中<sup>2)</sup>

1) 江南大学理学院, 无锡 214122

2) 常州工学院理学院, 常州 213002

(2006 年 5 月 28 日收到 2006 年 7 月 7 日收到修改稿)

应用有效媒质近似, 结合自治平均场理论和谱表示方法, 研究了金属电介质颗粒复合介质的光学双稳行为与温度的关系. 数值计算了不同的入射频率、体积分数和形状因子下光学双稳的温度效应, 结果发现, 温度对光学双稳的产生、双稳阈值及阈值宽度有很大影响.

关键词: 复合介质, 光学双稳, 谱表示, 温度

PACC: 7820W, 4265P

## 1. 引言

由于在光电子技术和信息技术领域的诱人应用, 光学双稳现象引起了人们的极大关注<sup>[1-3]</sup>. 非线性复合材料在一定条件下, 因颗粒表面 Plasmon 谐振点附近, 局域场产生很大的增强, 而产生不需要外部谐振腔或反馈的内禀光学双稳行为( IOB )<sup>[4-6]</sup>, 这种光学双稳材料响应速度很快, 能实现快速转换, 可用于制备高速光信息存储、处理器件, 在光控制、光逻辑、光计算等方面有着广阔的应用前景. 近年来, 理论和实验工作者对复合介质的光学双稳展开了广泛研究. 理论上通常采用求解局域场和外场间的关系来研究光学双稳, Bergman 等<sup>[7]</sup>采用变分法求解复合体系的局域场, Gao 等<sup>[8-11]</sup>利用谱表示和自治平均场理论研究了带壳颗粒复合介质的光学双稳行为及形状因子对光学双稳行为的影响, 这些研究主要集中在光学双稳特性与复合介质微几何结构、组分性质、体积分数及颗粒形状的关系, 很少涉及光学双稳行为与温度的关系. 而实际上, 光学双稳器件往往会在不同的温度下工作, 其工作温度常常高于室温. 在不同的温度下, 金属颗粒复合材料的非线性光学性质会发生显著变化, 因此, 研究颗粒复合材料的光学双稳特性与温度的关系具有实际意义. 在此, 我们结合有效媒质近似( EMA )利用自治平均场理论和谱表示方法研究了不同温度下复合介质的光学双稳行为, 讨论了不同入射频率、体积分数和形状因子下光学双稳行为与温度的关系. 研究结果为制备易实现

光学双稳且频率范围宽、阈值范围大的光学双稳材料提供理论支持, 从而制造理想、实用的光学双稳器件.

## 2. 理论模型

对于金属和电介质组成的二组分复合系统, 其体积分数分别为  $f$  和  $1-f$ , 各组分中, 电位移矢量和局域电场满足如下关系式:

$$\mathbf{D} = (\epsilon_i + \chi_i |\mathbf{E}|^2) \mathbf{E}, \quad (1)$$

式中  $\epsilon_i$  和  $\chi_i$  分别是组分  $i$  的线性介电常数和三阶非线性极化率. 假定二种组分颗粒具有相同的形状, 但颗粒的大小可以不同,  $L$  为沿外场方向的退极化因子, 也称为形状因子. 在这种情况下, 利用有效媒质近似, 体系的有效介电常数为

$$\frac{\epsilon_e}{\epsilon_2} = \frac{1}{2(1-L)} \left[ 1 - 2L + \frac{L-f}{s} \right. \\ \left. \pm \frac{\sqrt{s^2 - 2(f+L-2fL)s + (L-f)^2}}{s} \right], \quad (2)$$

式中  $s = \frac{\epsilon_2}{\epsilon_2 - \epsilon_1}$ , 由上式可得谱密度函数

$$\mathcal{P}(x) = \frac{f-L}{1-L} \mathcal{P}(f-L) \mathcal{P}(x) \\ + \begin{cases} \frac{\sqrt{(x-x_1)(x_2-x)}}{2\pi x(1-L)}, & x_1 < x < x_2, \\ 0, & \text{其他,} \end{cases} \quad (3)$$

其中  $\theta(f-L) = \begin{cases} 1, & f \geq L \\ 0, & f < L \end{cases}$  为阶跃函数,且有

$$x_{1,2} = f + L - 2fL \mp \sqrt{(f + L - 2fL)^2 - (f - L)^2}. \quad (4)$$

对于连续谱有

$$|\mathbf{E}|^2_{\text{lin},1} = \frac{1}{f} \int_0^1 \frac{|s|^2 \theta(x)}{|s-x|^2} dx + |\mathbf{E}_0|^2, \quad (5)$$

$$|\mathbf{E}|^2_{\text{lin},2} = \frac{1}{1-f} \left[ 1 - \int_0^1 \frac{(|s|^2 - x) \theta(x)}{|s-x|^2} dx \right] + |\mathbf{E}_0|^2. \quad (6)$$

(5)(6)二式是两组分均为线性介质时的结果,表示空间平均,在此将这一结果推广到非线性组分复合介质体系,采用平均场近似<sup>[12,13]</sup>

$$\tilde{\epsilon}_i = \epsilon_i + \chi_i |\mathbf{E}|^2 \approx \epsilon_i + \chi_i |\mathbf{E}|^2_{\text{lin},i}, \quad (7)$$

对于二组分的非线性复合体系,谱表示下的局域场表示为

$$|\mathbf{E}|^2_{\text{lin},1} = \frac{1}{f} \int_0^1 \frac{|\tilde{s}|^2 \theta(x)}{|\tilde{s}-x|^2} dx + |\mathbf{E}_0|^2, \quad (8)$$

$$|\mathbf{E}|^2_{\text{lin},2} = \frac{1}{1-f} \left[ 1 - \int_0^1 \frac{(|\tilde{s}|^2 - x) \theta(x)}{|\tilde{s}-x|^2} dx \right] + |\mathbf{E}_0|^2. \quad (9)$$

其中  $\tilde{s} = \frac{\tilde{\epsilon}_2}{\tilde{\epsilon}_2 - \tilde{\epsilon}_1}$ . 利用(8)(9)二式便可求出局域场与外电场的关系.

为考察非线性体系的折射率  $n$  和消光系数  $k$ ,将(2)式改写为

$$\frac{\tilde{\epsilon}_e}{\tilde{\epsilon}_2} = \frac{1}{2(1-L)} \left[ 1 - 2L + \frac{L-f}{\tilde{s}} \pm \frac{\sqrt{|\tilde{s}|^2 - 2f + L - 2fL} \tilde{s} + (L-f)^2}{\tilde{s}} \right] \quad (10)$$

于是

$$n = \sqrt{\frac{\operatorname{Re}(\tilde{\epsilon}_e) + \sqrt{[\operatorname{Re}(\tilde{\epsilon}_e)]^2 + [\operatorname{Im}(\tilde{\epsilon}_e)]^2}}{2}}, \quad (11)$$

$$k = \sqrt{\frac{-\operatorname{Re}(\tilde{\epsilon}_e) + \sqrt{[\operatorname{Re}(\tilde{\epsilon}_e)]^2 + [\operatorname{Im}(\tilde{\epsilon}_e)]^2}}{2}}. \quad (12)$$

具体研究非线性金属与线性基质组成的对称微结构复合系统,其中金属组分具有Drude线性介电常数

$$\epsilon_1 = 1 + \delta\epsilon_c - \frac{\omega_p^2}{\omega(\omega + i\omega_c)}, \quad (13)$$

式中  $\delta\epsilon_c$  是考虑束缚电子对介电常数的贡献<sup>[14]</sup>,  $\omega_p$  是等离子频率,其值由下式给出:

$$\omega_p = \sqrt{\frac{Ne^2}{m^* \epsilon_0}}, \quad (14)$$

其中  $N$  和  $m^*$  分别为电子密度和电子的有效质量,它们与温度也有一定的关系,但较弱. 温度对介电常数的影响主要来源于碰撞频率  $\omega_c$ . 考虑电子-声子散射及电子-电子散射<sup>[15,16]</sup>,  $\omega_c$  由两部分组成,即

$$\omega_c = \omega_{cp} + \omega_{ce}, \quad (15)$$

$\omega_{cp}$  为电子-声子散射的贡献,采用德拜模型<sup>[15]</sup>,

$$\omega_{cp} = \frac{\omega_p^2 \epsilon_0}{\sigma(0)} \frac{\frac{1}{10} + \left(\frac{T}{\theta}\right)^5 \int_0^{\theta/T} \frac{y^4}{e^y - 1} dy}{\int_0^5 \frac{y^5}{(e^y - 1)(1 - e^{-y})} dy}, \quad (16)$$

其中  $\theta$  是德拜温度,  $\sigma(0)$  是当  $T = \theta$  时的直流电导率.  $\omega_{ce}$  与金属的费米能相关<sup>[17]</sup>,即

$$\omega_{ce} = \frac{1}{12} \Gamma^3 \frac{\Gamma \Delta}{\hbar E_F} \left[ (k_B T)^2 + \left(\frac{\hbar \omega}{2\pi}\right)^2\right], \quad (17)$$

其中  $\Gamma$  和  $\Delta$  分别表示费米面的平均散射概率和倒逆散射.

### 3. 数值结果和讨论

作为数值计算,研究了  $\text{Ag}/\text{MgF}_2$  复合介质的光学双稳行为,在本模型中,选取  $\text{Ag}$  的非线性极化率为  $\chi_1 = 1 \times 10^{-8} \text{ esu}$ ,  $\text{MgF}_2$  的非线性极化率为  $\chi_2 = 0$ . 其他参数选取参照文献[18].

首先,研究了不同入射频率下、不同体积分数的球形颗粒( $L = 1/3$ )复合介质系统光学双稳的温度效应. 由计算结果得出,在一定温度下光学双稳仅出现在一定入射频率范围内,且温度越高出现双稳的频率范围越窄. 由图1,图2可看出,对于不同的体积分数,双稳行为与温度的变化关系是相似的. 双稳的上下阈值都随温度而变化,下阈值总是随温度的升高而增大,而上阈值与温度的变化关系随入射频率不同而不同:  $f = 0.05$  时,入射频率在  $0.1\text{--}2 \text{ eV}$  范围内时,随温度升高上阈值减小,入射频率在  $2 \text{ eV}$  左右时,对应各温度的上阈值相同,入射频率在  $2\text{--}2.3 \text{ eV}$  范围内,随温度升高上阈值反而增大,但上阈值的增幅小于下阈值的增幅,入射频率大于  $2.3 \text{ eV}$  时,双稳消失;  $f = 0.25$  时,变化趋势与前述类同,但

随温度升高上阈值从减小到增大发生转折的入射频率不同,约在 0.32 eV 左右,入射频率大于 0.55 eV 时,双稳消失。总之,随着温度的升高,双稳阈值宽度

变窄甚至双稳消失。这是因为光学双稳现象的产生是由于金属介电常数有大的负实部,小的虚部,而从(13)~(17)式可看出,随温度的升高,介电常数实部

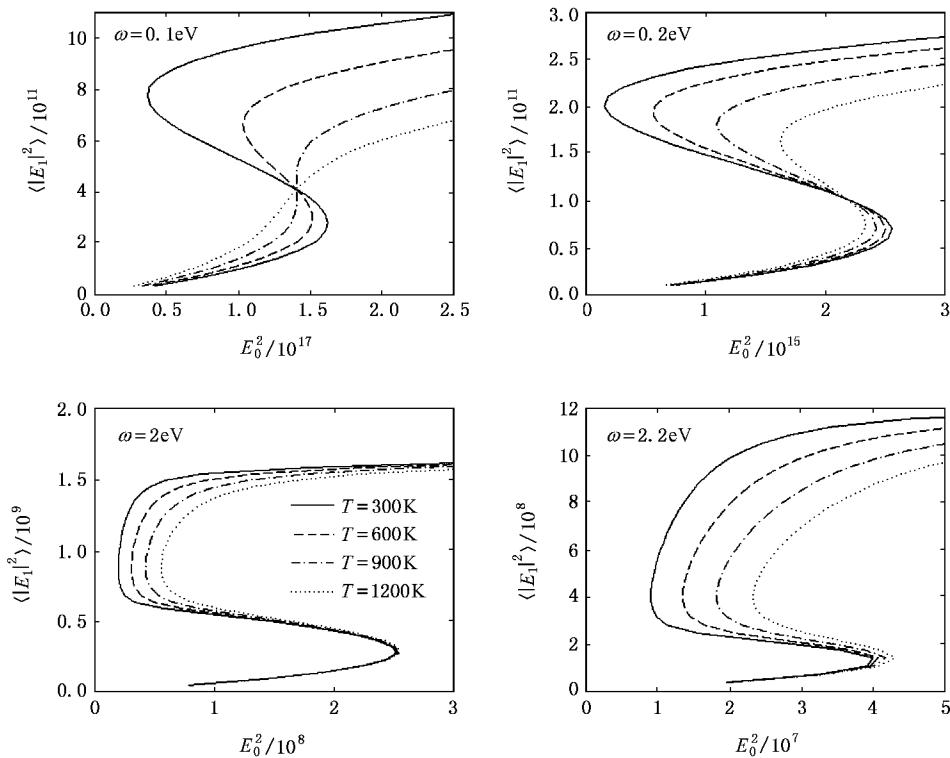


图 1 不同温度下,  $f = 0.05$ ,  $L = 1/3$  时局域场与外场的关系

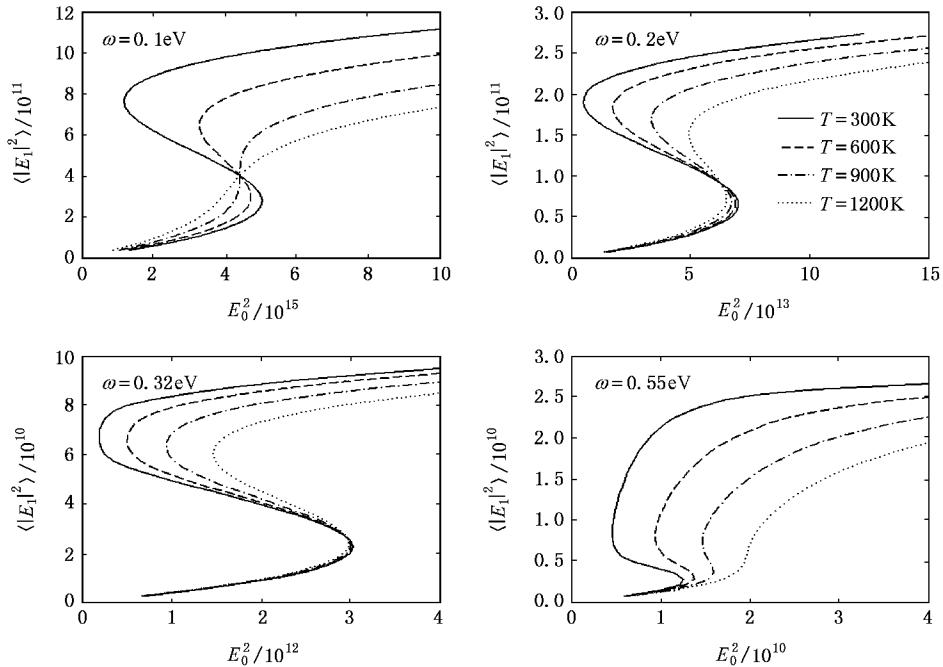


图 2 不同温度下,  $f = 0.25$ ,  $L = 1/3$  时局域场与外场的关系

负值变小,而虚部变大,将不利于双稳的出现。

另外,在体积分数相同的情况下,随入射频率的增大各温度下出现双稳的外电场显著减小;在入射频率相同的情况下,随体积分数的增大,虽各温度下双稳的阈值宽度变小,但出现双稳所需的外电场在减小,这正是实验工作者所期望的结果。

其次,研究了不同形状的颗粒复合介质光学双稳的温度效应。取 $\omega = 0.2$  eV,固定体积分数 $f = 0.25$ 不变,对不同的形状因子 $L$ 值进行计算,结果表明,对于各个不同的形状因子 $L$ ,其双稳行为随温度的变化与上述球形颗粒复合介质是类似的。而且发现只有当 $L$ 大于某一定值时,才出现光学双稳现象。这表明在一定的体积分数和入射频率下,存在一临界形状因子 $L_c$ ,只有当 $L \geq L_c$ 时才出现双稳,这一结果与文献[11]是一样的。由图3可知,在不同温度下,临界形状因子 $L_c$ 不同。 $T = 300$  K时, $L_c$ 约为

0.278; $T = 600$  K时, $L_c$ 约为0.280; $T = 900$  K时, $L_c$ 约为0.285; $T = 1200$  K时, $L_c$ 约为0.291。随着温度的升高, $L_c$ 缓慢增大。这是由于一方面随着温度的升高,金属颗粒的介电常数实部负值变小,虚部变大,不利于双稳的产生;另一方面随着形状因子的增大,颗粒形状向扁平状方向趋近,不利于形成集团,容易引起表面Plasmon谐振,导致较强的非线性,有利于双稳的产生。因此,随温度的升高,临界形状因子 $L_c$ 缓慢增大。并且,在同一温度下,随 $L$ 的增大双稳阈值宽度增大。

最后,研究了不同温度下球形颗粒复合介质在双稳区域的折射率和消光系数随外场的变化关系。从图4可看出,复合介质的折射率 $n$ 和消光系数 $k$ 在双稳区域都出现了回线,对应不同的温度,出现的回线不同。随着温度的升高,上下阈值处的折射率都基本不变,而下阈值处的消光系数则明显减小。

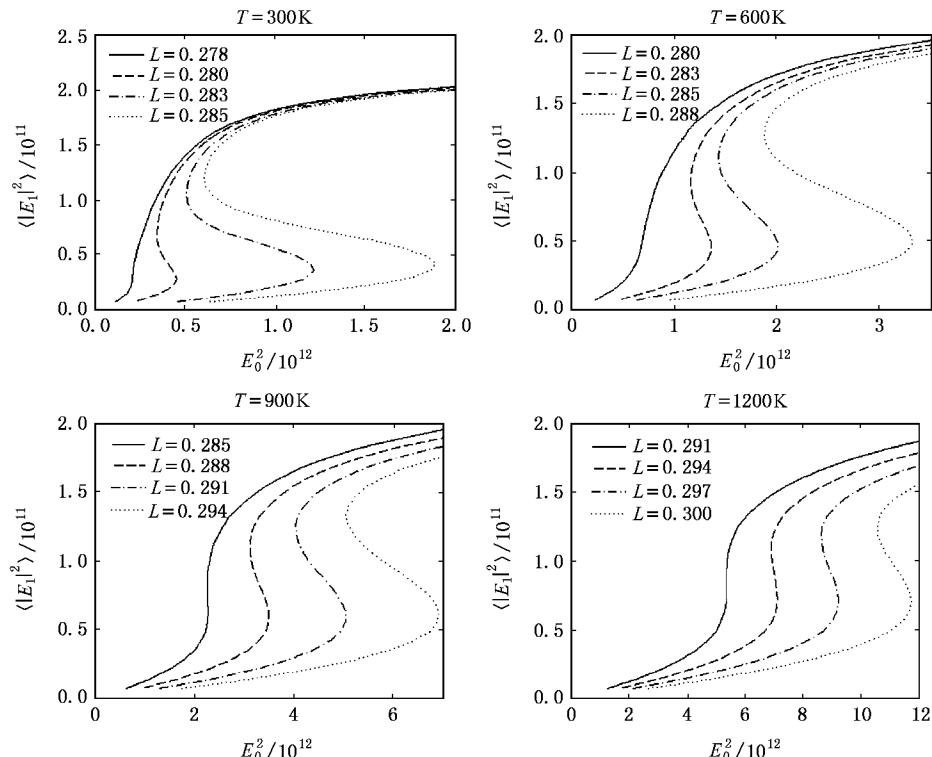


图3 不同温度下,  $L$ 不同时局域场与外场的关系

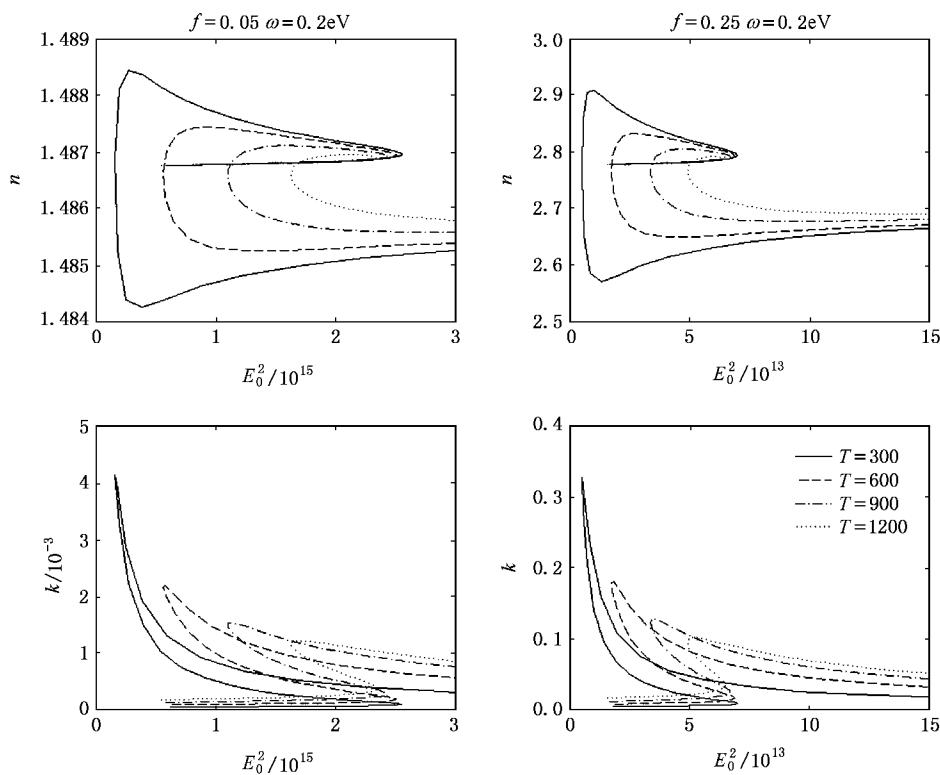


图4 不同温度下, 折射率和消光系数随外电场变化的关系曲线

## 4. 结 论

研究了金属颗粒复合介质光学双稳的温度效应. 计算结果表明, 复合介质光学双稳行为与温度有关. 随着温度的升高, 光学双稳的上下阈值发生变化, 阈值宽度变小, 直至双稳消失. 对于不同的入射

频率, 光学双稳行为随温度的变化情况不同. 对于不同的体积分数, 双稳行为随温度的变化趋势类似. 对应一定的体积分数, 双稳仅发生在一定的入射频率范围内. 随入射频率的增大, 出现双稳的外电场减小. 对于不同的形状因子, 双稳行为随温度的变化趋势也类似, 但随着温度的升高, 出现光学双稳现象的临界形状因子增大.

- [1] Leung K M 1986 *Phys. Rev. A* **33** 2461
- [2] Shi H Y, Jiang Y Y, Sun X D, Guo R H, Zhao Y P 2005 *Chin. Phys.* **14** 1571
- [3] Luo J M, Li J H 2005 *Chin. Phys.* **14** 1834
- [4] Haus J W, Sung C C, Bowden C M, Cook J M 1985 *J. Opt. Soc. Am. B* **2** 1920
- [5] Goldstone J A, Gammie E 1984 *Phys. Rev. Lett.* **53** 910
- [6] Hajto J, Janossy I 1983 *Philos. Mag. B* **47** 347
- [7] Bergman D J, Levy O, Stroud D 1994 *Phys. Rev. B* **49** 129
- [8] Gao L 2003 *Phys. Lett. A* **318** 119
- [9] Gu L P, Gao L 2005 *Phys. B* **368** 279
- [10] Gao L, Gu L P, Li Z Y 2003 *Phys. Rev. E* **68** 66601
- [11] Gao L, Gu L P, Huang Y Y 2004 *Solid State Commun.* **129** 593
- [12] Bergman D J 1978 *Phys. Rep.* **43** 377
- [13] Gao L, Li Z Y 1996 *Phys. Lett. A* **219** 324
- [14] Beach R T, Christy R W 1997 *Phys. Rev. B* **16** 5277
- [15] Ujihara K 1972 *J. Appl. Phys.* **43** 2376
- [16] Leung P T, Hider M H, Sanchez E J 1996 *Phys. Rev. B* **53** 12659
- [17] Chiang H P, Leung P T, Tse W S 1997 *Solid State Commun.* **101** 45
- [18] Nicorovici N A, McKenzie D R, McPhedran R C 1995 *Opt. Commun.* **117** 151

# Temperature effects of optical bistability of metal/dielectric granular composites

Chen Guo-Qing<sup>1)</sup> Wu Ya-Min<sup>1)</sup> Lu Xing-Zhong<sup>2)</sup>

1) School of Science, Southern Yangtze University, Wuxi 214122, China

2) School of Science, Changzhou Institute of Technology, Changzhou 213002, China

(Received 28 May 2006; revised manuscript received 7 July 2006)

## Abstract

Based on effective medium approximation, self-consistent mean field approximation and the spectral representation method were adopted to investigate the temperature dependence of optical bistability of metal/dielectric granular composite. Numerical calculations were used to find out the temperature effects on optical bistability at different values of incidence frequency, volume fraction and shape factor. The results show that the emergence of optical bistability, optical bistability threshold and threshold width are all greatly dependent upon the temperature.

**Keywords** : composite media, optical bistability, spectral representation, temperature

**PACC** : 7820W, 4265P