

中红外低浓度无序介质的光子定域化理论研究

刘晓东¹⁾²⁾ 李曙光¹⁾ 侯蓝田¹⁾ 王慧田³⁾ 闵乃本³⁾

¹⁾ 燕山大学红外光纤与传感研究所 ,秦皇岛 066004)

²⁾ 中国科学院物理研究所光物理实验室 ,北京 100080)

³⁾ 南京大学固体微结构物理国家重点实验室 ,南京 210093)

(2001 年 12 月 13 日收到 ,2002 年 4 月 2 日收到修改稿)

提出一些折射率比锗还高的中红外材料(第一类)以及中红外反常色散材料(第二类)可以用于无序介质的光子定域化研究.基于 Mie 散射理论的研究发现 ,即使在低浓度散射体近似下 ,也容易在第一类无序介质中实现光子定域化 ,同时可在第二类无序介质中实现一定意义下(含一定的吸收)的光子定域化 ,且频率位于各自的剩余射线带内.研究还发现 ,基质的折射率效应在这两类无序介质中的作用完全不同.还提出了散射体平均等效散射截面饱和的假设 ,讨论了因此而导致的问题.

关键词 :光子定域化 ,无序介质 ,中红外 ,反常色散

PACC : 7155J , 7830 , 4225B

1. 引 言

近年来 ,人们对有周期结构的光子晶体^[1-3]和无序光学介质^[4-8]中的光子定域化(安德森定域化)理论与实验的研究兴趣与日俱增.光子定域化就是指在散射介质中由于多重散射波的干涉效应使得光在其中的传播受到彻底地抑制^[9-11] ,所以光子输运在扩散区与定域化区的转变就类似于掺杂半导体中的金属—绝缘体相变 ,理论上这在人工结构的光子晶体中不难实现 ,实验上也取得了一定的成功.但类似于安德森电子定域化 ,无序体系光子定域化在理论上要求无序介质中的散射体具有极强的散射能力 ,这只有在散射体的折射率相对于基质足够大时才可能实现.实验上 ,近二十年来只在微波区报道了公认的定域化效应 ,但体系的吸收还很大^[13-15] .最近几年才在有限的可见和近红外谱区报道了大折射率半导体(GaAs , GaP)的相对强的定域化效应^[8-10] ,而中红外区的实验却只有一个研究组在 1999 年才开始 ,且到目前为止仍不算很深入 ,材料仅限于硅^[16]和锗粉^[17, 18] ,这也许是因为锗常被认为是红外区折射率最高的材料的缘故^[18] .另外 ,开展中红外光子定域化理论与实验研究少的原因可能是 :其一 ,中红外辐射常常被认为是军事、医疗、工业或分子光谱学领域的研究对象 ;其二 ,中红外辐射的探测不如微波区和可见光区那么容易和灵敏 ;其三 ,中红外辐

射源不是很普遍 ,因而不但实验研究受到很大限制 ,对该波段研究价值和应用价值的正确评价也受到了影响.

就像 Genack 等人在十年前开始专门在微波区探讨光子定域化那样^[6-8] ,我们预期在中红外区的研究也将会富有成果 ,因为这一新领域具有它独特的研究价值和材料特性方面的优势 ,这表现在 :1)该波段只与可见光在波长上差一个量级 ,对样品的尺度要求不很小也不很大 ,在几微米到几十微米之间 ,会特别适合于广泛的红外技术应用.2)在实际的材料方面 ,有多种中红外透明基质 ,如 KBr , KCl , AgBr 和石蜡油等 ,它们的折射率不是很大 ,在 1.3 至 2 之间^[19] ;有在可见光区无法找到的高折射率的低损耗材料 ,如 Ge , PbS , PbSe , PbTe , Te^[19] ,而 Bi₂Te₃ 的折射率甚至达到 9.2^[20] ,所以 Ge 在中红外区的折射率并不算很大 ,这在光子定域化领域很少有人注意到 ;有很多离子型反常色散材料如单振子型的 SiC ,两振子型的 MgO 和三振子型的 Al₂O₃ 等 ;有各种高反射率的金属.3)辐射源方面 ,有 5.3 μ m 的 CO 激光器和 9—11 μ m 范围内可调的 CO₂ 激光器 ,尤其是工作在 10.6 μ m 的 CO₂ 激光器 ;有功率、短脉冲和波长可调范围宽的自由电子激光器 ,如在 7—18 μ m 范围内可调的北京自由电子激光器(BFEL)^[21] ;基于非线性光学原理的中红外可调超短脉冲激光源的研究取得了很大进展^[22] ,并且有望很快实现商品化.

本文主要研究两类中红外无序介质的光子定域化理论(第一类含有无吸收的高折射率的中红外散射体,第二类含有中红外反常色散散射体),以期能促进光子定域化的理论、实验与应用研究.

2. 理论基础

理想的光子定域化被期望出现在 $kl \leq 1$ (k 为介质介质中的光波矢, l 为散射平均自由程)时,即 Ioffe-Regel 临界条件^[8],所以我们定义 kl 为定域化参量 η ,并期望得到 $\eta^{-1} \geq 1$.但是,当散射体为有吸收的介质时(不失一般性,可假定基质是无吸收的),散射粒子的散射截面不等于消光截面,因此该体系就应有两个定域化参量 kl_{sca} 和 kl_{ext} ,它们的倒数分别记为 η_{sca}^{-1} 和 η_{ext}^{-1} ,所以我们期望得到 η_{sca}^{-1} 和 η_{ext}^{-1} 均大于 1,且 η_{sca}^{-1} 接近于 η_{ext}^{-1} .

由于散射体浓度较高时理论处理方法还不成熟,而低散射体浓度的无序系统有更多的实际意义,本文就只讨论低浓度(低体积比 $f \leq 10\%$)情形.因为 Watson 等人已经通过实验证明^[23],在散射体的体积比为 9.6% 时测得的定域化参量与用 Mie 散射理论计算得到的定域化参量符合得非常好,所以可以应用米氏(Mie)散射理论来处理本文的问题. Mie 散射理论是从电磁场理论的麦克斯韦方程组出发得到的球体散射的严格解^[24],尽管至今已有近百年而且计算繁复,但仍一直不失为最好的低浓度散射问题的理论方法.

Mie 散射理论已经精确地给出了球形粒子的散射截面 $\sigma_{\text{sca}} = Q_{\text{sca}}(\pi R^2)$ 和消光截面 $\sigma_{\text{ext}} = Q_{\text{ext}}(\pi R^2)$ 其中 Q_{sca} 和 Q_{ext} 分别是面积散射效率和面积消光效率,它们依赖于散射粒子相对于背景介质的复折射率比 m 和无量纲尺寸参量 $x = 2\pi n_0 R / \lambda$ (R 是球形散射体的半径, λ 是真空中辐射波长, n_0 是基质的折射率).

低散射体浓度近似下,散射平均自由程 $l_{\text{sca}} = (\rho \sigma_{\text{sca}})^{-1}$,消光平均自由程 $l_{\text{ext}} = (\rho \sigma_{\text{ext}})^{-1}$,其中 ρ 为散射体的粒子数密度,它与散射体所占的体积比 f 的关系为 $f = \rho(4\pi R^3/3)$,那么,两个定域化参量的倒数可表示为

$$\eta_{\text{sca}}^{-1} = \frac{3f}{4} \left(\frac{Q_{\text{sca}}}{x} \right), \quad (1)$$

$$\eta_{\text{ext}}^{-1} = \frac{3f}{4} \left(\frac{Q_{\text{ext}}}{x} \right). \quad (2)$$

当散射体和基质的折射率均为常数且无损耗时,无序介质的定域化参量的倒数可表示为

$$\eta^{-1} = \frac{3f}{4} \left(\frac{Q}{x} \right). \quad (3)$$

式中 Q/x 正比于 Mie 散射理论中体积散射效率.

3. 理论结果

图 1 给出了当 $m = 6.2$ (对应于 Te 粉在空气中或者 Bi_2Te_3 粉在 KBr 中)定域化参量的倒数 η^{-1} 与 x 的关系曲线,而图 2 则更一般地给出了 η^{-1} 与 x 和 m 的关系.由于 $\eta^{-1} \geq 1$ 是所关心的定域化区,所以为了直观起见图 2 给出了 $\eta^{-1} \geq 1$ 的部分.从图 1 可以看到,对于 $f = 10\%$, $m = 6.2$ 的无序介质,在 $x = 0.50$ 处定域化参量 η^{-1} 可达到 3.5,因而定域化参量 η 可达到 0.3.进一步从图 2 可以看到 $f = 10\%$ 时 $\eta \leq 1$ 的临界值为 $m = 3.8$,这与 Watson 等人的预言一致^[18].另外,当 $m > 6$ 以后还会出现第二个定域化区.因此,由于相对折射率大于 4 的散射体的引入,认为“空气中的锗(Ge)粉系统是最合适的光子定域化系统”的结论^[14]就不再恰当了.

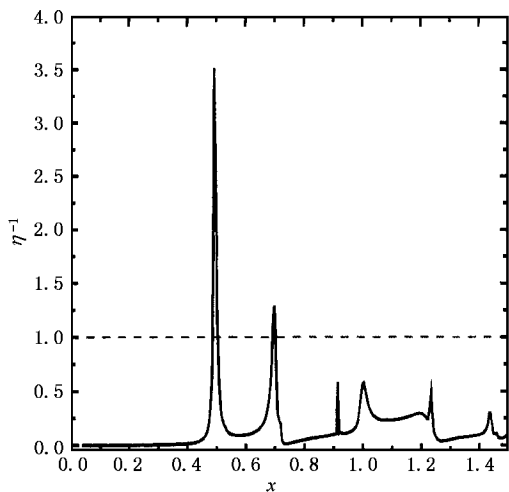


图 1 $m = 6.2$, $f = 10\%$ 时 η^{-1} 与 x 的关系

在单体 Mie 散射理论中,另一个重要的量是各向异性散射因子 $g = \langle \cos \theta \rangle$ ^[19],即散射角余弦的平均,它与能量扩散系数有关的输运平均自由程 l_{tr} 和散射平均自由程 l 通过 $l_{\text{tr}} = l(1 - g)$ 而联系起来,并且也可以用 Mie 系数来表示^[24].对于各向同性的单体散射, $g = 0$,而在折射率较小的散射球的 Mie 共振附近,通常 $g > 0$,这意味着前向散射占优势,所以 $l_{\text{tr}} > l$.但是,对 $m = 4$ 时 g 的数值研究发现,不仅

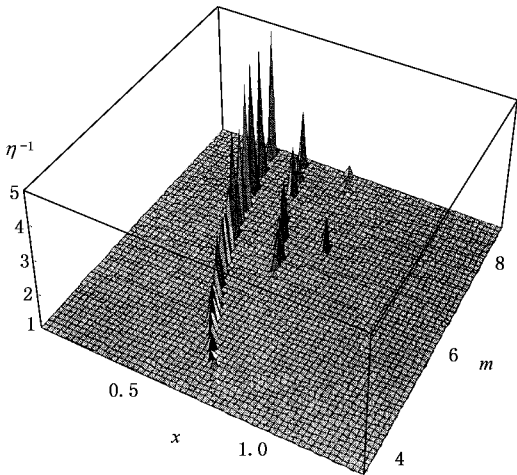


图2 $f=10\%$ 时 η^{-1} 与 x 和 m 的关系

在 Mie 共振区附近出现负值(如图 3 所示),而且最小值还达到了 -0.3 . 这种反常的 g 值说明出现了强的背向散射,它导致了反常的输运平均自由程 l_{tr} ,即小于散射平均自由程 l ,那么“ l_{tr} 与 l 的惟一差别是 $l_{tr} > l$ ”的概念^[25]就不再正确. 从图 5 还可以看到,当 $x=0.7$ 时 l_{tr} 将等于 l ,这与由文献[18]的实验数据推得的结果恰巧非常一致. 那么,到底 kl_{tr} 和 kl 中哪一个更适合做定域化参量,还是二者缺一不可呢? 这需要进一步的理论和实验探索. 另外,从图 3 中还可发现,背向散射开始占优势的临界 m 值约为 3.1. 因此从强的背向散射有利于光子定域化的角度讲,只有 $m > 3.1$ 的无序介质才适合于使光子定域化.

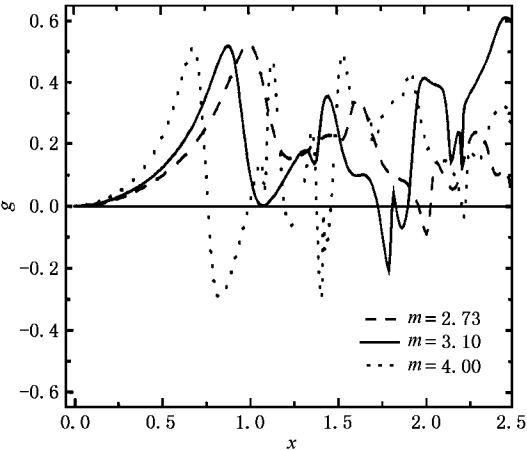


图3 $m=2.73, 3.10$ 和 4.00 时 g 与 x 的关系

反常色散电介质 α -SiC 常被认为是能由 Lorentz 单振子色散模型精确描述的典型例子^[24],它在中红

外区的复介电常数可精确地表示为

$$\widehat{\epsilon}(\omega) = 6.7 + \frac{2.08 \times 10^6}{793^2 - \omega^2 - i4.76\omega}. \quad (4)$$

这里,按照红外物理学的习惯,辐射频率 ω 用波数来表示,其单位是 cm^{-1} . 对于体 α -SiC,在 800 和 970 cm^{-1} 的范围内垂直入射反射率可高达约 97%,即这一区域是 α -SiC 的光谱“指纹区”——剩余射线带(Reststrahlen band),所以我们期望 $\eta_{\text{sca}}^{-1} \geq 1$ 和 $\eta_{\text{ext}}^{-1} \geq 1$ 就出现在该剩余射线带内.

图 4 和图 5 分别给出了 $f=10\%$ 时 η_{sca}^{-1} 和 η_{ext}^{-1} 与无维尺度参量 x 和波数 ω 的关系,由于 $\eta_{\text{sca}}^{-1} \geq 1$ 和 $\eta_{\text{ext}}^{-1} \geq 1$ 是所关心的定域化区,所以为了直观起见图 4 和 5 都只给出了大于 1 的部分.

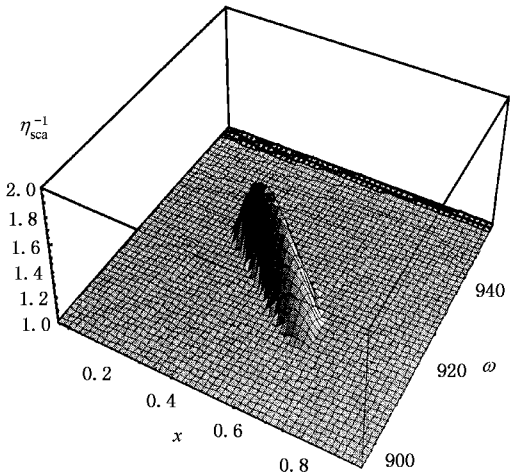


图4 $f=10\%$ 时 η_{sca}^{-1} 与 x 和 ω 的关系

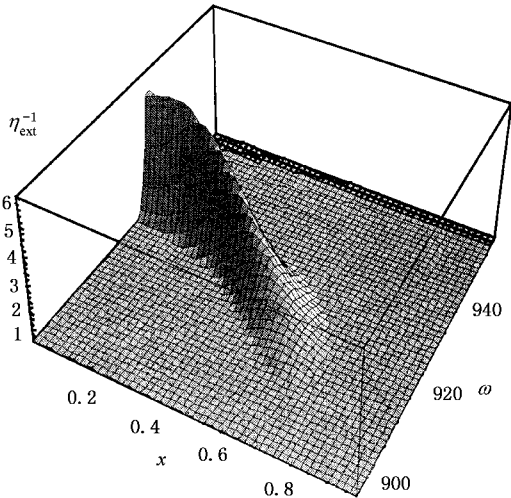


图5 $f=10\%$ 时 η_{ext}^{-1} 与 x 和 ω 的关系

从图 4 和 5 可以看出,确实存在一个区域 ($\omega = 915\text{—}925\text{ cm}^{-1}$, $x = 0.2\text{—}0.6$) 使 $\eta_{\text{sca}}^{-1} \geq 1$ 和一个略大的区域 ($905\text{—}935\text{ cm}^{-1}$) 使得 $\eta_{\text{ext}}^{-1} \geq 1$, 而且它们确实出现在 $\alpha\text{-SiC}$ 的剩余射线带内, 尽管 $\eta_{\text{ext}}^{-1} \geq 1$ 的区域只占整个剩余射线带宽度的五分之一.

因此, 我们乐观地看到, 当使用适当尺寸的反常色散电介质的球形颗粒做散射体时, 即使在较低浓度 (10%) 下在中红外区也不难实现 $kl_{\text{ext}} \leq 1$ 和 $kl_{\text{sca}} \leq 1$, 只是由于色散电介质散射体的引入, 体系仍然存在一定的本征吸收 (反照率 < 1).

当然, 较好的光子定域化应满足 $kl_{\text{ext}} \approx kl_{\text{sca}} \leq 1$, 即色散电粒子消光的反照率 (albedo, 定义为散射截面占整个消光截面的比例) 越大越好^[24]. 在单体 Mie 散射理论中, 反照率也可以用 Mie 系数来表示^[24]. 图 6 给出了 $\alpha\text{-SiC}$ 粒子的反照率与 x 和 ω 的关系. 从图 6 可以看到, 尽管 $f = 10\%$ 、在 $\omega = 905\text{—}935\text{ cm}^{-1}$ 和 $x = 0.38\text{—}0.55$ 的范围内 η_{sca}^{-1} 和 η_{ext}^{-1} 都大于 1, 但在此范围内粒子的反照率却只有 60%—80%. 既然如此, kl_{ext} 和 kl_{sca} 到底哪一个更适合做定域化参量, 还是二者缺一不可呢? 这样的系统有多大的应用价值, 又能满足什么样的应用需求? 同时满足了 $\eta_{\text{sca}}^{-1} \geq 1$ 和 $\eta_{\text{ext}}^{-1} \geq 1$ 的区域是否就可以称为定域化区呢? 这些依然需要大量的理论、实验和应用方面的探索.

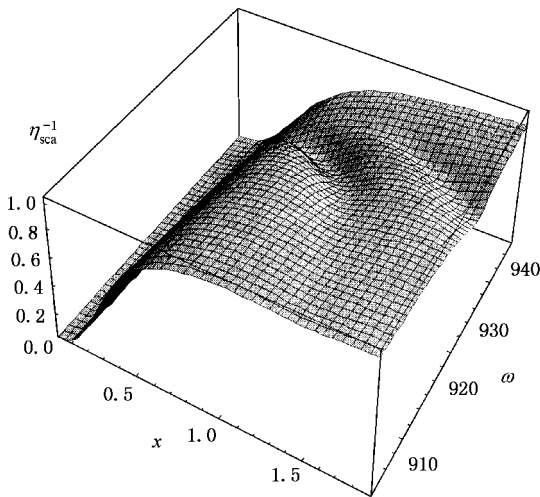


图 6 $\alpha\text{-SiC}$ 粒子的反照率与 x 和 ω 的关系

4. 讨 论

我们看到, 当使用适当尺寸的折射率异常高的

PbSe, PbTe, Te 或 Bi₂Te₃ 球形颗粒做散射体时, 即使在较低浓度下光子定域化在中红外区也不难实现. 但是, 事情可能并非这么简单. 因为在前几个强的 Mie 共振峰附近, 对于 $m = 4$ 的颗粒, 其面积散射效率 Q 可高达 10 以上, 这意味着非体搭接的光学搭接 (optical connection) 的发生. 当散射体浓度超过 34% 所出现的物理上体搭接不利于光子定域化, 与此不同的是, 我们认为光学搭接恰恰是强散射的反映, 但总体散射效率可能不会线性地提高. 仍然设定 $f = 10\%$, 在散射体分布的简立方近似下, 两个粒子间距的一半为 $\sqrt[3]{\pi/6}fR = 1.736R$, 所以在面积散射效率 Q 达到 $(1.736)^3 = 3.0$ 时开始光学搭接, 于是可以假定面积散射效率在此处开始饱和, 即 $Q_{\text{sat}} = 3.0$ (下脚标 sat 表示饱和). 在这一假设下, 定域化参量也将饱和, 那么方程 (3) 可以表示为

$$\eta_{\text{sat}}^{-1} = \frac{0.6f^{1/3}}{x_{\text{sat}}}. \quad (5)$$

这里 x_{sat} 表示满足 $Q = Q_{\text{sat}}$ 的最小 x 值 (位于第一个共振峰处). 数值计算得出, 如果固定 $f = 10\%$, 对于 $m = 4$, $x_{\text{sat}} = 0.72$, $\eta_{\text{min}} = 2.9$; $m = 5$, $x_{\text{sat}} = 0.59$, $\eta_{\text{min}} = 2.1$; $m = 6$, $x_{\text{sat}} = 0.5$, $\eta_{\text{min}} = 1.8$. 其中 $m = 4$ 时的结果 $\eta_{\text{min}} = 2.9$ 甚至与最新报道的高浓度 Ge 粉末的实验结果一致^[18], 这初步证明面积散射效率饱和的假设有可能是正确的. 尽管 $kl = 2$ 也已经很接近于定域化门限, 而且 $kl \leq 1$ 仍然有可能通过有限地增大 f 或使用其他材料而得到, 但是, 这两种不同的结果到底哪一个更合理的, 还是在某种确定的条件下共同影响着光子定域化的实现, 这依然需要广泛的理论研究和实验判断.

在含正常折射率电介质散射体的无损耗介质中, 透明基质的折射率越大, 散射体与基质的相对折射率就越小, 散射体的散射能力就越弱, 因而越不利于光子定域化. 与此相反, 我们的研究进一步表明, 如果散射体是色散电介质, 那么透明基质的折射率越大, 散射体的散射能力就越强, 因而越有利于光子定域化, 如图 4 和图 7 所示.

由于反常色散电介质球所具有的强的散射中红外辐射的机理与无吸收的高折射率介电球散射中红外辐射的机理不同, 所以导致基质的折射率效应在两种系统中的作用完全不同, 这可以这样来理解: 对于 $\alpha\text{-SiC}$, 在剩余射线带内垂直入射反射率高达约 97%, 其原因是 $\alpha\text{-SiC}$ 的复折射率的虚部 (吸收系数) κ 很大, 而实部 n 却非常小, 即红外传能光纤领

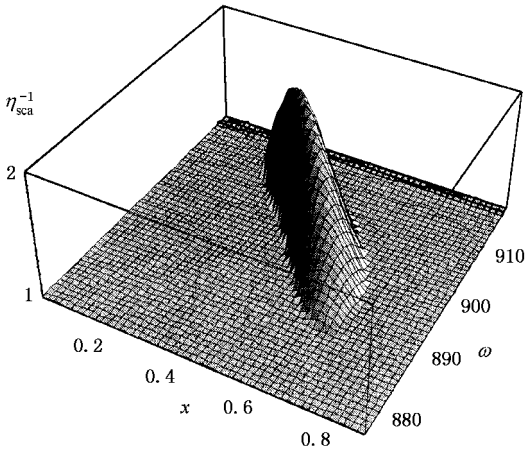


图7 基质为 NaF, α -SiC 的体积比为 $f = 10\%$ 时 η_{sca}^{-1} 与 x 和 ω 的关系 ($\eta_{\text{sca}}^{-1} \geq 1$)

域常说的“折射率小于 1”,例如在频率为 943cm^{-1} ($10.6\text{ }\mu\text{m}$)处 $n = 0.06$, $\mu = 1.13$. 利用材料在剩余射线带内“折射率小于 1”的特性,使无损耗、折射率等于 1 的空气成了近似“全反射”系统中的光密媒质. 如果光密媒质的折射率越大,则越接近于“全反射”. 因此可以说,在中红外光子定域化研究中,对于 $n = 1.32$ 的 NaF 和 $n = 1.52$ 的 KBr,前者适合做含常折射率电介质散射体的无耗介质的基质,而后者更适合做含反常色散电介质散射体的无序介质的基质.

另外,从图 7 和图 4 的对比还发现,随着基质折射率的增大, $\eta_{\text{ext}}^{-1} \geq 1$ 区整体向长波方向移动,即发生红移现象. 例如,在 $f = 10\%$ 时,对于基质为空气的情况, $\eta_{\text{ext}}^{-1} \geq 1$ 区约为 $905\text{—}935\text{cm}^{-1}$;对于基质为 NaF 的情况, $\eta_{\text{ext}}^{-1} \geq 1$ 区约为 $885\text{—}915\text{cm}^{-1}$;对

于基质为 KBr 的情况, $\eta_{\text{ext}}^{-1} \geq 1$ 区约为 $870\text{—}905\text{cm}^{-1}$.

对于二振子型 MgO 做散射体的情况,我们同样发现了在其剩余射线带内的 $\eta_{\text{ext}}^{-1} \geq 1$ 和 $\eta_{\text{sca}}^{-1} \geq 1$ 区,只不过它们的值都略小于 α -SiC 的相应值. 至于其他方面,定性上几乎与 α -SiC 相同,因而可以推测 α -SiC 反映了反常色散电介质散射体的共性.

5. 结 论

基于 Mie 散射理论和低浓度近似,我们系统地研究了中红外光子定域化问题. 通过数值法研究发现,在折射率比大于 3.1 时单粒子各向异性散射因子在散射共振峰附近出现有利于光子定域化的负值区,而当散射体浓度为 10%,相对折射率大于 3.8 时开始出现理想的光子定域化. 如果考虑到散射体平均等效散射截面有可能在临近光学搭接时饱和,那么实现真正的光子定域化仍然很困难. 但无论如何,本研究为在实验上实现光子定域化展示了一条希望之路.

同时,我们还从理论上研究了以反常色散电介质球做散射体的无序介质的中红外光子定域化问题. 以 α -SiC 为例发现,在某些反常色散电介质球做散射体的无序介质中可以实现一定意义下(含一定的吸收)的光子定域化,且频率位于各自的剩余射线带内. 由于没有吸收的系统实际上是不存在的,而对存在吸收的无序系统很少有人研究,所以本文希望,有一定吸收的中红外强散射无序介质的定域化特性能够获得更广泛的研究和应用.

[1] Yablonovitch E 1987 *Phys. Rev. Lett.* **58** 2059
 [2] Jin C J *et al* 1999 *Chin. Phys. Lett.* **16** 20
 [3] Li Z L *et al* 2000 *Chin. Phys. Lett.* **17** 112
 [4] John S 1987 *Phys. Rev. Lett.* **58** 2486
 [5] Zhang D Z *et al* 1994 *Phys. Rev. B* **50** 9810
 [6] Zhang D Z *et al* 1995 *Appl. Phys. Lett.* **67** 2431
 [7] Zhang Z Q *et al* 1996 *Phys. Rev. B* **54** 11891
 [8] Wiersma D S *et al* 1997 *Nature* **390** 671
 [9] Schuurmans F J P *et al* 1999 *Phys. Rev. Lett.* **83** 2183
 [10] Schuurmans F J P *et al* 1999 *Science* **284** 141
 [11] Pinheiro E A *et al* 2000 *Phys. Rev. Lett.* **84** 1435
 [12] Anderson P W 1985 *Pilos. Mag. B* **52** 505
 [13] Garcia N and Genack A Z 1991 *Phys. Rev. Lett.* **66** 1850
 [14] Genack Z and Garcia N 1991 *Phys. Rev. Lett.* **66** 2064

[15] Dalichaouch R *et al* 1991 *Nature* **354** 53
 [16] Rivas J G *et al* 1999 *Europhys. Lett.* **48** 22
 [17] Rivas J G *et al* 2000 *Phys. Rev. E* **62** R4543
 [18] Rivas J G *et al* 2001 *Phys. Rev. E* **63** 046613
 [19] Bass M (Ed.) 1995 *Handbook of Optics* Volume II (New York: McGraw-Hill)
 [20] Austin I G 1958 *Proc. Phys. Soc.* **72** 545
 [21] Liu N Q *et al* 2001 *Chinese Science Bulletin* **46** 2016
 [22] Rotermund F and Petrov V 2000 *Opt. Lett.* **25** 746
 [23] Watson G H *et al* 1987 *Phys. Rev. Lett.* **58** 945
 [24] Bohren C F and Huffman D R 1983 *Absorption and scattering of light by small particles* (New York: John Wiley)
 [25] Busch K *et al* 1994 *Phys. Rev. B* **50** 93

Theoretical study on photon localization in the mid-infrared random media at low density

Liu Xiao-Dong^{1 2)} Li Shu-Guang¹⁾ Hou Lan-Tian¹⁾ Wang Hui-Tian³⁾ Ming Nai-Ben³⁾

¹⁾(*Institute of Infrared Optical Fibers and Sensors ,Yanshan University ,Qinhuangdao 066004 , China*)

²⁾(*Optical Physics Laboratory ,Institute of Physics ,Chinese Academy of Sciences ,Beijing 100080 ,China*)

³⁾(*National Laboratory of Solid State Microstructures , Nanjing University , Nanjing 210093 , China*)

(Received 13 December 2001 ; revised manuscript received 2 April 2002)

Abstract

It is pointed out that some mid-infrared materials with refractive indices larger than that of Ge (the first kind) and with anomalous dispersion (the second kind) can be applied to the investigations of photon localization . Based on the Mie scattering theory of low concentration approximation in the mid – infrared region , some theoretical results are reported on the studies of the localization parameter in the random media containing these two kinds of dielectric spherical scatterers . Strong photon localization can be expected , when the relative refractive index m is large enough , and predominant backscattering occurs when m is large than 3.1 . Strong photon localization with a computable absorption also appears in the Reststrahlen band of abnormal dispersive dielectric scatterers , and the roles of the matrices in these two kinds of random media are very different from each other . The new concept of effective scattering cross section saturation is put forward , and the possibility of perfect localization in mid – IR region is discussed .

Keywords : photon localization , random medium , mid-infrared , anomalous dispersion

PACC : 7155J , 7830 , 4225B