

含金属散射体的中红外无序介质的 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⁾

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)

基于 Mie 散射理论发现, 各种金属在中红外区的各个频率点上的散射行为均极为相近, 是一种在中红外区反照率高但散射效率较低的散射体. 在浓度为 10% 时, 介质的定域化参量最小只能达到 6.6, 并且与体系的常用基质材料无关. 数值研究揭示了这种金属散射体系统与低吸收、高折射率散射体系统间的内在联系.

关键词: 光子定域化, 无序介质, 中红外, Mie 散射, 金属

PACC: 7155J, 7830, 7820W

1. 引言

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^[1-8], 所以光子输运在扩散区与定域化区的转变就类似于高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^[9]. 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随机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.

在光子定域化的概念提出数年后, Arya 等人 and Watson 等人均在可见区探讨过贵金属粒子作为无序介质的散射体的光子定域化问题^[10, 11], 但结论完全相反. Arya 等人重点考虑了金属的负介电函数, 忽略了较小的虚部, 认为贵金属适合于制备无序强光子定域化材料. Watson 等人则认为, 即使反射特性最好的金属, 例如金和银, 在 Mie 共振附近吸收非常强, 经过多次散射后吸收量将非常大, 因而不适合制备无序强光子定域化材料. 因为他们的讨论集中在可见区, 而在可见区, 各种金属的光学特性差别较大, 如银是白色的, 而铜则是黄色的, 所以金属是否适合于制备无序强光子定域化材料不可概而论之. 在远红外或微波区, 金属-电介质混合物的吸收(透

射消光)也得到了广泛研究, 由于介电函数的变化主要取决于固有电偶极子的贡献, 所以金属粒子的散射也很复杂. 而在中红外区, 所有金属的光学特性均类似, 可以由德鲁得(Drude)模型给予精确的描述, 所以就像 Genack 等人在十年前开始专门在微波区探讨光子定域化那样^[12-15], 我们预期在中红外区研究金属是否适合于制备无序强光子定域化材料也将是有广泛意义的, 从而希望能促进光子定域化的理论、实验与应用研究.

本文所要研究的随机散射体为金属球的无序介质, 其背景材料(基质)均被假定为无损耗的空气, KBr 或 AgBr 等折射率较小的中红外透明材料.

2. 理论基础

衡量无损耗无序系统散射光波能力强弱的一个重要的物理量是散射(消光)平均自由程 l , 定义为光波矢方向在被一个散射体随机化前所传播的长度, 因而散射强时 l 小, 散射弱时 l 大. 理想的光子定域化被期望出现在 $kl \leq 1$ (k 为基质介质中的光波矢)时, 即 Ioffe-Regel 临界条件^[1], 所以我们定义 kl 为定域化参量 η . 由于 η 越小越接近于定域化, 所以我们期望得到 $\eta^{-1} \geq 1$, 即 $(kl)^{-1} \geq 1$. 但是, 当散射体为金属时, 散射粒子的散射截面不等于消光截面, 因此我们应该定义两个定域化参量: kl_{scat} 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很复杂, 尤其是对复介电常数的散射体或系统不很成熟, 而低散射体浓度的无序系统有更多的实际意义, 本文就只讨论体积比 $f < 10\%$ 的低浓度情形. 早在 1987 年 Watson 等人已经通过实验证明^[11], 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 Mie 散射理论来处理体积比 $f \approx 10\%$ 的问题.

Mie 散射理论给出球形粒子的散射截面 σ_{sca} 和消光截面 σ_{ext} 分别为^[16]

$$\sigma_{\text{sca}} = Q_{\text{sca}} (\pi R^2), \quad (1)$$

$$\sigma_{\text{ext}} = Q_{\text{ext}} (\pi R^2), \quad (2)$$

其中

$$Q_{\text{sca}} = \frac{1}{x^2} \sum_{\nu=1}^{\infty} 2(2\nu+1) (|a_{\nu}|^2 + |b_{\nu}|^2), \quad (3)$$

$$Q_{\text{ext}} = \frac{1}{x^2} \sum_{\nu=1}^{\infty} 2(2\nu+1) \text{Re} \{a_{\nu} + b_{\nu}\}. \quad (4)$$

这里, 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), a_{ν} 和 b_{ν} 是 Mie 系数.

$$a_{\nu} = \frac{m\psi_{\nu}(mx)\psi'_{\nu}(x) - \psi_{\nu}(x)\psi'_{\nu}(mx)}{m\psi_{\nu}(mx)\xi'_{\nu}(x) - \xi_{\nu}(x)\psi'_{\nu}(mx)}, \quad (5)$$

$$b_{\nu} = \frac{m\psi_{\nu}(x)\psi'_{\nu}(mx) - \psi_{\nu}(mx)\psi'_{\nu}(x)}{m\xi_{\nu}(x)\psi'_{\nu}(mx) - \psi_{\nu}(mx)\xi'_{\nu}(x)}. \quad (6)$$

这里, ψ_{ν} 和 ξ_{ν} 分别为李卡提-贝塞尔 (Riccati-Bessel) 函数.

低散射体浓度近似下, 散射平均自由程 l_{sca} 和消光平均自由程 l_{ext} 可表示为

$$l_{\text{sca}} = \frac{1}{\rho\sigma_{\text{sca}}}, \quad (7)$$

$$l_{\text{ext}} = \frac{1}{\rho\sigma_{\text{ext}}}. \quad (8)$$

这里, 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 $f = \rho(4\pi R^3/3)$, 则两个定域化参量的倒数可表示为

$$\eta_{\text{sca}}^{-1} = \frac{3f}{4} \left(\frac{Q_{\text{sca}}}{x} \right), \quad (9)$$

$$\eta_{\text{ext}}^{-1} = \frac{3f}{4} \left(\frac{Q_{\text{ext}}}{x} \right). \quad (10)$$

3. 结果与讨论

金属作为导体, 与非导体 (绝缘体和半导体) 的光学特性有着显著的区别. 根据金属光学特性的德鲁德 (Drude) 模型, 金属的介电函数 ϵ 与频率 ω 的关系可以表示为

$$\epsilon(\omega) = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + i\gamma\omega}, \quad (11)$$

这里, ω_p 为该金属的等离子频率, γ 为电子的阻尼常数. 通常, $\hbar\omega_p$ 大约为几个到十几个电子伏特 (eV), 对应的光频位于可见或紫外; $\hbar\gamma$ 不到一个电子伏特, 对应的光频位于红外. 例如金属铝 (Al), 在中红外区, $\hbar\omega_p = 12.7 \text{ eV}$, $\hbar\gamma = 0.13 \text{ eV}$. 在可见区, 各种金属的光学特性差别较大, 但在红外区, 它们的光学特性都具有如下的特点: 介电函数的实部有很大的负值, 而虚部有很大的正值, 且随着频率单调地变化, 或者说, 复折射率的实部 n 和虚部 k 都很大, 都随着频率的降低而增大, 但实部总比虚部小.

在中红外区, 人们较习惯用波数来表示辐射频率 ω , 其单位是 cm^{-1} , 那么铝的介电函数可表示为^[17]

$$\epsilon(\omega) = 1 - \frac{1.02 \times 10^{10}}{\omega^2 + 1050i\omega}. \quad (12)$$

较理想的光子定域化应该满足 $kl_{\text{ext}} \approx kl_{\text{sca}} \approx 1$, 即散射体消光的反照率 (albedo) 越大越好. 在单体 Mie 散射理论中, 反照率也可以用 a_{ν} 和 b_{ν} 来表示^[16], 图 1 给出了 $\omega = 1000 \text{ cm}^{-1}$ ($\lambda = 10 \mu\text{m}$) 时 Al 粒子的反照率与 x 的关系. 从图 1 中可以看出, 当 $x > 1$ 时, 粒子消光的反照率非常接近于 100%, 这与金属板对红外线的高反射率完全一致. 同时也说明, 当 $x > 1$ 时, 体系的吸收很弱, 这将有损于光子定域化的实现. 所以, 在下面的研究中, 将主要给出与散射有关的量.

图 2 给出了铝粒子的体积比 $f = 10\%$ 时参量 η_{sca}^{-1} 与 x 和 ω 的关系 (η_{ext}^{-1} 与 x 和 ω 的关系与该图几乎一样, 因而不给出). 由图 2 可以看到, η_{sca}^{-1} 的最大值出现在 $x = 1$ 附近, 仅为 0.15 左右, 即两个定域化参量最小只能达 6.6 左右. 这虽然也可算做较强的散射, 但与理想的定域化相差较远, 自然与直觉上对该类无序介质的期望相反. 另外, 在整个中红外区, 定域化参量曲线几乎与频率 (波长) 无关.

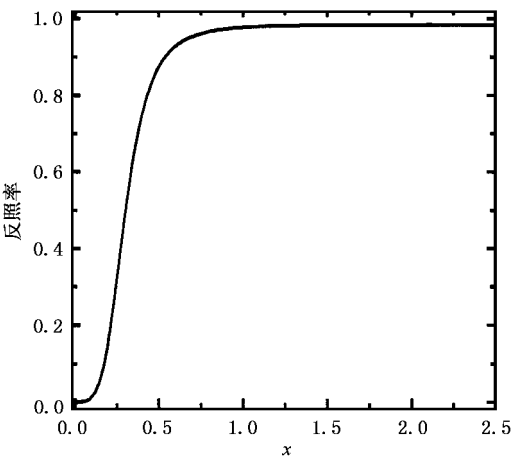


图1 $\omega = 1000\text{cm}^{-1}$ 时,Al 粒子消光的反照率与 x 的关系

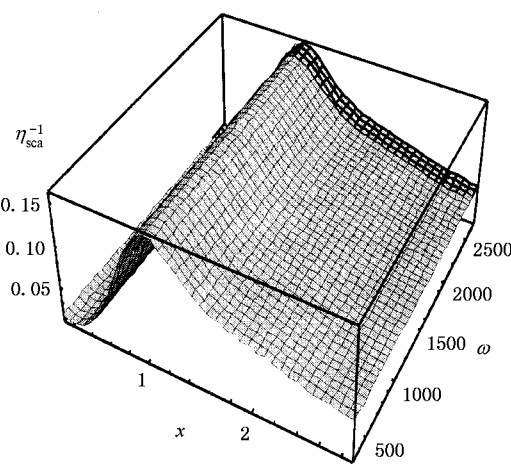


图2 铝粒子的体积比 $f = 10\%$ 时,参量 η_{sca}^{-1} 与 x 和 ω 的关系

我们又选取了有代表性的金属 Ag,Al 和 Fe,计算它们在 $\omega = 1000\text{cm}^{-1}$ 处散射效率因子 Q_{sca} 与 x 的关系,如图 3 所示.计算中使用了如下的光学常数^[17]:Ag 的复折射率 $m = n + i\kappa$ 为 $14 + 54i$,Al 的复折射率 $n + i\kappa$ 为 $62 + 150i$,Fe 的复折射率 $n + i\kappa$ 为 $6 + 31i$.从图 3 中可以看到,尽管三种金属的 n 和 κ 差异较大,但散射效率曲线却非常相似,并且类似于几何光学近似情形.

经过研究我们发现,这种散射的共性是:金属散射体复折射率 m 的实部 n 和虚部 κ 在整个中红外区都很大,即 $|m| \gg 1$,因而可以利用这一条件对精确的 Mie 散射公式进行化简,以期得到与 m 无关的结果.

利用 $|m| \gg 1$ 这一条件,可以将 a_ν 和 b_ν 简化为

$$a_\nu = \frac{\psi'_\nu(x)}{\xi'_\nu(x)}, \tag{13}$$

$$b_\nu = \frac{\psi_\nu(x)}{\xi_\nu(x)}. \tag{14}$$

则由此算得的 Q_{sca} 将近似代表所有金属的面积散射效率,如图 3 的实线所示.从图 3 可以看出,我们的近似方法非常合理,它说明了各种金属在整个中红外区的各个频率点上的散射行为均极为相近,散射效率不超过 2.5,是一种在整个中红外区反照率高但散射效率较低的散射体.由于此处的散射体尺寸与波长在同一个量级,这又不同于传统的瑞利散射(Rayleigh scattering, $R \ll \lambda$ 而且 $x \ll 1$)、瑞利-甘斯散射(Rayleigh-Gans scattering, $|\hat{N} - n_0| \ll 1$ 而且 $|\hat{N} - n_0| x \ll 1$)、光密小球散射(small-dense-spheres scattering, $|m| \gg 1$ 而且 $x \ll 1$)、哈斯特散射(van de Hulst scattering, $|\hat{N} - n_0| \ll 1$ 而且 $R \gg \lambda$)或几何光学近似(geometrical-optics limit, $R \gg \lambda$ 而且 $x \gg 1$)^[18],是一个新的散射近似类型($|m| \gg 1$ 而且 $x \approx 1$).

既然金属散射体的反照率在 $x > 0.5$ 以后就非常接近于 100%,那么与金属球散射的前向、后向性有无联系呢?图 4 给出了三种金属粒子在 $\omega = 1000\text{cm}^{-1}$ ($10\mu\text{m}$) 时,反映散射的前向、后向性的散射角余弦的平均即各向异性散射因子 $g = \langle \cos \theta \rangle$.从图 4 可以看出,在 $x < 1.4$ 的范围内,金属球对中红外辐射的散射是后向占优势的散射,而在 $x > 1.4$ 以后基本上是前向占优势的散射.

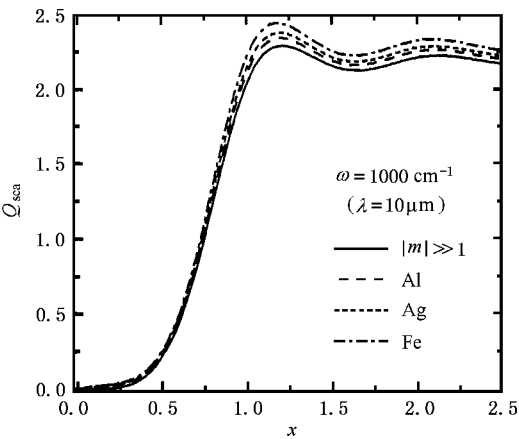


图3 Ag,Al,Fe 和 $|m| \gg 1$ 近似下 Q_{sca} 与 x 的关系

由于常用的背景材料的折射率一般小于 2,所以它对 $|m| \gg 1$ 的条件影响不大,即它几乎不影响金属散射体系统的定域化参量.

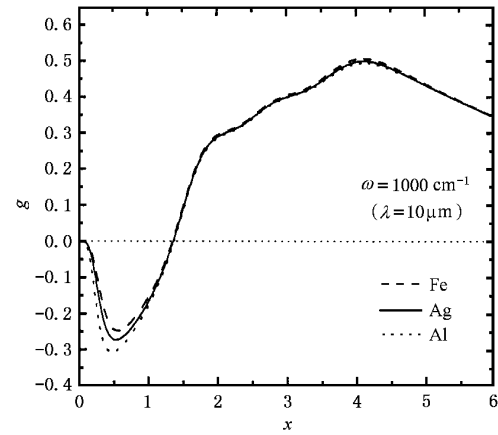
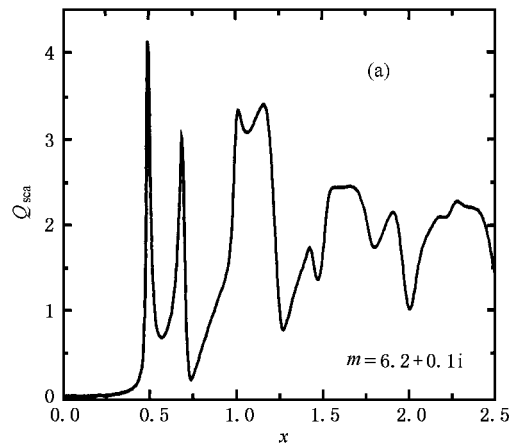


图 4 Ag,Al,Fe 粒子的各向异性散射因子 g

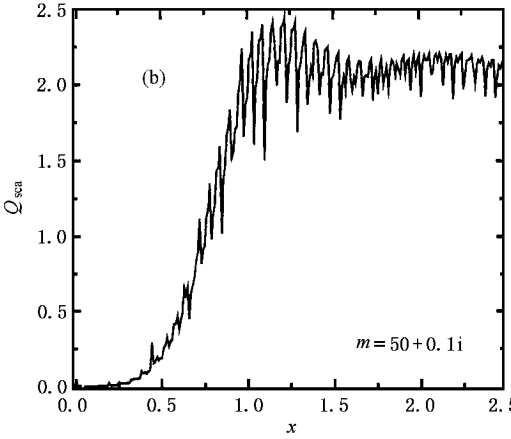
由于面积散射效率不超过 2.5,所以散射体的体积比可以达到 15% 而不至于出现严重的光学搭接,这就使 Mie 理论的适用范围扩大到 15%,而此体积比下定域化参量可以达到 4.4.

在理想的无损耗无序介质中,体系的相对折射率 m 为实数,则 m 越大,散射体的散射效率越高,越容易实现光子定域化.由于 $m \gg 1$,则取该条件下的近似,会得到与该类无序介质完全相同的结果,那么,这两个结果是否矛盾呢?

事实上,在理想的无吸收无序介质中,如果 m 非常大,虽然散射效率曲线会出现许多峰值达十几甚至几十的共振峰(这是产生强光子定域化的根本原因),但这些共振峰都非常窄,以致于对散射体粒径的一致性要求非常高.而且,一旦在体系中引入适当大小的吸收,即在 m 中加入一虚部,则这些尖峰将明显地被压抑,其轮廓就开始向金属情形过渡.作为例子,我们绘出 $m = 6.2 + 0.1i$ 和 $50 + 0.1i$ 的散射体的面积散射效率曲线,如图 5(a)和(b)所示.从图 5(a)可以看出,由于在 m 中引入一虚部 0.1i,则第一个散射共振峰的峰值由 $m = 6.2$ 时的 11.5 减小为 4.2,甚至还达不到 $m = 2.73$ 时的 7.2.从图 5(b)可以看出, m 的实部非常大以后,虚部 0.1i 的影响更明显.如果进一步加大 m 的虚部,则无吸收无序介质将向这类含金属散射体的中红外无序介质过渡,即尽管单粒子消光的反照率接近于 100%,但定域化仍然受到巨大的压抑.



(a)



(b)

图 5 $m = 6.2 + 0.1i$ (a), $50 + 0.1i$ (b) 的散射体的散射效率 Q_{sca} 与 x 的关系

4. 结 论

基于 Mie 散射理论和低浓度近似,从理论上研究了以金属球做散射体的无序介质的中红外光子定域化问题.本文以 Ag,Al 和 Fe 为例,通过数值法研究发现,在整个中红外区,在金属球做散射体的无序介质中几乎不可能实现理想的光子定域化,尽管散射体的反照率接近于 100%.研究还发现,常用的背景材料一般对 $|m| \gg 1$ 的条件影响不大,所以它几乎不影响金属散射体系统的定域化参量.

[1]

John S 1987 *Phys. Rev. Lett.* **58** 2486

[2]

Yablonovitch E 1987 *Phys. Rev. Lett.* **58** 2059

[3]

Zhang D Z *et al* 1994 *Phys. Rev. B* **50** 9810

[4]

Zhang D Z *et al* 1995 *Appl. Phys. Lett.* **67** 2431

[5]

Wiersma D S *et al* 1997 *Nature* **390** 671

[6]

Schuurmans F J P *et al* 1999 *Science* **284** 141

[7]

Rivas J G *et al* 1999 *Europhys. Lett.* **48** 22

[8]

Rivas J G *et al* 2001 *Phys. Rev. E* **6304** 6613

[9]

Jin C J *et al* 1999 *Chin. Phys. Lett.* **16** 20

[10]

Arya K, Su Z B, and Birman J L 1986 *Phys. Rev. Lett.* **57** 2725

[11]

Watson G H *et al* 1987 *Phys. Rev. Lett.* **58** 945

[12]

Garcia N and Genack A Z 1991 *Phys. Rev. Lett.* **66** 1850

[13]

Genack A Z and Garcia N 1991 *Phys. Rev. Lett.* **66** 2064

[14]

Stoytchev M and Genack A Z 1999 *Opt. Lett.* **24** 262

[15]

Chabanov A A and Genack A Z 2001 *Phys. Rev. Lett.* **87** 3901

[16]

Bohren C F and Huffman D R 1983 *Absorption and scattering of light by small particles* (New York : John Wiley) Chap 4, 5 and 10

[17]

Bass M 1995 *Handbook of Optics* Volume II (New York : McGraw-Hill) Chap 36.

[18]

Newton R G 1982 *Scattering theory of waves and particles* (New York : Springer-Verlag)

Theoretical study on mid-infrared photon localization in the media using metal spheres as random scatterers

Liu Xiao-Dong¹⁾²⁾ Li Shu-Guang¹⁾ Hou Lan-Tian¹⁾ Wang Hui-Tian³⁾

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 metal materials in mid – infrared region can be applied to the investigations of photon localization. Based on the Mie scattering theory at low concentration approximation in the mid – infrared region, some theoretical results are reported on the study of the localization parameter in the disordered system containing spherical metal scatterers. It is found that strong photon localization does not appear in this kind of random medium, and both of the minimum values of two localization parameters reach only about 6.6 when the volume ratio of the metals is 10% , though a single particle has a large albedo. Also, the role of the matrices in this kind of random medium on the photon localization is very different from those in the random medium containing absorption – free scatterers or abnormal dispersive dielectric scatterers, that is, has no effects on the photon localization.

Keywords : photon localization, random medium, mid-infrared, Mie scattering, metal
PACC : 7155J, 7830, 7820W