

# 颗粒复合介质在高温下的光学双稳特性\*

陆兴中<sup>1,2)</sup> 高 雷<sup>1)</sup>

<sup>1)</sup> 苏州大学物理科学与技术学院, 苏州 215006)

<sup>2)</sup> 常州工学院理学院, 常州 213002)

(2003 年 12 月 3 日收到, 2004 年 3 月 23 日收到修改稿)

利用 Maxwell-Garnett 近似, 结合谱表示方法, 理论研究了金属/绝缘颗粒复合介质的光学双稳特性随环境温度的依赖关系. 数值结果表明, 体系的光学双稳区域随环境温度的升高而逐渐变窄, 甚至消失. 还进一步研究了复合体系的折射系数和消光系数随温度的变化关系.

关键词: 颗粒复合介质, 光学双稳

PACC: 7820W, 4265P

## 1. 引 言

自光学双稳态发现以来, 关于光学双稳态的研究在近 30 年中有很大进展, 各种光学双稳态器件的材料和结构不断发展, 使光学双稳态作为一种以光控光的器件更接近实际应用. 同一个光双稳器件或者几个光双稳器件的组合在不同的工作状态下可能具有不同的输出-输入特性, 能获得不同的光学信息处理功能, 可以广泛用于光通信、光计算、光传感以及激光的控制和光学精密计量技术中, 是实现光信息处理的基本单元<sup>[1,2]</sup>.

理论和实验表明, 由金属颗粒嵌入绝缘介质的颗粒复合体在一定条件下能够呈现双稳状态<sup>[3-5]</sup>. 一般而言, 对非线性颗粒复合材料的非线性光学性质的研究是较为困难的. 因此, 人们对光学双稳的研究也主要集中在一些可精确求解的微几何结构<sup>[6]</sup>. 后来, Bergman 小组<sup>[7,8]</sup>发展了变分的方法, 研究线性的金属颗粒无规或周期性地嵌入非线性绝缘基质的复合体系中的光学双稳行为. 最近, Gao 等建立在自洽的平均场近似<sup>[9]</sup>和谱表示理论<sup>[10,11]</sup>的基础上开展了对颗粒复合介质的非线性光学性质的研究<sup>[12,13]</sup>, 并提出用一般理论研究光学双稳<sup>[14]</sup>. 另一方面, 人们对金属颗粒复合材料线性和非线性光学性质的研究大多局限在室温条件. 而在许多场合下, 环境工作

的温度往往很高, 此时金属组分的介电常数将随温度发生显著变化, 随之影响体系的有效物理性质. 例如, Chiang 等报告了颗粒复合体系在高温下的线性光学性质<sup>[15,16]</sup>, Gao 等<sup>[17,18]</sup>研讨了在弱非线性条件下金属颗粒复合体系的非线性光学性质随环境温度的变化关系. 但是这些研究局限于弱非线性条件, 当外加电场很强时弱非线性条件不再成立, 金属颗粒复合体系可展现出光学双稳行为. 因此, 很有必要研究金属颗粒复合体系中的光学双稳性质对环境温度的依赖. 我们考虑到环境温度对组分介电常数的影响, 利用 Maxwell-Garnett 近似并结合谱表示理论来进行研究. 本文的方法可以直接求出温度依赖的有效介电常数, 从而有助于进一步研究环境温度对复合体系的折射系数与消光系数的影响.

## 2. 理论模型与公式

设有金属纳米颗粒任意无规嵌入介电或绝缘基质中的复合系统. 假定微粒的尺寸远小于入射光波波长, 从而可以采用准静态近似<sup>[15,19]</sup>, 再假定主体基质是线性的, 其介电函数为  $\epsilon_2^0$ , 金属颗粒杂质的电位移矢量  $D$  与电场强度  $E$  之间具有非线性关系, 即

$$D = \epsilon_1 \epsilon_0 E = (\epsilon_1^0 + \chi_1 |E|^2) \epsilon_0 E, \quad (1)$$

式中  $\epsilon_1^0$  表示金属颗粒组元的线性介电函数,  $\chi_1$  表示三阶非线性极化率. 当金属颗粒组元的非线性相

\* 国家自然科学基金(批准号: 10204017)和江苏省自然科学基金(批准号: BK2002038)资助的课题.

应与线性部分可以相互比较时 根据平均场理论, 可将非线性金属颗粒组分的介电函数  $\epsilon_1$  近似为

$$\epsilon_1 = \epsilon_1^0 + \chi_1 |E_1|^2 \approx \epsilon_1^0 + \chi_1 \langle |E_1|^2 \rangle. \quad (2)$$

我们利用 Maxwell-Garnett 模型, 局域场的  $\langle |E_1|^2 \rangle$  可以利用谱表示给出, 即

$$\langle |E_1|^2 \rangle = \frac{1}{f} \int \frac{|s|^2 \mu(x)}{|s-x|^2} dx E_0^2, \quad (3)$$

其中  $s = \frac{\epsilon_2^0}{\epsilon_2^0 - \epsilon_1}$ , 对于本文所研究的体系, 其谱密度形式<sup>[11]</sup>为

$$\mu(x) = f \delta \left[ x - \frac{1}{3}(1-f) \right]. \quad (4)$$

将方程(4)代入方程(3)得

$$\langle |E_1|^2 \rangle = \frac{|s|^2}{\left| s - \frac{1-f}{3} \right|^2} E_0^2. \quad (5)$$

(5)式是一个含  $\langle |E_1|^2 \rangle$  的自洽方程, 在给定  $\epsilon_1^0, \chi_1, \epsilon_2^0, f$  情况下可以从数值上得到  $\langle |E_1|^2 \rangle$  与电场  $E_0^2$  的关系.

对于本文所研究的对象, 其有效介电函数可由下列方程给出:

$$\frac{\epsilon_e - \epsilon_2^0}{\epsilon_e + 2\epsilon_2^0} = f \frac{\epsilon_1 - \epsilon_2^0}{\epsilon_1 + 2\epsilon_2^0}, \quad (6)$$

并可求得复合体系的折射系数  $n$  和消光系数  $k$ ,

$$n = \sqrt{\frac{\text{Re}(\epsilon_e) + \sqrt{[\text{Re}(\epsilon_e)]^2 + [\text{Im}(\epsilon_e)]^2}}{2}}, \quad (7)$$

$$k = \sqrt{\frac{-\text{Re}(\epsilon_e) + \sqrt{[\text{Re}(\epsilon_e)]^2 + [\text{Im}(\epsilon_e)]^2}}{2}}. \quad (8)$$

为了研究温度对有效介电函数的影响, 我们主要考虑金属组分的介电函数随温度变化的关系, 而绝缘介质的介电函数几乎不随温度变化. 金属组分的线性介电函数采用 Drude 模型, 即

$$\epsilon_1^0 = 1 + \delta \epsilon_e - \frac{\omega_p^2}{\omega(\omega + i\omega_c)}, \quad (9)$$

$\delta \epsilon_e$  是考虑束缚电子对介电函数的贡献<sup>[20]</sup>,  $\omega_p$  是等离子频率, 数值由下式给出:

$$\omega_p = \sqrt{\frac{Ne^2}{m^* \epsilon_0}}, \quad (10)$$

其中  $N$  和  $m^*$  分别为电子密度和电子的有效质量,  $\epsilon_0$  是真空介电常数. 由于  $N$  和  $m^*$  随温度的变化与  $\omega_c$  相比非常微弱, 可以忽略不计<sup>[21]</sup>, 因此温度对介电常数的影响主要来源于与温度有关的碰撞频率

$\omega_c(T)$ . 考虑电子-声子散射及电子-电子散射<sup>[21, 22]</sup>,  $\omega_c$  可分为两部分,

$$\omega_c = \omega_{cp} + \omega_{ce}. \quad (11)$$

这里,  $\omega_{cp}$  代表电子-声子散射的贡献, 采用德拜模型可以表述为

$$\omega_{cp} = \frac{\omega_p^2}{\sigma(0)} \frac{\frac{1}{10} + \left(\frac{T}{\theta}\right)^5 \int_0^{\theta/T} \frac{y^4}{e^y - 1} dy}{\left(\frac{T}{\theta}\right) \int_0^1 \frac{y^5}{(e^y - 1)(1 - e^{-y})} dy} \quad (12)$$

其中  $\theta$  是德拜温度,  $\sigma(0)$  是当  $T = \theta$  时的直流电导率.  $\omega_{ce}(T)$  代表电子-电子的相互作用对碰撞频率的贡献, 它与金属的费密能的关系是<sup>[14, 19]</sup>

$$\omega_{ce} = \frac{1}{12} \pi^3 \frac{\Gamma \Delta}{\hbar E_F} \left[ (k_B T)^2 + \left( \frac{\hbar \omega}{2\pi} \right)^2 \right], \quad (13)$$

其中  $\Gamma$  和  $\Delta$  分别表示费米面的平均散射概率和倒逆散射,  $k_B$  和  $\hbar$  为玻尔兹曼常数和普朗克常数. 将(9)–(13)式代入(3)式即可研究温度对双稳的影响.

### 3. 数值结果及讨论

在上述理论推导的基础上, 下面我们通过数值计算来研究颗粒复合体光学双稳的特征. 为简单起见, 取非线性极化率  $\chi_1$  为  $1 \times 10^{-8} (\text{m/V})^2$ 、体积分数  $f$  为 0.05, 介质的线性介电函数  $\epsilon_2^0$  取值参照文献<sup>[23]</sup>.

首先, 我们研究在入射光频率远离表面等离子共振频率时的情形, 电场强度与平均电场在不同温度下的关系如图 1 所示.

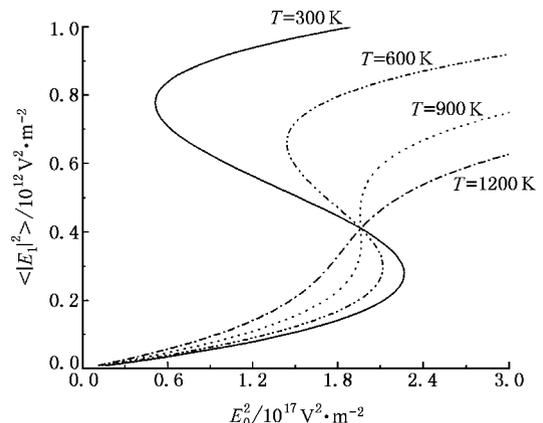


图 1 入射频率  $\omega = 0.1 \text{ eV}$  时电场强度与平均电场的关系

图 1 表明, 当入射频率  $\omega = 0.1 \text{ eV}$  时, 双稳曲线

的两阈值随着温度升高呈现出一增一减的趋势,且逐渐向中间靠拢,阈值宽度变窄,并在某一温度处双稳态消失.在  $T = 300\text{ K}$  时,阈值宽度最大.随着温度升高宽度减小.在  $T = 900\text{ K}$  时,宽度为零.这是双稳状态消失的临界点.有趣的是不同温度的曲线总是通过同一点,可能该点处的  $(E_0^2, \langle |E_1|^2 \rangle)$  与温度无关.再看入射光频率靠近表面等离子共振频率时的情形,电场强度与平均电场在不同温度下的关系如图 2 所示.

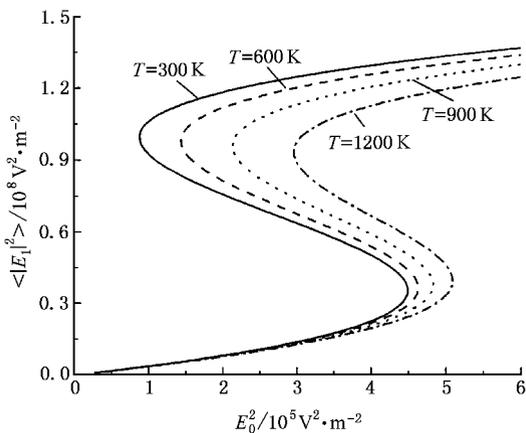


图 2 入射频率  $\omega = 3.1\text{ eV}$  时电场强度与平均电场的关系

从图 2 可以看出,当入射频率接近共振频率时,出现双稳现象所需的输入电场  $E_0$  变小.与图 1 显著不同的是,双稳曲线的两阈值均随温度升高而升高,但同样的情况是因增幅不同阈值宽度也变窄,所以在该数值下温度升高也不利于双稳的出现,并当  $\omega$  值更大时,双稳也随温度升高消失.总之,随着温度升高,双稳宽度减小,双稳现象易消失.之所以出现这样的情况,是因为形成光学双稳的必要条件是金属介电常数大实部、小虚部.但从方程看,随着温度升高,介电常数实部负值变小,尤其是虚部变大,不利于双稳的出现.因此我们可以在低温处观察到有双稳出现,而在高温处双稳消失.

其次,我们再讨论双稳域值随温度变化的关系.光学双稳随温度变化的特点也可以通过其上下阈值随温度的变化来反映.

结合图 3、图 4 可以看出,随着  $\omega$  值的增加,上阈值逐渐由随温度减小变为随温度增加,下阈值的增幅亦变大,两阈值相交的温度值越来越小,此即双稳消失处.在低频时随着温度升高上阈值减小、下阈值增加(见图 3);在较高频率时上下阈值同时增加,但下阈值增幅要快(见图 4).

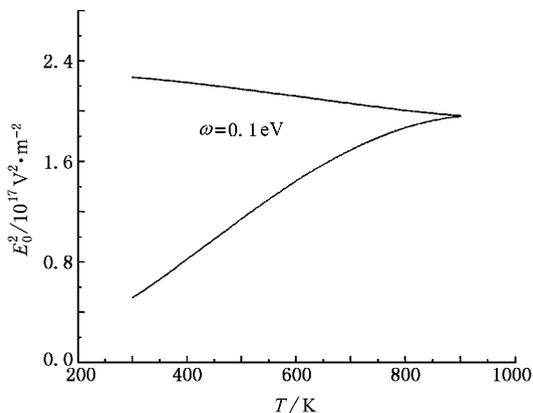


图 3 入射频率  $\omega$  取较小数值时两阈值随温度变化

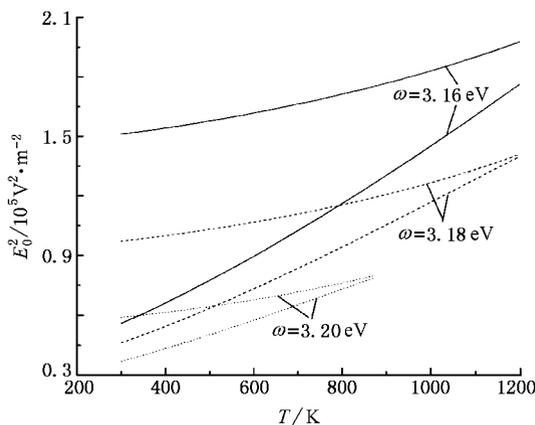


图 4 入射频率  $\omega$  接近共振频率时两阈值随温度变化

从计算结果看,当入射频率  $\omega$  在  $0.1\text{—}3.2\text{ eV}$  范围内取值时,光学双稳可以出现;同时可以看到温度对双稳有显著影响,温度升高导致双稳现象的消失.

此外,从图 5、图 6 还可以看到,在双稳区域内消光系数和折射系数对应输入也有两个不同的数

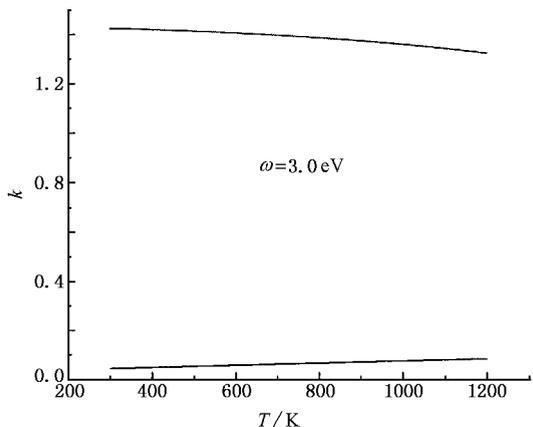


图 5 消光系数与温度变化的关系

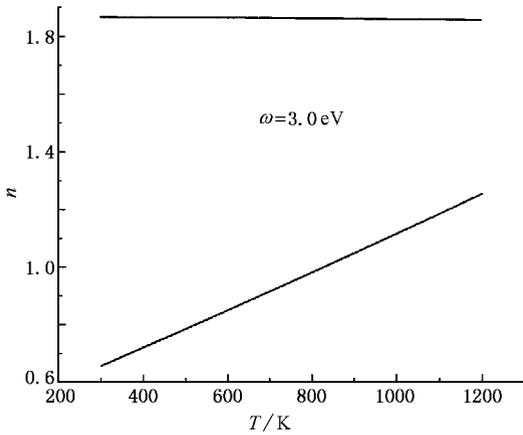


图 6 折射系数与温度变化的关系

值,分别对应两个不同阈值.在入射频率  $\omega = 3.0 \text{ eV}$  时,小的消光系数对应较大阈值且略随温度减小,大的消光系数对应较小阈值且略随温度增加;小的折射系数对应较小阈值且略随温度减小,大的折射系数对应较大阈值且随温度增加.

显然,折射系数和消光系数在双稳区域内对一个  $E_0$  各有两个取值,一增一减,具体取何值完全依赖于  $E_0$  的初值和变化趋势.这是光学双稳区别于线性情况的一个特点,由文献 [15, 18] 可知,在线性和弱非线性情形下,折射系数和消光系数只取一值且随温度略有单调变化.

## 4. 结 论

本文重点讨论了颗粒复合体的光学双稳性质,分析了环境温度对复合体光学双稳状态的影响,讨论了低频和高频时上下阈值以及消光系数、折射系数随温度变化的关系.另外,我们的工作可以直接推广到组分颗粒与金属均为非线性情形.本文所考虑的系统是具有 Maxwell-Garnett 弥散型微结构,该微结构的性质适合于较低的体积分.关于高体积分的情形,可以引入 Bruggeman 的对称模型,这将另文讨论.

[ 1 ] Li C F 1996 *Physics* **5** 267 ( in Chinese ) [ 李淳飞 1996 物理 **5** 267 ]  
 [ 2 ] Li J Q , Li C F , Xin L *et al* 1999 *Acta Phys. Sin.* **48** 1052 ( in Chinese ) [ 李俊庆、李淳飞、辛 丽等 1999 物理学报 **48** 1052 ]  
 [ 3 ] Leung K M 1986 *Phys. Rev. A* **33** 2461  
 [ 4 ] Haus J W , Kalyaniwalla N , Inguva R *et al* 1989 *J. Opt. Soc. Am. B* **6** 797  
 [ 5 ] Kalyaniwalla N , Haus J W , Inguva R *et al* 1990 *Phys. Rev. A* **42** 5613  
 [ 6 ] Levy O , Bergman D J 1994 *Physica A* **207** 157  
 [ 7 ] Bergman D J , Levy O , Stroud D 1994 *Phys. Rev. B* **49** 129  
 [ 8 ] Levy-Nathansohn R , Bergman D J 1995 *J. Appl. Phys.* **77** 4263  
 [ 9 ] Gao L , Li Z Y 1996 *Phys. Lett. A* **219** 324  
 [ 10 ] Bergman D J 1978 *Phys. Rep.* **43** 277  
 [ 11 ] Ma H R , Xiao R F , Sheng P 1998 *J. Opt. Soc. Am. B* **15** 1022

[ 12 ] Xie B C , Gao L 2000 *Acta Phys. Sin.* **49** 365 ( in Chinese ) [ 谢炳川、高 雷 2000 物理学报 **49** 365 ]  
 [ 13 ] Gao L , Hong G 2003 *Acta Phys. Sin.* **52** 576 ( in Chinese ) [ 高雷、洪 刚 2003 物理学报 **52** 576 ]  
 [ 14 ] Gao L , Gu L P , Li Z Y 2003 *Phys. Rev. E* **68** 66601  
 [ 15 ] Chiang H P , Leung P T , Tse W S 1997 *Solid State Commun.* **101** 45  
 [ 16 ] Gao L , Li Z Y 1998 *Solid State Commun.* **107** 751  
 [ 17 ] Gao L , Li Z Y 2000 *Phys. Status. Solidi B* **218** 571  
 [ 18 ] Gao L , Li Z Y 2002 *J. Appl. Phys.* **91** 2045  
 [ 19 ] Stroud D , Wood V E 1989 *J. Opt. Soc. Am. B* **6** 778  
 [ 20 ] Beach R T , Christy R W 1997 *Phys. Rev. B* **16** 5277  
 [ 21 ] Ujihara K 1972 *J. Appl. Phys.* **43** 2376  
 [ 22 ] Leung P T , Hinder M H , Sanchez E J 1996 *Phys. Rev. B* **53** 2659  
 [ 23 ] Nicorovici N A , McKenzie D R , McPhedran R C 1995 *Opt. Commun.* **117** 151

# Optical bistability in granular composite media at high temperatures<sup>\*</sup>

Lu Xing-Zhong<sup>1,2)</sup> Gao Lei<sup>1)</sup>

<sup>1)</sup>( Department of Physics ,Suzhou University ,Suzhou 215006 ,China )

<sup>2)</sup>( School of Science ,Changzhou Institute of Technology ,Changzhou 213002 ,China )

( Received 3 December 2003 ; revised manuscript received 23 March 2004 )

## Abstract

Optical bistability has been investigated in granular metal/dielectric composite media at high temperatures. Based on Maxwell-Garnett approximation and the spectral representation , we calculate numerically the electric field  $\langle |E_1|^2 \rangle$  as a function of the applied electric field  $E_0^2$  , and thus the optical bistability can be studied. We show that the width of optical bistability decreases with increasing temperature. Furthermore , we study the dependence of the refractive index and the extinction coefficient on the temperature.

**Keywords** : composite media , optical bistability

**PACC** : 7820W , 4265P

---

<sup>\*</sup> Project supported by the National Natural Science Foundation of China ( Grant No. 10204017 ) and the Natural Science Foundation of Jiangsu Province , China ( Grant No. BK2002038 ).