

光子晶体对非晶纳米团簇辐射特性的影响^{*}

王慧琴^{1)B)} 刘正东^{1)B)†}

1) 南昌大学材料科学与工程学院, 南昌 330031)

2) 南昌大学纳米技术研究中心, 南昌 330047)

3) 南昌大学物理实验中心, 南昌 330031)

(2008 年 6 月 23 日收到, 2008 年 9 月 17 日收到修改稿)

用有限时域差分法研究了非晶 ZnO 纳米团簇的辐射频谱, 结果显示频谱呈自发辐射的特性. 为了对非晶纳米团簇的辐射输出进行有效的控制和利用, 提出了利用光子晶体来控制纳米团簇的自发辐射, 使之向所需要的频率内辐射的理论设计, 并构想了一种制备简单、成本较低的实现方法, 依据这种设想构建了一个二维系统, 对其辐射特性进行数值模拟, 结果显示光被有效地控制. 为制备可嵌入到集成光路中的、具有良好可加工性能的低阈值微型激光器提供了一条新途径.

关键词: 有限时域差分法, 光子晶体, 非晶纳米团簇, 辐射特性

PACC: 4225, 4260D

1. 引 言

自发辐射是激光材料最重要的现象之一, 往往引起很大的能量损耗, 因此成为了发光器件性能的瓶颈之一^[1-4]. 光子晶体对电磁模式的调制是光子晶体最吸引人的特性, 对很多光学现象产生了深远的影响^[5-9], 如果能利用光子晶体控制自发辐射向所需要的频率内辐射, 不单单能大幅度地提高器件性能, 而且能制备诸如超低阈值激光器.

发光半导体 ZnO 单晶结构(如单晶膜、纳米线、纳米针等)受激辐射容易, 发射的光谱质量高, 但由于其生长难度大, 而且受到衬底选择的限制^[10-14], 一直未能成为广泛应用的主流方向. 而 ZnO 纳米晶结构(非晶纳米团簇)较易生长, 且当微晶结构边界的线度接近于紫外发射峰波长或其倍数时, 微晶自身就能成为激光谐振腔, 因此在较低的光泵阈值下就能实现紫外受激发射, 因此引起了人们的广泛关注^[15-24]. 本文用有限时域差分法研究了非晶纳米团簇的辐射特性, 结果显示其频谱呈自发辐射的特性. 为了对非晶纳米团簇的辐射输出进行有效的控制, 提出了将团簇置于光子晶体中的设计, 并构想了一种工艺简单、成本较低的制备方法, 依据这种设

想构建了一个二维系统, 对其辐射特性进行数值模拟, 结果显示光能被光子晶体有效地控制. 为制备可嵌入到集成光路中的、具有良好可加工性能的低阈值微型激光器提供了一条新途径.

2. 纳米晶团簇的辐射场的能量分布

2.1. 空气中纳米晶团簇的光场分布

据实验观察, 非晶纳米团簇是一种短片段有序晶体而长程无序的无规网络结构. 在一个单团簇中包含许多纳米量级的微晶粒子, 这些微晶粒子无序地排列, 因此单颗团簇就是一个无序系统. 用随机函数来模拟微晶粒子的分布, 模拟产生了一个尺寸约为 $6\ \mu\text{m} \times 6\ \mu\text{m}$ 的圆形团簇, 并将这样一个团簇置于空气中. 设团簇中的微晶粒子是六边形的 ZnO 微晶粒子, 粒子尺寸大约为 300 nm, 这些微晶粒子随机地排列在团簇中, 这个圆形团簇置于空气中, 如图 1 所示.

为了考察光在团簇中的分布特性, 用有限时域差分(FDTD)法对图 1 所示的无序系统进行其光场分布的数值模拟.

在二维介质中, TM 模的 Maxwell 方程为

^{*} 国家自然科学基金(批准号: 60768001)和江西省自然科学基金(批准号: 2007gzw2106)资助的课题.

[†] 通讯联系人. E-mail: lzldgroup@ncu.edu.cn

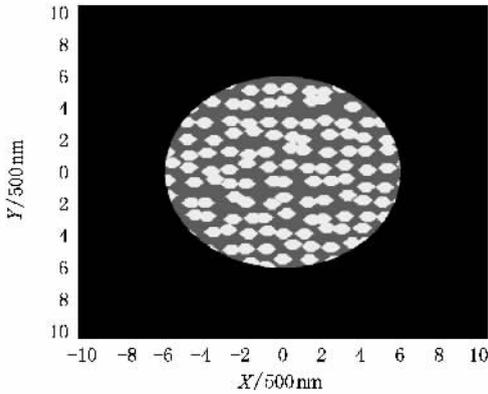


图1 空气中纳米微晶团簇的微晶粒子分布

$$\begin{aligned} \frac{\partial E_z}{\partial x} &= \mu \frac{\partial H_y}{\partial t}, \\ \frac{\partial E_z}{\partial y} &= \mu \frac{\partial H_x}{\partial t}, \\ \frac{\partial H_y}{\partial x} - \frac{\partial H_x}{\partial y} &= \epsilon(r) \frac{\partial E_z}{\partial t}. \end{aligned} \quad (1)$$

设在介质的 x 和 y 方向上的空间步长分别是 Δx 、 Δy , 时间步长为 Δt , 考虑到系统的开放性, 采用完全匹配层 (perfectly matched layers, PML) 吸收边界的方式进行计算. TM 模的 FDTD 的基本方程为

$$\begin{aligned} H_x^{n+\frac{1}{2}}(i, j) &= H_x^{n-\frac{1}{2}}(i, j) \\ &- \frac{\Delta t}{\mu} \frac{E_z^n(i, j + \frac{1}{2}) - E_z^n(i, j - \frac{1}{2})}{\Delta y}, \end{aligned} \quad (2)$$

$$\begin{aligned} H_y^{n+\frac{1}{2}}(i, j) &= H_y^{n-\frac{1}{2}}(i, j) \\ &- \frac{\Delta t}{\mu} \frac{E_z^n(i + \frac{1}{2}, j) - E_z^n(i - \frac{1}{2}, j)}{\Delta x}, \end{aligned} \quad (3)$$

$$\begin{aligned} E_z^{n+1}(i, j) &= E_z^n(i, j) - \frac{\Delta t}{\epsilon(i, j)} \\ &\times \left[\frac{H_x^{n+\frac{1}{2}}(i, j + \frac{1}{2}) - H_x^{n+\frac{1}{2}}(i, j - \frac{1}{2})}{\Delta y} \right. \\ &\left. - \frac{H_y^{n+\frac{1}{2}}(i + \frac{1}{2}, j) - H_y^{n+\frac{1}{2}}(i - \frac{1}{2}, j)}{\Delta x} \right]. \end{aligned} \quad (4)$$

取空间步长 $\Delta x = \Delta y = 10 \text{ nm}$, 时间步长 $\Delta t = 2.357 \times 10^{-17} \text{ s}$, 脉冲光源的脉宽取 $500 \Delta t$. 其中微晶粒子

ZnO 的介电常数用复数形式表示^[25], 设其为 $\epsilon_a = \epsilon_{a1} + i\epsilon_{a2}$, 取 $\epsilon_{a1} = 5.4$, 其虚部表示介质的增益或色散, 当 $\epsilon_{a2} < 0$ 时表示介质的增益, 取

$$\epsilon_{a2} = -0.003 \exp[-4(\lambda - \lambda_0)(\Delta\lambda)^{-1}],$$

其中 λ 为波长, λ_0 为增益的中心波长, $\Delta\lambda$ 为增益谱的半高宽, 团簇中的基质材料的介电常数 $\epsilon_b = 2$; 团簇周围空气的介电常数 $\epsilon_c = 1$.

在图 1 所示介质的正上方引入一束波长为 600 nm 的时域高斯短脉冲的 TM 偏振光源作为激励源, 分别获得 5000, 10000, 15000, 20000 步时的 $|E_z|$ 的空间分布, 结果如图 2 所示. 从图 2 中可以看出介质中的整体光强都比较小, 而且随时间增加而减少. 图 2(a) 为 5000 步时在介质中 $|E_z|$ 的空间分布, 其最大值不超过 2; 到 10000 步时最大值减小至不到 0.2, 如图 2(b); 图 2(c) 显示在 15000 步时最大值只有约 0.05, 到 20000 步时几乎没有能量留在介质中了, 如图 2(d). 这个结果表明单纯的一个半导体团簇虽然包含许多微晶粒子, 但这种系统局域光的能力有限, 只有在强激发源的激发下才可能出现激光现象, 因此激光阈值要求比较高.

2.2. 光子晶体中纳米团簇的光场分布

理论证明光在光子晶体中有较低的群速度, 因此能延长激发光与活性物质相互作用的时间, 从而提高增益. 同时, 光子晶体中复杂的场分布, 也使得光增益的空间分布产生了很大的变化. 为了探讨光子晶体对非晶纳米团簇中的电磁模式的调制, 我们将图 1 所示的团簇置于光子晶体中, 研究在同样的条件下其光场分布和频谱的变化. 考察实验制备的可行性, 我们考察一种制备要求不高、成本较低的方案, 即将由纳米团簇插入到两层由均匀的胶体微粒以自组装方式形成的胶体结晶薄膜中, 利用胶体结晶薄膜之间的布拉格反射形成共振微腔, 从而实现了对非晶纳米团簇的辐射频谱的控制. 设上下表层的光子晶体是由均匀的圆形聚苯乙烯微粒经硅锆固化而形成的胶体结晶薄膜, 聚苯乙烯微粒的尺寸为 200 nm , 介电常数为 2.5, 固化的硅锆材料的介电常数为 11.9, 中间为图 1 所示的 ZnO 团簇, 如图 3 所示.

用前面所述同样的光在同一位置激发该系统, 用同样的方法进行模拟计算, 分别获得 10000, 20000, 30000, 40000 步时的 $|E_z|$ 的空间分布, 结果如图 4 所示. 图 4(a) 中显示在 10000 步时 $|E_z|$ 在整个

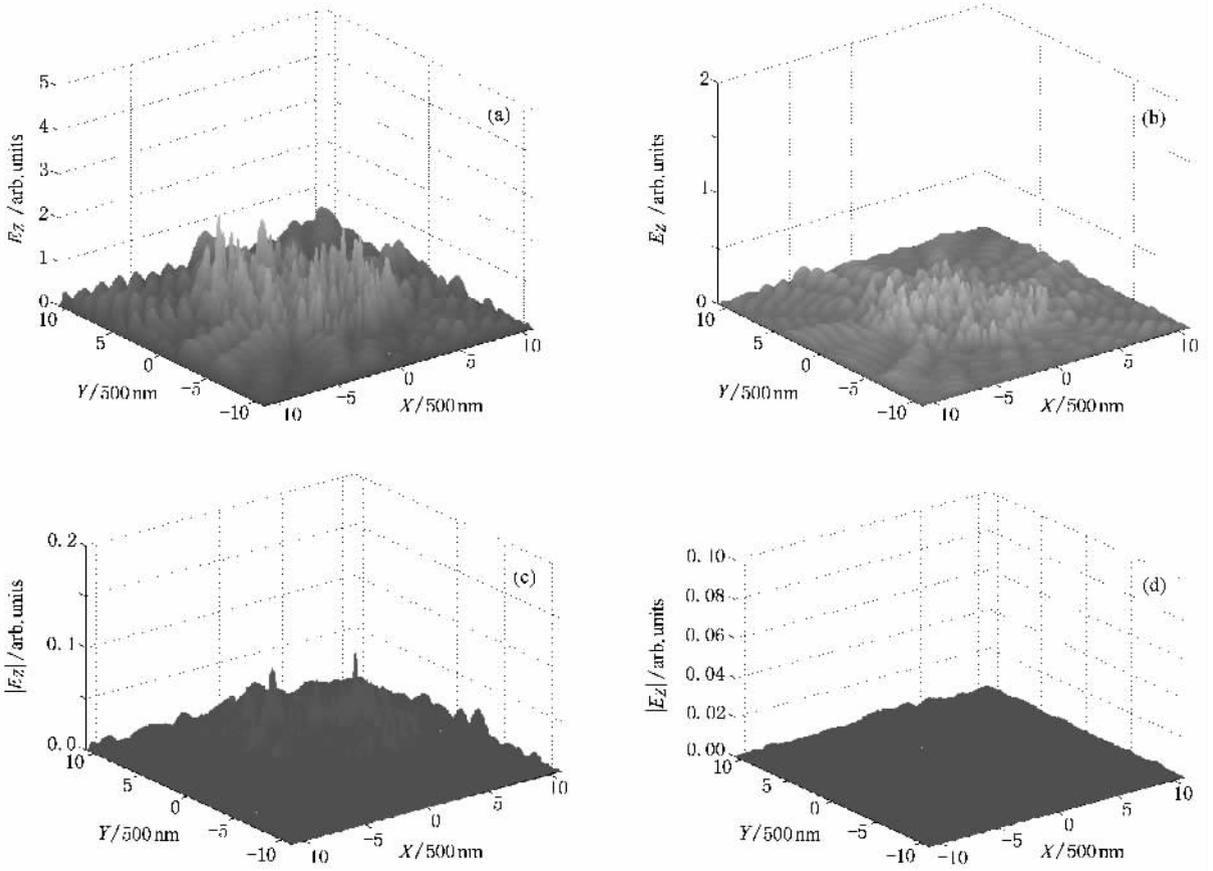


图 2 $|E_z|$ 在图 1 所示空气中的团簇的空间分布 (a) 5000 步时的空间分布 (b) 10000 步时的空间分布 (c) 15000 步时的空间分布 (d) 20000 步时的空间分布

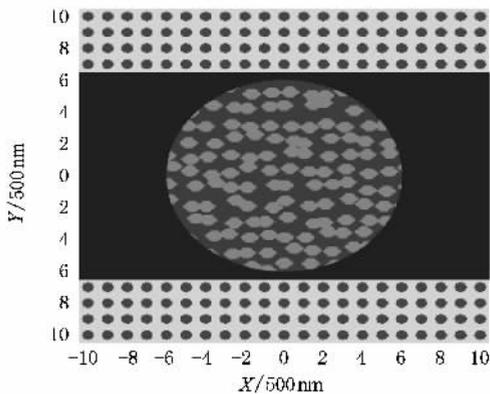


图 3 光子晶体中的图 1 所示团簇

空间中最大值约为 5, 到 20000 步时能量增加到大约为 10, 如图 4(b); 图 4(c) 中显示到 30000 步时能量进一步得到了增加, 最大值已经增加到了 80; 而到 40000 步时能量增加得更快, 最大值增加到 800, 如图 4(d)。比较图 2 可以看出: 加了光子晶体后介质中的能量比较大, 而且随时间增加而快速增加。这

一结果表明加光子晶体后不仅使系统局域光的能力得到了明显的增强, 而且使系统中激发光与活性物质的相互作用加强, 从而提高了系统的增益, 因此利用光子晶体能明显地降低激光的阈值。

2.3. 光子晶体与团簇之间的能量分配

图 3 的结构参数是依据上述方案而设定的, 但遗憾的是光场的最大值出现在光子晶体中而不在团簇中。如何将更多的能量集中到团簇中而不是在光子晶体中、使光与活性介质有更强的相互作用是我们解决的问题。理论证明光的分布与介质中折射率 (或介电常数) 的分布有密切的关系, 能量总是容易集中在折射率高的区域, 图 3 中上下表层的光子晶体的折射率整体比中间的团簇要高, 光就自然要集中到高折射率的光子晶体中。从理论上分析提高团簇中的折射率或降低上下表层光子晶体的折射率是解决这个问题的途径。为了更清晰地验证这一点, 我们选取具有相同结构、不同介电常数分布的两个二维系统, 对它们进行同样的光激发, 经过相同的

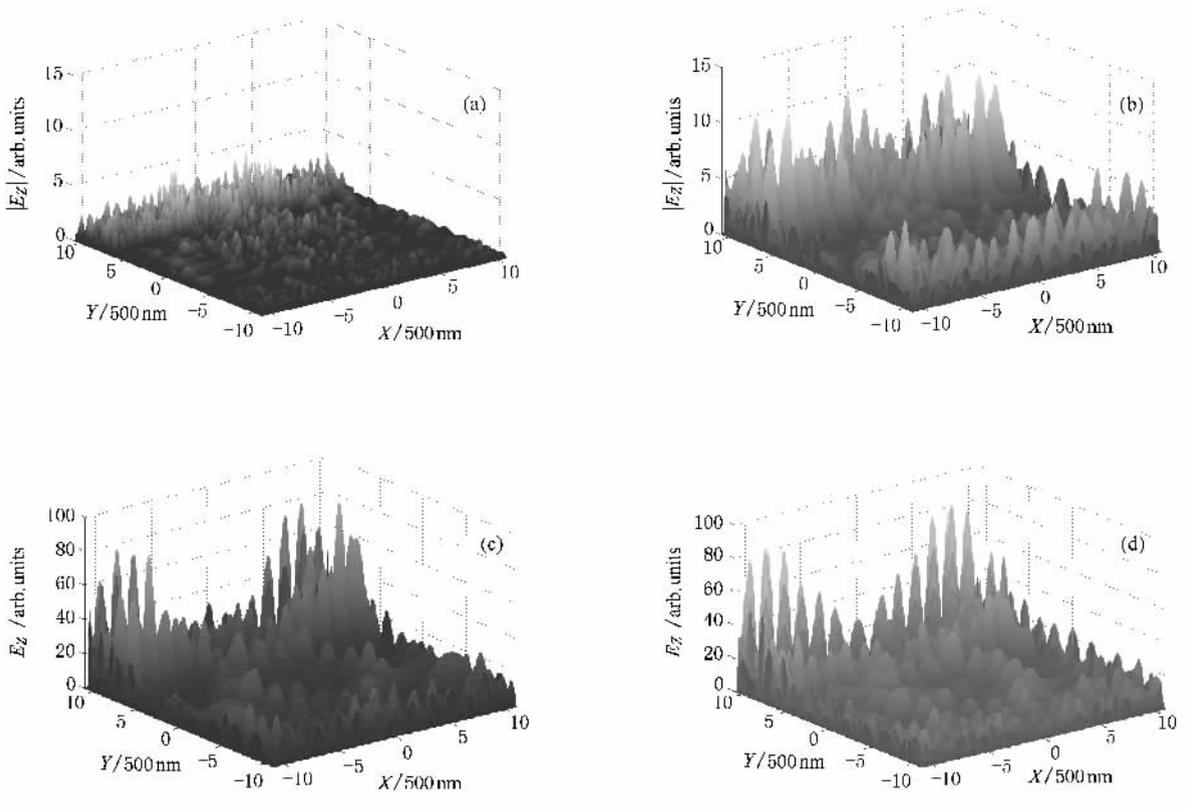


图 4 $|E_z|$ 在光子晶体中的图 3 所示团簇的空间分布 (a)10000 步时的空间分布 (b)20000 步时的空间分布 (c)30000 步时的空间分布 (d)40000 步时的空间分布

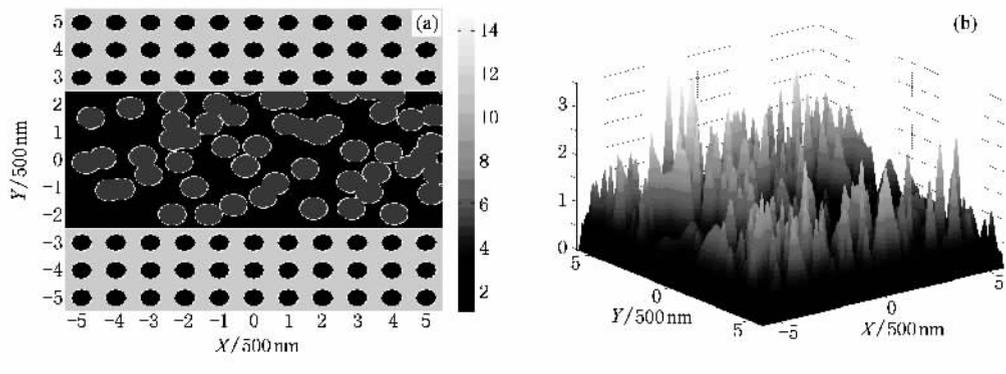


图 5 高折射光子晶体中的无序粉末薄层及 $|E_z|$ 的空间分布 (a)高折射光子晶体中的无序粉末薄层;(b)能量的空间分布

时间后进行光分布的比较,如图 5 和图 6 所示. 图 5 (a) 的中间层为无序介质层,其中圆形的粒子介电常数为 5.3,基质材料的介电常数为 1;上下表层的光子晶体中圆形的粒子介电常数为 2.5,基质材料的介电常数为 11.9. 可见上下表层的介电常数平均比中间层高. 图 5 (b) 为图 5 (a) 的 20000 步时的 $|E_z|$ 的空间分布图,图中显示中间介质层的能量远比上下表层的光子晶体中的能量要低.

对比图 5 (a),我们构建了一个与图 5 (a) 结构完全一致但介质参数不同的二维系统,如图 6 (a). 其中中间层基质材料的介电常数为 22,圆形的粒子介电常数仍为 5.3;上下表层的参数与图 5 (a) 一致. 因此 6 (a) 中上下表层的介电常数整体上就比中间层要高. 图 6 (b) 为图 6 (a) 的 20000 步时的 $|E_z|$ 的空间分布图,从该图中可见中间介质层的能量比上下表层的光子晶体中的能量要略高,而且总体能量比图

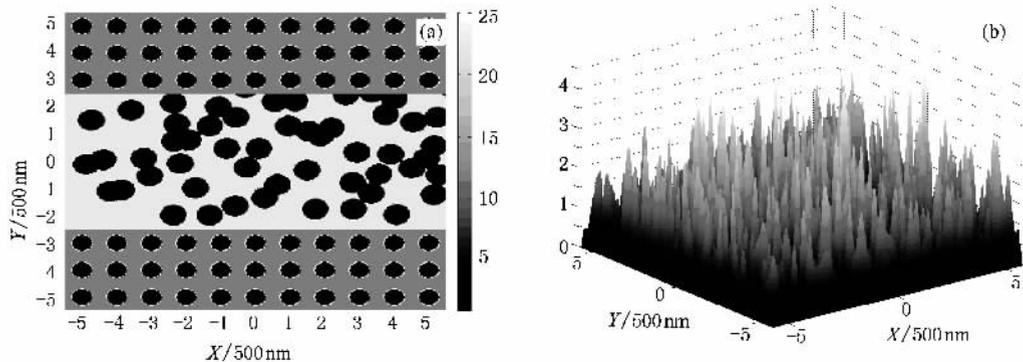


图 6 低折射光子晶体中的无序粉末薄层及 $|E_z|$ 的空间分布 (a)低折射光子晶体中的无序粉末薄层 ;(b)能量的空间分布

5 要大得多. 由此可见选择合适的光子晶体能够很好地将光控制在中间的介质中,使光与介质有更强的相互作用.

3. 空气中和光子晶体中团簇的辐射频谱

为了继续考察空气中和光子晶体中的团簇的频谱变化规律和特点,用同种激励源从介质的正上方

激发图 1 和图 3 介质,经过 2 万步迭代计算,将 2 万步分为四段单元时间,分别记录每段时间(即 5000 步)频谱强度分布,结果如图 7 和图 8 所示.

图 7 是空气中的团簇(图 1)的频谱强度分布随时间变化的结果,其中图 7(a)(b)(c)(d)分别对应于 5000,10000,15000,20000 步的结果,各图中的上图($E_z(\text{out})$)为正下方介质边缘输出的频谱,下图($E_z(\text{center})$)为中心区域的频谱.从图中可以看出

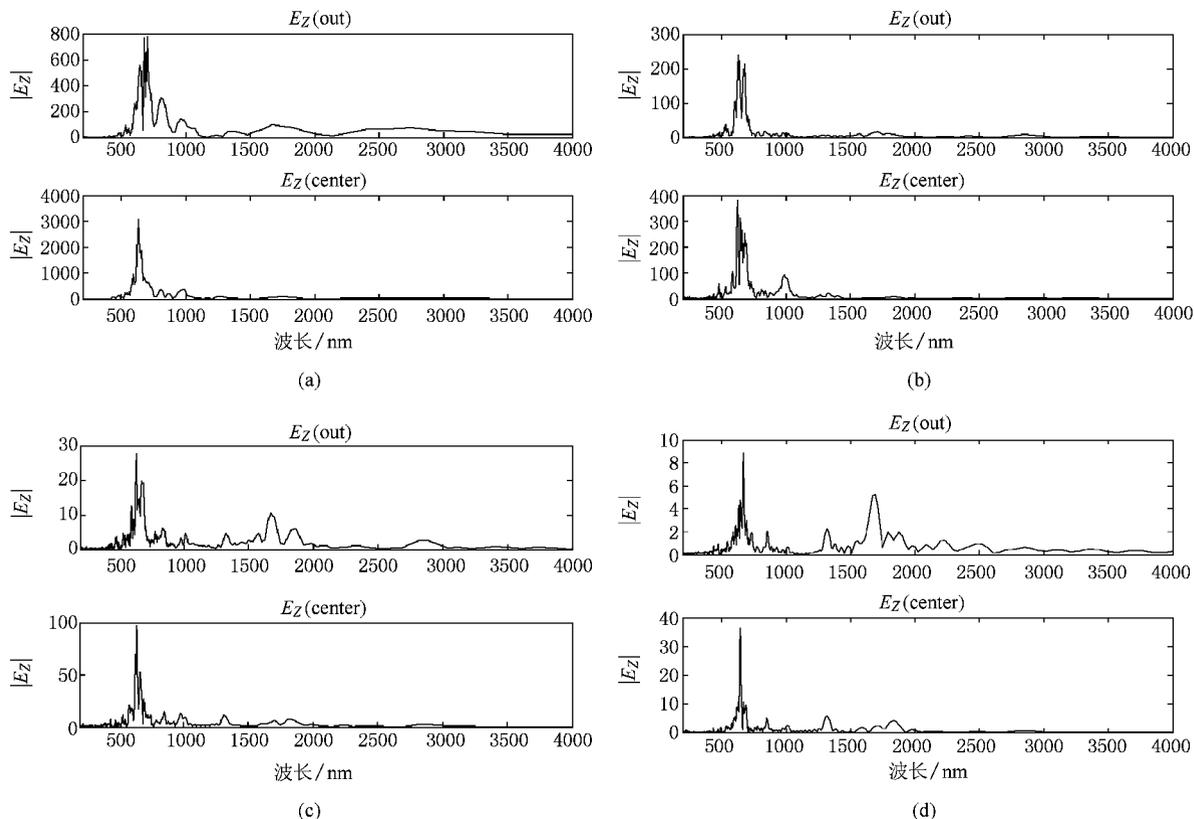


图 7 图 1 所示空气中的团簇不同时间的频谱

频谱中 650 nm 附近的波长占主要地位, 频谱呈自发辐射的特性, 频谱的结构随时间不断变化, 谱的能量随时间衰减较快.

图 8 是光子晶体中的团簇(图 3)的频谱强度分布随时间变化的结果. 从图中可以看出在 650 nm 附近存在呈自发辐射特点的频谱峰, 但在整个频谱中

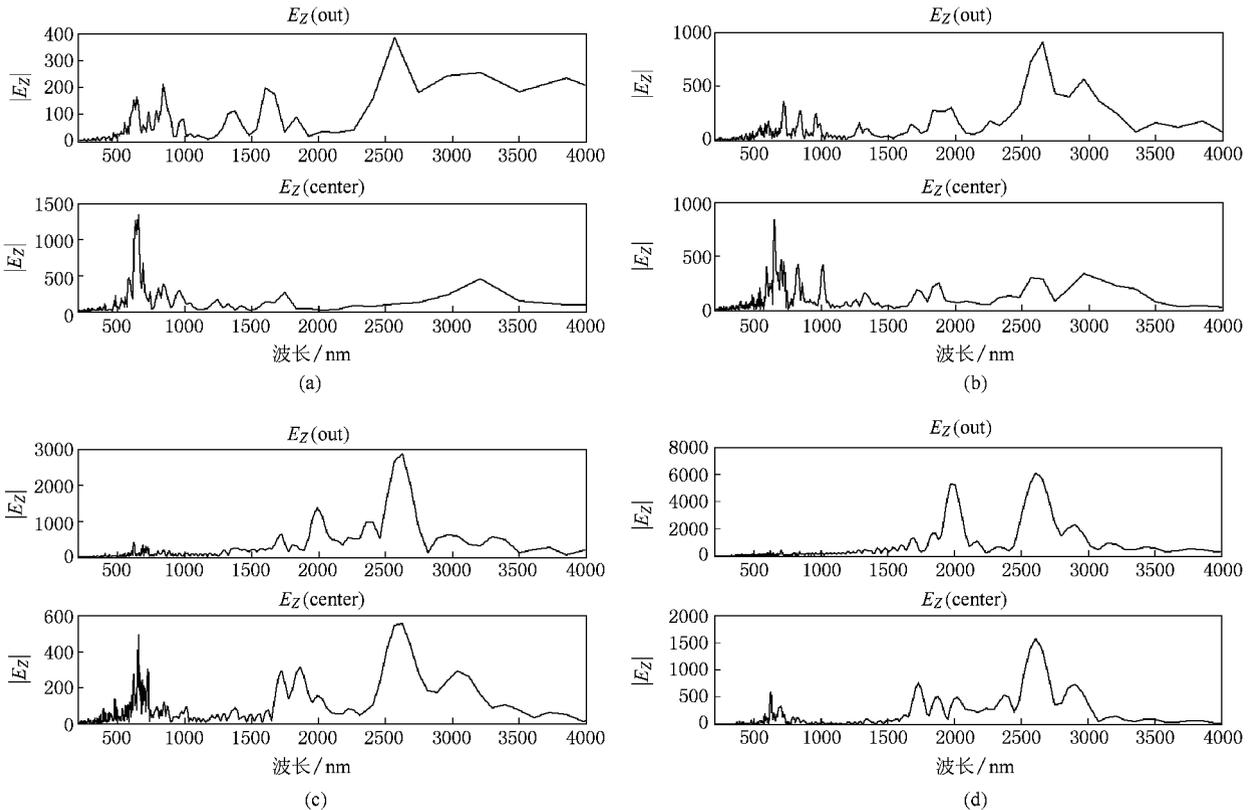


图 8 图 3 所示光子晶体中的团簇不同时间的频谱

比较空气中和光子晶体中的团簇的频谱也可以表明: 光子晶体能延长激发光与活性介质相互作用的时间, 调制电磁模式, 控制自发辐射, 使发射光向所需要的频率内辐射. 如在图 3 介质中的光逐步被上下表层的光子晶体俘获和约束, 因此光子晶体所对应的频谱逐渐比团簇的强. 如果细心地调整光子晶体的结构参数, 使光子晶体对应的谱峰恰好落在团簇的自发辐射谱中的某一频率, 这样就可以更好地控制团簇的自发辐射, 使发射光向所需要的频率内辐射. 详细深入研究将另文讨论.

4. 结 论

用有限时域差分法研究了非晶 ZnO 纳米团簇

的辐射频谱, 结果显示频谱呈自发辐射的特性. 为了对非晶纳米团簇的辐射输出进行有效的控制和利用, 提出了利用光子晶体来控制纳米团簇的自发辐射, 使之向所需要的频率内辐射的理论设计, 并构想了一种制备简单、成本较低的实现方法, 即将由纳米团簇组成的发光层插入到两层由均匀的胶体微粒以自组装方式形成的胶体结晶薄膜中, 利用胶体结晶薄膜之间的布拉格反射形成共振微腔, 从而实现对非晶纳米团簇的辐射频谱的控制. 依据这种设想构建了一个二维系统, 对其辐射特性进行数值模拟, 结果显示光被有效地控制. 为制备可嵌入到集成光路中的、具有良好可加工性能的低阈值微型激光器提供了一条新途径.

- [1] Kleppner D 1946 *Phys. Rev. Lett.* **47** 233
- [2] Purcell E M 1946 *Phys. Rev.* **69** 681
- [3] Painter O , Lee R K , Scherer A 1999 *Science* **284** 1819
- [4] Park H G , Kim S H 2004 *Science* **305** 1444
- [5] Yablonovitch E 1987 *Phys. Rev. Lett.* **58** 2059
- [6] John S 1987 *Phys. Rev. Lett.* **58** 2486
- [7] Sakoda K , Ohtaka K , Ueta T 1999 *Optics Express* **4** U1
- [8] Joannopoulos J D , Meade R D , Winn J N 1995 *Photonic crystal : Molding the Flow of Light* (Princeton , NJ : Princeton University Press)
- [9] Sakoda K 2004 *Optical Properties of Photonic Crystals* 2nd Ed. (New York Springer)
- [10] Pan Z W , Dai Z R , Wang Z L 2001 *Science* **291** 1947
- [11] Wang Z L 2004 *Materials Today* **6** 26
- [12] Kong X Y , Ding Y , Yang R S , Wang Z L 2004 *Science* **303** 1348
- [13] Wang Z L , Song J H 2006 *Science* **312** 242
- [14] Gao P X , Song J H , Liu J , Wang Z L 2007 *Adv. Mater* **19** 67
- [15] Lawandy N M , Balachandran R M , Gomes A S L , Sauvain E 1994 *Nature* **368** 436
- [16] Wiersma D S 2000 *Nature* **406** 132
- [17] Kawasaki M , Ohtomo A , Ohkubo I , Koinuma H , Tang Z K , Yu P , Wong G K L , Zhang B P , Segawa Y 1998 *Mat. Sci. & Eng. B* **56** 239
- [18] Zhang X Q , Tang Z K , Kawasaki M , Ohtomo A , Koinuma H 2003 *J. Cryst Growth* **259** 286
- [19] Cao H , Zhao Y G , Ho S T , Seelig E W , Wang Q H , Chang R P H 1999 *Phys. Rev. Lett.* **82** 2278
- [20] Xie Y M , Liu Z D 2005 *Phys. Lett. A* **341** 339
- [21] Xie Y M , Liu Z D 2005 *Chin. Phys. Lett.* **22** 2827
- [22] Wang H Q , Liu Z D 2006 *Acta Phys. Sin.* **55** 2281 (in Chinese) [王慧琴、刘正东 2006 物理学报 **55** 2281]
- [23] Wang H Q , Liu Z D , Wang B 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 2186 (in Chinese) [王慧琴、刘正东、王 冰 2008 物理学报 **57** 2186]
- [24] Wang H Q , Liu Z D , Wang B 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 5550 (in Chinese) [王慧琴、刘正东、王 冰 2008 物理学报 **57** 5550]
- [25] Li Q M , Ho K M , Soukoulis C M 2001 *Phys. B* **296** 78

The influence on the radiation characteristics of an amorphous nanocluster by introducing photonic crystals *

Wang Hui-Qin^{1)B)} Liu Zheng-Dong^{1)B)†}

^{1) X} School of Materials Science and Engineering , Nanchang University , Nanchang 330031 , China)

^{2) X} Nanotechnology Engineering Research Center , Nanchang University , Nanchang 330047 , China)

^{3) X} Physics Experiment Center , Nanchang University , Nanchang 330031 , China)

(Received 23 June 2008 ; revised manuscript received 17 September 2008)

Abstract

The amorphous nanoclusters have short range order and long range disorder structures ordinarily. The radiation spectrum characteristics of an amorphous ZnO nanocluster are studied by using finite difference time domain method and the radiation spectrum shows as spontaneous emission. To control the spontaneous emission , photonic crystal is introduced to lead the radiation emission to the needed frequency. An easier and cheaper manufacture method is put forward in which the nanocluster should be inserted between two colloidal crystal films which self-assembled by uniform colloidal nanoparticles. According to this idea , a two dimensional system is constructed and the radiation characteristics of this system are simulated. The results show that the energy is controlled in this system effectively. This scheme can provide a new way to manufacture low threshold micro-lasers feasible for imbedding in optical integrated circuits.

Keywords : finite difference time domain method , photonic crystal , amorphous nanocluster , radiation characteristics

PACC : 4225 , 4260D

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 60768001) and the Natural Science Foundation of Jiangxi Province , China (Grant No. 2007gzw2106).

† Corresponding author. E-mail lzldgroup@ncu.edu.cn