

文章编号:1004-4213(2011)11-1733-5

中红外区二氧化钛反蛋白石光子晶体的 光子定域化研究

徐庆君,张士英

(枣庄学院 光电工程学院,山东 枣庄 277160)

摘 要:为了得到二氧化钛反蛋白石光子晶体中影响光子定域化的规律,基于 Mie 散射理论和低浓度近似,对光子定域化参量进行了数值计算与理论分析,发现在该氧化物的剩余射线区内,入射波长和散射体大小对光子定域化有明显的影响.结果表明,在散射体浓度为 10%,相对折射率大于 3.8 时,在中红外区 13.3~15.3 μm 范围内出现了光子定域化现象,并随着散射体半径的增大,定域化区向长波方向移动;同时,定域化参量先增大后减小.研究结果为实验上在该类光子晶体中实现光子定域化现象提供了理论参考.

关键词:光子晶体;反蛋白石;光子定域化;中红外区;TiO₂

中图分类号:O433.4;O734

文献标识码:A

doi:10.3788/gzxb20114011.1733

0 引言

光子定域化(也称安德森定域化)是指在散射介质中由于散射体的多重散射波的干涉效应,使得光在散射介质中的传播受到彻底抑制^[1-3],而光子输运在扩散区与定域化区的转变类似于掺杂半导体中金属-绝缘体相变.近几年,人们对无序和二维、三维有周期结构的光子晶体中的光子定域化进行了大量的理论与实验研究^[4-8].用高折射率半导体材料作为散射体,以红外透明、折射率较低的材料作为基质形成的低浓度无序光子晶体,这种蛋白石光子晶体在近红外存在一定的光子禁带,如 TiO₂ 材料在可见和近红外区具有非常高的折射率,是迄今为止光子定域化观测史上最常用的材料,报道称用该材料制备的样品得到的定域化参量(k, l)最小为 5.8^[9],众所周知,这并非真正意义上的定域化现象.

利用具有反常色散性质的氧化物作基质,散射体为空气,这样就形成了反蛋白石晶体^[10].由于空气的折射率接近于 1,中红外区反常色散电介质在剩余射线带内反射率高,而折射率很小. TiO₂ 材料在中红外区具有反常色散特性,可以制备成反蛋白石光子晶体,这类晶体能否得到理想的光子传输禁带,是我们非常关注的.

基于以上问题,本文对金属氧化物 TiO₂ 为基

质,散射体为空气泡构成的反蛋白石光子晶体的定域化问题进行研究,发现理想的光子定域化区,从而促进中红外区光子定域化理论、实验与应用方面的研究.

1 理论方法

电磁波在介质内传播,当遇到非均匀区时,电磁波将被吸收和散射.理想状态下,非均匀区可以简化成由不同材料形成的球形区,电磁波在这种介质中传播将被球形区多次吸收和散射.

介质中的波矢量为 k, l 为散射平均自由程,理想的光子定域化条件是

$$kl \leq 1 \quad (1)$$

该条件也称为 Ioffe-regel 临界条件^[5].设 $kl = \eta$,则定域化条件可以写为

$$\eta^{-1} \geq 1 \quad (2)$$

当散射体存在吸收时,散射截面和消光截面不相等,因而定域化参量有两个 $kl_{\text{sca}}, kl_{\text{ext}}$.则对应的定域化条件也应该有两个.

$$\eta_{\text{sca}}^{-1} \geq 1 \quad \eta_{\text{ext}}^{-1} \geq 1 \quad (3)$$

当散射体无吸收时,两个参量是相等的.

由于散射体浓度较高时理论处理的方法还不成熟,对于浓度较低时, Watson 等人已经通过实验证实^[11],在散射体的体积比为 9.6% 时测得的定域化

基金项目:山东省优秀中青年科学家科研奖励基金(No. 2008BS01021)、枣庄市科技攻关计划项目(No. 201031-2)和 2009 年枣庄学院科技计划项目资助

第一作者:徐庆君(1979-),男,副教授,主要研究方向为量子光学与固体光散射. Email: xqjwl@126.com

收稿日期:2011-07-01; **修回日期:**2011-08-19

参量与用 Mie 散射理论计算得到的定域化参量符合的非常好。

Mie 散射理论已经精确地给出球形粒子的散射截面(Q_{sca})、消光截面(Q_{ext})、吸收截面(Q_{abs})，其表达式为^[12]

$$\begin{aligned} Q_{sca} &= \frac{1}{|x|^2} \sum_{n=1}^{\infty} 2(2n+1)(|a_n^s|^2 + |b_n^s|^2) \\ Q_{ext} &= \frac{1}{|x|^2} \sum_{n=1}^{\infty} 2(2n+1)R_e(a_n^s + b_n^s) \\ Q_{abs} &= Q_{ext} - Q_{sca} \end{aligned} \quad (4)$$

式中 $x=2\pi r \hat{n}/\lambda$ 为尺寸参量, r 是粒子的半径, \hat{n} 为散射体环境(或基质)的折射率, a_n^s, b_n^s 为 Mie 系数. 影响 Mie 系数的因素还有相对折射率 m , 即等于散射体的折射率与所处基质折射率的比值.

低散射体浓度近似下, 散射平均自由程和消光平均自由程可由式(5)决定

$$l_{sca} = 1/\rho\sigma_{sca}, l_{ext} = 1/\rho\sigma_{ext} \quad (5)$$

式中 ρ 为散射体的密度, 即单位体积内散射体的数目, $\sigma_{sca}, \sigma_{ext}$ 为散射效率和消光效率, ρ 与体积比 f 的关系为

$$f = \rho(4\pi r^3/3) \quad (6)$$

因此, 定域化参量可以表示为

$$\eta_{sca}^{-1} = \frac{3fQ_{sca}}{4x}, \eta_{ext}^{-1} = \frac{3fQ_{ext}}{4x} \quad (7)$$

当散射体和基质均为无吸收时, 两者是相等的.

本文对图 1 所示的三维光子晶体进行研究, 设晶体为一简单立方体, 其中散射体

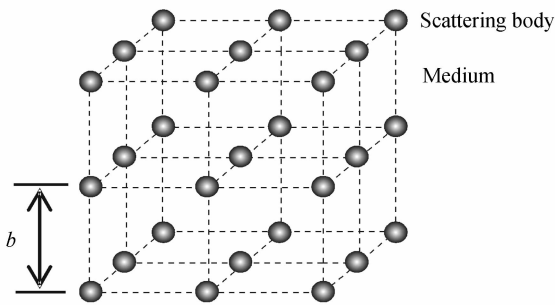


图 1 Opal 类光子晶体的基本结构

Fig. 1 The basic structure of an Opal photonic crystal

是一个半径为 r 的空气球, 散射体间距为 b , 基质是具有反常色散关系的 TiO_2 材料, 当体积比 $f=10\%$ 时, 则有

$$f = \frac{4}{3}\pi r^3/b^3 \quad (8)$$

此时, 晶格长度为

$$b = \sqrt[3]{\frac{4\pi}{3f}}r = 3.47r \quad (9)$$

2 结果与讨论

作为验证计算方法和理论的正确性, 首先本文研究了散射体密度为 $f=10\%$ 时, 相对折射率 m 分别为 2.6、3.0、3.8、4.0、5.0、6.0 时, 入射波长为 $14\ \mu m$ 时, 定域化参量 η_{sca}^{-1} 与粒子尺寸参量 x 的关系, 如图 2. 从图中可以看出, 当散射体折射率与所处基质折射率的比值 $m \geq 3.8$, 将会出现定域化区, 这个结论与 Watson 等人的结论是一致的^[11]. 当 $m \geq 6$ 附近还会出现第二个定域化区. 因此, 利用 Mie 理论计算光子晶体的光子定域化问题是可行的.

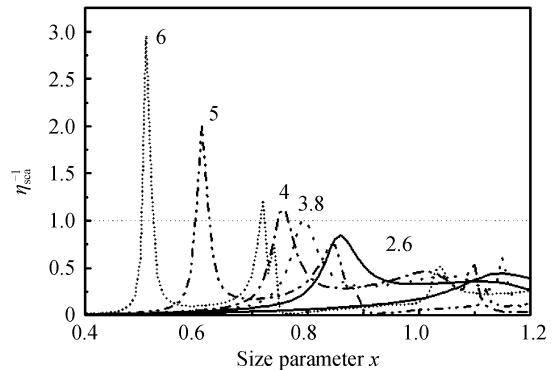


图 2 m 为 2.6、3.0、3.8、4.0、5.0、6.0 时, 定域化参量 η_{sca}^{-1} 与粒子尺寸参量 x 关系

Fig. 2 Relationship between localization parameters η_{sca}^{-1} and size parameter x under different relative refractive index m

图 3 给出了 TiO_2 基质折射率与入射波长的关系. 在入射波长 $13.3\ \mu m$ 到 $15.3\ \mu m$ 范围内, TiO_2 材料的复折射率的实部很小 ($n < 0.26$), 虚部较大 (从 1.2 到 1.98). 可见, 对于图 2 所提到的发生定域化现象所要求的相对折射率 $m \geq 3.8$ 的条件很容易满足.

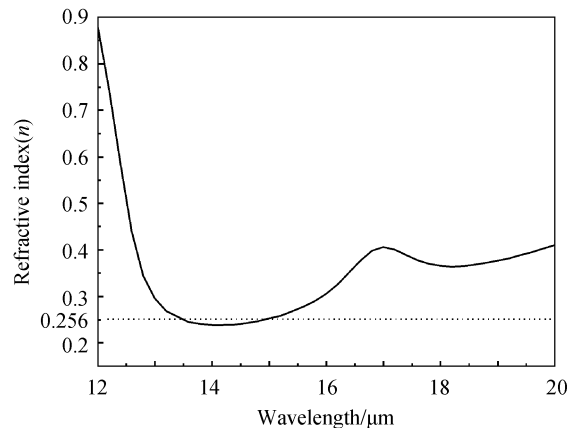


图 3 TiO_2 基质折射率与入射波长关系

Fig. 3 Relationship between TiO_2 medium's refractive index and incidence wavelength

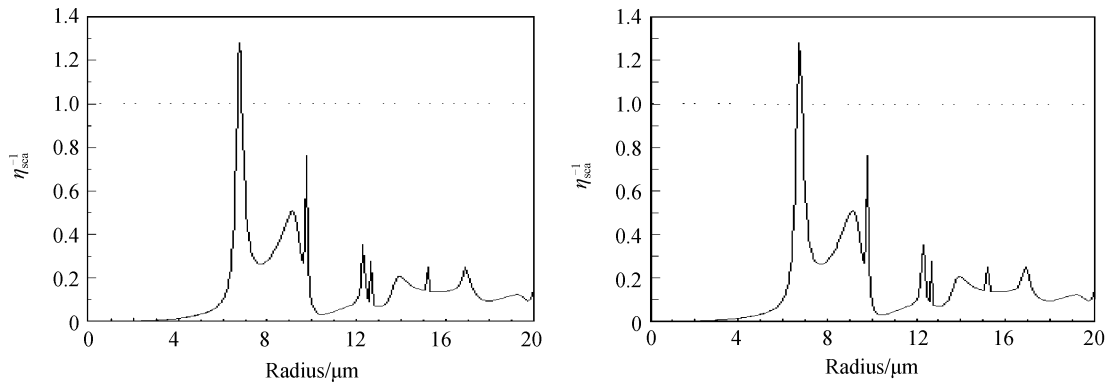


图4 定域化参数 $\eta_{sca}^{-1}(\eta_{ext}^{-1})$ 与散射体半径关系

Fig. 4 Relationship between localization parameters $\eta_{sca}^{-1}(\eta_{ext}^{-1})$ and scattering body's radius

本文计算了在入射波长为 $14 \mu\text{m}$ 下,定域化参数 (η_{sca}^{-1} 和 η_{ext}^{-1}) 与散射体(空气泡)半径的关系,如图4. 定域化参数 η_{sca}^{-1} 、 η_{ext}^{-1} 与散射体半径的变化规律完全相同,这表明中红外区 TiO_2 材料的吸收性对定域化现象影响较弱.

为进一步得到定域化参数与散射体半径的关系,本文计算了不同入射波长下,定域化参数 (η_{sca}^{-1}) 与散射体半径的关系,如图5和表1. 由该图可知,当入射波长为 $14 \mu\text{m}$ 和 $15 \mu\text{m}$ 时,出现了理想的定域化现象,即 $\eta_{sca}^{-1} \geq 1$ 区,此时入射光被截止;其余情

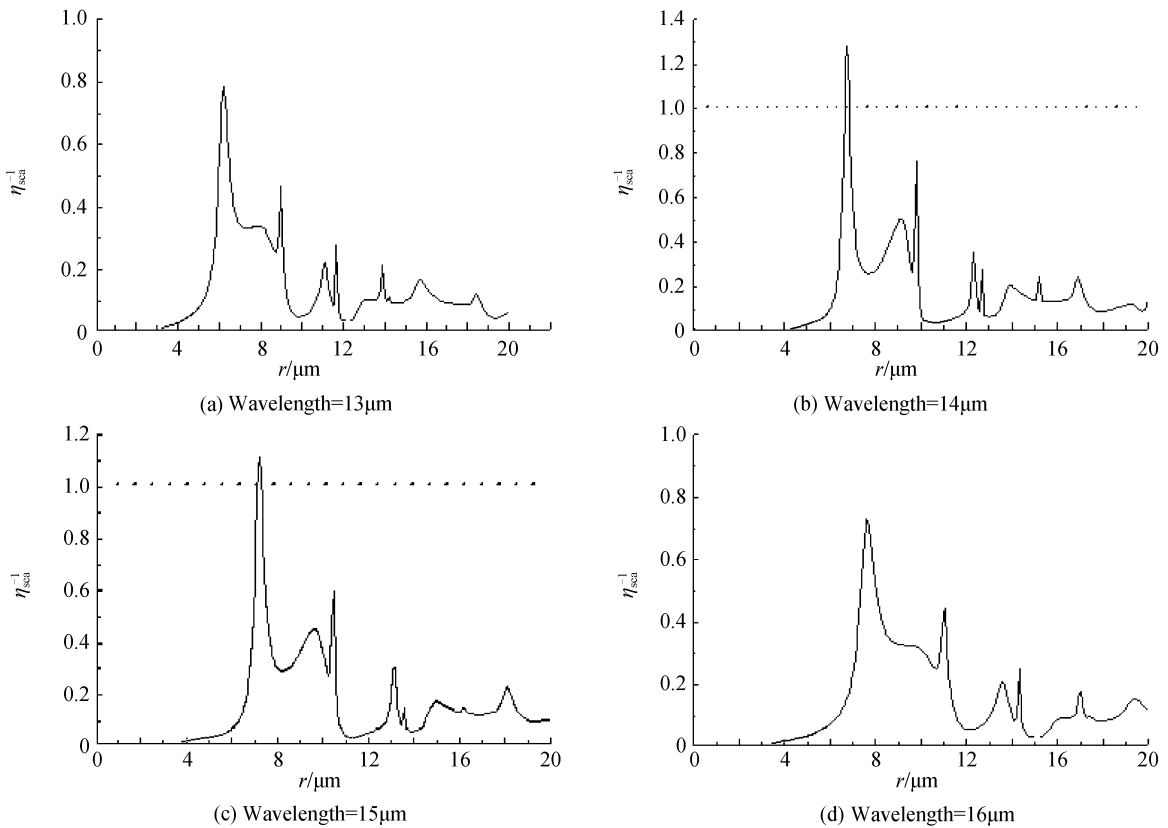


图5 不同入射波长下定域化参数 η_{sca}^{-1} 与散射体半径关系

Fig. 5 Relationship between localization parameters η_{sca}^{-1} and scattering body's radius under different incidence wavelength

表1 不同入射波长下的定域化参数的比较

Table 1 Comparison table of localization parameters under different incidence wavelength

| Wavelength/ μm | 13 | 14 | 15 | 16 | 17 |
|--|-------|-------|-------|-------|-------|
| Maximum value of localization parameters | 0.785 | 1.279 | 1.113 | 0.731 | 0.388 |
| Value of radius | 6.204 | 6.745 | 7.223 | 7.617 | 8.095 |
| Width of localization/ Δr | | 0.217 | 0.108 | | |

况下,定域化参数都小于1.并且随着入射波长增大,定域化参数先增大后减小,定域化区向散射体半径增大的方向移动,理想定域化区 ($\eta_{sca}^{-1} = 1$) 所对应的散射体半径宽度 (Δr) 的减小.由此可见,光子定域化区与入射波长和散射体半径都有着重要的关系,该结论为实验上入射波长的选取提供了理论依据.

为了进一步了解定域化参量与入射波长、散射体半径的关系,图 6 给出了散射体半径分别为 $6.5 \mu\text{m}$ 、 $6.7 \mu\text{m}$ 、 $7.0 \mu\text{m}$ 、 $7.2 \mu\text{m}$ 和 $7.5 \mu\text{m}$ 时,定域化参量与入射波长的关系曲线,有关的定域化参量详见表 2. 我们发现在中红外区,散射体半径一定的情况下, TiO_2 反蛋白石类光子晶体中只出现一个定域化区;随着散射体半径的增大,定域化区向长波方向移动;同时,定域化参量先增大后减小. 由此可见,散射体大小对定域化区的影响很大,制备出具有合适大小散射体的反蛋白石光子晶体,是实验上实现该波段理想光子定域化的首要条件.

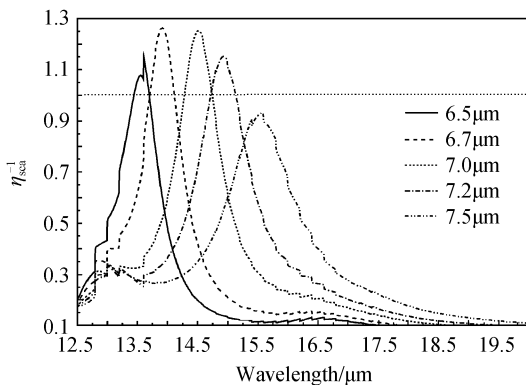


图 6 不同散射体半径下定域化参量 η_{sca}^{-1} 与入射波长关系
Fig. 6 Relationship between localization parameters η_{sca}^{-1} and incidence wavelength under different scattering body's radius

表 2 不同散射体半径下定域化参量的比较

Table 2 Comparison table of localization parameters under different scattering body's radius

| Radius/ μm | 6.5 | 6.7 | 7.0 | 7.2 | 7.5 |
|--|--------|--------|--------|--------|--------|
| Wavelength/ μm | 13.604 | 13.914 | 14.515 | 14.930 | 15.575 |
| Maximum value of localization parameters | 1.154 | 1.262 | 1.252 | 1.151 | 0.930 |

3 结论

利用 Mie 散射理论和低浓度近似,对 TiO_2 为基质,空气球为散射体所构成的反蛋白石光子晶体的光子定域化现象进行了理论研究. 结果表明:

1) 在中红外区 ($13.3 \mu\text{m}$ 到 $15.3 \mu\text{m}$) 发现该晶体中出现一个光子定域化区,并且随着散射体半径的增大,定域化区向长波方向移动;同时,定域化参量先增大后减小.

2) 由于该氧化物在该区域具有反常色散特性,恰恰是它的指纹区或剩余射线区,其折射率远小于 1,尺寸参量 x 处在 $0.01 \sim 1$ 之间,在这种条件下,由于多重波的干涉叠加相消,使得传输中的入射光波被抑制.

当然,由于散射体的多重散射对定域化参量的影响机制,以及实验上对该类晶体中的定域化现象的观测有待于进一步研究,但本文提供的研究方法可以为实验上实现光子定域化现象展示了一条希望之路.

参考文献

- [1] SCHUURMANS F J P, MEGENS M, VANMAEKELBERGH D, *et al.* Light scattering near the localization transition in macroporous GaP networks[J]. *Phys Rev Lett*, 1999, **83**(11): 2183-2186.
- [2] SCHUURMANS F J P, VANMAEKELBERGH D. Strongly photonic macroporous GaP networks[J]. *Science*, 1999, **284**: 141-143.
- [3] PINHEIRO E A, MARTINEZ A S, SAMPAIO L C. New effects in light scattering in disordered media and coherent backscattering cone: systems of magnetic particles[J]. *Phys Rev Lett*, 2000, **84**(7): 1435-1438.
- [4] RIVAS J G, SPRIK R, LAGENDIJK A, *et al.* Midinfrared scattering and absorption in Ge powder close to the Anderson localization transition[J]. *Phys Rev E*, 2000, **62**(4): 4540-4543.
- [5] RIVAS J G, SPRIK R, LAGENDIJK A, *et al.* Static and dynamic transport of light close to the Anderson localization transition[J]. *Phys Rev E*, 2001, **63**(4): 1-12.
- [6] LIU Xiao-dong, LI Shu-guang, HOU Lan-tian, *et al.* The theoretical study on photon localization in the mid-infrared random media at low density[J]. *Acta Physica Sinica*, 2002, **51**(9): 2117-2122.
刘晓东,李曙光,侯蓝田,等. 中红外低浓度无序介质的光子定域化理论研究[J]. *物理学报*, 2002, **51**(9): 2117-2122.
- [7] TIAN Gui-cai, JIANG Cheng-guo, JIA Ji-kui. Theoretical study on Anderson localization of opal photonic crystal in the infrared[J]. *Journal of Atomic and Molecular Physics*, 2008, **25**(1): 165-168.
田贵才,姜成果,贾继奎. 类 Opal 光子晶体红外区安德森定域化理论研究[J]. *原子与分子物理学报*, 2008, **25**(1): 165-168.
- [8] ZHANG Shi-ying. Anderson localization of photonic crystal based on Mie scattering theory[J]. *Acta Photonica Sinica*, 2010, **39**(1): 80-83.
张士英. 基于 Mie 散射理论的光子晶体安德森定域化研究[J]. *光子学报*, 2010, **39**(1): 80-83.
- [9] WIERSMA D S, VANALBADA M P, VANTIGGELEN B A, *et al.* Experimental evidence for recurrent multiple scattering events of light in disordered media[J]. *Phys Rev Lett*, 1995, **74**(21): 4193-4196.
- [10] LIN Xu-bin, ZHAO Yu-zhou, LI Jing, *et al.* Fabrication techniques of inverse opal structure photonic crystal[J]. *Journal of Synthetic Crystals*, 2004, **33**(6): 1021-1030.
林旭彬,赵玉周,李静,等. 反蛋白石结构光子晶体制备技术[J]. *人工晶体学报*, 2004, **33**(6): 1021-1030.
- [11] WATSON G H, FLEURY P A, MCCALL S L. Searching for photon localization in the time domain[J]. *Phys Rev Lett*, 1987, **58**(9): 945-948.
- [12] ADEN A L, KERKER M. Scattering of electromagnetic waves from two concentric spheres[J]. *J Appl Phys*, 1951, **22**(10): 1242-1245.

Photonic Localization in Reverse Opal Photonic Crystal Constituted by TiO_2 in Middle Infrared Band

XU Qing-jun, ZHANG Shi-ying

(College of Opto-electronic Engineering, Zao Zhuang Univeristy, Zaozhuang, Shandong 277160, China)

Abstract: In order to obtain the influence on the photonic localization in reverse opal photonic crystal constituted by TiO_2 , the photonic localization parameters are calculated numerically and analyzed theoretically, based on the Mie scattering theory and the low density approximation. It was found that the incidence wavelength and scattering body' size have the obvious influence on localization phenomena in the surplus ray zone of the oxide. The results show that the photonic localization phenomena appear in middle infrared band ($13.3 \sim 15.3 \mu\text{m}$) under the conditions of scatterer's density of 10% and relative refractive index greater than 3.8. With the increase of the scattering body's radius, the localization area shifts to long wavelength; simultaneously, the localization parameter firstly increases, then decreases. These research results can provide an academic reference to achieve experimentally the photonic localization phenomenon in the kind of photonic crystal.

Key words: Photonic crystal; Reverse opal; Photonic localization; Middle infrared band; TiO_2