

## 含吸收性散射体的无序介质中红外光子定域化

刘晓东<sup>1,2)</sup> 李曙光<sup>1)</sup> 侯蓝田<sup>1)</sup> 王慧田<sup>2)</sup>

<sup>1)</sup>燕山大学红外光纤与传感研究所,河北,秦皇岛,066004;

<sup>2)</sup>南京大学固体微结构国家重点实验室,江苏,南京,210094)

**摘要** 对含有反常色散材料和金属材料散射体无序介质的光子定域化行为进行了理论研究. 基于 Mie 散射理论研究发现,对于某些反常色散电介质球做散射体的无序介质,在较低浓度(10%)下,在中红外区可以实现一定的光子定域化,且频率位于各自的剩余射线带. 对金属散射体的无序光学介质的研究表明,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,结果表明,在整个中红外区几乎不可能实现光子定域化.

**关键词** 光子定域化,无序介质,中红外,反常色散.

## PHOTON LOCALIZATION OF RANDOM MEDIA CONTAINING ABSORPTIVE SCATTERERS IN MID-INFRARED REGION

LIU Xiao-Dong<sup>1,2)</sup> LI Shu-Guang<sup>1)</sup> HOU Lan-Tian<sup>1)</sup> WANG Hui-Tian<sup>2)</sup>

<sup>1)</sup>Institute of infrared optical fibers and sensors, Yanshan University, Qinhuangdao, 066004, China;

<sup>2)</sup>National laboratory of solid state microstructures, Nanjing University, Nanjing, 210093, China)

**Abstract** Photon localization of random media containing anomalous dispersive dielectric materials and metal scatterers, was investigated theoretically. Based on the Mie scattering theory in mid-infrared region at low concentration (10%), photon localization of random media with some anomalous dispersive dielectric spheres as scatterers, was realized, and strong photon localization was appeared in reststrahlung band frequencies. Investigations of random optical media with metal scatterers was finished, and discovered that scattered behaviours of different metals in midinfrared region at different frequencies were very similar. The results show that it is almost impossible that photon localization in the whole midinfrared region.

**Key words** photon localization, random medium, midinfrared, anomalous dispersion.

### 引言

近年来,人们对有周期结构的光子晶体和无序光学介质中的光子定域化理论与实验的研究兴趣与日俱增<sup>[1~4]</sup>. 光子定域化是指由于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,这在特定人工结构的光子晶体中已经实现. 但在无序光学介质中实现强光子定域化却并非易事,其主要困难在于如何制备出符合理论预期条件的材料. 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,即散射体的折射率相对于基质要足够大,同时要求散射体尺寸均匀并接近于光波长、吸收甚小(即要求非弹性散射的平均自由程要远大于弹性散射的平均自由程,两者之比大于 100)、以及能够控制材料

的宏观结构,从而减小可供光波传播的相空间区域<sup>[5]</sup>. 实验上,近 20 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<sup>[6~8]</sup>,在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)相对强的定域化效应<sup>[9~11]</sup>,而中红外区的实验只在 1999 年才开始,到目前为止仍不很深入,材料仅限于硅和锗粉<sup>[12~14]</sup>.

目前,中红外光子定域化理论与实验的研究报道非常少,但就象 10 年前 Genack 等人开始在微波区探讨光子定域化那样<sup>[6,7]</sup>,我们预期在中红外区的研究也将会富有成果.

一般认为散射体的吸收不利于光子定域化,因而对存在吸收的反常色散材料和金属材料作为散射体的无序系统很少有人研究,但没有吸收的系统实际上是不存在的. 在中红外区,反常色散材料和金属

是两类典型的有本征吸收的材料,其中前者的光学色散特性可以用经典洛伦兹(Lorentz)色散模型来精确描述,后者的光学特性可以用德鲁德(Drude)模型来描述.鉴于块状和薄膜状反常色散材料在其剩余射线带(材料的“指纹”区,一般位于中红外)吸收非常小,反射率非常高,尤其是各种金属在整个中红外区直至微波区的吸收更小,所以本文主要从理论上分别研究含有这两种吸收性散射体的无序介质(假定背景材料无吸收)在中红外区的光子定域化的问题.

### 1 理论基础

衡量无序系统散射光波能力强弱的一个重要的物理量是散射(或消光)平均自由程  $l$ ,定义为光波在无序介质中被一个散射体散射前所传播的平均长度,因而散射强时  $l$  小,反之则大.理想的光子定域化被期望出现在  $kl \ll 1$  ( $k$  为基质介质中的光波矢)时,即 Ioffe-Regel 临界条件<sup>[1]</sup>,所以定义  $kl$  为定域化参量.由于  $kl$  越小越接近于定域化,为了研究方便,我们期望得到  $(kl)^{-1} \gg 1$ .当散射体为反常色散介质或金属时,散射粒子的散射截面不等于消光截面,因此就出现了两个定域化参量  $kl_{sca}$  和  $kl_{ext}$  (这里  $l_{sca}$  和  $l_{ext}$  分别为散射和消光平均自由程),它们的倒数分别记为  $(kl_{sca})^{-1}$  和  $(kl_{ext})^{-1}$ ,所以我们希望得到  $(kl_{sca})^{-1}$  和  $(kl_{ext})^{-1}$  均大于 1,且  $(kl_{sca})^{-1}$  接近于  $(kl_{ext})^{-1}$  的结果.

由于散射体浓度较高时理论处理方法很复杂又不很成熟,而低散射体浓度的无序系统有更多的实际意义,本文只讨论低浓度(低体积比  $f = 10\%$ )情

形. Waston 等人已经通过实验证明<sup>[15]</sup>,在散射体的体积比约为 10% 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 散射理论来处理本文的问题.

Mie 散射理论给出球形粒子的散射截面  $\sigma_{sca}$  和消光截面  $\sigma_{ext}$  分别为<sup>[16]</sup>

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

$$\sigma_{ext} = Q_{ext} (\pi R^2). \tag{2}$$

其中

$$Q_{sca} = \frac{1}{x^2} \sum_{n=1}^{\infty} 2(2n+1) (a_n^2 + b_n^2), \tag{3}$$

$$Q_{ext} = \frac{1}{x^2} \sum_{n=1}^{\infty} 2(2n+1) \text{Re}\{a_n + b_n\}. \tag{4}$$

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,  $\lambda$  是真空中辐射波长,  $n_0$  是基质的折射率),式中  $a_n$  和  $b_n$  是 Mie 系数.

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

$$(kl_{sca})^{-1} = \frac{3f}{4} \frac{Q_{sca}}{x}, \tag{5}$$

$$(kl_{ext})^{-1} = \frac{3f}{4} \frac{Q_{ext}}{x}. \tag{6}$$

### 2 结果与讨论

#### 2.1 含反常色散电介质散射体的无序介质

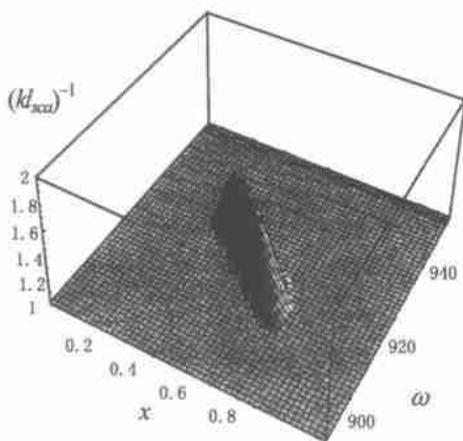


图 1  $f = 10\%$  时  $\text{-SiC}$  的  $(kl_{sca})^{-1}$  与  $x$  和  $\omega$  的关系  
Fig. 1  $(kl_{sca})^{-1}$  vs.  $x$  and  $\omega$  when  $f = 10\%$  for  $\text{-SiC}$

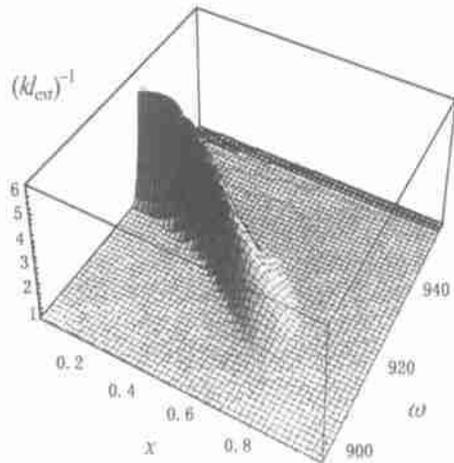


图 2  $f = 10\%$  时  $\text{-SiC}$  的  $(kl_{ext})^{-1}$  与  $x$  和  $\omega$  的关系  
Fig. 2  $(kl_{ext})^{-1}$  vs.  $x$  and  $\omega$  when  $f = 10\%$  for  $\text{-SiC}$

-SiC 常被认为是能由 Lorentz 单振子色散模型精确描述的反常色散电介质的典型例子<sup>[16]</sup>,它在中红外区的复介电常数可精确地由下式表示:

$$\epsilon(\omega) = 6.7 + \frac{2.08 \times 10^6}{793^2 - \omega^2 - i4.76 \omega} \quad (7)$$

这里,辐射频率  $\omega$  按照红外物理的习惯用波数来表示.

图 1 和图 2 分别给出了  $f = 10\%$  时  $(kl_{sca})^{-1}$  和  $(kl_{ext})^{-1}$  与尺度参量  $x$  和波数  $\omega$  的关系,由于  $(kl_{sca})^{-1} > 1$  和  $(kl_{ext})^{-1} > 1$  是所关心的定域化区,为了直观起见图 1 和图 2 都只给出了大于 1 的部分.

从图 1 和图 2 可以看出,存在一个区域(915 ~ 925 $\text{cm}^{-1}$ )使  $(kl_{sca})^{-1} > 1$  和一个略大的区域(905 ~ 935 $\text{cm}^{-1}$ )使得  $(kl_{ext})^{-1} > 1$ ,而这两个区域正好出现在 -SiC 的剩余射线带(800 ~ 970 $\text{cm}^{-1}$ )内,只不过  $(kl_{ext})^{-1} > 1$  的区域只占整个剩余射线带宽度的 1/5.

当然,较理想的光子定域化应该满足  $kl_{ext} \gg kl_{sca} > 1$ ,即色散介电粒子消光的反照率  $R_a$  (albedo, 定义为散射截面占整个消光截面的比例)越大越好. 在单体 Mie 散射理论中,反照率也可以用  $a$  和  $b$  来表示<sup>[16]</sup>,图 3 给出了  $\omega = 925\text{cm}^{-1}$  时 -SiC 粒子的反照率  $R_a$  与  $x$  的关系. 从图 3 可以看出,虽然体系的反照率可达 85%,但吸收仍能达到 15%. 所以,尽管体系的两个定域化参量  $kl_{sca}$  和  $kl_{ext}$  都小于 1,但这样的吸收对应应用会产生怎样的影响还从未被探讨过. 鉴于 -SiC 的剩余射线带(800 ~ 970 $\text{cm}^{-1}$ )与  $\text{CO}_2$  激光器(900 ~ 1100 $\text{cm}^{-1}$ )的工作区有如此大的重叠,很有研究意义,这将是以后重点研究的课

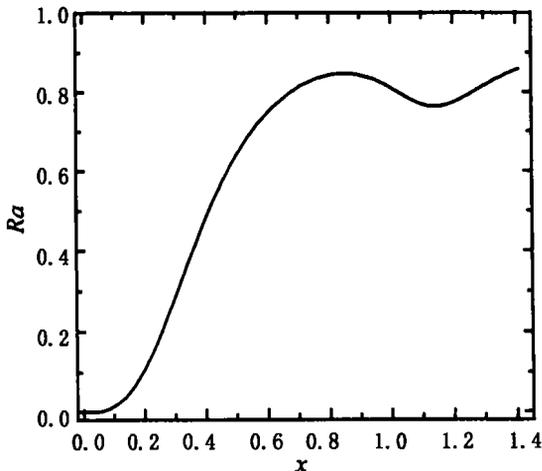


图 3  $\omega = 925\text{cm}^{-1}$  时 -SiC 粒子的反照率  $R_a$  与  $x$  的关系  
Fig. 3 Albedo vs.  $x$  by an -SiC particle when  $\omega = 925\text{cm}^{-1}$

题之一.

对于 -SiC,在剩余射线带内垂直入射反射率高达约 97%,其原因是 -SiC 的复折射率的虚部(消光系数) 很大,而实部  $n$  却非常小,即红外传能光纤领域所说的“折射率小于 1”,例如在频率为 943 $\text{cm}^{-1}$ (10.6 $\mu\text{m}$ )处,  $n = 0.06$ ,  $k = 1.13$ . 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,用此原理人们已经研制出了传输大功率激光能量的空芯  $\text{GeO}_2$  光纤<sup>[17]</sup>和空芯宝石  $\text{Al}_2\text{O}_3$  光纤<sup>[18]</sup>.

对于二振子型 MgO 做散射体的情况,我们同样发现了类似于 -SiC 的结论,即在其剩余射线带(400 ~ 490 $\text{cm}^{-1}$ ,对应 20.4 ~ 25.0 $\mu\text{m}$ )内,  $(kl_{ext})^{-1} > 1$  和  $(kl_{sca})^{-1} > 1$ . 因此可以得出结论: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  $kl_{ext}^{-1} > 1$  和  $kl_{sca}^{-1} > 1$ ,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( $R_a < 1$ ).

### 2.2 含金属球散射体的无序介质

根据金属光学特性的德鲁得模型,其介电函数与频率  $\omega$  的关系可以表示为<sup>[16]</sup>

$$\epsilon(\omega) = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + i\gamma\omega} \quad (8)$$

这里,  $\omega_p$  为该金属的等离子频率,  $\gamma$  为电子的阻尼常数. 虽然在可见区各种金属的光学特性差别较大,但在中红外区,它们都具有如下光学特性: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

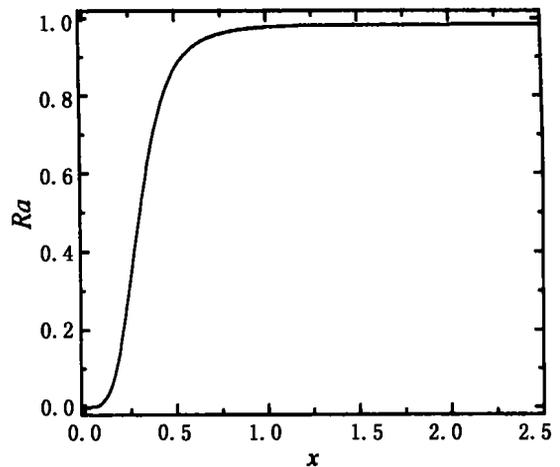


图 4  $\omega = 1000\text{cm}^{-1}$  时 Al 粒子消光的反照率  $R_a$   
Fig. 4 Albedo vs.  $x$  by an Al particle when  $\omega = 1000\text{cm}^{-1}$

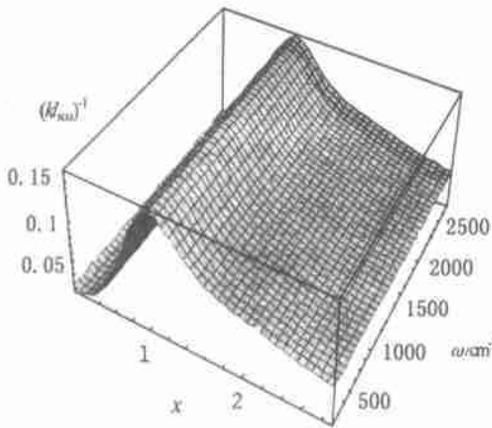


图5 铝粒子体积比为 10% 时的定域化参量  $(kl_{sca})^{-1}$   
 Fig. 5  $(kl_{sca})^{-1}$  vs  $x$  and  $\omega$  when  $f = 10\%$  of Al particles

虚部小.

在中红外区, Al 的介电函数表达式中,  $\epsilon_p = 1.01 \times 10^5 \text{cm}^{-1}$ ,  $\epsilon_i = 1.05 \times 10^3 \text{cm}^{-1}$ . 图 4 给出了  $\omega = 1000 \text{cm}^{-1}$  ( $\lambda = 10 \mu\text{m}$ ) 时 Al 粒子的反照率  $R_a$  与  $x$  的关系. 可以看出, 当  $x > 1$  时, 粒子消光的反照率非常接近于 98%, 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, 这将有利于光子定域化的实现, 所以这里主要给出与散射有关的量. 图 5 给出了 Al 粒子的体积比为  $f = 10\%$  时定域化参量  $(kl_{sca})^{-1}$  与  $x$  和  $\omega$  的关系. 由图 5 可以看到,  $(kl_{sca})^{-1}$  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. 这虽然与理想的定域化相差较远, 自然与直觉上对第三类无序介质的期望相反, 但也可算做较强的散射, 因而应该有一定的应用价值. 另外, 从图 5 还可以看到, 在整个中红外区, 定域化参量曲线几乎与频率(波长)无关, 这与金属在可见区和微波区均不一样.

我们又选取了有代表性的金属 Ag, Al 和 Fe, 计算它们在  $\omega = 1000 \text{cm}^{-1}$  ( $10 \mu\text{m}$ ) 处散射效率因子  $Q_{sca}$  与  $x$  的关系, 如图 6 所示. 计算中使用了如下的光学常数<sup>[16]</sup>: Ag 的复折射率  $N = n + i$  为  $14 + 541i$ , Al 为  $62 + 150i$ , Fe 为  $6 + 31i$ . 从图 6 中可以看到, 尽管 3 种金属的  $n$  和  $i$  差异较大, 但散射效率曲线却非常相似, 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(因为它们均满足  $N \cdot l \gg 1$ ), 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. 由于常用基质的折射率一般小于 2, 所以基质折射率几

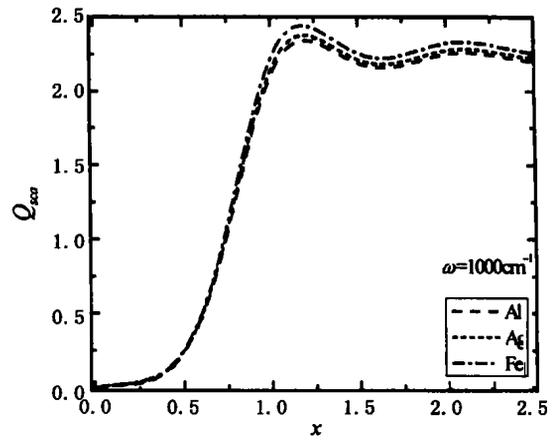


图 6  $\omega = 1000 \text{cm}^{-1}$  时 Ag, Al 和 Fe 的散射效率  $Q_{sca}$  与  $x$  的关系  
 Fig. 6 Scattering efficiencies  $Q_{sca}$  vs.  $x$  for Ag, Al and Fe when  $\omega = 1000 \text{cm}^{-1}$

乎不影响金属散射体系统  $m \cdot l \gg 1$  的条件, 因而对定域化参量的影响也非常小.

### 3 结论

我们首次基于 Mie 散射理论和低浓度近似, 从理论上研究了以反常色散电介质球或金属球做散射体的无序介质的中红外光子定域化问题. 以  $\text{-SiC}$  为例, 通过数值法研究发现, 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, 且频率位于其剩余射线带内. 以 Ag, Al 和 Fe 为例, 发现在金属球做散射体的无序介质中, 尽管散射体的反照率非常高, 体系的吸收非常小, 在整个中红外区几乎不可能实现理想的光子定域化. 研究还发现, 由于常用的基质材料折射率一般不超过 2, 所以它几乎不影响金属散射体系统的定域化行为.

我们希望, 这 2 种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进一步、更广泛的研究和应用.

### REFERENCES

[1] Yablonovitch E. Inhibited spontaneous emission in solid state physics and electronics. *Phys. Rev. Lett.*, 1987, 58: 2059—2062  
 [2] Eradat N, Huang J D, Vardeny Z V, et al. Optical studies of meta-infiltrated opal photonic crystals. *Synthetic Metals*, 2001, 116: 501—504  
 [3] John S. Strong localization of photon in certain disordered dielectric superlattices. *Phys. Rev. Lett.*, 1987, 58: 2486—2489  
 [4] 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. *Phys. Rev. Lett.*, 2000, 84:1435—1438
- [5] Anderson P W. The question of classical localization, a theory of white paint? *Pilos Mag.*, B, 1985, 52:505—509
- [6] Garcia N, Genack A Z. Anomalous photon diffusion at the threshold of the anderson localization. *Phys. Rev. Lett.*, 1991, 66:1850—1853
- [7] Genack A Z, Garcia N. Observation of photon localization in a three-dimensional disordered system. *Phys. Rev. Lett.*, 1991, 66:2064—2067
- [8] Dalichaouch R, Armstrong J P, Schultz S, et al. Microwave localization by two-dimension random scattering. *Nature*, 1991, 354:53—55
- [9] Schuurmans F J P, Megens M, Vanmaekelbergh D, et al. Light scattering near the localization transition in macroporous GaP networks. *Phys. Rev. Lett.*, 1999, 83:2183—2186
- [10] Schuurmans F J P, Vanmaekelbergh D, van de Lagemaat J, et al. Strongly photonic macroporous GaP networks. *Science*, 1999, 284:141—143
- [11] Wiersma D S, Bartolini P, Lagendijk A, et al. Localization of light in a disordered medium. *Nature*, 1997, 390:671—673
- [12] Rivas J G, Sprik R, Soukoulis C M, et al. Optical transmission through strong scattering and highly polydisperse media. *Europhys Lett.*, 1999, 48:22—28
- [13] Rivas J G, Sprik R, Lagendijk A. Midinfrared scattering and absorption in Ge powder close to the Anderson localization transition. *Phys. Rev.*, E, 2000, 62:R4540—4543
- [14] Rivas J G, Sprik R, Lagendijk A, et al. Static and dynamic transport of light close to the Anderson localization transition. *Phys. Rev.*, E, 2001, 63:1—2
- [15] Watson G H, Fleury P A, McCall S L. Search for photon localization in the time domain. *Phys. Rev. Lett.*, 1987, 58:945—948
- [16] Bohren C F, Huffman D R. *Absorption and Scattering of Light by Small Particles*. New York: John Wiley, 1983, Chap. 5
- [17] Hou T, Fu L F, Lu P, et al. Pure GeO<sub>2</sub> hollow-core fiber transmitting CO<sub>2</sub> laser. *Science in China (Series A)* (侯蓝田,付连符,吕平等.传输 CO<sub>2</sub> 激光能量的纯 GeO<sub>2</sub> 空芯光纤. *中国科学(A)*), 1995, 38:749—756
- [18] Matsuura Y, Harrington J A. Hollow glass waveguides with CVD-deposited metal and dielectric-coatings. *SPIE*, 1996, 2677:55—63