1996 SOLID STATE PHYSICS Vol. 38, N 5

ОБЛАСТЬ ЛОКАЛИЗАЦИИ ПОЛЯРИТОНОВ В СИСТЕМЕ СФЕРИЧЕСКИХ ЧАСТИЦ В ДИЭЛЕКТРИЧЕСКОЙ МАТРИЦЕ

© *Т.Р.Барлас, А.В.Гончаренко, Н.Л.Дмитрук*

Институт физики полупроводников Академии наук Украины,
252000 Киев, Украина
(Поступила в Редакцию 25 мая 1995 г.
В окончательной редакции 30 августа 1995 г.)

В рамках теории многократного рассеяния при пренебрежении эффектами диссипации рассчитана трехмерная область сильной локализации электромагнитных волн в безразмерных координатах число заполнения f–относительная диэлектрическая проницаемость ε^* — параметр размера η. Рассмотрены сечения этой области плоскостями $f = \text{const}$ и $\varepsilon = \text{const}$. Показано, что область локализации в трехмерном пространстве односвязна и имеет сложную структуру, отвечающую высшим порядкам рассеяния.

Известно, что в результате когерентной интерференции волн, рассеянных неупорядоченными частицами, коэффициент диффузии света $D = \frac{1}{3}V_e l$ может становиться пренебрежимо малым (здесь V_e — скорость переноса энергии, l — средняя длина свободного пробега фотона). При определенных соотношениях концентрации, размеров, диэлекрической постоянной частиц может наступить необходимая корреляция фаз рассеянных волн, в результате чего волна не проникает в глубь среды. Необходимо отметить, однако, что условие $D \approx 0$ может быть выполнено либо при $V_e \approx 0$, либо при $l \approx 0$. Именно второй случай означает сильную локализацию. Настоящая работа посвящена определению условий, при которых удовлетворяется критерий локализации для случайно распределенных сферических частиц.

Общая постановка задачи и некоторые ограничения

Мы рассматриваем вслед за [1,2] проблему локализации света в системе сфер с отрицательной диэлектрической проницаемостью, случайным образом распределенных в прозрачной диэлектрической матрице. Тогда распространение света может быть описано в рамках теории многократного рассеяния. Согласно теории Ми, электромагнитное поле возле поверхности частицы с отрицательной диэлектрической проницаемостью может быть велико, и особенно вблизи так называемых резонансов Ми. Это приводит к большому сечению рассеяния сферы, и длина свободного пробега фотона может стать малой даже при низких концентрациях частиц. Метод, основанный на приближении средней T-матрицы в рамках диаграммной функции Грина, был использован в работе [1] для металлических частиц. Показана возможность локализации света в области 2.7–3.3 eV для частиц Ag с радиусами 30–50 nm. В [2] этот метод использован для расчета области локализации (ОЛ) фонон-поляритонов и определения длины локализации в системе TiO_2–GaP. В [3] определение ОЛ было проведено для системы, моделируемой как диэлектрические сферы As_2O_3 в поверхностном слое GaAs. Мы применяем подобный подход, используя безразмерные величины, и определяем ОЛ поляритонов в общем случае (в пространстве безразмерных параметров). Это позволяет определить сочетания материалов, для которых возможна локализация, необходимые для этого размеры и концентрацию частиц. Рассматривая рассеяние света на сферической частице, мы будем удерживать три члена в разложении Ми и определяем ОЛ с учетом трех соответствующих порядков рассеяния.

Примем, что материалы матрицы и включений немагнитны, и введем приведенную диэлектрическую проницаемость частицы $\varepsilon^* = \varepsilon_s/\varepsilon_m$, где ε_s, ε_m — диэлектрические проницаемости сфер и матрицы соответственно. Считая, что радиус частицы R, введем также параметр размера $\eta = 2\pi R/\lambda = kR$, где k и λ — волновой вектор и длина волны света в вакууме. Третий безразмерный параметр — число заполнения, или объемная доля частиц f. Введение параметров ε^*, η и f позволяет значительно упростить довольно громоздкие формулы, представленные в [2]. Можно показать, что ОЛ в пространстве ε^*, η и f определяется тогда областью существования решений относительно y трансцендентного уравнения

$$1 - (l/l_c)^2 = (y \operatorname{arctg} y)^{-1}, \tag{1}$$

где l — длина свободного пробега, l_c — ее предельное значение, $y = \xi/l$, ε — длина локализации. Отношение l/l_c определяется выражением

$$l/l_c = 2/3\sqrt{\pi/3}\frac{(Rk)^3}{f\Sigma^*}, \tag{2}$$

где Σ^* связана с коэффициентом рассеяния теории Ми

$$\Sigma^* = \sum_{i=1}^{3}(2i+1)(|a_i|^2 + |b_i|^2). \tag{3}$$

Коэффициенты рассеяния a_i, b_i определены в [3].

Остановимся несколько подробнее на вопросе о сделанных допущениях и рамках применимости используемой модели. Прежде всего мы пренебрегаем собственным поглощением сферических рассеивателей и полагаем ε^* вещественным. В общем случае особенности локализации в поглощающей среде рассмотрены в [4]. Показано, что поглощение уменьшает коэффициент диффузии. Вместе с тем предсказывается возможность резкого перехода между областями локализации и делокализации даже при наличии сильного поглощения. Наши оценочные расчеты показывают, что умеренное поглощение ($\mathrm{Im}\varepsilon^* < \mathrm{Re}\varepsilon^*$) весьма незначительно влияет на контур ОЛ, за исключением точек, в которых $\mathrm{Re}\,\varepsilon^* = -(n+1)/n$ (поверхностные, или Ми-резонансы). Например, при $\mathrm{Re}\,\varepsilon^* \approx -2$, что соответствует $n = 1$ и дипольному резонансу, поляризуемость шара $\alpha \sim (\varepsilon^* - 1)/(\varepsilon^* + 2)$ должна сильно зависеть от $\mathrm{Im}\varepsilon^*$. Далее мы отметим влияние этого фактора на форму ОЛ.

Следующее приближение, используемое в настоящей модели, касается величины удельного объема сфер. Здесь предполагается усреднение фотонного пропагатора по множеству всех возможных конфигураций, полученных в результате случайного распределения сферических рассеивателей, и в дальнейшем записывается уравнение Дайсона для его фурье-трансформанты. Хотя при этом учитывается пространственная дисперсия, мы считаем такую операцию корректной лишь при $\langle d\rangle \geqslant \lambda$, где $\langle d\rangle$ — среднее расстояние между сферами. Иными словами, каждая сфера должна образовать сколько-нибудь протяженную рассеянную волну до следующего акта рассеяния. Ясно, что при приближении к порогу перколяции указанное условие нарушается. Кроме того, при больших f может возникнуть необходимость учета более трех порядков рассеяния. Мы полагаем, во всяком случае, что нет достаточных оснований считать приведенные далее расчеты при $f > 0.3$. С осторожностью нужно подходить и к определению относительно диэлектрической проницаемости $\varepsilon^* = \varepsilon_s/\varepsilon_m$. Для очень малых частиц может оказаться некорректным использование для ε_s его макроскопических значений из-за ряда эффектов [5]. С другой стороны, в сильно разупорядоченных структурах (при больших f) может модифицироваться и ε_m, например в области колебательных резонансов решетки [2].

Результаты расчетов и обсуждение

Рассмотрим (рис. 1) поведение ОЛ при фиксированной длине волны λ и числе заполнения f. При этом сечение рассеяния для отдельной сферы может быть представлено в виде

$$C_{\mathrm{sca}} = \frac{k^4}{6\pi}|\alpha|^2 = \frac{k^4}{6\pi}\frac{f^2}{N^2}|\alpha^*|^2, \tag{4}$$

где α и α^* — обычная и нормированная на объем поляризуемости сфер, N — их концентрация в единице объема. В дипольном приближении

$$\alpha^* = 3\frac{\varepsilon^* - 1}{\varepsilon^* + 2}. \tag{5}$$

В нашем рассмотрении изменение безразмерного параметра $\eta = kR = -2\pi R/\lambda$ пропорционально изменению R. При увеличении R, если f фиксировано, концентрация сфер N падает, а сечение рассеяния при этом увеличивается. Наоборот, длина упругого рассеяния l_{sca}, которая грубо ведет себя как $(NC_{\mathrm{sca}})^{-1}$, падает. Подобно авторам работы [1] мы полагаем, что $l_{\mathrm{sca}} \approx l$. Итак, усиливается многократное рассеяние, а средняя длина свободного пробега l уменьшается. При некотором $\eta_{\min}$ (или $R_{\min}$) в результате когерентной интерференции рассеянных волн наступает их локализация. Отметим, что, как следует из [5], при $\varepsilon^* \to -2$ (при приближении к частоте Фрелиха, соответствующей дипольному резонансу сферической частицы) α^* возрастает. Это

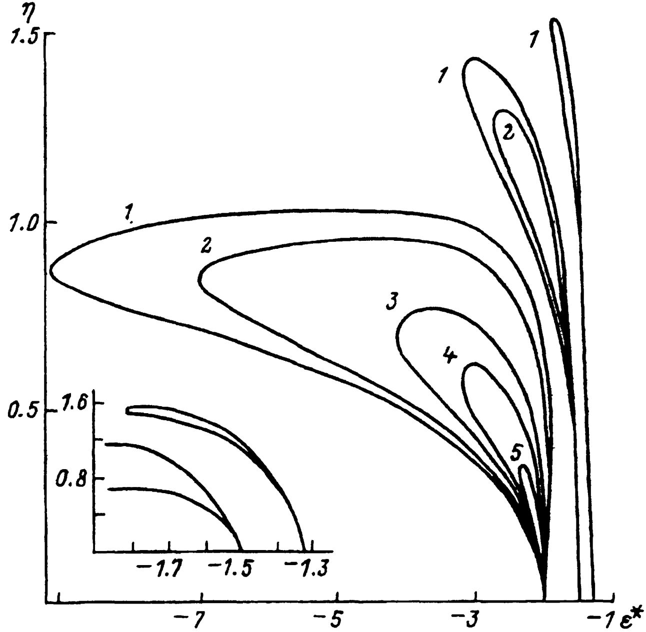

Рис. 1. Сечения области локализации плоскостями $f = \text{const}$: $f = 0.25$ (*1*), 0.2 (*2*), 0.1 (*3*), 0.05 (*4*), 0.01 (*5*).
Большая область соответствует первому порядку рассеяния, узкие области справа соответствуют второму и третьему порядкам. На вставке в увеличенном масштабе представлены области, соответствующие второму и третьему порядкам рассеяния при $f = 0.25$.

означает, что то же значение сечения рассеяния может быть достигнуто при больших N, т.е. при меньшем η или R (см. рис. 1). В принципе при $\varepsilon^* \to -2$ $\eta \to 0$, если пренебречь эффектами, связанными с диссипацией энергии в результате собственного поглощения материала сфер.

С другой стороны, существует некоторое $\eta_{\max}$ (и $R_{\max}$), соответствующее минимальному значению концентрации частиц, при котором локализация еще возможна. Фазовые соотношения для рассеянных волн при $\eta = \eta_{\max}$ уже начинают способствовать их делокализации. Интересно, что $\eta_{\max}$ (и $R_{\max}$) ведет себя немонотонно при $\varepsilon^* \to -2$: сначала медленно возрастает, потом падает. Заметим, что правомерность применения дипольного приближения при увеличении частиц снижается. Собственно, условие $R_{\max} \to 0$ при $\varepsilon^* \to -2$ выполняется именно для малых $R_{\max}$.

Представляет интерес проследить, как изменяется отношение нижнего и верхнего предельного радиусов $R_{\min}/R_{\max}$ в зависимости от ε^* при разных f (рис. 2). Знание такой зависимости позволяет определить размеры области поляритонной локализации вдоль координаты ε^*. Условие $R_{\min} = R_{\max}$ задает левый край ОЛ, это условие достигается при некотором критическом $\varepsilon^*_{\mathrm{lf}}$. Далее при $\varepsilon^* \to -2$ $R_{\min}/R_{\max} \to 0$, поскольку $R_{\min} \to 0$ (сплошная линия). На самом деле диссипативные процессы ограничивают дипольную поляризуемость шара на частоте Фрелиха, и $R_{\min}$ не достигает нуля. Правый край ОЛ, задаваемый тем же условием $R_{\min} = R_{\max}$, достигается при $\varepsilon^* = \varepsilon^*_{\mathrm{dr}}$, несколько большем, чем −2.

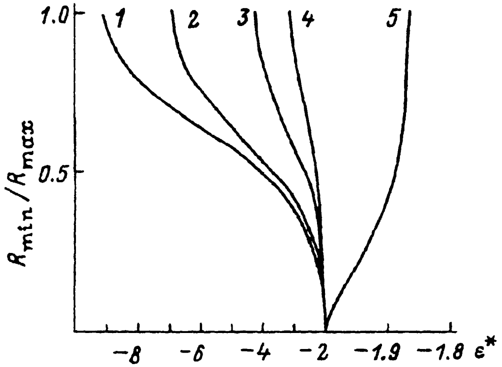

Рис. 2. Отношение верхнего и нижнего предельных радиусов частиц $R_{\min}/R_{\max} = \eta_{\min}/\eta_{\max}$ при значениях $f = 0.25$ (*1*, *5*), 0.2 (*2*), 0.1 (*3*), 0.05 (*4*).

Масштаб по оси абсцисс при $\varepsilon^* > -2$ увеличен в 20 раз.

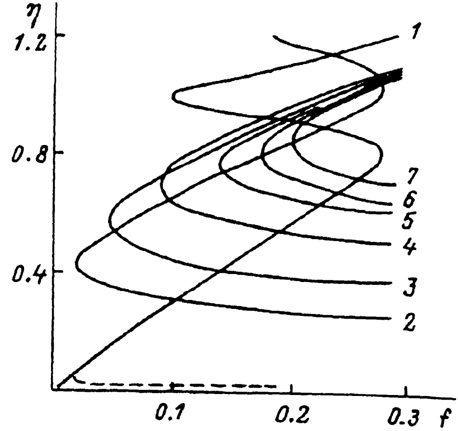

Рис. 3. Сечения области локализации плоскостями $\varepsilon^* = \mathrm{const}$: $\varepsilon^* = -2$ (*1*), −2.5 (*2*), −3 (*3*), −4 (*4*), −5 (*5*), −6 (*6*), −7 (*7*).

Штриховая линия соответствует $\varepsilon^* = -2$ с учетом диссипации энергии.

На рис. 3 представлены сечения ОЛ поляритонов плоскостями $\varepsilon^* = \mathrm{const}$. Таким образом, каждая кривая задает нижний край этой области в $3D$-пространстве при фиксированных ε^*; верхний край задается плоскостью $f = f_{\lim} = -0.74$ (предел плотной упаковки сфер). Особенности поведения кривых *1*–*7* достаточно очевидны. При $\varepsilon^* = -2$ кривая *1* начинается с нуля, моделируя уже описанную нами идеальную ситуацию. Вследствие диссипации энергии нуль, конечно, недостижим, и в результате область малых f отрезается (условно показано штриховой линией). Далее при $f > 0.27$ широкая область, соответствующая резонансу с $n = 1$, перекрывается с более узкой областью, соответствующей $n = 2$. Что касается третьей области ($n = 3$), то она, согласно нашим результатам, перекрывается с областью, соответствующей $n = 2$ при $f \geqslant 0.45$.

Итак, в работе рассчитана форма трехмерной области локализации поляритонов в системе сферических частиц и рассмотрены ее сечения в ортогональных плоскостях $f = \mathrm{const}$ и $\varepsilon^* = \mathrm{const}$. Хотя эти расчеты не дают надежных результатов в предельных случаях при $\varepsilon^* \to \infty$ и $f \to f_{\lim}$ (первое из-за трудностей вычисления функций Бесселя большого аргумента, второе из-за ограниченности применимости модели для больших концентраций), они могут быть полезны при постановке соответствующих экспериментов по обнаружению локализации поляритонов в разупорядоченных средах и их интерпретации.

Настоящая работа поддержана Фондом фундаментальных исследований Госкомитета Украины по науке и технологии (проект № 2.3/261).

Список литературы

[1] Arya K., Su Z.B., Birman I.L. Phys. Rev. Lett. **57**, 2725 (1986).
[2] Cheng Z., Gu S.W., Fang I.X. Phys. Lett. **A 131**, *9*, 524 (1988).
[3] Barlas T.R., Dmitruk N.L., Pidlisnyi E.V. Ukr. J. Phys. **40**, *5*, 853 (1995).
[4] Yosefin M. Europhys. Lett. **25**, *9*, 675 (1994).
[5] Венгер У.Ф., Гончаренко А.В., Завадский С.Н. Опт. и спектр. **77**, *2*, 274 (1994).