

Правила сложения групповых скоростей в нанокompозитных материалах и фотонных кристаллах

А. М. Желтиков¹⁾

Международный лазерный центр, физический факультет МГУ им. М. В. Ломоносова
119899 Москва, Россия

Поступила в редакцию 3 декабря 2003 г.

Получены и проанализированы правила сложения групповых скоростей для различных типов архитектуры нанокompозитных материалов, включая слоисто-неоднородные нанокompозиты, модель Максвелла Гарнетта и одномерный фотонный кристалл. Показана возможность управления групповой скоростью световых импульсов путем изменения размеров нанокристаллов, а также варьирования диэлектрических свойств и содержания образующих наноструктуру материалов. Интерференция рассеянных волн в наноструктурах с пространственным масштабом оптических неоднородностей, сопоставимым с длиной волны излучения, приводит к новым физическим явлениям, которые не могут быть описаны в рамках моделей эффективной среды.

PACS: 42.65.Wi, 42.81.Qb

Нанокompозитные материалы открывают новые уникальные возможности в области лазерной физики и лазерных технологий. Нанопорошковые материалы все шире используются для создания лазеров [1] и оптических преобразователей частоты новой архитектуры [2]. Нано- и мезопористые полупроводниковые материалы позволяют значительно увеличить эффективность нелинейно-оптических взаимодействий лазерных импульсов [3]. Фотонно-кристаллические структуры [4, 5] активно исследуются в связи с возможностями управления излучательными процессами и перспективами создания нового поколения элементов и устройств для телекоммуникаций, лазерной физики и нелинейной оптики [6].

Многие замечательные свойства нелинейно-оптических взаимодействий в нанокompозитных материалах связаны с эффектами локального усиления поля [7] и с возможностью перестройки эффективного показателя преломления материала путем изменения диэлектрических свойств, содержания и размеров наночастиц, образующих наноструктуру [3]. Полученные в последнее время экспериментальные данные указывают на перспективность использования нанокompозитных материалов для нелинейно-оптического преобразования частоты сверхкоротких импульсов [2, 8]. Одна из ключевых задач разработки высокоэффективных и компактных устройств для управления сверхкороткими лазерными импульсами на основе нанокompозитных материалов – устройств фем-

тосекундной нанофотоники – связана с анализом возможностей перестройки групповой скорости световых импульсов в нанокompозитных материалах. Для решения этой задачи в настоящей работе получены и проанализированы правила сложения групповых скоростей для различных типов архитектуры нанокompозитных материалов, включая слоистую нанотекстуру, модель Максвелла Гарнетта и одномерный фотонный кристалл.

Начнем наше рассмотрение со слоисто-неоднородного нанокompозитного материала (см. вставку на рис.1). Подобная архитектура наноструктуры предполагает наличие плоских слоев материала с диэлектрической проницаемостью $\epsilon_1 = n_1^2$, расположенных параллельно друг другу в среде с диэлектрической проницаемостью $\epsilon_2 = n_2^2$ (n_1, n_2 – показатели преломления образующих нанокompозит материалов). Оптические свойства такой структуры рассматривались в литературе, начиная с XIX века. Релей, в частности, показал [9], что подобная слоистая структура обладает двулучепреломлением формы. Двулучепреломление формы позволяет радикально увеличить эффективность нелинейно-оптических процессов в наноструктурированных материалах [10] и многослойных волноводах [11] за счет фазового согласования излучения накачки и нелинейного сигнала.

При выполнении условий $\omega n_1 a/c, \omega n_2 b/c \ll 1$, где ω – частота излучения, a и b – толщины чередующихся слоев изотропных материалов с показателями преломления n_1 и n_2 соответственно, эффективные показатели преломления периодической слоистой на-

¹⁾e-mail: zheltikov@top.phys.msu.su

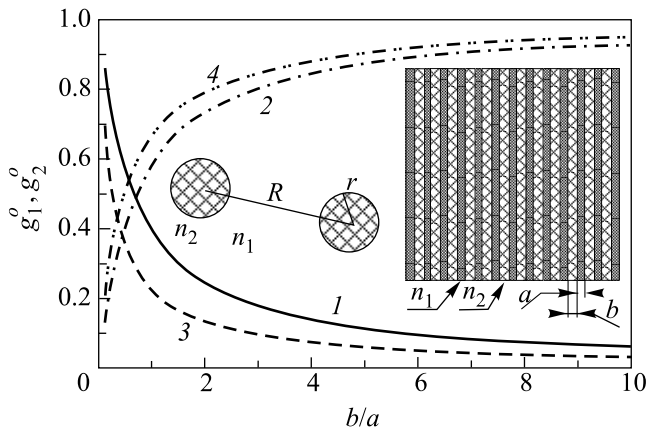


Рис.1. Зависимость весовых множителей g_1^o (кривые 1 и 3) и g_2^o (кривые 2 и 4) для обыкновенной волны в слоисто-неоднородном нанокompозитном материале от отношения толщин слоев b/a . Отношение показателей преломления слоев, образующих структуру, $n_2/n_1 = 1.5$ (1, 2) и 3.0 (3, 4). На вставках показаны нанокompозитные материалы различной архитектуры: слоисто-неоднородная среда (справа), модель Максвелла Гарнетта (слева)

нотекстуры, представленной на вставке к рис.1, для обыкновенной и необыкновенной волн описываются выражениями [12]

$$n_o^2 = \frac{a}{d} n_1^2 + \frac{b}{d} n_2^2, \quad (1)$$

$$\frac{1}{n_e^2} = \frac{a}{d} \frac{1}{n_1^2} + \frac{b}{d} \frac{1}{n_2^2}, \quad (2)$$

где $d = a + b$. Выражения (1) и (2) представляют собой правила сложения показателей преломления материалов, образующих наноструктуру для обыкновенной и необыкновенной волн в слоисто-неоднородных нанокompозитных материалах. Для того, чтобы найти правило сложения групповых скоростей световых импульсов в подобной наноструктуре, продифференцируем выражения (1) и (2) по частоте. Данная операция приводит к следующим результатам:

$$\frac{1}{v_o} = \frac{1}{d^{1/2}(an_1^2 + bn_2^2)^{1/2}} \left(\frac{an_1}{v_1} + \frac{bn_2}{v_2} \right), \quad (3)$$

$$\frac{1}{v_e} = \frac{d^{1/2}}{\left(\frac{a}{n_1^2} + \frac{b}{n_2^2} \right)^{3/2}} \left(\frac{a}{n_1^3} \frac{1}{v_1} + \frac{b}{n_2^3} \frac{1}{v_2} \right), \quad (4)$$

где $v_i = (\partial k_i / \partial \omega)^{-1}$ – групповые скорости для материалов, образующих структуру ($i = 1, 2$).

В предельном случае $n_1 = n_2$, $v_1 = v_2 = v$ выражения (3) и (4) приводятся к формулам для групповой скорости света в однородной изотропной среде:

$v_o = v_e = v$. В общем случае, как следует из формул (3) и (4), правила сложения групповых скоростей для обыкновенной и необыкновенной волн в слоисто-неоднородной среде могут быть представлены в виде

$$\frac{1}{v_{o,e}} = \frac{g_1^{o,e}}{v_1} + \frac{g_2^{o,e}}{v_2}. \quad (5)$$

Весовые множители $g_i^{o,e}$ ($i = 1, 2$) в выражении (5) зависят только от отношений толщин слоев b/a и показателей преломления n_2/n_1 , образующих нанокompозит материалов. На рис.1 и 2 представлены зависимости весовых множителей $g_i^{o,e}$ для обыкновенной и необыкновенной волн в слоисто-неоднородном нанокompозитном материале от отношения толщин слоев b/a . В случае обыкновенной волны (рис.1) весовые множители g_i^o являются монотонными функциями отношения b/a . Вклад каждого из материалов в групповую скорость света в нанокompозитном материале монотонно убывает с уменьшением содержания данного материала. В случае необыкновенной волны (рис.2) весовые множители g_i^e могут являться немонотонными функциями отношения b/a . Анализ

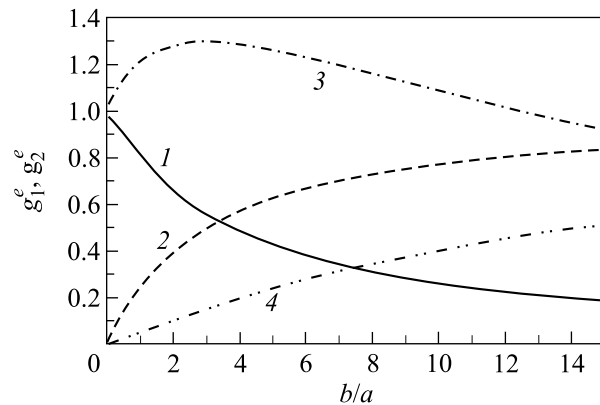


Рис.2. Зависимость весовых множителей g_1^e (кривые 1 и 3) и g_2^e (кривые 2 и 4) для необыкновенной волны в слоисто-неоднородном нанокompозитном материале от отношения толщин слоев b/a . Отношение показателей преломления слоев, образующих структуру, $n_2/n_1 = 1.5$ (1, 2) и 3.0 (3, 4)

формул (4) и (5) показывает, что множитель g_1^e изменяется монотонно как функция b/a при $n_2^2/n_1^2 < 3$ (кривая 1 на рис.2) и имеет максимум при $n_2^2/n_1^2 > 3$ (кривая 3 на рис.2). Максимальное значение этого множителя достигается при следующем значении отношения b/a :

$$\left(\frac{b}{a} \right)_{\max} = \frac{1}{2} \frac{n_2^2}{n_1^2} - \frac{3}{2}. \quad (6)$$

Выполненный анализ показывает, что величина, обратная эффективной групповой скорости, в нано-

композитном материале может быть представлена в виде суммы обратных групповых скоростей в каждом из материалов, взятых с весовыми коэффициентами, определяющимися оптическими свойствами образующих наноструктуру материалов и архитектурой нанокompозита. Подобный вид правила сложения групповых скоростей характерен для моделей эффективной среды. Эффекты сильной связи и интерференции рассеянных волн, как будет показано ниже, приводят к нарушению этого правила сложения групповых скоростей.

Модель Максвелла Гарнетта [13] позволяет найти эффективную диэлектрическую проницаемость нанокompозитной структуры (вставка на рис.1), образованной материалом с диэлектрической проницаемостью $\epsilon_1 = n_1^2$ и наноразмерными включениями в виде сферических наночастиц материала с диэлектрической проницаемостью $\epsilon_2 = n_2^2$ и объемным содержанием p , расположенных на больших расстояниях R друг от друга ($R \gg r$, где r – радиус наночастиц, см. вставку на рис.1). Правило сложения диэлектрических проницаемостей материалов, образующих нанокompозит в модели Максвелла Гарнетта, дается следующей формулой:

$$\epsilon_{MG} = \epsilon_1 + 3p\epsilon_1 \frac{\epsilon_2 - \epsilon_1}{\epsilon_2 + 2\epsilon_1}. \quad (7)$$

Дифференцирование выражения (7) по частоте приводит к следующему правилу сложения групповых скоростей в модели Максвелла Гарнетта:

$$v_{MG}^{-1} = n^{-1}(n_2^2 + 2n_1^2)^{-2} \times \\ \times \left\{ [2((2 - 3p)n_1^4 + (1 + 3p)n_2^4 + \right. \\ \left. + 2(2 - 3p)n_1^2 n_2^2] \frac{n_1}{v_1} + 9pn_1^4 \frac{n_2}{v_2} \right\}. \quad (8)$$

Таким образом, аналогично случаю слоисто-неоднородного нанокompозитного материала, величина, обратная эффективной групповой скорости в рамках модели Максвелла Гарнетта, может быть представлена в виде суммы обратных групповых скоростей в каждом из образующих наноструктуру материалов, взятых с некоторыми весовыми множителями:

$$\frac{1}{v_{MG}} = \frac{g_1^{MG}}{v_1} + \frac{g_2^{MG}}{v_2}. \quad (9)$$

Отношение весовых множителей в выражении (9) $F_{MG}(p, n_2/n_1) = g_2^{MG}/g_1^{MG}$ записывается в виде

$$F_{MG} \left(p, \frac{n_2}{n_1} \right) =$$

$$= \frac{9p}{2(2 - 3p) + (1 + 3p) \left(\frac{n_2}{n_1} \right)^4 + 2(2 - 3p) \left(\frac{n_2}{n_1} \right)^2} \frac{n_2}{n_1}. \quad (10)$$

Вследствие малости p зависимость фактора F_{MG} от объемного содержания наночастиц близка к линейной. Зависимость F_{MG} от отношения показателей преломления n_2/n_1 является немонотонной. При малых n_2/n_1 фактор F_{MG} линейно растет при увеличении отношения показателей преломления. Максимальное значение F_{MG} достигается независимо от значения p при $n_2/n_1 = (2/3)^{1/2}$. При больших значениях отношения n_2/n_1 показатель преломления и групповая скорость в нанокompозитной среде стремятся к следующим предельным значениям: $n = n_1(1 + 3p)^{1/2}$, $v = v_1(1 + 3p)^{-1/2}$.

Фотонные кристаллы [4–6] представляют собой материалы с одномерной, двумерной или трехмерной периодической модуляцией показателя преломления с характерным пространственным масштабом модуляции, обеспечивающим сильную связь рассеянных электромагнитных волн. Поле электромагнитного излучения в таких структурах имеет вид блоховских волн. В простейшем случае идеального одномерного фотонного кристалла, имеющего вид бесконечной периодической последовательности слоев с показателями преломления n_1 и n_2 и толщинами a и b (вставка на рис.1), блоховское волновое число K удовлетворяет следующему дисперсионному соотношению:

$$\cos(Kd) = \cos\left(\frac{\omega}{c}n_1a\right) \cos\left(\frac{\omega}{c}n_2b\right) - \\ - \Delta \sin\left(\frac{\omega}{c}n_1a\right) \sin\left(\frac{\omega}{c}n_2b\right), \quad (11)$$

где $\Delta = (n_1^2 + n_2^2)/2n_1n_2$. Дифференцируя выражение (11) по частоте, получим следующее правило сложения групповых скоростей в одномерном фотонном кристалле:

$$\frac{1}{v_{PBG}} = \frac{g_1^{PBG}}{v_1} + \frac{g_2^{PBG}}{v_2}, \quad (12)$$

где

$$g_1^{PBG} = \frac{a}{d|\sin Kd|} \times \\ \times \left[\sin\left(\frac{\omega}{c}n_1a\right) \cos\left(\frac{\omega}{c}n_2b\right) + \Delta \cos\left(\frac{\omega}{c}n_1a\right) \sin\left(\frac{\omega}{c}n_2b\right) \right], \quad (13)$$

$$g_2^{PBG} = \frac{b}{d|\sin Kd|} \times \\ \times \left[\sin\left(\frac{\omega}{c}n_1a\right) \cos\left(\frac{\omega}{c}n_2b\right) + \Delta \cos\left(\frac{\omega}{c}n_1a\right) \sin\left(\frac{\omega}{c}n_2b\right) \right]. \quad (14)$$

В предельном случае $\omega n_1 a/c$, $\omega n_2 b/c \ll 1$ выражения (12)–(14) приводят к формулам (1) и (2) для эффективной групповой скорости в слоисто-неоднородной среде. В общем случае, однако, правило сложения групповых скоростей в фотонном кристалле, как следует из сравнения выражений (1), (2) и (12)–(14), качественно отличается от правил сложения для слоисто-неоднородной нанокompозитной среды и нанокompозита, описываемого в рамках модели Максвелла Гарнетта. В отличие от моделей эффективной среды, построенных в электростатическом приближении, правило сложения групповых скоростей, полученное для одномерного фотонного кристалла, в явном виде включает зависимость от частоты излучения (рис.3). Помимо дисперсионных свойств

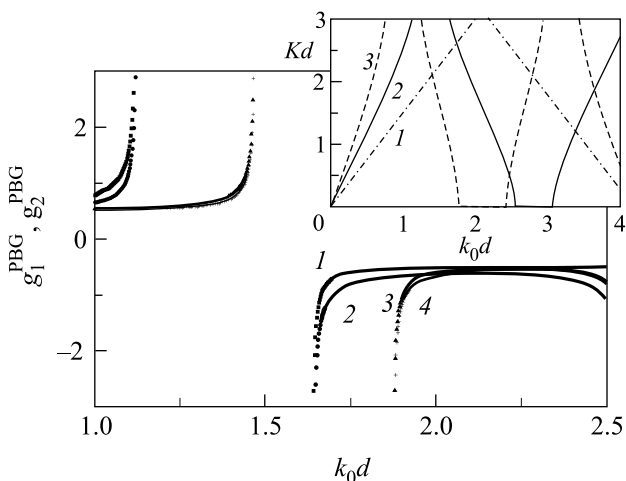


Рис.3. Зависимость весовых множителей g_1^{PBG} (кривые 1 и 3) и g_2^{PBG} (кривые 2 и 4) от безразмерной частоты k_0d ($k_0 = \omega/c$) в одномерном фотонном кристалле с толщинами слоев $a = b = 100$ нм и показателями преломления $n_1 = 1.5$, $n_2 = 2$ (1, 2) и 1.5 (3, 4). На вставке показана дисперсия одномерного фотонного кристалла, состоящего из периодически чередующихся слоев равной толщины, $a = b$, и отношением показателей преломления $n_2/n_1 = 1$ (1), 2 (2), 3 (3)

каждого из материалов, образующих фотонный кристалл, и морфологии наноструктуры, существенное влияние на групповую скорость электромагнитного излучения оказывают свойства дисперсии блоховских волн (вставка на рис.3), которые могут радикально отличаться от свойств дисперсии каждого из образующих фотонный кристалл материалов.

С физической точки зрения, различие правил сложения групповых скоростей для нанокompозитных материалов, описываемых в рамках электростатической модели эффективной среды, и для фотонных кристаллов связано с эффектами интерференции световых волн, рассеиваемых на неоднородностях по-

казателя преломления. Подобные интерференционные явления особенно сильно проявляются вблизи фотонных запрещенных зон периодических структур, то есть вблизи частот, удовлетворяющих условиям сильной связи прямой и рассеянных волн (вставка на рис.3). Один из наиболее ярких эффектов, наблюдаемых вблизи этих частотных областей, связан со значительным уменьшением групповой скорости. Вблизи границ фотонных запрещенных зон, при $Kd \rightarrow \pi$, имеем $v_{PBG} \rightarrow 0$ (рис.3, 4). Групповая скорость при

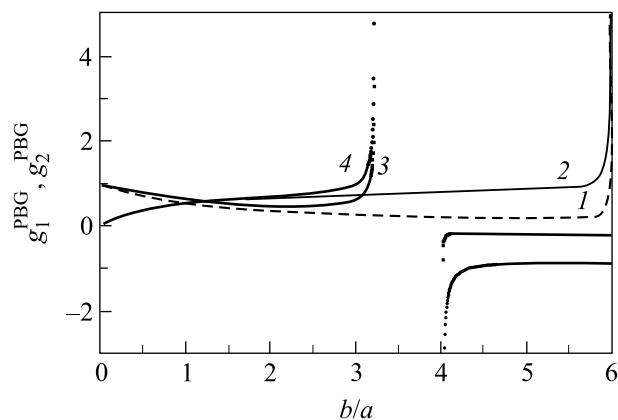


Рис.4. Зависимость весовых множителей g_1^{PBG} (кривые 1 и 3) и g_2^{PBG} (кривые 2 и 4) в одномерном фотонном кристалле от отношения толщин слоев b/a для периодической многослойной структуры со следующими параметрами: $a = 100$ нм, $n_1 = 1.5$, $n_2 = 2.25$ (1, 2) и 3.375 (3, 4)

этих условиях оказывается значительно ниже, чем в каждом из материалов. Подобные явления не наблюдаются в слоисто-неоднородных средах, в которых пространственный масштаб модуляции показателя преломления существенно меньше длины волны излучения (ср. рис.1, 2, 4). Интерференционные явления в подобных материалах незначительны, а их дисперсия удовлетворительно описывается в рамках моделей эффективной среды (формулы (1), (2)). Необходимо отметить, что определение групповой скорости в области фотонных запрещенных зон требует определенной осторожности. Подробный, методически последовательный анализ этого вопроса содержится в книге [12].

В настоящей работе нами получены и проанализированы правила сложения групповых скоростей для различных типов архитектуры нанокompозитных материалов, включая слоисто-неоднородные нанокompозиты, модель Максвелла Гарнетта и одномерный фотонный кристалл. Показана возможность управления групповой скоростью световых импульсов путем из-

менения размеров нанокристаллов, а также варьирования диэлектрических свойств и содержания образующих наноструктуру материалов. Эффекты сильной связи и интерференции рассеянных волн в наноструктурах с пространственным масштабом оптических неоднородностей, сопоставимым с длиной волны излучения, приводят к возникновению новых физических явлений, которые не могут быть описаны в рамках моделей эффективной среды. Обмен энергией между сильно связанными прямыми и отраженными волнами в фотонных кристаллах, в частности, позволяет реализовать режимы распространения электромагнитного излучения, характеризующиеся низкими значениями групповой скорости и высокими факторами локального увеличения нелинейно-оптических взаимодействий.

Работа выполнена при поддержке гранта МД # 42.2003.02 Президента Российской Федерации, грантов Российского фонда фундаментальных исследований # 02-02-17098, # 03-02-16929 и гранта CRDF # RP2-2528.

1. N. M. Lawand, R. M. Balachandran, A. S. L. Gomes, and E. Sauvain, *Nature* **368**, 436 (1994).

2. S. O. Konorov, D. A. Sidorov-Biryukov, I. Bugar et al., *Appl. Phys.* **B78**, 73 (2004).
3. P. K. Kashkarov, L. A. Golovan, A. B. Fedotov et al., *J. Opt. Soc. Am.* **B19**, 2273 (2002)
4. J. D. Joannopoulos, R. D. Meade, and J. N. Winn, *Photonic Crystals: Molding the Flow of Light*, Princeton University Press, Princeton, 1995.
5. K. Sakoda, *Optical Properties of Photonic Crystals*, Springer, Berlin, 2001.
6. *Nonlinear Optics of Photonic Crystals*, Feature issue of the *Journal of Optical Society of America* **B19**, № 9 (2002), Eds. C. M. Bowden, and A. M. Zheltikov.
7. J. E. Sipe and R. W. Boyd, *Phys. Rev.* **A46**, 1614 (1992).
8. S. O. Konorov, A. B. Fedotov, A. A. Ivanov et al., *Opt. Commun.* **224**, 309 (2003).
9. Lord Rayleigh, *Phil. Mag.* **34**, 481 (1892).
10. L. A. Golovan, V. Yu. Timoshenko, A. B. Fedotov et al., *Appl. Phys.* **B73**, 31 (2001).
11. A. Fiore, V. Berger, E. Rosencher et al., *Nature* **391**, 463 (1998).
12. A. Yariv and P. Yeh, *Optical Waves in Crystals*, Wiley, New York, 1984.
13. J. C. Maxwell Garnett, *Philos. Trans. R. Soc. London* **203**, 385 (1904).