

## 光学复合体系中有效介质理论的适用条件

孙洋, 张用友\*

北京理工大学物理学院, 北京 102401

**摘要** 以纳米晶掺杂复合体系为例, 研究该类多组分光学材料的有效介电系数随复合体系结构和组分介电系数的变化, 进而分析有效介质理论的适用条件。假定纳米晶被周期性掺杂到背景晶体中, 且均为各向同性材料。借助转移矩阵理论研究发现, 当纳米晶和背景晶体的介电系数相差较大时, 有效介电系数会表现出波长依赖性。此外, 发现复合体系在其光学能隙处没有有效介电系数, 说明此时基于等效介质思想的有效介质理论均不适合描述复合体系的光学性质, 这是因为在物理上均一的光学材料无法形成光学能隙。

**关键词** 表面光学; 光学超材料; 转移矩阵理论; 有效介质理论; 有效介电系数; 复合体系

**中图分类号** O436

**文献标志码** A

**DOI:** 10.3788/AOS221469

## 1 引言

微纳加工技术的快速发展使人们能够合成各种具有复杂微结构的光学超材料, 它们表现出明确的结构和物性的对应关系。描写超材料光学特性的核心参数是有效介电系数和有效磁导率, 故分析超材料的有效光学参数一直是电磁计算领域中的一个核心问题。最近, 研究人员通过水相法生成了毫米级甚至厘米级钙钛矿  $\text{Cs}_4\text{PbBr}_6$  晶体, 并且其中随机嵌入着  $\text{CsPbBr}_3$  纳米晶<sup>[1]</sup>。由于  $\text{CsPbBr}_3$  纳米晶可对背景  $\text{Cs}_4\text{PbBr}_6$  晶体的折射率进行调控, 故此复合光学材料可用作 1/4 波片, 具有宽波带、消色差特性。对于这种复合材料介电系数的分析, 通常可以使用基于等效介质思想的有效介质理论, 如 Maxwell-Garnet 有效介质理论<sup>[2-5]</sup>和 Bruggeman 有效介质理论<sup>[6-8]</sup>。然而, 它们仅适用于纳米晶和背景晶体介电系数相差较小的情况, 当介电系数相差较大时, 给出的有效介电系数的误差相对较大<sup>[9]</sup>。

本文为方便讨论此问题, 假设纳米晶被周期地掺杂到背景晶体中。此时, 可以采用转移矩阵方法来分析此复合体系的光学传输性质, 并基于光学传输性质来研究其有效介电系数随复合体系结构和参数的变化。同时, 在此基础上可以进一步研究等效介质思想即有效介质理论的适用条件。本文采用判定系数  $R^2$  来衡量等效透射谱和原透射谱之间的匹配程度, 并由其判断有效介电系数是否合理, 以及有效介质理论是否适用。此处所用的获取有效介电系数的方法在原理上与 Fresnel 拟合方法<sup>[10-11]</sup>是一致的, 它们均通过拟合

材料透射谱或反射谱来获得材料的有效介电系数。

在将转移矩阵理论获得的有效介电系数与 Bruggeman 有效介质理论获得的有效介电系数进行比较的过程中发现, Bruggeman 有效介质理论确实仅适用于纳米晶与背景晶体介电系数相差较小的情况。此外, Bruggeman 有效介质理论给出的有效介电系数仅与纳米晶的体积分数有关, 与波长无关。相反, 本文计算发现, 当纳米晶与背景晶体介电系数相差较大 ( $|\epsilon_r^A - \epsilon_r^B| > 3$ ) 时, 有效介电系数与波长相关, 这是因为复合体系中存在光学带隙。为研究该问题, 本文安排如下。首先, 在第 2 章简要介绍研究模型和回顾 Bruggeman 有效介质理论, 并给出转移矩阵理论的详细计算方案。然后, 在第 3 章讨论数值计算结果并予以分析。最后, 在第 4 章给出结论, 即复合体系的有效介电系数在纳米晶与背景晶体介电系数相差较大 ( $|\epsilon_r^A - \epsilon_r^B| > 3$ ) 时与波长相关, 且在光学能隙处没有有效介电系数。这说明所有基于等效介质思想的有效介质理论在光学能隙处均不适合描述复合体系的光学性质, 这是因为均一的光学材料无法形成光学能隙。

## 2 计算方法

## 2.1 模型

在具体计算过程中, 纳米晶被看成是具有立方体结构(边长为  $w$ )的各向同性光学晶体, 在三个方向上有相同的周期  $L$ , 如图 1(a) 所示, 其中背景晶体由浅色示意, 纳米晶由深色立方体示意。进一步利用纳米晶

收稿日期: 2022-07-13; 修回日期: 2022-08-27; 录用日期: 2022-10-08; 网络首发日期: 2022-10-18

基金项目: 国家自然科学基金(12074037)

通信作者: \*yyzhang@bit.edu.cn

和背景晶体的相对介电系数(分别记为  $\epsilon_r^A$  和  $\epsilon_r^B$ ), 便可通过转移矩阵方法计算出  $xy$  平面方向无限、 $z$  方向具有任意周期(层数记为  $Z$ , 周期数记为  $Z/2$ ) 的光学结构的透射率和反射率。若将该复合体系看成是均匀且各

向同性的大块等效晶体, 则可假定其由有效介电系数  $\epsilon_{r, \text{eff}}$  来描述, 如图 1(b) 所示。通过比较此等效晶体的透射谱(等效透射谱)与原始结构的透射谱(原透射谱), 即可确定此有效介电系数。

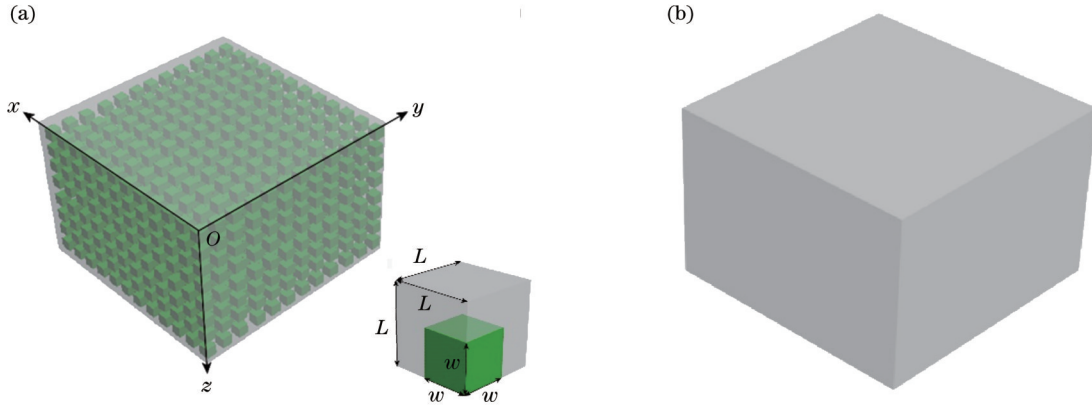


图 1 纳米晶掺杂背景晶体结构示意图与等效晶体模型。(a) 纳米晶掺杂背景晶体结构示意图; (b) 等效晶体模型

Fig. 1 Schematic diagram of nanocrystal-doped composite crystal structure and equivalent crystal model. (a) Schematic diagram of nanocrystal-doped composite crystal structure; (b) equivalent crystal model

### 2.2 有效介质理论

有效介质理论在电磁学中的应用源于 19 世纪的 Biot 和 Arago<sup>[12]</sup> 二人, 他们用气体所占体积百分比乘上各自的折射率来计算混合气体的折射率。到目前为止, 有效介质理论已经发展出了多种方案, 较为著名的是 Maxwell-Garnet 有效介质理论和 Bruggeman 有效介质理论, 它们均是 Clausius-Mossotti 关系<sup>[13-15]</sup> (表示介电系数与分子极化的关系) 的变式。本文将与 Bruggeman 有效介质理论作比较。Bruggeman 有效介质理论将复合体系等效为有效介电系数为  $\epsilon_{r, \text{eff}}^{\text{Br}}$  的介质包裹多个掺杂球体的物理模型, 再通过使球体的消光截面为 0, 实现单一介质等效。Bruggeman 有效介质理论给出的有效介电系数  $\epsilon_{r, \text{eff}}^{\text{Br}}$  取决于

$$f \frac{\epsilon_r^A - \epsilon_{r, \text{eff}}^{\text{Br}}}{\epsilon_r^A + 2\epsilon_{r, \text{eff}}^{\text{Br}}} + (1-f) \frac{\epsilon_r^B - \epsilon_{r, \text{eff}}^{\text{Br}}}{\epsilon_r^B + 2\epsilon_{r, \text{eff}}^{\text{Br}}} = 0, \quad (1)$$

式中:  $f$  为掺杂晶体 A 的体积分数;  $\epsilon_r^A$  和  $\epsilon_r^B$  分别为掺杂晶体 A 和背景晶体 B 的相对介电系数。

这个理论主要适用于瑞利散射区且要求掺杂颗粒与背景介电系数相差较小<sup>[9]</sup>。为扩展该类型理论的适用范围, 研究者们针对其提出了多种改进方案, 如非局域修正<sup>[16]</sup>、退极化修正<sup>[17]</sup> 和增量 Maxwell-Garnet 公式<sup>[18]</sup> 等。本文就此利用转移矩阵理论从数值角度来进行研究, 且不仅仅局限于分析 Bruggeman 有效介质理论的适用范围。一方面, 具体量化了掺杂颗粒与背景介电系数间的差异临界值。另一方面, 当掺杂物与母体间介电系数差异较大时, 有效介电系数将表现出波长依赖性, 并且在光学能隙处不存在有效介电系数。这与数值计算结果一致。

### 2.3 转移矩阵理论

本节将给出转移矩阵理论<sup>[19-22]</sup> 的详细计算方案, 针对的是图 1(a) 所示的光学结构。在图 1(a) 中, 掺杂晶体(纳米晶) A 被看作是边长为  $w$  的立方体, 假设其被均匀地掺杂到背景晶体 B 中, 且在三个方向上有相同的周期  $L$ 。因此, 系统的相对介电系数  $\epsilon_r$  是周期函数, 满足

$$\epsilon_r(x, y, z) = \epsilon_r(x + L, y, z) = \epsilon_r(x, y + L, z) = \epsilon_r(x, y, z + L), \quad (2)$$

故介电系数在  $x$  方向和  $y$  方向可以展开为

$$\epsilon_r(x, y, z) = \sum_{m, n \in Z} \epsilon_r^{(m, n)}(z) \exp(imG_x x + inG_y y), \quad (3)$$

式中:  $G_x$  和  $G_y$  分别代表周期晶格在  $x$  方向和  $y$  方向上的倒格矢大小, 表达式为  $G_x = G_y = 2\pi/L$ ;  $m$  和  $n$  代表  $x$  方向和  $y$  方向上的展开阶数(取所有整数)。此时, 可以用转移矩阵理论来分析该复合体系的光学透射行为<sup>[23-25]</sup>, 进而通过光学透射行为来研究有效介质理论的适用条件。

若假定入射光沿  $z$  轴照射到复合体系上, 如图 1(a) 所示, 电场沿  $x$  方向, 磁场沿  $y$  方向, 则它们同样可以展开为

$$\begin{cases} E_x(x, y, z) = \sum_{m, n \in Z} E_x^{(m, n)}(z) \exp(imG_x x + inG_y y) \\ H_y(x, y, z) = \sum_{m, n \in Z} H_y^{(m, n)}(z) \exp(imG_x x + inG_y y) \end{cases}, \quad (4)$$

场强的各阶分量由  $E_x^{(m, n)}(z)$  和  $H_y^{(m, n)}(z)$  表示, 下面将基于其来构造转移矩阵。与常见的应用于多层薄膜结构的转移矩阵相比, 该转移矩阵的阶数一般超过两阶,

这主要是因为  $xy$  平面内的二维周期结构会造成各阶布洛赫波间的耦合。将式(3)所示的介电系数的傅里叶展开和式(4)所示的电磁场的傅里叶展开代入麦克斯韦方程

$$\begin{cases} \nabla \times \mathbf{E} = i\omega\mu_0\mathbf{H} \\ \nabla \times \mathbf{H} = -i\omega\epsilon_r\epsilon_0\mathbf{E} \end{cases} \quad (5)$$

式中： $\bar{\mathbf{E}}_x = [E_x^{(-M, -N)}(z) \ E_x^{(-M, -N+1)}(z) \ \dots \ E_x^{(-M, N)}(z) \ E_x^{(-M+1, -N)}(z) \ \dots \ E_x^{(M, N)}(z)]^T$ ； $\bar{\mathbf{H}}_y = [H_y^{(-M, -N)}(z) \ H_y^{(-M, -N+1)}(z) \ \dots \ H_y^{(-M, N)}(z) \ H_y^{(-M+1, -N)}(z) \ \dots \ H_y^{(M, N)}(z)]^T$ 。其中， $M$  和  $N$  分别是电磁波  $x$  方向和  $y$  方向上展开阶数  $m$  和  $n$  的最大截断值，即  $m \in [-M, M], n \in [-N, N]$ 。因此，两个向量  $\bar{\mathbf{E}}_x$  和  $\bar{\mathbf{H}}_y$  分别有  $(2M+1)(2N+1)$  个元素。经过微分运算，可以得到式(6)中系数矩阵  $P$  的形式，即

$$\frac{d}{dz} \begin{bmatrix} \bar{\mathbf{E}}_x \\ \bar{\mathbf{H}}_y \end{bmatrix} = iP \begin{bmatrix} \bar{\mathbf{E}}_x \\ \bar{\mathbf{H}}_y \end{bmatrix}, \quad (6)$$

$$P = \begin{bmatrix} \bar{\mathbf{0}} & \omega\mu_r\bar{\mathbf{I}} \\ \omega\epsilon_r & \bar{\mathbf{0}} \end{bmatrix}, \quad (7)$$

式中： $\bar{\mathbf{0}}$  为  $(2M+1)(2N+1)$  阶零矩阵； $\bar{\mathbf{I}}$  为  $(2M+1)(2N+1)$  阶单位矩阵； $\mu_r$  为相对磁导率； $\epsilon_r$  的表达式为

$$\epsilon_r = \begin{bmatrix} \epsilon_r^{(0,0)}(z) & \epsilon_r^{(0,-1)}(z) & \dots & \epsilon_r^{(-2M,-2N)}(z) \\ \epsilon_r^{(0,1)}(z) & \epsilon_r^{(0,0)}(z) & \dots & \epsilon_r^{(-2M,-2N+1)}(z) \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ \epsilon_r^{(2M,2N)}(z) & \epsilon_r^{(2M,2N-1)}(z) & \dots & \epsilon_r^{(0,0)}(z) \end{bmatrix} \quad (8)$$

矩阵  $\epsilon_r$  中元素的行指标由  $m, n$  组合标记，对应的列指标由  $m', n'$  标记，其中： $m$  和  $m'$  为介电系数  $x$  方向的傅里叶变换阶数，即  $m$  和  $m'$  的取值范围均为  $[-M, M]$ ； $n$  和  $n'$  为介电系数  $y$  方向的傅里叶变换阶数，即  $n$  和  $n'$  的取值范围均为  $[-N, N]$ 。因此，矩阵  $\epsilon_r$  中的元素由  $\epsilon_r^{(mn, m'n')}(z) = \epsilon_r^{(m-m', n-n')}(z)$  给出，而  $\epsilon_r^{(m-m', n-n')}(z)$  由式(3)给出，具体通过对实空间的介电系数  $\epsilon_r(x, y, z)$  进行傅里叶变换得到。

若在  $z$  处选取厚度为  $h$  的薄层，则其转移矩阵  $Q$  为

$$Q = \exp(iPh), \quad (9)$$

通过在  $z$  方向上进行分层处理，便可得到复合体系的总转移矩阵  $Q_T$ ，其表达式为

$$Q_T = Q_J Q_{J-1} \dots Q_j \dots Q_2 Q_1, \quad (10)$$

式中： $Q_j$  为第  $j$  层的转移矩阵； $J$  为总层数，其值等于  $z$  方向的周期数  $Z/2$ 。然后，根据材料上下表面的电场强度和磁场强度的连续边界条件，便可以求出复合体系的各阶透射率和反射率。在求解过程中，为保证数值收敛，所采用的算法是稳定的严格耦合波近似解法<sup>[23, 26-31]</sup>。

在获得复合体系的原透射谱后，为求复合体系的有效介电系数，将进一步将其看成是一块具有有效介电系数  $\epsilon_{r, \text{eff}}$  的等效晶体，如图 1(b) 所示，而有效介电系数可通过比较等效晶体的透射谱即等效透射谱与原透

射谱来确定。由于等效晶体为各向同性材料，故其无非零阶衍射，也就是说在计算等效透射谱时，无需考虑非零阶衍射。

### 2.4 透射谱比较

在衡量等效透射谱与原透射谱的一致性时，通过计算它们的判定系数  $R^2$  来作判断，其定义为

$$R^2 = 1 - \frac{\sum_i (y_i - f_i)^2}{\sum_i (y_i - \bar{y})^2}, \quad (11)$$

式中： $y_i$  对应于原透射谱在各个波长下的透射率； $\bar{y}$  对应于原透射谱的平均值； $f_i$  对应于等效晶体在各个波长下的透射率。 $R^2$  的值越接近于 1，表明等效透射谱与原透射谱越一致。

## 3 数值计算与讨论

为计算复合体系的有效介电系数，在光传输的  $z$  方向一共考虑了 100 层，而在  $xy$  平面方向上认为材料是二维无限大的。图 2 中实线表示转移矩阵方法计算得到的复合体系的原透射谱，采用的背景晶体和纳米晶的介电系数有两组取值，分别为  $\epsilon_r^b = 3.5, \epsilon_r^a = 23.0$  和  $\epsilon_r^a = 12.5, \epsilon_r^b = 20.0$ ，如图 2(a) 和图 2(b) 所示，对应的晶格周期和纳米晶边长分别为  $L = 0.1 \mu\text{m}$  和  $w = 0.019 \mu\text{m}$ 。图 2 中点线为基于 Bruggeman 有效介电系数计算的等效透射谱，其仅能在部分波段与复合体系的原透射谱吻合，表明等效介质思想难以较好地描述复合体系在宽波段内的光学性质，特别是在体系的能隙处。这不仅暗示了系统的有效介电系数具有波长依赖性，还暗示等效介质思想在光学能隙处可能不适用。下面将利用转移矩阵理论来研究有效介电系数与复合体系结构参数间的相互关系，并与 Bruggeman 有效介质理论进行对比。

图 3 给出了有效介电系数随纳米晶介电系数的变化关系，其中实线代表 Bruggeman 有效介质理论给出的结果，而圆圈代表转移矩阵理论给出的有效介电系

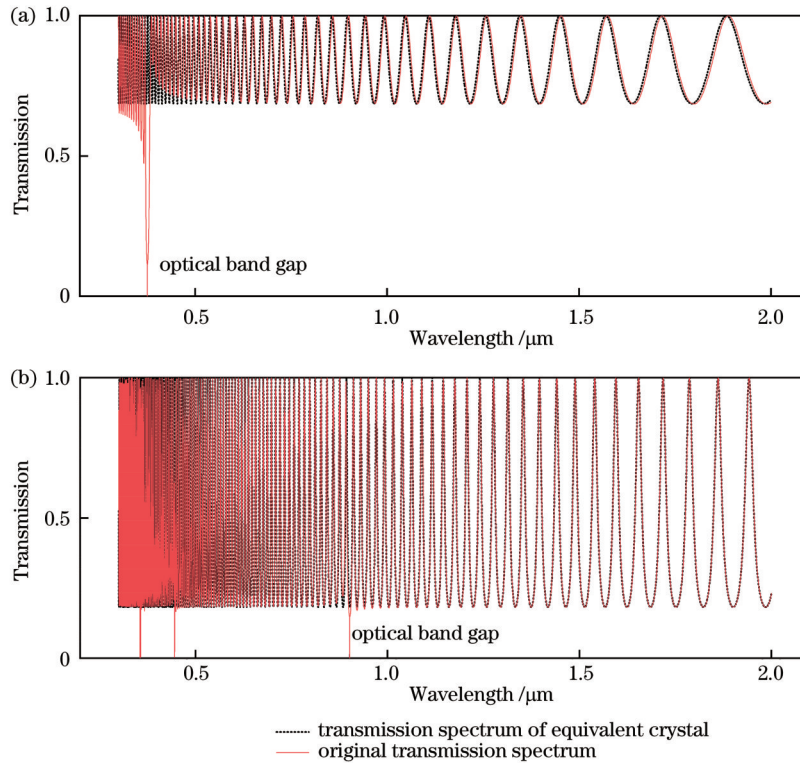


图 2 不同参数下复合体系的原透射谱和等效晶体的透射谱。(a)  $\epsilon_r^A = 23.0, \epsilon_r^B = 3.5, \omega = 0.019 \mu\text{m}, \epsilon_{r,\text{eff}}^{\text{Br}} = 3.55$ ; (b)  $\epsilon_r^A = 12.5, \epsilon_r^B = 20.0, \omega = 0.019 \mu\text{m}, \epsilon_{r,\text{eff}}^{\text{Br}} = 19.94$

Fig. 2 Original transmission spectra of composite system and transmission spectra of equivalent crystal under different parameters.

(a)  $\epsilon_r^A = 23.0, \epsilon_r^B = 3.5, \omega = 0.019 \mu\text{m}, \epsilon_{r,\text{eff}}^{\text{Br}} = 3.55$ ; (b)  $\epsilon_r^A = 12.5, \epsilon_r^B = 20.0, \omega = 0.019 \mu\text{m}, \epsilon_{r,\text{eff}}^{\text{Br}} = 19.94$

数。透射谱的计算区间取为  $[0.4 \mu\text{m}, 2.0 \mu\text{m}]$ ，圆圈的大小代表等效透射谱相对原透射谱的判定系数  $R^2$ 。计算中所采用的周期为  $L = 0.1 \mu\text{m}$ ，纳米晶的边长为  $\omega = 0.05 \mu\text{m}$ ， $z$  方向上的层数为  $Z = 100$ 。图 3 明确显示当纳米晶介电系数与背景晶体介电系数相差较小时，即  $|\epsilon_r^A - \epsilon_r^B| < 3, R^2$  接近 1，表明此时有效介电系数能够很好地描述复合体系的光学透射行为。相反，当纳米晶介电系数与背景晶体介电系数相差较大时，即  $|\epsilon_r^A - \epsilon_r^B| > 3$ ，等效介质思想无法给出一个适合整个波段  $([0.4 \mu\text{m}, 2.0 \mu\text{m}])$  的有效介电系数。另外，从图 3 可以看出转移矩阵理论的计算结果与 Bruggeman 有效介质理论一致，说明 Bruggeman 有效介质理论仅适用于纳米晶与背景晶体介电系数之间相差较小的情况。物理上，两种方法都属于有效介质理论，故它们在介电系数对比度较大时都不适用。然而，从后面的计算结果可以看到，若考虑有效介电系数的波长依赖性，有效介质理论可以进一步推广到介电系数对比度较大的情况，但仍然不适用于体系的能隙处，这是因为材质单一的材料无法形成能隙。这会导致有效介质理论计算结果的误差随着介电系数对比度的增加而增加。

有效介质理论适用于介电系数对比度较小情况的结论也可以从图 4(a) 中看出。图 4(a) 给出了在纳米

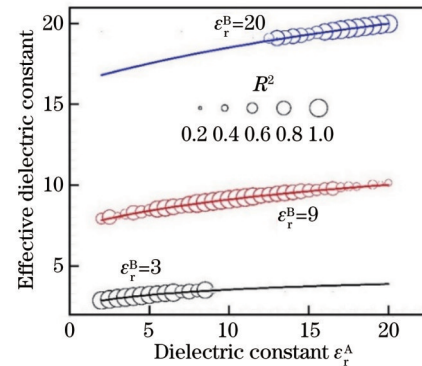


图 3  $\epsilon_{r,\text{eff}}^{\text{Br}}$  和转移矩阵理论计算出的有效介电系数随纳米晶介电系数的变化关系

Fig. 3  $\epsilon_{r,\text{eff}}^{\text{Br}}$  and effective dielectric constant computed by transfer-matrix method varying with dielectric constant of nanocrystal

晶体积分数  $f = (\omega/L)^3$  不变的情况下复合体系有效介电系数随晶格周期  $L$  的变化，其中纳米晶和背景晶体的介电系数分别取为  $\epsilon_r^A = 2$  和  $\epsilon_r^B = 3$ ，相互之间的差值较小。图 4(a) 说明有效介电系数几乎不随周期变化，且转移矩阵理论和 Bruggeman 有效介质理论给出的结果一致。

当体积分数  $f$  取不同值时，复合体系的有效介电系数会发生明显变化，如图 4(b) 所示，其中周期固定

为  $L = 0.1 \mu\text{m}$ , 对应的体积分数正比于纳米晶边长的三次方。当体积分数较小时, 有效介电系数接近于背景晶体的介电系数  $\epsilon_r^b = 3$ 。当体积分数较大时, 有效介电系数接近于纳米晶的介电系数  $\epsilon_r^a = 2$ 。该行为符合物理过程。然而, 当纳米晶和背景晶体的介电系数相差较大时, 如图 3 所示, 转移矩阵理论和 Bruggeman 有效介质理论给出的有效介电系数均无法合适地描写

复合体系在整个波段范围 ( $[0.4 \mu\text{m}, 2.0 \mu\text{m}]$ ) 内的光学透射, 说明此时等效介质思想存在不足。由于图 2 显示等效透射谱与原透射谱只能在部分波段内符合较好, 且所采用的纳米晶和背景晶体的介电系数相差较大, 故可以推测在纳米晶和背景晶体的介电系数相差较大 ( $|\epsilon_r^a - \epsilon_r^b| > 3$ ) 时, 复合体系的有效介电系数可能与波长相关。

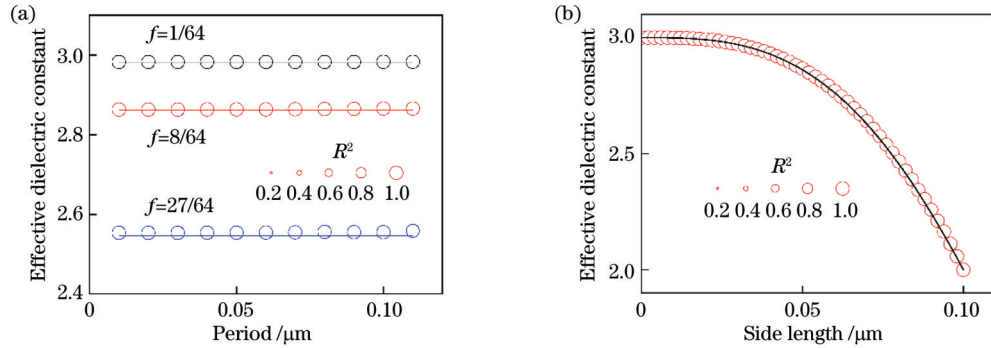


图 4  $\epsilon_{r,\text{eff}}^{\text{Br}}$  和转移矩阵方法计算的有效介电系数随掺杂周期和纳米晶边长的变化。(a) 掺杂周期; (b) 纳米晶边长

Fig. 4  $\epsilon_{r,\text{eff}}^{\text{Br}}$  and effective dielectric constant computed by transfer-matrix method varying with doping period and side length of nanocrystal. (a) Doping period; (b) side length of nanocrystal

因此, 在图 5(a)、(c) 中通过转移矩阵理论分析了复合体系的有效介电系数随波长的变化关系。在计算过程中, 纳米晶边长和周期被固定为  $w = 0.019 \mu\text{m}$  和  $L = 0.1 \mu\text{m}$ , 对应纳米晶的体积分数为 0.69%, 小于 2%, 此时可以不考虑淬灭效应。计算分析中始终将纳米晶和背景晶体的介电系数当成实数, 不计入材料的激发与损耗效应, 故所得结论主要由结构和介电环境决定。在图 5(a)、(b) 中, 取  $\epsilon_r^a = 23.0$ 、 $\epsilon_r^b = 3.5$ , 而在图 5(c)、(d) 中, 取  $\epsilon_r^a = 12.5$ 、 $\epsilon_r^b = 20.0$ 。因为 Bruggeman 有效介质理论和转移矩阵理论给出的有效介电系数都无法有效描写复合体系在整个区间 ( $[0.3 \mu\text{m}, 2.0 \mu\text{m}]$ ) 的光学透射行为, 所以在图 5 中计算透射谱时将计算范围从较大的  $[0.3 \mu\text{m}, 2.0 \mu\text{m}]$  缩小为较小的  $[\lambda - 5 \text{ nm}, \lambda + 5 \text{ nm}]$ , 然后再变化波长  $\lambda$ , 依次计算窄波段内的有效介电系数, 得到其随  $\lambda$  的变化情况。具体来说, 在每个 10 nm 长度波段内给出一个有效介电系数, 再计算其在长为 10 nm 波段范围内的透射谱, 最终组合得到整个波段 ( $[0.4 \mu\text{m}, 2.0 \mu\text{m}]$ ) 的等效透射谱, 如图 5(b)、(d) 中点线所示。这个计算方案考虑了有效介电系数与波长的相关性。图 5(a)、(c) 展示了有效介电系数随波长的变化关系, 其表明有效介电系数与波长密切相关。圆圈的中心位置代表有效介电系数的大小, 而圆圈的大小代表窄波段 ( $[\lambda - 5 \text{ nm}, \lambda + 5 \text{ nm}]$ ) 内等效透射谱相较于原透射谱的  $R^2$ 。除了图 5(a) 中  $0.4 \mu\text{m}$  附近与图 5(c) 中  $0.4 \mu\text{m}$  和  $0.9 \mu\text{m}$  附近, 在大部分情况下,  $R^2$

均接近于 1。因此, 该方法给出的有效介电系数能较好地描述复合体系的光学透射行为。转移矩阵理论计算表明, 复合体系的有效介电系数要分别大于 Bruggeman 有效介质理论所预测的值 (3.55 和 19.94), 如图 5(a)、(c) 中的实线所示。因此, 这再一次说明 Bruggeman 有效介质理论无法有效描述纳米晶和背景晶体介电系数相差较大的情况。这是因为较大的介电系数震荡能够引起较强的光学散射, 特别是在复合体系的光学能隙处, 如图 5(a) 所示的  $0.4 \mu\text{m}$  附近与图 5(c) 所示的  $0.35 \sim 0.45 \mu\text{m}$  波段和  $0.84 \sim 0.96 \mu\text{m}$  波段。由于有效介质理论均把复合体系等效为均一材料, 而均一材料是没有能隙的, 故在光学能隙处没有有效介电系数。换句话说, 带隙导致了介电系数的不连续行为。因此, 基于等效介质思想的有效介质理论, 如本文主要讨论的转移矩阵方法和用作对比的 Bruggeman 有效介质理论, 均不能有效描述复合体系在光学能隙处的光学性质。这可以从原透射谱与等效透射谱的比较中看出, 如图 5(b)、(d) 所示。原透射谱在有效介质理论失效的地方确实存在一个能隙, 如图 5(b) 中  $0.4 \mu\text{m}$  附近与图 5(d) 中  $0.4 \mu\text{m}$  和  $0.9 \mu\text{m}$  附近所示。

考虑到图 5(a)、(b) 和图 5(c)、(d) 中纳米晶和背景晶体介电系数的相对大小不一样, 该结论应不依赖于复合系统中光学组分介电系数的相对关系。这样便可以推断, 虽然该结论源于对周期性光学复合体系的分析, 但是其也应同样适用于其他具有光学能隙的体系, 如 Anderson 无序光学系统。这是因为从物理上来

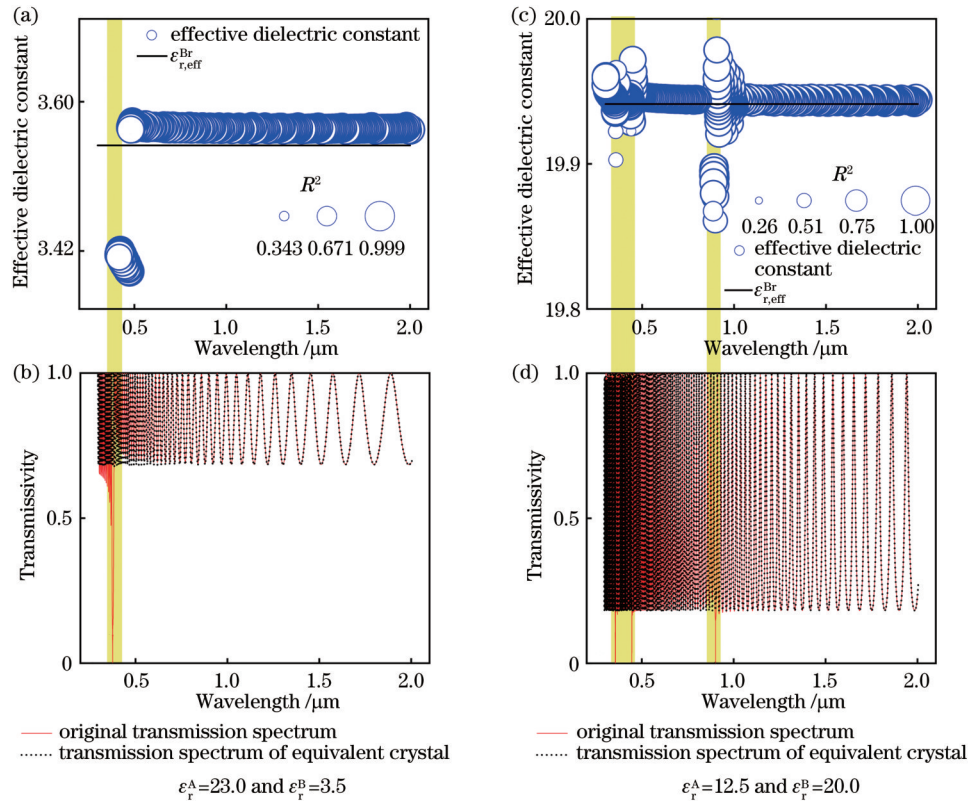


图5 有效介电系数的波长依赖关系和透射谱比较。(a)(c)转移矩阵理论计算的有效介电系数随波长的变化和 $\epsilon_{r,\text{eff}}^{\text{Br}}$ ;(b)(d)原透射谱和等效透射谱比较

Fig. 5 Wavelength dependence of effective dielectric constant and comparison of transmission spectra. (a)(c) Effective dielectric constant computed by transfer-matrix method varying with wavelength and  $\epsilon_{r,\text{eff}}^{\text{Br}}$ ; (b)(d) comparison between original transmission spectrum and transmission spectrum of equivalent crystal

讲,均一的等效晶体无法形成光学能隙,故基于等效介质思想的有效介质理论应均不能描述复合体系在光学能隙处的行为。

## 4 结 论

借助转移矩阵理论研究了纳米晶周期性掺杂背景晶体的复合体系的有效介电系数,并分析了有效介质理论的适用条件。计算表明,当纳米晶与背景晶体介电系数相差较小时,即 $|\epsilon_r^A - \epsilon_r^B| < 3$ 时,复合体系的有效介电系数与Bruggeman有效介质理论的结果相一致。然而,当纳米晶与背景晶体介电系数相差较大时,即 $|\epsilon_r^A - \epsilon_r^B| > 3$ 时,Bruggeman有效介质理论无法有效描写复合体系的有效介电系数。此时,复合体系的有效介电系数与波长相关,这超出了Bruggeman有效介质理论的适用范围。针对此问题,基于转移矩阵理论进行进一步研究,一方面发现有效介电系数确实与波长有关,另一方面发现基于等效介质思想的有效介质理论均不能描述复合体系在光学能隙处的行为,这可归因于均一的等效晶体无法形成光学能隙。

## 参 考 文 献

[1] Chen X M, Lu W G, Tang J L, et al. Solution-processed

inorganic perovskite crystals as achromatic quarter-wave plates [J]. Nature Photonics, 2021, 15(11): 813-816.

- [2] Garnett J C M. VII. Colours in metal glasses, in metallic films, and in metallic solutions. —II[J]. Philosophical Transactions of the Royal Society of London Series A, Containing Papers of a Mathematical or Physical Character, 1906, 205: 237-288.
- [3] Elser J, Wangberg R, Podolskiy V A, et al. Nanowire metamaterials with extreme optical anisotropy[J]. Applied Physics Letters, 2006, 89(26): 261102.
- [4] Pollard R J, Murphy A, Hendren W R, et al. Optical nonlocalities and additional waves in epsilon-near-zero metamaterials[J]. Physical Review Letters, 2009, 102(12): 127405.
- [5] 刘姜伟, 时家明, 党可征, 等. 红外隐身涂层发射率的仿真计算[J]. 激光与光电子学进展, 2012, 49(1): 012001.
- Liu J W, Shi J M, Dang K Z, et al. Simulation and experiment research on emissivity of infrared stealth coating[J]. Laser & Optoelectronics Progress, 2012, 49(1): 012001.
- [6] Bruggeman D A G. Berechnung verschiedener physikalischer Konstanten von heterogenen Substanzen. I. Dielektrizitätskonstanten und Leitfähigkeiten der Mischkörper aus isotropen Substanzen[J]. Annalen Der Physik, 1935, 416(7): 636-664.
- [7] Cai W S, Chettiar U K, Kildishev A V, et al. Optical cloaking with metamaterials[J]. Nature Photonics, 2007, 1(4): 224-227.
- [8] Ribot C, Lee M S L, Collin S, et al. Broadband and efficient diffraction[J]. Advanced Optical Materials, 2013, 1(7): 489-493.
- [9] Chýlek P, Videen G. Scattering by a composite sphere and effective medium approximations[J]. Optics Communications, 1998, 146: 15-20.
- [10] Driscoll T, Basov D N, Padilla W J, et al. Electromagnetic

- characterization of planar metamaterials by oblique angle spectroscopic measurements[J]. *Physical Review B*, 2007, 75(11): 115114.
- [11] Zhu W M, Liu A Q, Zhang X M, et al. Switchable magnetic metamaterials using micromachining processes[J]. *Advanced Materials*, 2011, 23(15): 1792-1796.
- [12] Biot J B, Arago F. Mémoire sur les affinités des corps pour la lumière, et particulièrement sur les forces réfringentes des différens gaz[M]. Paris: Baudouin, imprimeur de l'Institut, 1806: 301-385.
- [13] Mossotti O F. Discussione analitica sull'influenza che l'azione di un mezzo dielettrico ha sulla distribuzione dell'elettricità alla superficie di più corpi elettrici disseminati in esso[M]. Modena: Dai tipi della r. D. camera, 1846.
- [14] Clausius R. Abhandlungen über die mechanische Wärmetheorie [M]. Kranzberg: F. Vieweg, 1864.
- [15] Rysselberghe P V. Remarks concerning the Clausius-Mossotti law[J]. *The Journal of Physical Chemistry*, 1932, 36(4): 1152-1155.
- [16] Elser J, Podolskiy V A, Salakhtudinov I, et al. Nonlocal effects in effective-medium response of nanolayered metamaterials[J]. *Applied Physics Letters*, 2007, 90(19): 191109.
- [17] Cai W S, Shalaev V. Optical metamaterials: fundamentals and applications[M]. New York: Springer, 2010: 35-36.
- [18] Lakhtakia A. Incremental Maxwell Garnett formalism for homogenizing particulate composite media[J]. *Microwave and Optical Technology Letters*, 1998, 17(4): 276-279.
- [19] 刘启能. 一维声子晶体的传输特性[J]. *人工晶体学报*, 2008, 37(1): 179-182.  
Liu Q N. Transfer characteristic of one-dimensional photonic crystal[J]. *Journal of Synthetic Crystals*, 2008, 37(1): 179-182.
- [20] 杨翠红, 刘震, 张静云, 等. 太赫兹区石墨烯光吸收特性对其复光电导的依赖[J]. *激光与光电子学进展*, 2019, 56(5): 052601.  
Yang C H, Liu Z, Zhang J Y, et al. Dependence of optical absorption characterization of graphene on its complex optical conductivity in terahertz regime[J]. *Laser & Optoelectronics Progress*, 2019, 56(5): 052601.
- [21] 董海霞, 董丽娟, 杨成全, 等. 含单层负折射率缺陷的光子晶体的光学特性[J]. *中国激光*, 2011, 38(10): 1006002.  
Dong H X, Dong L J, Yang C Q, et al. Optical properties of one-dimensional photonic crystal containing a single defect layer with negative refractive index[J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2011, 38(10): 1006002.
- [22] 李岩. Fibonacci序列一维光子晶体色散关系解析解和数值解的对比研究[J]. *计算物理*, 2020, 37(3): 371-378.  
Li Y. A comparative study of analytical and numerical dispersion relations of Fibonacci sequence one-dimensional photonic crystals [J]. *Chinese Journal of Computational Physics*, 2020, 37(3): 371-378.
- [23] Mackay T G, Lakhtakia A. The transfer-matrix method in electromagnetics and optics[J]. *Synthesis Lectures on Electromagnetics*, 2020, 1(1): 1-126.
- [24] Polo J A, MacKay T G, Lakhtakia A. Electromagnetic surface waves: a modern perspective[M]. Waltham: Elsevier, 2013: 66-75.
- [25] Lakhtakia A, Varadan V K, Varadan V V. Scattering by a partially illuminated, doubly periodic, doubly infinite surface[J]. *The Journal of the Acoustical Society of America*, 1985, 77(6): 1999-2004.
- [26] Moharam M G, Gaylord T K. Rigorous coupled-wave analysis of planar-grating diffraction[J]. *Journal of the Optical Society of America*, 1981, 71(7): 811-818.
- [27] Chateau N, Hugonin J P. Algorithm for the rigorous coupled-wave analysis of grating diffraction[J]. *Journal of the Optical Society of America A*, 1994, 11(4): 1321-1331.
- [28] Wang F, Horn M W, Lakhtakia A. Rigorous electromagnetic modeling of near-field phase-shifting contact lithography[J]. *Microelectronic Engineering*, 2004, 71(1): 34-53.
- [29] Li L F. Multilayer modal method for diffraction gratings of arbitrary profile, depth, and permittivity[J]. *Journal of the Optical Society of America A*, 1993, 10(12): 2581-2591.
- [30] Li L F. Multilayer modal method for diffraction gratings of arbitrary profile, depth, and permittivity: addendum[J]. *Journal of the Optical Society of America A*, 1994, 11(5): 1685.
- [31] 谢豪, 霍富荣, 薛常喜. 用于头戴显示的新型耦合光栅结构优化设计与分析[J]. *光学学报*, 2022, 42(14): 1405001.  
Xie H, Huo F R, Xue C X. Optimal design and analysis of new coupled grating structure for head-mounted display[J]. *Acta Optica Sinica*, 2022, 42(14): 1405001.

## Application Condition of Effective Medium Theory in Optical Composite System

Sun Yang, Zhang Yongyou\*

*School of Physics, Beijing Institute of Technology, Beijing 102401, China*

### Abstract

**Objective** The rapid development of micro-nano fabrication technologies enables the synthesis of various optical metamaterials with complex microstructures. The size or component ratio of optical metamaterials can be tuned to control the dielectric properties of optical metamaterials in a wide range. Therefore, analyzing the effective optical parameters of metamaterials has always been a core issue in electromagnetic computing. It is known that the traditional analysis methods for effective optical parameters of composite materials include Maxwell-Garnet effective medium theory and Bruggeman effective medium theory. However, they can only analyze the cases with a small difference between the dielectric constants of the doped and background crystals. When such a difference is large, the error of effective permittivity given by the effective medium theory becomes large as well. This work uses the transfer-matrix method to analyze the effective permittivity of optical metamaterials and discusses the application scope of the effective medium theory.

**Methods** For convenience, we assume that the nanocrystals are periodically doped into the background crystal to form a composite system and the nanocrystals and background crystal are isotropic. These allow us to use the transfer-matrix method to calculate the transmission spectrum of the composite system, and then obtain the effective dielectric constant of the composite system by comparing the transmission spectrum of the original structure with that of the equivalent crystal. The matching degree between equivalent transmission spectrum and original transmission spectrum is measured by the coefficient of determination  $R^2$ . A larger value of  $R^2$  means the effective dielectric constant is more accurate.

**Results and Discussions** This work analyzes the dependence of the effective dielectric constant of composite crystals on the dielectric constant of each component, the geometry parameters of composite crystals, and the light wavelength. The comparison of the effective dielectric constants obtained from the transfer-matrix method and the Bruggeman effective medium theory separately indicates that the Bruggeman effective medium theory is indeed only applicable to the case with a small difference between the dielectric constants of the doped and background crystals (Fig. 3). The effective permittivity given by Bruggeman effective medium theory only relates to the volume fraction of nanocrystals and is independent of the light wavelength (Fig. 2 and Fig. 4). However, it is found that the effective dielectric constants rely on the light wavelength after the comparison of the equivalent transmission spectrum and the original transmission spectrum by the transfer-matrix method (Fig. 5). In particular, there is no effective dielectric constant at the optical band gap of the composite system due to the scattering of optical lattices.

**Conclusions** When the difference between the dielectric constants of nanocrystals and background crystal is small, the effective dielectric constant of the composite system is consistent with the result of Bruggeman effective medium theory. However, when the wavelength dependence of the effective dielectric constant is considered, the effective medium theory can be extended to the case with a large difference. This can broaden the application scope of the effective medium theory. It is also found that there is no effective dielectric constant at the optical band gap of the composite system as a homogeneous material has no band gap. These conclusions can provide theoretical guidance for research on the optical properties of composite materials and help determine whether the effective medium theory is applicable.

**Key words** optics at surfaces; optical metamaterial; transfer-matrix method; effective medium theory; effective permittivity; composite system