

К. ф.-м. н. Н. В. ЧЕРНЕГА, к. ф.-м. н. А. Д. КУДРЯВЦЕВА,
 д. ф.-м. н. М. И. САМОЙЛОВИЧ, д. т. н. А. Ф. БЕЛЯНИН,
 к. з.-м. н. С. М. КЛЕЩЕВА

Россия, г. Москва, Физический институт РАН, ЦНИТИ «Техномаш»
 E-mail: samoylovich@technomash.ru

Дата поступления в редакцию
 16.11 2009 г.

Оппонент д. т. н. В. В. ДАНИЛОВ
 (ДонНУ, г. Донецк)

ОПТИКО-АКУСТИЧЕСКИЕ ЭФФЕКТЫ В РЕШЕТЧАТЫХ УПАКОВКАХ (ОПАЛОВЫЕ МАТРИЦЫ КАК МЕТАМАТЕРИАЛ)

В работе приводятся результаты экспериментальных исследований фотон-фононного взаимодействия в правильных упаковках наносфер кремнезема (опаловых матрицах) и в нанокмпози-тах на их основе.

Материалы, обладающие периодически изменяющимися диэлектрической проницаемостью и упругими характеристиками с периодом изменений порядка длины волны света, получившие название метаматериалов, с запрещенными фотонными или фононными зонами [1—5] являются в настоящее время объектом интенсивных теоретических и экспериментальных исследований. Для практических приложений наиболее интересны трехмерные нанокмпози-ты — опаловые матрицы, представляющие собой искусственный материал, образованный решетчатой упаковкой моносфер наносфер рентгеноаморфного кремнезема (SiO_2) с пространственной модуляцией как оптических (диэлектрической проницаемости), так и акустических свойств с масштабом в несколько сотен нанометров.

Благодаря субмикронным размерам наносфер SiO_2 опаловая матрица имеет оптические стоп-зоны (диапазон частот, в котором распространение электромагнитного излучения запрещено для определенного набора волновых векторов) в видимом спектральном диапазоне. Полная запрещенная фотонная зона, у которой величина плотности фотонных состояний близка к нулю, в опаловых матрицах не существует, главным образом, из-за небольшого показателя преломления n кремнезема, так что полная запрещенная фотонная зона может быть реализована в инвертированных опаловых матрицах с контрастом показателей преломления больше чем 2,85 (в инвертированном образце межсферические нанополости заполнены веществом с большим n , а сферы SiO_2 удалены).

Тем не менее, опаловые матрицы удобно использовать для исследований нелинейного взаимодействия светового излучения с веществом, поскольку они

позволяют определять положения стоп-зон и управлять их параметрами. Полости между наносферами в опаловых матрицах имеют октаэдрическую и тетраэдрическую форму. Заполняя такие нанополости жидкостями с различными показателями преломления или используя матрицы с различными размерами наносфер, можно эффективно управлять такими параметрами стоп-зоны как ее положение в спектре и контраст. При этом вследствие изменения плотности фотонных состояний вблизи края запрещенной зоны порог нелинейных процессов может понижаться, увеличивая их эффективность, а также могут возникать новые, неизвестные ранее, нелинейные эффекты.

Исследование нелинейно-оптических эффектов в опаловых матрицах, в частности, таких как вынужденное рассеяние света на наносферах (ВР) [6] и вынужденное комбинационное рассеяние света (КР) в наноструктурированных средах [7], генерация акустических колебаний в гигагерцевой области, необычно интенсивная и длительная акустолюминесценция, названная эффектом фотонного пламени [8, 9], может дать важную информацию об особенностях фотон-фононного взаимодействия в фотонных кристаллах. В последние годы были начаты теоретические и экспериментальные работы по получению и изучению метаматериалов, получивших по аналогии с фотонными название фононных кристаллов. Действительно, независимо от природы волн групповая скорость не обязательно совпадает с направлением волнового вектора, например в изотропной среде частота колебаний определяется модулем волнового вектора k , а следовательно, групповая скорость волнового пакета может быть направлена по k или по $-k$ в зависимости от знака производной частоты от волнового вектора. Это относится и к акустическим колебаниям в метаматериалах, где поведение функции состояний для различных зон в фононных материалах (содержащих разрешенные и запрещенные фононные зоны) будет определяться особенностями групповой скорости в определенном диапазоне частот, задаваемом собственно наноструктурой метаматериала. При определенных условиях в системе могут возникать состояния с отрицательными значениями соответствующих коэффициентов с формированием режима полного внутреннего отражения для акустических волн в определенном диапазоне частот. Однако расчеты показывают, что наиболее важными как

Авторы выражают благодарность Российскому фонду фундаментальных исследований за финансовую поддержку (гранты: № 07-02-00873, 08-02-13500-офи_ц, 09-02-13531-офи_ц и № 08-02-90020-Бел_а).

для понимания физики процессов в метаматериалах, так и для их практического применения являются материалы, относящиеся одновременно к фотонным и фононным системам.

Особый интерес представляет возбуждение акустических колебаний в метаматериалах с использованием оптических лазеров, когда заметную роль играют эффекты возникновения автоколебательных состояний и особенности взаимодействия фононной и фотонной подсистем (зон). Если в системе имеется источник энергии, тогда потери, вызванные диссипацией, будут компенсироваться за счет поступающей энергии (не обязательно периодической или непрерывной) или будет отмечаться эффект отрицательного трения. Такая система [10] может относиться к автоколебательным для случаев, когда ее положение равновесия перестает быть устойчивым и в системе возникают движения, переводящие ее в режим стационарных периодических колебаний с постоянными амплитудой и фазой. Условием для подобного поведения [10] является наличие в системе трех составляющих — собственно колебательной подсистемы, источника энергии, воздействие которого на колебательную систему делает положение равновесия неустойчивым, и некоторого нелинейного «ограничителя», переводящего нарастающие (как правило, экспоненциально) колебания в стационарное состояние. Поскольку в таких системах важной составляющей должны быть процессы теплообмена между элементами метаматериала, в частности между наносферами (при использовании опаловых матриц), соотношения длительности релаксации процесса теплопереноса и периодов колебаний в них значительно отличаются от аналогичных параметров в сплошных (кристаллических) средах, что приводит к существенно иным частотным зависимостям коэффициентов затухания звука. В отличие от кристаллических материалов, в метаматериалах длина волны акустических колебаний рассматриваемого типа определяется его внутренним строением, например периодичностью или диаметром D наносфер в опаловых матрицах, а за счет наличия акустических каналов в опаловых матрицах длина пробега фононов становится порядка величины D . Таким образом, диапазон частот с «благоприятными» (для опаловых матриц) условиями затухания должен определяться в области от единиц до десятка гигагерц с характерными зависимостями от размера наносфер опаловых матриц и механических свойств контактных зон между ними.

Настоящая работа посвящена исследованию преобразования излучения мощных твердотельных лазеров в акустические колебания наносфер SiO_2 . В эксперименте этот эффект проявляется в возникновении в спектре прошедшего образца и отраженного от образца излучения линий ВР, расположенных в стоковой области и имеющих смещение относительно возбуждающего излучения порядка нескольких десятых долей см^{-1} , что соответствует собственным частотам колебаний наносфер, лежащих в гигагерцевом диапазоне. Также проводилось изучение особенностей возбуждения вынужденного рассеяния и акустических колебаний в опаловых матрицах и нано-

композитах на их основе в зависимости от положения запрещенной фотонной зоны (диаметра наносфер).

Экспериментальная установка и методика эксперимента

Схема экспериментальной установки приведена на рис. 1. В качестве источника возбуждения нелинейных эффектов использовался рубиновый лазер 1 с модулированной добротностью (длина волны генерации $\lambda=694,3$ нм, длительность импульса $\tau=20$ нс; максимальная энергия в импульсе $E_{\text{max}}=0,3$ Дж, расходимость $3,5 \cdot 10^{-4}$ рад, ширина линии генерации $0,015 \text{ см}^{-1}$).

Возбуждающее излучение фокусировалось в образец 5 линзами 4. Полупрозрачные стеклянные пластины 2, 3, 6 использовались для направления световых пучков на регистрирующие системы. Система 10 использовалась для контроля энергетических, пространственных и временных параметров возбуждающего лазерного излучения. Энергия рассеянного излучения измерялась с использованием калиброванных светодиодов 8 и 9. Системы 7 использовались для регистрации спектрального состава рассеянного излучения. Спектры КР регистрировались мини-спектрометрами FSD-8 с волоконно-оптическим входом (диапазон 240—1000 нм, спектральное разрешение 6 нм), спектры ВР — с использованием интерферометров Фабри–Перо с переменной базой, что позволяло варьировать область дисперсии в широких пределах — от $0,42$ до $1,67 \text{ см}^{-1}$.

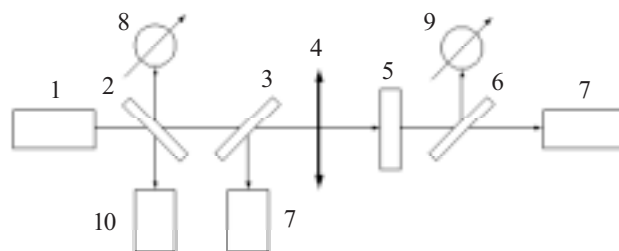


Рис. 1. Схема экспериментальной установки

Измерения проводились для линз с фокусными расстояниями 50, 90 и 150 мм при различных положениях исследуемого образца относительно фокусирующей оптики и для используемых энергий возбуждающего излучения. Последнее позволяло проводить измерения для указанных значений плотности мощности на входе в исследуемый образец и для используемых распределений поля внутри образца. Образцы опаловых матриц имели размеры $1 \times 5 \times 5$ мм и были вырезаны параллельно плоскости (111). Угол падения пучка возбуждающего лазерного излучения на плоскость (111) варьировался от 0 до 60° .

Исследовались опаловые матрицы, состоящие из плотно упакованных наносфер SiO_2 с диаметрами 200, 230, 260, 300 и 320 нм, и нанокомпозиты (опаловые матрицы, межсферические нанополости которых заполнены различными нелинейными жидкостями, активными в комбинационном рассеянии). Для заполнения межсферических полостей образцов использовались ацетон (CH_3COCH_3), бензол (C_6H_6), нитробензол ($\text{C}_6\text{H}_5\text{NO}_2$), этанол ($\text{C}_2\text{H}_5\text{OH}$), вода (H_2O) и

Таблица 1

Параметры исследованных нелинейных сред

Нелинейная жидкость	$\Delta\nu$, см ⁻¹	n	g , 10 ⁻² см/МВт
Ацетон	2925	1,362	0,14
Бензол	992	1,504	0,25
Этанол	2921	1,362	0,51
Вода	3300	1,33	0,07
Нитробензол	1345	1,553	0,21
Четыреххлористый углерод	459	1,464	0,13

четыреххлористый углерод (CCl₄). Коэффициенты усиления комбинационного рассеяния g , показатели преломления n , частотные сдвиги $\Delta\nu$ первой стоксовой компоненты КР для исследованных сред представлены в табл. 1.

Экспериментальные результаты

Эксперименты показали, что под действием мощного лазерного излучения в опаловых матрицах возбуждаются акустические колебания с частотами, лежащими в гигагерцевом диапазоне, с высокой эффективностью преобразования. Частота колебаний определяется размерами наносфер SiO₂, образующих опаловую матрицу. В результате рассеяния лазерного возбуждающего излучения на гиперзвуковых колебаниях возникает ВР со смещением относительно частоты накачки порядка нескольких десятых долей см⁻¹. Коэффициент преобразования возбуждающего лазерного излучения в ВР может достигать 50%. Расходимость пучка ВР близка к расходимости пучка накачки. Порог возникновения эффекта и число линий, а также их относительная интенсивность, зависят от типа наполнителя.

При заполнении межсферических нанополостей опаловой матрицы жидкостью с n , близким к n плавленого кварца, образец становится прозрачным. В данном случае можно наблюдать ВР как в направлении «назад» (ВР_н), так и в направлении «вперед»

(ВР_в). На рис. 2 представлены интерферограммы ВР в опаловой матрице, межсферические нанопоры которой заполнены ацетоном (наноккомпозит), при различной плотности мощности возбуждающего излучения.

Были проведены измерения частотных сдвигов стоксовых компонент ВР в опаловых матрицах и наноккомпозитах на их основе для различных составов и температуры образцов. Представляло интерес сравнить полученные в стандартном приближении величины частот ВР с частотами собственных колебаний наносфер SiO₂. Колебания упругого сферического тела рассматривались в [10]. Авторы [11, 12] вычислили частоты ν наносфер из плавленого кварца, принимая величины продольной и поперечной скоростей акустической моды $c_l=5279$ м/с и $c_t=3344$ м/с. Вычисленные частоты (в ГГц) равны следующим величинам:

$$\begin{aligned} \nu_{10}&=2,617/D, \quad \nu_{12}=2,796/D, \quad \nu_{20}=4,017/D, \\ \nu_{30}&=6,343/D, \end{aligned} \quad (1)$$

где диаметр наносфер D — в нанометрах.

В действительности замеренные значения скорости распространения звука (продольные колебания) в опаловых матрицах для различных образцов находятся в интервале 2,1—3,3 км/с (300 К, 50—15 МГц), в поперечном направлении — в интервале 1,66—1,96 км/с и сильно зависят от типа упрочнения образцов и D наносфер, играющих роль метаатомов (метаатом — объединение атомов, характерное для метаматериалов, с обязательным поведением как «большого» атома в определенных процессах). Поскольку с изменением диаметра наносфер SiO₂ и особенностей упрочнения изменяется плотность образцов, возможно, именно плотность в значительной степени определяет особенности скорости распространения звука и наблюдаемую зависимость частоты от D . Реальные опаловые матрицы и, как правило, все метаматериалы на основе агрегатов (метаатомов) не обладают трансляционной инвариантностью в кристаллографическом понимании данного термина даже для решетчатых упаковок, когда данное определение можно распространить на центры наносфер, образующих упаковку. Поэтому стандартное рассмотрение с использованием плоских монохроматических волн невозможно [13, 14].

Для акустических колебаний описание распространения таких волн в рамках стандартного аппарата механики сплошных сред просто неверно, поскольку необходимо использовать функцию отклика материала, учитывающую (через координатную зависимость) пространственную дисперсию в распределении вещества. При рассмотрении функциональной зависимости частоты ω от k в метаматериалах необходимо учитывать вклад, обусловленный наличием пространственной дисперсии, который может быть значительно больше, чем величина собственно зависимости без его учета.

В проведенных экспериментах в зависимости от условий возбуждения регистрировалось до трех стоксовых компонент (табл. 2). Понижение температуры образцов до температуры жидкого азота приводит

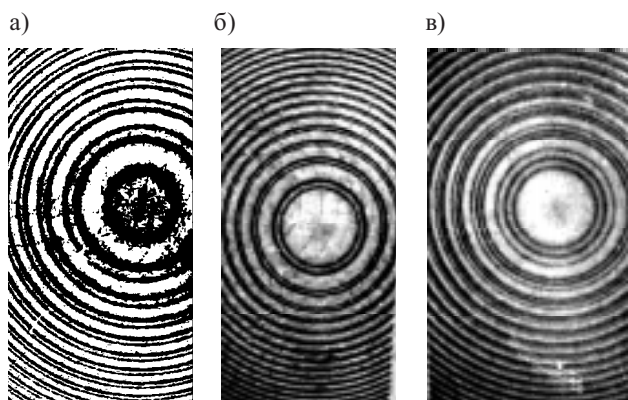


Рис. 2. Спектры ВР_н опаловой матрицы, межсферические нанополости которой заполнены ацетоном (Область дисперсии интерферометра Фабри-Перо:

a — 0,833 см⁻¹; $б$, $в$ — 1,67 см⁻¹

Плотность мощности накачки:

a , $б$ — 0,12 ГВт/см²; $в$ — 0,21 ГВт/см²)

Таблица 2
Частотный сдвиг компонент ВР образцов нанокон-
позитов

Вещество, заполняющее матрицу	Вид рассеяния	T, К	Частота, ГГц	
			Расчет	Эксперимент
Ацетон	ВР _н	295	8,8 13,6	8,0 13,0
	ВР _в	295	8,8	8,0
Этанол	ВР _н	295	8,8 13,6	7,8 12,6
			8,8	7,4
	ВР _в	80	8,8 13,6 21,4	8,0 15,7 22,6

ло к существенному повышению эффективности преобразования волны накачки в рассеянную волну и понижению порога ВР. Частоты компонент ВР, измеренные для различных образцов при комнатной температуре и при температурах в области 80 К, а также вычисленные собственные частоты наносфер SiO₂, представлены в табл. 2.

Отличия экспериментальных и рассчитанных значений частоты могут быть объяснены, прежде всего, двумя факторами: в реальном образце наносферы SiO₂ не свободны; форма наносфер может несколько отличаться от идеальной сферической. Измерения зависимости частотного сдвига рассеянного излучения относительно частоты лазерного излучения от диаметра наносфер (см. табл. 3) показали, что данная зависимость существенно отличается от той, что задается выражениями (1).

Измерения параметров стоп-зоны, выполненные для тех же образцов, демонстрируют линейную зависимость положения максимума в спектре отражения от D . Такие данные были получены при использовании неполяризованного белого света для случая нормального падения на плоскость (111) гранецентрированной кубической решетчатой упаковки исследуемых образцов (отражающая поверхность образца совпадала с его плоскостью формирования). Экспериментально наблюдается линейная зависимость частотного сдвига излучения ВР_в относительно частоты возбуждающего лазерного излучения от D^{-3} (рис. 3).

Изменение угла падения приводит к смещению стоп-зоны в соответствии с условиями брэгговского

Таблица 3
Частотный сдвиг излучения ВР_в и положение максимума в спектре отражения (λ) наноконпозита (этанол) в зависимости от диаметра наносфер SiO₂ (эксперимент)

ν , ГГц	$(D \pm 5)$ нм*	λ , нм
5,1	315	656
6,6	290	628
7,8	270	575
11,1	245	540

* Данные электронной микроскопии

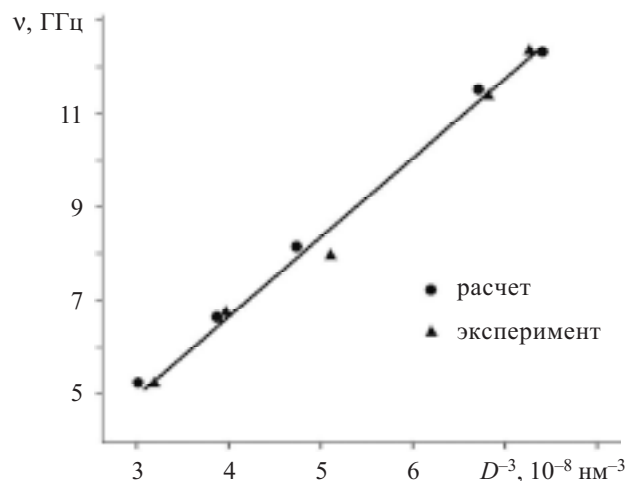


Рис. 3. Зависимость частотного сдвига излучения ВР_в относительно частоты возбуждающего лазерного излучения от диаметра наносфер опаловой матрицы, заполненной этанолом

отражения. При аналогичных изменениях условий освещения образца (то есть при изменении угла падения) частотные сдвиги излучения ВР_в остаются без изменений. Возбуждение в исследуемых средах ВР с высоким коэффициентом преобразования однозначно указывает на эффективную генерацию акустических колебаний, лежащих в области гиперзвука в среде. Частотный диапазон данного возбуждения определяется как геометрическими размерами наносфер SiO₂ опаловых матриц, так и акустическими характеристиками сред, используемых для заполнения межсферических полостей. Увеличение эффективности преобразования волны накачки в рассеянную волну и существенное понижение порога возбуждения ВР при переходе от комнатных температур к температуре жидкого азота, наблюдаемое в эксперименте, связано с сильным уменьшением величины затухания гиперзвука при таком понижении температуры образцов.

При исследовании спектрального состава рассеянного излучения для образцов наноконпозитов различного состава были реализованы условия генерации вынужденного комбинационного рассеяния (КР). В случае заполнения межсферических полостей опаловой матрицы нитробензолом (контраст показателя преломления — отношение n среды, заполняющей нанополости опаловой матрицы, к значению n плавленого кварца — $n/n_{\text{SiO}_2} = 1,06$) в образце возбуждалось КР в направлении «назад» с высокой эффективностью преобразования лазерного излучения в КР. В наноконпозите с нитробензолом порог возникновения КР был в 20 раз ниже, чем в чистом нитробензоле. Высокая эффективность КР в жидкости в нанополостях обусловлена свойствами запрещенной фотонной зоны. Другой причиной усиления КР в данном случае может быть эффективная генерация ВР_н, которая может служить накачкой для КР в направлении «назад».

Для выяснения влияния запрещенной фотонной зоны на генерацию ВР и КР были проведены иссле-

дования возникновения этих видов рассеяния в различных образцах.

Свойства запрещенной фотонной зоны зависят от диаметра наносфер, образующих опаловую матрицу, и от состава образца (от вещества, заполняющего межсферические нанополости). Положение центра фотонной запрещенной зоны определяется как

$$\Lambda_{pg} = 2D\sqrt{2/3}n_{эфф} \cos \theta, \quad (2)$$

$$n_{эфф} = \sqrt{(1-f)n_{SiO_2}^2 + fn^2}, \quad (3)$$

где θ — угол падения лазерного пучка на объект (относительно нормали к поверхности образца, в условиях нашего эксперимента $\theta=0$);

$n_{эфф}$ — эффективное значение показателя преломления;
 f — коэффициент, определяющий какая часть объема матрицы заполнена нелинейной средой (в нашем случае $f=0,26$).

Во всех исследованных образцах наблюдалось ВР_н с высокой эффективностью преобразования (табл. 4, где Λ — длина волны первой стоксовой компоненты КР, соответствующей среде, заполняю-

щей образец), при этом ВР в различных образцах отличалось по величине преобразования и числу линий в спектре. Отсутствие ВР_в в опаловых матрицах с нитробензолом, бензолом, в опаловых матрицах без заполнения и в некоторых образцах, заполненных ацетоном и водой, может быть объяснено следующим образом. Образцы освещались сфокусированным пучком лазерного излучения; диаметр фокальной перетяжки на поверхности образца составлял 0,1 мм — такой величиной определялась интенсивность возбуждающего излучения на входе в активную среду. Толщина образца составляла 1 мм, при этом внутри образца имеет место значительное ослабление лазерного излучения, которое происходит по двум причинам.

Для случаев, когда длина волны лазерного излучения лежит далеко от запрещенной фотонной зоны, главной причиной такого ослабления является некогерентное рассеяние света на различных дефектах структуры. Основным параметр, характеризующий этот процесс, — длина свободного пробега фотона l , равная приблизительно 15 мкм, что много меньше

Таблица 4

Параметры образцов нанокмполитов и виды вынужденного рассеяния

Вещество, заполняющее матрицу	n/n_{SiO_2}	$n_{эфф}$	Λ , нм	Λ_{pg} , нм	D , нм	Вид ВР
Нитробензол	1,07	1,48	765,8	483,07	200	ВР _н
				555,5	230	ВР _н
				627,99	260	ВР _н
				724,605	300	КР, ВР_н
				772,95	320	ВР _н
Ацетон	0,93	1,429	871,3	466,42	200	ВР _н , ВР _в
				536,38	230	ВР _н , ВР _в
				606,37	260	ВР _н , ВР _в
				699,63	300	ВР _н
				746,27	320	ВР _н , ВР _в
Бензол	1,04	1,465	745,6	476,5	200	ВР _н
				547,98	230	ВР _н
				619,45	260	ВР _н
				714,75	300	ВР _н
				762,4	320	ВР _н
Этанол	0,93	1,43	871,1	466,75	200	ВР _н , ВР _в
				536,8	230	ВР _н , ВР _в
				606,78	260	ВР _н , ВР _в
				700,125	300	ВР _н , ВР _в
				746,8	320	ВР _н , ВР _в
Вода	0,917	1,42	906,7	463,5	200	ВР _н , ВР _в
				533,03	230	ВР _н , ВР _в
				602,55	260	ВР _н , ВР _в
				695,25	300	ВР _н
				741,6	320	ВР _н , ВР _в
Четыреххлористый углерод	1,01	1,455	717,2	474,9	200	ВР _н
				546,13	230	ВР _н
				617,37	260	ВР _н
				712,35	300	ВР _н
				759,84	320	ВР _н
— (без заполнения)	0,69	1,35	715,2	440,64	200	ВР _н
				506,74	230	ВР _н
				572,83	260	ВР _н
				660,96	300	ВР _н
				705,024	320	ВР _н

толщины образца. Средняя длина свободного пробега фотона определяется различием показателей преломления SiO_2 и вещества, которым заполнены межсферические нанополости опаловой матрицы. В случае заполнения матрицы ацетоном, этанолом или водой длина свободного пробега l больше, чем в других случаях, что приводит к уменьшению энергетических потерь внутри образца.

В опаловых матрицах, заполненных нитробензолом, бензолом, четыреххлористым углеродом, и незаполненных существенное ослабление лазерного излучения вследствие малой величины l является причиной отсутствия ВР в направлении «вперед». При заполнении матрицы ацетоном и водой ВР отсутствует, когда длина волны лазерного излучения лежит внутри запрещенной фотонной зоны (см. табл. 4). В этом случае лазерное излучение экспоненциально ослабляется с увеличением толщины образца из-за брэгговского отражения, что делает невозможным возбуждение ВР. Во всех исследованных образцах КР могло возбуждаться только в том случае, когда частота возбуждающего лазерного излучения располагалась вблизи высокочастотного края запрещенной зоны, а частота первой стоксовой компоненты — вблизи низкочастотного края. В данном случае длина волны, соответствующая центру запрещенной фотонной зоны, расположена между величинами длины волны лазерного излучения и первой стоксовой компоненты КР.

Экспериментальные результаты, полученные при исследовании интенсивной и продолжительной акустолуминесценции, названной эффектом фотонного пламени [8, 9], также являются свидетельством возбуждения в опаловой матрице интенсивных акустических колебаний. Эффект заключается в возникновении на поверхности опаловой матрицы свечения в сине-зеленой области спектра длительностью несколько секунд при облучении образца лазерными импульсами наносекундной длительности, что наблюдалось при температуре жидкого азота как в незаполненных опаловых матрицах, так и в наноккомпозитах. Пороговое значение плотности мощности накачки определялось типом нелинейной среды, заполняющей межсферические нанополости опаловых матриц. Для незаполненного образца эта величина составляла $0,12 \text{ ГВт/см}^2$, для опаловой матрицы, заполненной этанолом — $0,05 \text{ ГВт/см}^2$, ацетоном — $0,03 \text{ ГВт/см}^2$. Возбуждение передавалось от образца, облученного лазерным импульсом, к другим образцам, расположенным на той же подложке. Расстояние между образцами могло составлять несколько сантиметров.

Был исследован спектральный состав свечения, возникающего при акустолуминесценции. Спектр свечения расположен, в основном, в сине-зеленой области (антистоксовая область при возбуждении рубиновым лазером), при значительном превышении порога наблюдаются также линии в стоксовой области. На **рис. 4** представлен спектр свечения в опаловой матрице, заполненной глицерином. Увеличение интенсивности возбуждающего излучения приводит к возрастанию интенсивности свечения и к появлению дополнительных компонент в антистоксовой об-

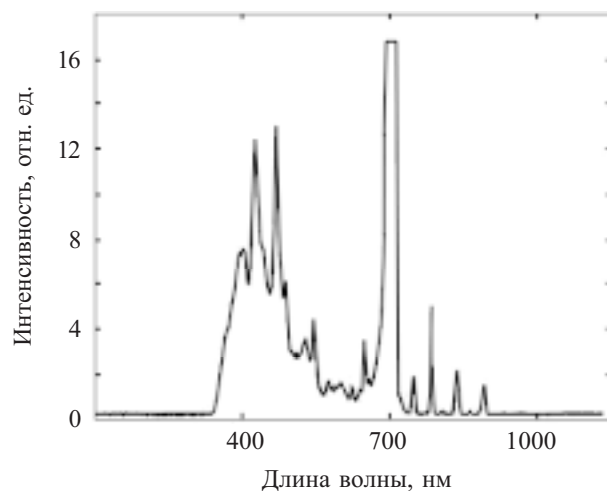


Рис. 4. Спектр свечения опаловой матрицы, заполненной глицерином

ласти спектра. Порог возникновения компонент в стоксовой области гораздо выше, чем в антистоксовой. Заполнение межсферических нанополостей опаловых матриц жидкостью не приводит к изменению спектрального распределения, но может влиять на порог эффекта. Так, заполнение матриц жидкостью с показателем преломления большим, чем показатель преломления кварца, понижает порог возникновения линий в стоксовой области спектра. Значения длины волны наиболее характерных линий в спектре излучения при эффекте фотонного пламени в антистоксовой области составляют 398, 408, 429, 440, 453, 464, 483, 500, 518 и 660 нм; в стоксовой области — 747, 777, 796, 824, 846, 930 и 1013 нм. Происходящие при этом процессы имеют много общего с триболомнисценцией. Возникающие в образцах под действием световых импульсов напряжения настолько велики, что в некоторых случаях образцы перемещаются на большое расстояние, иногда раскалываются, причем образовавшиеся осколки продолжают светиться.

Акустолуминесценция в рассматриваемом случае относится к оптоакустическим эффектам, обусловленным воздействием интенсивного излучения оптического диапазона на акустические характеристики среды, включая так называемый фотоакустический эффект, связанный с модуляцией светового потока в области частот, характеризующих его взаимодействие со средой, что приводит к возбуждению акустических колебаний. Следует отметить, что наряду с акустолуминесценцией, обусловленной наличием в материалах различных типов структурных дефектов, различают триболомнисценцию, возникающую при механических нагрузках, близких или превышающих реальные пределы прочности среды, когда имеет место накопление дефектов и электрического заряда в областях частичного нарушения сплошности с последующим образованием микротрещин и внутренним пробоем.

О возбуждении гиперзвука свидетельствуют не только результаты по передаче акустических колебаний (с возбуждением акустолуминесценции) от опа-

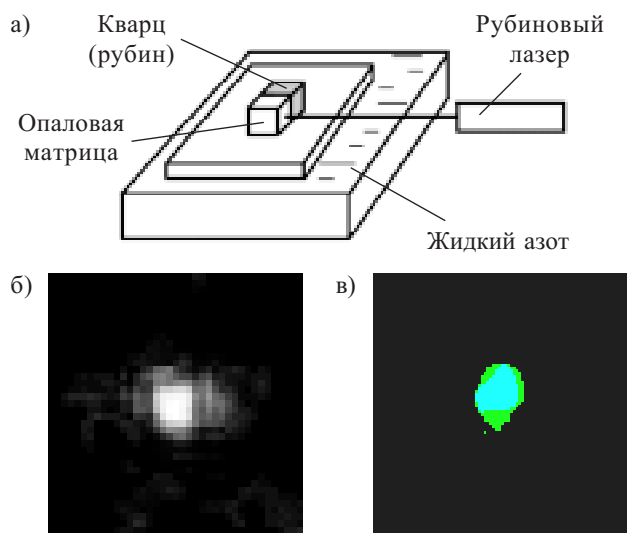


Рис. 5. Схема опыта (а) и фотографии свечения (через 2—3 с после выключения лазера) кварца (б) и рубина (в) при возбуждении опаловой матрицы

ловой матрицы к другим материалам (рис. 5), но и данные экспериментов, проведенных с одновременным использованием кристаллов (в виде плоских пластин заданной ориентации) сильного (SBN — барий-стронций-ниобат) и слабого (кварц) пьезоэлектриков. Наличие опаловой матрицы, возбуждаемой лазерным лучом, между параллельно расположенными пластинами приводило к большой разнице между величинами заряда на поверхностях сильного и слабого пьезоэлектриков, вплоть до искрения и пробоя, при расстояниях между пластинами до 3 мм. Последнее подтверждает возникновение гиперзвуковых колебаний, без воздействия которых пробой в пьезоэлектриках невозможен.

Обсуждение результатов

Как следует из приведенных результатов, в процессах, возникающих при взаимодействии мощного лазерного излучения с опаловыми матрицами, существенную роль играет акустическое возбуждение исследуемых сред. Именно возбуждение гиперзвука является причиной возникновения описанных нелинейно-оптических эффектов. Следовательно, опаловые матрицы могут быть использованы для генерации гиперзвука в диапазоне от нескольких единиц до нескольких десятков гигагерц [4, 5].

Качественно картина преобразования такого оптического воздействия лазера в акустические колебания может быть рассмотрена в следующем виде. Роль нелинейного ограничителя, устанавливающего стационарный режим периодических колебаний, выполняет собственно опаловая матрица как фотонный и фононный кристалл, в котором вследствие эффекта «накачки» возникает режим, характерный для состояний с отрицательным коэффициентом преломления, присущий, в общем случае, всем метаматериалам. Возникающая в определенном диапазоне акустических волн среда переводит режим (можно сказать, катастрофический) нарастания амплитуды колебаний в ста-

ционарный. Длительность этого процесса определяется затуханием — потерями запасенной энергии, переведенной (до 50—60%) нелинейными свойствами системы в энергию периодических акустических колебаний. Частота колебаний определяется периодичностью структуры вещества, особенностями скорости распространения акустических колебаний в среде и упругими характеристиками опаловых матриц. Рассмотренные эффекты длительной акустолуминесценции могут быть исследованы в классе фотонно-фононных метаматериалов, к которым относятся опаловые матрицы, при условии установления в таких средах определенного режима колебаний за счет взаимодействий между фотонной и фононной подсистемами (как это имеет место в рассматриваемом случае).

При любом сценарии перекачки энергии оптического импульса в энергию акустических колебаний существенным фактором является фиксированность длины таких волн в зависимости от размера наносфер (или, возможно, от связанной с ней периодичностью в такой решетчатой упаковке). При этом скорость распространения фононов будет определяться материалом наносфер, а также упругостью и неупругостью контактов между ними. Действительно, необходимо учитывать, что наносферы (каждая из них окружена 12-ю подобными, а межсферические полости двух типов образуют подрешетки полостей) в опаловых матрицах имеют подструктуру, так что каждая крупная наносфера SiO_2 состоит из нескольких сотен более мелких диаметрами 5—10 нм (рис. 6). Роль межсферической области выполняют небольшие площадки, по которым наносферы скрепляются между собой в опаловых матрицах при операциях упрочнения, когда происходит срастание наносфер (при их полигонизации с образованием площадок небольших размеров) без существенного изменения их первоначального размера, а само упрочнение опалового материала возникает при переносе кремнезема в зону контакта с образованием прочных силоксановых связей.

В книге Л. Д. Ландау и И. М. Лифшица «Электродинамика сплошных сред» отмечается, что формально закон возрастания энтропии при действии элект-

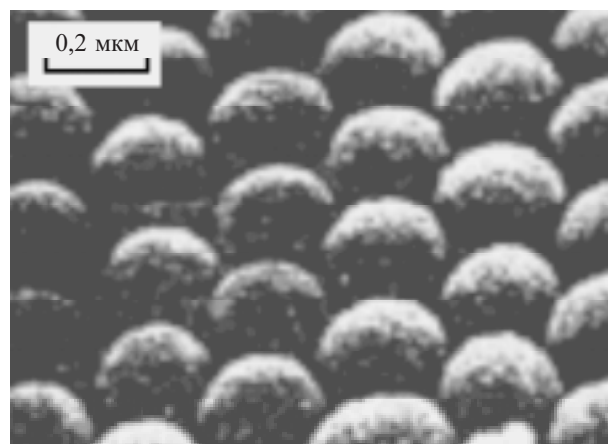


Рис. 6. Поверхность {111} образца опаловой матрицы (растровая электронная микроскопия, снимок сделан под углом 45° к поверхности)

ромагнитного поля в условиях термодинамической неравновесности может реализовываться не только под действием электромагнитного излучения, но и через возбужденные состояния элементов, образующих среду. Показано, что в условиях, когда реальная часть диэлектрической проницаемости $\epsilon < 0$, может иметь место «неистинная» диссипация (не связанная с поглощением излучения), обусловленная наличием возбужденных состояний, не относящихся к электромагнитным модам. Поскольку нестационарные процессы всегда относятся (в различной степени) к термодинамически необратимым процессам, наличие произвольной дисперсии делает невозможным последовательное задание электромагнитной энергии как термодинамической величины [15]. Косвенным подтверждением наличия подобного механизма является рассматриваемая ниже высокая лучевая прочность опаловых матриц, выдерживающих импульсное оптическое воздействие с большой интенсивностью (мощностью).

Поскольку опаловые матрицы относятся к новому классу некристаллических нанокомпозитов, а именно к метаматериалам (которые по аналогии можно назвать фотонно-фононными кристаллами), являющимися одновременно материалами с запрещенными (и разрешенными) фотонными и фононными зонами, представляло особый интерес изучить особенности механизма лучевой прочности таких материалов. Многие характерные их свойства обусловлены как наличием периодичности наноразмерного масштаба, так и особенностями статистики Бозе–Эйнштейна (например, возможностью получения 100%-ной инверсии в двухуровневых системах), которой подчиняются указанные квазичастицы (фотоны и фононы). Для исследования лучевой прочности (при комнатной температуре) кристаллических материалов (кварц, рубин), плавленого кварца и опаловых матриц (упорядоченных, а именно решетчатых упаковок наносфер SiO_2) в качестве источника возбуждающего излучения использовался твердотельный лазер на рубине ($\lambda = 694,3$ нм, $E_{\text{max}} = 0,4\text{—}0,5$ Дж), позволяющий получить без фокусировки до 2 ГВт/см², а при использовании фокусировки — до 1000 ГВт/см² (при площади пятна пучка $0,2$ мм²).

Оказалось, что при использовании кристаллических материалов или плавленого кварца разрушение образцов, в том числе в виде прожигания отверстий или внутреннего пробоя, в зависимости от качества материала имело место при величине мощности $15\text{—}40$ ГВт/см², а с применением фокусировки на поверхности — при $5\text{—}20$ ГВт/см² при воздействии одним импульсом или $1\text{—}5$ ГВт/см² при $5\text{—}10$ импульсах. В случае опаловых матриц (при аналогичных размерах и условиях воздействия лазерного излучения) параметры разрушающего воздействия следующие: $20\text{—}40$ импульсов при мощности $40\text{—}20$ ГВт/см², не менее 100 импульсов при мощности 5 ГВт/см² и выше $450\text{—}800$ ГВт/см² (в зависимости от качества образца) при воздействии одним импульсом.

Заключение

Рассматриваемые системы в общем случае относятся к ангармоническим (нелинейным) решеткам, характеризующимся нелинейным взаимодействием нормальных мод гармонических осцилляторов. Для подобных неэргодических систем нормальные моды определяются как движение с почти постоянной амплитудой и с заданной частотой для каждого осциллятора. Подобные нелинейные моды как периодические решения для нелинейных систем возможны различных типов, в частности в форме солитонов, например, для одномерных цепочек [16, 17]. Неэргодичность систем означает, что функция распределения вдоль фазовой траектории непостоянна, а следовательно соотношение энергии и статистического состояния становится неоднозначным [15]. Наличие в системе областей с различными акустическими характеристиками приводит к состоянию неполного равновесия [15], когда каждая «малая» подсистема описывается своей функцией распределения, а термодинамические функции не обязательно являются аддитивными интегралами движения. Как и в случае вырожденных состояний, энергия не составляет в отдельности полной системы физических величин, а произвольно выбранные собственные функции вырожденного уровня энергии не обязательно образуют ортогональную систему.

Акустические метаматериалы достаточно условно разделяются на три класса [1, 18], а именно: фотонные кристаллы — регулярно упорядоченные материалы с запрещенными фотонными зонами; упорядоченные материалы, чьи акустические характеристики определяются внутренним дизайном (intrinsic); так называемые inertial-материалы, образованные локальными резонансными «составными» или композитными элементами с существенно различными акустическими свойствами (плотностью или фазовыми скоростями). Для акустических метаматериалов можно ввести условные акустические характеристики (по аналогии с фотонными кристаллами [1, 18]):

а) отрицательные объемные модули (B), когда частота локального резонанса выше формальной собственной частоты элементов (обычно тело объемом V сжимается под действием приложенного давления и $B = -V \partial p / \partial V$, но локально может и расширяться, с учетом, что в среднем по телу $B > 0$);

б) отрицательная плотность (массовая) — направления действия силы и ускорения противоположны (аналог отрицательной групповой скорости);

в) формальный коэффициент (индекс) преломления как $n = (B_0 \rho / B \rho_0)^{1/2}$, где B и B_0 , ρ и ρ_0 — объемные модули и плотности различных фаз, соответственно.

Для описания свойств акустических метаматериалов также удобно использовать такой параметр как акустический импеданс $Z = \rho c / \cos \theta'$, где θ' — угол между волновым вектором и нормалью к слоям (поверхностям раздела), представляющим материалы с разными скоростями (c) акустических волн (одного типа) [1, 18]. Таким образом, акустические метаматериалы определяются как материалы с пространственной дисперсией импеданса.

Результаты, полученные в настоящей работе, демонстрируют возможность эффективного преобразования энергии импульсного светового излучения в акустические колебания наносфер, образующих опаловую матрицу, с частотами, расположенными в гигагерцевом диапазоне. Частоту колебаний можно целенаправленно изменять, варьируя свойства образцов (например, меняя диаметр наносфер, образующих матрицу, заполняя межсферические нанополости различными веществами). Заполняя полости различными нелинейными жидкостями и материалами, активными в КР, и подбирая таким образом положение запрещенной фотонной зоны, можно получать в нанокompозите на основе опаловой матрицы вынужденное рассеяние во много раз более эффективное, чем в сплошной среде, что открывает перспективы использования опаловых матриц и разнообразных наноматериалов на их основе (см. также [19, 20], в которых рассмотрены оптические эффекты в наноматериалах) в оптоакустических устройствах.

ИСПОЛЬЗОВАННЫЕ ИСТОЧНИКИ

1. Lee Fok, Muralidhar Ambati, Xiang Zhang. Acoustic metamaterials // *MRS Bulletin*.— 2008.— Vol. 33.— P. 931.
2. Богомолов В. Н., Парфеньева Л. С., Смирнов И. А. и др. Прохождение фононов через фотонные кристаллы — среды с пространственной модуляцией акустических свойств. ФТТ.— 2002.— Т. 44, вып. 1.— С. 175—170.
3. Astratov V. N., Bogomolov V. N., Kaplyanskii A. A. et al. Optical spectroscopy of opal matrices with CdS embedded in its pores: quantum confinement and photonic band gap effects // *Nuovo Cimento, D*.— 1995.— Vol. 17.— P. 1349—1356.
4. Кудрявцева А. Д., Самойлович М. И., Чернега Н. В. Оптико-акустические эффекты в фотонных кристаллах (опаловые матрицы как метаматериал) // Матер. XV Междунар. науч.-техн. конф. «Высокие технологии в промышленности России».— М.: МГТУ им. Н.Э. Баумана.— 2009.— С. 91—101.
5. Чернега Н. В., Самойлович М. И., Кудрявцева А. Д. и др. Морфологически зависимый акустический резонанс в тонких пленках: лазерная генерация акустических колебаний // Там же.— С. 376—382.
6. Горелик В. С., Кудрявцева А. Д., Тареева М. В., Чернега Н. В. Спектральные характеристики излучения кристаллов искусственного опала при эффекте фотонного пламени // Письма в ЖЭТФ.— 2006.— Т. 84.— Вып. 9.— С. 575—578.
7. Gorelik V. S., Kudryavtseva A. D., Tcherniega N. V. Stimulated Raman scattering in three-dimensional photonic crystals // *JRLR*.— 2008.— V. 29.— № 6.— P. 551—557.
8. Tcherniega N. V., Kudryavtseva A. D. Photonic flame effect // *Journal of Russian Laser Research*.— 2006.— V. 27.— № 5.— P. 400—409.
9. Кудрявцева А. Д., Самойлович М. И., Чернега Н. В. Фотонные кристаллы — новые материалы для нелинейной оптики и фотоники // Матер. XV Междунар. науч.-техн. конф. «Высокие технологии в промышленности России».— М.: ЦНИТИ «Техномаш».— 2008.— С. 44—49.
10. Боголюбов Н. Н., Митропольский Ю. А. Асимптотические методы в теории нелинейных колебаний.— М.: ГИФМЛ, 1958.
11. Tamura A., Higeta K., Ichinokawa T. Lattice vibrations and specific heat of a small particle // *J. Phys. C: Solid State Phys.*— 1982.— V. 15.— P. 4975—4991.
12. Kuok M. H., Lim H. S., Ng S. C. et al. Brillouine study of the quantization of acoustic modes in nanospheres // *Phys. Rev. Lett.*— 2003.— Vol. 90.— P. 255502-1 — 255502-4.
13. Nanophotonics with surface plasmons (*Advances in nanophotonics and nano-photonics*) / Editors Shalaev V. M., Kawata S.— Elsevier, 2007.
14. Shalaev V. M. Nonlinear optics of random media: fractal composites and metal-dielectric films // *Springer Tracts in Modern Physics*. V.158.— Springer, Berlin Heidelberg, 2000.
15. Ландау Л. Д., Лифшиц И. М. Электродинамика сплошных сред.— М.: Наука. 1964.
16. Солитоны. Коллективная монография / Под ред. С. П. Новикова.— Новокузнецк: НФМИ, 1999.
17. Дубровин Б. Л., Новиков С. П., Фоменко А. Т. Современная геометрия. Т. 2.— М.: Эдиториал УРСС, 2001.
18. Vladimir Fokin, Muralidhar Ambati, Cheng Sun, Xiang Zhang. Method for retrieving effective properties of locally resonant acoustic meta-materials // *Physical Review B*.— 2007.— 76.— 144302.
19. Sarychev A. K., Shalaev V. N. *Electrodynamics of metamaterials*.— Word Scientific, 2007.
20. Наноматериалы. III. Фотонные кристаллы и нанокompозиты на основе опаловых матриц / Ред. М. И. Самойлович.— М.: ЦНИТИ «Техномаш», 2007.

НОВЫЕ КНИГИ

НОВЫЕ КНИГИ

Петухов В. М. Взаимозаменяемые транзисторы. Справочник.— М.: РадиоСофт, 2009.— 384 с.

Книга представляет собой исправленное и расширенное издание справочника «Аналоги отечественных и зарубежных транзисторов». Для удобства работы с изданием приводится прямой (отечественный прибор — зарубежный аналог) и обратный (зарубежный прибор — отечественный аналог) перечни приборов, построенные в алфавитно-цифровой последовательности.

Для инженерно-технических работников, занимающихся разработкой, эксплуатацией и ремонтом радиоэлектронной аппаратуры.

Лялин К. С., Приходько Д. В. Электродинамика СВЧ.— М.: МИЭТ, 2009.— 192 с.

В учебном пособии изложены основы классической электродинамики сплошных сред и распространения радиоволн в природных условиях, электродинамики линий передачи, даны азы теории СВЧ-цепей.

