РОССИЙСКАЯ АКАДЕМИЯ НАУК



ПРЕПРИНТ Н.Е. БЫКОВСКИЙ ВОЗМОЖНЫЙ МЕХАНИЗМ ВОЗБУЖДЕНИЯ ФОТОННОГО ПЛАМЕНИ В ГЛОБУЛЯРНЫХ ФОТОННЫХ КРИСТАЛЛАХ

MOCKBA 2007

Возможный механизм возбуждения фотонного пламени в глобулярных фотонных кристаллах

Быковский Николай Евсеевич

| ержание | |
|---|--|
| Введение | 3 |
| Возможный механизм возбуждения фотонного пламени | |
| в глобулярных фотонных кристаллах | 3 |
| Стоксов сдвиг при вынужденном рассеянии в глобулярном | |
| кристалле | 8 |
| Заключение | 1 |
| Литература | l |
| | ержание Введение Возможный механизм возбуждения фотонного пламени в глобулярных фотонных кристаллах Стоксов сдвиг при вынужденном рассеянии в глобулярном кристалле |

Н.Е.Быковский. Физический институт им. П.Н.Лебедева РАН, 119991 Москва, Ленинский просп.53. Российская Федерация Тел.(495)132-60-30. Факс (495)132-16-65 E-mail: nbykovsky@sci.lebedev/ru

1. Введение.

Данная работа является попыткой объяснить механизм длительного свечения глобулярных кристаллов охлаждённых до температуры жидкого азота после воздействия на них лазерного излучения, и разобраться в стоксовых сдвигах в них при вынужденном рассеянии.

2. Возможный механизм возбуждения фотонного пламени в глобулярных фотонных кристаллах.

В работе [1] описывается эффект, названный авторами эффектом фотонного пламени, в кристаллах искусственного опала и его спектральные характеристики. Этот эффект характеризуется длительным послесвечением фотонного кристалла (с длительностью порядка нескольких секунд, при длительности импульса накачки равной 20нсек.), помещённого на медный хладопровод, температура которого была близка к точке кипения жидкого азота. Более – менее внятного объяснения этому эффекту в той работе дано не было. Данная работа – это попытка внести какую-либо ясность в понимание этого эффекта. Моё объяснение этого эффекта основано на том, что при оптическом возбуждении опала вынужденное рассеяние может происходить только в определённых направлениях и на определённых частотах¹, что и приводит к резонансному возбуждению акустических колебаний глобул в направлениях определяемых его структурой за счёт отдачи. Но акустические сферические волны в сфере (глобулу размером в сотни нанометров можно считать почти идеальной сферой) приводят к периодической концентрации акустической энергии внутри неё в определённых точках.

Так как звуковые волны в однородной среде распространяются по прямой, также как свет, то если их источник расположен в центре сферы, то колебания будут симметричными сферическими. Плоский фронт звуковых волн сфокусируется сферической поверхностью на расстоянии ~ а/2 от центра, где а – радиус. Следовательно, если импульсный источник колебаний расположен на поверхности сферы, а передача колебаний происходит через поверхность от одной глобулы к другой, то первая точка, куда сфокусируются волны, будет расположена между центром R = 0 и точкой R = a/2. Впоследствии, с увеличением числа периодов, она всё ближе будет приближаться к центру. Если добротность глобулы высокая, то в ней установятся колебания, при которых волновые фронты звуковых волн будут фокусироваться в её центре. При этом направление колебаний останется прежним. Эти колебания передаются одновременно от трёх нижних глобул трём верхним, по нормали к плоскости (111). Боковая поверхность глобул находящаяся в плоскости (111), проходящей через их центр, при этом остаётся неподвижной. То есть сферические колебания в плоскости (111) не возбуждаются, так как их невозможно синхронизовать в этой плос-

¹ Собственные акустические частоты глобул входящих в состав фотонного кристалла, в зависимости от их размера для разных акустических мод представлены в работах [2,3].

кости. Но это не значит, что в этой плоскости невозможна передача импульса не связанная с их совместными колебаниями. Вынужденное рассеяние света в точках фокусировки акустических волн вдоль всех цепочек глобул расположенных на одной прямой вызывает резонансную подкачку этих колебаний.

Собственные частоты сферически симметричных колебаний сплошной сферы определяются из условия $\frac{tg(ka)}{ka} = \frac{1}{1 - (krV_l/2V_r)^2}$ [4], где $V_l u V_t$ – продольная и поперечная скорости звука, а – радиус сферы. Корни этого уравнения определяют собственные частоты колебаний: $\omega = V_l \cdot k$, и при $V_l >> V_t$ первая собственная частота определяется из $ka = \pi$ и равна $\omega = \frac{V_l \pi}{a}$. Период глобулы диаметром 200нм на первой собственной частоте, равен $T = 2a/V_l \sim 4 \cdot 10^{-11}$ сек. Но сферические волны могут быть и несимметричными (как в нашем случае). В этом случае их амплитуды зависят от полярной θ и азимутальной ϕ угловых координат, но их фазовые фронты по-прежнему остаются сферическими: $u(r, \theta, \varphi, t) = U(r, t) \cdot D(\theta, \varphi)$, где U(r,t) отвечает симметричной сферической волне, а $D(\theta, \phi)$ описывает угловую зависимость поля. В однородных изотропных средах волновое поле на больших расстояниях от центра почти всегда имеет такой вид. Подбором D можно концентрировать поле около заданных направлений, поэтому функция $D(\theta, \phi)$ называется диаграммой направленности излучения источника. В нашем случае колебания в фотонном кристалле не могут быть симметричными, так как глобулы окружены соприкасающимися с ними дискретно другими глобулами. Резонансному возбуждению всего фотонного кристалла предшествует последовательная фазировка их колебаний.

С уменьшением температуры затухание акустических колебаний уменьшается (для гармонической сферической волны $u = \frac{Ae^{\mp k'r}}{r}e^{i(\omega \tau \mp k'r)}$, где «+» соответствует

сходящейся волне, а «–» расходящейся. Поглощение здесь учтено заменой k на $k \neq k$ ", где k"- мнимая часть волнового числа (в данном случае зависящая от температуры). Как видно, амплитуда этой волны с ростом k" затухает по экспоненте.), а добротность глобул как резонаторов возрастает, что позволяет существенно увеличить амплитуду колебаний, и за счёт генерации гармоник резко увеличить энергию возбуждения в центре (расчёт интенсивности гармоник, возникающих в монохроматической сферической волне, описан в работе [5], на стр. 542). Добротность глобулы (если считать её идеальным монокристаллом), при азотной температуре достаточно высокая. По крайней мере, длина свободного пробега фононов в кристаллическом кварце при T = 273K равна 40·10⁻⁸ см, а при T = 80K она увеличивается до 540·10⁻⁸ см [6], что всего в 4÷6 раз меньше диаметра глобул. Но так как добротность колебаний глобул напрямую связана с их теплопроводностью (передача тепла осуществляется фононами, ответственными и за колебания глобул), то необходимо обратить внимание на зависимость

теплопроводности от температуры, которая изменяется от $\chi = 0$ при абсолютном нуле, когда фононов нет, растёт при очень низких температурах, когда средняя длина свободного пробега *l* приблизительно постоянна (равна размеру кристалла, на границах которого происходит рассеяние), так что $\chi \sim T^3$. Когда температура увеличивается, число фононов с достаточно большим волновым вектором *k*, принимающих участие в процессах переброса (процессы, при которых, наряду с обменом квазиимпульсами между фононами, происходит передача импульса кристаллу как целому, что и приводит к диссипации импульса системы квазичастиц), возрастает экспоненциально; за счёт этого происходит увеличение χ . Достигается максимум, и теплопроводность быстро спадает. В области высоких температур можно ожидать зависимость вида T^{-1} . Именно такая зависимость приведена для Al_2O_3 и SiO₂ в работе [6] с.171. У кварца максимум теплопроводности достигается при $T \cong 12K$, с примерно такой же шириной ($\Delta T \sim 15K$). Исходя из этого, следует ожидать минимального порога свечения глобулярного кристалла при близких значениях температуры.

При колебаниях, во время сжатия, резко повышается давление в центре. Если потенциал скорости для сферических колебаний глобулы [5] $u = Ae^{-i\omega t} \frac{\sin kr}{r}$ превосходит величину возбуждения молекулы на резонансной

для данного кристалла частоте, то становится возможным резонансное вынужденное излучение. Но энергии фононов не могут достичь энергии фотонов наблюдаемых на эксперименте ~ 2эв. Их максимальные энергии на порядок меньше. Но фокусировка акустических волн может вызвать так называемый эффект механолюминесценции или триболюминесценции [7], при котором происходит периодическое импульсное свечение твёрдых образцов во время резкого механического воздействия. Происходит это за счёт возбуждения фотолюминесценции электрическими разрядами, при раскалывании кристаллического тела (разрывы связей в кристаллической решётке). Здесь важна амплитуда колебаний, для достижения которой энергия кванта играет второстепенную роль. Так как спектральные линии свечения кристалла не соответствуют спектральным переходам кремния и кислорода, то естественно предположить, что это свечение вызвано тормозным излучением электронов. Энергии связи атомов в кристаллической решётке составляют несколько электрон-вольт (~ 5ev), и в случае разрыва этих связей, она, в значительной степени, передаётся электронам.

Именно сферическая фокусировка акустических волн может привести, за счёт ангармонизма, к возбуждению сходящихся ударных волн [8,9], вызывающих гигантские сдвиговые напряжения в центре. В этом случае вынужденное рассеяние будет продолжаться до тех пор, пока амплитуда колебаний будет ещё достаточной для возбуждения соответствующих атомных переходов. Так как в этом процессе одновременно участвуют глобулы, колеблющиеся в фазе, то коэффициент усиления этого процесса должен быть достаточно велик. Но при этом излученные кванты, проходя по цепочке, пере-

5

дают свой импульс глобулам с меньшей амплитудой колебаний, выравнивая возбуждение вдоль цепочек. Это же объясняет достаточно резкое затухание свечения при уменьшении амплитуды колебаний ниже порога возбуждения. Сам период свечения существенно затягивается за счёт резонансного возбуждения колебаний по цепи распространения генерации (вынужденного рассеяния) за счёт взаимовлияния этих процессов.

Увеличение плотности и скорости молекул внутри глобулы в процессе колебаний приводит к большим смещениям молекул из положений равновесия в кристаллической решётке, а, следовательно, к возникновению гигантских полей. С одной стороны это приводит к анизотропии пропорциональной d/ λ и резкому росту концентрации частиц N и поляризуемости α в этих точках, которые пропорциональны интенсивности света (~ E²), а с другой – к возбуждению молекул. Так как распространение колебаний в фотонном кристалле возможно только на резонансных для него частотах, то они и возбуждаются, резонансно возбуждая при этом всю цепочку глобул в направлении излучения. То есть получается, что колебания глобул в кристалле синхронизованы друг с другом в достаточно большой области, которая в случае высокой добротности глобул и интенсивной накачке может существенно превосходить саму область накачки. Но эффективность этого свечения, при одинаковой плотности накачки, зависит от размера области возбуждения кристалла, в которой колебания глобул синхронизированы, возрастая с её увеличением до определённого предела. Она резко снизится, если время прохождения света через эту область будет больше времени существования возбуждения атомов в центре глобул, которое возникает при прохождении через них акустических фронтов. Если считать, что это время $\tau \sim 10^{-11}$ сек (это ¹/₄ часть от периода колебаний глобул), то светящаяся область будет порядка с·т/n ~ 2мм, что близко к области свечения наблюдаемой в работе [1]. Там размер свечения почти в 20 раз превосходил размер области возбуждения и достигал ~ 2мм.

Но если у нас имеется несколько кристаллов с одинаковыми резонансными частотами расположенных близко, то вынужденное излучение одного резонансно возбуждает колебания в глобулах других кристаллов с некоторой задержкой, обусловленной раскачкой их до амплитуды способной возбудить молекулы. При этом колебания глобул во всех кристаллах будут сфазированы, хотя заметить эту модуляцию с частотой ~ 10¹⁰Гц при малой интенсивности свечения непросто. Этот процесс самоподдерживающийся – вынужденное излучение на резонансной частоте само же подкачивает резонансные колебания глобул.

Так как этот эффект пороговый, то при уменьшении амплитуды колебаний постепенно будут затухать линии спектра с меньшим коэффициентом усиления. В случае затухания акустических колебаний ниже порога возбуждения вынужденного излучения в определённых направлениях, происходит резкое затухание свечения. Но при этом возможна перекачка энергии в другие сферические моды колебаний и другие резонансные линии по другим направлениям, что может привести к кратковременной модуляции свечения.

Любой наполнитель должен влиять на порог возбуждения свечения и на его длительность, уменьшая добротность глобулы, но мало влияя на спектр свечения, который определяется расстоянием между центрами глобул и коэффициентом преломления в нём в момент фокусировки акустических волн. Вклад в изменение показателя преломления, вызванный фокусировкой акустических волн много больше вклада, привнесённого наполнителем.

Передача возбуждения по подложке от одного кристалла к другому, даже медной, за счёт резонансных фононов, на расстояния в несколько сантиметров, невозможна из-за их быстрого затухания (длина свободного пробега фононов не превышает сотен ангстрем), даже в монокристалле. Поэтому возбуждение, скорее всего, просачивается к соседним кристаллам в щель под экраном, тем более что, как указывал автор во время своего выступления, - при закрывании экраном соседнего кристалла на нижней его кромке наблюдается свечение. Поэтому, наверное, нет смысла рассматривать и плазмонный механизм передачи возбуждения, так как он происходит по поверхности и не вызвал бы свечения кромки экрана на расстоянии ~ 0,5мм и выше.

Конечно, все эти процессы становятся возможными в случае низких оптических и акустических потерь. Первое определяется качеством фотонного кристалла, а второе его температурой. Низкие температуры увеличивают добротность глобул, увеличивая КПД процесса.

С увеличением интенсивности накачки увеличивается амплитуда акустических волн, увеличивая показатель преломления в точках их фокусировки, где происходит усиление, а, следовательно, увеличиваются резонансные длины волн, что видно на спектрах из работы [1] (рис.1 - смещение линии



Puc.1. Спектр свечения глобулярного кристалла при различных интенсивностях накачки:

(a) $I = 0,12\Gamma Bm/cm^2$, (b) $I = 0,14\Gamma Bm/cm^2$

486нм в длинноволновую область на 3нм). Это существенное отличие глобулярных фотонных кристаллов от одномерных бреговских. Правда, если взять динамические одномерные кристаллы, образованные периодическими ударными акустическими волнами, возникающими при некогерентной накачке, описанные в работе [10,11], то их период точно также зависит от интенсивности накачки, что приводит к сканированию длины волны генерации.

Некоторое уширение спектральных линий в глобулярном кристалле, скорее всего, тоже связано с изменением амплитуды акустических волн на протяжении всего периода свечения. В то время как узкий спектральный максимум обусловлен взаимовлиянием резонансного вынужденного рассеяния и колебаний глобул, что на определённом этапе стабилизирует процесс.

Распространение волны синхронизации акустических колебаний в глобулярном кристалле должно происходить лавинообразно в направлениях, в которых превышен порог генерации, за счёт импульсной синхронизации резонансного рассеяния с периодом колебаний глобул (жёсткой привязкой максимумов резонансной волны с максимумами акустических колебаний в центрах глобул).

3. Стоксов сдвиг при вынужденном рассеянии в глобулярном кристалле.

Так как рассеяние в глобуле происходит в точках фокусировки сферических акустических волн, где максимальное изменение показателя преломления, то колебательная скорость её поверхности не важна. Главное - с какой скоростью смещаются молекулы в момент рассеяния в центре глобулы. А скорость их смещения определяется радиальной скоростью звука в глобуле. Но при этом необходимо учесть, что максимальное рассеяние будет для резонансных частот, период которых совпадает с расстоянием между глобулами в глобулярном кристалле.

В кубической гранецентрированной решётке, которая образует фотонный глобулярный кристалл, каждая глобула окружена шестью соседними, расположенными в одной плоскости (111) симметрично через каждые 60^{0} , и антисимметрично (противоположные шары сдвинуты на 30^{0}) в перпендикулярной плоскости. Если ограничиться только тремя слоями шаров непосредственно соприкасающихся с центральным, то картина будет выглядеть, как показано на рис.2 – слева вид по



Рис.2. Слева вид на глобулу, окружённую со всех сторон – вид перпендикулярно плоскости (111). Справа тоже, но в разрезе по линии **A** – вид сбо-ку (в плоскости (111)).

нормали к плоскости (111), справа показана та же картина в разрезе по линии **А** – вид сбоку (вертикальная прямая – ось перпендикулярная плоскости (111)).

Это должно приводить к зависимости эффективной скорости звука от направления. По крайней мере, температуропроводность в этих направлениях, согласно работе [12] отличается почти в 2 раза. При

таком расположении глобул импульс от соседней глобулы будет передаваться другим через центральную, в перпендикулярной (111) плоскости под углами в 30⁰ к направлению исходного импульса, если накачка перпендикулярна плоскости (111). Это значит, что при возбуждении в глобулах резонансных акустических колебаний молекулы, составляющие их, получают поперечную компоненту скорости равную $\upsilon = \upsilon_{36y\kappa} sin 30^0 = \upsilon_{36y\kappa}/2$. Свет, проходящий через фотонный кристалл получает доплеровский сдвиг - $v = v_0 (1 - \frac{\upsilon^2}{c^2})^{1/2} \cdot (1 - \frac{\upsilon}{c} \cos \alpha)^{-1}$, где α - угол между направлением источника и наблю-

дателем, а υ - скорость источника. Так как колебания в глобулах происходят симметрично относительно центра, то суммарное доплеровское смещение, вызванное продольной компонентой скорости молекул (вдоль направления рассеяния) будет равно нулю, в то время как поперечная компонента не зависит от направления, и даст нам смещение, соответствующее половине скорости звука как для излучения прошедшего вперёд, так и для отражённого назад. В работе [13] наблюдался стоксов сдвиг, не зависящий от направления пустот, $\nu = 0,44 \div 0,39$ см⁻¹. Сдвиг для незаполненного фотонного кристалла $\nu = 0,44$ см⁻¹ соответствует половине смещения для кристаллического кварца

при возбуждении в нём ВРМБ, который определяется как $\Delta v = 2n v_0 \frac{v_{369K}}{c}$.

Уменьшение стоксова сдвига при заполнении пор кристалла связано с уменьшением его эффективного показателя преломления, а появление дополнительной линии при увеличении накачки вызвано, видимо, возбуждением следующей моды колебаний глобул с большей поперечной компонентой скорости звука. При этом надо учитывать, что максимальное рассеяние в глобулах возникает в центрах, где происходит пересечение сферических акустических волн. В зависимости от интенсивности накачки изменяется и амплитуда волн, а вместе с этим и давление в центрах глобул, что приводит к изменению показателя преломления, а, следовательно, увеличению сдвига линии при отражении назад, по сравнению со сдвигом в прошедшем излучении, которое проходит через глобулы с меньшей амплитудой колебаний. С этим же связано и отсутствие второй компоненты в прошедшем излучении, так как не возбуждается в дальних глобулах следующая мода колебаний. Возможно, с этим углом в 30⁰ связано примерное совпадение максимума спектра отражения от глобулярного кристалла под этим углом в работе [14] с максимумом спектра свечения (рис.3), где рассеяние измерялось в плоскости перпендикулярной (111).

Рис.3. Спектральные кривые отражения от глобулярного кристалла под различными углами к плоскости (111).

Всё это относится к нерезонансным частотам, когда рассеяние в центре глобул происходит случайным образом. В случае резонансной частоты доплеровский сдвиг будет опре-



деляться количеством переизлучений в центрах, что приведёт к её нарастанию пропорционально пройденному пути. Но в этом случае сдвиг вызванный большим коэффициентом преломления в центрах глобул перекроет эффект Доплера. Увеличение толщины кристалла до оптимального размера приводит, за счёт многократного переизлучения на глобулах, к усилению вынужденного рассеяния, к росту его эффективности. При этом большая часть энергии накачки переходит в энергию акустических колебаний глобул. Но при комнатной температуре не происходит полной синхронизации колебаний глобул, поэтому фокусировка акустических волн происходит не в центре глобул, как в случае их полной синхронизации при криогенных температурах, а размазывается по объёму с радиусом от 0 до a/2, где a – радиус глобул. В этом случае не возникает жёсткого резонанса для возбуждаемых волн при вынужденном рассеянии, что и приводит к сильному расплыванию и перекрытию спектральных линий, которое мы наблюдаем на рисунке 4 взятом из работы [13], где возбуждение кристалла производилось непрерывными полупроводниковыми лазерами с различными частотами. Исходя из этого, можно интерпретировать этот рисунок таким образом: большая энергия квантов, за счёт большего импульса, приводит к большим амплитудам колебаний в тонком слое (рис.4а), а большая интенсивность (интен-



Рис.4. Спектры свечения пластин глобулярных кристаллов различной толщины $(1 - 0, 7 \text{мм} \ u \ 2 - 2 \text{мм})$ возбуждаемых светодиодами с максимумами свечения на длине волны $a - 363, 5 \text{нм} \ u \ b - 381, 3 \text{нм}$ (пунктирные линии).

сивность лазера на $\lambda = 381,1$ нм была, судя по рис.4 на 20% больше чем на $\lambda = 363,5$ нм) к большей глубине их возбуждения.

Возбуждение глобул происходит последовательно в глубь кристалла по мере роста амплитуды акустических колебаний в них. При этом одновременно с механической передачей импульса от глобулы к глобуле происходит резонансное, с периодом колебаний, возбуждение акустических колебаний в их центрах при вынужденном рассеянии. Так как этот процесс происходит со скоростями меньшими скорости звука (даже если накачка резонансная), то для возбуждения значительной области кристалла необходимы импульсы накачки, существенно превышающие период колебаний глобул. Это запаздывание в импульсе свечения по сравнению с импульсом накачки должно проявляться при наносекундных импульсах.

4. Заключение

Глобулярные кристаллы достаточно интересный объект для исследований и хотелось бы экспериментального подтверждения высказанных здесь предположений. Интересно было бы посмотреть модуляцию свечения с высоким временным разрешением из области синхронизации. Может быть, свечение действительно состоит из пикосекундных импульсов? А также попробовать возбудить его при некогерентной накачке, которая резко увеличивала амплитуду акустических волн при ВРМБ [10].

Работа выполнена без поддержки какими-либо грантами.

Литература

[1] Горелик В С, Кудрявцева А Д и др. Письма в ЖЭТФ 84 (9) 575 (2006)

[2] Kuok M H, Lim H C et al. *Phys.Rev.Lett.* **90**, 255502 (2003)

[3] Горелик В С, Злобина Л И и др. *Препринт ФИАН* 2 20 (2005)

(http://ellphi.lebedev.ru/10/pdf2/pdf)

[4] Ландау Л Д, Лифшиц Е М *Теория упругости* TVIII (М.:Наука.1988) с.135

[5] Ландау Л Д, Лифшиц Е М Гидродинамика TVI (М.:Наука.1988) с.379

[6] Китель Ч Введение в физику твёрдого тела (М.: Физматгиз, 1963) с.166

[7] Suslick K, Eddingaas N Nature 444 163 (2006)

[8] Полякова А П *Письма в ЖЭТФ* **4**(4) 132 (1966)

[9] Полякова А П Письма в ЖЭТФ 7(3) 72 (1968)

[10] Быковский Н Е Препринт ФИАН 16 (2005)

(http://ellphi.lebedev.ru/12/pdf16/pdf)

[11] Быковский Н Е Препринт ФИАН 36 (2006)

(http://ellphi.lebedev.ru/17/pdf36/pdf)

[12] Кудрявцев Е М, Зотов С Д *Препринт ФИАН* **33** (2005)

(http://ellphi.lebedev.ru/13/pdf33/pdf)

[13] Горелик В С, Кудрявцева А Д и др. Краткие сообщения по физике ФИАН 8 42(2006)

[14] Горелик В С, Есаков А А, Фадюшкин А Б *Препринт ФИАН* 14 (2006) (http://ellphi.lebedev.ru/15/pdf14/pdf)