

## СПЕКТРАЛЬНЫЕ И ЭНЕРГЕТИЧЕСКИЕ ХАРАКТЕРИСТИКИ ВЫНУЖДЕННОГО ГЛОБУЛЯРНОГО РАССЕЯНИЯ СВЕТА

М. В. Тареева, В. С. Горелик, А. Д. Кудрявцева, Н. В. Чернега

*Приводятся результаты экспериментов по изучению энергетических и спектральных характеристик вынужденного глобулярного рассеяния (ВГР), возбуждаемого в синтетических опаловых матрицах и наноккомпозитах на их основе. Показано, что спектральное смещение первой стоковой компоненты ВГР относительно возбуждающей лазерной линии определяется диаметром глобул, образующих исследуемые образцы.*

**Ключевые слова:** фотонный кристалл, акустические свойства, дифракция, запрещенная зона, вынужденное глобулярное рассеяние.

Материалы с запрещенными фотонными зонами, получившие название фотонных кристаллов [1, 2], являются в настоящее время объектом интенсивных теоретических и экспериментальных исследований. По аналогии с фотонными кристаллами, структуры, обладающие пространственной модуляцией акустических свойств на масштабе порядка акустической длины волны, называются фононными кристаллами [3–7]. Брэгговская дифракция акустических волн в таких структурах приводит к появлению в них фононных запрещенных зон для частотных диапазонов, определяемых масштабом пространственной модуляции и акустическими свойствами материала. Определение параметров фононных запрещенных зон является гораздо более сложной задачей по сравнению с расчетом характеристик фотонных кристаллов из-за наличия как продольных, так и поперечных акустических волн, задаваемых константами Ламэ и плотностью материала. Для фотонных запрещенных зон определяющей является лишь одна характеристика – пространственная дисперсия диэлектрической проницаемости. Для практических приложений большой интерес представляют структуры, обладающие одновременно свойствами как фотонных, так и фононных кристаллов. Эффективное акустооптическое

---

Учреждение Российской академии наук Физический институт им. П.Н. Лебедева РАН, 119991 Москва, Ленинский пр-т, 53.

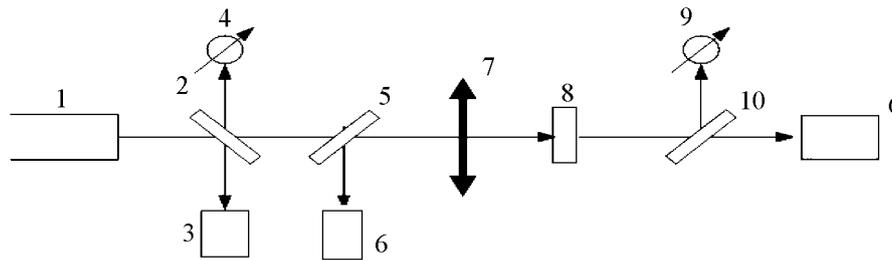


Рис. 1: Схема экспериментальной установки. Пояснения в тексте.

взаимодействие в таких средах открывает широкие возможности использования их для создания устройств управления характеристиками акустических и электромагнитных волн. Одной из таких сред являются трехмерные глобулярные кристаллы – синтетические опаловые матрицы, представляющие собой искусственный материал, образованный регулярно упакованными монодисперсными наносферами диоксида кремния с пространственной модуляцией как оптических (диэлектрической проницаемости), так и акустических свойств на масштабе в несколько сотен нанометров. Масштаб пространственной модуляции определяет диапазон частот (как акустических, так и оптических), задающих положения фотонной и фононной запрещенных зон. Фотонная запрещенная зона в таких образцах лежит в видимом диапазоне спектра, а фононная запрещенная зона относится к гигагерцовому диапазону акустического спектра. Исследование нелинейно-оптических эффектов в опаловых матрицах, возникающих при распространении в них мощного лазерного излучения, может дать важную информацию об особенностях фотон-фононного взаимодействия в таких структурах. Одним из таких эффектов является вынужденное глобулярное рассеяние света [8], представляющее собой процесс взаимодействия электромагнитного излучения с собственными акустическими колебаниями глобул диоксида кремния. Целью данной работы было экспериментальное исследование спектральных и энергетических характеристик ВГР и определение зависимости спектрального смещения первой стоксовой компоненты ВГР от размеров глобул используемых образцов.

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 лазерного импульса  $\tau = 20$  нс; максимальная энергия в импульсе  $E_{\max} = 0.3$  Дж, расходимость  $3.5 \cdot 10^{-4}$  рад, ширина линии генерации  $0.015$  см $^{-1}$ ).

Возбуждающее излучение фокусировалось в образцы (8) линзами (7). Полупрозрачные стеклянные пластины (2, 5, 10) использовались для направления световых пучков на регистрирующие системы. Система (3) использовалась для контроля энергетических, пространственных и временных параметров возбуждающего лазерного излучения. Энергия рассеянного назад и прошедшего образец излучения измерялась с помощью калиброванных светодиодов (4) и (9). Регистрация спектрального состава рассеянного излучения (спектры ВГР) осуществлялась с помощью интерферометров Фабри–Перо (6) с переменной базой, что позволяло варьировать область дисперсии в широких пределах, от  $0.42 \text{ см}^{-1}$  до  $1.67 \text{ см}^{-1}$ . Измерения проводились для линз с различными фокусными расстояниями (50, 90, 150 мм), различных положений исследуемого образца относительно фокусирующей оптики и для различных энергий возбуждающего излучения. Это позволяло проводить измерения для различных плотностей мощности на входе в исследуемый образец и для различных 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) мог варьироваться от 0 до  $60^\circ$ . Исследовались опаловые матрицы, состоящие из плотно упакованных сфер аморфного кварца с диаметрами составляющих их глобул 200, 230, 260, 300, 320 нм и нанокomпозиты (в данной работе исследовались опаловые матрицы с пустотами, заполненными ацетоном и этанолом). Точность определения диаметра глобул, составляющих исследуемые образцы, была  $\sim 3\%$ .

Все эксперименты были выполнены как при комнатной температуре, так и при температуре жидкого азота.

Измерения спектров проводились при интенсивностях накачки, не превышающих пороговые значения возникновения пробоя в исследуемых образцах.

Во всех исследуемых образцах при достижении порогового значения интенсивности лазерного излучения регистрировалось вынужденное глобулярное рассеяние света на частоте, смещенной относительно частоты возбуждающего лазерного излучения на величину порядка нескольких десятых обратного сантиметра, что соответствовало собственным частотам акустических колебаний глобул, образующих синтетические опаловые матрицы. Для незаполненных опаловых матриц ВГР наблюдалось в направлении навстречу лазерному излучению (направление “назад”). Для опаловых матриц, заполненных ацетоном и этанолом, ВГР наблюдалось как в направлении “назад”, так и в направлении “вперед” (попутно с накачкой). Ширина линий ВГР для всех компонент была близка к ширине линии возбуждающего излучения. Расходимость смещенной

компоненты в рассеянном спектре составляла порядка  $10^{-3}$  рад и была близка к лазерной, что свидетельствует о высокой степени когерентности данного типа рассеяния. При понижении температуры до 77 К число компонент возросло и происходило перераспределение энергии в пользу компонент высшего порядка. Это можно объяснить существенным уменьшением затухания гиперзвука при переходе от комнатной температуры к азотной. В данных экспериментальных условиях в зависимости от условий возбуждения регистрировалось до трех стоксовых компонент.

Т а б л и ц а 1

*Значения параметров ВГР (сдвигов частот  $\Delta\nu$ ) для прямой и обратной геометрий эксперимента при различных температурах в сравнении со значениями собственных частот колебаний кварцевых глобул диаметра 200 нм, образующих синтетические опалы*

Образец	Геометрия рассеяния	$\nu$ , ГГц Эксперимент	$\nu$ , ГГц Расчет
Комнатная температура (293 К)			
опал	назад	13.2	13.2
опал + ацетон	вперед	12.0	13.2
	назад	12.0 19.5	13.2 20.4
опал + этанол	вперед	11.1	13.2
	назад	11.7 18.9	13.2 20.4
Температура жидкого азота (77 К)			
опал + этанол	вперед	12	13.2
		23.1	20.4
		33.9	32.1

Для сравнения значений полученных частотных сдвигов с частотами собственных колебаний глобул диоксида кремния диаметром 200 нм, образующих синтетическую опаловую матрицу, в табл. 1 приведены частоты в ГГц, соответствующие экспериментально наблюдаемым частотным сдвигам, а также теоретические значения собственных частот колебаний кварцевых глобул, вычисленных в соответствии с подходом, изложенным в [9]. При этом использовались значения величин продольной и поперечной скоростей звука в плавленом кварце, соответственно  $c_l = 5.279$  км/с и  $c_t = 3.344$  км/с. На

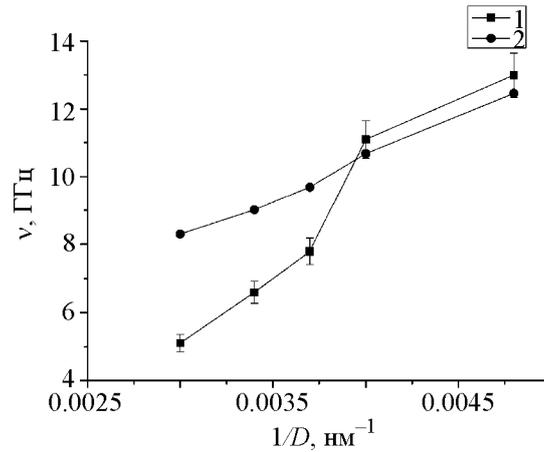


Рис. 2: Зависимость величины сдвига первой стоксовой компоненты ВГР “вперед” от значения обратного диаметра глобул в используемых образцах. Опаловые матрицы были заполнены этанолом. 1 – эксперимент, 2 – расчет.

рис. 2 приведена экспериментально измеренная зависимость смещения частоты первой стоксовой компоненты от обратного диаметра глобул, а также соответственно теоретическая зависимость. Для опаловых матриц, состоящих из глобул с диаметром меньше 240 нм, наблюдается достаточно хорошее соответствие экспериментально измеренных спектральных смещений стоксовых компонент с рассчитанными теоретическими значениями (рис. 2). При использовании образцов с диаметром глобул, превышающем это значение, наблюдается некоторое отклонение экспериментальной зависимости частотного сдвига первой стоксовой компоненты от значения обратного диаметра глобул. Это может быть связано с отклонением формы глобул от идеально сферической. Такое отклонение в исследуемых образцах увеличивается с увеличением размера глобул. Следует отметить, что в используемой для расчета теоретической модели глобулы предполагались свободными и сферическими, в реальных же образцах, в результате процедуры упрочнения, глобулы оказываются деформированными.

Деформация и изменение размеров глобул приводит к изменению спектра их собственных частот. Аналогичный эффект обсуждался ранее в ряде работ, посвященных исследованию спектральных характеристик низкочастотного комбинационного рассеяния света в стеклах [9], и получил название матричного эффекта. Результаты, представленные на рис. 2, однозначно показывают, что спектральное смещение первой стоксовой компоненты относительно возбуждающей лазерной линии определяется размером глобул, составляющих исследуемые образцы.

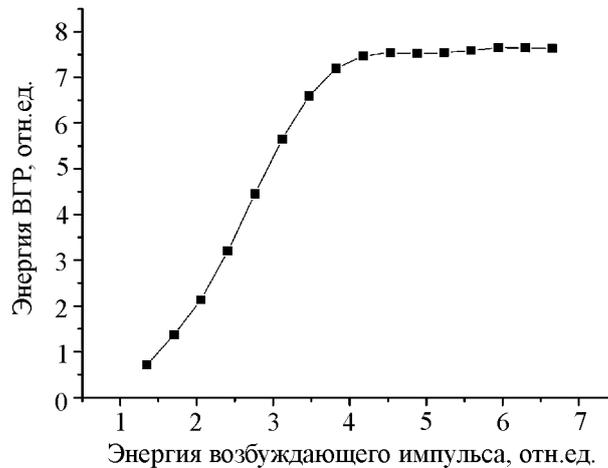


Рис. 3: Зависимость энергии первой стоксовой компоненты ВГР “назад”, возбуждаемого в синтетической опаловой матрице, инфильтрованной ацетоном, с размером глобул 260 нм, от значения энергии возбуждающего импульса.

Во всех исследованных образцах наблюдалось ВГР “назад” с высокой эффективностью преобразования. На рис. 3 представлена зависимость интенсивности ВГР от интенсивности накачки и проиллюстрирован вынужденный характер наблюдаемого рассеяния. При этом максимальная эффективность преобразования падающего излучения в ВГР составляла 60% в направлении “назад” для образца синтетического опала, инфильтрованного ацетоном.

ВГР в различных образцах отличалось по величине преобразования возбуждающего излучения в рассеянное, по числу линий в спектре и по пороговому значению энергии лазерного импульса.

Ход кривой зависимости энергии первой стоксовой компоненты от энергии возбуждающего лазерного импульса для всех исследованных образцов и геометрий рассеяния (“вперед” и “назад”) имел характерный вид, состоящий из участка быстрого роста и участка, соответствующего насыщению (рис. 3). Пороговое значение плотности мощности накачки в случае, соответствующем рисунку, составляло величину  $0.12 \text{ ГВт/см}^2$ , при понижении температуры до 77 К порог ВГР понижался примерно в три раза и составлял величину  $0.04 \text{ ГВт/см}^2$ .

Таким образом, в работе показано, что спектральное смещение первой стоксовой компоненты ВГР определяется диаметром глобул, составляющих исследуемые образцы. Установлено, что ВГР с высокой эффективностью возбуждается как в направлении

“вперед”, так и “назад”. Данный тип вынужденного рассеяния может быть с успехом использован в качестве источника бигармонической накачки для генерации акустических волн гигагерцового диапазона.

Авторы выражают благодарность РФФИ за финансовую поддержку (гранты № 10-02-90042-Бел\_а и № 10-02-00795-а).

#### Л И Т Е Р А Т У Р А

- [1] В. П. БЫКОВ, ЖЭТФ **35**, 269 (1972).
- [2] E. Yablonovich, Phys. Rev. Lett. **58**, 2059 (1987).
- [3] M. Sigalas and E. N. Economou, Solid State Commun. **86**, 141 (1993).
- [4] M. S. Kushwaha, P. Halevi, L. Dobrzynski and B. Djafari-Rouhani, Phys. Rev. Lett. **71**, 2022 (1993).
- [5] Z. Y. Liu, C. T. Chan, P. Sheng, et al., Phys. Rev. **62**, 2446 (2000).
- [6] J. O. Vasseur, P. A. Deymier, B. Chenni, et al., Phys. Rev. Lett. **86**, 3012 (2001).
- [7] T. Still, W. Cheng, M. Retsch, et al., Journal of Physics: Condensed Matter **20**, 1 (2008).
- [8] В. С. Горелик, А. Д. Кудрявцева, Н. В. Чернега, Краткие сообщения по физике ФИАН, № 8, 43 (2006).
- [9] A. Tamura, K. Higeta, T. Ichinokawa, J. Phys. C: Solid State Phys. **15**, 4975 (1982).

Поступила в редакцию 29 апреля 2010 г.