

Прохождение фононов через фотонные кристаллы — среды с пространственной модуляцией акустических свойств

© В.Н. Богомолов, Л.С. Парфеньева, И.А. Смирнов, Х. Мисиорек*, А. Ежовский*

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук,
194021 Санкт-Петербург, Россия

*Институт низких температур и структурных исследований Польской академии наук,
50-950 Вроцлав, Польша

E-mail: Igor.Smirnov@pop.ioffe.rssi.ru

(Поступила в Редакцию 7 июня 2001 г.)

В интервале температур 4.2–300 К измерена теплопроводность (κ) фотонных кристаллов с различной степенью оптической однородности (монокристаллы синтетических опалов). Наряду с обычным уменьшением κ по сравнению со сплошным аморфным SiO₂, характерным для пористых тел, обнаружено значительное уменьшение κ при $T < 20$ К, когда длина волны фононов в аморфном SiO₂ приближается к диаметрам контактов между сферами опала. Этот эффект усиливается, когда поток фононов проходит вдоль цепочек из сфер SiO₂ (шесть направлений в решетке кубического опала). Прохождение световых волн через среду с пространственной модуляцией оптических свойств (фотонные кристаллы) в настоящее время хорошо изучено. В случае прохождения акустических волн через среду с модуляцией акустических свойств ("фононные кристаллы") возможно появление и специфических эффектов, которые обсуждаются в работе. Это, например, баллистический режим прохождения фононов, волноводные эффекты и т.д.

Работа выполнена в рамках соглашения между Российской и Польской академиями наук в при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант № 00-0216883) и Польского комитета научных исследований (грант № 2 P03B 127-19 KBN).

Ранее в работе [1] рассматривалось прохождение света через среду с пространственной модуляцией показателя преломления (опалы как фотонные кристаллы). Одновременно нами проводились работы по изучению прохождения через эти среды фононов (теплопроводность), так как в таких регулярных системах (и композитах на их основе) возможны когерентные эффекты и для фононов. В данной работе получены экспериментальные результаты, свидетельствующие о том, что распространение фононов в опалах с пространственной модуляцией акустических свойств имеет особенности, позволяющие говорить о них как о "фононных кристаллах", у которых проявляются и некоторые специфические эффекты в теплопроводности при сближении длин волн фононов с масштабами модуляции среды.

Опалы обладают своеобразной кристаллической структурой фрактального типа [2,3]. Они состоят из плотноупакованных сфер аморфного SiO₂. Обычно диаметры сфер равны 2000–2500 Å (сферы первого порядка). Эти сферы содержат в себе набор плотноупакованных сфер меньшего размера 300–400 Å (сферы второго порядка), которые в свою очередь формируются из плотноупакованных частиц порядка 100 Å (сферы третьего порядка).

В решетке плотноупакованных сфер имеются пустоты октаэдрического и тетраэдрического типов, связанные между собой посредством "каналов" в форме рупоров. При этом в зависимости от порядкового номера сфер пустоты также подразделяются на пустоты первого, второго и третьего порядков. Заполнение различными веществами пустот первого порядка дает новые решетки

— реплики. Пустоты вносят вклад в общую объемную пористость опала, теоретическая величина которой составляет 59%. Однако на практике реальная суммарная пористость опала равна 46% [4,5]. Это происходит из-за частичного спекания сфер SiO₂ второго и третьего порядков.

Аморфные сферы SiO₂ первого порядка образуют плотноупакованную регулярную гранецентрированную кубическую решетку с периодом ~ 3000 – 4000 Å и контактами сфер друг с другом в виде диафрагм при пересечении их диаметров.

Таким образом, опал можно рассматривать как аморфную среду (аморфные сферы SiO₂ первого порядка) с правильной пространственной модуляцией свойств (регулярное расположение аморфных сфер SiO₂, выстроенных в плотноупакованную кубическую решетку).

В настоящей работе в интервале температур 4.2–300 и 4.2–100 К измерена теплопроводность (κ) нескольких образцов монокристаллического синтетического опала.¹ Для измерения κ была использована методика, аналогичная [8]. Опал является изолятором. Таким образом, полученные на эксперименте значения $\kappa(T)$ относятся к теплопроводности кристаллической решетки. Методика получения монокристаллов опала кратко описана в [6]. Согласно рентгеноструктурным данным, исследованные образцы опала являются чисто аморфными материалами. Никаких следов кристаллической фазы в них не обнаружено. Для определения параметра кубической решетки, образованной аморфными сферами SiO₂ первого порядка, был использован оптический структурный

¹ Теплопроводность опалов исследовалась нами также ранее в [5,6,7].

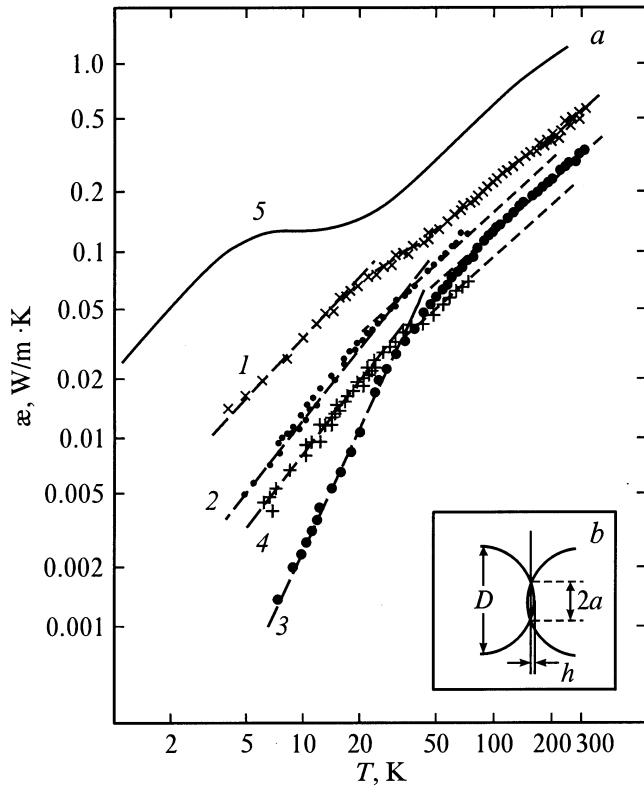


Рис. 1. *a* — температурная зависимость теплопроводности аморфного SiO_2 (5) [12,13] и монокристаллов синтетического опала (1–4). 1–4 — номера образцов исследованных опалов. *b* — схематическое изображение двух соседних сфер аморфного SiO_2 первого порядка в решетке опала. D — диаметр сферы, $2a$ — диаметр контакта, возникающего при пересечении сфер, h — глубина “перекрывания” соседних сфер при их контакте.

анализ [5,9]. Постоянная кристаллической решетки сопоставима с длиной волны видимого света, который выступал в данном случае аналогом рентгеновских лучей при рентгеноструктурном анализе.

О структурном совершенстве исследованных монокристаллов опала мы судили, исходя из данных оптического структурного анализа, так и визуально по наличию или отсутствию диффузного рассеяния света, а также легкости скалывания монокристалла по плоскости (100).

Теплопроводность опалов должна уменьшаться по сравнению с монолитным аморфным SiO_2 за счет наличия в них пористости. Опалы, рассматриваемые в настоящей работе, были получены по одной и той же технологии, процент пористости у них оказался близок друг к другу. Поэтому, исходя из стандартной теории теплопроводности, учитывающей влияние на κ пористости материала [10,11], никакого различия в удельной теплопроводности исследованных образцов опала (отнесенной к аморфному SiO_2) не должно было бы быть. Однако это предположение на эксперименте не подтвердилось. Кроме того, из результатов наших измерений (рис. 1) был получен на первый взгляд парадоксальный результат:

теплопроводность опалов уменьшалась по мере повышения степени совершенства кристаллов, которая согласно оптическим и структурным исследованиям возрастала от образца 1 к образцу 4 (рис. 1).

Поэтому для объяснения полученных экспериментальных результатов необходимо было рассмотреть иную, по сравнению с использованной в [10,11], модель для поведения теплопроводности опала — пористой среды с регулярной структурой.

При прохождении теплового потока через опал на пересечениях аморфных сфер первого порядка возникает контактное тепловое сопротивление, аналогичное контактному электросопротивлению (r),

$$2r = (\rho/4a_0) \cdot 2, \quad (1)$$

где ρ — удельное электросопротивление, $2a_0$ — диаметр контакта.

При наличии небольшой площади контакта (когда он стремится к точечному) теплопроводность опала при высоких температурах будет в основном определяться этим контактным тепловым сопротивлением (чисто геометрическим фактором).

Таким образом, более совершенная кристаллическая структура опала (когда контакты между всеми сферами строго одинаковы и приближаются к точечному), тем большую роль начинает играть в нем контактное тепловое сопротивление между сферами, а кристалл будет иметь меньшую теплопроводность (в пределе при $a \rightarrow 0$ и $\kappa \rightarrow 0$ при слабой зависимости от плотности опала).

Образцы исследованных нами опалов вырезались из пластин, ориентированных по плоскости (111) (рис. 2). Все образцы, за исключением образца № 3, имели произвольную кристаллографическую ориентацию. Образец № 3 вырезался вдоль направления, близкого к $[\bar{1}10]$, так что при измерении теплопроводности тепловой поток в нем распространялся вдоль цепочек шаров аморфного SiO_2 первого порядка. При $T > 20$ К у всех

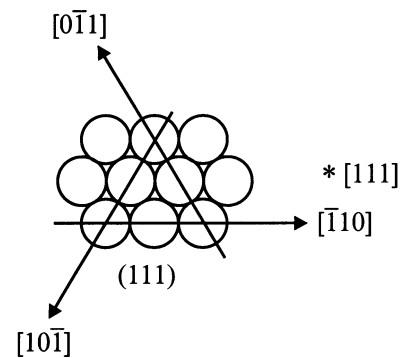


Рис. 2. Схематическое изображение плоскости (111) плотной упаковки шаров опала. $[0\bar{1}1]$, $[\bar{1}10]$ и $[10\bar{1}]$ — направления вдоль цепочек шаров аморфного SiO_2 первого порядка. Звездочкой обозначена ось $[111]$ (направлена перпендикулярно к плоскости рисунка).

исследованных образцов κ возрастает с повышением температуры по закону, близкому к $\kappa \sim T$. При $T < 20$ К поведение у них иное. Теплопроводность уменьшается с понижением температуры как T^n , но с различными значениями n для различных образцов: $n = 1.1$ (образец 1), 1.3 (образцы 2, 4), 2.3 (образец 3).

Анализ поведения κ опалов с различной степенью совершенства и произвольной кристаллографической ориентацией будет проведен в последующей статье. В настоящей работе рассмотрены результаты, полученные для образца № 3.

Согласно данным оптического структурного анализа размер аморфных сфер первого порядка SiO_2 в нем оказался равным 2350 \AA , а постоянная кристаллической ГЦК-решетки составила 3300 \AA .

Монокристаллы опалов представляют собой пример пористых сред, которые, благодаря наличию в них правильной пространственной модуляции плотности, поддаются точному геометрическому описанию. Используя простые геометрические формулы и экспериментальные данные для κ при 300 К объемного аморфного SiO_2 [12,13] и образца опала № 3, мы рассчитали для последнего значения h — глубины пересечения соседних сфер SiO_2 в опале и a — радиуса контакта этих сфер (рис. 1, b). h и a оказались соответственно равны ~ 1 и $\sim 45 \text{ \AA}$.

Таким образом, сферы аморфного SiO_2 первого порядка опала сообщаются между собой через достаточно короткие "контактные окна прозрачности" — диафрагмы с диаметром $2a$.

При расчетах h и a мы воспользовались легко получаемыми формулами

$$2a = 2\sqrt{h(D-h)}, \quad (2)$$

$$R_1/R_2 \sim 8a/D, \quad (3)$$

где D — диаметр аморфной сферы первого порядка опала, а R_1 и R_2 — тепловые сопротивления опала соответственно при $h = h_1$ и $h = h_2$. Формулы (2) и (3) справедливы, когда $h < D/12$, $2a < D/\sqrt{3}$.

Таким образом, можно сделать вывод, что в нашем случае появляется новый механизм рассеяния фононов, отсутствующий в сплошном аморфном SiO_2 .

Проанализируем более подробно полученную зависимость для κ образца опала № 3. Совместим при 300 К значения его удельной теплопроводности с теплопроводностью объемного аморфного SiO_2 (рис. 3, a). Разность между этими величинами обозначим как $\Delta\kappa$. В результате такой процедуры исключаются простые геометрические факторы, приводящие к уменьшению теплопроводности опала — тепловому сопротивлению растекания на контактах аморфных сфер опала и его пористости. Затем на величину, равную $\Delta\kappa$, "поднимем" значения κ опала для всего исследованного интервала температур (рис. 3, a). Как видно из этого рисунка, в интервале 300–50 К удельная κ опала совпадает с κ сплошного аморфного SiO_2 . Расхождение наблюдается

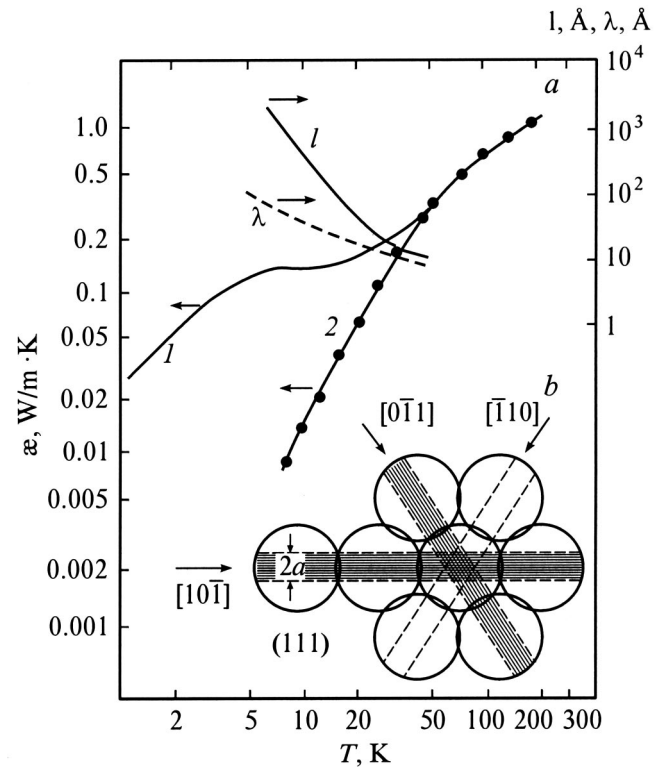


Рис. 3. a — температурные зависимости κ аморфного кварца (1) [12,13] и приведенного к 300 К значения теплопроводности опала образца № 3 (левая шкала) (2), длины свободного пробега фононов (l) и доминирующей длины волны фононов (λ) в образцах массивного аморфного кварца из данных работы [12] (правая шкала). b — схематическое изображение цепочек шаров опала в плоскости (111). Стрелками указаны возможные варианты путей распространения фононов в кристалле опала вдоль цепочек аморфного SiO_2 .

при $T < 50$ К, где удельная κ опала с понижением температуры начинает изменяться по закону $\kappa \sim T^{2.3}$.

Обнаруженный эффект может быть обусловлен рассеянием фононов на диафрагмах — "контактных окнах прозрачности" опала. При $T \sim 20$ К длина свободного пробега фононов (l) в объемном аморфном кварце составляет $\sim 40 \text{ \AA}$, а доминирующая длина волны — $\sim 20 \text{ \AA}$ [12] (рис. 3, a), что близко к радиусу контактной области соприкосновения аморфных сфер опала, так что "контактные области прозрачности" начинают ограничивать длину свободного пробега длинноволновых фононов и для интересующей нас области температур l становится постоянной и не зависящей от температуры. Теплопроводность связана с теплоемкостью (C), скоростью звука (v) и длиной свободного пробега фононов соотношением

$$\kappa = 1/3 Cvl. \quad (4)$$

Как правило, в твердых телах v слабо зависит от температуры ($v \neq f(T) = \text{const}$). Если l и v являются константами, то

$$\kappa(T) \sim C(T). \quad (5)$$

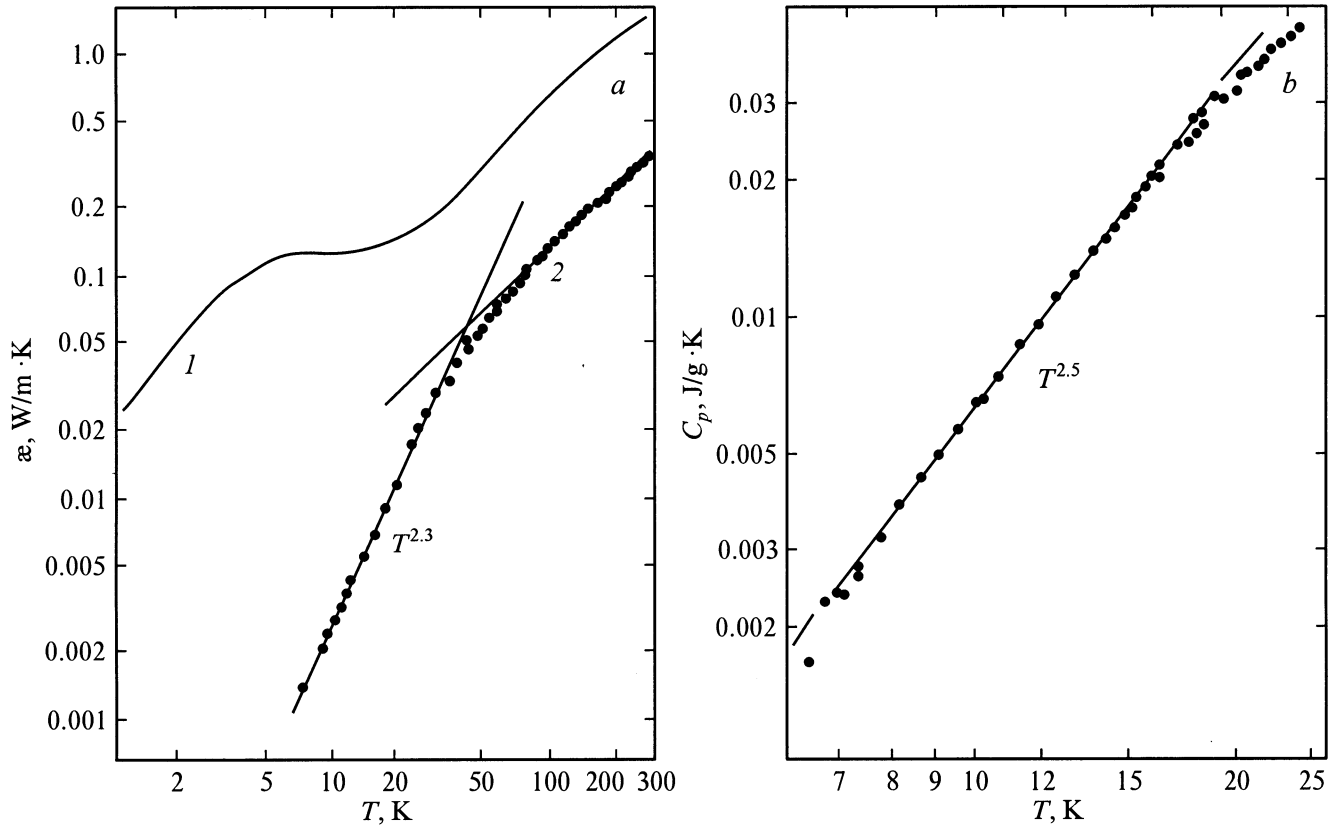


Рис. 4. *a* — температурная зависимость теплопроводности аморфного кварца (1) [12,13] и образца монокристаллического опала № 3 (2). *b* — температурная зависимость теплоемкости образца № 3 из данных работы [14].

Как видно из рис. 4, *a* и *b*, соотношение (4) достаточно хорошо выполняется для образца опала в интересующем нас интервале температур 5–20 К: $\kappa \sim T^{2.3}$, а $C \sim T^{2.5}$.

Для реализации рассмотренной выше модели — аналога модели тонкого стержня, на границах которого происходит рассеяние длинноволновых фононов, необходимо, чтобы "контактные окна прозрачности" были расположены регулярно вдоль направления потока тепла и находились близко друг от друга, что имеет место в образце опала № 3. На рис. 3, *b* штриховые линии, соединяющие "контактные окна прозрачности" опала, которые реально рассеивают фононы, соответствуют модели тонкого стержня. При достаточно низких температурах может проявиться баллистический характер прохождения фононов по "каналам" опала (рис. 3, *b*).

Несомненно, что распространение фононов вдоль модулированного наноканала требует детального теоретического анализа. Подобная задача существует и для случая прохождения фононов через решетки реплик — веществ, заполняющих подрешетки пустот в опалах, изучавшихся нами ранее [15,16]. В этом случае переходы между структурными элементами решетки выглядят уже не как диафрагмы, а, скорее, как граненые рупоры [2].

Мы не исключаем возможности привлечения к объяснению полученных результатов и других моделей.

Представляется, например, естественной аналогия акустических и диэлектрических волноводов в применении к системам на основе опалов для области достаточно низких температур. Согласно [17], число мод (N) в круглом диэлектрическом волноводе зависит от приведенного диаметра волновода (\tilde{d})

$$N = \tilde{d}^{1.84} \sim (2a'/\lambda)^{1.84}, \quad (6)$$

где a' — радиус волновода, λ — длина электромагнитной волны в волноводе

$$\lambda = \frac{\lambda_0}{\sqrt{c_1^{-2} - c_2^{-2}}}, \quad (7)$$

λ_0 — длина волны в вакууме, c_1 и c_2 — скорости света в волноводе и окружающей среде. Теплопроводность пропорциональна числу фононов (числу мод), поэтому можно считать, что $\kappa \sim N$.

Поскольку в рассматриваемом интервале температур (4–30 К) λ для фононов в аморфном кварце изменяется по закону $\lambda \sim 1/T$, то для теплопроводности согласно (6) будет выполняться зависимость $\kappa \sim T^{1.84}$, что достаточно близко к температурной зависимости для κ , полученной нами на эксперименте (рис. 4, *a*).

Возможно, как уже говорилось выше, к объяснению полученных результатов могут быть привлечены и другие модели.

В заключение можно сделать следующие выводы.

Для объяснения полученных результатов рассмотрена модель, которая учитывает рассеяние фононов на "контактных окнах прозрачности" опала. При достаточно низких температурах опал рассматривается также и как трехмерный набор акустических волноводов, по которым фононы могут проходить в баллистическом режиме по цепочкам аморфных сфер SiO_2 (рис. 3, *b*).

В случае последней модели в каждом узле решетки опала (сфере аморфного SiO_2) пересекаются шесть независимых акустических каналов (рис. 3, *b*), которые в принципе могут быть использованы и для акустического воздействия на любой узел решетки опала для создания фильтров, линий задержки и других наноакустических устройств. Если в каждом узле размещать наноприбор, чувствительный к амплитуде акустических воздействий, можно получить трехмерную матрицу элементов, управляемых когерентными потоками фононов (рис. 3, *b*).

В случае когда длина волны фонона сравнивается не с $2a$, а с диаметром D сфер SiO_2 , спектр колебаний такой решетки тяжелых кластеров будет смещен в область низких частот, его положение по сравнению со спектром колебаний аморфного SiO_2 изменяется примерно в $\sqrt{(2a)^2/D^3} \sim 10^3$ раз и попадает в область радиочастот (10^9 – 10^{10} Hz при $T < 4$ K). В этом случае условие $\lambda \sim D$ аналогично условию реализации фотонных кристаллов и, в определенном смысле можно было бы говорить и о "фононных кристаллах".

Ряд вопросов "наноакустики" остался пока не изученным и будет рассмотрен в дальнейших наших публикациях: например, влияние волноводных свойств на поведение \varkappa в асбестах — модельных материалах с диаметром волокон ~ 100 – 200 Å; исследование фотонных свойств опалов при прохождении через них излучения с $\lambda \sim 100$ Å (ввиду наличия в опалах каналов тех же размеров) и др.

Авторы выражают благодарность Н.Ф. Картенко за проведение рентгеноструктурного анализа образцов опалов, а А.В. Прокофьеву за проведение оптического структурного анализа.

Список литературы

- [1] В.Н. Богомолов, Д.А. Курдюков, А.В. Прокофьев, С.М. Самойлович. Письма в ЖЭТФ **63**, 56 (1996).
- [2] В.Н. Богомолов, Т.М. Павлова. ФТП **29**, 2, 826 (1995).
- [3] В.Г. Балакирев, В.Н. Богомолов, В.В. Журавлев, Ю.А. Кумзеров, В.П. Петрановский, С.Г. Романов, Л.А. Самойлович. Кристаллография **38**, 3, 111 (1993).
- [4] В.В. Ратников. ФТТ **39**, 5, 956 (1997).
- [5] В.Н. Богомолов, Д.А. Курдюков, Л.С. Парфеньева, А.В. Прокофьев, С.М. Самойлович, И.А. Смирнов, А. Ежовский, Я. Муха, Х. Мисерек. ФТТ **39**, 2, 392 (1997).
- [6] В.Н. Богомолов, Л.С. Парфеньева, А.В. Прокофьев, И.А. Смирнов, С.М. Самойлович, А. Ежовский, Я. Муха, Х. Мисерек. ФТТ **37**, 11, 3411 (1995).
- [7] В.Н. Богомолов, И.А. Смирнов, Н.В. Шаренкова, Г. Брулс. ФТТ **43**, 2, 210 (2001).
- [8] A. Jezowski, J. Mucha, G. Pompe. J. Phys. D: Appl. Phys. **20**, 1500 (1987).
- [9] В.Н. Богомолов, А.В. Прокофьев, А.И. Шелых. ФТТ **40**, 4, 648 (1998).
- [10] Г.Н. Дульнев, Ю.П. Заричняк. Теплопроводность смесей и композиционных материалов. Энергия, Л. (1974). 264 с.
- [11] Е.Я. Литовский. Изв. АН СССР. Неорган. материалы **16**, 3, 559 (1980).
- [12] R.C. Zeller, R.O. Pohl. Phys. Rev. **B4**, 6, 2029 (1971).
- [13] R.V. Stephens. Phys. Rev. **B8**, 6, 2896 (1973).
- [14] В.Н. Богомолов, Л.С. Парфеньева, И.А. Смирнов, Х. Мисерек, А. Ежовский, А.И. Кривчиков, Б.И. Веркин. ФТТ **43**, 1, 182 (2001).
- [15] Л.И. Арутюнян, В.Н. Богомолов, Н.Ф. Картенко, Д.А. Курдюков, В.В. Попов, А.В. Прокофьев, И.А. Смирнов, Н.В. Шаренкова. ФТТ **39**, 3, 586 (1997).
- [16] В.Н. Богомолов, Н.Ф. Картенко, Д.А. Курдюков, Л.С. Парфеньева, А.А. Сысоева, Н.В. Шаренкова, И.А. Смирнов, Х. Мисерек, Я. Муха, А. Ежовский. ФТТ **41**, 2, 348 (1999).
- [17] В.Ф. Взятыйшев. Диэлектрические волноводы. Советское радио, М. (1970). С. 213.