11

Широкополосное излучение малых диэлектрических частиц

© С.Ш. Рехвиашвили

Институт прикладной математики и автоматизации КБНЦ РАН,
360000 Нальчик, Россия

e-mail: rsergo@mail.ru

Поступила в реакцию 07.04.2020 г.
В окончательной редакции 07.04.2020 г.
Принята к публикации 04.05.2020 г.

Предложена качественно новая теоретическая модель широкополосного („белого“) теплового излучения малых диэлектрических частиц. Высказано и обосновано предположение о том, что высокая интенсивность этого излучения может быть обусловлена не чрезвычайно высокой температурой, а диэлектрическими свойствами материала и/или размерным эффектом теплового излучения. Проведен расчет интенсивности излучения абсолютно черного тела и сферической диэлектрической частицы в зависимости от размерности фотонного газа.

Ключевые слова: диэлектрические частицы, тепловое излучение, размерная зависимость, размерность подобия, диэлектрическая функция.

DOI: 10.21883/OS.2020.09.49873.123-20

Введение

В [1–8] изучалось взаимодействие лазерного излучения с такими диэлектрическими наноматериалами (нанопорошки, англ. nanopowders), как оксиды и фосфаты редкоземельных металлов. В экспериментах обнаруживаются типичные спектры апконверсионной люминесценции, а также сплошные спектры, которые характерны для теплового излучения. Наличие последних принято объяснять тем, что энергия электронных переходов, приводящих к люминесценции, может эффективно расходоваться на нагрев вещества. Здесь, однако, выявляется ряд противоречий. Если температуру широкополосного излучения определять путем сравнения экспериментальных спектров с планковским распределением, то получаются чрезвычайно высокие температуры в интервале от $1900-2850$ K в зависимости от условий эксперимента [1–35,7,8]. Если же температуру образцов оценивать иным способом, например, с помощью рентгеновской дифракции [6], то получается, что она составляет приблизительно 900 K. Данная ситуацияя усугубляется еще двумя фактами. Во-первых, в большинстве экспериментов использовались инфракрасные лазерные диоды, которые не развивают высокую мощность даже в центре фокального пятна. Во-вторых, хорошо известно, что для малых частиц имеет место уменьшение температур плавления и испарения в $2-4$ раза, что также исключает высокие температуры нагрева диэлектрических наноматериалов. В настоящее время общепринятое объяснение всему этому отсутствует.

В настоящей работе предлагается описать широкополосное излучение малых диэлектрических частиц, используя представление о размерной зависимости теплового излучения и наиболее общую модель диэлектрической релаксации Гаврилияка–Негами. Размерная зависимость излучения абсолютно черного тела рассматривалась в [9–11]. Было дано обобщение законов Планка и Стефана–Больцмана для n-мерного пространства. Как известно, в трехмерном случае абсолютно черное тело представляется в виде сферической полости с зеркальными стенками. В качестве двумерного абсолютно черного тела можно взять кольцо из тонкой сверхпроводящей проволоки. Фотоны, бесконечно отражаясь от проволоки, будут заполнять двумерное пространство внутри кольца. Простейшей моделью одномерного абсолютно черного тела являются два конца тонкой сверхпроводящей проволоки, которые расположены друг напротив друга. Равновесные фотоны, отражаясь от концов проволоки, будут существовать только в промежутке между ними. Формулы, полученные в [9–11], содержат размерность евклидова пространства и применимы, строго говоря, для целочисленных ее значений.

В настоящей работе в отличие от [9–11] рассматривается излучение объемной диэлектрической частицы в трехмерном евклидовом пространстве. При этом используется понятие размерности подобия D, которая определяет плотность фотонов в k-пространстве и может иметь нецелые значения.

Размерная зависимость черного излучения

Рассмотрим фотоны внутри куба со стороной l. Минимальное расстояние между разрешенными значениями волновых чисел равно $2\pi/l$, поэтому число фотонов есть

$$N = 2\left(\frac{l}{2\pi}\right)^3 V_k = 2\left(\frac{l}{2\pi}\right)^3 \frac{4}{3}\pi k_0^3 \left(\frac{k}{k_0}\right)^D = \frac{8\pi}{3}\left(\frac{l\omega}{2\pi c}\right)^D, \tag{1}$$

где V_k — объем сферы в k-пространстве, ω — частота, c — скорость света в вакууме, D — размерность подобия (в теории фракталов это размерность Минковского).

При записи (1) предполагалось, что наименьшая сфера в пространстве волновых чисел имеет радиус $k_0 = 2\pi/l$. Множитель „2“ в (1) учитывает два направления поляризации фотонов. С учетом (1) получаем

$$dE_\omega = \frac{\hbar\omega}{\exp\left(\frac{\hbar\omega}{k_BT}\right)-1}\left(\frac{dN}{d\omega}\right)d\omega = \frac{8\pi\hbar D}{3}\left(\frac{l\omega}{2\pi c}\right)^D \frac{d\omega}{\exp\left(\frac{\hbar\omega}{k_BT}\right)-1}. \quad (2)$$

По аналогии с [12] введем функцию

$$e_0(\omega) = \frac{1}{4\pi l^3}\frac{dE_\omega(\omega)}{d\omega} = \frac{2\hbar D}{3l^{3-D}}\left(\frac{\omega}{2\pi c}\right)^D \frac{1}{\exp\left(\frac{\hbar\omega}{k_BT}\right)-1}. \quad (3)$$

При $D = 3$ из (3) точно следует формула Планка, поделенная на 4π. Приходящаяся на единицу площади интенсивность черного излучения в телесном угле $d\Omega$ и частотном интервале $d\omega$ равна

$$dJ = ce_0(\omega)\cos(\theta)d\omega d\Omega. \quad (4)$$

Если считать, что $e_0(\omega)$ не зависит от телесного угла, то из (4) находим

$$J = \pi c\int\limits_0^\infty e_0(\omega)d\omega. \quad (5)$$

Подставляя (3) в (5) и выполняя интегрирование, получаем

$$J = \frac{4\hbar D(\pi c)^2\Gamma(D+1)\xi(D+1)}{3l^{3-D}}\left(\frac{k_BT}{2\pi c\hbar}\right)^{D+1}, \quad (6)$$

где $\Gamma(x)$ — гамма-функция Эйлера, $\xi(x)$ — дзета-функция Римана. Формула (6) представляет собой закон Стефана–Больцмана с учетом параметра размерности для газа фотонов. Из (6) для размерностей 3, 2 и 1 имеем

$$J = \frac{\pi^2k_B^4}{60c^2\hbar^3}T^4, \quad J = \frac{2\xi(3)k_B^3}{3\pi c\hbar^2 l}T^3, \quad J = \frac{1}{18\hbar}\left(\frac{\pi k_B}{l}\right)^2 T^2, \quad (7)$$

где $\xi(3) \approx 1.202$ — постоянная Апери.

С уменьшением размера частицы l интенсивность черного излучения, приходящаяся на единицу площади, увеличивается по степенному закону: $J \sim 1/l^{3-D}$. Эта зависимость достаточно резкая. Так, при $T = 900\,\mathrm{K}$ [6], $l = 0.1\,\mu\mathrm{m}$ и $D = 2$ получаем удельную интенсивность излучения $J = 1.5\cdot 10^6\,\mathrm{W/m^2}$, которая при $D = 3$ будет соответствовать температуре $T = 2270\,\mathrm{K}$. При $D = 1$ с уменьшением размеров светящейся области до единиц нанометров соответствующая „кажущаяся“ температура при $D = 3$ может увеличиваться до десятков тысяч градусов. Данное свойство черного излучения (оно, конечно же, не подразумевает реально высокие температуры), по-видимому, может быть одним из ключей к интерпретации экспериментов [1–8].

Учет диэлектрической функции

Перейдем к вычислению интенсивности излучения диэлектрической частицы. Из (3) и закона Кирхгофа, связывающего процессы поглощения и испускания электромагнитных волн, для интенсивности излучения можно написать

$$dI = \sigma(\omega)dJ = 4\pi ce_0(\omega)\sigma(\omega)d\omega, \quad (8)$$

где $\sigma(\omega)$ — сечение поглощения. Сечение поглощения диэлектрического тела объемом V дается выражением [13]

$$\sigma(\omega) = \frac{\omega\varepsilon_0}{2A}\int\limits_V |\mathbf{E}|^2 \mathrm{Im}\,\varepsilon\, dV, \quad (9)$$

где $\mathbf{E}$ — вектор напряженности электрического поля, A — амплитуда вектора потока плотности мощности падающей волны, $\mathrm{Im}\varepsilon$ — мнимая составляющая диэлектрической функции, которая характеризует поглощение излучения. Если принять $A = c\varepsilon_0|\mathbf{E}|^2/2$ и считать, что подынтегральное выражение в (9) не зависит от объема частицы, то получим

$$\sigma(\omega) = \frac{l^3\omega\mathrm{Im}\,\varepsilon(\omega)}{c}. \quad (10)$$

Подставляя (3) и (10) в (8) и интегрируя по частотам, находим полную интенсивность излучения

$$I = \frac{8\pi\hbar D}{3}\left(\frac{l}{2\pi c}\right)^D \int\limits_0^\infty \frac{\omega^{D+1}\mathrm{Im}\,\varepsilon(\omega)d\omega}{\exp\left(\frac{\hbar\omega}{k_BT}\right)-1}. \quad (11)$$

Заметим, что интеграл в (11) расходится, если при низких частотах мнимая составляющая диэлектрической функции стремится к бесконечности быстрее, чем $1/\omega^{D+1}$.

Рассмотрим сначала самый простой случай, когда мнимая часть диэлектрической функции не зависит от частоты [14]. Интегрируя (11), находим

$$I = \frac{8\pi\hbar D\varepsilon_i\Gamma(D+2)\xi(D+2)}{3}\left(\frac{l}{2\pi c}\right)^D\left(\frac{k_BT}{\hbar}\right)^{D+2}, \quad (12)$$

где $\varepsilon_i = \mathrm{Im}\,\varepsilon = \mathrm{const}$. В качестве примера для отношения I/ε_i при $T = 900\,\mathrm{K}$ [6], $l = 0.1\,\mu\mathrm{m}$ и размерностях 3, 2 и 1 из (12) получаем значения 0.2, 6.2 и 184 nW. Таким образом, как и в случае абсолютно черного тела, приходим здесь к выводу об увеличении интенсивности излучения, которое происходит при уменьшении размерности D.

Частотная дисперсия поляризуемости и диэлектрической проницаемости имеет место для различных стекол, керамических соединений, полимеров и полимерных композитов. Для описания комплексной диэлектрической восприимчивости и соответственно комплексной диэлектрической проницаемости в таких материалах принято использовать формулы Коула–Коула, Коула–Дэвидсона и Гаврилияка–Негами [15], которые многократно проверялись опытами по диэлектрической и емкостной спектроскопии, ядерному магнитному резонансу и рассеянию нейтронов. Наиболее общий вид имеет комплексная диэлектрическая функция Гаврилияка–Негами

$$\varepsilon(\omega) = \varepsilon_1 + \frac{\varepsilon_2 - \varepsilon_1}{[1 + (i\omega\tau)^a]^b}, \quad 0 < a, \quad b \leq 1, \tag{13}$$

где τ — время релаксации, ε_1 и ε_2 — высокочастотная и низкочастотная диэлектрические проницаемости ($\varepsilon_2 > \varepsilon_1$). Отметим, что параметры a и b учитывают не суперпозицию элементарных дебаевских процессов, а сложное коллективное взаимодействие атомов, которое, как правило, имеет синергетический характер [15]. Выражение (13) описывает в качестве частных случаев процессы диэлектрической релаксации Дебая при $a = b = 1$, Коула–Коула при $b = 1$ и Коула–Дэвидсона при $a = 1$. Мнимая часть функции (14) есть

$$\operatorname{Im}\varepsilon(\omega) = (\varepsilon_2 - \varepsilon_1)\frac{\sin\left(b \operatorname{arctg}\left(\frac{(\omega\tau)^a \sin(\pi a/2)}{1+(\omega\tau)^a\cos(\pi a/2)}\right)\right)}{\left(1 + 2(\omega\tau)^a\cos(\pi a/2) + (\omega\tau)^{2a}\right)^{b/2}}. \tag{14}$$

Из (8) следует, что спектральная плотность излучения, измеряемая экспериментально, пропорциональна произведению $e_0(\omega)\sigma(\omega)$. Учитывая (3), (10) и (14), приходим к выводу, что при $a = 1$, $b < 1$ (модель Коула–Дэвидсона) и $D \leq 3$ температура диэлектрической частицы, оцененная по спектру излучения, может быть значительно меньше аналогично найденной температуры абсолютно черного тела при $D = 3$. Подставляя (14) в (11), находим

$$I = \frac{8\pi\hbar D(\varepsilon_2 - \varepsilon_1)\omega_0^2}{3}\left(\frac{l\omega_0}{2\pi c}\right)^D \Phi\left(\frac{k_B T}{\hbar\omega_0}\right), \tag{15}$$

$$\Phi(y) = y^{D+2} \times \int_0^\infty \frac{\sin\left(b \operatorname{artg}\left(\frac{(yx)^a\sin(\pi a/2)}{1+(yx)^a\cos(\pi a/2)}\right)\right)x^{D+1}dx}{(\exp(x) - 1)\left(1 + 2(yx)^a\cos(\pi a/2) + (yx)^{2a}\right)^{b/2}}, \tag{16}$$

где $\omega_0 = 1/\tau$ — частота пика диэлектрических потерь.

Интеграл в (16) не вычисляется в явном виде, но можно найти его приближенное значение. Если параметры a и b близки к единице и при высоких температурах выполняется условие $y \gg 1$, то интеграл в (16) выражается через известные функции

$$\Phi(y) \approx y^m(\pi ab/2)\int_0^\infty \frac{x^{m-1}dx}{\exp(x) - 1} = y^m \sin(\pi ab/2)\Gamma(m)\zeta(m),$$

где $m = D + 2 - ab$. С учетом этого для интенсивности получаем

$$I = \frac{8\pi\hbar D(\varepsilon_2 - \varepsilon_1)\sin(\pi ab/2)\Gamma(m)\zeta(m)\omega_0^2}{3} \times \left(\frac{l\omega_0}{2\pi c}\right)^D\left(\frac{k_B T}{\hbar\omega_0}\right)^m. \tag{17}$$

Таким образом, при высоких температурах интенсивность излучения диэлектрической частицы оказывается степенной функцией температуры с нецелым показателем, $I \propto T^m$. В высокотемпературном пределе диэлектрическая релаксация не перестает играть роль, поскольку (17) содержит ω_0. Для различных диэлектрических материалов τ может изменяться в широких пределах от 10^{-3} до 10^{-11} s. При дебаевской релаксации $a = b = 1$ и $m = 4$ из (17) находим

$$I = \frac{\pi^2(\varepsilon_2 - \varepsilon_1)\omega_0 V k_B^4 T^4}{15c^3\hbar^3} = \frac{4(\varepsilon_2 - \varepsilon_1)\omega_0 V}{c}\sigma T^4, \tag{18}$$

где V — объем частицы, σ — постоянная Стефана–Больцмана. Из (17) и (18) следует, что интенсивность излучения частицы увеличивается с уменьшением времени диэлектрической релаксации. Если в (15) и (17) выполняется условие $l < \omega_0/(2\pi c)$, то с уменьшением размерности D интенсивность излучения диэлектрической частицы будет увеличиваться. При малых временах релаксации интенсивность теплового излучения диэлектрической частицы, определяемая формулами (17) и (18), может достигать значений, сравнимых с интенсивностью излучения абсолютно черного тела.

Заключение

Воздействие инфракрасного излучения на компактированные диэлектрические наноматериалы в ряде случаев приводит к появлению так называемого „белого“ широкополосного излучения, которое имеет тепловую природу [1–8]. С физической точки зрения температура этого вторичного видимого излучения, оцениваемая согласно закону Планка, представляется чрезвычайно высокой (свыше 2000 K). В настоящее время причина столь сильного нагрева и каления диэлектрического материала четко не сформулирована. Проведенный в настоящей работе анализ позволяет предположить, что широкополосное излучение может быть обусловлено не критическим повышением температуры, а определенными диэлектрическими свойствами вещества и/или размерным эффектом теплового излучения. Причиной размерного эффекта является возможное изменение плотности фотонных состояний в диэлектрических наноматериалах.

Список литературы

[1] *Redmond S.M., Rand S.C., Oliveira S.L.* // Appl. Phys. Lett. 2004. V. 85. N 2. P.5517. doi 10.1063/1.1825068

[2] *Bisson J.-F., Kouznetsov D., Ueda K.-I., Fredrich-Thornton S.T., Petermann K., Huber G.* // Appl. Phys. Lett. 2007. V. 90. N 20. P. 201901. doi 10.1063/1.2739318

[3] *Wang J., Tanner P.A.* // J. Am. Chem. Soc. 2010. V. 132. N 3. P.947. doi 10.1021/ja909254u

[4] *Strek W., Marciniak L., Bednarkiewicz A., Lukowiak A., Wiglusz R., Hreniak D.* // Optics Express. 2011. V. 19. N 15. P. 14085. doi 10.1364/OE.19.014083

[5] *Feng Qin, Hua Zhao, Yangdong Zheng, Zhemin Cheng, Peng Wang, Changbin Zheng, Ying Yu, Zhiguo Zhang, Wenwu Cao* // Opt. Lett. 2011. V. 36. N 10. P. 1806. doi 10.1364/OL.36.001806

[6] *Marciniak L., Strek W., Hreniak D., Guyot Y.* // Appl. Phys. Lett. 2014. V. 105. P. 173113. doi 10.1063/1.4900965

[7] *Хрущалина С.А., Рябочкина П.А., Кяшкин В.М., Ванецев А.С., Гайтко О.М., Табачкова Н.Ю.* // Письма в ЖЭТФ. 2016. Т. 103. № 5. С. 342. doi 10.1134/S0021364016050064

[8] *Рябочкина П.А., Хрущалина С.А., Кяшкин В.М., Ванецев А.С., Гайтко О.М., Табачкова Н.Ю.* // Письма в ЖЭТФ. 2016. Т. 103. № 12. С. 836. doi 10.1134/S0021364016120110

[9] *Grassi A., Sironi G., Strini G.* // Astrophys. Space Sci. 1986. V. 124. P. 203. doi 10.1007/BF00649761

[10] *Landsberg P.T., De Vos A.* // J. Phys. A: Math. Gen. 1989. V. 22. P. 1073. doi 10.1088/0305-4470/22/8/021

[11] *Menon V.J., Agrawal D.C.* // J. Phys. A: Math. Gen. 1998. V. 31. P. 1109. doi 10.1088/0305-4470/31/3/021

[12] *Ландау Л.Д., Лифшиц Е.М.* Статистическая физика. Часть 1. М.: Физматлит, 2002. 616 с.

[13] *Ishimaru A.* Electromagnetic Wave Propagation, Radiation, and Scattering. Prentice Hall, 1991. 637 p.

[14] *Смирнов Б.М.* // УФН. 1993. Т. 163. № 7. С. 51. doi 10.1070/PU1993v036n07ABEH002291

[15] *Блайт Э.Р., Блур Д.* Электрические свойства полимеров. М.: Физматлит, 2008. 376 с.