

De kortste knal ter wereld

De ontwikkeling van ultrasnelle lasers vormde het begin van de 'nano-akoestiek'. Door met intense laserpulsen op een metaalfilm te schieten kunnen korte drukpakketten met zeer hoge amplitude worden gevormd. Het is aangetoond dat deze pulsen niet stabiel zijn in een kristal, maar opbreken in een trein van ultrakorte druksolitonen, met een dikte van maar enkele atoomlagen (een atoomlaag is ongeveer 0,3 nm dik). Deze akoestische solitonen zijn niet alleen een opzienbarende nieuwe toepassing van enkele elementaire concepten uit de vaste-stofnatuurkunde, ze bieden tevens uitzicht op een nieuw veld van ultrasnelle hoge-druk-experimenten in vaste stoffen en nanostructuren. *Otto Muskens*

o.muskens@cpmoh.u-bordeaux1.fr



Otto Muskens (1977) studeerde experimentele natuurkunde aan de Universiteit Utrecht. Hij verriichte zijn promotieonderzoek bij Jaap Dijkhuis te Utrecht en behaalde in maart 2004 de doctorstitel 'cum laude' voor het proefschrift 'High-amplitude, ultrashort strain solitons in solids'. Momenteel onderzoekt hij als postdoc aan de universiteit van Bordeaux de spectroscopie en ultrasnelle dynamica van individuele nano-objecten.

SOLITONEN EN NANO-AKOESTIEK

De kortste drukgolf die mogelijkwerijs in materie gemaakt kan worden, heeft een dikte van slechts één atoomafstand. Hoewel in theorie mogelijk, is het experimenteel nog niet gelukt om akoestische pulsen in deze limiet te onderzoeken. Nano-akoestische pulsen van enkele tientallen nanometers lengte kunnen eenvoudig worden gegenereerd door de absorptie van femtoseconde-laserpulsen in een dunne metaalfilm. De lichtpuls fungeert hierbij als een 'hamer', die een klein tikje tegen het materiaal geeft, dat vervolgens met de geluidssnelheid door het medium reist. De weerkaatsingen van het golfje aan dieperliggende structuren kunnen met behulp van optische pulsechotechnieken (zogenoemde *pump-probe*) worden gemeten aan het oppervlak. Deze nano-ultrasonicsmethode wordt tegenwoordig veelvuldig toegepast in de analyse van kleine structuren en multilagen in de halfgeleiderindustrie.

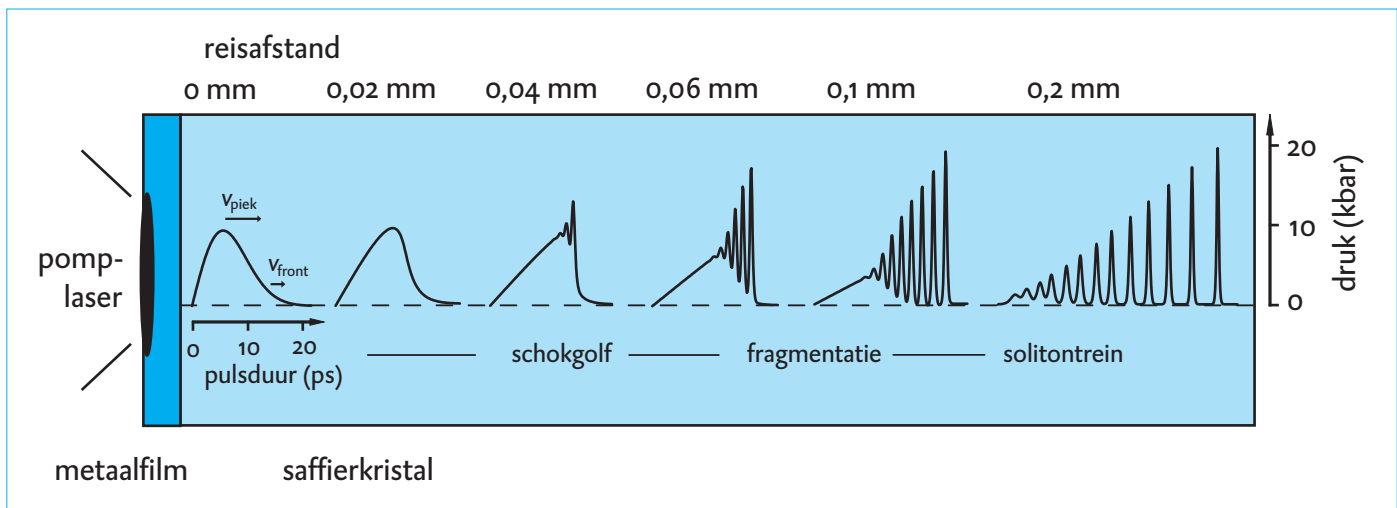
Het meeste onderzoek op het gebied van nano-akoestiek is gedaan aan dunne lagen, waarbij de golven reizen over submicrometerafstand. De voortplanting over macroscopische afstanden in een kristal is een nieuw en nog onontgonnen onderzoeksgebied. Dit heeft vooral praktische oorzaken: het terugvinden van de korte pulsen, corresponderend met een picoseconde (10^{-12} s) tijdsduur, over reistijden van microseconden met de pulsechomethode vereist een zeer stabiele en nauwkeurige detectieopstelling.

In een dergelijk precisie-experiment zijn Hao en Maris [1] er echter in geslaagd om de korte golfjes na propagatie waar te nemen. Zij vonden dat pulsen met een lage amplitude sterk worden vervormd door de dispersie van het kristalrooster. Deze fonondispersie (een fonon is een geluidsquantum) zorgt ervoor dat de hoge frequentiecomponenten een lagere voortplantingssnelheid hebben dan de lage frequenties in het golfpakket, waardoor de korte beginpuls uit elkaar wordt getrokken tot een sliert met variaties van langzame naar snelle trillingen.

Recent onderzoek laat zien dat bij hoge pulsamplitudes een ander effect optreedt, dat kan compenseren voor de fonondispersie [2,3]. Dit effect is de niet-lineaire elasticiteit van het kristal, die ertoe leidt dat de geluidssnelheid toeneemt bij hogere druk. De combinatie van dispersie en niet-lineariteit levert een fascinerend samenspel dat resulteert in de formatie van extreem stabiele pulsen: *solitonen*.

VAN SCHOKGOLF NAAR SOLITONTREIN

Figuur 1 laat een simulatie zien van de vervorming van een typisch drukpakket tijdens zijn reis, onder invloed van de niet-lineariteit en dispersie van een saffierkristal. Het model van toepas-



Figuur 1
Simulatie van de vervorming van een nano-akoestische puls in een saffierkristal.

sing op ultrakorte akoestische pulsen in het kristal is een mathematische klassieker: de Korteweg-de Vries-vergelijking. In de ontwikkeling van het golfpakket kunnen we drie opeenvolgende fasen onderscheiden. De eerste verstoring van het pakket vindt plaats doordat de piek van de drukgolf iets sneller reist dan het golffront. De piek haalt het golffront in binnen enkele tientallen micrometers reisafstand door het kristal. In een kristal breekt de golf niet, omdat de atomen stevig vastzitten op hun roosterpositie, maar er ontstaat wel een zeer steil schokfront. De ontwikkeling van een beginpuls naar zo'n steil schokfront gaat gepaard met de vorming van zeer hoge akoestische frequentiecomponenten in het golfpakket, tot in het terahertzgebied.

Door de aanwezigheid van deze hoogfrequente componenten wordt het effect van de fonodispersie opeens enorm vergroot: de nieuwe terahertz-frequenties gaan vrijwel meteen achterlopen op het golffront en geven zo een oscillerende verstoring van het golfpakket. Deze tweede fase noemen we de *fragmentatie* van de akoestische puls.

De gecompliceerde wisselwerking van schokvorming en fragmentatie kan maar op één manier aflopen: de vorming van solitonpuls. Dit zijn stabiele, compacte pakketjes waarin intrinsiek een dynamische balans bestaat tussen de twee competitieve effecten, te weten niet-lineariteit en dispersie. Deze balans zorgt voor een ongekende robuustheid en zelfs een regenererend vermogen van de solitonen onder invloed van externe verstoringen.

gen. Omdat een solitonpuls het kristal sterk samendrukt en zo lokaal de golfsnelheid beïnvloedt, reist hij met een iets grotere snelheid dan 'normaal' geluid. Een willekeurige compressieimpuls ontwikkelt zich tot een trein van supersonische solitonpakketjes, waarbij het aantal solitonen alsmede de lengte, amplitude en snelheid van ieder soliton in de trein uitsluitend wordt bepaald door één enkele parameter. Deze parameter is samengesteld uit de fundamentele materiaalconstanten, de maximale druk en de lengte van de beginpuls. We zien in figuur 1 dat onze begincondities een solitontrein opleveren van maar liefst dertien individuele pulsen, waarbij de eerste het kortst is met een lengte van zo'n 0,25 picoseconde, ofwel tweeënhalve nanometer!

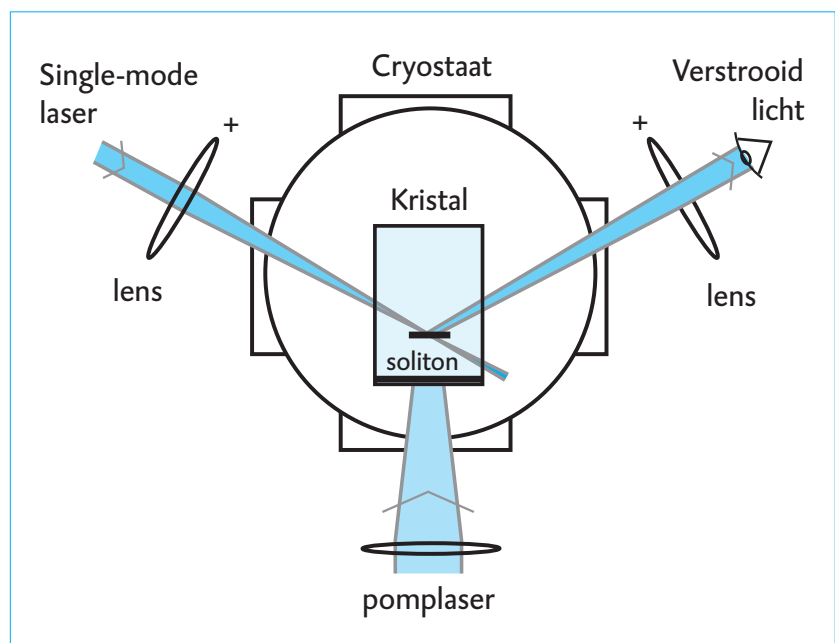
WAARNEMEN VAN EEN SOLITONTREIN

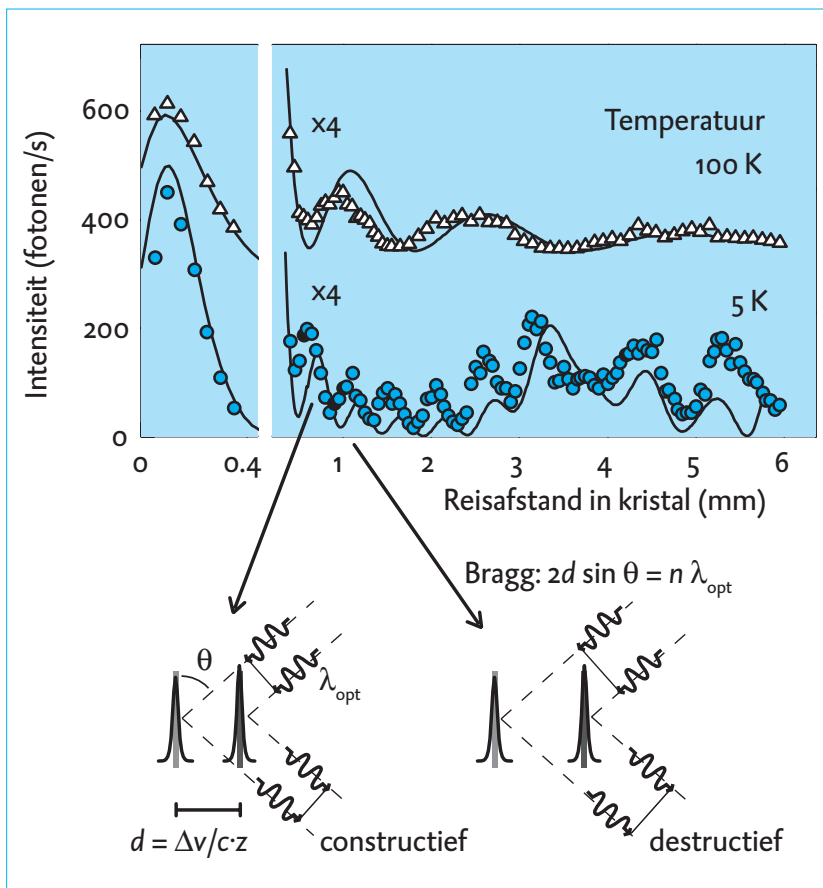
In ons onderzoek tonen we experimenteel aan dat nano-akoestische pulsen spontaan kunnen opbreken in een trein van solitonen. Hiervoor maken

we eerst zeer intense drukpakketjes door met lichtpulsen uit een doorversterkte laser te schieten op een chroomfilm, opgedamd op een saffierkristal. Duizend keer per seconde wordt zo een compressieimpuls van tachtig nanometer dikte gelanceerd in het saffier. Bij een geluidssnelheid van tienduizend meter per seconde komt dit overeen met een pulsduur van 8 picoseconde. Door de hoge intensiteit van de optische excitatiebron bereiken we een maximale druk van maar liefst 10 kilobar, over een spot van enkele millimeters in diameter.

Direct na de excitatie in het dunne chroomlaagje reist het pakket naar de overkant van het saffierkristal. Tijdens de experimenten wordt het kristal afgekoeld tot enkele graden boven het absolute nulpunt, om de demping van het golfpakket aan de achtergrondruis van thermische vibraties te reduceren.

Figuur 2
Experimentele configuratie van het lichtverstrooiingsexperiment in saffier.





Figuur 3
Verstrooide lichtintensiteit als functie van de reisafstand van de akoestische golf, met aan de onderkant de resonante condities voor constructieve en destructieve interferenties van het verstrooide licht aan de bewegende solitonen.

Wij hebben twee onafhankelijke methodes ontwikkeld voor de detectie van solitonen in het kristal. Door gedetailleerde vergelijking met de modellen gebaseerd op de Korteweg-de Vries-vergelijking kan met behulp van deze experimenten het gedrag van het drukprofiel worden teruggevonden.

REIZEND SPIEGELTJE

De eerste methode om solitonen te detecteren maakt gebruik van lichtgolven. Licht van een welbepaalde golflengte wordt hierbij weerkaatst aan de geluidsgolven in het kristal (Zie figuur 2). Het drukpakket werkt zo eigenlijk als een reflecterend spiegelkje dat met de geluidssnelheid door het materiaal reist. Door deze snelheid krijgt het weerkaatste licht een frequentieverandering mee, analoog aan het bekende Doppler-effect. De frequentieverandering kan gebruikt worden om het licht spectraal te scheiden van de achtergrond. De intensiteit van het verstrooide licht wordt vervolgens gebruikt om informatie te verkrijgen over de ontwikkeling van het golfpakket tijdens zijn reis door het saffier.

Figuur 3 laat een typische ontwikkeling zien van de verstrooide lichtintensiteit in het kristal als functie van de afgelegde afstand van het drukpakket. We beschouwen hierbij de ontwikkeling zoals deze is gemeten bij twee ver-

schillende temperaturen. In beide gevallen zien we eerst een sterke afname van de intensiteit. In de hoge-temperatuurmeting vindt hierna een langzame, zwakke oscillatie plaats. De lage-temperatuurdata vertoont echter een typisch snel oscillatiepatroon over enkele millimeters.

Het gedrag kan voor beide temperaturen zeer goed worden gereproduceerd door middel van het beschreven model, gebruikmakend van de bekende materiaalparameters van saffier. De enige vrije parameter hierbij is de drukamplitude van het golfpakket. De lijn bij de lage temperatuur correspondeert met de Korteweg-de Vries-simulatie, waarbij het pakket opbreekt in een solitontrein zoals in figuur 1. Bij de hogere temperatuur wordt aan dit model een additionele dempingsterm toegevoegd (de zogenoemde Burgers-term) met een bekende waarde voor de viscositeit van saffier. Deze demping zorgt ervoor dat de terahertzfrequenties verdwijnen voordat ze het schokfront kunnen verstoren via dispersie. Het pakket krijgt hierdoor geen kans om op te breken en reist verder in de vorm van een gedempte schokgolf.

SOLITONTREIN ALS DIFFRACTIETRALIE

Het oscillerende patroon bij de lage temperatuur toont aan dat we in het experiment gevoelig zijn voor de snelhe-

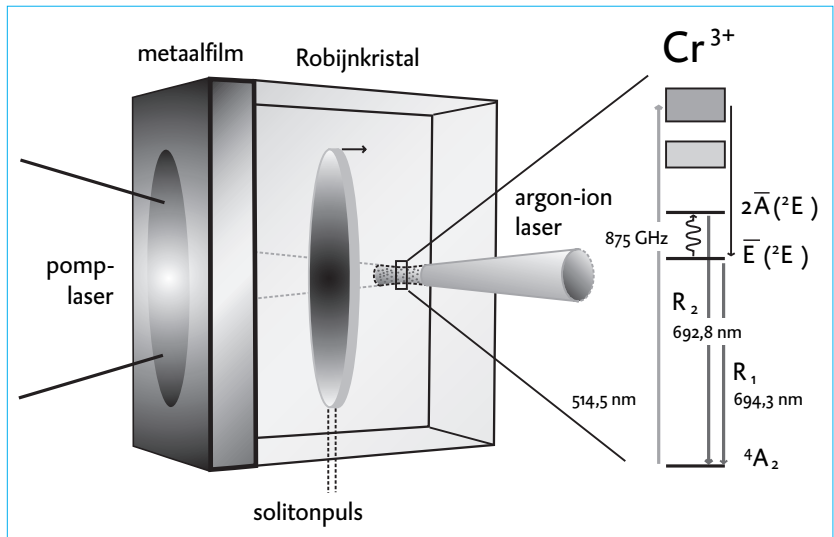
den in het golfpakket. We kunnen de oscillatie namelijk eenvoudig verklaren met behulp van de interferentie van licht dat verstrooid wordt aan een trein van spiegelkjes die met verschillende snelheden reizen. Hiervoor maken we gebruik van de bekende diffractiewet van Bragg, die stelt dat een maximum in de verstrooiingsintensiteit optreedt wanneer voldaan wordt aan een resonantieconditie voor de afstand tussen de solitonen (zie figuur 3).

Omdat de solitonen elk met hun eigen snelheidsverschilletje ten opzichte van de geluidssnelheid reizen, varieert de afstand tussen de spiegelkjes lineair met de afgelegde afstand. De totale intensiteit van het verstrooide licht varieert tussen nul en de maximale waarde over een afstand die correspondeert met de constructieve en destructieve interferentie van het verstrooide licht. Deze resonantieconditie correspondeert kwantitatief met de oscillaties die we zien in het experiment, voor een snelheidstoename van een soliton van ongeveer 10 meter per seconde.

Op een analoge manier kunnen we de trein van spiegelkjes ook beschrijven als een diffractietralie. Doordat de periode van deze tralie toeneemt met de reisafstand, bekijken we in figuur 3 eigenlijk niets anders dan de traliefunctie van de solitontrein! Het maximum na drie millimeter correspondeert met de eerste diffractieorde, waarbij alle onderlinge solitonafstanden resonant zijn met de verstrooiingsvector. Omdat de pulsen echter niet exact gelijke afstanden hebben is de traliefunctie niet periodiek, maar heeft de com-

Figuur 4

Boven: Schematische voorstelling van de resonante solitondetector in robijn.
Onder: Typische tijdsopgeloste luminescentie van het twee-niveausysteem, met als inzet de transversale profielen van de solitonbundel op twee reisafstanden z .



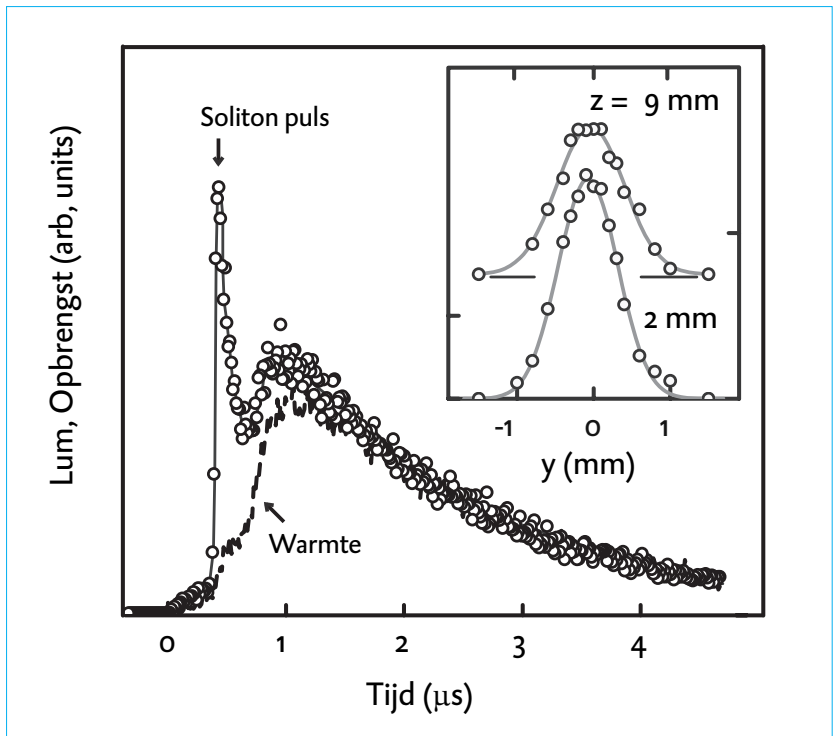
plexe structuur zoals waargenomen in het experiment.

RESONANTE TWEE-NIVEAUSYSTEMEN

Een tweede methode die we hebben ontwikkeld om ultrakorte akoestische solitonpulsen te detecteren maakt gebruik van resonante elektronische overgangen. Elektronische twee-niveausystemen die sterk wisselwerken met het akoestische veld kunnen worden gevonden in optisch gepompte chroomionen die ingebed zijn in een robijnkristal. De relevante niveaus, $\bar{E}(^2E)$ en $2\bar{A}(^2E)$ in het niveauschema van figuur 4, hebben een energiesplitsing corresponderend met een frequentie van 0,875 terahertz. Bij de wisselwerking met het akoestische veld wordt een energiequantum met deze energie overgedragen van de geluidsgolf naar de elektronen in het ion. Het ion gaat in feite meetrillen op de maat van de geluidsgolf en zendt vervolgens deze straling ook weer uit in de vorm van nieuwe drukgolven.

We zijn er in geslaagd om de interactie tussen de elektronenniveaus en de solitonen in kaart te brengen. Hierbij wordt gebruik gemaakt van het feit dat, naast geluidsemisatie, het aangeslagen chroomion ook een lichtquantum kan uitzenden na de wisselwerking met het akoestische veld. Deze luminescentie wordt gemeten als functie van het tijdstip na excitatie van het drukpakket en kan gebruikt worden als maat voor de excitatie van het twee-niveaumedium.

Een typische tijdsopgeloste luminescentiecurve is afgebeeld in figuur 4.



We zien hier twee bijdragen, een niet-directionele component van de warmte gegenereerd in de metaalfilm, en een directionele bijdrage van de solitonpulsen. De inzet van de figuur toont het transversale profiel van de solitonbijdrage en laat zien dat dit een gecolli-meerde bundel is. Met dit experiment hebben we direct aangetoond dat in het golfpakket terahertz-akoestische frequenties worden gegenereerd.

CONCLUSIE

In onze experimenten laten we zien dat nano-akoestische golven opbreken in extreem-korte drukpakketjes met solitoneigenschappen. Dit biedt nieuwe perspectieven voor onder meer het onderzoek naar ultrasnelle drukafhankelijke processen, het afbeelden van nanostructuren met akoestische pulsen en mogelijk zelfs het lokaal

vervormen van materialen (nano-explosies).

Het samenspel tussen solitonen en twee-niveausystemen kan verder gebruikt worden om geluidsgolven te versterken door middel van overdracht van energie vanuit het elektronische systeem naar het drukpakket. Hiervoor moeten de twee-niveausystemen geïnverteerd worden, wat mogelijk is met behulp van laserlicht. Een soliton-gebaseerde akoestische laser in het terahertzfrequentiegebied behoort tot de mogelijkheden.

REFERENTIES

- 1 H.-Y. Hao en H.J. Maris, *Phys. Rev. Lett.* **84** (2000), 5556.
- 2 H.-Y. Hao en H.J. Maris, *Phys. Rev. B* **64** (2001), 063402.
- 3 O.L. Muskens en J.I. Dijkhuis, *Phys. Rev. Lett.* **89** (2002), 285504.
- 4 O.L. Muskens, A.V. Akimov en J.I. Dijkhuis, *Phys. Rev. Lett.* **92** (2004), 035503.