

РОССИЙСКАЯ АКАДЕМИЯ НАУК

ФИЗИЧЕСКИЙ
ИНСТИТУТ
имени
П.Н.Лебедева



Ф И А Н

ПРЕПРИНТ

13

В.С.ГОРЕЛИК, И.А.РАХМАТУЛЛАЕВ
КОМБИНАЦИОННЫЕ
ОПТИЧЕСКИЕ ПРОЦЕССЫ
В УЛЬТРАДИСПЕРСНЫХ СРЕДАХ
ПРИ ИМПУЛЬСНО-ПЕРИОДИЧЕСКОМ
ЛАЗЕРНОМ ВОЗБУЖДЕНИИ

МОСКВА 2004

Аннотация

Приводятся результаты исследований спектров вторичного излучения (комбинационного рассеяния и двухфотонно-возбуждаемой люминесценции), возникающего в ультрадисперсных средах (РОРОР, РРО и стильбен) при импульсно-периодическом лазерном возбуждении. Предложена новая методика возбуждения комбинационных оптических процессов в ультрадисперсных средах, основанная на использовании металлических резонаторных кювет и кварцевых световодов для ввода возбуждающего лазерного излучения в рассеивающую среду и дополнительных световодов для вывода вторичного излучения из кюветы. Обнаружено возрастание относительной интенсивности комбинационного рассеяния в ультрадисперсной среде в сравнении с возбуждающей линией и фоном люминесценции при введении задержки (50 ns) в систему регистрации. При этом реализован режим несущественного нагревания вещества лазерным излучением, обеспечивающий возможность многократных измерений без деструкции образца.

1. Введение

В настоящее время интенсивно развивается новая область оптики, связанная с исследованием оптических процессов в микрорезонаторах, близких к идеальным сферам, дискам и цилиндрам с микронными и даже субмикронными размерами. Добротность таких резонаторов может быть очень велика. Объекты такого рода приобрели в последнее время большой интерес благодаря разработке методов их синтеза и широкому практическому использованию.

Если размеры оптических неоднородностей в материальной среде становятся сравнимыми с длиной волны оптического излучения, то такие среды называются ультрадисперсными. От монокристаллов ультрадисперсные среды отличаются тем, что значительная часть вещества в них находится вблизи поверхности. Как следствие, зонная и кристаллическая структура таких частиц искажена в существенной части их объема и отличается от соответствующих свойств массивного кристалла. Вследствие присутствия оптических неоднородностей микронного и субмикронного масштаба в ультрадисперсных средах следует ожидать существенного возрастания интенсивности рассеяния света. В связи с этим возникает задача исследования такого рода эффекта в зависимости от типов анализируемых объектов и характера их неоднородностей. Возрастание интенсивности комбинационного рассеяния представляет также большой практический интерес, так как

открывает новые возможности для проведения оперативного молекулярного анализа различного рода объектов: неорганических и органических материалов, биологических структур, гетерогенных систем и т.д. При этом задача решается на основе анализа спектров комбинационного рассеяния света (КР) и их нелинейных аналогов с использованием в качестве источников возбуждающего излучения современных лазеров.

Как было показано в работах [1,2], весьма эффективным для регистрации спектров как спонтанного КР, так и его нелинейных аналогов является использование импульсно-периодических лазеров на парах металлов, в частности лазера на парах меди.

В обычно применяемой методике регистрации спектров комбинационных оптических процессов в конденсированной среде лазерное излучение фокусируется внутри среды. При достаточно высокой интенсивности лазерного излучения это приводит к изменению исходных характеристик вещества: фотодеструкции, локальному разогреву среды, а также к фотоиндуцированным фазовым превращениям.

В данной работе предлагается новая методика возбуждения комбинационных оптических процессов в ультрадисперсных средах. Методика основана на использовании кварцевого световода для ввода возбуждающего лазерного излучения в рассеивающую среду, помещаемую в металлическую

резонаторную кювету, и дополнительных световодов для вывода вторичного излучения из этой кюветы.

2. Элементарные процессы неупругого рассеяния света при лазерном возбуждении

При введении монохроматического лазерного излучения в диэлектрическую среду возможна реализации различных комбинационных оптических процессов. Известны, в частности, следующие комбинационные оптические процессы: комбинационное рассеяние света ($\omega' = \omega_0 \pm \Omega$); гиперрэлеевское рассеяние света ($\omega' = 2\omega_0$); гиперкомбинационное рассеяние света ($\omega' = 2\omega_0 \pm \Omega$); двухфотонно-возбуждаемая люминесценция ($\omega' < 2\omega_0$). Здесь ω' и ω_0 – частоты вторичного и возбуждающего (первичного) излучений, соответственно, $\Omega = |\omega' - \omega_0|$ – круговая частота соответствующего колебания молекулы или кристалла.

Следует отметить, что эффективное сечение спонтанного КР для многих материалов чрезвычайно мало ($\sim 10^{-28}$ см²), что требует использования достаточно большой плотности мощности возбуждающего излучения для надежной регистрации спектров КР. Использование интенсивных источников света требуется также для анализа нелинейных аналогов спонтанного КР: гиперкомбинационного рассеяния (ГКР) [3,4] и двухфотонно-возбуждаемой люминесценции (ДВЛ) [5,6].

Одним из примеров ультрадисперсных сред является так называемая глобулярная структура, т.е. система, состоящие из сферических частиц. Ультрадисперсные глобулярные среды можно подразделять на следующие виды.

В первом случае (см. рис.1) монодисперсная глобулярная структура состоит из частиц, плотно упакованных в виде кубической кристаллической решетки с периодом d . Для второго типа (рис.2) глобулярная структура является монодисперсной и состоит из частиц, упорядоченным образом расположенных в пространстве, на определенном расстоянии D друг от друга.

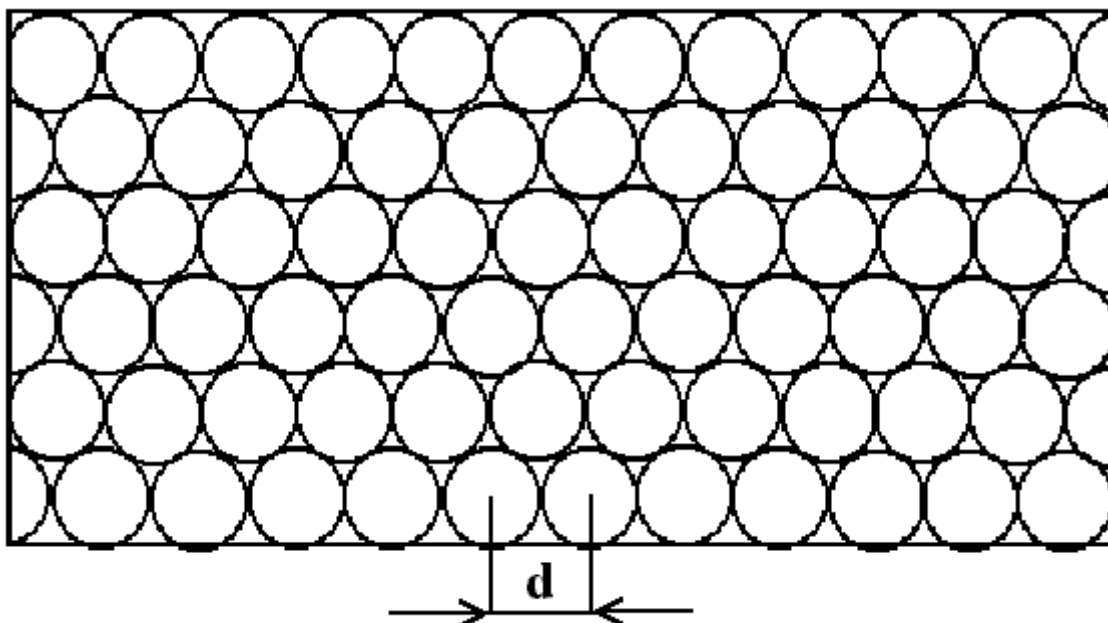


Рис.1. Монодисперсная глобулярная структура, частицы которой плотно упакованы в виде кубической кристаллической решетки с периодом d .

В этом случае имеет место: $D > d$. В частности, такая ситуация соответствует “замороженных” глобулярных частиц в какой-либо другой, однородной среде.

Рис.3 иллюстрирует третий случай, соответствующий монодисперсной глобулярной структуре, частицы которой расположены хаотичном образом в пространстве. Например, это могут быть взвеси твердых частиц в жидкой среде, пасты и т.д.

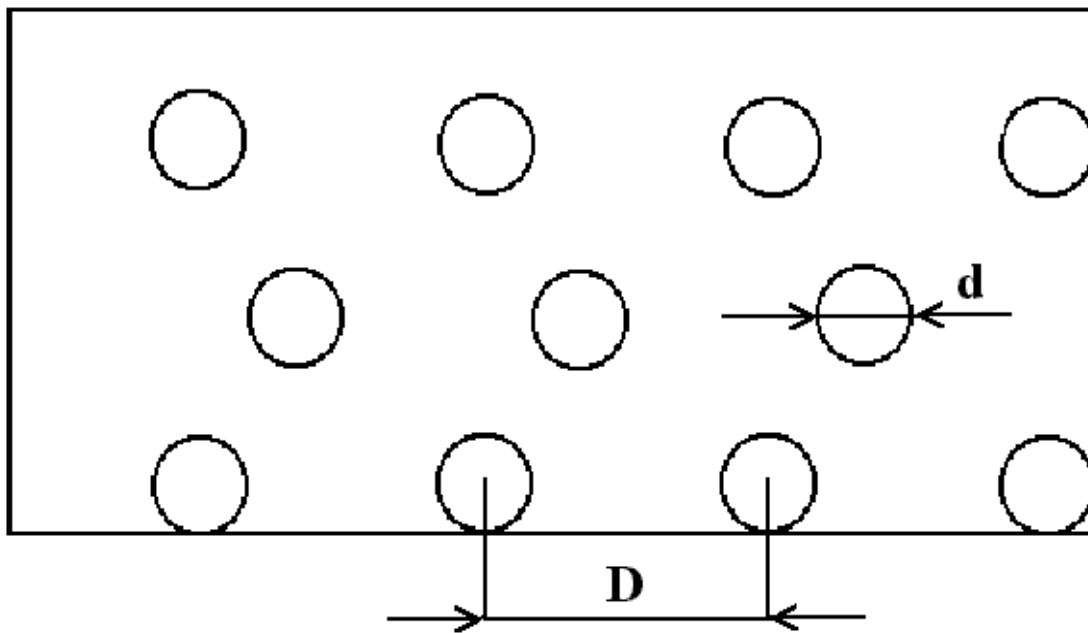


Рис.2. Монодисперсная глобулярная структура, частицы которой расположены упорядоченным образом на определенном расстоянии D друг от друга ($D > d$).

Для гетерогенной диэлектрической среды, состоящей из глобул, размер которых d больше длины волны λ возбуждающего излучения ($d > \lambda$), и показатель преломления больше показателя преломления окружающей среды (см. рис.2,3), оказывается возможным полное внутреннее отражение внутри глобулы. В этом случае интенсивность комбинационных оптических процессов может существенно возрасти за счет микрорезонаторного эффекта.

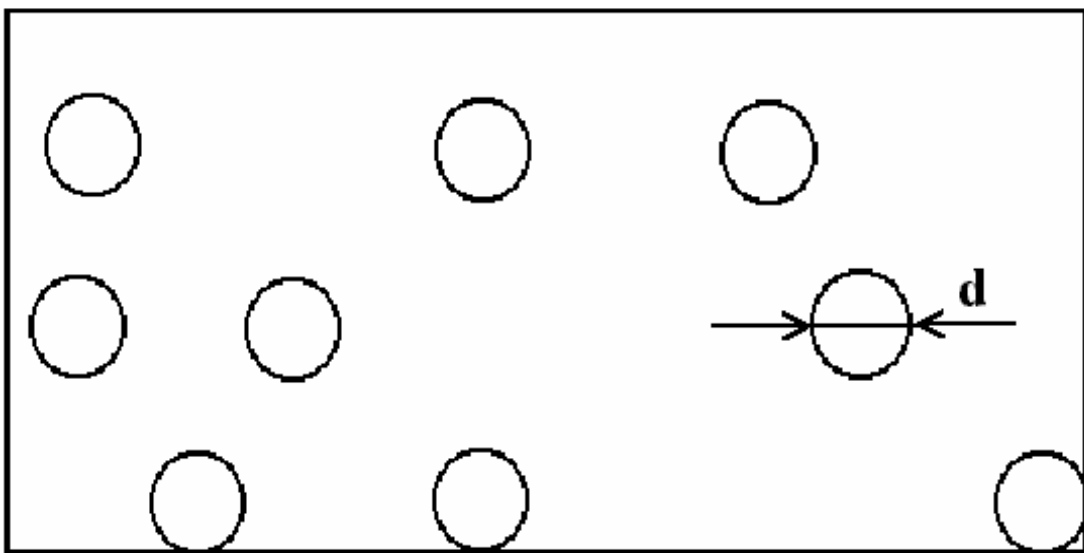


Рис.3. Монодисперсная глобулярная структура, частицы которой расположены хаотичном образом.

Если размер глобул (наночастиц) сравним с длиной волны возбуждающего излучения ($d \sim \lambda$), то интенсивность рэлеевского рассеяния должна сильно возрасти. При использовании в этом случае так называемых

резонаторных кювет, приведет увеличение интенсивности комбинационных оптических процессов вследствие многократного отражения от стенок кюветы.

Особый интерес представляет собой ситуация, когда $d < \lambda$. Если ультрадисперсная среда при этом является упорядоченной, то ее классифицируют как глобулярный фотонный кристалл. Одним из примеров глобулярного фотонного кристалла является опал, состоящий из сферических частиц кремнезема размером 200-400 нм. Особенности КР в этом случае будут теоретически проанализированы в данной работе.

3. Методика эксперимента

Принципиальная схема эксперимента по схеме “на отражение” приводится на рис.4. Принципиальная схема установки по схеме “на просвет” показана на рис.5. Установка включает в себя лазер на парах меди (1), генерирующий излучение в видимой области спектра с длинами волн $\lambda=510.6$ и 578.2 нм. Лазерная генерация осуществлялась в виде коротких импульсов (20 ns), следующих с частотой повторения 16 kHz. С помощью светофильтра выделялась лишь одна из линий генерации ($\lambda=510.6$ нм), средняя мощность которой составляла 0.5 W. Возбуждающее излучение лазера (1) с помощью световода (2) направлялось внутрь кюветы с образцом (3). Вторичное излучение в точке **В** входило в другой световод (2'), направляющий его ко входной щели монохроматора МСД-2 (6) с помощью линзы (4). Монохроматор

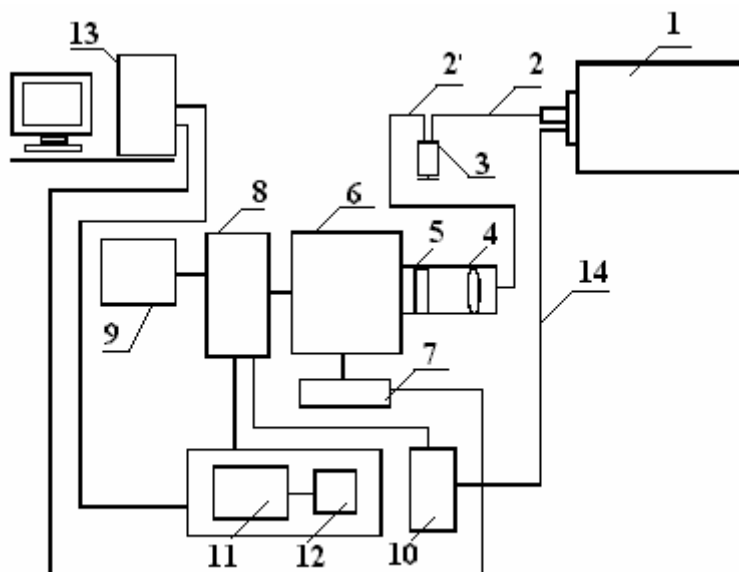


Рис.4. Блок-схема установки для исследования объемного вторичного излучения в конденсированных средах при импульсно-периодическом лазерном возбуждении (схема “на отражение”): 1-лазер, 2,2'-световоды, 3-кювета с анализируемым образцом, 4- линза, 5- фильтр, 6- монохроматор, 7- блок управления монохроматором, 8- фотоумножитель, 9- блок питания фотоумножителя, 10- строб-формирователь, 11- усилитель, 12- линия задержки, 13- компьютер, 14- оптическое волокно.

МСД-2 состоял из двух блоков: оптико-механического и блока управления. При этом спектральный диапазон монохроматора составлял 200-800 nm, обратная линейная дисперсия – 4.6 nm/mm. Перед входной щелью монохроматора устанавливались абсорбционные светофильтры (5): типа ПС-11 или ОС-11 для подавления возбуждающего излучения. У выходной щели

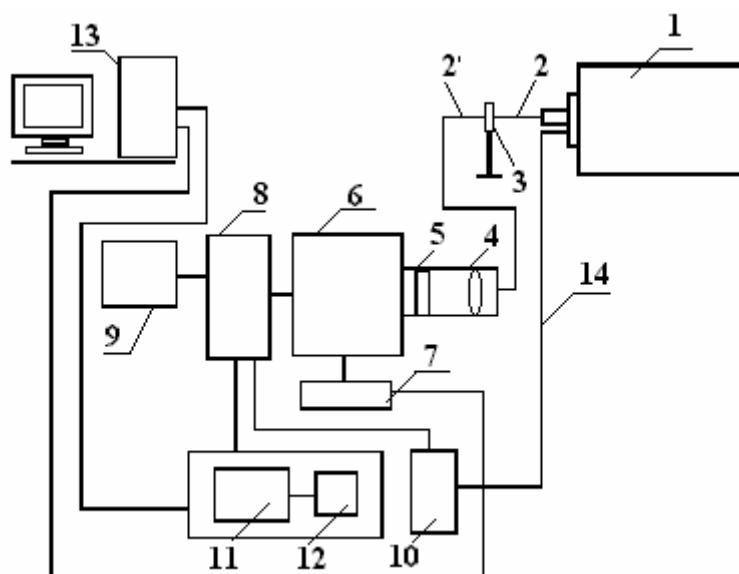


Рис.5. Блок-схема установки для исследования объемного вторичного излучения в конденсированных средах при импульсно-периодическом лазерном возбуждении (схема “на просвет”): 1-лазер, 2,2'-световоды, 3- кювета с анализируемым образцом, 4- линза, 5- фильтр, 6- монохроматор, 7- блок управления монохроматором, 8- фотоумножитель, 9- блок питания фотоумножителя, 10- строб-формирователь, 11- усилитель, 12- линия задержки, 13- компьютер, 14- оптическое волокно.

монохроматора находился фотоумножитель ФЭУ-106 (8). Блок питания фотоумножителя (9) обеспечивал стабилизированное напряжение $U=2$ kV, необходимое для усиления электрических импульсов, возникающих в фотоумножителе в результате попадания на фотокатод световых квантов,

обусловленных комбинационным рассеянием и люминесценцией в исследуемом образце. После фотоумножителя электронный сигнал усиливался с помощью усилителя (11). Для управления усилителем использовалась система стробирования, состоящая из строб-формирователя (10) и линии задержки (12). Опорный импульс светового излучения с помощью оптического волокна (14) подводился к строб-формирователю (10), в котором формировался калибровочный импульс длительностью 20 ns. Линия задержки (12) позволяла подавать строб-импульс для “открывания” усилителя в диапазоне 0-100 ns по отношению к импульсу исходного лазерного излучения. Блок управления (7) осуществлял дискретное сканирование по спектру с заданным шагом сканирования и временем накопления в каждой точке. Компьютер (13) накапливал цифровую информацию о спектре вторичного излучения и управлял шаговым двигателем прибора МСД-2, осуществляющим дискретный поворот дифракционной решетки этого прибора.

Система регистрации со стробированием позволяла с высокой чувствительностью (до 10^{-15} W) регистрировать сигналы вторичного излучения. При этом использование линии задержки с временными “воротами” давало возможность анализировать спектры “быстрых” и “замедленных” процессов в диапазоне 0-100 ns.

На рис. 6 приведен внешний вид используемого в данной работе лазера на парах меди в рабочем состоянии. Слева видна зеленая линия генерации

($\lambda=510.6 \text{ nm}$) лазера; справа желтая линия генерации ($\lambda=578.2 \text{ nm}$). Этот лазер массой 8 kg имеет следующие габариты: длина 450 mm, высота 350 mm и ширина 250 mm.

На рис. 7 иллюстрирует внешний вид лазера с присоединенным к нему световодом в рабочем состоянии.

Юстировочный узел со световодом более детально иллюстрируется рис.

8. Нами был использован кварцевым световод с диаметром $d=100 \text{ }\mu\text{m}$ и длиной 3 m.



Рис. 6. Внешний вид лазера на парах меди в рабочем состоянии

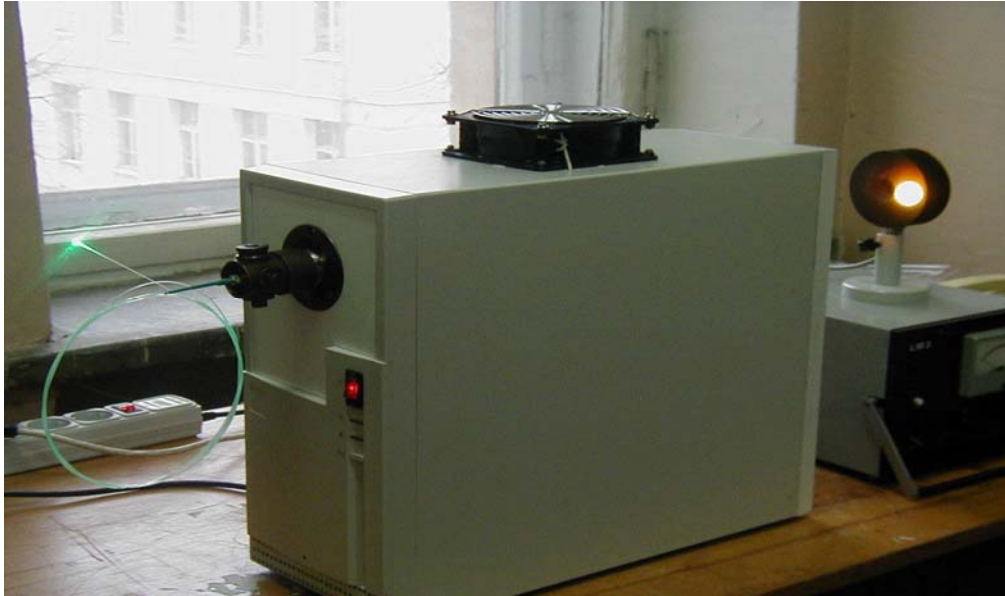


Рис. 7. Внешний вид лазера на парах меди со световодом в рабочем состоянии

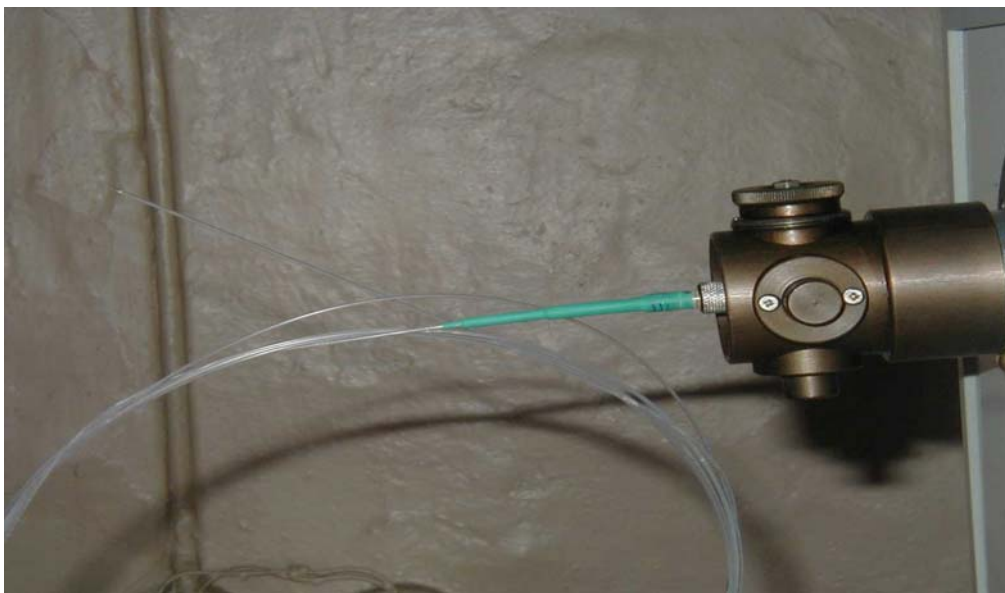


Рис.8. Юстировочный узел со световодом

На рис. 9. приведена схема юстировочного узла. Излучение от лазера на парах меди фокусировалось с помощью линзы (4) во внутрь кварцевого световода (9).

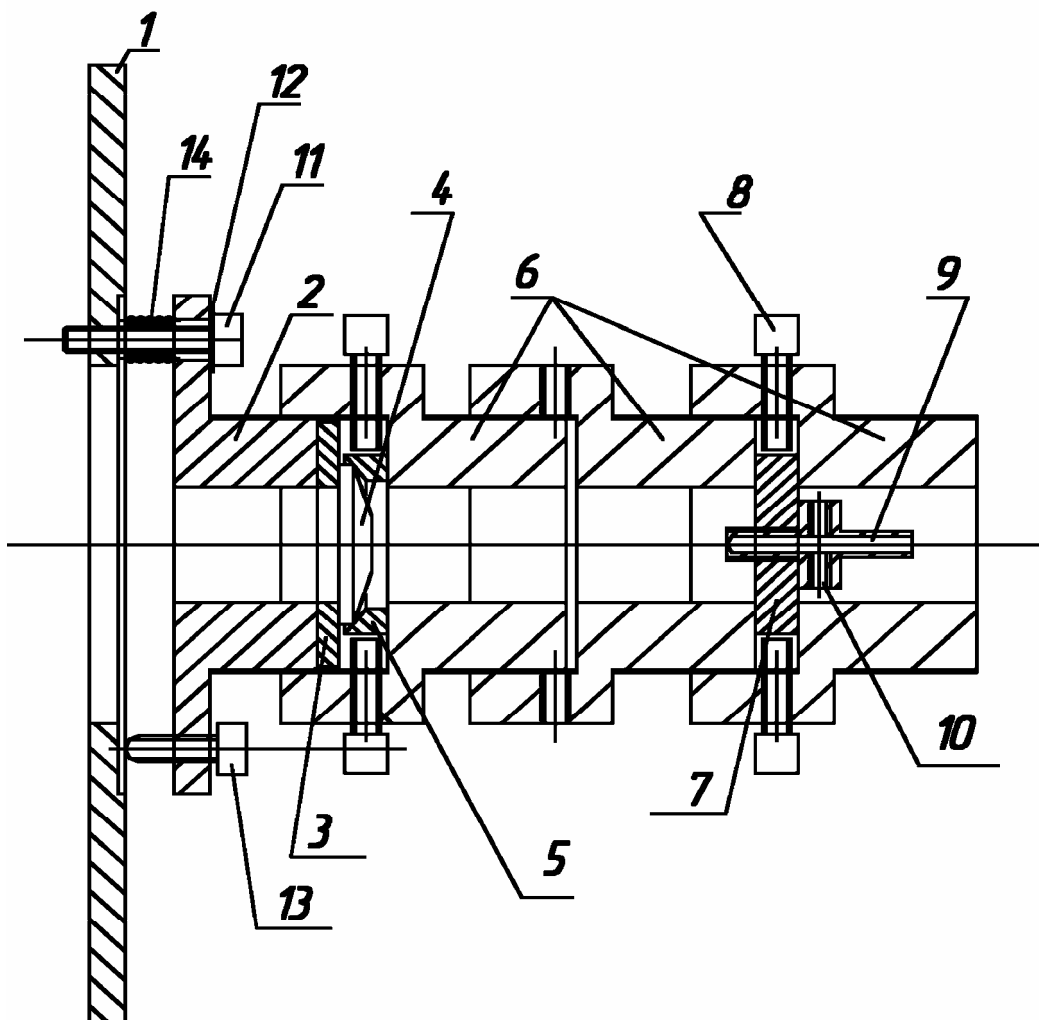


Рис.9. Схема юстировочного узла: 1- торец, 2- стакан, 3- шайба под линзу, 4- линза, 5- чаша под линзу, 6- зажимы, 7- шайба под световод, 8- винт, 9- световод, 10- винт без головки, 11- регулировочный болт, 12- шайба, 13- упорный болт, 14- пружина.

При этом одна сторона линзы была плоская и использовалось как зеркало резонатора. В данной конструкции лазера в юстировочном узле использовалась в качестве “зеркало-линза” светофильты типа ПС-17 (или ОС-11) для выделения одной линии генерации лазера на парах меди. Таким образом, на одном выходе лазерной трубки выходил “зеленой луч”, а в другом “желтый луч”.

Рис. 10 иллюстрирует кювету, используемую в схеме “на просвет”. При этом возбуждающее излучение вводилось в конусный резонатор, вырезанный в металлическом цилиндре из алюминия. Кварцевый световод (2), “несущий” возбуждающее излучение, заканчивался вблизи вершины конусного резонатора (в точке А). Вещество в виде ультрадисперсной поликристаллической среды помещалось в конусный резонатор. При этом близость металлической поверхности с высокой теплопроводностью металла (алюминий) обеспечивала эффективный отвод тепла от области наибольшей интенсивности возбуждающего излучения.

Рис. 11 иллюстрирует принципиальное устройство кюветы в схеме “на отражение”. Излучение от лазера подводилось через световод 2, расположенный по оси кюветы; вторичное излучение выводилось из кюветы с помощью световодов 2', сдвинутых относительно оси кюветы.

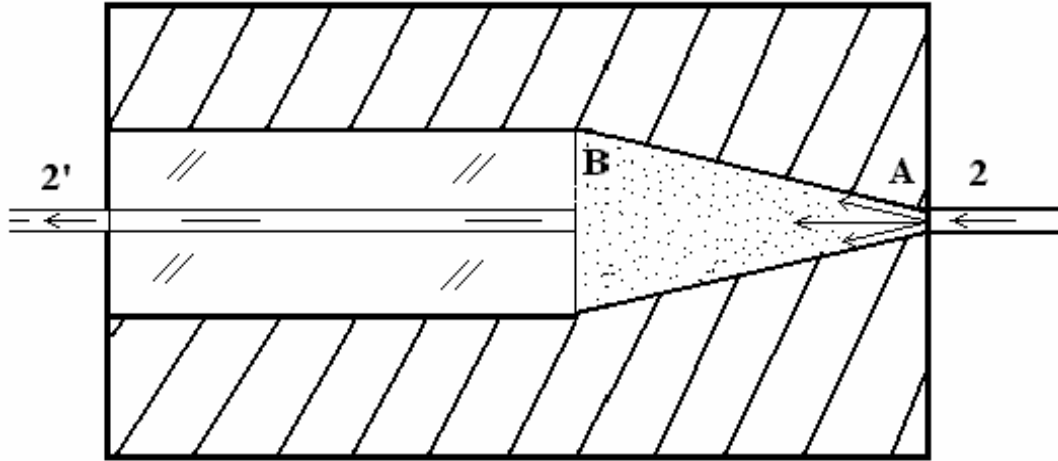


Рис. 10. Принципиальная схема кюветы с конусным резонатором “на просвет”; 2- световод, вводящий лазерное излучение в кювету; 2'- световод, выводящий вторичное излучение.

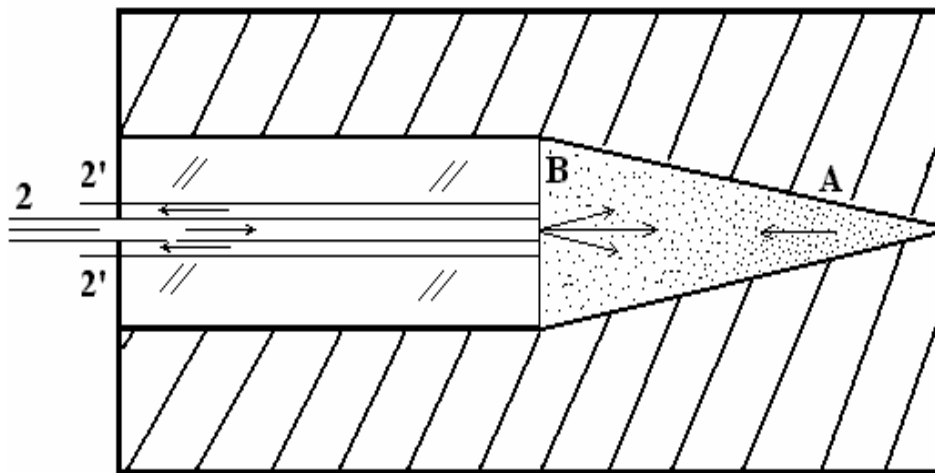


Рис. 11. Принципиальная схема кюветы с конусным резонатором “на отражение”; 2-световод, вводящий лазерное излучение в кювету; 2'- световоды, выводящие вторичное излучение.

Общий вид спектрального блока с компьютером для исследования объемного вторичного излучения в конденсированных средах при импульсно-периодическом лазерном возбуждении показан на рис.12. Рис.13 иллюстрирует внешний вид спектрального блока с малогабаритным одинарным монохроматором МСД-2. В верхней части блока находятся световодные металлические кюветы.



Рис.12. Общий вид спектрального блока с компьютером

В качестве ультрадисперсных сред использовались размельченные порошки органических веществ: 1) $C_{24}H_{16}O_2$ (РОРОР); 2) $(C_6H_5CH)_2$ (стильбен); 3) $C_{15}H_{11}NO$ (РРО).



Рис. 13. Внешний вид спектрального блока с малогабаритным одинарным монохроматором типа МСД-2. В верхней части блока находятся световодные металлические кюветы.

Экспериментальные исследования проводились при комнатной температуре.

4. Результаты экспериментальных исследований и их обсуждение

Полученные экспериментальные результаты по регистрации спектров с применением стробирования и схемы “на отражение” иллюстрируются рис.14. На этом рисунке приведены спектры вторичного излучения в ультрадисперсном порошке РОРОР, полученные при возбуждении зеленой линии генерации медного лазера ($\lambda=510.6$ nm), зарегистрированные без

стробирования (кривая 1) и со стробированием при нулевой задержке (кривая 2). Как видно из этого рисунка, в наблюдаемом спектре отчетливо проявляются линии КР РОРОР, расположенные на широком фоне вторичного излучения. Из сравнения представленных кривых видно, что применение стробирования подавляет паразитную линию разряда (отмечена звездочкой).

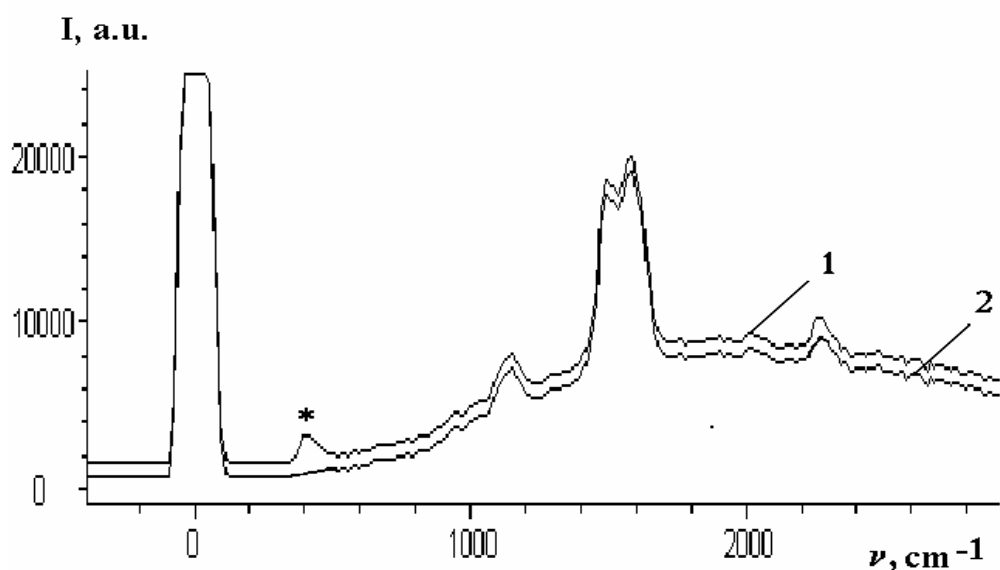


Рис.14. Спектры вторичного излучения в РОРОР при возбуждении импульсно-периодическим медным лазером ($\lambda=510.6$ nm), полученные по схеме “на отражение”: 1- регистрация без стробирования, 2- со стробированием при времени задержки, равном нулю. Перед щелью спектрометра устанавливался фильтр ОС-11, ослабляющий возбуждающее излучение.

Это обусловлено тем, что при стробировании выделяется узкий временной интервал (около 30 ns), а паразитные линии разряда характеризуются с большими временами послесвечения. Интенсивность линий КР, практически не уменьшается при переходе от кривой 1 к кривой 2, т.к. время протекания процесса КР в веществе меньше 1 нс.

Рис.15 иллюстрирует вид спектров вторичного излучения этого же соединения (РОРОР), полученных с использованием схемы “на просвет” при различных временах задержки: 0, 25 и 50 ns. При этом никаких фильтров перед входной щелью монохроматора не устанавливалось, т.е. наблюдаемое спектральное распределение близко к истинному виду спектра вторичного излучения. За счет использования схемы “на просвет” удалось подавить возбуждающее излучение вследствие его многократного рассеяния в ультрадисперсной среде. При этом на одинарном монохроматоре удается регистрировать спектр непосредством близости к возбуждающей линии ($200\div 300\text{ cm}^{-1}$). При увеличении задержки интенсивность непрерывного фона резко падал; в то же время спектр КР наблюдался при достаточно больших задержках (до 50 ns).

Некоторые сравнительные характеристики полученных спектров КР и ДВЛ приведены в таблице 1.

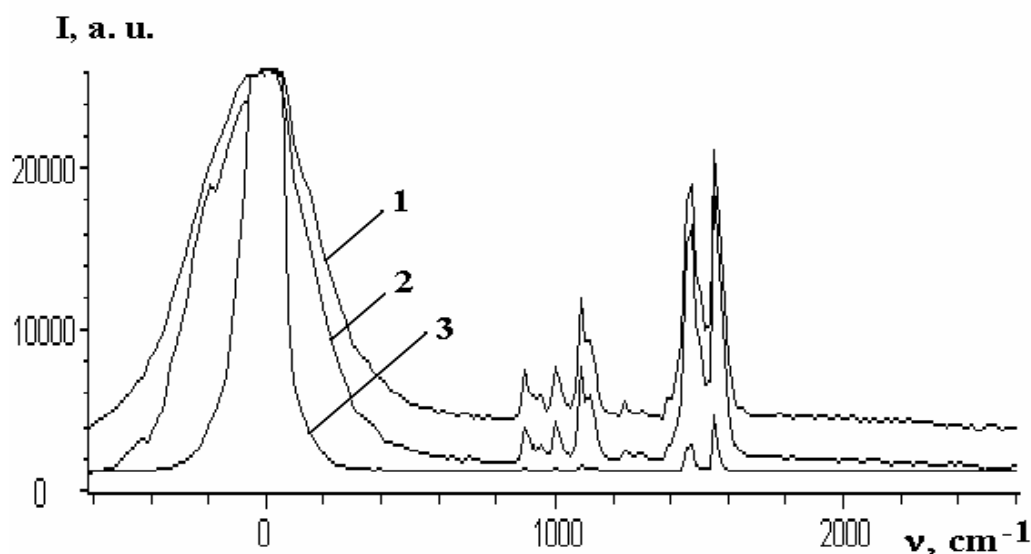


Рис.15. Спектры КР ROPOR, полученные при различных временах задержки (схема “на просвет”). Кривая 1 соответствует задержке 0 ns; 2- 25 ns; 3- 50 ns. Напряжение на ФЭУ 1600 V. Перед щелью фильтры не ставились.

Рис. 16 иллюстрирует спектр вторичного излучения ROPOR, полученный без использования цветных фильтров, но с применением нейтральных фильтров по схеме «на просвет». При этом возбуждающая линия лазера (зеленая линия) была ослаблена нейтральными фильтрами типа НС-9 и ТС-6 для сравнения относительной интенсивности линии лазера и линии КР ROPOR. В результате проведенных измерений было установлено, что интенсивность наиболее

интенсивной линии КР РОРОР в 40 раз слабее интенсивности возбуждающей линии при использованной геометрии рассеяния.

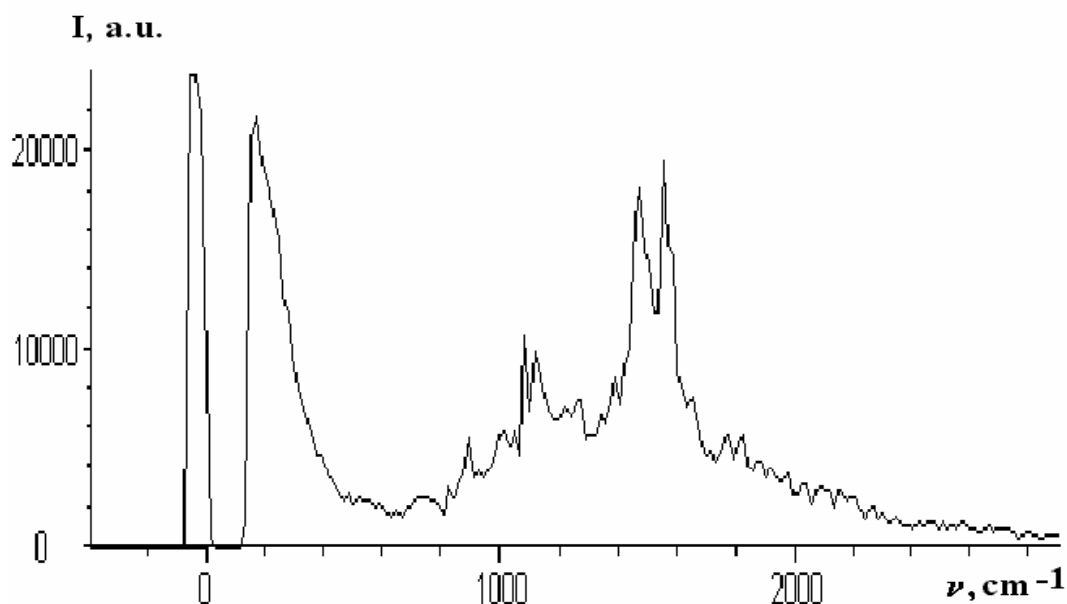


Рис. 16. Спектр КР РОРОР, полученный без фильтра (схема “на просвет”). Возбуждающая ($\lambda=510.6$ nm) ослаблена нейтральными фильтрами (НС-9 и ТС-6) в 40 раз.

На рис. 17 приведены спектры вторичного излучения РОРОР, полученные в кюветах различных конструкций при одинаковом режиме регистрации. Кривая 1 соответствует цилиндрической кювете со сравнительно большим объемом (диаметр кюветы-18 mm), а кривая 2 – так называемой резонаторной кювете, в которой диаметр капилляра составлял 3 mm. При этом перед щелью монохроматора был установлен фильтр ОС-11,

ослабляющий возбуждающее излучение. Как видно из этого рисунка, сигнал КР в резонаторной кювете почти 3 раза больше, чем цилиндрической кювете с большим диаметром.

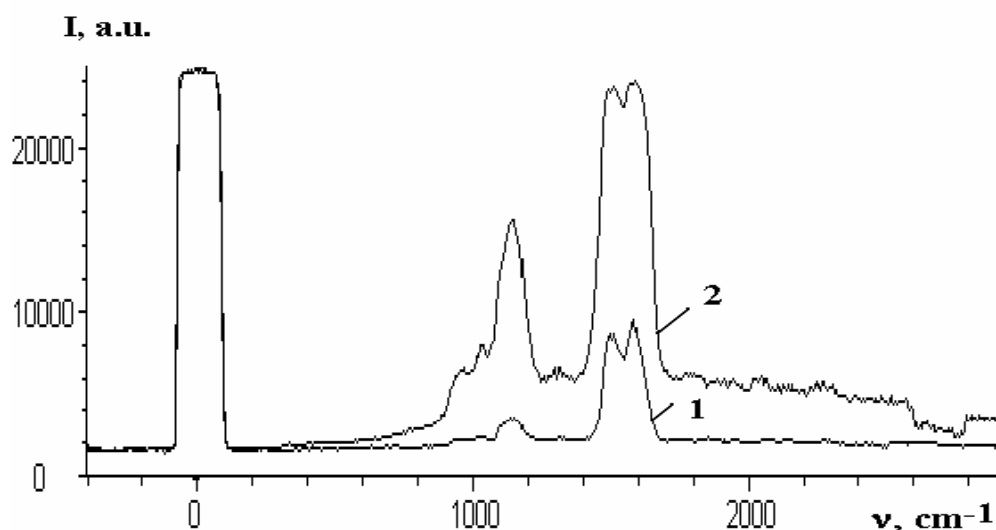
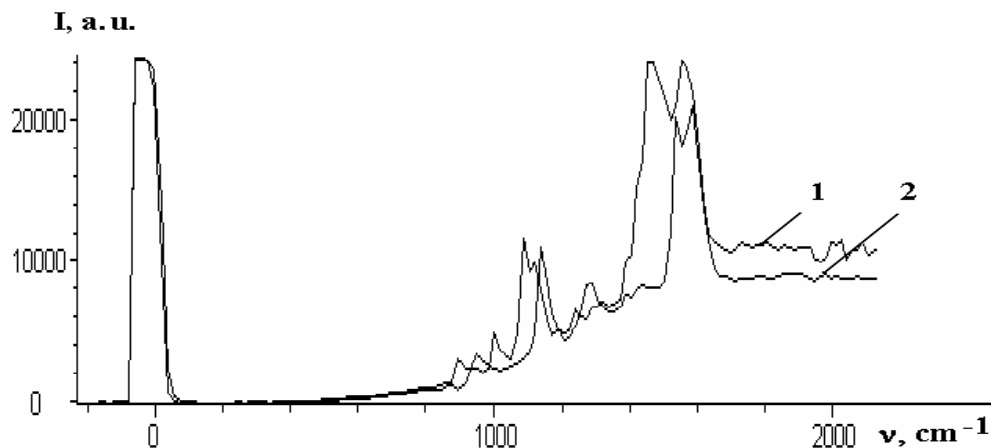


Рис.17. Спектры КР РОРОР в цилиндрической кювете (1) и в резонаторной кювете (2), полученные по схеме “на просвет”. Перед щелью монохроматора был установлен фильтр ОС-11, ослабляющий возбуждающую линию в 30 раз.

Рис. 18 иллюстрирует сравнение спектров КР РОРОР (кривая 1) и КР стильбена (кривая 2), полученных по схеме “на отражение”. При этом перед входной щелью находился фильтр ОС-11. Как видно из этого рисунка интенсивность спектра КР стильбена и РОРОР сравнимы по величине.



**Рис. 18. Спектры КР PPOP (1) и стильбена (2) по схеме “на отражение”.
Напряжение на ФЭУ 1600 V. Перед щелью монохроматора был
установлен фильтр ОС-11.**

На рис.19 приводятся полученные спектры ДВЛ PPOP (1), PPO (2) и стильбена (3), зарегистрированные по схеме “на отражение”. При этом перед входной щелью спектрометра устанавливался светофильтр ПС-11, подавляющий излучение с длиной волны 510.6 nm и пропускающий излучение в ближней ультрафиолетовой и синей областях спектра. Как видно из этого рисунка, представленный спектр ДВЛ PPOP имеет вид достаточно узкой полосы, расположенной в видимой области (430-500 nm) с ($\lambda_{\max}=460$ nm). Спектр ДВЛ PPO был расположен в более коротковолновом диапазоне (380-480 nm) и характеризовался максимумом ($\lambda_{\max}=425$ nm). Зарегистрированный

спектр ДВЛ стильбена состоял из двух характерных пиков ($\lambda_{\max}=385$ и 415 nm) и был расположен в области $370-480$ nm.

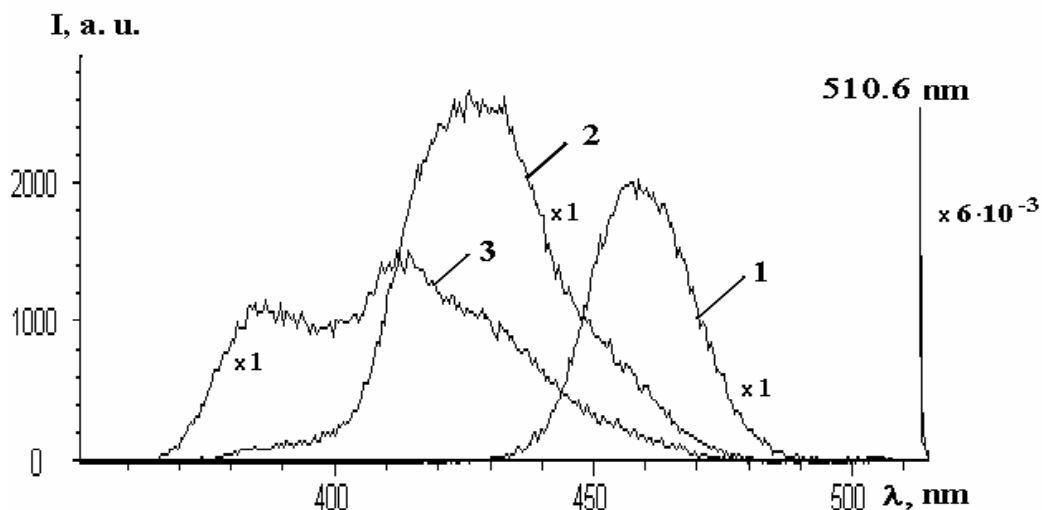


Рис. 19. Спектры ДВЛ РОРОР (1), РРО (2) и стильбена (3) в резонаторной кювете (схема “на отражение”). Напряжение на ФЭУ 1600 V. Перед щелью монохроматора был установлен фильтр ПС-11, ослабляющий возбуждающую в 167 раз. Спектры ДВЛ получены со стробированием (время задержки равно нулю).

На рис.20 представлен спектр вторичного излучения в РОРОР при возбуждении зеленой линией лазера на парах меди, полученный без светофильтров по схеме “на просвет”. При этом была использована кювета диаметром капилляра 2 mm (см. рис.10). С спектр был записан в диапазоне $240-600$ nm. Как видно из этого рисунка, в спектре вторичного излучения

РОРОР присутствуют полосы ДВЛ и КР. При этом полоса ДВЛ находится в диапазоне 400-600 nm. Интенсивность линии КР РОРОР в этих условиях оказались всего в 3 раза слабее интенсивности возбуждающей линии.

Таблица 1. Сравнительные характеристики спектров КР и ДВЛ для некоторых ароматических соединений; K_S -эффективный коэффициент преобразования первичного излучения (I_0) в КР (I_S): $K_S = I_S / I_0$. K_L -эффективный коэффициент преобразования первичного излучения (I_0) в ДВЛ (I_L): $K_L = I_L / I_0$; I_0, I_S, I_L -интенсивности в максимуме.

Вещество	ν , см ⁻¹	K_S	λ , nm	K_L	Структурная формула
РОРОР	1550	0.038	460	0.009	
РРО	1553	0.031	425	0.016	
Стильбен	1593	0.028	415	0.008	

Рис.21 иллюстрирует вид спектра вторичного излучения в РОРОР при возбуждения двумя линиями генерации лазера на парах меди, полученного без светофильтра по схеме “на просвет”. Этот спектр существенно отличается

от спектра вторичного излучения ультрадисперсного порошка РОРОР, показанного на рис.20: в коротковолновой области появляются новая полоса и линии КР обнаруживаются вблизи обеих возбуждающих линий. Кроме того, достаточно отчетливо проявляются линии гиперрэлеевского рассеяния света (ГРР) и ГКР.

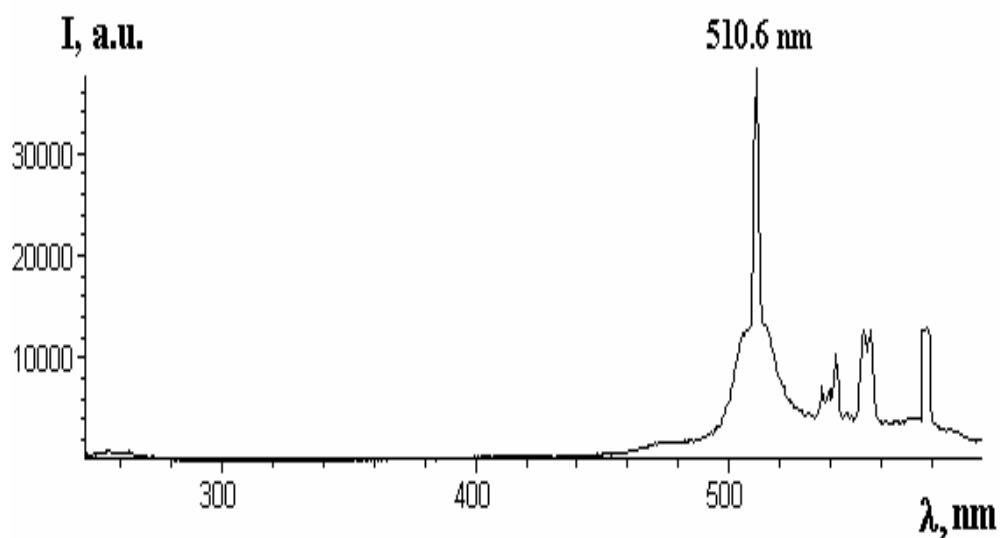


Рис.20. Спектр вторичного излучения в РОРОР при возбуждении зеленой линией лазера на парах меди, полученный без фильтра (схема “на просвет”).

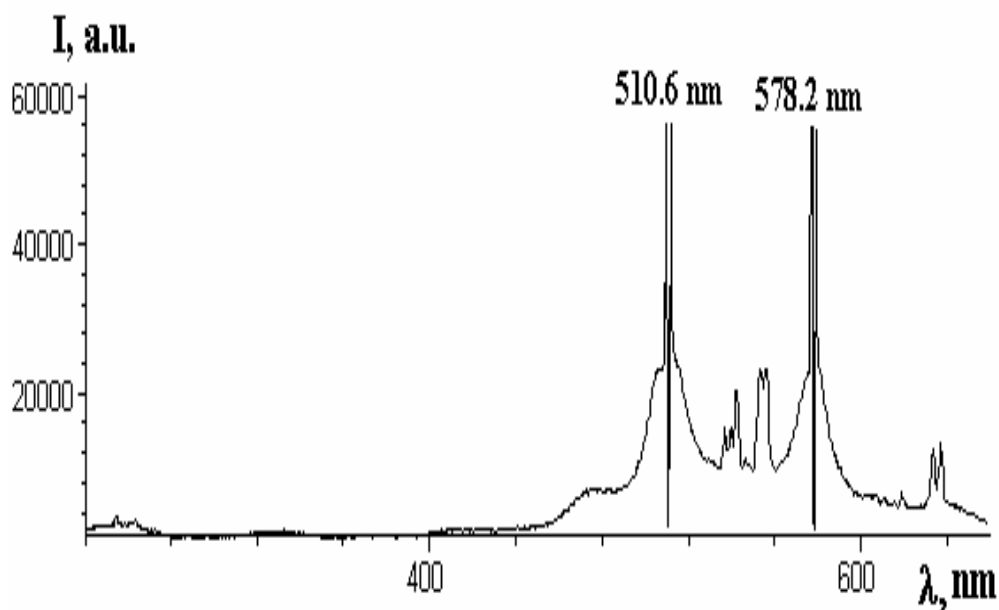


Рис.21. Спектр вторичного излучения в РОРОР при возбуждении двумя линиями генерации лазера на парах меди, полученный без фильтра (схема “на просвет”).

Коротковолновая область спектра более крупным планом представлена на рис.22. Детальный вид спектра КР, возбуждаемой зеленой (510.6 nm) линией лазера для РОРОР приводятся на рис.23. При этом удается регистрировать спектр вторичного излучения “вблизи возбуждающей” (область низких частот ($\sim 200 \text{ cm}^{-1}$)). Рис. 24 иллюстрирует детальный вид спектров КР ультрадисперсных порошков РОРОР, возбуждаемые двумя линиями лазера на парах меди (показаны стрелками).

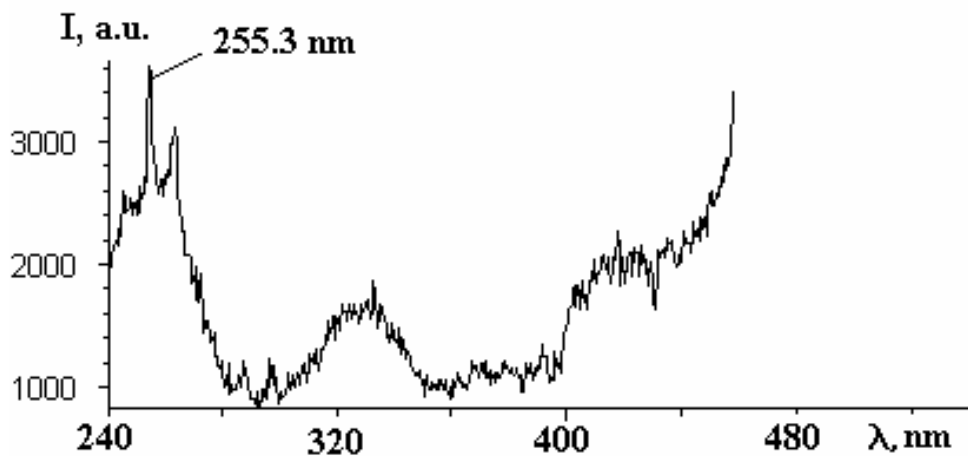


Рис.22. Спектр вторичного излучения в РОРОР при возбуждении двумя линиями генерации лазера на парах меди, полученный без фильтра (схема “на просвет”).

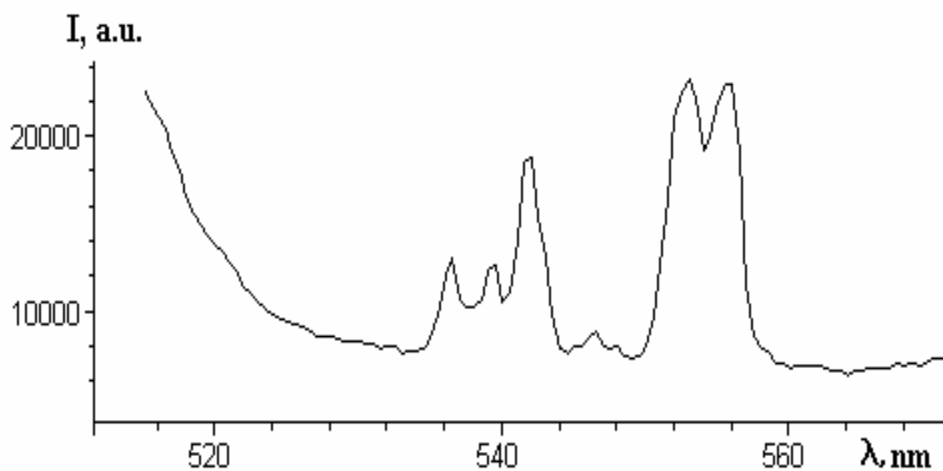


Рис.23. Спектр КР в РОРОР при возбуждении зеленой генерации лазера на парах меди, полученный без фильтра (схема “на просвет”).

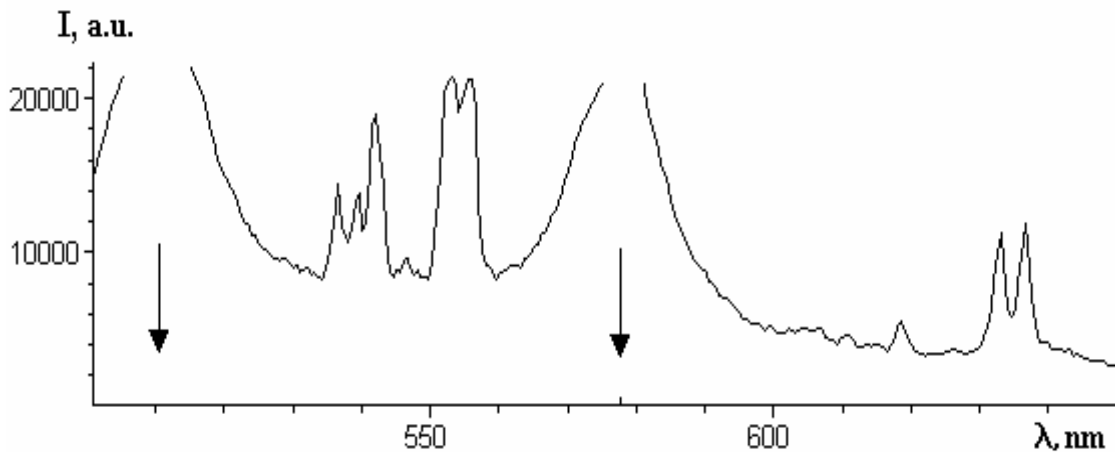


Рис.24. Спектр КР в РОРОР от двух линий лазера на парах меди, полученный без фильтра (схема “на просвет”).

Рассмотрим механизм возрастания интенсивности неупругого рассеяния света в том случае, когда ультрадисперсная среда является упорядоченной и имеет место: $d < \lambda$. С учетом упорядоченности среды будем моделировать ее одномерной двухатомной кристаллической цепочкой. При этом в данном случае роль атомов цепочки выполняют электроны отклоняющиеся от положений равновесия и расположенные в центре шаров кристалла и на границе между ними (рис. 25). Уравнения движения с учетом ближайших соседей могут быть записаны в виде:

$$m\ddot{u}(l) = -\gamma[u(l) - v(l-1)] - \gamma[u(l) - v(l)] \quad (1a)$$

$$m\ddot{v}(l) = -\gamma[v(l) - u(l)] - \gamma[v(l) - u(l+1)] \quad (1b)$$

Здесь u и v - соответствующие отклонения от положений равновесия, а γ - коэффициент упругости. Постановка в (1) решения в виде плоской монохроматической волны ($u(l) = ue^{i(ka-lt)}$ и $v(l) = ve^{i(ka-lt)}$) приводит к следующим уравнениям для двух ветвей закона дисперсии, хорошо известному в динамике кристаллических цепочек (рис.26).

$$\omega_-^2 = \frac{2\gamma}{m} - \frac{2\gamma}{m} \cos \frac{ka}{2} \quad (2a)$$

$$\omega_+^2 = \frac{2\gamma}{m} + \frac{2\gamma}{m} \cos \frac{ka}{2} \quad (2b)$$

В рассматриваемой модели не возникает щели между ветвями на границе зоны Бриллюэна $\left(k = \frac{\pi}{a}\right)$. Такая щель присутствует лишь при условии $m_1 \neq m_2$.

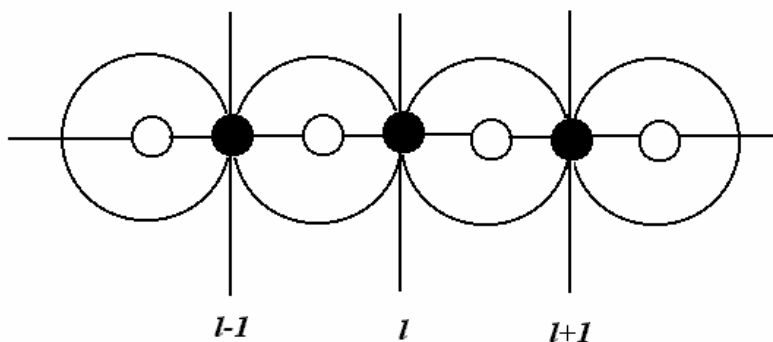


Рис.25. Схематический вид одномерного кристалла.

Для значения ω_1 согласно (2) получаем

$$\omega_1 = \sqrt{\frac{2\gamma}{m}} \quad (3)$$

Максимум отражения при нормальном падении на поверхность кристалла, таким образом, должен соответствовать длине волны λ_1

$$\lambda_1 = \frac{2\pi c_0}{\omega_1} = \frac{2\pi c_0}{\sqrt{\frac{2\gamma}{m}}} \quad (4)$$

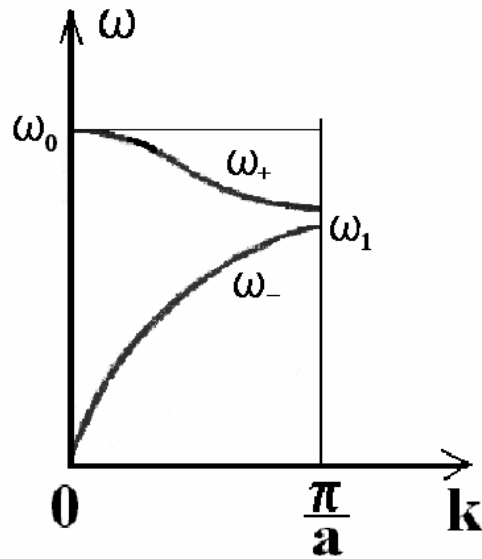


Рис. 26. Закон дисперсии линейной двухатомной цепочки

Вблизи центра зоны Бриллюэна закон дисперсии с учетом малости величины волнового вектора k представим в виде:

$$\omega_-^2 = 4 \frac{s^2}{a^2} \sin^2 \frac{ka}{2} \cong s^2 k^2 \quad (5a)$$

$$\omega_+^2 = \omega_0^2 - 4 \frac{s^2}{a^2} \sin^2 \frac{ka}{2} \cong \omega_0^2 - s^2 k^2 \quad (5b)$$

Здесь $s^2 = a^2 \frac{\gamma}{2m}$ и $\omega^2 = 4 \frac{\gamma}{m} = 8 \frac{s^2}{a^2}$.

Из (5а) для нижней ветви (при малых k) получаем:

$$\omega = 2 \frac{s}{a} \sin \frac{ka}{2} \quad (6)$$

Отсюда находим групповую скорость v :

$$v = \frac{d\omega}{dk} = s \cos \frac{ka}{2} \quad (7)$$

Здесь I_0, I_l - интенсивности возбуждающего излучения и излучения в веществе, соответственно. Из формулы (7) следует, что групповая скорость распространения световой волны в ультрадисперсной среде может существенно уменьшиться, и при $k \rightarrow \frac{\pi}{a}$ вообще устремиться к нулю. При заданном пути распространения света в веществе вероятность процессов вторичного излучения (КР и ДВЛ) должен быть пропорционально времени присутствия возбуждающего излучения в веществе, т.е. для интенсивности I должно иметь место: $I \sim \frac{1}{v}$, где v - скорость распространения.

Таким образом, получаем, что в данном случае также должен иметь место аномальное возрастание интенсивности вторичного излучения, но только при условии близости частоты возбуждающего излучения к условию Брэгга, когда групповая скорость волны существенно замедляется. В частности, для размера глобул $d=200$ nm и показателя преломления $n=1.5$ получаем, что λ_{\max} , соответствует сильному замедлению света в веществе,

близка линии 500 nm. Использование в качестве возбуждающей линии 510.6 nm лазера на парах меди обеспечивает выполнение условия для комбинационной опалесценции.

Главный результат работы состоит в том, что в реализованных условиях регистрации спектров интенсивность КР оказалось сравнимой (3÷40 раз слабее) возбуждающей линии. Такой режим работы можно классифицировать как эффект комбинационной опалесценции, т.е. существенного возрастание интенсивности КР по отношению к возбуждающей по сравнению с обычными условиями для прозрачных(однородных) веществ. Таким образом, показано, что в исследованных ультрадисперсных средах может быть реализован режим комбинационной опалесценции, наиболее отчетливо проявляющийся в резонаторных световодных кюветах.

Заключение

Таким образом, в данной работе установлено, что в световодных резонаторных кюветах может быть реализован режим комбинационной опалесценции, состоящий в аномальном возрастании интенсивности комбинационного рассеяния света и двухфотонно-возбуждаемой люминесценции.

Показано, что КР света в ультрадисперсных средах сохраняется при введении задержек (50 ns) в систему регистрации- эффект “комбинационного

эха". Эффект сохранения КР при задержке может быть объяснена многократным рассеянием света в ультрадисперсных средах в резонаторных кюветах. При этом был реализован режим несущественного нагревания вещества лазерным излучением, обеспечивающий возможность многократных измерений без деструкции образца. Разработанная методика позволяла регистрировать на одинарном монохроматоре сигналы объемного вторичного излучения ультрадисперсных сред с высоким контрастом по отношению к первичному (возбуждающему) излучению. Это открывает возможности для проведения анализов спектров неупругого рассеяния в практически важных ультрадисперсных средах: биологических объектах, фармацевтических препаратах, гелях, пастах и гетерогенных структурах.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- [1] Агальцов А.М., Горелик В.С., Рахматуллаев И.А. Спектральные, энергетические и временные характеристики двухфотонно-возбуждаемой флуоресценции в кристаллическом ППО// Оптика и спектроскопия. 1995. Т.79. № 6. С. 959-962.
- [2] Агальцов А.М., Горелик В.С., Мельник Н.Н. Применение лазера на парах меди для исследования комбинационного рассеяния света. В сб. “Комбинационное рассеяние – 70 лет исследований”, Москва, Физический институт им. П.Н. Лебедева РАН. Редактор В.С. Горелик, 1998. С. 440-445.
- [3] Агальцов А.М., Горелик В.С., Сущинский М.М. // Оптика и спект. 1985. Т.58. С. 386-389.
- [4] Babenko V.A., Gorelik V.S., Sychev A.A. // J. of Russ. Las. Res. 1999. V. 20. P. 152-171.
- [5] Бредихин В.И., Галанин М.Д., Генкин В.Н. // Усп. Физ. наук. 1973. Т.110. Вып. 1. С. 3-43.
- [6] Физика соединений $A^{IV}B^{VI}$ / Под ред. Георгобиани А.Н. и Шейнкмана М.К. М.: Наука, 1986. 320 с.