

Федеральное государственное бюджетное учреждение науки
Физический институт им. П.Н. Лебедева Российской академии наук.

На правах рукописи
УДК 535.36

Чернега Николай Владимирович

**ВЫНУЖДЕННОЕ РАССЕЯНИЕ СВЕТА В НАНОРАЗМЕРНЫХ
СИСТЕМАХ**

Специальность 01.04.05 – Оптика

Диссертация на соискание учёной степени
доктора физико-математических наук

Москва - 2014 год

СОДЕРЖАНИЕ

Содержание.....	2
Введение.....	4
Глава 1. Наноразмерные системы в оптике	
1.1 Особенности оптических характеристик фотонных кристаллов.....	28
1.2 Технология производства фотонных кристаллов	40
1.3 Оптические свойства синтетических опаловых матриц.....	56
Глава 2. Вынужденное комбинационное рассеяние света в нанокompозитах на основе синтетических опаловых матриц	
2.1 Введение	73
2.2 Вынужденное комбинационное рассеяние света в синтетических опаловых матрицах, инфильтрованных комбинационно активными жидкостями.....	77
2.3 Обсуждение результатов эксперимента по наблюдению вынужденного комбинационного рассеяния света в синтетических опаловых матрицах, инфильтрованных комбинационно активными жидкостями.....	97
Глава 3. Вынужденное низкочастотное комбинационное рассеяние света в твердотельных наноразмерных структурах	
3.1 Введение	101
3.2 Экспериментальное наблюдение вынужденного глобулярного рассеяния света в нанокompозитах на основе синтетических опалов	102
3.3 Морфологически зависимый акустический резонанс в тонких пленках	128
3.4.Обсуждение экспериментальных результатов.....	137
Глава 4. Вынужденное низкочастотное комбинационное рассеяние света в суспензиях наночастиц	
4.1 Введение.....	144
4.2 Технология получения образцов и экспериментальная установка	146
4.3 Экспериментальные результаты.....	152

Глава 5. Преобразование амплитудно-фазовых характеристик лазерного излучения при вынужденном комбинационном рассеянии света	
5.1 Введение.....	159
5.2 Экспериментальная установка.....	160
5.3 Преобразование амплитудно-фазовых характеристик лазерного импульса при прохождении через нелинейную среду с двухфотонным поглощением (ДФП) и высокочастотным Керр-эффектом.....	170
5.4 Образование изображения при освещении объекта когерентным светом. Метод фазового контраста с использованием нелинейно-оптического фильтра.....	178
5.5 Восстановление и обработка изображений при ВР света. Нелинейно-оптическая фильтрация при ВР как способ обработки оптического изображения.....	192
5.6 Энергетические характеристики ВКР в средах, используемых для восстановления и обработки оптического изображения.....	204
Заключение.....	215
Литература.....	218

ВВЕДЕНИЕ

Актуальность работы

Исследования особенностей нелинейного взаимодействия электромагнитного излучения с веществом составляют основу современной оптики, позволяя не только получать информацию о фундаментальных особенностях этого взаимодействия, но и находить многочисленные практические применения в различных областях науки и техники [1,2]. Среди широкого спектра нелинейно-оптических эффектов вынужденные рассеяния (ВР) света различного типа занимают исключительно важное место: - на их основе созданы многочисленные преобразователи частоты когерентного излучения, позволяющие осуществлять эффективное преобразование частоты исходного лазерного излучения в диапазоне от сотен до нескольких тысяч обратных сантиметров; - с помощью ВР - компрессоров созданы источники пикосекундных лазерных импульсов; - методы обращения волнового фронта при вынужденном рассеянии Мандельштама-Бриллюэна используются для коррекции волнового фронта лазерного излучения и формирования пучков когерентного излучения с наперёд заданными амплитудно-фазовыми характеристиками. Широкое применение явлений нелинейной оптики для решения большого числа практических задач определяет актуальность как исследований методов повышения эффективности нелинейно-оптического взаимодействия, так и изучения новых физических механизмов, приводящих к такому повышению.

Одним из способов увеличения эффективности нелинейно-оптического взаимодействия, в том числе вынужденных рассеяний света, является использование наноразмерных систем. Ярким примером такого использования является поверхностно-усиленное комбинационное рассеяние света – эффект, заключающийся в гигантском резонансном увеличении сечения комбинационного рассеяния света, возбуждаемого в молекулах, находящихся на поверхности металлических наноструктур [3].

Современное развитие методов производства наноструктур с заданными оптическими характеристиками позволяет, при их использовании в нелинейно-оптических экспериментах, существенно повысить эффективность нелинейно-оптических взаимодействий, в том числе вынужденных рассеяний света. Особое место среди таких систем занимают структуры с пространственной модуляцией диэлектрической проницаемости на масштабе длины волны электромагнитного излучения - фотонные кристаллы (ФК). Впервые влияние таких периодических структур на свойства спонтанного излучения было рассмотрено в теоретической работе [4], опубликованной в 1972 году. Лишь спустя 15 лет началось интенсивное исследование физики фотонных кристаллов [5-7]. Для структур с пространственно-модулированной диэлектрической проницаемостью с периодом модуляции, сравнимым с длиной волны электромагнитного излучения, оптические свойства определяются параметрами фотонной запрещенной зоны (ФЗЗ). Оптические моды с частотами, находящимися в интервале, задаваемом ФЗЗ, не могут распространяться в фотонном кристалле, что приводит к подавлению спонтанной эмиссии атомов (молекул) соответствующей частоты. В свою очередь, высокая плотность фотонных состояний, локализованная на низкочастотном и высокочастотном краях фотонной запрещенной зоны, может приводить к значительному увеличению эффективности нелинейно-оптического взаимодействия [8].

Как правило, фотонными кристаллами называют искусственные структуры, обладающие фотонной запрещенной зоной [5]. Такие структуры могут быть пространственно периодическими или квазипериодическими [9-15].

По типу модуляции фотонные кристаллы разделяют на одномерные, двумерные и трехмерные. В одномерных фотонных структурах диэлектрическая проницаемость периодически изменяется в одном пространственном направлении. Такие фотонные кристаллы, как правило,

состоят из параллельных друг другу слоев, обладающих различными коэффициентами преломления и проявляют свои свойства в одном выделенном направлении, перпендикулярном слоям. Примерами одномерных кристаллов являются такие хорошо известные структуры, как многослойные интерференционные фильтры или диэлектрические зеркала [16-19].

Двумерные и трехмерные фотонные структуры имеют модуляцию диэлектрической проницаемости в двух или трех взаимно перпендикулярных направлениях соответственно. В связи с возможностью существования полной фотонной запрещенной зоны, обеспечивающей запрет на распространение волн определенного диапазона частот во всех возможных направлениях, наибольший интерес представляют трехмерные фотонные кристаллы [7-9].

Интенсивное развитие оптоэлектроники ставит задачу создания компактных устройств для управления электромагнитным излучением. Уникальные свойства фотонных кристаллов делают весьма востребованными их при создании нанокompозитных устройств для решения целого ряда практических задач.

Наличие на краях фотонной запрещенной зоны аномально высокой плотности фотонных состояний позволяет использовать фотонные кристаллы для эффективного управления спектром спонтанной эмиссии [20-26]. Это свойство может быть использовано для существенного улучшения эффективности различных источников и приемников света, таких как полупроводниковые лазеры [27], одномодовые светоизлучающие диоды [28] и принимающие антенны [29].

Уникальные дисперсионные характеристики фотонных кристаллов, отличающиеся от дисперсионных характеристик обычных оптических сред, обеспечивают возможность создания новых спектральных элементов [30, 31].

В литературе обсуждается создание волноводных оптоэлектронных устройств [32] и оптических переключателей [33] на основе фотонных

кристаллов.

Фотонные кристаллы являются уникальными объектами для эффективного управления параметрами электромагнитного излучения. Хорошо развитая технология производства различных типов многомерных ФК позволяет создавать оригинальные структуры для решения широкого круга практических задач.

Очень удобными для экспериментального исследования, в качестве трехмерных фотонных кристаллов, являются синтетические опаловые матрицы [34-37]. Структура опала представляет собой кубическую гранецентрированную решётку, сформированную близкими по диаметру шарами (глобулами) кремнезёма (диоксида кремния), размеры которых обычно находятся в диапазоне от 100 до 1000 нм [35, 36]. Трансляционный период трёхмерной решётки в опалах близок к длинам волн оптического диапазона ($d \sim 1$ мкм). Синтетический опал имеет стоп-зону в видимом диапазоне длин волн, конкретное значение которых определяется размером глобул. Под термином стоп-зона понимают диапазон длин волн, запрещенных для распространения в каком-либо определенном направлении.

На базе синтетических опаловых матриц легко создать наноконпозиты, инфильтруя их средами с различными оптическими характеристиками. Такие наноконпозиты могут быть использованы в спектроскопии комбинационного рассеяния (КР) света для увеличения контраста в спектрах без увеличения мощности источника возбуждающего излучения [38]. Эта ситуация может быть реализована за счет высокой плотности фотонных состояний на краях ФЗЗ для возбуждающего и рассеянного излучений. Использование синтетических опалов, инфильтрованных соответственно подобранными КР - активными средами, позволит существенно понизить порог возбуждения вынужденного комбинационного рассеяния света и увеличить эффективность этого нелинейно-оптического процесса.

Отметим ещё одну важную особенность синтетических опаловых матриц, обусловленную значением периода решетки, составляющего

величину порядка длины волны видимого света. Эта же длина волны соответствует длине акустической волны гигагерцового диапазона частот. Синтетический опал можно рассматривать не только как фотонный, но и как фононный кристалл, обладающий фононными запрещенными зонами. Это открывает перспективы использования таких материалов при создании оптоакустических устройств. При определенных условиях это приводит к высокой локализации фотонов и фононов и, как следствие, к возрастанию эффективности фотон-фононного взаимодействия в нанокompозитах на основе синтетических опаловых матриц. При исследовании фотон-фононного взаимодействия в твердотельных наноразмерных структурах, независимо от того, являются ли они упорядоченными или нет, большую роль играют упругие характеристики непосредственно структурных единиц, образующих эти системы.

Акустические свойства наночастиц изучаются достаточно интенсивно. Объектами таких исследований, как правило, являются металлические и полупроводниковые наночастицы, дисперсно или периодически внедренные в аморфную матрицу, например, в стекло, или в периодическую структуру.

Особенности взаимодействия электромагнитного излучения с собственными акустическими колебаниями отдельных наночастиц исследовались в целом ряде работ [39-49]. В частности, в работе [39] были получены спектры спонтанного низкочастотного комбинационного рассеяния света в синтетической опаловой матрице. В качестве источника света использовалось лазерное излучение с длиной волны 514,5 нм. Следует отметить, что спектроскопия бриллюэновского и низкочастотного комбинационного рассеяний является основным методом, позволяющим получать информацию об особенностях фотон-фононного взаимодействия в наноразмерных системах. Процессы рассеяния света, составляющие основу используемых спектральных методов, носят спонтанный характер. Процессы вынужденного рассеяния, обусловленные взаимодействием собственных акустических колебаний наночастиц с электромагнитным излучением, до

настоящего времени не рассматривались.

В связи с этим, особый интерес представляет реализовать вынужденный режим рассеяния, обусловленный морфологическими особенностями наноразмерной (или субмикронной) системы как для упорядоченной, например, на основе синтетического опала, так и неупорядоченной системы. С этой точки зрения большой интерес, помимо синтетических опаловых матриц и систем наночастиц в жидком или твердом диэлектрике, в качестве исследуемых образцов представляют поликластерные пленки различных типов.

Как было рассмотрено в [50], возможно существование твердотельных объемных структур, чья функция плотности имеет вид $\delta(x, y)$, что создает, наряду с винтовыми осями, предпосылки для появления стержневых подструктур и волокнистого роста. Экспериментально такие структуры реализуются в виде тонких пленок, состоящих из нанокластеров. Под нанокластерами понимаются структурные единицы вещества, в которых область когерентного рассеяния менее 0,5-1 мкм, при этом сохраняется кристаллический класс (точечная группа), характерный для кристаллов данной фазы, но, из-за нарушения (при таких размерах) трансляционной эквивалентности, они не могут быть описаны как кристаллическая фаза с соответствующей федоровской группой.

Пленки, образованные кристаллитами больших размеров, скорее приближаются по своим свойствам к поликристаллическим системам, тогда как пленки, образованные небольшими кластерами, – к ренгеноаморфным.

Характеристики акустических колебаний в тонких пленках различного типа по составу и структуре определяются как размерами поликристаллов, образующих пленки, так и их акустическими свойствами. Частоты, соответствующие собственным колебаниям элементов структуры, образующих исследуемые пленки, могут при определенных условиях проявляться в спектрах низкочастотного комбинационного рассеяния света. Соответствующий данному типу спонтанного комбинационного рассеяния

света вынужденный тип рассеяния был обнаружен и являлся одним из объектов исследования в данной работе.

Другим важным объектом интенсивных теоретических и экспериментальных исследований в нелинейной оптике являются суспензии наночастиц различных типов. Суспензии диэлектрических, полупроводниковых и металлических наночастиц обладают более высокими значениями нелинейных восприимчивостей, чем соответствующие объемные образцы. В связи с этим данные материалы считаются весьма перспективными для использования в качестве активных сред в оптоэлектронике. Одним из многочисленных методов исследования таких наноразмерных систем, наряду с различными микроскопическими методиками, является использование низкочастотного комбинационного рассеяния (КР) света, впервые экспериментально реализованного в 1986 году для металлических наночастиц [42]. Низкочастотное КР в полупроводниковых, диэлектрических и металлических нанобъектах, представляющее собой неупругое рассеяние света на локализованных акустических фонах, дает важную информацию об их колебательной динамике [52-54]. Сдвиг частоты рассеянного света определяется собственными частотами структурных неоднородностей исследуемой системы. Следует отметить отсутствие зависимости величины частотного сдвига от угла между волновыми векторами возбуждающего и рассеянного света, в отличие от рассеяния света на акустических фонах в однородной среде (рассеяния Мандельштама-Бриллюэна). Вид спектрального распределения низкочастотного КР определяется распределением наночастиц по размерам и, как показано в [55], данный тип рассеяния может быть использован для определения формы и размеров наночастиц в различных системах. В работе [56] было предложено использовать низкочастотное КР на колебаниях формы жидкой капли для определения спектра аэрозольных частиц по размерам.

Одной из целей данной работы было реализовать вынужденное

низкочастотное рассеяние света, вызванное взаимодействием лазерного излучения с суспензиями наночастиц различного типа. В качестве образцов использовались водные суспензии наночастиц серебра, золота, сульфида цинка, фторида лантана.

Исследование нелинейно-оптических эффектов в наноразмерных системах позволяет не только получать информацию об особенностях взаимодействия таких систем с электромагнитным излучением, но и определить области их возможного практического применения. Одним из таких возможных применений является использование уникальных оптических свойств исследуемых систем для управления амплитудно-фазовыми характеристиками световых полей.

Для решения практических задач, связанных с передачей и хранением оптической информации, важную роль играет разработка методов преобразования характеристик сложных световых полей, дающих возможность восстановления и обработки оптических изображений. Применение вынужденных рассеяний света для преобразования параметров когерентного излучения является весьма перспективным, поскольку дает возможность изменять в широких пределах длину волны излучения с высокой эффективностью преобразования и управлять амплитудно-фазовыми характеристиками преобразованного излучения одновременно на нескольких частотах. Обращение волнового фронта и методы динамической голографии [51], использующие различные типы вынужденных рассеяний света, позволяют решать широкий круг задач, связанный с управлением амплитудно-фазовой структурой сложных световых полей. Существенное влияние на параметры вынужденного рассеяния света оказывают такие нелинейные эффекты как двухфотонное поглощение, высокочастотный Керр-эффект, а также другие виды вынужденных рассеяний света, возникающие в нелинейных средах под действием лазерного излучения с высокой плотностью мощности. В связи с этим представляется существенным рассмотрение конкуренции различных видов нелинейных рассеяний,

зависимость их характеристик от условий возбуждения, а также выбор оптимальных параметров схем и оптимальных энергетических и геометрических условий возбуждения.

Указанные обстоятельства позволили сформулировать следующие **цели и задачи данной работы:**

1. Экспериментальное исследование вынужденного комбинационного рассеяния (ВКР) света в трехмерных фотонных кристаллах на основе синтетических опаловых матриц, инфильтрованных КР - активными средами. Определение условий повышения эффективности генерации и понижения порога ВКР и экспериментальное изучение влияния параметров ФЗЗ на процесс ВКР.

2. Определение условий эффективной генерации вынужденного рассеяния в синтетических опалах, нанокompозитах на их основе и поликластерных тонких пленках, обусловленного взаимодействием мощного лазерного излучения с собственными акустическими колебаниями структурных единиц, составляющих исследуемые образцы.

3. Исследование ВР света, возникающего при взаимодействии импульсного лазерного излучения и суспензий наночастиц различных типов.

4. Разработка способов преобразования амплитудно-фазовых характеристик лазерного излучения с помощью нелинейно – оптической фильтрации на основе двухфотонного поглощения, высокочастотного Керр-эффекта и ВКР.

Объекты исследования

При изучении фотонных кристаллов в качестве объектов исследования

использовались образцы искусственных (синтетических) опаловых матриц, представляющих собой твердотельную структуру, сформированную плотноупакованными близкими по размеру кварцевыми глобулами. В зависимости от образца, диаметр глобул составлял от 200 до 320 нм.

Согласно целям работы, в качестве объектов исследования использовались также нанокompозиты на основе синтетических опалов. Опаловые нанокompозиты создавались путем заполнения октаэдрических и тетраэдрических пустот опаловых матриц различными молекулярными жидкостями, активными в комбинационном рассеянии и обладающими различными типами оптических нелинейностей.

При изучении вынужденного низкочастотного комбинационного рассеяния света в качестве образцов использовались водные суспензии наночастиц серебра, золота, сульфида цинка, фторида лантана.

В работах по исследованию процессов восстановления и обработки оптического изображения при ВР света, использовались конденсированные среды с различными типами нелинейностей, такие как бензол, нитробензол, этанол, вода, четыреххлористый углерод и др.

Научная новизна полученных результатов

1. Впервые экспериментально получено вынужденное комбинационное рассеяние света в трехмерных фотонных кристаллах. Показано, что использование в качестве образцов для возбуждения ВКР нанокompозитов на основе синтетических опаловых матриц, инфильтрованных комбинационно - активными жидкостями, существенно повышает эффективность преобразования возбуждающего излучения в ВКР и понижает порог возбуждения по сравнению с однородной жидкостью. Экспериментально установлено, что условием эффективной генерации ВКР является совпадение частоты возбуждающего лазерного излучения и первой стоксовой компоненты, соответственно, с высокочастотной и низкочастотной

границами фотонной запрещенной зоны нанокompозита.

2. Обнаружен новый тип вынужденного рассеяния света в твердотельных наноразмерных системах – вынужденное низкочастотное комбинационное рассеяние света. Экспериментально было исследовано рассеяние в упорядоченных структурах – нанокompозитах на основе синтетических опаловых матриц и неупорядоченных структурах – поликластерных пленках различной природы. Этот тип рассеяния возникает в результате взаимодействия импульсного лазерного излучения с локализованными акустическими колебаниями структурных единиц, образующих исследуемые образцы. Спектральное смещение первой стоксовой компоненты рассеяния относительно возбуждающего излучения для исследуемых систем лежит в гигагерцовом диапазоне частот. Вынужденное рассеяние этого типа характеризуется низким порогом возбуждения и высокой эффективностью преобразования возбуждающего излучения в рассеянное (максимальное значение коэффициента преобразования, реализованное экспериментально, составило величину $\approx 60\%$). Экспериментально зарегистрировано рассеяние «вперед» (попутно с накачкой) и «назад» (навстречу накачке).

3. Обнаружено и исследовано вынужденное низкочастотное комбинационное рассеяние света в суспензиях наночастиц различных типов. Данный тип рассеяния является результатом взаимодействия лазерного излучения с локализованными акустическими возбуждениями наночастиц.

4. Созданы оптические схемы, позволяющие осуществлять обработку оптического изображения на частоте возбуждающего излучения и, одновременно, на частотах нескольких стоксовых компонент. Определены оптимальные условия работы предлагаемых оптических схем для визуализации фазовых объектов и повышения контраста изображений амплитудно-фазовых объектов.

Положения, выносимые на защиту

1. При совпадении частоты возбуждающего лазерного излучения с высокочастотным краем стоп-зоны фотонного кристалла (синтетической опаловой матрицы, инфильтрованной комбинационно активной жидкостью), а частоты первой стоксовой компоненты с низкочастотным краем этой зоны реализуются условия существенного снижения порога возникновения генерации вынужденного комбинационного рассеяния света. Экспериментально было реализовано двадцатикратное понижение порога вынужденного комбинационного рассеяния света, возбуждаемого в синтетической опаловой матрице, инфильтрованной нитробензолом, по сравнению с порогом ВКР в самом нитробензоле.
2. При взаимодействии импульсного лазерного излучения с собственными акустическими колебаниями субмикронных частиц, образующих твердотельные образцы синтетических опаловых матриц и поликластерных пленок, возникает новый тип вынужденного рассеяния света - вынужденное низкочастотное комбинационное рассеяние света.
3. Из полученных экспериментальных данных о спектральных свойствах вынужденного низкочастотного рассеяния света следует, что частотные характеристики рассеянного излучения (спектральное смещение рассеянной компоненты) определяются размером частиц, составляющих исследуемые образцы, и их упругими характеристиками. Для исследованных образцов смещение первой стоксовой компоненты относительно спектрального положения линии накачки лежит в гигагерцовом диапазоне.

4. При взаимодействии импульсного лазерного излучения с суспензиями наночастиц различной природы возникает вынужденное низкочастотное комбинационное рассеяние света

5. Вынужденное низкочастотное комбинационное рассеяние света представляет собой источник бигармонической накачки с возможностью перестройки разностной частоты в гига- и терагерцовом диапазонах. Конкретное значение разностной частоты определяется морфологией используемых образцов.

6. Использование вынужденного рассеяния света в системах оптической обработки информации с помощью амплитудно-фазовой фильтрации Фурье-спектров оптических изображений различных объектов позволяет осуществлять визуализацию фазовых объектов, повышение контраста в изображении слабопоглощающих свет объектов и инверсию контраста в изображении амплитудных объектов.

Практическая значимость работы

1. Вынужденное низкочастотное комбинационное рассеяние света представляет собой эффективный источник когерентной бигармонической накачки, позволяющий осуществлять перестройку разностной частоты от нескольких гигагерц до терагерца. Такой источник электромагнитного излучения может быть использован в спектроскопии наносистем различной природы, собственные частоты которых лежат в данном диапазоне. Также, учитывая высокую интенсивность данного источника, он может найти широкое применение для генерации как электрических сигналов, так и электромагнитного излучения в гига и терагерцовом диапазонах.

2. При создании и разработке ВКР - преобразователей использование в

качестве активной среды образцов нанокompозитов на основе синтетических опаловых матриц, инфильтрованных комбинационно - активными жидкостями, при определенных условиях позволяет реализовать вынужденное комбинационное рассеяние с более высокой эффективностью преобразования возбуждающего излучения в рассеянное и более низким порогом возбуждения рассеяния по сравнению с однородными образцами.

3. Вынужденное низкочастотное комбинационное рассеяние света, как и другие типы вынужденных рассеяний света, может быть использовано для преобразования амплитудно-фазовых характеристик световых полей. Разработанные и предложенные в диссертации схемы оптической обработки изображения одновременно на частоте возбуждающего излучения и на нескольких стоксовых частотах вынужденного комбинационного рассеяния света позволяют осуществлять визуализацию фазовых объектов и повышать контраст в изображении слабопоглощающих свет объектов. Использование для аналогичных целей новых типов вынужденного рассеяния света существенно расширит диапазон применения таких схем для решения практических задач связанных с обработкой оптического изображения.

Личный вклад автора

Все результаты, изложенные в диссертации, получены автором лично или при его непосредственном участии и руководстве.

Структура и объем диссертационной работы

Диссертация состоит из введения, пяти глав, заключения и списка литературы. Объем работы составляет 248 страниц, включая 66 рисунков. Список литературы содержит 292 наименования.

Во **введении** сформулированы актуальность и практическая значимость работы, а также ее цели и задачи. Приводятся основные положения, выносимые на защиту. Реферативно изложено содержание работы и дается общая характеристика диссертации. Приведены сведения об апробации результатов, основных публикациях, а также об объеме и структуре работы.

В **первой главе** даётся обзор современного состояния теоретических и экспериментальных исследований оптических свойств наноразмерных и субмикронных систем в контексте особенностей их структуры и перспектив их практического использования. Особое внимание уделяется работам посвященным изучению взаимодействия электромагнитного излучения с синтетическими опаловыми матрицами и нанокompозитами на их основе.

Во **второй главе** приведены результаты по экспериментальному исследованию вынужденного комбинационного рассеяния света в синтетических опалах и нанокompозитах на их основе. Приводится описание методики эксперимента по исследованию нелинейных оптических явлений в синтетических опалах и нанокompозитах. Определены условия достигнутого в эксперименте существенного (двадцатикратного) понижения порога возбуждения вынужденного комбинационного рассеяния света в опаловой матрице инфильтрованной комбинационно активной средой. Экспериментально продемонстрирована определяющая роль положения фотонной запрещенной зоны относительно частоты возбуждающего излучения и частоты первой стоксовой компоненты.

Третья глава посвящена изучению вынужденного низкочастотного комбинационного рассеяния света в твердотельных субмикронных системах, а именно, вынужденному глобулярному рассеянию света (ВГР) в синтетических опалах и вынужденному рассеянию света в тонких поликластерных пленках, обусловленному взаимодействием лазерного излучения с морфологически зависимым резонансом. В этой главе приводятся результаты экспериментального исследования спектральных

характеристик вынужденного низкочастотного комбинационного рассеяния света, возбуждаемого в исследуемых образцах. Показано хорошее согласие экспериментально измеренных частотных смещений стоксовых компонент рассеяния с расчетными значениями, полученными при использовании теоретической модели собственных механических колебаний однородной упругой сферической частицы со свободными граничными условиями. Анализ полученных экспериментальных данных позволил сделать вывод об определяющем значении комбинационного механизма рассеяния света в исследуемых системах. Высокая эффективность преобразования (до 60 %) волны накачки в рассеянную волну, а также возможность управления спектральным смещением стоксовой компоненты относительно частоты возбуждающего излучения в гигагерцовом диапазоне открывают широкие возможности использования данного типа рассеяния для спектроскопии нано- и микроразмерных систем.

В четвертой главе приведены результаты по исследованию вынужденного низкочастотного комбинационного рассеяния света в суспензиях наночастиц различных типов. Описана технология получения водных суспензий наночастиц серебра, золота, сульфида цинка, фторида лантана. Определение среднего размера частиц и их распределение по размерам осуществлялось методом динамического рассеяния света. Размеры наночастиц в используемых образцах составляли величину от нескольких нанометров до нескольких десятков нанометров. Данные размеры соответствуют акустическим частотам, лежащим в диапазоне от гигагерц до терагерца. Максимальная эффективность преобразования волны накачки в волну рассеяния (27%) была получена при использовании суспензии фторида лантана. Экспериментальные данные по исследованию вынужденного низкочастотного комбинационного рассеяния света в суспензиях, изложенные в четвёртой главе, показывают, что данный тип рассеяния представляет собой эффективный источник двухчастотного

(бигармонического) электромагнитного излучения. Диапазон разностной частоты составляет величину от 5 ГГц до 430ГГц.

В **пятой главе** приводятся результаты экспериментальных исследований, посвященных изучению процессов регистрации, восстановления и обработки оптической информации нелинейно-оптическими методами. Описаны различные схемы, предложенные автором для обработки оптической информации на основе вынужденных рассеяний света; определены их оптимальные параметры, показаны преимущества таких схем для решения конкретных практических задач. Реализовано восстановление и обработка изображений амплитудных и фазовых объектов при ВР света одновременно на нескольких частотах. Обсуждается роль сопутствующих нелинейных эффектов.

Апробация работы

Основные результаты диссертации докладывались на следующих международных и всероссийских конференциях: XVIII Всесоюзной школе по физическим основам голографии, (Ленинград, 1987), International Quantum Electronic Conference (IQEC'94), (Anaheim, California, 1994.), OSA Annual Meeting, (Dallas, Texas, USA, 1994), XV International Conference on Coherent and Nonlinear Optics, (1995), международной конференции Лазерная физика-95, (1995 г, Аштарак, Армения), IV научно-технической конференции «Оптические методы исследования потоков», (Москва 1997), Международной конференции "Комбинационное рассеяние-70 лет исследований," (Москва 1998), XVI International Conference on Coherent and Nonlinear Optics (ICONO'98), (Moscow, Russia, 1998), OSA Annual Meeting

and Exhibit "Optics in High-Tech Industries", (USA, 1999), V международной научно-технической конференции «Оптические методы исследования потоков», 23-25 июня 1999, (Москва, 1999.), *Optics in the New Millenium*", OSA Annual Meeting (2000, USA), VII International Conference on Raman Spectroscopy, (Beijing, China,2000), Международном оптическом конгрессе «Оптика», конференции "Фундаментальные проблемы оптики", (Санкт-Петербург,2000), Международной научно-технической конференции «Оптические методы исследования потоков», (Москва, 2001), Всероссийской конференции «Необратимые процессы в природе и технике», (Москва, 2001), OSA Annual Meeting, (Long Beach, California, 2001), V Международной конференции "Прикладная оптика-2002", (Санкт-Петербург, 2002), VII международной научно-технической конференции "Оптические методы исследования потоков", (Москва, 2003), II Всероссийской конференции "Необратимые процессы в природе и технике" (2003 г., Москва), International conference Frontiers in Optics 2004, Laser Science XX, (USA,2004), III Всероссийской конференции "Необратимые процессы в природе и технике (Москва, 2005), VIII международной научно-технической конференции "Оптические методы исследования потоков", (Москва, 2005),VIII Международной конференции "Опто-, наноэлектроника, нанотехнологии и микросистемы", (Ульяновск, 2006), IV Международной конференции «Фундаментальные проблемы оптики (ФПО-2006)» в рамках IV Международного конгресса «Оптика XXI », (С-Пб, 2006), VI Международной конференции, «Лазерная физика и оптические технологии» (Гродно, Беларусь, 2006), Конференции "Фундаментальные и прикладные проблемы современной физики (Демидовские чтения)" (Москва-Екатеринбург-Томск, 2006), XI Международном симпозиуме "Нанопизика и наноэлектроника", (Нижний Новгород, 2007), Photonics 2007, XII International conference of photon scattering in condensed matter, (Paris, 2007), European Conference on Nonlinear Optical Spectroscopy (ECONOS 2007), Всероссийском семинаре "Юрий Николаевич Денисюк - основоположник отечественной голографии",

(Санкт-Петербург, 2007), ICONO/LAT, (Minsk, Belarus, 2007), XIII Международной научно-технической конференции (Москва, МГТУ им.Н.Э.Баумана, 2007), IV Всероссийской конференции "Необратимые процессы в природе и технике", (Москва, 2007), Международном оптическом конгрессе «ОПТИКА XXI», (Санкт-Петербург, 2008), VII Международной конференции «Лазерная физика и оптические технологии», (Минск, 2008), XIV Международной научно-технической конференции "Высокие технологии в промышленности России». (Москва, 2008), Научно-практической конференции «Голография в России и за рубежом. Наука и практика», (Санкт-Петербург, 2008), VII European Conference on Nonlinear Optical Spectroscopy (ECONOS-2008), V Всероссийской конференции «Необратимые процессы в природе и технике» (Москва, 2009), International Conference on Photonics, Nanotechnology and Computer Applications (ICOPNAC – 2009) (India, 2009), XIII Международном Симпозиуме Нанофизика и наноэлектроника», (Нижний Новгород, 2009), VIII European Conference on NonLinear Spectroscopy and XXVIII European CARS Workshop (ECONOS-2009); (Italy, 2009), X юбилейной международной научно-технической конференции «Оптические методы исследования потоков», (Москва, 2009), XV Международной научно-технической конференции «Высокие технологии в промышленности России» Москва, 2009), XXII Международного симпозиума «Тонкие пленки в электронике» (Москва, 2009), IX European conference on nonlinear optical spectroscopy, XXIX European CARS Workshop, ECONOS 2010, (Germany, 2010), Международной научно-технической конференции «Высокие технологии в промышленности России (Материалы и устройства функциональной электроники и микрофотоники)», (Москва, 2010), XXII International Conference on Raman Spectroscopy – ICORS (USA, 2010), II Nanotechnology International Conference and Exhibition, (Tel Aviv, Israel, 2010), XVI International conference on Photoacoustic and Photothermal Phenomena, (Yucatan, Mexico, 2011), XVIII Международной научно-технической конференции «Высокие технологии в промышленности

России (Материалы и устройства функциональной электроники и микрофотоники)» (Москва, 2012), XVI International Conference on Laser Optics (St.Petersburg, 2012), IX Международной научной конференции «Лазерная физика и оптические технологии» (Белоруссия, 2012), Advanced Photonics, OSA Optics & Photonics Congress (USA, 2012), ECONOS conference (UK, 2012), XXIII International Conference on Raman Spectroscopy “Raman – home coming” (India, 2012), III Международной научной конференции «Наноструктурные материалы – 2012: Россия – Украина - Беларусь» (Санкт-Петербург, 2012), XVIII Symposium on Thermophysical Properties, (Boulder, USA, 2012), International Conference on Nonlinear Optics (ICONO-2013) (Moscow, 2013), International Conference CLEO-PR & OECC/PS (Kyoto, Japan, 2013), III International Symposium on Laser Ultrasonics and Advanced Sensing (LU 2013) (Yokohama Japan, 2013), XI International Conference on Material Chemistry (MC 11) (University of Warwick, UK, 2013), Всероссийской конференции «Комбинационное рассеяние – 85 лет исследований» и IV Сибирском семинаре «Спектроскопия комбинационного рассеяния света», (Красноярск, 2013),

По теме диссертации опубликовано 32 статьи в рецензируемых журналах.

1. Ng. Phu Xuan, J.L. Ferrier, J. Gazengel, G. Rivoire, G.L. Brekhovskikh, A.D.Kudryavtseva, A.I. Sokolovskaya, and N.V.Tcherniega, “Changes in the structures of light beams induced by nonlinear optical phenomena: application to phase contrast and image processing”, Optics Communications, V. 68, P. 244-249, 1988
2. Н.В. Чернега, Г.Л. Бреховских, А.Д. Кудрявцева, Б.П. Кирсанов, А.И. Соколовская, «Преобразование амплитудно-фазовых характеристик сфокусированного лазерного излучения с помощью нелинейно-оптических явлений в ацетоне и жидком азоте», Квантовая электроника, Т. 16, № 12, С.2530-2537, 1989.

3. А.Д. Кудрявцева, А.И. Соколовская, Н.В. Чернега, Ж. Ривуар, Н.Ф.Суан, С.Эр-раймейни, "Восстановление при вынужденных рассеяниях света изображений транспарантов и фазовых объектов по их Фурье-спектру", Краткие сообщения по физике ФИАН, № 1-2, С. 10-14, 1994.
4. A.D. Kudryavtseva, A.I. Sokolovskaya, N.V. Tcherniega, "Image reconstruction at stimulated scatterings by Fourier-spectrum", Laser Physics, V. 5, No 1, P. 142-146, 1995.
5. A.D.Kudryavtseva, A.I.Sokolovskaya, N.V.Tcherniega. " Frequency filtering in a spatial spectrum of an object on the base of nonlinear optics phenomena: method of real-time image processing ", Journal of Russian Laser Research., V.17, № 3, P.247-258, 1996.
6. А.Д.Кудрявцева, А.И.Соколовская, Н.В.Чернега, «Восстановление амплитудно-фазовой информации при вынужденных рассеяниях света», Оптический журнал, Т. 64, № 4, С. 95-100, 1997.
7. N.Tcherniega, A.Sokolovskaya, A.D.Kudryavtseva, R.Barille, G.Rivoire. "Backward stimulated Raman scattering in water", Optics Communications, V.181, P.197-205, 2000.
8. Anna Kudryavtseva and Nikolai Tcherniega, "Spatial, spectral and temporal characteristics of the stimulated scattering of light in water," Journal of Russian Laser Research, V. 23, N 3, P. 288-297, 2002.
9. V.S.Gorelik, A.D.Kudryavtseva, and N.V.Tcherniega "Stimulated infrared emission under excitation of condensed molecular dielectrics with giant pulses of a ruby laser", Journal of Russian Laser Research, V.27, N 2, P. 81-91, 2006.
10. В.С.Горелик, А.Д.Кудрявцева, Н.В.Чернега, "Вынужденное глобулярное рассеяние света в трехмерных фотонных кристаллах", Краткие сообщения по физике ФИАН, № 8, стр.43-50, 2006.
11. N.V.Tcherniega, A.D.Kudryavtseva, "Photonic flame effect", Journal of Russian Laser Research, V.27, N 5, стр.400-409, 2006.
12. В.С.Горелик, А.Д.Кудрявцева, М.В.Тареева, Н.В.Чернега, "Спектральные характеристики излучения кристаллов искусственного опала при эффекте

фотонного пламени", Письма в ЖЭТФ, т.84, вып.9, стр.575-578, 2006.

13. V.S.Gorelik, A.D.Kudryavtseva, N.V.Tcherniega, A.I.Vodchits, "Stimulated Globular Scattering of Laser Radiation in Photonic Crystals: Temperature Dependences", Journal of Russian Laser Research, V. 28, № 6, p. 500-508, 2007.

14. Н.В.Чернега, А.Д.Кудрявцева, М.И.Самойлович, "Эффект фотонного пламени", Поверхность. Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования, № 8, С. 1-7, 2008.

15. V.S.Gorelik, A.D.Kudryavtseva, N.V.Tcherniega, "Stimulated Raman scattering in three-dimensional photonic crystals", Journal of Russian Laser Research, V. 29, № 6, С. 551-55, 2008.

16. Н.В.Чернега, А.Д.Кудрявцева, «Нелинейно-оптические свойства фотонных кристаллов», Поверхность. Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования, № 7, стр.23-29, 2009.

17. N.V.Tcherniega, M.I.Samoylovich, A.D.Kudryavtseva, A.F.Belyanin, P.V.Pashchenko, and N.N.Dzbanovski, "Stimulated scattering caused by the interaction of light with morphology-dependent acoustic resonance", Optics Letters, V.35, Issue 3, P. 300-302, 2010.

18. М.И.Самойлович, Н.В.Чернега, А.Д.Кудрявцева, А.Ф.Белянин, С.М.Клещева, "Опаловые матрицы как метаматериал: оптико-акустические эффекты в решетчатых упаковках", Нано- и микросистемная техника, № 5 (118), С. 5-17, 2010.

19. М.В. Тареева, В.С. Горелик, А.Д. Кудрявцева, Н.В. Чернега, «Спектральные и энергетические характеристики вынужденного глобулярного рассеяния света», КСФ, № 11, С. 3 - 9, 2010.

20. Чернега Н.В., Самойлович М.И., Белянин А.Ф., Кудрявцева А.Д., Клещева С.М. Генерация электромагнитного и акустического излучений в наноструктурированных системах // Нано- и микросистемная техника. 2011. № 4. С. 21–31.

21. Н.В.Чернега, М.И.Самойлович, А.Д.Кудрявцева, А.Ф.Белянин, П.В.Пашенко, Н.Н.Дзбановский, «Нелинейно-оптические и акустические

свойства тонких пленок», Неорганические материалы, 2011, Т. 47, № 9, С. 1-6.

22. В.С. Горелик, А.Д. Кудрявцева, М.В. Тареева, Н.В. Чернега, «О генерации пульсирующих акустических волн в глобулярных фотонных кристаллах», Вестник МГТУ им. Н.Э. Баумана, Серия «Естественные науки», 2(41), 2011, С. 3-15.

23. V.S.Gorelik, A.D.Kudryavtseva, V.A.Orlovich, M.V.Tareeva, N.V.Tcherniega, and A.I.Vodchits, "Stimulated Raman scattering of light in artificial opal filled by water", Journal of Russian Laser Research , 2011, V.32, No 3, P. 277-286.

24. N.V. Tcherniega, K.I. Zemskov, V.V. Savranskii, A.D. Kudryavtseva, T. Shcherba, M. Zhilenko, H. Ehrlich, G. Lisichkin, "X-Ray generation induced by visible lasers in ZnS aqueous suspensions", JRLR, 2011, V.32, No 3, P. 247-252.

25. Н.В.Чернега, А.Д.Кудрявцева, М.И.Самойлович, А.С.Шевчук, С.М.Клещева, "Вынужденное низкочастотное комбинационное рассеяние света в наноструктурах", Автометрия, Т. 48, № 3, С. 39-45, 2012.

26. A.D. Kudryavtseva, N.V. Tcherniega, M.I. Samoylovich, A.S. Shevchuk, "Photon-Phonon Interaction in Nanostructured Systems", Journal of Thermophysics, 2012, Volume 33, Issue 10 (2012), Page 2194-2202

27. N. V. Tcherniega, A. D. Kudryavtseva, A. S. Shevchuk, I. S. Burkhanov, S. V. Krivokhizha, L. L. Chaikov, V. V. Savranskiy, D.Yu. Korobov, "Effective acousto-optical interaction in suspensions of nanodiamond particles", Journal of Russian Laser Research, №5, 2012, стр. 496-502.

28. N.V.Tcherniega, K.I.Zemskov, V.V.Savranskii, A.D.Kudryavtseva, A.Yu.Olenin,, and G.V.Lisichkin, "Experimental observation of stimulated low frequency Raman scattering in water suspensions of silver and gold nanoparticles", Optics Letters, V. 38, N 6, March 15, 2013, P. 824-826

29. V.S. Gorelik, A.D. Kudryavtzeva, N.V. Tcherniega, A.I. Vodchits, V.A. Orlovich A method for reducing the stimulated Raman scattering threshold in liquids embedded into photonic crystals, Journal of Russian Laser Research , v.34, N1, 2013, pp 1-9,

30. А. И. Водчиц, Ю.П. Войнов, В. С. Горелик, А. Д. Кудрявцева, В. А. Орлович, Н. В. Чернега. Вынужденное комбинационное рассеяние света в легкой и тяжелой воде при пикосекундном лазерном возбуждении. Краткие сообщения по физике ФИАН, № 12, С. 3 - 13, 2013
31. V.S. Gorelik, A.D. Kudryavtzeva, V.A. Orlovich, P.P. Sverbil, N.V. Tcherniega, A.I. Vodchits, Yu.P. Voinov, L.I. Zlobina Raman Scattering in Light and Heavy Waters, Journal of Russian Laser Research , v.34, N6, pp 523-530, 2013
32. Mikhail V. Vasnetsov, Tatiana N. Orlova, Vladimir Yu. Bazhenov, Aleksey V. Shevchuk, Anna D. Kudryavtseva, Nikolay V. Tcherniega, «Photonic bandgap examination in an immersed synthetic opal», Appl. Phys. B, Lasers and Optics, Appl. Phys. B, 2014, 116, pp 541–548

ГЛАВА 1.

НАНОРАЗМЕРНЫЕ И СУБМИКРОННЫЕ СИСТЕМЫ В ОПТИКЕ

§1.1 Особенности оптических характеристик фотонных кристаллов

Исследования взаимодействия электромагнитного излучения с веществом составляют основу современной оптики, позволяя не только получать информацию о фундаментальных особенностях этого взаимодействия, но и находить многочисленные практические применения в различных областях. По аналогии с твердым телом, где существует зонная энергетическая структура в электронном спектре, приводящая к возникновению различных резонансных процессов, последнее время в оптике активно изучаются структуры, обладающие запрещенными зонами для электромагнитного излучения – фотонными запрещенными зонами. Понятие «*фотонная запрещенная зона*», как и термин «*фотонный кристалл*» были введены в 1987 году Яблоновичем. «*Фотонная запрещенная зона*» - область частот электромагнитного излучения любой поляризации, распространение которых в любом направлении в фотонном кристалле невозможно. Однако впервые о структурах с ФЗЗ и их особенных свойствах, сообщалось в работе В.П. Быкова [4]. При наличии периодической пространственной модуляции диэлектрической проницаемости в среде на масштабе соизмеримом с длиной волны электромагнитного излучения ультрафиолетового, видимого или инфракрасного диапазонов, как было

показано в работе [4], возникают запрещённые энергетические зоны. Характерный масштаб пространственной модуляции диэлектрической проницаемости для реализации фотонной запрещенной зоны в видимой области электромагнитного спектра составляет величину около 200 нанометров. Такие структуры относятся к субмикронным.

В.П. Быков рассмотрел спонтанное излучение атома в среде, представляющей собой двухпроводную линию произвольного сечения, заполненную периодически расположенными однородными диэлектрическими шайбами.

Было показано, что, если частота излучения атома попадает в запрещённую фотонную зону, то интенсивность спонтанного излучения должна резко падать. Вблизи края фотонной запрещённой зоны интенсивность спонтанного излучения должна сильно возрастать. Объяснение таких необычных свойств излучения было объяснено модификацией плотности фотонных состояний, обусловленной наличием фотонных запрещенных зон.

Особенно интересным в работе [4] было предложение по созданию структур с ФЗЗ в видимом диапазоне спектра с помощью формирования системы стоячих гиперзвуковых волн, что открывает широкие перспективы практического использования таких структур.

Яблоновичем [5] были проанализированы энергетические спектры периодических структур, названных им фотонными кристаллами, для различных типов кристаллических решёток и было установлено наличие в них ФЗЗ, обусловленных модуляцией их оптических свойств. Параметры ФЗЗ определяются симметрией кристаллической структуры. Было показано, что ширина ФЗЗ возрастает при увеличении глубины модуляции диэлектрической проницаемости фотонного кристалла. Варьируя параметры модуляции можно менять ширину ФЗЗ в достаточно широких пределах. В работе [138] рассматривалась фотонная структура с запрещённой фотонной зоной, спектральная ширина которой составляет 19% от центрального

значения частоты в спектре.

Термин одномерный ФК достаточно широко используется в научной литературе, хотя под ним часто подразумеваются давно известные и активно используемые бреггоподобные структуры, такие, как, например, многослойные интерференционные фильтры, диэлектрические зеркала и т.д.. Такие структуры весьма удобны для теоретического анализа распространения электромагнитного излучения в условиях существования ФЗЗ, но полная ФЗЗ подразумевает запрет на распространение электромагнитного излучения любой поляризации во всех направлениях и, соответственно, термин «фотонный кристалл» для одномерной структуры не совсем корректен. Для практического применения большой интерес представляют двумерные и трёхмерные структуры с модуляцией диэлектрической проницаемости на масштабе длины волны электромагнитного излучения соответствующего спектрального диапазона.

Создание гибридных наноструктур, состоящих из материалов различной природы, определяет новое направление в физике твёрдого тела и оптике, связанное с созданием новых типов фотонных кристаллов с использованием диэлектриков, металлов и полупроводников.

Оптические свойства гибридных систем, состоящих из однородной диэлектрической среды, содержащей металлические сферические частицы с радиусом, малым по сравнению с длиной волны падающего излучения, демонстрируя необычные оптические свойства по сравнению со сплошной средой, явились объектом интенсивных экспериментальных и теоретических исследований с начала 20 века. Так, Максвеллом Гарнеттом [139, 140] было подробно исследовано взаимодействие света с такими системами путем введения эквивалентного комплексного показателя преломления и объяснен ряд экспериментальных особенностей. Теоретически наиболее полно процесс взаимодействия монохроматического излучения со сферической частицей произвольного размера был рассмотрен Ми [141] в 1908 году. Основные подходы, развитые Ми для решения задачи дифракции электромагнитной

волны на однородной сфере произвольного диаметра, с успехом используются для описания взаимодействия наноразмерных систем различной природы. При этом следует отметить основные условия применимости таких подходов, а именно: - монодисперсность системы наночастиц; - случайный характер пространственного распределения; - расстояние между наночастицами должно быть больше длины волны электромагнитного излучения.

Линейные [142-144] и нелинейно-оптические свойства [145-148] таких систем обсуждались многими авторами. В частности, объектами активных исследований продолжают оставаться свойства стекол, включающих в себя металлические или полупроводниковые кластеры [146,147]. Наночастицы различной природы в жидком диэлектрике, также представляют большой интерес с точки зрения изучения их оптических свойств. Спектрально селективная экстинкция, в случае монодисперсности таких систем, позволяет использовать их для управления спектральными характеристиками электромагнитного излучения. Эффективность нелинейно-оптического взаимодействия в суспензиях наночастиц существенно возрастает благодаря значительному увеличению локального поля вблизи их поверхности. Особенно сильно этот эффект проявляется в системах металлических наночастиц при их возбуждении электромагнитным излучением с частотой вблизи частоты плазмонного резонанса.

Одним из многочисленных способов увеличения эффективности нелинейно-оптического взаимодействия является использование сред, состоящих из чередующихся слоев с характерной толщиной порядка длины волны используемого электромагнитного излучения, обладающих различными типами нелинейности [149,150]. При создании таких структур, варьируя толщину слоев и значение показателя преломления используемых нелинейных сред, можно создавать фотонные запрещенные зоны, проявляющиеся в появлении максимума или минимума в спектрах отражения или пропускания соответственно. Также, в этих спектрах наблюдаются

осцилляции, амплитуда и частота которых определяются геометрическими и оптическими характеристиками системы. Ширина фотонной запрещенной зоны определяется контрастом показателя преломления используемой слоистой структуры, а её форма, прежде всего крутизна краев, зависит от числа слоев. Увеличение числа слоев приводит к формированию более резких краев фотонной запрещенной зоны. Анализ формы спектров отражения (пропускания) таких структур показывает, что существует достаточно много параметров, варьируя которые можно эффективно управлять характеристиками фотонной запрещенной зоны и, соответственно, повышать эффективность нелинейно-оптического взаимодействия.

Наличие в фотонном кристалле осцилляторов (атомов или молекул) с системой уровней, частоты которых попадают в запрещенную зону, может приводить к образованию локализованных состояний электромагнитного поля определенной частоты. Такой атом или молекула, внедренная в фотонный кристалл, является искусственно созданным дефектом. Технологически возможно формирование фотонных структур с системой дефектов, которые создают дополнительный уровень в фотонной запрещенной зоне, образуя тем самым эффективный световод, осуществляющий с минимальными потерями передачу электромагнитного излучения соответствующей частоты. Такие системы минимизируют потери даже при существенной механической деформации (прежде всего изгибе) [151,152]. Таким образом, на основе фотонных кристаллов могут быть созданы эффективные световоды с уникальными механическими свойствами.

Создание произвольного единичного дефекта внутри фотонной запрещенной зоны означает создание системы уровней внутри зоны. Наличие этой системы уровней обуславливает появление локализованных состояний электромагнитного поля соответствующей частоты. Таким образом, используя дефекты с различными системами уровней, можно создавать структуры с локализованными состояниями электромагнитного поля в широком диапазоне частот. Такие схемы могут быть практически

использованы для существенного повышения эффективности взаимодействия электромагнитного излучения с веществом.

В настоящее время, при создании фотонных структур с системой уровней внутри фотонной запрещенной зоны, активно исследуются свойства резонаторных полостей в фотонном кристалле. Такие резонаторы технологически легко могут быть созданы в одномерных, двумерных и трехмерных фотонно-кристаллических структурах. Изучению особенностей взаимодействия таких систем с электромагнитным излучением и, прежде всего, особенностей, возникающих при нелинейно-оптическом взаимодействии, например, при генерации гармоник, посвящено большое число работ [153-156].

Другим активно развивающимся направлением в использовании фотонных кристаллов в оптических исследованиях является изучение оптических свойств квантовых точек, прежде всего, их люминесценции. В настоящее время достаточно хорошо отработана технология производства нанокomпозитов, представляющих собой фотонные кристаллы (двухмерные или трехмерные) с внедренными в них квантовыми точками. Спектральные свойства люминесценции квантовых точек, внедренных в фотонный кристалл, приобретают особенности, связанные с влиянием на них положения фотонной запрещенной зоны. Исследование трансформации спектрального распределения люминесценции квантовых точек при его попадании в окрестности фотонной запрещенной зоны позволяет не только получать информацию о фундаментальных аспектах взаимодействия электромагнитного излучения с такими системами, но и создавать источники излучения с заданными спектральными характеристиками. [157-159].

Также фотонные кристаллы могут быть использованы в спектроскопии комбинационного рассеяния света. Спонтанное комбинационное рассеяние является достаточно слабым процессом и, учитывая огромный практический интерес к нему, разработка и исследование методов, позволяющих повысить чувствительность спектроскопии КР, занимает большое место в современной

оптике. Это такие методы, как метод (SERS), в котором используются свойства шероховатой поверхности для усиления сигнала [160,161], метод IERS, использующий интерференционный механизм усиления [162], метод TIRRS, использующий для повышения чувствительности спектроскопии КР свойства полного внутреннего отражения [163], а также методы, основанные на использовании различных систем диэлектрических наночастиц субмикронного размера [164]. Одним из эффективных методов повышения чувствительности спектроскопии КР является использование фотонных кристаллов [181]. Аномально высокая плотность фотонных состояний на краях фотонной запрещенной зоны позволяет существенно повышать эффективность процесса комбинационного рассеяния света. Для реализации эффективного повышения эффективности необходимо выполнение условий совпадения частоты возбуждающего излучения с высокочастотным краем фотонной запрещенной зоны, а частоты первой стоксовой компоненты с низкочастотным краем фотонной запрещенной зоны. Для экспериментальной реализации необходимо создание нанокompозитов на основе фотонных кристаллов, содержащих комбинационно активную среду, в которых выполняется данное условие. Использование фотонных кристаллов повысит соотношение сигнал-шум и расширит энергетический диапазон регистрируемых сигналов. Для практической реализации схемы регистрации комбинационного рассеяния с использованием нанокompозитов необходимо точное совпадение частот возбуждающего излучения и первой стоксовой компоненты с соответствующими границами фотонной запрещенной зоны. В этом случае необходима точная информация об оптических свойствах используемых фотонных кристаллов [38].

На сегодняшний день создано много различных типов двумерных и трехмерных фотонных кристаллов с фотонными запрещенными зонами от ближнего ультрафиолетового до инфракрасного диапазонов, что позволяет использовать их для эффективного управления параметрами электромагнитного излучения в широком спектральном диапазоне.

Взаимодействие электромагнитного излучения с материальной средой описывается поляризацией среды P . В общем случае поляризация является нелинейной функцией поля:

$$P_i = \sum_j \chi_{ij} E_j + \sum_{j,k} \chi_{ijk}^{(2)} E_j E_k + \sum_{j,k,l} \chi_{ijkl}^{(3)} E_j E_k E_l + \dots \quad (1.1)$$

Первый член в данном выражении определяет линейную поляризацию среды, члены более высоких порядков отвечают за нелинейное взаимодействие и определяют конкретные нелинейно-оптические процессы. Коэффициенты при напряженностях поля (линейные и нелинейные восприимчивости) характеризуют оптические свойства среды. Электронное и молекулярное строение материальной среды определяет конкретные значения восприимчивостей. В зависимости от типа симметрии материальной среды некоторые коэффициенты могут обратиться в нуль. В частности, для centrosymmetric среды в нуль обращается второе слагаемое. При этом основной вклад в нелинейно-оптические процессы вносит третье слагаемое. Генерация разностной и суммарной частот, параметрическая генерация, статический эффект Погкельса, генерация второй оптической гармоники и ряд других нелинейно-оптических эффектов определяются квадратичной восприимчивостью $\chi^{(2)}$. Нелинейная восприимчивость третьего порядка $\chi^{(3)}$ определяет такие эффекты, как генерацию третьей оптической гармоники; изменение показателя преломления, пропорциональное напряженности приложенного электромагнитного поля, самофокусировку и самодефокусировку, двухфотонное поглощение света, вынужденное комбинационное рассеяние света (ВКР), вынужденное рассеяние Мандельштама-Бриллюэна (ВРМБ) и т.д. [20].

При выполнении условия наличия соответствующей нелинейности все эти процессы могут быть реализованы в фотонных кристаллах. Учитывая свойства фотонной запрещенной зоны, эффективность этих нелинейно-оптических процессов в фотонных кристаллах может быть значительно

выше, чем в классических материальных средах.

При рассмотрении нелинейно-оптического взаимодействия в фотонных кристаллах, возникающего при использовании импульсных источников накачки, очень важным оказывается соотношение между пространственной длиной импульса и характерным размером образца. Как показано в [20], случай, когда первая величина существенно больше второй, является наиболее подходящим для повышения эффективности нелинейно-оптических процессов второго и третьего порядка в фотонных кристаллах.

Исследованию особенностей протекания нелинейно-оптических процессов второго порядка для различных структур с фотонной запрещенной зоной посвящено большое количество работ [165]. Одним из основных нелинейно-оптических процессов в фотонных кристаллах, наиболее изученных теоретически и экспериментально является генерация второй гармоники (ГВГ). Использование спектральных свойств фотонных кристаллов, включая наличие фотонных запрещенных зон высших порядков, позволяет реализовать условия фазового синхронизма и осуществлять ГВГ с эффективностью, существенно превосходящей эффективность этого же процесса для сплошных сред. Так, в [168] было показано, что при использовании в качестве накачки двух встречных когерентных пучков в одномерном фотонном кристалле эффективность преобразования возбуждающего излучения во вторую гармонику превышает 50%. Частота накачки в этом случае попадала в область края фотонной запрещенной зоны первого порядка, а частота второй гармоники соответствовала краю фотонной запрещенной зоны второго порядка.

Наноконпозиты, представляющие собой плоские наноструктуры, содержащие нецентросимметричные металлические включения, могут быть весьма эффективны для генерации второй оптической гармоники [167].

ГВГ была эффективно реализована в трехмерном фотонном кристалле - центросимметричной кристаллической структуре, образованной диэлектрическими сферами [166]. При этом эффективное снижение

симметрии системы было объяснено влиянием поверхности.

Нелинейно-оптические эффекты третьего порядка в структурах, обладающих фотонной запрещенной зоной, исследовались в большом количестве экспериментальных и теоретических работ [169-171]. При изучении взаимодействия мощного когерентного излучения со слоистой структурой, обладающей керровской нелинейностью, были обнаружены гармонические солитоны [172]. Это явление предполагает возможность распространения в фотонном кристалле когерентных импульсов электромагнитного излучения с частотой, находящейся внутри фотонной запрещенной зоны. Анализ нелинейного уравнения Шредингера, описывающее распространение электромагнитного излучения в таких структурах, приводит к солитонному решению при учете дисперсии групповой скорости в фотонном кристалле и, одновременно, фазовой самомодуляции из-за керровской нелинейности [173-176].

Наличие фотонной запрещенной зоны существенно меняет характер взаимодействия излучения со средой, обладающей керровской нелинейностью [177, 178]. В работе [177] была продемонстрирована возможность управления спектральным положением фотонной запрещенной зоны с использованием эффекта Керра. Этот эффект может найти практическое приложение при создании оптических ограничителей мощности, работающих на сдвиге спектрального положения фотонной запрещенной зоны. В [178] рассматривалась такая схема оптического ограничителя с использованием одномерных ФК. В [176] было реализовано уменьшение мощности лазерного излучения с длиной волны 663 нм с 500 мВт до 200 мВт (на 60%). Свойства фотонных кристаллов, обусловленные фотонной запрещенной зоной, позволяют использовать их не только в качестве спектрально селективных ограничителей мощности, но и для эффективного управления спонтанным излучением атомов (молекул). Для этих целей предлагается использовать специальные высокодобротные полости в фотонных кристаллах [179-181]. Аналогичные физические

механизмы могут быть задействованы для управления характеристиками вынужденного излучения света с использованием фотонных кристаллов [15, 182]. Пёрселлом было показано, как заданием определённых граничных условий для электромагнитного поля вблизи возбужденного атома, можно значительно повысить вероятность излучения [183]. Вероятность спонтанного перехода из начального состояния $|i\rangle$ в конечное состояние $|f\rangle$ дается хорошо известным золотым правилом Ферми [21]:

$$\Gamma = \frac{2\pi}{\hbar} |\langle f|H|i\rangle|^2 \rho(\omega) \quad (1.2)$$

H - гамильтониан взаимодействия и $\rho(\omega)$ - это плотность конечных состояний соответствующих частоте перехода ω

$$\rho(\omega) \sim \omega^2 \quad (1.3)$$

Фотонные кристаллы оказывают существенное влияние на излучательную способность атомов (молекул), находящихся в их структуре, при попадании частоты излучательного перехода в области с максимально большой плотностью фотонных состояний. Такие области соответствуют границам фотонной запрещенной зоны [4, 5, 6, 184]. При совпадении частоты перехода с границей фотонной запрещенной зоны вероятность спонтанной эмиссии существенно возрастает [185, 186]. В работах [187, 188] было экспериментально продемонстрировано усиление спонтанной эмиссии в трехмерном фотонном кристалле при соответствующем положении частоты излучения относительно ФЗЗ. Аналогичный эффект наблюдался на ридберговских атомах натрия в резонансной полости [189]. Меняя положение частоты перехода относительно спектрального положения ФЗЗ можно усиливать или подавлять спонтанную эмиссию [190]. Технологическая возможность создавать фотонные кристаллы с анизотропным распределением частотных характеристик может быть использована для создания устройств с определенной функцией распределения вероятности перехода внутри фотонного кристалла [20]. В работах [23-25] было экспериментально показано, как меняя параметры фотонной запрещенной

зоны, можно эффективно управлять пространственными и спектральными характеристиками люминесценции квантовых точек внедренных в фотонный кристалл.

В оптических экспериментах с реальными фотонными кристаллами очень важным моментом является конечный размер образцов. Граничные условия определяют число и параметры мод, возбуждаемых внутренними источниками электромагнитного излучения. Также существенным фактором влияющим на характеристики излучения в этом случае является положение источника внутри фотонного кристалла [26, 32]. Эксперименты с фотонными кристаллами в микроволновом диапазоне продемонстрировали существенное влияние конечности размера и положения излучателя на параметры эмиссии [190].

Аномально высокая плотность фотонных состояний на краях фотонной запрещенной зоны определяет эффективность протекания многих процессов. В частности, подбирая положение фотонной запрещенной зоны, можно существенно повышать эффективность процесса энергообмена между хромофорами, находящимися в структурах, обладающих ФЗЗ [186].

Таким образом, используя свойства фотонной запрещенной зоны, можно эффективно осуществлять управление процессом эмиссии электромагнитного излучения. В настоящее время активно исследуется возможность использования фотонных кристаллов для создания устройств, позволяющих осуществлять переключение между различными модами излучения, переходя от режима подавления к усилению [191].

Современное развитие оптоэлектроники ставит задачу создания субмикронных и наноразмерных устройств для обработки оптических сигналов. Свойства фотонных кристаллов, позволяющие управлять параметрами излучения, могут быть использованы при создании высокоотражающих селективных зеркал, высокодобротных резонаторов [17, 18] для повышения эффективности полупроводниковых лазеров [27], одномодовых светоизлучающих диодов [28] и антенн [29].

Широкие возможности создания фотонных кристаллов с различными параметрами могут быть использованы для улучшения характеристик существующих электронно-оптических устройств и для создания новых оптических приборов с уникальными характеристиками.

Наибольший интерес для решения практических задач представляют трёхмерные фотонные кристаллы, обладающие полной фотонной запрещенной зоной. С технологической точки зрения производство таких образцов, особенно с ФЗЗ в видимом диапазоне спектра, является достаточно трудной задачей. Достаточно высокие требования накладываются на монодисперсность и отсутствие дислокаций, чтобы избежать светорассеяния, искажающего спектральные характеристики фотонной запрещенной зоны [192-198].

§1.2 Технология производства фотонных кристаллов.

В 1991-м году Яблоновичем был создан искусственный трехмерный фотонный кристалл. Гранецентрированная кубическая решетка создавалась в диэлектрической матрице путем сверления миллиметровых цилиндрических отверстий. В «яблоновите», а именно так был назван этот первый фотонный кристалл, была реализована полная фотонная запрещенная зона в миллиметровом диапазоне длин волн [7]. Эта работа инициировала появление целого научного направления связанного с разработкой методов получения фотонных кристаллов различной размерности с фотонными запрещенными зонами в различных областях спектра электромагнитных волн. При этом разрабатываются технологии, позволяющие получать фотонные кристаллы, как с полной фотонной запрещенной зоной, так и образцы в которых фотонная запрещенная зона определяется выбором кристаллографического направления. В этом случае вводится понятие "стоп-зоны", которое соответствует фотонной запрещенной зоне в определенном направлении.

Фотонные кристаллы фактически являются оптическим аналогом обычных кристаллов различной природы, но, учитывая размеры этих структур, технология производства фотонных кристаллов существенно отличается от известных методов роста кристаллов, используемых в физике твердого тела [199-202].

Для получения ФК различной размерности используют методы литографии, интерференционной голографии, самосборки коллоидных частиц и целый ряд других методов, отличающихся как скоростью получения, так и качеством ФК [203].

Одним из наиболее технологически перспективных методов создания структур субмикронного размера, является метод наноимпринтной литографии [204, 205]. Суть данного метода заключается в прессовании тонкой пленки полимера и перенесении на неё заданной структуры. Данный метод, обладая высоким разрешением (до 10 нм), может быть использован как высокоэффективный и дешевый технологический процесс для производства двумерных фотонных кристаллов. Непосредственное прессование полимерных пленок на различных типах подложек используется для получения двумерных фотонных кристаллов на основе резиста полиметилметакрилата (ПММА) на кремниевой подложке [205].

Как и все существующие методики, метод наноимпринта обладает как преимуществами, так и недостатками, а, следовательно, и применимостью для тех или иных целей.

Производство трехмерных фотонных структур с запрещенными фотонными зонами в видимой и ближней инфракрасной областях представляет достаточно трудоемкую и дорогостоящую задачу, даже для образцов с небольшим числом слоев [206-209].

Примером модельного трехмерного фотонного кристалла с направленной фотонной запрещенной зоной являются синтетические опаловые матрицы [34-37]. По структуре эти искусственно созданные системы близки к структуре природного опала. Природный (благородный)

опал – полудрагоценный камень, добываемый в основном для производства ювелирных изделий на различных месторождениях России, Австралии, Африки и Америки. Качество благородного опала определяется размерами бездефектных участков упорядоченных сфер из кремнезема и их монодисперсностью.

Структура природного опала представляет собой кубическую гранцентрированную решётку, сформированную близкими по диаметру шарами (глобулами) кремнезёма (диоксида кремния), размеры которых обычно находятся в диапазоне от 100 до 1000 нм [35, 36]. Трансляционный период трёхмерной решетки в опалах близок к длинам волн оптического диапазона (~ 1мкм). Пустоты тетраэдрического и октаэдрического типов (с характерным размером 60-80 нм) занимают до 26% полного объёма. Размеры каналов, связывающих поры, составляют десятки нанометров [36]. Количество воды в образцах природного опала от 5 до 10 процентов.

В настоящее время существуют хорошо отработанные методы, позволяющие воссоздавать структуру, близкую к природному опалу, основанные на самосборке монодисперсных сферических коллоидных частиц. Такие методы получили широкое распространение для получения как синтетических опаловых матриц, так и других опалоподобных структур. Методы, в основе которых лежит самосборка, являются достаточно простыми, так как не требуют сложного лабораторного оборудования и позволяют получать образцы произвольных размеров.

Рассмотрим особенности данного метода на примере работы [210].

На начальной стадии синтеза монодисперсной суспензии сферических частиц проводится гидролиз тетраэтоксисилана ($\text{Si}(\text{OC}_2\text{H}_5)_4$, ТЭОС) в этаноле. Аммиак используется в качестве катализатора. Концентрации используемых компонент, в первую очередь ТЭОС и аммиака, определяют диаметр образующихся глобул. Для формирования монодисперсного распределения глобул по размерам необходимо обеспечить условия синтеза, при которых процесс зарождения глобул начинается одновременно [210,

211]. При этом, из-за разности в скоростях роста для глобул с различным диаметром, возможно образование объёмов с различным распределением по размерам. Для эффективного управления процессом формирования монодисперсного распределения необходимо, чтобы скорость протекания всего процесса бала постоянной, что требует поддержания постоянной температуры на протяжении всей реакции и по всему объёму. При согласовании этих параметров, стандартное отклонение размеров глобул от среднего при данном способе их получения может не превышать величины ~ 5%.

Полученные субмикронные частицы диоксида кремния сферической формы связываются между собой прочными силоксановыми связями (Si-O-Si). Образование этих связей происходит в процессе в процессе срастания при седиментации или специальной процедуре упрочнения. Данный способ позволяет получать сферические частицы кремнезёма с диаметром от 150 до 600 нм.

Общие принципы получения синтетических опаловых матриц методом самосборки в соответствии вышеприведенному описанию. Отличие в основном заключается в количестве компонент в процессе гидролиза и способах седиментации и дальнейшей процедуре упрочнения получаемых образцов [212]. Помимо естественной седиментации, наиболее часто используемой для получения коллоидных кристаллов, широко используется метод вертикального осаждения, основанный на осаждении кварцевых сфер на вертикальную подложку под действием капиллярных сил. В методе вертикального осаждения, подложка (тонкая тщательно очищенная стеклянная пластинка) вертикально опускается в суспензию, содержащую кварцевые субмикронные сферы (см. Рис.1.1.а). Эти сферы втягиваются капиллярными силами в мениск, образующийся на границе раздела сред. Испарение жидкости приводит к движению мениска вдоль подложки, при этом на подложке формируется пленка состоящая из нескольких слоев кварцевых сфер, которые образуют гранецентрированную кубическую

(ГЦК). решетку.

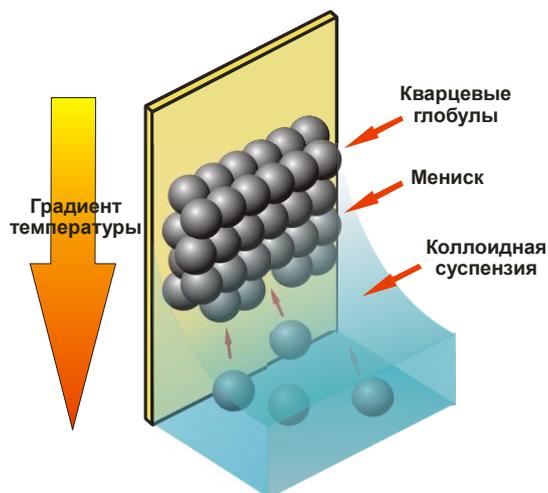


Рис.1.1.а. Схема получения коллоидных кристаллов из сферических монодисперсных частиц методом вертикального осаждения [210].

В методе естественного осаждения (естественной седиментации) суспензия монодисперсных субмикронных частиц помещается в негерметичную кювету (см. Рис.1.1.б). В кювете одновременно происходят осаждение частиц и испарение жидкости. В результате осаждения частиц под действием гравитации, а также под действием сил Ван-Дер-Ваальса, формируется плотноупакованная структура, состоящая из ростовых слоёв параллельных дну кюветы. Процесс формирования коллоидного кристалла достаточно длительный и может занимать несколько месяцев. Время формирования в основном определяется объемом суспензии и её концентрацией. Полученные таким методом синтетические опаловые матрицы после сушки обычно подвергаются термической обработке с целью упрочнения структуры за счет спекания кварцевых глобул.

В начале процесса термической обработки происходит нагрев с небольшой скоростью порядка 1градус в минуту до температуры 250⁰ С с дальнейшей выдержкой образца при постоянной температуре в течение 1 часа с целью удаления содержащейся в образце жидкости, удерживаемой в пористой структуре синтетической опаловой матрицы капиллярными силами.

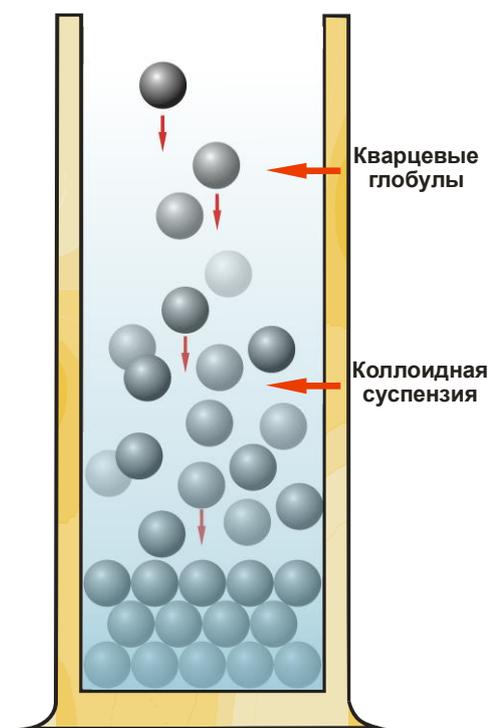


Рис.1.1.б. Схематическое изображение синтеза фотонных коллоидных кристаллов из сферических монодисперсных частиц методом естественной седиментации [210].

Затем осуществляется нагрев образца со скоростью 5 градусов в минуту до температуры порядка 700°C с последующей выдержкой при постоянной температуре в течении нескольких часов с целью удаления химически связанной воды и различных остаточных органических соединений. Для упрочнения образцов синтетических опаловых матриц они подвергаются отжигу при температуре около 1000°C . Отметим, что эта процедура упрочнения приводит к деформации глобул и отклонению их формы от идеально сферической.

Следует отметить, что метод естественной седиментации позволяет получать образцы синтетических опаловых матриц практически любого размера. Из полученных массивных образцов коллоидных кристаллов вырезаются образцы, которые непосредственно используются в эксперименте. На Рис.1.2 показан массивный образец синтетической

опаловой матрицы, после процедуры упрочнения и вырезанный образец готовый к проведению измерений.



Рис.1.2. Фотография образцов синтетического опала, синтезированных методом естественной седиментации использовавшихся в эксперименте.

Методы самосборки, к которым относится и метод естественного осаждения субмикронных кварцевых сфер под действием гравитации и метод вертикального осаждения, а также различные модификации этих методов являются основными способами получения синтетических опаловых матриц [213-216]. Использование этих методов позволяет получать образцы синтетических опаловых матриц практически произвольного размера, от пленочных коллоидных кристаллов толщиной в несколько слоёв субмикронных сфер, до объёмных образцов с характерным размером до нескольких сантиметров. Для практического использования синтетических

опаловых матриц исключительно важным является отсутствие дефектов и монодисперсность кварцевых сфер по размеру. При использовании методов самосборки отклонение размеров сфер от среднего в наиболее качественных образцах составляет ~ 5%.

В синтетических опаловых матрицах монодисперсные сферические частицы образуют плотно упакованные слои (ростовые слои), параллельные поверхности роста [199, 208, 217]. Эти слои, занимая различное положение относительно друг друга, могут образовывать структуры соответствующие гранецентрированной кубической (ГЦК), решетке, или гексагональной плотноупакованной (ГПУ) решетке. Также структура синтетических опалов может представлять собой смесь ГЦК и ГПУ структур [217].



Рис.1.3. Схематическое изображение синтетического опала, сформированного в виде гранецентрированной кубической решетки (слева) и в виде гексагональной плотноупакованной решетки (справа).

Наиболее оптимальной структурой для коллоидных кристаллов, синтезированных методами самосборки, является ГЦК структура [218]. Разница в энергиях ГЦК и ГПУ структур невелика [219]. Согласно теоретическим расчетам, при самосборке коллоидных микросфер ГЦК решетка более энергетически устойчива чем ГПУ решетка [220, 221]. Синтетические опаловые матрицы синтезированные методом вертикального осаждения преимущественно имеют ГЦК решетку (см. Рис.1.4.а и Рис.1.4.б).

На Рис.1.4.б показаны кристаллографические плоскости, характерные для ГЦК структуры. Следует отметить, что аналогичные структуры являются типичными для коллоидных кристаллов, состоящих из сфер на основе любого материала при использовании для их синтеза как метод естественной седиментации, так и метод вертикального осаждения под действием капиллярных сил.

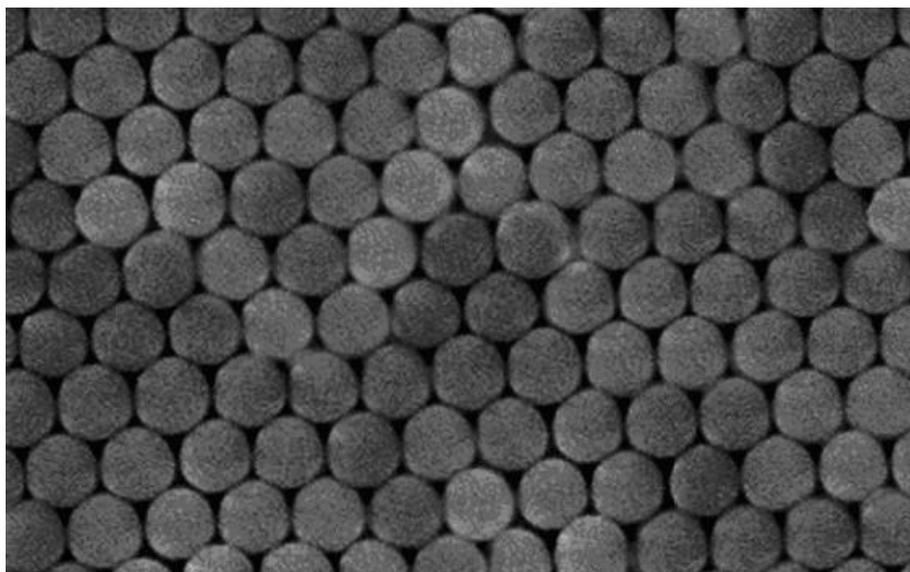


Рис.1.4.а. Электронно-микроскопическое изображение ростовой поверхности (плоскость (111)) образца синтетического опала, сформированного кремневыми глобулами диаметром 270 нм, упорядоченными под действием капиллярных сил [211].

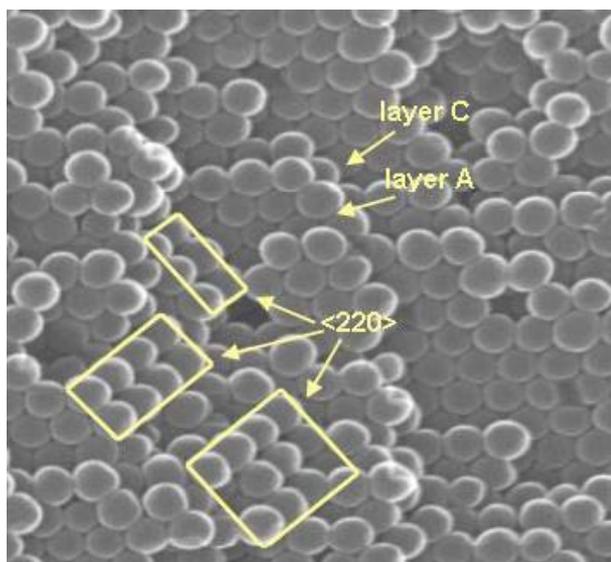


Рис.1.4.б. Электронно-микроскопическое изображение скола образца синтетического опала, сформированного глобулами из кремнезема диаметром 270 нм, упорядоченными под действием капиллярных сил. Стрелками указаны характерные для ГЦК упаковки чередование слоев (ABCABC...) и кристаллографические плоскости (220) [211].

В процессе синтеза синтетических опаловых матриц естественная ростовая анизотропия может стать причиной возникновения областей обладающих различной структурой вдоль оси роста, которая совпадает с направлением [111] ГЦК решетки [217].

Максимально разупорядоченными являются области соответствующие начальным стадиям роста кристаллической структуры. Различные области синтетической опаловой матрицы, соответствующие различным стадиям роста сильно отличаются, прежде всего, разориентацией кристаллитов относительно оси роста образца и относительно друг друга, а также количеством и видом дефектов в кристаллической структуре. Довольно часто встречающийся точечный дефект, а именно, отсутствие (вакансия) глобулы в ГЦК решетки показан на Рис.1.5.

Анализ структуры синтетических опалов, проведенный для различных областей образцов, показывает, что количество дефектов гораздо меньше в областях находящихся ближе к поверхности по сравнению с внутренними

областями, степень упорядоченности сфер на поверхности была лучше, чем внутри полученного образца. Наиболее качественные образцы синтетических опаловых матриц, которые получают методом естественной седиментации, это те, которые соответствуют более поздним стадиям роста структуры (см.Рис.1.4.а). [208].

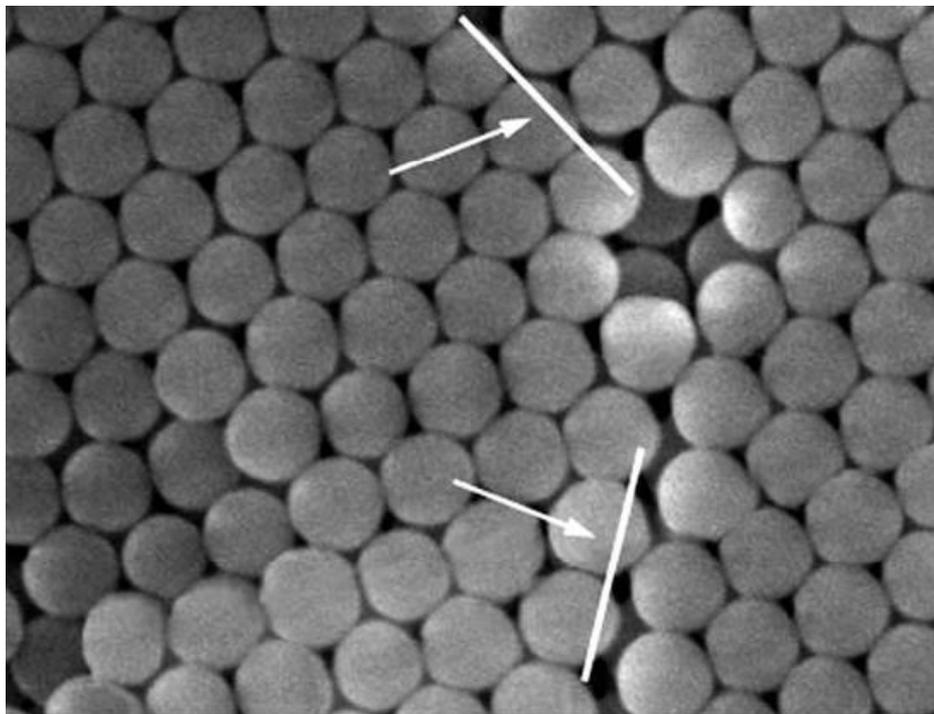


Рис.1.5. Электронно-микроскопическое изображение дефектной области в синтетическом опале, сформированном кварцевыми глобулами в структуру, близкую к ГЦК решетке [211]. Стрелками указаны сопровождающие вакансию линейные дефекты.

Существенно улучшить качество синтезируемых образцов синтетических опалов позволяет использования методов центрифугирования и электрофореза [222, 223]. Причем, эти методы позволяют не только получать образцы с минимальным количеством дефектов, но и существенно улучшить монодисперсность синтезируемых структур. На Рис.1.6. приведено изображение поверхности синтетической опаловой матрицы, для синтеза которой применялся метод центрифугирования.

Использование метода центрифугирования существенно ускоряет

процесс синтеза по сравнению с процессом естественной седиментации. В работе [213] при угловой скорости центрифугирования 4000 рад/с требуется всего 35 минут для синтеза синтетической опаловой матрицы.

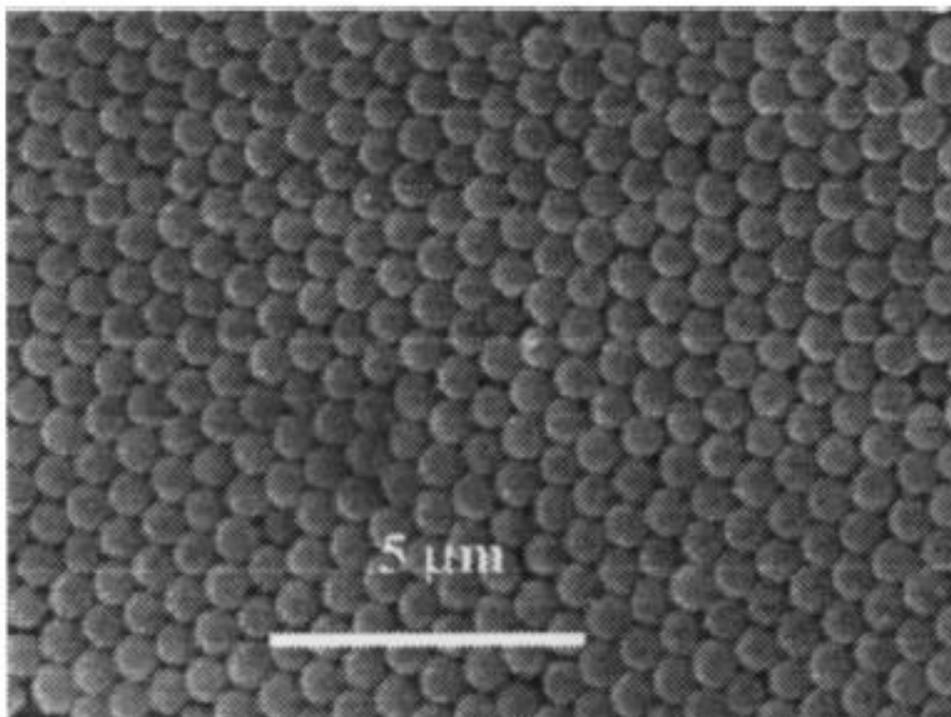


Рис.1.6. Электронно-микроскопическое изображение опала, синтезированного из кварцевых глобул методом центрифугирования. На рисунке показана бездефектная область поверхности опала, параллельной плоскости (111) [197].

В структуре синтетического опала существует, помимо решетки из кварцевых сфер, решетка из пустот октаэдрической и тетраэдрической форм с характерным размером 10-180 нм. Наличие регулярной трёхмерной структуры с возможностью её заполнения веществами с различными оптическими свойствами открывает широкие возможности для создания нанокompозитов с заданными свойствами. Для инфильтрации могут быть использованы вещества с показателем преломления, существенно отличающимся от показателя преломления кварца. Меняя контраст показателя преломления между матрицей и наполнителем можно управлять

положением фотонной запрещенной зоны в широких пределах. Заполнение синтетических опаловых матриц средами с различными линейными и нелинейными свойствами, позволяет получать нанокомпозиты обладающие определенной нелинейностью и с наперед заданным положением фотонной запрещенной зоны [223-225]. Таким образом можно существенно воздействовать на эффективность протекания того или иного нелинейно оптического процесса, управляя положением фотонной запрещенной зоны.

На сегодняшний день существует достаточно развитая технология заполнения пористых структур различными средами, что позволяет получать нанокомпозиты содержащие полупроводники, диэлектрики или проводники. В результате, используя образцы с одним размером глобул SiO_2 можно получать нанокомпозиты с фотонной запрещенной зоной в видимом и ближнем инфракрасном диапазонах при использовании для инфильтрации синтетических опаловых матриц различные среды.

В частности, синтетические опалы можно заполнять различными молекулярными жидкостями, активными в смысле неупругого спонтанного рассеяния света. Варьируя положение фотонной запрещенной зоны можно подобрать условия максимальной эффективности процесса рассеяния. Кроме того, заполнение синтетических опалов молекулярными жидкостями с показателем преломления близким по значению к показателю преломления кварца, делало их прозрачными в видимом диапазоне, что позволяло наблюдать рассеяние света не только в обратном, но и в прямом направлении. Фотография типичного образца синтетической опаловой матрицы, заполненной водой, представлена на Рис.1.7

Учитывая особенности структуры синтетических опаловых матриц, в том числе, наличие структуры внутри кварцевых глобул, которые не заполняются в процессе инфильтрации, зная объемные доли веществ, можно рассчитать эффективный показатель преломления получившегося нанокомпозита. Экспериментально, эффективность заполнения, а также количество вещества в нанокомпозите, можно определять по сравнению

массы (плотности) образца до инфильтрации и после [226]. Если инфильтрация не полная, то в нанокompозите возможно образование фрактальных структур [20].

Синтетические опаловые матрицы, инфильтрованные наполнителем, могут быть использованы в качестве основы для синтеза инвертированных опалов.



Рис.1.7. Фотография образца синтетического опала, инфильтрованного водой.

Инвертированные опаловые матрицы представляют собой трехмерные фотонные кристаллы, в которых полости соответствуют положению кварцевых сфер и образуются в результате их травления. Трёхмерная решетка сферических полостей занимает 26% объёма образца. Каркас структуры, в которой находится эта решетка, образуется из вещества, которым была инфильтрована опаловая матрица до процесса начала травления [208, 227, 228]. Инвертированные опаловые матрицы могут быть использованы для создания различных нанокompозитов путем инфильтрации

различными средами. Такие нанокomпозиты могут обладать контрастом показателя преломления значительно большим, чем нанокomпозиты на основе обычных синтетических опалов. Это обстоятельство может быть использовано для создания трехмерных фотонных кристаллов обладающих полной фотонной запрещенной зоной. Инвертированные опалы обладают опалесценцией в широком спектре длин волн [208].

Получение образцов, обладающих полной запрещенной зоной, является трудно реализуемой задачей, прежде всего из-за проблем связанных с несовершенством поверхности образцов, механическими разрушениями в матрице, возникающими при операциях сушки и упрочнения образцов, а также с неполным заполнением матриц. Параметры фотонной запрещенной зоны, прежде всего её ширина, определяются степенью периодичности структуры. Возможно создание образцов инвертированных опаловых матриц с относительной шириной около 0,15 для инфракрасной области спектра [201]. Инфильтрация решетки пустот инвертированной опаловой матрицы веществами с различной диэлектрической проницаемостью позволяет менять характеристики фотонной запрещенной зоной в в гораздо более широких пределах чем для обычных опаловых матриц [32]. Одним из важных факторов ограничивающих практическое применение инвертированных опаловых матриц, является их низкая механическая прочность. Структура инвертированного опала механически слабая. Существует ряд методов, основанных на приложении к инвертированному опалу давления, позволяющих существенно упрочнить образцы, но механическое упрочнение зачастую меняет положение фотонной запрещенной зоны [32, 199]. Отметим, что для обычных опаловых матриц механическую прочность улучшают путем отжига опала. Технологический процесс получения инвертированных опаловых матриц является весьма трудоёмким, его проведение оправдано теми преимуществами, которыми обладают инвертированные опалы по сравнению с обычными опалами, а именно, возможность получения образцов обладающих полной фотонной запрещенной зоной при контрасте

показателей преломления значительно меньшем чем в нанокompозитах на основе обычных синтетических опалах [151]. Экспериментально были получены образцы инвертированных опаловых матриц с кремнием, обладающие фотонными запрещёнными зонами в направлении роста, причем, менять параметры этих зон в достаточно широких пределах возможно инфльтрацией образцов [37,] или их многослойным покрытием [208].

В [210] было показано, как один из наиболее часто применяемых методов получения полупроводников с заданной шириной запрещенной зоны, основанный на использовании твердых растворов, может быть применен для получения фотонных кристаллов с заданными параметрами фотонной запрещенной зоны. Для двух фотонных кристаллов с одинаковой структурой, но с различными фотонными запрещенными зонами, путем синтеза фотонного кристалла промежуточного типа, можно получить образец с заданными параметрами фотонной запрещенной зоны. Очевидно, что при определенной структуре фотонного кристалла, ширина фотонной запрещенной зоны будет тем больше, чем больше отношение диэлектрических проницаемостей материала каркаса и наполнителя [218]. Логичным является использование инвертированной опаловой матрицы с каркасом из кварца [223] в качестве фотонного кристалла обладающего узкой фотонной зоной, а в качестве фотонного кристалла с широкой фотонной зоной, использование инвертированной опаловой матрицы с оксидом цинка.

Очевидно, что фотонно-кристаллические структуры, обладающие полной фотонной запрещенной зоной в оптическом диапазоне электромагнитного спектра, могут быть созданы с использованием инвертированных опалов [32, 201]. Важным обстоятельством, расширяющим возможность практического применения инвертированных фотонных структур, является возможность использовать самые различные вещества - диэлектрики, полупроводники или проводники [199].

Качество получаемых на сегодняшний день образцов во многом

определяется технологическими особенностями, существующими в различных лабораториях. Наиболее качественными являются пленочные опалы. В настоящее время, удаётся получать пленочные опалы с концентрацией дефектов, уменьшенной более чем в 100 раз по сравнению с объемными опалами, имеющими до 1 дефекта на 100 элементарных ячеек .

Оптические свойства и, соответственно возможность практического применения, определяются качеством синтетических опаловых матриц. Для использования в различных оптических схемах бездефектные области поверхности фотонного кристалла должны быть не меньше 1000 мкм^2 [230]. Поэтому исключительно важной задачей при получении фотонных кристаллов является разработка методов позволяющих получать максимально упорядоченные структуры с минимальным количеством дефектов, а также изучение влияния особенностей существующих у реальных фотонных структур на параметры фотонной запрещенной зоны [228, 230].

§1.3 Оптические свойства синтетических опаловых матриц.

Оптические свойства синтетических опаловых матриц определяются характеристиками их фотонной запрещенной зоны. Для трехмерных фотонных кристаллов расчет параметров фотонной запрещенной зоны представляет достаточно трудоёмкую задачу. Задача определения параметров фотонной запрещенной зоны существенно упрощается, если возможно перейти к описанию распространения электромагнитного излучения по направлению, допускающему для описания модель одномерного фотонного кристалла. Такой подход применим в случае распространения излучения вдоль направления роста [111]. Рассмотрим процесс образования фотонной запрещенной зоны при распространении излучения в направлении роста. Обозначим символом b_{111} вектор обратной решетки вдоль кристаллографического направления [111], причем модуль $b_{111} = 2\pi/d$, где d - межплоскостное расстояние в направлении (111). В случае синтетического

опала это межплоскостное расстояние задается размерами сфер (R- радиусом) образующих матрицу:

$$d=d_{111}= R (8/3)^{0.5} = R1,63 \quad (1.4)$$

Условие брэгговского рассеяния света с волновым вектором $|\mathbf{k}| = k = 2\pi/\lambda$ на системе плоскостей (111), по аналогии с рассеянием рентгеновских лучей на наборе атомных плоскостей, имеет вид: $|b_{111}|^2 = -2kb_{111}$

Это выражение можно переписать используя длину волны:

$$\lambda_{\text{фзз}} = 2dn_{\text{эфф}}\cos\theta \quad (1.5)$$

где $\lambda_{\text{фзз}}$ – длина волны электромагнитного излучения соответствующая минимальному значению коэффициента пропускания, то есть фотонной запрещенной зоне, $n_{\text{эфф}}$ – эффективный показатель преломления, θ – угол падения электромагнитного излучения на опаловую матрицу.

Или, с учетом (1.4):

$$\lambda_{\text{фзз}} = 2R(8/3)^{0.5}n_{\text{эфф}}\cos\theta \quad (1.6)$$

где R – радиус глобул диоксида кремния.

Эффективный показатель преломления определяется следующим выражением:

$$n_{\text{эфф}} = \sqrt{(1-f)n_{\text{SiO}_2}^2 + fn^2} \quad (1.7)$$

где величина f определяет часть объема образца которая заполнена нелинейной средой. Её значение около 26% ($f \leq 0.26$).

Если падение света на поверхность образца отличается от нормального, то надо принимать во внимание преломление света на границе раздела двух сред: фотонного кристалла и среды в которой он находится (воздух). Тогда выражение определяющее спектральное положение фотонной запрещенной зоны при дифракции света на плоскостях роста с учетом преломления будет иметь

$$\lambda_{\text{фзз}} = 2d_{(111)}\sqrt{n_{\text{эфф}}^2 - \sin^2\theta} \quad (1.8)$$

Обозначения использованные в (1.8) соответствуют обозначением формуле

(1.6).

Как следует из (1.6) и (1.8), положение фотонной запрещенной зоны при использовании синтетических опаловых матриц достаточно легко менять в широких пределах, используя опалы с различным размером глобул, либо изменяя угол падения излучения на образец.

Так как информация о параметрах фотонной запрещенной зоны синтетических опалов, а также информация о её трансформации при изменении условий освещения, определяют основные характеристики трехмерной структуры опала, то, методы, основанные на анализе дифракции света, являются весьма эффективными для исследования особенностей этой структуры. В отличие от методов основанных на применении электронной микроскопии, которые гораздо более сложны в технологическом плане, а также, в ряде случаев, являются деструктивными.

Исследование дифракции излучения видимого диапазона спектра, используемое для проведения структурного анализа синтетических опаловых матриц, попадая в диапазон частот, где находится фотонная запрещенная зона, позволяет получать информацию, как о параметрах решетки, так и о степени её совершенства [226]. Для проведения структурного анализа опаловых матриц наиболее эффективным методом является исследование спектров отражения от ростовой поверхности [217].

Рассмотрим применение данного подхода для проведения структурного анализа опалов, как это сделано в [226].

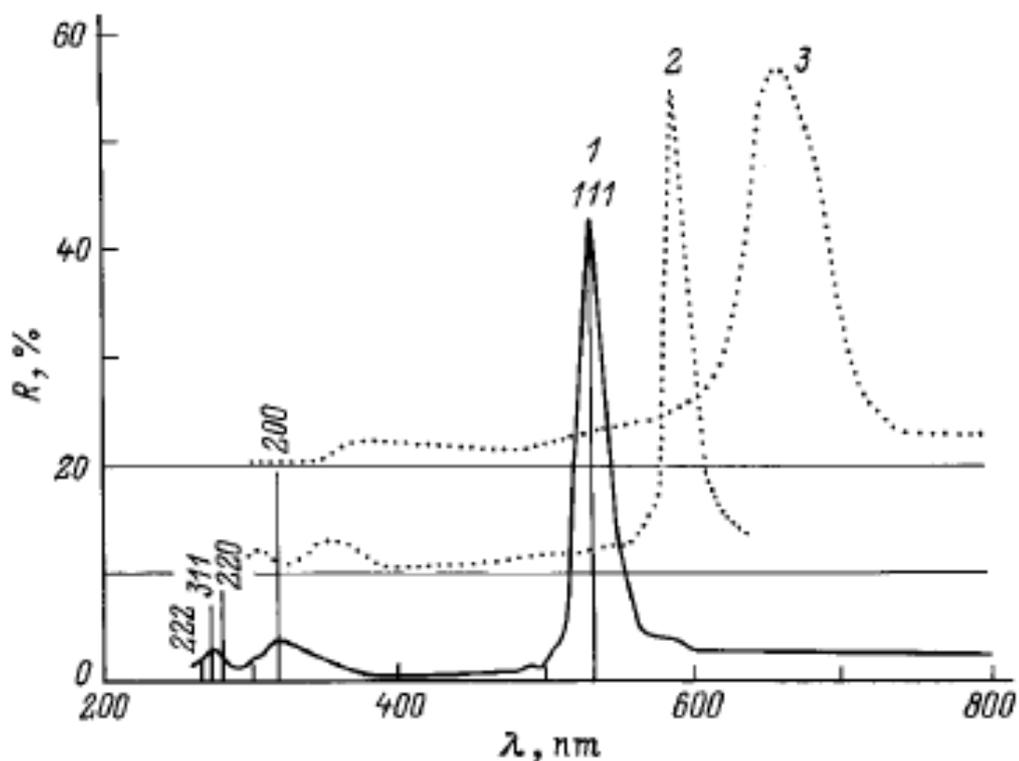


Рис.1.8. Спектр зеркального отражения опала (1) представлен в виде зависимости относительной интенсивности пропускания от длины волны. Вертикальными линиями показаны положения рефлексов, рассчитанных по формуле (1.6), исходя из электронно-микроскопических данных о размерах опаловых глобул. Пунктирными линиями изображены спектры зеркального отражения от опала с наполнителями пустот: (2) глицерин, (3) сера. Высота пиков для различных плоскостей ГЦК решетки отсчитывается относительно плоскости (111), чья высота принята за 100%. [226]. В реальности, интенсивности отражения от плоскостей, отличных от (111), значительно меньше.

Максимумы на спектре отражения (Рис.1.8) являются результатом интерференции дифрагировавшего на плоскостях электромагнитного излучения. Изменение положения максимумов на спектре в сторону увеличения длин волн обусловлено увеличением значения показателя преломления среды, которая использовалась для инфильтрации образцов. При инфильтрации синтетических опалов веществами с показателем

преломления, сильно отличающимся от показателя преломления кварца, в образцах возникает сильное светорассеяние. Это обстоятельство затрудняет точное определение значения эффективного показателя преломления для случая использования серы. Для других образцов были получены данные о структуре (Таб.1.1).

Таблица 1.1. Значения эффективного показателя преломления искусственного опала и наноккомпозитов на его основе с постоянной кристаллической решетки $d = 354$ нм и диаметром кремневых глобул $D = 250$ нм в направлении (111) в условии зеркального отражения (при угле 8°) [226]

Длина волны падающего излучения λ , нм	Межплоскостное расстояние в направлении [111], нм	Диаметр глобул, нм	Описание образца	Эффективный показатель преломления $n_{эфф}$
500-600	205	250	Незаполненный опал	1,27
			Опал, насыщенный водой	1,35
			Опал, насыщенный глицерином	1,40

Используя значения диаметра кварцевых глобул, полученные с использованием электронной микроскопии, и используя выражение (1.6), для случая отражения света от плоскости роста незаполненной опаловой матрицы почти при нормальном падении (82°), для образца спектр

зеркального отражения которого приведен на рисунке 1.8, расчетное значение фотонной запрещенной зоны составляло 530 нм. Это значение совпадает с экспериментально определенным (Рис.1.8). Рассчитанные значения положения фотонных запрещенных зон для синтетических опалов, инфильтрованных серой и глицерином, находятся в согласии с экспериментально полученными значениями.

Очевидным фактом является соответствия спектров пропускания и отражения. Минимум в спектре пропускания совпадает с максимумом в спектре отражения. Для определения спектрального положения фотонной запрещенной зоны можно использовать спектры пропускания образца [231].

Одним из основных способов получения информации о параметрах (ширины и положения) фотонной запрещенной зоны является измерение спектров пропускания и отражения [217]. Оценить уровень монокристаллического совершенства позволяет анализ спектров пропускания. Глубина провала в спектрах пропускания характеризует степень монокристаллического совершенства синтетического опала.

В целом ряде работ [201, 208, 211, 217, 226] экспериментально исследовалась ширина провала в спектре пропускания (ширина максимума в спектре отражения) в зависимости от качества образцов. Результат отражения света от верхней, более совершенной части образцов, представлял собой набор достаточно резких максимумов, являющихся результатом брегговской дифракции на нескольких плоскостях роста [111]. При исследовании спектров отражения от нижней части образцов наблюдалось уширение максимумов в спектрах отражения. Аналогичная ситуация имеет место при проведении рентгеноструктурного анализа поликристаллических объектов [217]. Степень совершенства образцов напрямую связана с изменением параметров отраженного и прошедшего образец излучения. В наиболее совершенных по структуре опалах порядок ослабления сигнала достигает 2.5 раз [226].

На Рис.1.9.а показаны спектры пропускания образцов синтетических

опаловых матриц, соответствующих различным стадиям роста и, соответственно, с различной степенью совершенства кристаллической структуры.

На Рис.1.9.б продемонстрировано смещение минимума в спектре пропускания и, соответственно смещение положения фотонной запрещенной зоны, при изменении угла падения излучения на синтетический опал. Параметры фотонной запрещенной зоны достаточно легко менять путем использования для инфильтрации среды с различным показателем преломления, но для образца с заданным контрастом показателя преломления ширину фотонной запрещенной зоны можно менять в достаточно широком пределе, меняя угол падения излучения на кристалл [232].

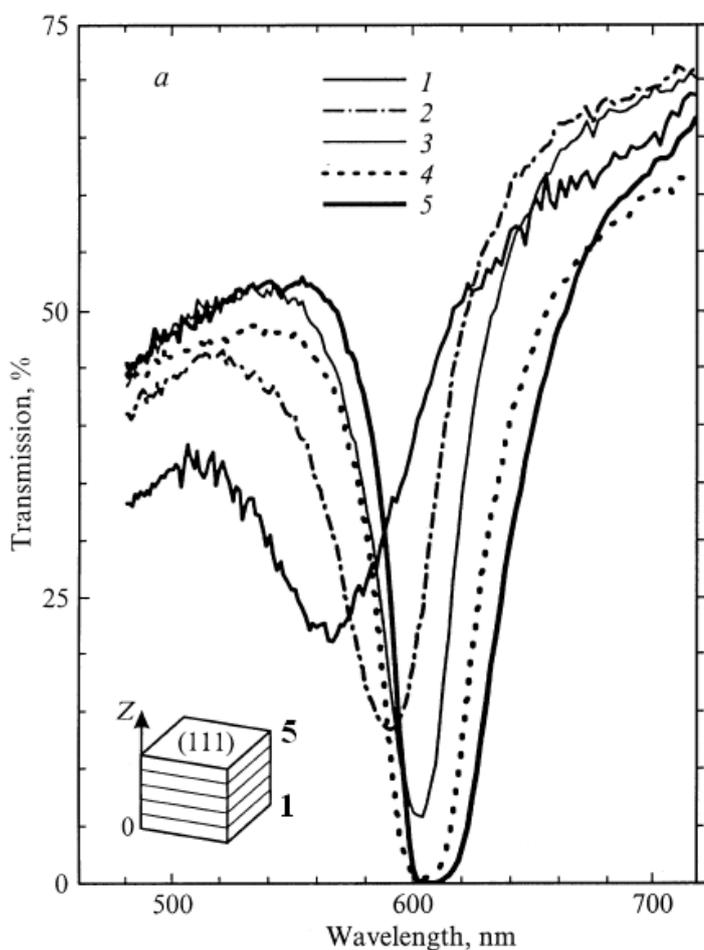


Рис.1.9.а. Спектр пропускания синтетической опаловой матрицы при

нормальном падении света в зависимости от стадии роста, соответствующей образцу (от более ранних (1) до более поздних (5)) [217] .

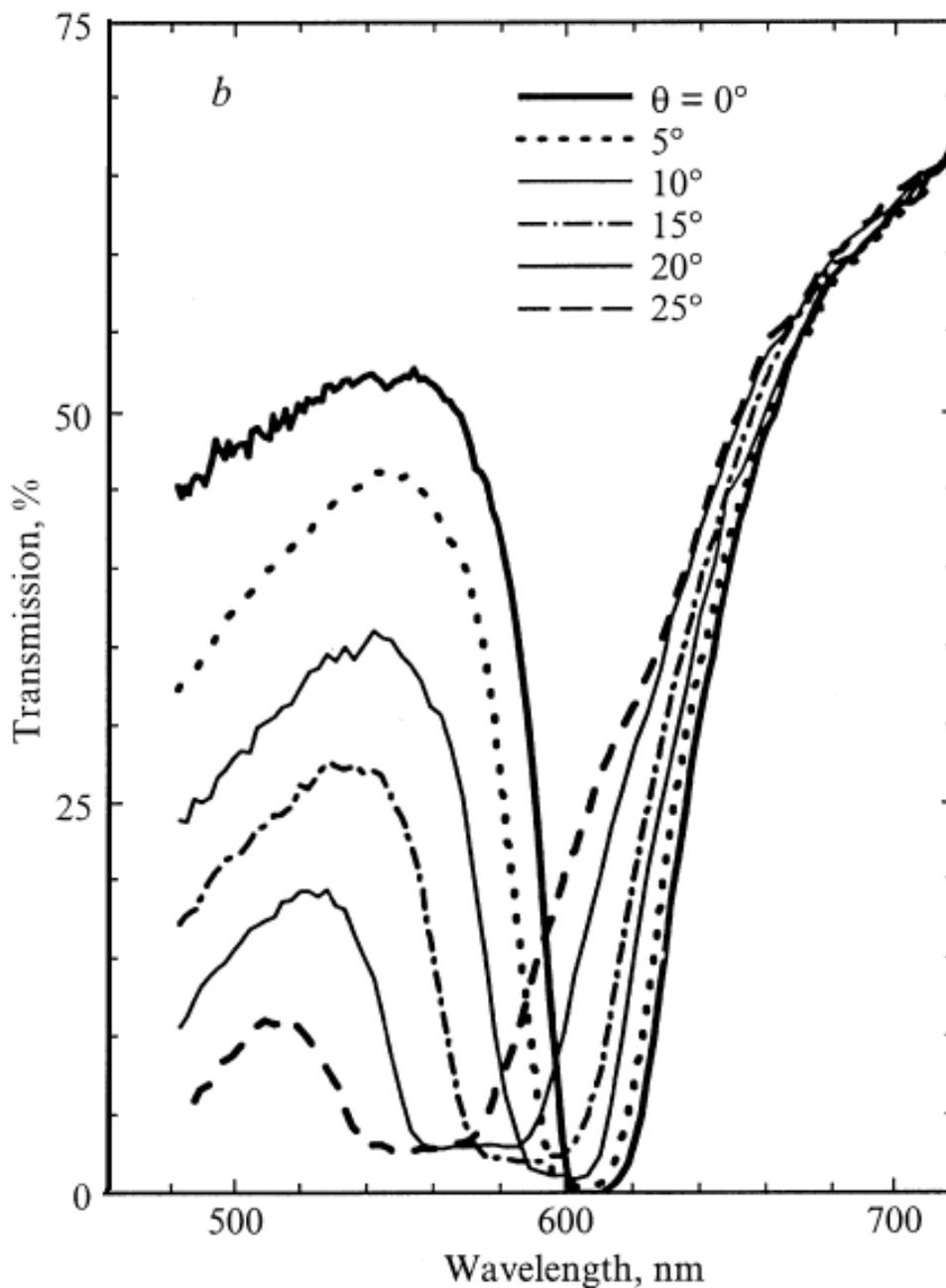


Рис.1.9.б. Спектр пропускания синтетической опаловой матрицы в зависимости от угла падения возбуждающего излучения на поверхность (для образца, соответствующего наиболее поздней стадии роста) представлен в виде зависимости интенсивности пропускания от длины волны [217] .

Существенное влияние на спектральное распределение излучения

прошедшего через образец (и, соответственно, отраженного от него) оказывает изменение пропускания вследствие изменения контраста показателя преломления. При заполнении синтетического опала средой, уменьшающей контраст, например водой, увеличивается пропускание образца (Рис.1.10). Одновременно происходит смещение минимума в пропускании от значения, полученного по результатам (см. Табл.1.1).

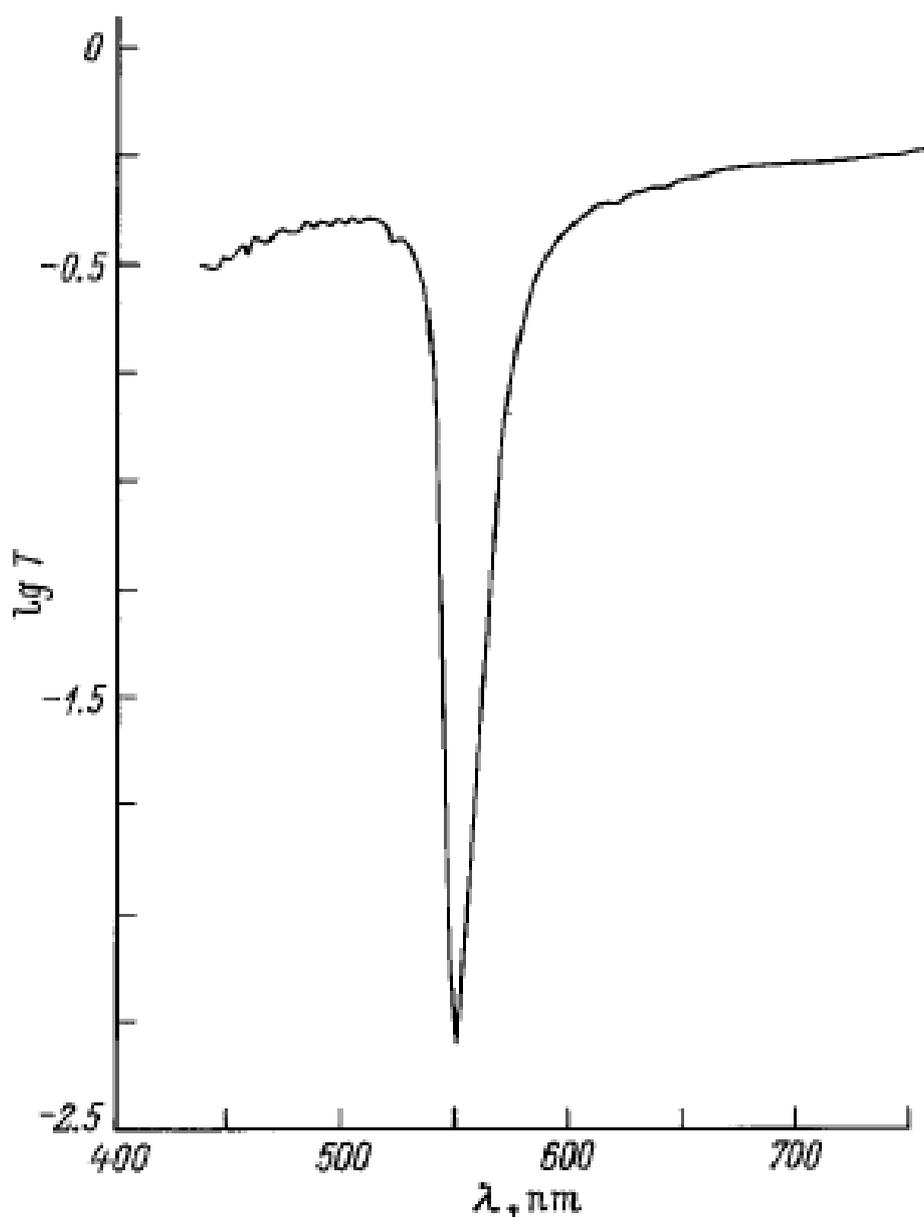


Рис.1.10. Спектр пропускания образца синтетического опала, инфильтрованного водой [198]. По оси ординат отложена логарифмическая интенсивность пропускания, по оси абсцисс - длина волны рассеянного света

При использовании для инфильтрации синтетических опаловых матриц различных жидкостей, получают наноконпозиты обладающие различными фотонными зонами, как по спектральному положению, так и по форме (Рис.1.11.а,б).

Глубина провала, а также его ширина, в спектре пропускания изменяются при изменении значения относительного показателя преломления (отношения показателя преломления среды, инфильтрованной в матрицу, к показателю преломления диоксида кремния) (Рис.1.11.а). Максимальная глубина провала реализуется для случая максимального контраста и этому же случаю соответствует максимальная ширина минимума в спектре пропускания.

Положение минимума в спектре пропускания наноконпозита является линейной функцией показателя преломления жидкости использованной для инфильтрации (Рис.1.11.б).

Способ характеристики наноконпозитов на основе синтетических опалов, при котором информация об оптических свойствах образцов получают из анализа спектров пропускания полученных для матриц заполненных средами с различным показателем преломления, известен как метод иммерсионной спектроскопии [198, 233]. С помощью иммерсионной спектроскопии был обнаружен и исследован эффект иммерсионного исчезновения, заключающийся в исчезновении фотонной запрещенной зоны при заполнении опаловой матрицы веществом с показателем преломления близким к показателю преломления диоксида кремния..

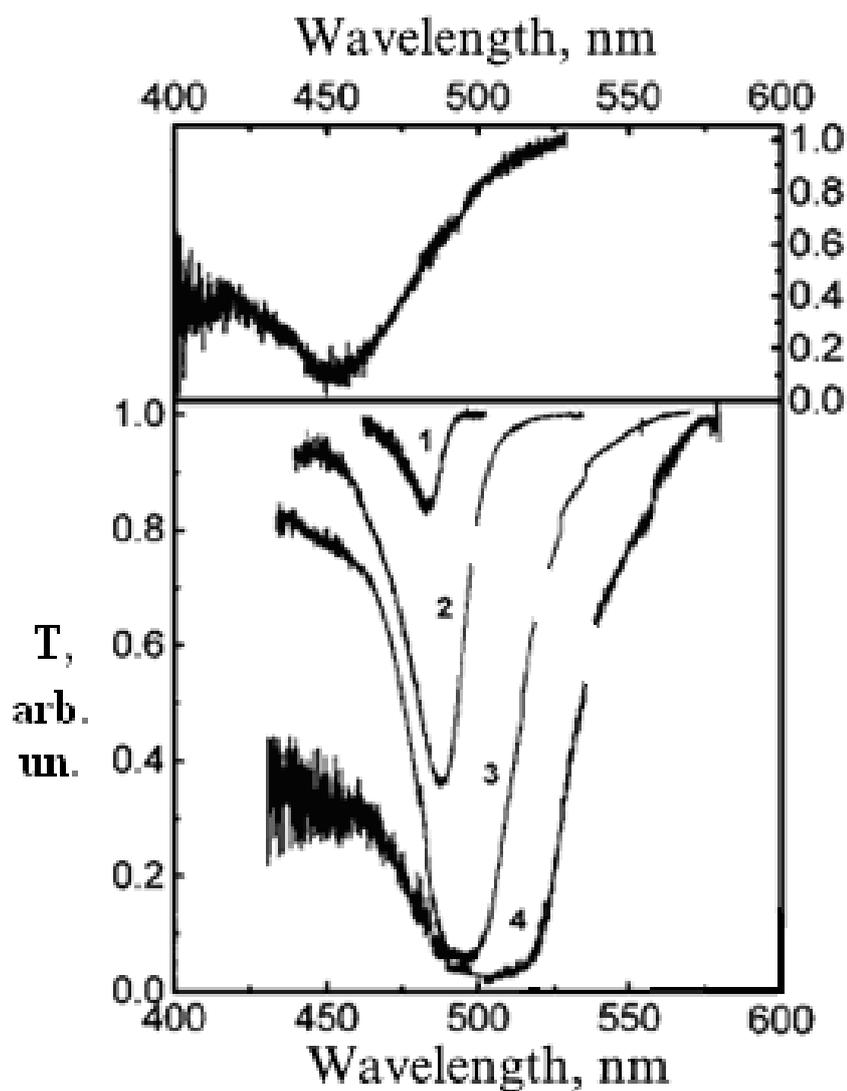


Рис.1.11.а. Спектр пропускания синтетической опаловой матрицы (вверху) и той же матрицы, заполненной молекулярными жидкостями (внизу): (1) метанол, $n' = 1,328$; (2) этанол, $n' = 1,361$; (3) циклогексан, $n' = 1,426$; (4) толуол, $n' = 1,479$. По оси ординат отложена относительная интенсивность прошедшего образца излучения [198, 234].

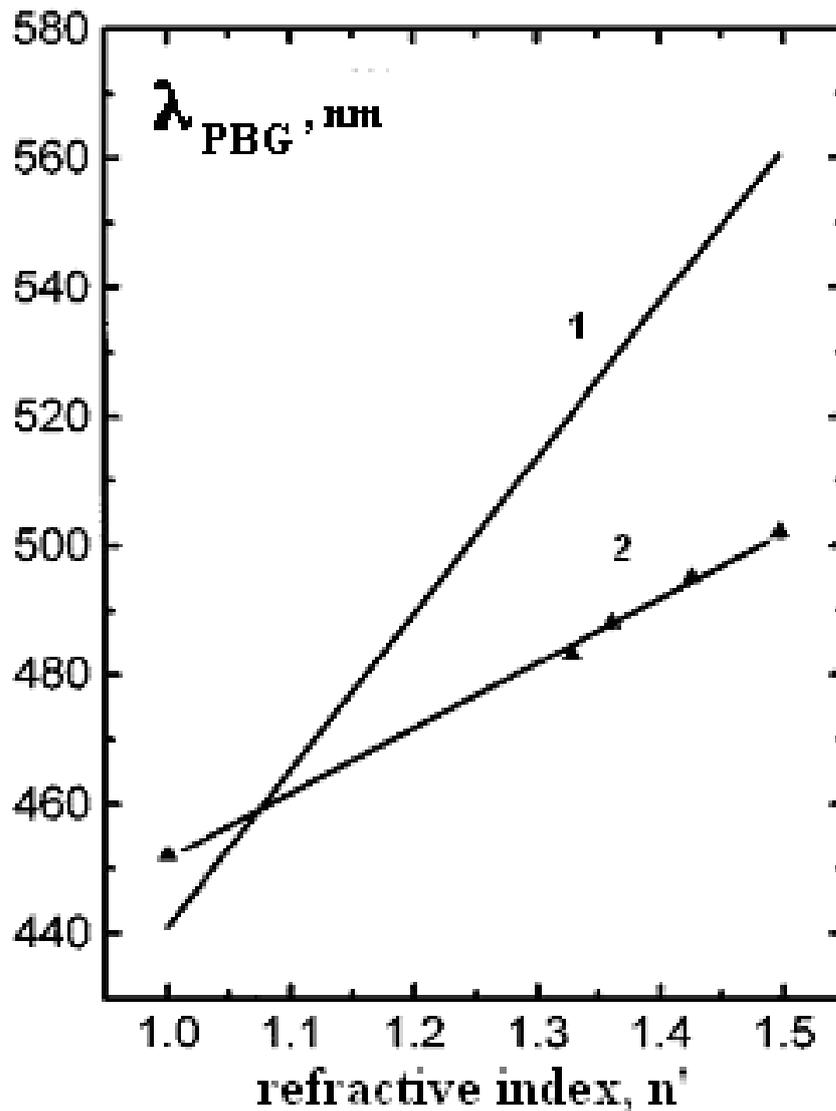


Рис.1.11.б. Экспериментальная (2) и теоретическая (1) зависимости спектрального положения стоп-зоны фотонного кристалла (λ_{PBG} , нм) на основе синтетической опаловой матрицы от показателя преломления заполняющей молекулярной жидкости [198, 236].

С помощью метода иммерсионной спектроскопии было экспериментально обнаружено исчезновение брэгговской дифракции на различных системах кристаллографических плоскостей ГЦК решетки опаловых матриц, в случае их заполнения средами с различным показателем преломления. Использование этого метода [224], позволило показать, что глобулы диоксида кремния, образующие синтетические опаловые матрицы,

имеют неоднородную внутреннюю структуру, а именно, состоят из более мелких частиц аморфного кварца, образующих плотно упакованную структуру. В реальном синтетическом опале, помимо разброса сфер по размеру, существует неоднородность диэлектрической проницаемости внутри самой сферы.

На сегодняшний день существует огромное количество экспериментальных и теоретических работ, в которых исследуются оптические свойства синтетических опаловых матриц и нанокompозитов на их основе. Но достаточно развитая технология получения синтетических опаловых матриц и опалоподобных структур позволяет получать новые нанокompозиты, что делает исследование их свойств весьма актуальной задачей.

Особенно актуальным и развивающимся направлением физики фотонных кристаллов является исследование фотон-фононного взаимодействия в таких структурах. Прежде всего исследования такого взаимодействия связаны с изучением собственных акустических колебаний глобул, которые образуют данные структуры. Исследования в этом направлении ведутся не только для опалоподобных структур, но и для неупорядоченных систем, таких как ансамбли наночастиц случайным образом распределенных в твердой или жидкой матрице [39-49].

Рассматривая синтетическую опаловую матрицу как структуру, обладающую пространственной модуляцией акустических свойств на масштабе порядка сотни нанометров, можно утверждать, что она обладает свойствами фононного кристалла для акустических частот гигагерцового диапазона спектра. Таким образом, потенциально, синтетические опалы могут быть использованы в качестве сред значительно усиливающих эффективность фотон-фононного взаимодействия. Важным обстоятельством является тот факт, что собственные акустические частоты кварцевых сфер опала, имеющие размер порядка сотен нанометров, также попадают в гигагерцовый диапазон.

Исследование акустических характеристик опалоподобных структур началось сравнительно недавно. В работе [39] впервые было реализовано спонтанное рассеяние света на собственных акустических колебаниях кварцевых сфер, образующих опаловую матрицу. Были получены спектры спонтанного рассеяния лазерного излучения с длиной волны 514,5 нм. Были проведены измерения спектральных характеристик рассеянного излучения для матриц с размером сфер 204, 237, 284 и 340 нм. Было зарегистрировано 7 стоксовых и 7 антистоксовых компонент (Рис.1.12).

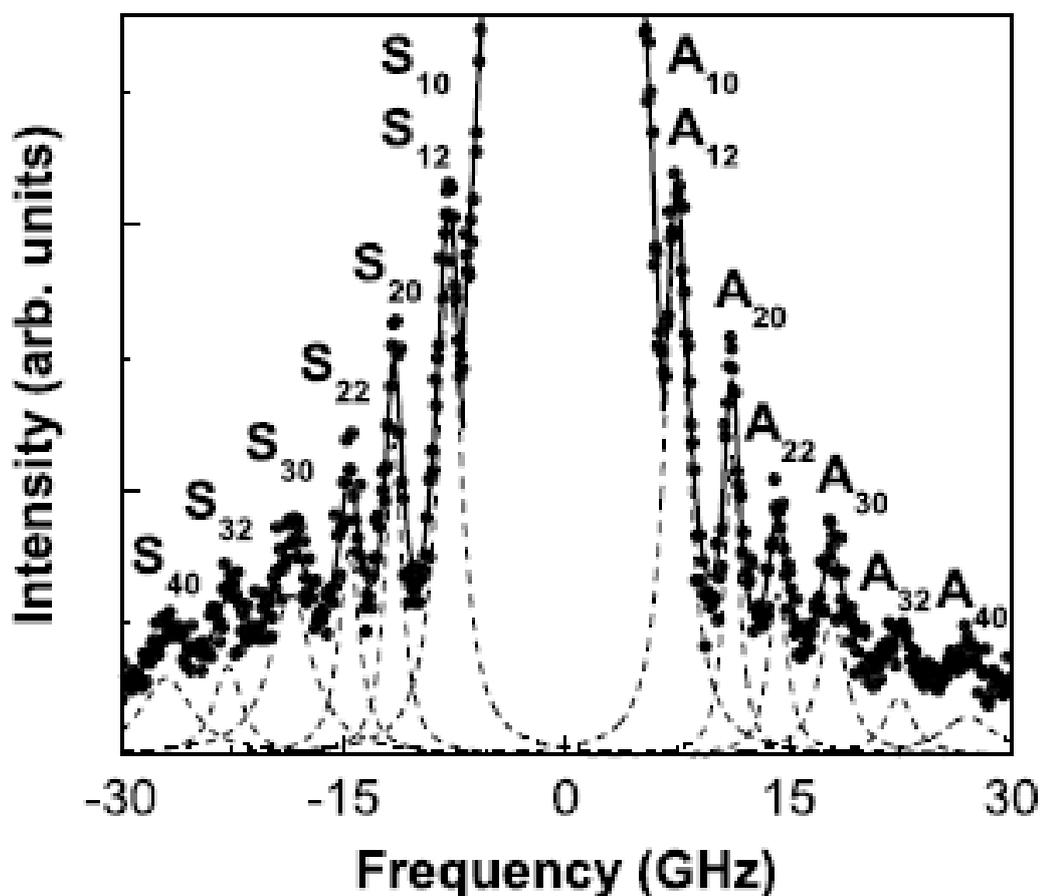


Рис. 1.12. Экспериментальный спектр нанорезонаторного рассеяния света в синтетическом опале [39]. По оси ординат отложена интенсивность рассеяния, по оси абсцисс – сдвиг частот относительно линии возбуждающего излучения в ГГц. Буквами S и A обозначены стоксовы и соответственно антистоксовы компоненты спектра рассеянного света.

Спектральное смещение рассеянных компонент лежало в диапазоне частот от 7 до 27 ГГц. ц. Использование монодисперсных образцов синтетических опалов (3%) обуславливает узкие спектральные линии стоксовых и антистоксовых компонент рассеяния. Частотные смещения рассеянных компонент относительно лазерного излучения были одинаковы для различных геометрии освещения и геометрии детектирования рассеянного излучения. То есть частотные характеристики данного рассеяния не зависят от волнового вектора лазерного излучения. Наличие нескольких образцов синтетических опаловых матриц, состоящих из сфер одного размера, позволило экспериментально получить зависимость частотного смещения рассеянного излучения от диаметра этих сфер (см. Рис.1.13).

Теоретическое описание собственных колебаний кварцевых глобул, проведенное с использованием подхода развитого Лэмбом [235], рассматривающим акустические моды однородного упругого шара со свободной поверхностью, дали удовлетворительное согласие с экспериментально наблюдаемыми частотными смещениями. Однозначным следствием данной работы является вывод о существовании неупругого спонтанного рассеяния света в опалоподобных структурах, которое является результатом взаимодействия электромагнитного излучения с собственными акустическими колебаниями элементов, образующих такие структуры. [39]

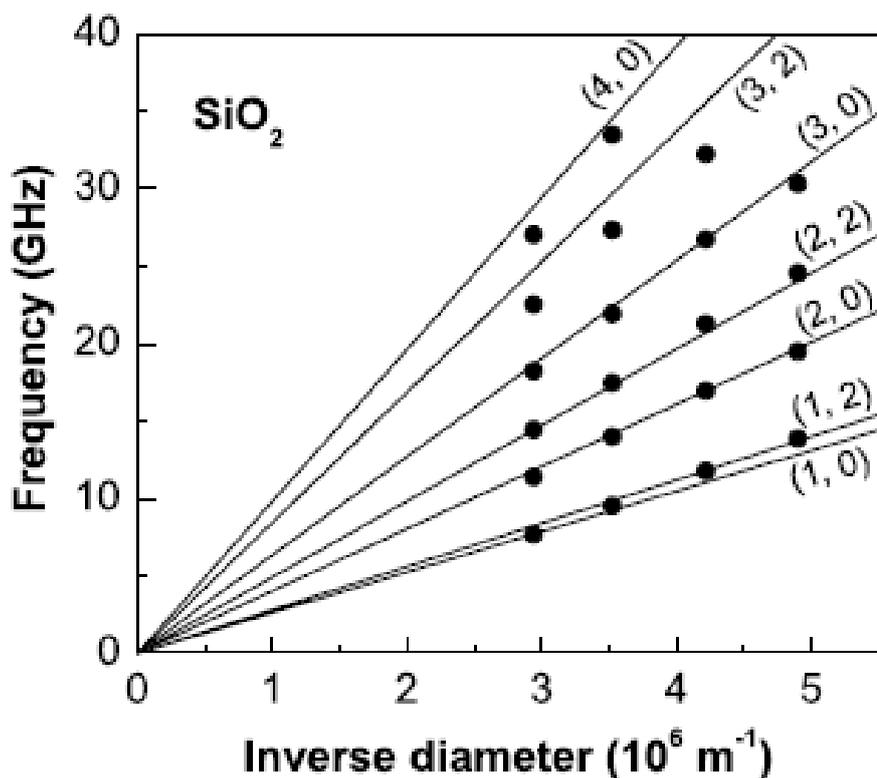


Рис.1.13. Зависимость частотного смещения пиков рассеяния относительно частоты падающего на систему излучения синтетическом опале от диаметра глобулы [39] для разных акустических мод (в скобках указаны пары соответствующих квантовых чисел n, l). По оси ординат отложены частоты в ГГц, по горизонтали – обратный диаметр глобулы в 10^6 м^{-1} .

Таким образом, наблюдаемые резонансы, обусловленные морфологией наноразмерных структур, проявляются в экспериментах по изучению взаимодействия таких систем с электромагнитным излучением. Следует отметить, что в таких экспериментах, определяющими являются свойства отдельной наночастицы, образующей такую систему. Анализ спектров низкочастотного комбинационного рассеяния света в таких системах позволяет получать информацию как о свойствах индивидуальной наночастицы, а именно, упругих константах, форме и размере, так и о распределении наночастиц по размерам [237].

Заключение.

В данной главе приведен обзор работ по особенностям строения и оптическим свойствам наноразмерных систем. Особое внимание уделено работам, в которых рассматриваются свойства и процесс синтеза синтетических опаловых матриц. Оптические и морфологические особенности нанокompозитов на основе синтетических опаловых матриц приводят к проявлению ряда особенностей в нелинейно-оптическом взаимодействии таких систем с импульсным лазерным излучением. Экспериментальные результаты такого исследования приведены в 3 и 4 главах диссертации.

ГЛАВА 2.

ВЫНУЖДЕННОЕ КОМБИНАЦИОННОЕ РАССЕЙАНИЕ СВЕТА В НАНОКОМПОЗИТАХ НА ОСНОВЕ СИНТЕТИЧЕСКИХ ОПАЛОВЫХ МАТРИЦ.

§ 2.1. Введение

Открытие Л.И. Мандельштамом и Г.С. Ландсбергом спонтанного комбинационного рассеяния (КР) света в 1928 году, являющегося результатом модуляции падающей электромагнитной волны собственными колебательными процессами активной среды [238,239], вызвало появление нового направления в физике, а именно, спектроскопии комбинационного рассеяния света.

Учитывая, что спектр комбинационного рассеяния света является индивидуальной оптической характеристикой молекулы, его, как правило, используют для надежной идентификации рассеивающей среды. Надежным методом, позволяющим существенно дополнить информацию, получаемую из спектров КР света, является спектроскопия инфракрасного поглощения.

По условиям симметрии не все линии, проявляющиеся в спектрах КР, проявляются в инфракрасном спектре поглощения, и наоборот, т.е. спектры комбинационного рассеяния и инфракрасного поглощения не просто повторяют друг друга, а в ряде случаев дополняют друг друга [240]. Таким образом, спонтанное комбинационное рассеяние света, являясь, по сути, фундаментальным физическим эффектом, имеет огромное прикладное значение, представляет на сегодня одну из основных спектральных методик, активно используемых в химии, физике, биологии и т.д..

Интенсивность линий спонтанного комбинационного рассеяния света невелика и составляет величину порядка 10^{-7} от интенсивности падающего излучения даже для наиболее сильных линий. Как известно, общим тезисом квантовой теории излучения является утверждение о существовании у любого спонтанного радиационного процесса вынужденного аналога. Таким

аналогом для спонтанного КР света является вынужденное комбинационное рассеяние света (ВКР).

ВКР света было предсказано Г. Плачеком в 1935 году [241], задолго до экспериментального открытия этого эффекта. Разрабатывая квантовую теорию КР, он получил формулу, описывающую вероятность процесса КР:

$$W_{KR} = K_1 n n^s + K_2 n \quad (2.1)$$

где n – число фотонов возбуждающего излучения, n^s – число фотонов излучения на частоте, соответствующей первой стоксовой компоненте КР света. K_2 – это коэффициент, описывающий линейную зависимость вероятности КР от интенсивности возбуждающего излучения, фактически, его и используют при описании спонтанного КР света. K_1 – коэффициент, описывающий вероятность индуцированного излучения, который описывает вынужденный процесс. Учитывая, что коэффициент K_1 существенно меньше коэффициента K_2 и малую интенсивность рассеянного излучения, говорить о возможности экспериментальной реализации процесса ВКР стало возможным лишь после появления лазерных источников электромагнитного излучения. Интенсивности импульсного лазерного излучения свыше 10^8 - 10^9 Вт/см² позволили осуществить возбуждение ВКР и последующее его усиление.

Этот процесс полностью аналогичен процессу эйнштейновского вынужденного испускания, его вероятность пропорциональна плотностям потока возбуждающего и рассеянного излучений. Из-за этого рассеянное излучение усиливается в рассеивающей среде по экспоненциальному закону. Как и в случае индуцированного излучения, направление распространения фотонов, образовавшихся в процессе ВКР, совпадает с первоначальным направлением падающих на среду затравочных фотонов с частотой первой стоксовой компоненты.

Практическое использование ВКР в качестве источника перестраиваемого излучения в широком спектральном диапазоне инициировало большое количество работ, направленных на поиск способов снижения пороговой мощности возбуждающего света и повышения эффективности преобразования накачки в излучение ВКР. Учитывая экспоненциальный характер усиления ВКР, на выходе из активной среды длины l интенсивность первой стоксовой компоненты может быть записана в виде:

$$I_{1s} = A \exp(gIl) \quad (2.2)$$

где I – интенсивность возбуждающего излучения, g – коэффициент усиления.

Очевидным путем повышения эффективности процесса ВКР является увеличение интенсивности накачки и (или) увеличение длины области взаимодействия, с использованием, например, многопроходowych схем. В этой связи следует отметить работы по исследованию ВКР не только в оптически однородных средах, но и в дисперсных средах. Впервые интенсивные спектры ВКР в мелкодисперсных кристаллических порошках были получены в 1967 году [242]. Интенсивность ВКР при этом в ряде случаев превышала интенсивность ВКР, возбуждаемого в прозрачном кристалле того же вещества, даже при наличии поглощения света. Это объяснялось значительным увеличением длины светового пути в дисперсной среде.

Одним из наиболее эффективных способов повышения эффективности ВКР является использование сред с пространственной модуляцией оптических характеристик на масштабе, соизмеримом с длиной волны излучения накачки. Идеальными структурами для решения такой задачи являются ФК. Это становится возможным за счет того, что высокая плотность фотонных состояний на краях ФЗЗ приводит к существенному увеличению эффективности нелинейно-оптического взаимодействия при

совпадении частот взаимодействующих волн с краями ФЗЗ [243]. Одними из первых таких систем, которые предлагалось использовать в качестве активных сред, были структуры, состоящие из чередующихся слоев кристалла KGW:Nd, который являлся КР - активной средой, и плавленого кварца [244]. Численное моделирование, проведенное авторами данной работы, показало, что, варьируя параметры фотонной запрещенной зоны, а именно, меняя показатель преломления, число и толщину слоев, можно подобрать условия эффективной ВКР - генерации для таких систем. Коэффициент ВКР - усиления в такой системе в ~ 8 раз выше, чем у сплошной среды такой же длины. Аналогичные одномерные структуры могут быть использованы для повышения эффективности генерации антистоксовой компоненты ВКР, эффективность генерации которой в обычных условиях мала. Одним из способов увеличения эффективности этого процесса является использование условия фазового квазисинхронизма для генерации антистоксового излучения вынужденного комбинационного рассеяния в средах с изменяемыми параметрами нелинейности третьего порядка [245] вдоль продольной координаты, то есть в одномерном фотонном кристалле, состоящем из слоев КР - активной среды и диэлектрика. Как было показано в [245] методами численного моделирования, для любой комбинационно-активной среды существует оптимальное соотношение начальных интенсивностей рассеянной волны и волны накачки, при котором в таких средах достигается эффективность антистоксового ВКР-преобразования до 35%. Это много больше эффективности преобразования при простой фокусировке в комбинационно-активную среду и приближается к эффективности преобразования в условиях полного фазового синхронизма.

Из достаточно большого количества различных наноструктур, используемых для повышения эффективности генерации ВКР (а также других нелинейно-оптических процессов), именно диэлектрические ФК способны составить лучшую альтернативу обычным металлическим системам, демонстрирующим высокие потери на оптических частотах.

Высокие коэффициенты преобразования, возможность одновременной генерации на стоксовых и антистоксовых частотах, широкий спектральный диапазон перестройки – это характеристики ВКР - активных сред, которые обуславливают их широкое применение в качестве источников когерентного излучения.

Вынужденное комбинационное рассеяние представляет большой интерес не только как способ получения перестраиваемого когерентного излучения в широком спектральном диапазоне, но и как способ получения информации о структуре и динамике молекулярных систем (также как и спонтанное комбинационное рассеяние света).

Одним из наиболее перспективных способов повышения эффективности и понижения порога ВКР является использование фотонных кристаллов с соответствующим подбором фотонной запрещенной зоны и спектрального положения накачки и первой стоксовой компоненты. Синтетические опаловые матрицы представляют собой очень удобный модельный образец для экспериментального исследования влияния положения ФЗЗ на параметры ВКР по следующим двум причинам. Во-первых, отработанные технологии производства синтетических опаловых матриц позволяют получать образцы с размером от глобул от 200 до 400 нанометров. Во-вторых, заполнение матриц КР-активными веществами либо путем инфильтрации готовых образцов, либо на стадии их производства, является достаточно простой задачей. Эти обстоятельства позволяют получать образцы опалов с различным положением фотонной запрещенной зоны относительно частот накачки и стока.

Экспериментальные результаты, изложенные в данной главе, были опубликованы в работах [246-252].

§ 2.2. Вынужденное комбинационное рассеяние света в синтетических опаловых матрицах, инфильтрованных комбинационно - активными жидкостями.

Основной целью экспериментальных работ, результаты которых приведены в данной главе, было определение условий эффективной генерации ВКР в нанокompозитах на основе синтетических опалов и оценка влияния параметров фотонной запрещенной зоны на процесс генерации ВКР.

Исследования были выполнены для двух геометрий рассеяния: в направлении вперед (0° -градусная геометрия рассеяния) и в направлении назад (180° -градусное рассеяние) при комнатной температуре или при температуре жидкого азота (77 К). Для исследования особенностей возбуждения ВКР в органических жидкостях и фотонных нанокompозитах использовались два источника возбуждающего излучения: рубиновый лазер, работающий в режиме модуляции добротности (длительность импульса 20 нс, длина волны генерации 694,3 нм, максимальная энергия в импульсе 0,4 Дж), и вторая гармоника лазера YAG:Nd³⁺ (длительность импульса 40 пс, длина волны генерации 532 нм, максимальная энергия в импульсе 5мДж).

Принципиальная схема эксперимента для наблюдения вынужденного рассеяния света при использовании лазера на рубине представлена на Рис.2.1.

Возбуждающее излучение от рубинового лазера (1) фокусировалось набором линз (7) на образец (8). Измерения проводились для линз с различными фокусными расстояниями (50, 90 и 150 мм) и для различных положений исследуемого образца относительно фокусирующей оптики.

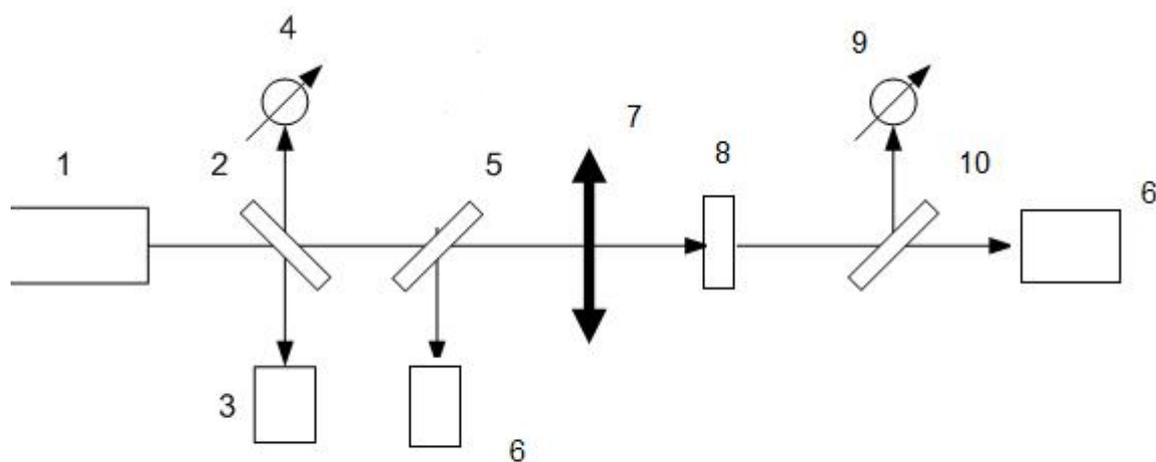


Рис.2.1. Принципиальная схема экспериментальной установки для наблюдения вынужденного рассеяния. 1 – рубиновый лазер; 2, 5, 10 – поворотные пластины; 3 – система для измерения параметров возбуждающего излучения; 4, 9 – системы для измерения энергии рассеянного света в обратном и прямом направлениях соответственно; 6 – спектрометр для обратной и прямой геометрии рассеяния соответственно; 7 – линза, фокусирующая излучение в активную среду; 8 – исследуемый образец;

Это позволяло менять плотность мощности на входе в исследуемый образец, а также распределение поля внутри образца. Угол падения пучка возбуждающего лазерного излучения на поверхность образца мог варьироваться от 0 до 60°. 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 излучения. Энергия рассеянного излучения измерялась с использованием калиброванных фотодиодов (4) – в случае обратной геометрии, и калиброванных фотодиодов (9) – для прямой геометрии эксперимента.

Для исследования спектрального состава рассеянного излучения использовались спектрометры СТЭ-1 и FSD-8.

В качестве объектов исследования использовались образцы искусственных опаловых матриц и нанокompозитов на их основе размером $2 \times 5 \times 5 \text{ мм}^3$, сформированные плотноупакованными близкими по размеру кварцевыми глобулами диаметром от 200 нм до 320 нм.

Опаловые нанокompозиты получались путем заполнения октаэдрических и тетраэдрических пустот опаловых матриц различными молекулярными жидкостями, активными в комбинационном рассеянии.

Для заполнения опаловых матриц с целью создания нанокompозитов использовались молекулярные жидкости с различными показателями

преломления, так что можно было исследовать нанокомпозиты с контрастом показателя преломления n/n_{SiO_2} от 0.914 до 1.054 (см. Табл.2.1). Здесь $n_{эфф}$ – эффективное значение показателя преломления.

Таблица 2.1. Параметры молекулярных жидкостей (показатель преломления n , контраст показателя преломления n/n_{SiO_2} и эффективный показатель преломления $n_{эфф}$), использовавшихся для заполнения образцов синтетических опалов в экспериментах по наблюдению вынужденного рассеяния в ФК на основе синтетических опалов.

Вещество	n	n/n_{SiO_2}	$n_{эфф}$
Опал, SiO_2	1,455	1,000	1,350
Вода, H_2O	1,333	0,914	1,420
Ацетон, C_3H_6O	1,359	0,934	1,429
Этанол, C_2H_5OH	1,362	0,936	1,430
Бензол, C_6H_6	1,504	1,033	1,465
Нитробензол, $C_6H_5NO_2$	1,553	1,054	1,480
Четыреххлористый углерод, CCl_4	1,464	1,006	1,455

Для характеристики исследуемых образцов опалов использовалась экспериментальная установка, представленная на Рис.2.2. Данная установка позволяла детектировать спектры отражения и пропускания.

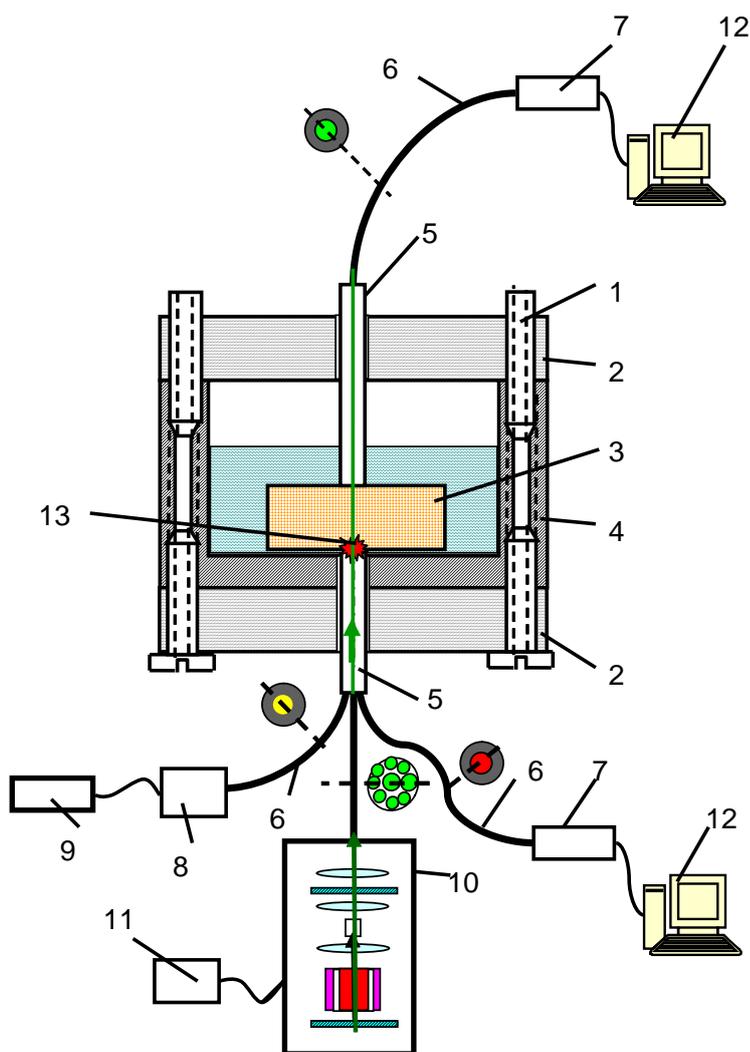


Рис.2.2. Экспериментальная установка для характеристики образцов; 1, 2, 4 - элементы кюветы; 3 - образцы фотонных кристаллов; 5 - оптоволоконный узел; 6 - оптические волокна; 7 – спектрометр ФСД-8; 8 - галогеновая лампа; 9, 11 - энергообеспечение; 10 - лазер 12 - компьютер; 13 - область отражения от поверхности фотонного кристалла

Для передачи света от источника использовались оптические волокна (6). В процессе эксперимента реализовывалась широкополосная эмиссия в видимом диапазоне от галогеновой лампы (8) и второй гармоники YAG:Nd³⁺ лазера с длиной волны генерации 532 нм. Полученный спектр записывался

мини-спектрометром FSD-8 (7). Спектры отраженного от образца и прошедшего через образец широкополосного излучения позволили однозначно определить положение ФЗЗ.

В ряде случаев, для характеристики образцов, использовался спектрофотометр Lambda 25 (Perkin Elmer). Образец синтетической опаловой матрицы толщиной 2мм помещался в кварцевую кювету толщиной 8 мм, заполненную жидкостью, предназначенной для инфильтрации образца. Процесс инфильтрации контролировался периодической съёмкой спектра пропускания. Инфильтрация считалась законченной, когда спектр становился стабильным. На Рис 2.3 показан типичный спектр пропускания образца синтетической опаловой матрицы, заполненной этанолом.

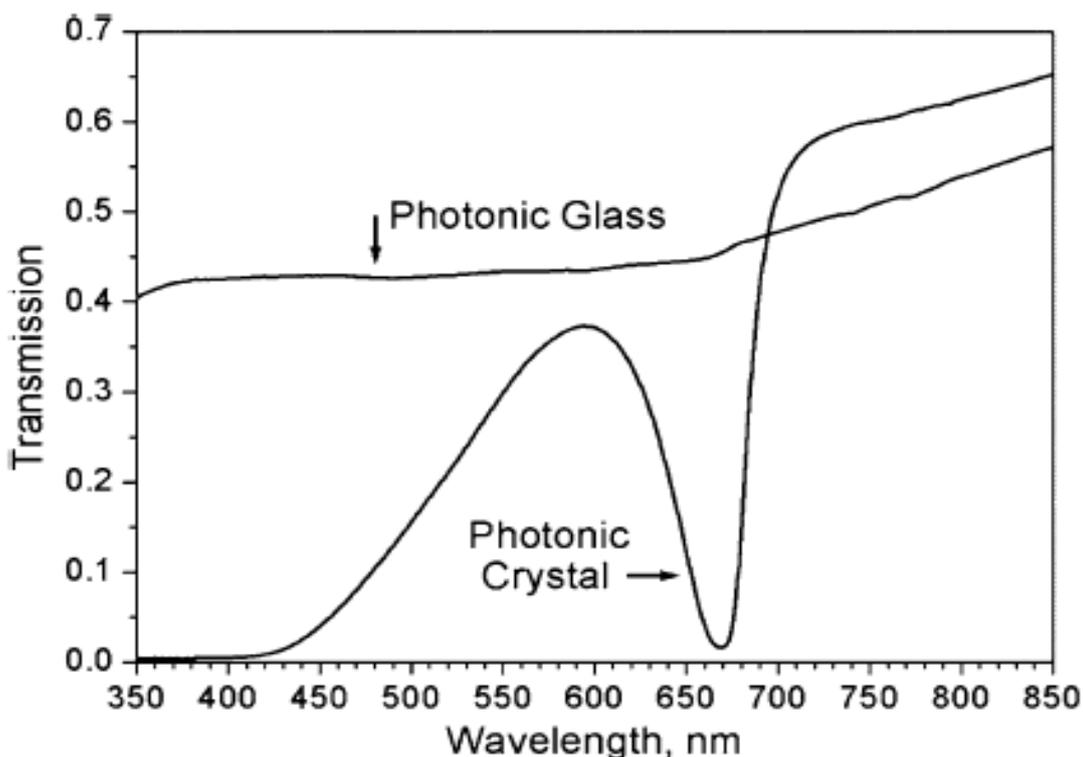


Рис.2.3. Спектр пропускания образца синтетической опаловой матрицы, инфильтрованной этанолом и спектр пропускания образца фотонного стекла, состоящего из глобул кремнезема, того же размера, что и опаловая матрица.

Для сравнения на рисунке представлен спектр пропускания фотонного стекла, представляющего из себя структуру, состоящую из сфер кремнезема того же размера, что и образец синтетической опаловой матрицы. Данный образец также был инфильтрован этанолом. Наличие провала в спектре пропускания однозначно задаёт положение запрещенной зоны определяемой структурой образца.

Эксперименты по возбуждению ВКР проводились с использованием экспериментальной установки, показанной на Рис.2.1. В ряде экспериментов, с целью контроля над инфильтрацией образцов, использовалась схема с кюветой, заполненной комбинационно - активной жидкостью, в которой находился образец синтетической опаловой матрицы. Уровень жидкости находился на уровне входной (для лазерного излучения) грани синтетической опаловой матрицы. Экспериментальная схема, используемая в этом случае, для получения спектров ВКР от искусственных опалов, инфильтрованных жидкостью, представлена на Рис.2.4.

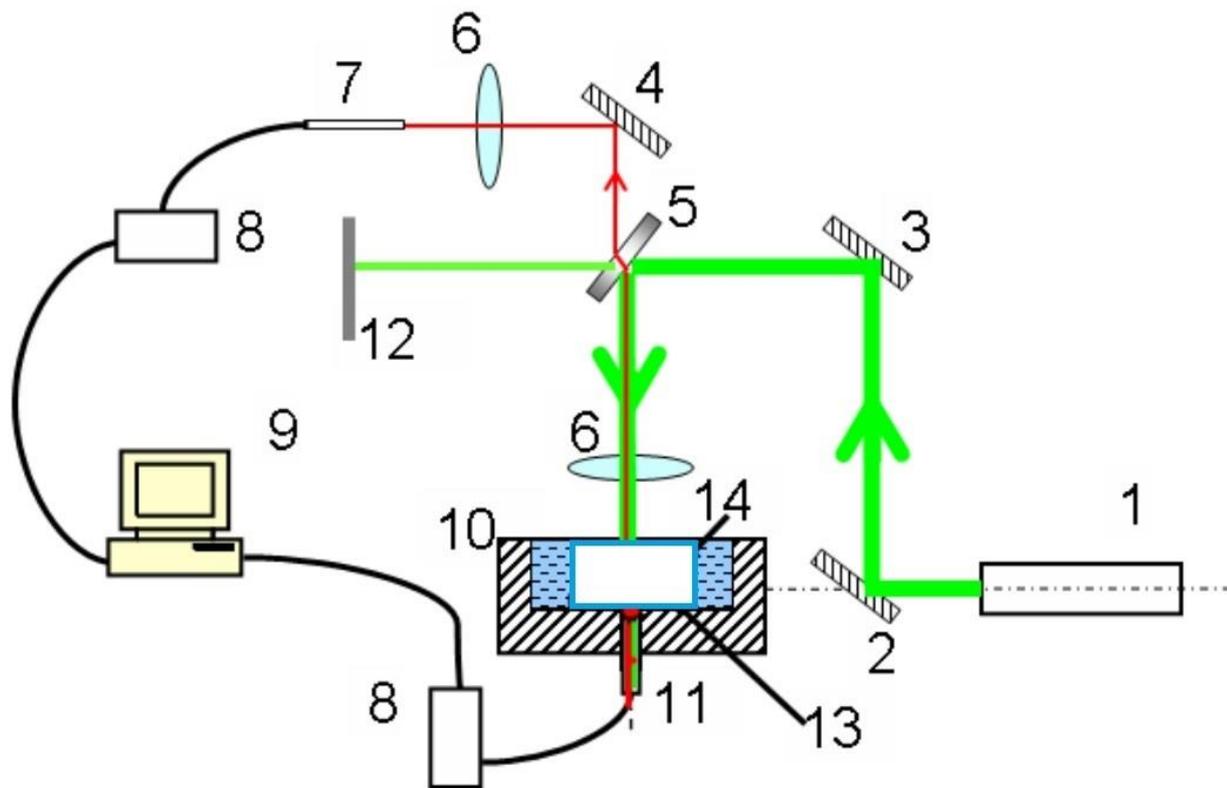


Рис.2.4. Экспериментальная установка для получения спектров ВКР на искусственных опалах, инфильтрованных жидкостью. 1 - источник накачки

(пикосекундный YAG:Nd³⁺ лазер); 2 - 4 – зеркала; 5 – поворотная пластина; 6 - линзы; 7, 11 - оптоволокно; 8 - спектрометр; 9 - компьютер; 10 - кювета; 12 - детектор мощности ; 13 - образец фотонного кристалла; 14 - КР-активная жидкость.

ВКР возбуждалось излучением лазера на рубине или излучением второй гармоники пикосекундного лазера YAG:Nd³⁺, работающего в режиме синхронизации мод. Лазерный пучок фокусировался с помощью линзы (6) на кювету с образцом через плоское кварцевое окно кюветы. Экспериментальная установка давала возможность исследовать рассеянный свет, как в прямом, так и в обратном направлениях. Для сравнения энергетических характеристик во всех экспериментах осуществлялась регистрация ВКР как в опалах, инфильтрованных КР-активными жидкостями, так и в самих жидкостях. При возбуждении ВКР в жидкостях использовались открытые кюветы (лазерный луч направлялся вертикально в открытую кювету), что позволяло избежать поглощения возбуждающего света окном кюветы и влияния граничных эффектов на поверхности раздела стекло-жидкость.

Фокусировка лазерного излучения осуществлялась перпендикулярно ростовой плоскости (111) синтетической опаловой матрицы.

Для наблюдения ВКР в синтетических опаловых матрицах, образцы были инфильтрованы различными комбинационно-активными жидкостями: ацетоном, нитробензолом, этанолом, водой, четыреххлористым углеродом. Коэффициент усиления ВКР, положение первой стоксовой компоненты (сдвиг по частоте первой стоксовой компоненты ВКР относительно частоты возбуждающей линии) и коэффициент преломления соответствующей среды приведены в Табл.2.2.

Таблица 2.2. Параметры комбинационно-активных жидкостей, использовавшихся для инфльтрации опаловых нанокмполитов для

наблюдения ВКР: частотный сдвиг $\Delta\nu$ ВКР, коэффициент преломления n , коэффициент усиления ВКР в веществе g

Комбинационно-активное вещество	$\Delta\nu, \text{см}^{-1}$	n	$g, 10^{-2} \text{см/МВт}$
Нитробензол, $C_6H_5NO_2$	1345	1,553	0,21
Бензол, C_6H_6	991	1,504	0,28
Четыреххлористый углерод, CCl_4	459	1,464	0,13
Этанол, C_2H_5OH	2921	1,362	0,11
Ацетон, C_3H_6O	2921	1,359	0,14
Вода, H_2O	3300	1,333	0,01

Необходимо учесть, что плавленный кварц также является комбинационно-активной средой с частотным сдвигом первой стоксовой компоненты 420 см^{-1} , но коэффициент усиления для плавленного кварца на два порядка меньше, чем для исследуемых жидкостей. ВКР в синтетических опалах, соответствующее рассеянию в кварце, в условиях эксперимента не наблюдалось. Инфильтрованные опаловые матрицы при их заполнении жидкостями с показателем преломления, близким к показателю преломления кварца, являются прозрачными для излучения видимого диапазона, и возбуждение ВКР в таких образцах осуществлялось как в направлении «вперед», так и «назад». Если показатели преломления отличались существенно, то исследовалось ВКР в направлении «назад».

Заполнение опаловой матрицы активной средой, естественно, приводит к сдвигу запрещенной зоны. Поэтому после инфильтрации жидкостями

экспериментально определялось положение ФЗЗ. Измерения проводились при освещении образцов перпендикулярно ростовой плоскости (111).

При использовании в качестве источника возбуждающего излучения лазера на рубине в установке, показанной на Рис.2.1 было обнаружено ВКР, распространяющееся в направлении навстречу накачке, в синтетических опалах, инфильтрованных нитробензолом. (Показатель преломления нитробензола существенно отличается от показателя преломления плавленого кварца, соответственно измерения проводились для ВКР «назад»).

Была получена генерация 1-й и 2-й стоксовых компонент на длинах волн 765,8 нм и 853,7 нм соответственно. При этом расходимость пучка ВКР в направлении назад была близка к расходимости пучка возбуждающего излучения.

ВКР, возбуждаемое в синтетических опалах, инфильтрованных нитробензолом, экспериментально сравнивалось с ВКР в чистом нитробензоле. ВКР в нанокompозитах возбуждалось в существенно меньших объемах нелинейной среды (длина активной среды 2 мм), чем в чистом нитробензоле (длина активной среды 2 см). Это означает снижение порога возбуждения не меньше, чем в 20 раз по сравнению с чистым нитробензолом.

В опалах, заполненных средами с показателем преломления меньше, чем у кварца, ВКР, при использовании лазера на рубине, не возбуждалось.

Порог возбуждения ВКР в опаловых матрицах, инфильтрованных нитробензолом, оценивается как $0,10 \text{ ГВт/см}^2$.

Малый объём комбинационно - активной жидкости (инфильтрация до 22% объема образца), в котором возбуждалось ВКР, свидетельствует о высокой эффективности процесса преобразования волны накачки в ВКР. Были приготовлены и исследованы 5 образцов синтетических опаловых матриц, инфильтрованных нитробензолом, с различным положением ФЗЗ. ВКР возбуждалось только в том случае, когда частота возбуждающего

лазерного излучения располагалась вблизи высокочастотного края запрещенной зоны, а частота первой стоксовой компоненты – вблизи низкочастотного края ФЗЗ (см. Табл.2.3).

Таблица 2.3. Параметры, характеризующие условия возбуждения ВКР в образцах синтетического опала, инфильтрованного нитробензолом: длина волны первой стоксовой компоненты ВКР, λ_S ; положение стоп-зоны синтетического опала, $\lambda_{\PhiЗЗ}$; диаметр глобул, образующих ФК, D .

Вещество	λ_S , нм	$\lambda_{\PhiЗЗ}$, нм	D , нм	ВКР
Нитробензол $C_6H_5NO_2$	<u>765,8</u>	483,07	200	отсутствует
		555,5	230	отсутствует
		627,99	260	отсутствует
		<u>724,605</u>	<u>300</u>	присутствует
		772,95	320	отсутствует

В этом случае длина волны, соответствующая центру ФЗЗ, располагается между величинами длин волн лазерного излучения и первой стоксовой компоненты ВКР. Из приведённой таблицы видно, что эффективная генерация ВКР, реализованная в экспериментах, имела место из-за наличия определенной ФЗЗ, положение которой можно подобрать путем выбора образца с соответствующим диаметром формирующих его глобул.

На Рис.2.5 представлены экспериментальные спектры ВКР в обратном направлении. Из приведенных спектрограмм видно, что при увеличении мощности возбуждающего излучения появляется вторая стоксовая компонента спектра.

Таким образом, впервые было реализовано ВКР в трехмерном ФК с коэффициентом преобразования по энергии 5-6%. Расходимость пучка ВКР, распространяющегося в направлении навстречу накачке, была близка к расходимости пучка возбуждающего излучения.

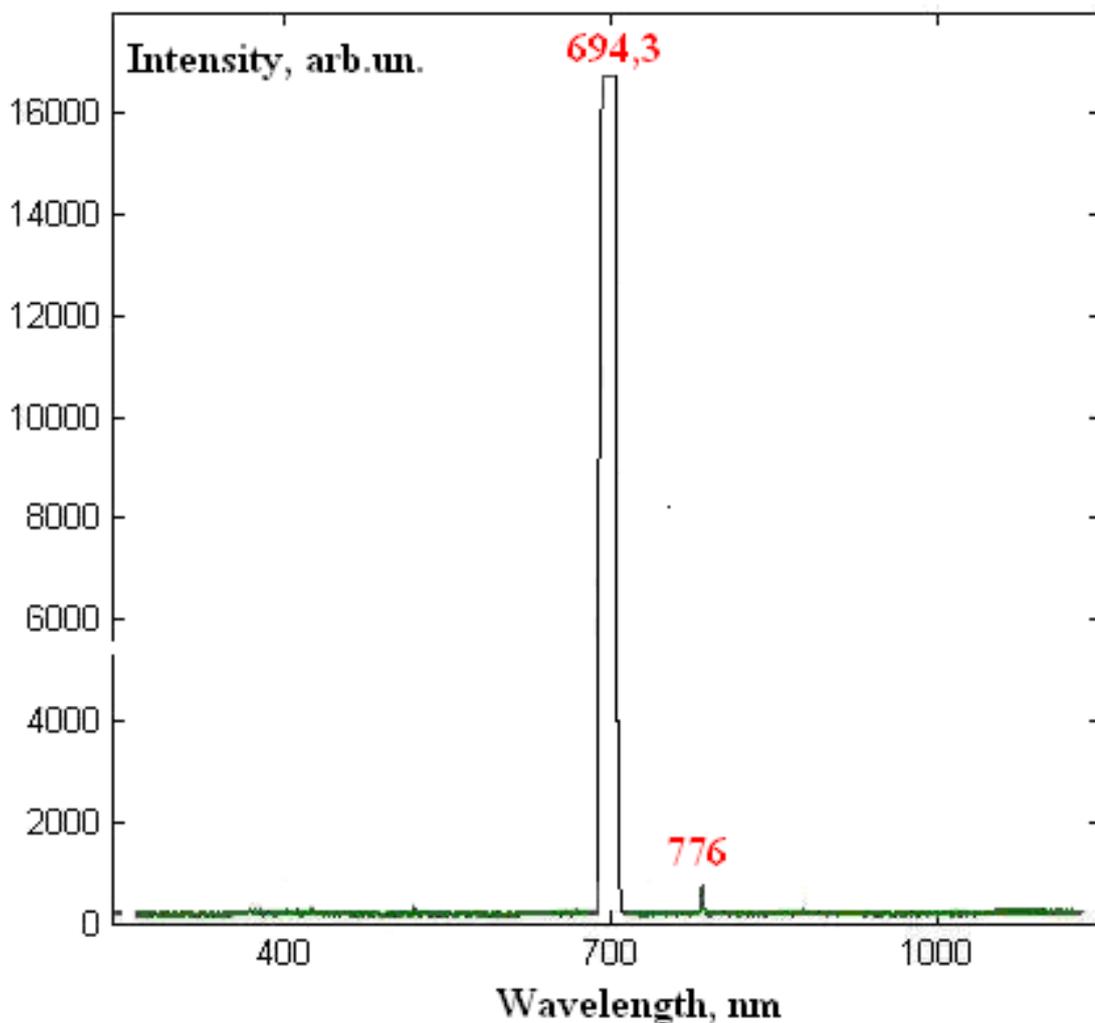


Рис.2.5.а. Спектр ВКР, возбуждаемого в синтетическом опале, инфильтрованном нитробензолом (см. Табл.2.3), в направлении «назад» лазерным импульсом (длина волны генерации $\lambda=694,3$ нм). Интенсивность возбуждающего излучения 0.14 ГВт/см².

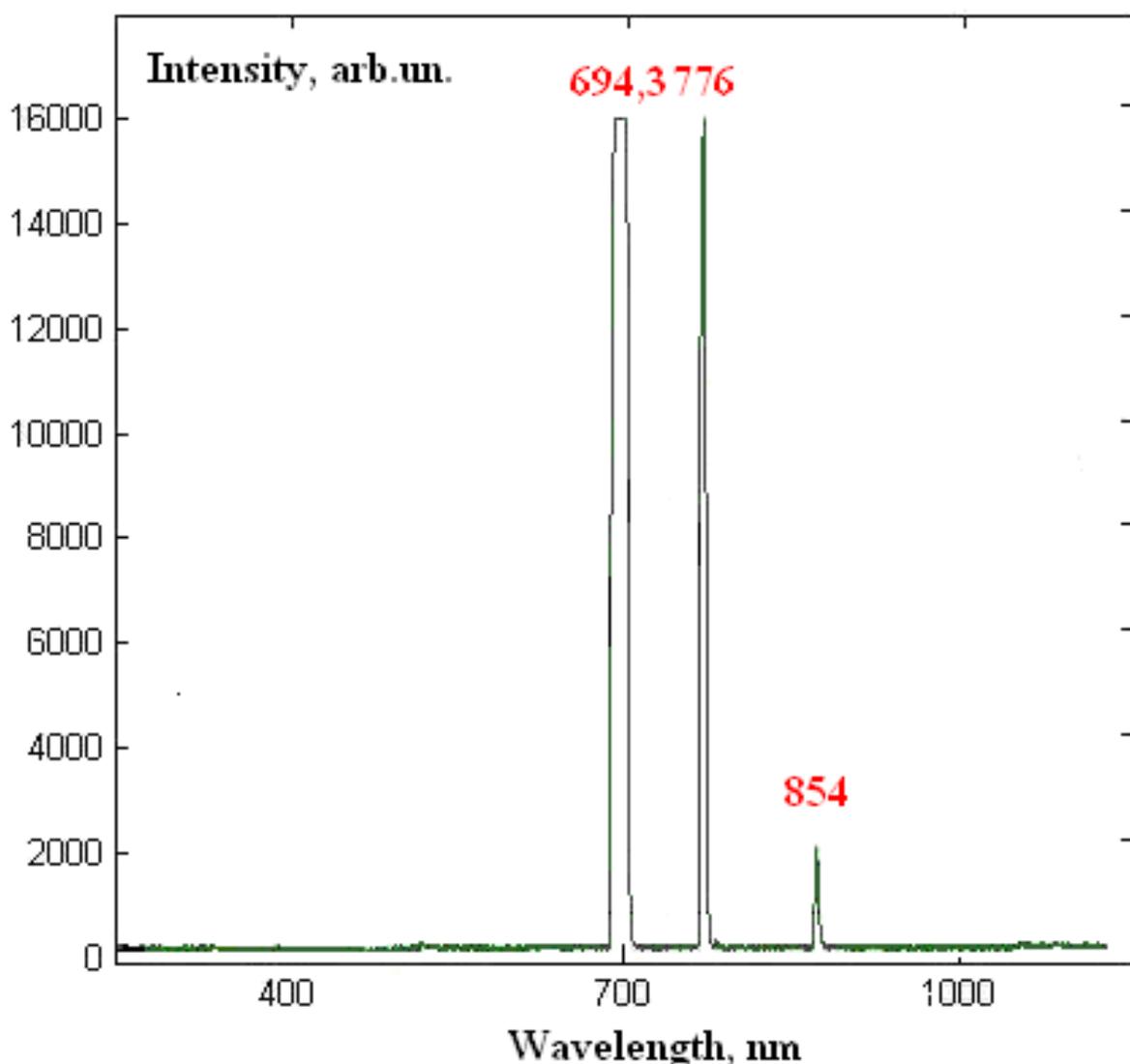


Рис.2.5.б. Спектр ВКР, возбуждаемого в синтетическом опале, инфильтрованном нитробензолом (см. Табл.2.3), в направлении «назад» (длина волны генерации $\lambda=694,3$ нм). Интенсивность возбуждающего излучения $0,15 \text{ ГВт}/\text{см}^2$.

При использовании в качестве источника возбуждающего излучения пикосекундного Nd-YAG лазера была получена генерация ВКР в синтетических опаловых матрицах, инфильтрованных водой. Как уже обсуждалось выше, экспериментальные измерения длины волны отраженного света, соответствующей максимуму интенсивности, для направления (111) (наиболее структурно совершенное направление в опале) могут давать информацию о ФЗЗ синтетической опаловой матрицы, и,

соответственно о диаметре глобул, составляющих исследуемый глобулярный ФК. Ниже приведены типичные спектры отражения синтетического опала, инфильтрованного водой, полученные с помощью установки показанной на Рис.2.2.

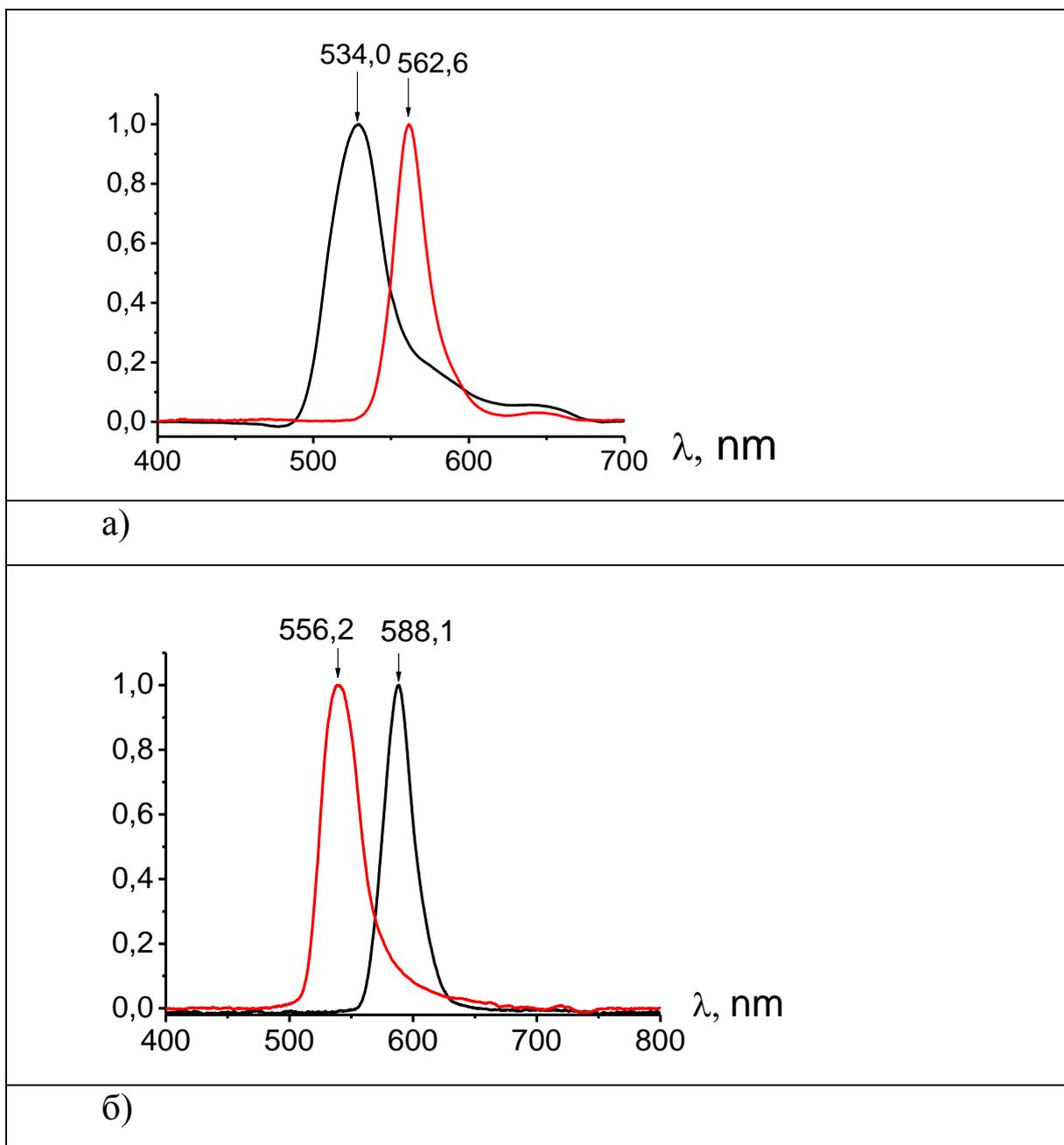


Рис.2.6. Спектр отражения искусственного опала без инфильтрации (кривая слева) и инфильтрованного водой (кривая справа) с диаметром глобул $D=240$ нм (а) и $D=250$ нм (б). По оси ординат отложена нормированная интенсивность рассеяния. Стрелками показаны значения $\lambda_{\Phi33}$ (см. формулу (2,5))

Значение длины волны излучения, соответствующее положению фотонной запрещенной зоны рассчитывается по формуле (1.8). При нормальном падении света на поверхность образца формула для определения положения фотонной запрещенной зоны имеет вид:

$$\lambda_{\text{ФЗЗ}} = 2dn_{\text{эфф}} \quad (2.3)$$

На рисунках 2.6.а и 2.6.б показаны нормированные спектры отражения электромагнитного излучения от синтетического незаполненного опала и нанокompозита, а, именно, опаловой матрицы, заполненной водой. Диаметр глобул составляющих исследуемые образцы был $D=240$ нм и 260 нм соответственно. Инфильтрация синтетических опалов водой приводит к изменению эффективного показателя преломления образца и, как следствие, к спектральному сдвигу положения фотонной запрещенной зоны. К её сдвигу в длинноволновую область спектра в соответствии с (2.3).

В Табл. 2.4 приведены значения длины волны, которые соответствуют максимальному значению интенсивности отраженного излучения для различных нанокompозитов: опаловых матриц без заполнения и инфильтрованных водой. Рассчитанные значения положения центра фотонной запрещенной зоны хорошо согласуются с экспериментально полученными значениями.

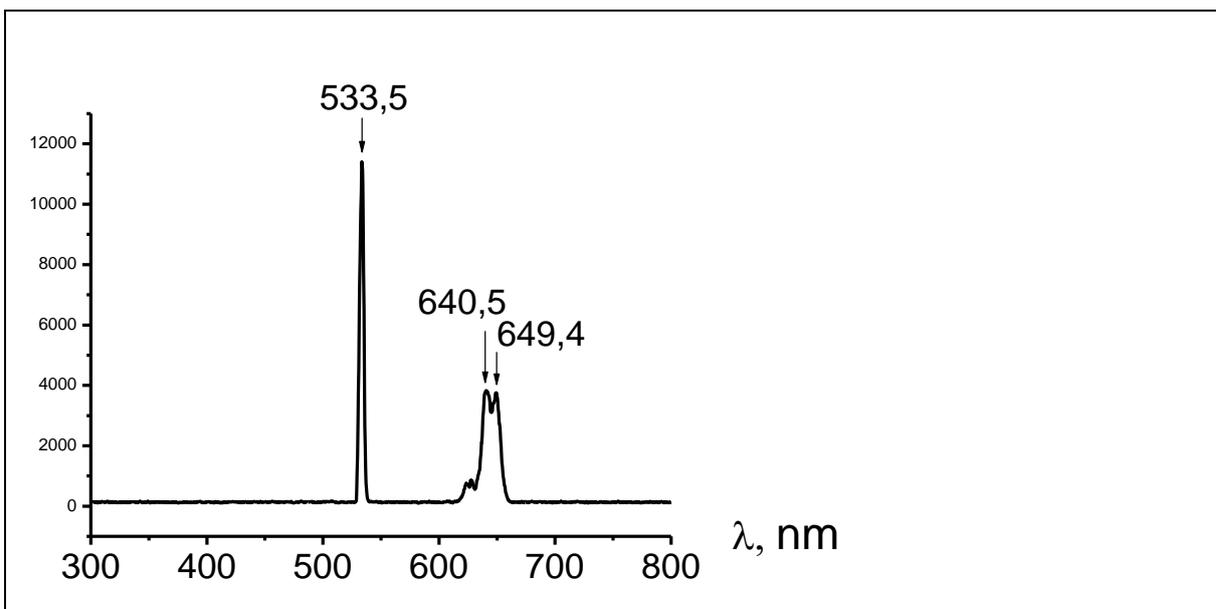
Таблица 2.4. Зависимость максимума длины волны интенсивности отраженного света $\lambda_{\text{ФЗЗ}}$ от диаметра глобул D .

D , нм	$\lambda_{\text{ФЗЗ}}$, нм Незаполненный опал ($n_{\text{эфф}} = 1,363$)	$\lambda_{\text{ФЗЗ}}$, нм Опал, инфильтрованный водой ($n_{\text{эфф}} = 1,435$)	D , нм	$\lambda_{\text{ФЗЗ}}$, нм Незаполненный опал ($n_{\text{эфф}} = 1,363$)	$\lambda_{\text{ФЗЗ}}$, нм Опал, инфильтрованный водой ($n_{\text{эфф}} = 1,435$)
195	434,2	457,0	250	556,6	585,8
200	445,3	468,6	255	567,8	597,5

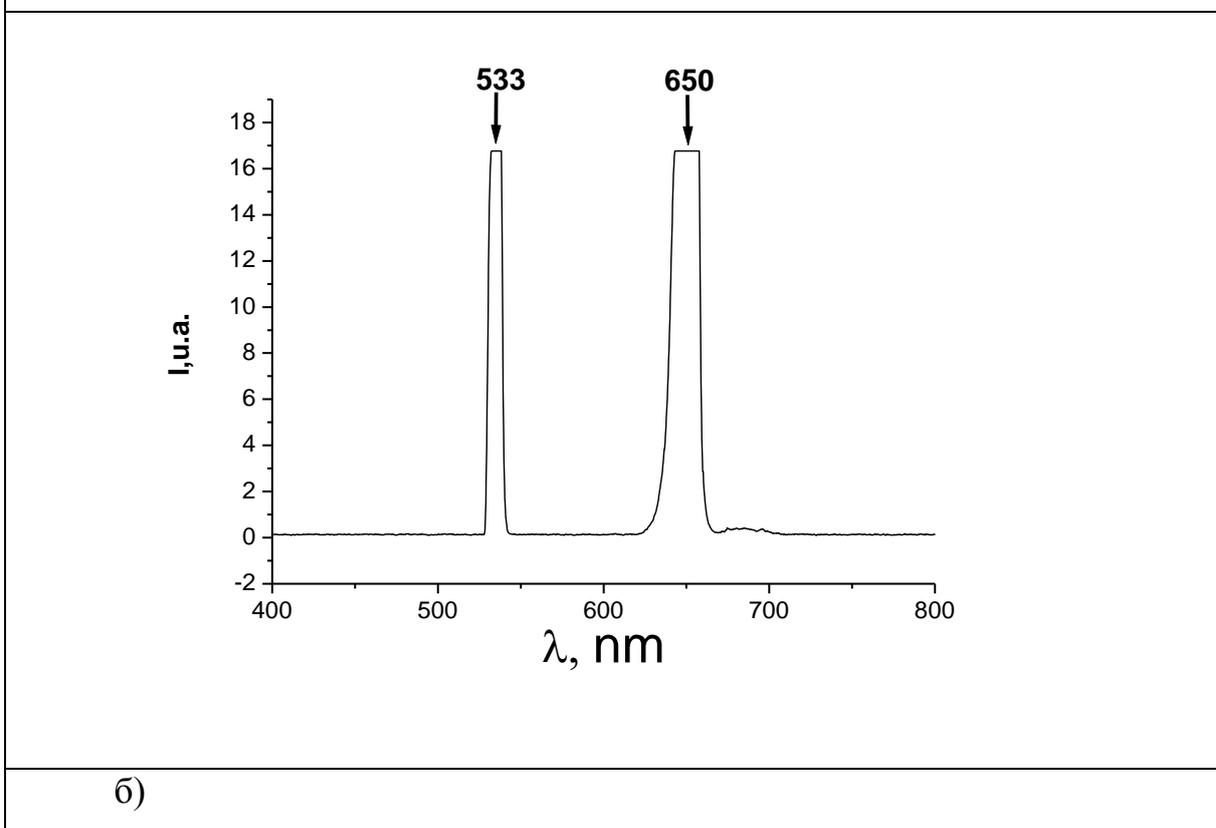
205	456,4	480,4	260	578,9	609,2
210	467,6	492,1	265	590,0	621,0
215	478,7	503,8	270	601,2	632,7
220	489,8	515,5	275	612,3	644,4
225	501,0	527,2	280	623,4	656,1
230	512,1	538,9	285	634,6	667,8
235	523,2	550,7	290	645,7	679,5
240	534,4	562,4	300	668,0	703,1
245	545,5	574,1	305	678,9	714,7

В экспериментах по возбуждению ВКР пикосекундными лазерными импульсами наиболее эффективно процесс происходил для образцов опалов, инфильтрованных водой.

С помощью экспериментальной установки, представленной на Рис.2.3, был исследован спектр ВКР, возбуждаемого как в чистой воде, так и в опаловой матрице, инфильтрованной водой. Регистрировалось рассеяние в обратном и прямом направлениях. Лазерный свет фокусировался на поверхность образца линзой с фокусным расстоянием 170 мм. Пороговое значение мощности лазерного излучения для возбуждения ВКР в воде составило 3 МВт для данной геометрии возбуждения. В спектре рассеянного света наблюдалась стоксовая компонента на длине, что соответствует частотному сдвигу относительно возбуждающей линии на $\sim 3340 \text{ см}^{-1}$. Спектр ВКР назад (ВКРН) в слое чистой воды толщиной 2 мм представлен на Рис.2.7.а и Рис.2.7.б. При значениях возбуждающей мощности, близких к порогу возбуждения (Рис.2.7а), наблюдаемое ВКРН содержит несколько перекрывающихся полос; при возрастании мощности накачки возрастает интенсивность комбинационного рассеяния, и также наблюдается сужение линии (Рис.2.7.б).



a)

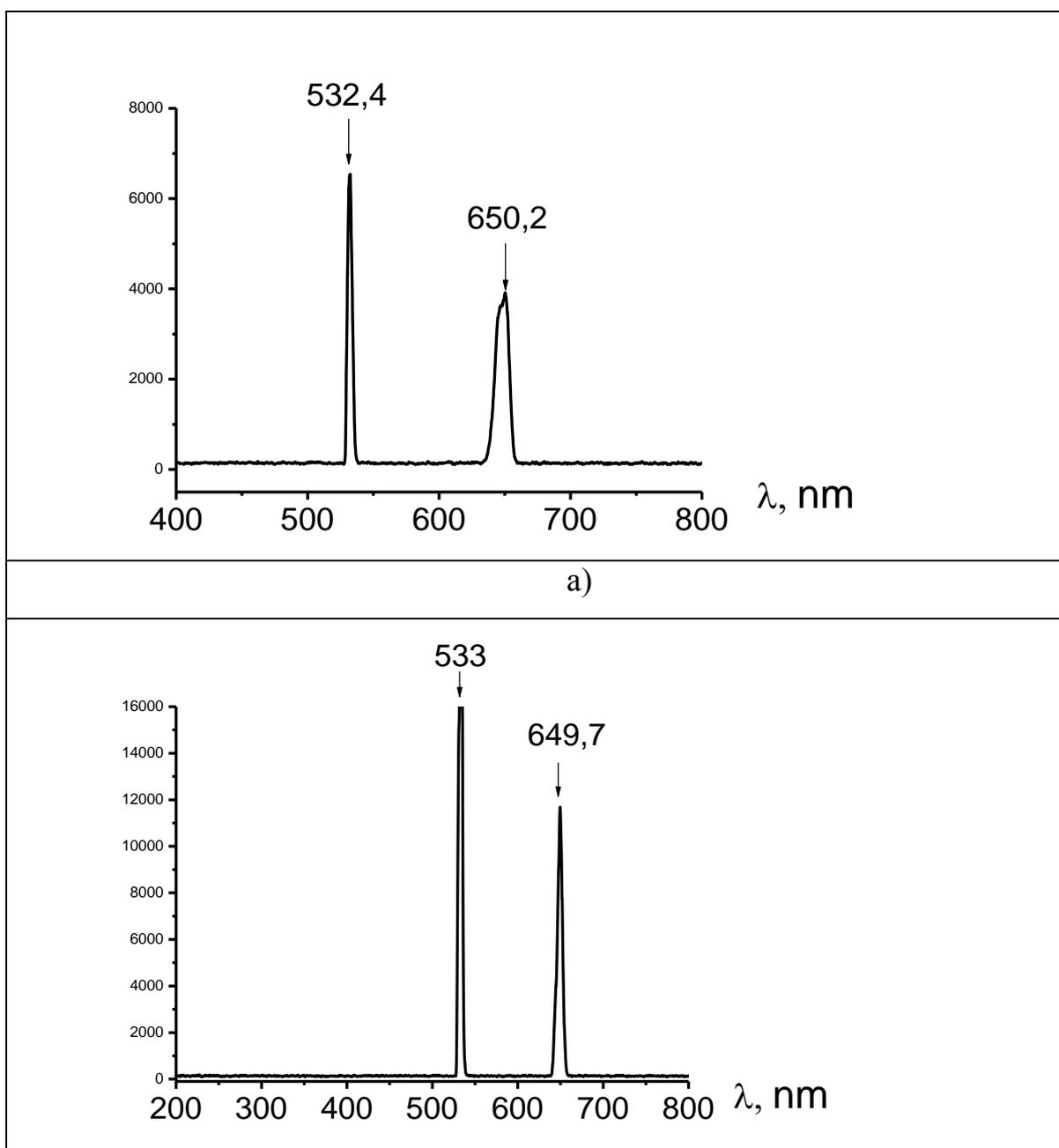


б)

Рис.2.7. ВКРП в чистой воде при мощности возбуждающего излучения 3 МВт (а) и 4,5 МВт (б). По оси ординат отложена нормированная интенсивность рассеяния. Стрелками показаны длины волн излучения накачки и первой стоксовой компоненты.

На Рис.2.8 показаны спектры ВКР в направлении навстречу накачке. ВКР возбуждалось в синтетической опаловой матрице, инфильтрованной водой. Толщина нанокompозита 2 мм. Мощность возбуждающего лазерного излучения составляла 0,3 МВт (а) и 0,5 МВт (б). Фокусировка лазерного излучения осуществлялась на поверхность синтетической опаловой матрицы.

Из Рис.2.8 видно, что первая стоксовая компонента имеет спектральную ширину, значительно больше, чем возбуждающая линия. Увеличение интенсивности накачки и, соответственно, эффективности преобразования сопровождается сужением спектральной линии ВКР.



б)

Рис. 2.8. Образцы спектров ВКР в обратном направлении, записанных для инфльтрованного водой искусственного опала при мощности возбуждающего лазерного излучения 0,3 МВт а) и 0,5 МВт (б).

Если фокусировка осуществлялась не на поверхность опала, а либо вглубь образца, либо перед образцом, то эффективность преобразования резко падала, а пороговое значение накачки возрастало. Порог возбуждения ВКРН в опалах, инфльтрованных водой, ниже в 12 раз, чем порог ВКРН в чистой воде. Следует отметить, что в условиях эксперимента, при фокусировке возбуждающего излучения на поверхность образца, максимальная эффективность преобразования волны накачки в волну ВКРН достигала 6%, в то время, как эффективность ВКР «вперед» не превышала 1%. (см. Рис.2.9).

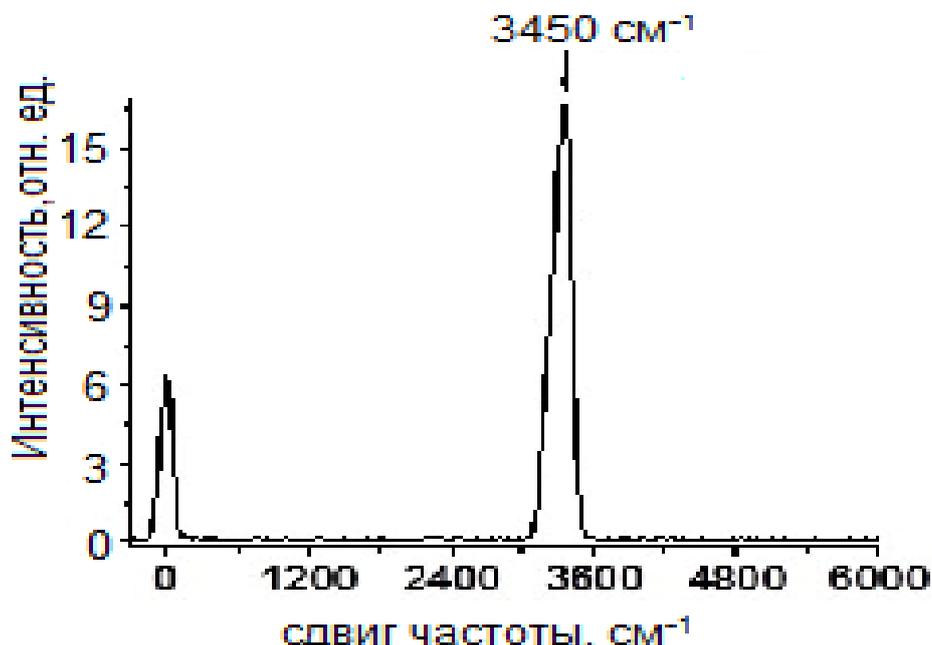
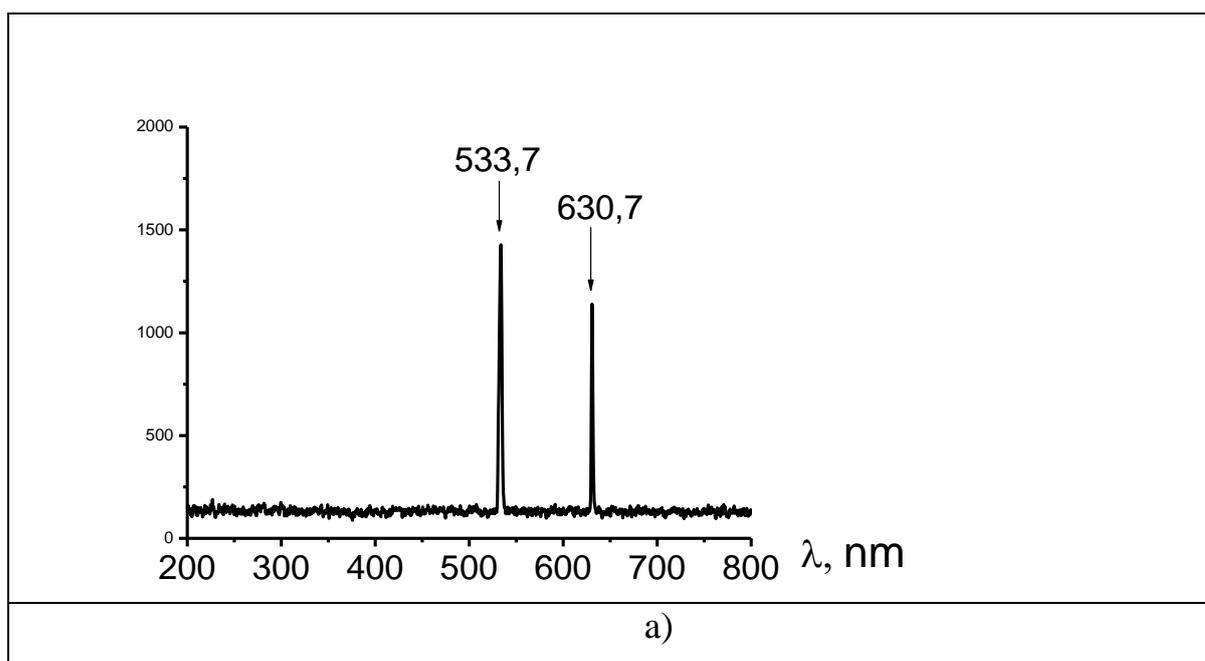


Рис. 2.9 Образцы спектров ВКР в прямом направлении, записанных для инфльтрованного водой искусственного опала при мощности возбуждающего лазерного излучения 3,2 МВт

Данные экспериментальные результаты были получены для образца синтетической опаловой матрицы с размером глобул 250 нм. Для данного образца центр ФЗЗ соответствует значению 586 нм, именно для этого значения наиболее хорошо выполняется условие попадания частоты накачки на высокочастотный край ФЗЗ, а частоты первой стоксовой компоненты – на низкочастотный край ФЗЗ. В образцах синтетических опаловых матриц с другими размерами глобул 200 нм, 230 нм и 270 нм при тех же значения интенсивности накачки ВКР не возбуждалось. Аналогичные результаты были получены для ФК, инфильтрованных этанолом (Рис.2.10) и ацетоном. В этом случае порог ВКР в нанокompозите в ~ 10 раз меньше порога ВКР в соответствующей комбинационно - активной жидкости (этаноле или ацетоне).



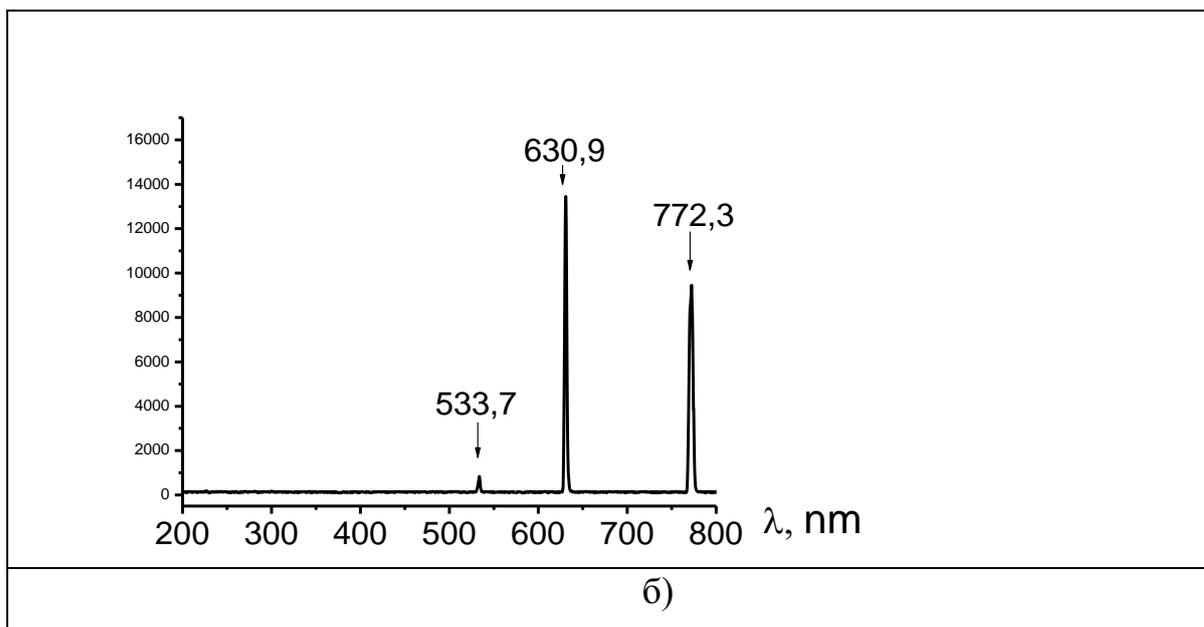


Рис.2.10. Форма спектра ВКРН, полученного от образцов опалов, инфильтрованных этанолом при обратной геометрии рассеяния при мощности возбуждающего лазерного излучения 5 МВт (а) и 19,9 МВт (б)

§2.3. Обсуждение результатов эксперимента по наблюдению вынужденного комбинационного рассеяния света в синтетических опаловых матрицах, инфильтрованных комбинационно - активными жидкостями.

Сечение спонтанного КР в инфильтрованных различными субстанциями ФК зависит от спектрального положения ФЗЗ из-за возрастания плотности фотонных состояний вблизи края ФЗЗ. Соответственно, порог ВКРН существенно снижается, когда длина волны возбуждающего лазерного света и стоксовой компоненты локализуется вблизи краёв ФЗЗ.

При использовании в качестве источника возбуждающего излучения лазера на рубине, работающего в режиме модуляции добротности, существенное понижение порога ВКРН было реализовано для нанокompозита, представляющего собой синтетическую опаловую матрицу с размером глобул 300 нм, инфильтрованную нитробензолом. Для этого образца спектральное положение частот возбуждающего излучения и первой стоксовой компоненты соответствовало положению низкочастотного и

высокочастотного краев ФЗЗ (Таблица 2.3). Двадцатикратное понижение порога возбуждения ВКР соответствовало именно этому случаю. Для наноконпозитов с другими параметрами ФЗЗ при тех же геометрических и энергетических параметрах возбуждения порог возбуждения достигнут не был.

При использовании для возбуждения второй гармоники пикосекундного Nd:Yag лазера, были использованы образцы с диаметром глобул 200 нм, 230 нм, 250 нм и 270 нм, инфильтрованные комбинационно - активными жидкостями, перечисленными в таблице 2.2. Генерация ВКР была реализована только для воды, этанола и ацетона в образцах наноконпозитов с размером глобул 250 нм, при этом максимальное снижение порога было реализовано для наноконпозита, инфильтрованного водой. Согласно таблице 2.4 для опалов с диаметром глобул 250 нм, инфильтрованных водой, спектральное положение ФЗЗ имеет значение $\lambda_{\text{ФЗЗ}} = 586$ нм. Спектральная ширина соответствующей стоп-зоны составляет около 100 нм по основанию. Так что в этом случае выполняется условие для существенного снижения порога возбуждения первой стоксовой компоненты ВКР для опала, инфильтрованного водой и возбуждаемой лазерным излучением с длиной волны 532 нм. Экспериментально было реализовано понижение порога в 12 раз.

Как и в случае с нитробензолом, во всех исследованных образцах опалов, инфильтрованных водой, ВКР возбуждалось в случае, когда частота лазерного излучения была близка к ФЗЗ на высокочастотном краю зоны, а первая стоксовая компонента была близка к низкочастотному краю ФЗЗ. Этот случай соответствует расположению центра фотонной запрещенной зоны между возбуждающей линией и первой стоксовой компонентой.

В случае опалов, инфильтрованных этанолом, обладающим высоким коэффициентом усиления ВКР (см. Таб.2.2), наблюдалась генерация второй стоксовой компоненты в направлении назад.

Таким образом, при возбуждении ВКР в нанокompозитах на основе синтетических опалов, при использовании для возбуждения лазерного излучения пикосекундного и наносекундного диапазона длительностей, было получено существенное понижение порога ВКР (до 20 раз) по сравнению с порогом ВКР в соответствующей комбинационно - активной жидкости.

Одной из основных задач, возникающих при создании ВКР - преобразователей, является задача повышения эффективности и понижения порога генерации ВКР. Полученные экспериментально результаты по исследованию ВКР в синтетических опаловых матрицах, инфильтрованных комбинационно - активными жидкостями, показали, что порог ВКР может быть существенно снижен за счет совпадения частоты возбуждающей линии с высокочастотным краем ФЗЗ, а частоты первой стоксовой компоненты с низкочастотным краем ФЗЗ образца фотонного кристалла. Резонансный характер данного процесса может быть использован для повышения эффективности на определенном колебательном переходе с одновременным подавлением ВКР на других переходах, при соответствующем подборе положения ФЗЗ относительно частот переходов.

Полученные результаты могут быть использованы для повышения эффективности и понижения порога ВКР не только в комбинационно - активных жидкостях, но и твердых телах. Современные технологии производства синтетических опаловых матриц позволяют получать образцы с заполнением как жидкими, так и твердыми веществами.

Можно сформулировать основные результаты, полученные в данной главе.

В ходе экспериментов по исследованию ВКР в синтетических опалах и нанокompозитах на их основе были получены следующие результаты.

1) Впервые было реализовано ВКР в трехмерном фотонном кристалле (синтетической опаловой матрице, инфильтрованной нитробензолом) с коэффициентом преобразования по энергии 5-6%.

2) Показано, что при соответствующем выборе параметров фотонного кристалла, а именно, в случае попадания частоты возбуждающего лазерного излучения в окрестность высокочастотного края ФЗЗ синтетического опала, а частоты первой стоксовой компоненты – вблизи низкочастотного края, возможно существенное понижение порога ВКР. В условиях приведенного эксперимента было реализовано 20 кратное понижение порога ВКР в синтетических опаловых матрицах, инфильтрованных комбинационно - активными жидкостями по сравнению с чистыми молекулярными жидкостями.

3) Экспериментально было реализовано ВКР в синтетических опаловых матрицах, инфильтрованных органическими жидкостями - нитробензолом, водой, этанолом и продемонстрировано влияние положения ФЗЗ на эффективность процесса генерации ВКР. Показано, что эффективная генерация ВКР реализуется даже при относительно малой концентрации комбинационно активной жидкости (инфильтрация до 22% объема образца), что позволяет наблюдать ВКР в существенно меньших объемах нанокompозита по сравнению с комбинационно - активной жидкостью.

Таким образом, как показано в данной главе, эффективная генерация ВКР в трехмерных фотонных кристаллах, реализованная в экспериментах, обусловлена свойствами ФЗЗ. Возможность управления положением ФЗЗ путем выбора образца синтетического опала с соответствующим диаметром глобул, позволяет реализовывать условия эффективной генерации ВКР с низким порогом.

ГЛАВА 3

ВЫНУЖДЕННОЕ НИЗКОЧАСТОТНОЕ КОМБИНАЦИОННОЕ РАССЕЯНИЕ СВЕТА В ТВЕРДОТЕЛЬНЫХ НАНОРАЗМЕРНЫХ СТРУКТУРАХ

§3.1 Введение

Спонтанное неупругое рассеяние света на акустических колебаниях сферических наночастиц является объектом интенсивных теоретических и экспериментальных исследований с момента появления первой экспериментальной работы [42], в которой было обнаружено спонтанное низкочастотное рассеяние света на системе металлических наночастиц. К настоящему времени накоплен достаточно большой экспериментальный материал по изучению низкочастотного комбинационного рассеяния света (НКР) для полупроводниковых, металлических и диэлектрических наночастиц, находящихся как в жидком диэлектрике, так и в твердой матрице. Анализ спектров НКР не только дает информацию о морфологии наночастиц и об особенностях их взаимодействия с электромагнитным излучением, но и может быть использован для определения распределения

наночастиц по размерам. Эта возможность практического применения эффекта НКР для создания коммерческих приборов, предназначенных для определения размеров наночастиц, стимулирует исследования в этом направлении. Практически все работы по исследованию НКР света проводились для неупорядоченных наноразмерных систем. Первой работой, в которой было реализовано НКР в упорядоченной системе – синтетической опаловой матрице – была работа М. Куок с соавторами [39]. Используя спектральную аппаратуру высокого разрешения, им удалось зарегистрировать 7 стоксовых и 7 антистоксовых компонент НКР со спектральным смещением относительно возбуждающей линии от 7 до 40 гигагерц. Используя общепринятый подход к описанию собственных колебаний упругой сферы со свободными граничными условиями, развитый еще Лэмбом [235], было показано, что зарегистрированные частотные смещения компонент НКР соответствуют собственным частотам кварцевых сфер субмикронного размера, из которых состояли используемые образцы синтетических опаловых матриц. Учитывая, что общим положением квантовой теории излучения является наличие вынужденного аналога у любого спонтанного радиационного процесса, спонтанному низкочастотному комбинационному рассеянию можно поставить в соответствие вынужденное рассеяние, аналогичной природы. Материал данной главы основан на работах [253-269].

§3.2 Экспериментальное наблюдение вынужденного низкочастотного комбинационного рассеяния света в нанокompозитах на основе синтетических опалов.

Целью экспериментальных работ, результаты которых вошли в данную главу, являлось исследование особенностей взаимодействия лазерного излучения с собственными акустическими колебаниями глобул диоксида кремния, образующих синтетические опаловые матрицы и нанокompозиты на их основе и экспериментальное наблюдение вынужденного рассеяния света,

обусловленного этим взаимодействием. Учитывая, что исследуемые образцы синтетических опаловых матриц представляют собой плотно упакованную структуру шаров (глобул) кремнезема, вынужденное низкочастотное комбинационное рассеяние света на акустических колебаниях таких глобул получило название - вынужденное глобулярное рассеяние (ВГР) света.

Для экспериментального исследования вынужденного низкочастотного комбинационного рассеяния света, возбуждаемого в нанокompозитах на основе синтетических опаловых матриц – вынужденного глобулярного рассеяния (ВГР) света, использовалась установка, показанная на рис. 3.1.

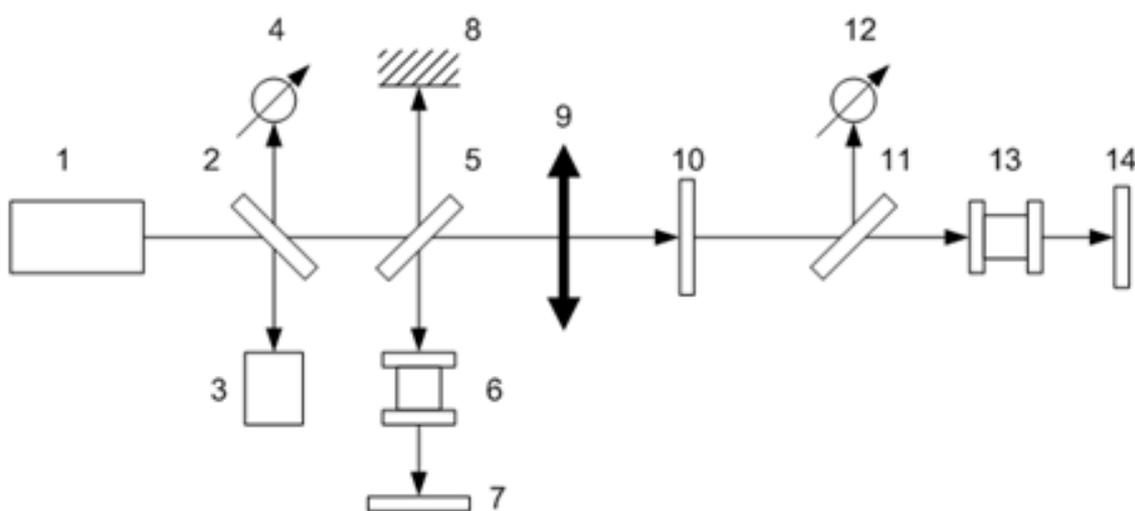


Рис.3.1. Схема экспериментальной установки. 1 - лазер, 2, 5, 11 - стеклянные пластины, 3 - система регистрации характеристик возбуждающего излучения, 8 - зеркало, 9 - линза, фокусирующая возбуждающее излучение на образце, 10 - образец, 6, 13 - интерферометры Фабри-Перо, 7, 14 - системы регистрации интерферограмм, 4,12 - системы измерения энергии рассеянного света в прямом и обратном направлении.

В качестве источника возбуждающего излучения использовался лазер на рубине (описание см. Гл. 1). Принципиальным моментом является использование лазера с узкой спектральной линией, так как спектральные смещения рассеянного излучения составляют величины от десятых долей до десятков обратных сантиметров.

Для регистрации спектральной структуры рассеянного излучения с небольшим спектральным смещением относительно возбуждающей линии использовался интерферометр Фабри-Перо. Спектры рассеянного излучения (интерферограммы в виде концентрических колец) регистрировались с помощью интерферометра Фабри-Перо с различными базами, что позволяло варьировать область дисперсии в широком диапазоне от $0,42 \text{ см}^{-1}$ до $1,67 \text{ см}^{-1}$ (см. Табл. 3.1).

Интерферометр Фабри-Перо используется, главным образом, для измерения разности длин волн, которую можно определить с высокой степенью точности, а также для измерения ширины и формы спектральных линий. Формула для определения разности длин волн имеет вид [270]:

$$d\lambda = \Delta\lambda \frac{\tilde{D}_{m,\lambda}^2 - \tilde{D}_{m,\lambda+d\lambda}^2}{\tilde{D}_{m,\lambda}^2 - \tilde{D}_{m+1,\lambda}^2} \quad (3.1)$$

где $\tilde{D}_{m,\lambda}$ – диаметр интерференционного кольца порядка m , соответствующий длине волны λ , $\Delta\lambda$ – область дисперсии интерферометра.

Область дисперсии интерферометра $\Delta\nu$ (выраженная в волновых числах $\Delta\nu = 1/\lambda \text{ см}^{-1}$) связана с его базой d следующим соотношением: $\Delta\nu = 1/2d$. Разрешающая способность интерферометра Фабри-Перо $\delta\nu$ определяется коэффициентом отражения его зеркал ρ и его базой d :

$$\delta\nu = (1 - \rho)/6d\sqrt{\rho} \quad (3.2)$$

В Табл.3.1 показаны основные параметры интерферометра Фабри-Перо, используемые в эксперименте. На Рис.3.2 приведены интерферограмма и спектральное распределение интенсивности возбуждающего излучения используемого лазера на рубине.

При этом наблюдается система «тонких» концентрических колец, ширина которых характеризует спектральную ширину линии генерации, составляющую в нашем случае порядка $0,015 \text{ см}^{-1}$.

Таблица 3.1. Параметры интерферометра Фабри-Перо, используемого в экспериментах по исследованию вынужденного рассеяния света в нанокompозитах на основе синтетических опалов.

$d, \text{см}$	$\Delta\nu, \text{см}^{-1}$	$\delta\nu, \text{см}^{-1}$
1,2	0,417	0,01
0,6	0,833	0,02
0,3	1,667	0,04

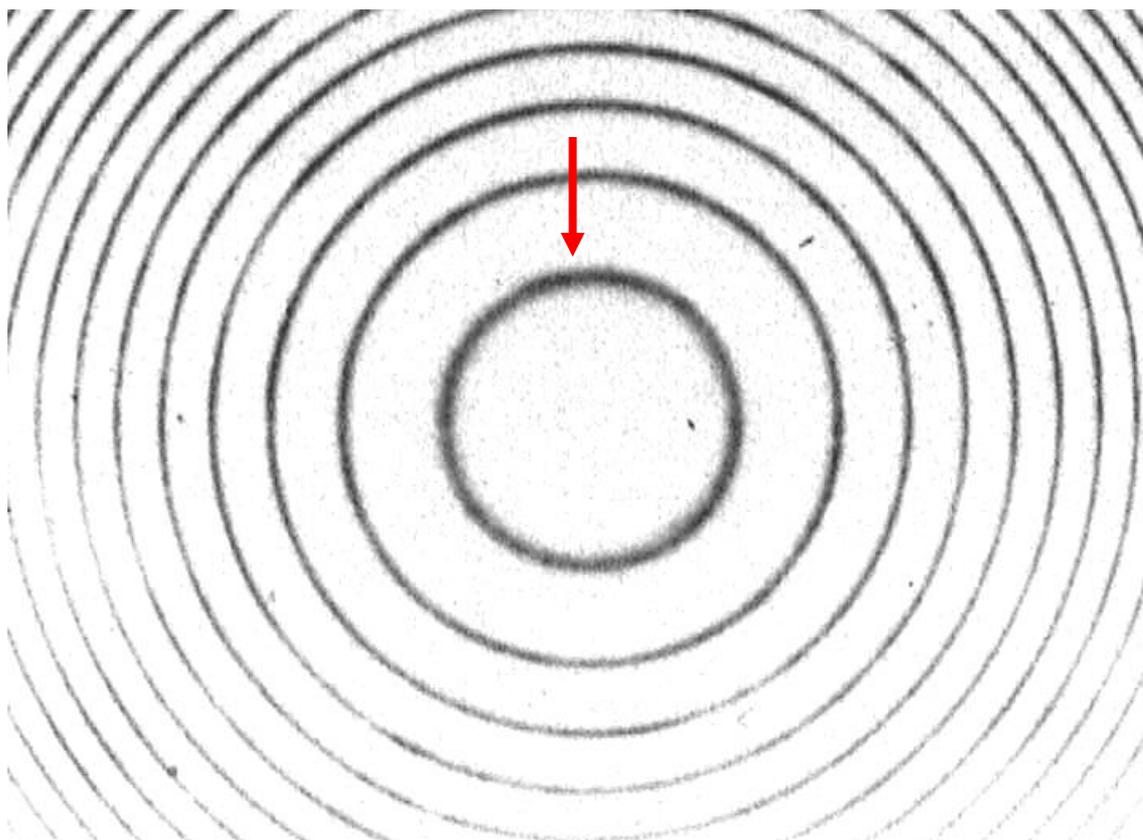


Рис. 3.2.а. Интерферограмма возбуждающего излучения лазера на рубине (длина волны генерации 694,3 нм).

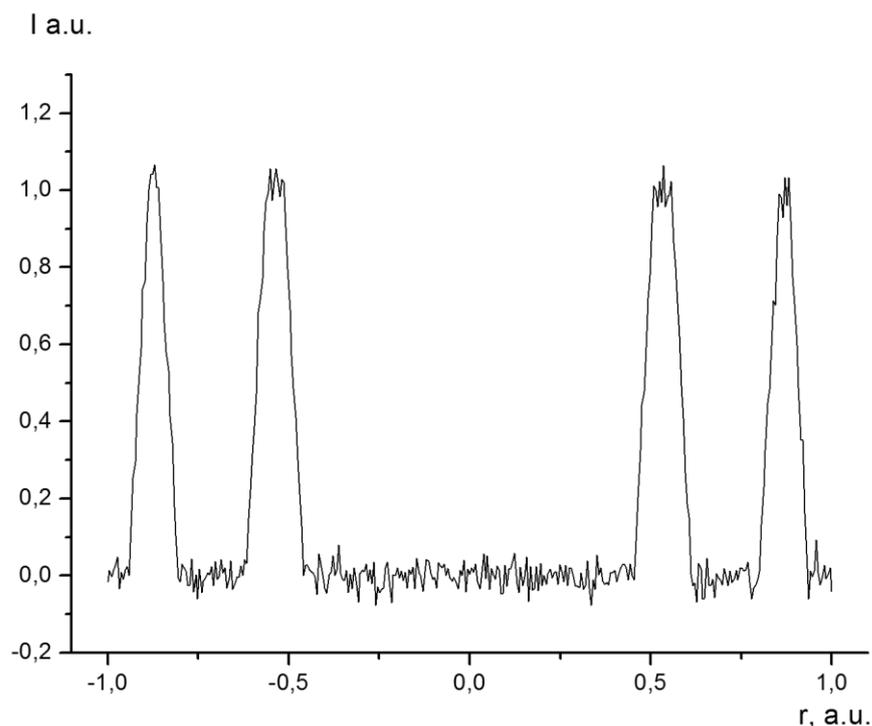


Рис. 3.2.б. Распределение интенсивности в спектре возбуждающего излучения лазера на рубине (длина волны генерации 694,3 нм). Значение $r=0,0$ соответствует центру интерференционного кольца.

Данная экспериментальная установка дает возможность исследовать спектральные характеристики излучения, рассеянного как в обратном, так и в прямом направлениях. Спектральные измерения проводились при интенсивности накачки ниже порога пробоя в веществе.

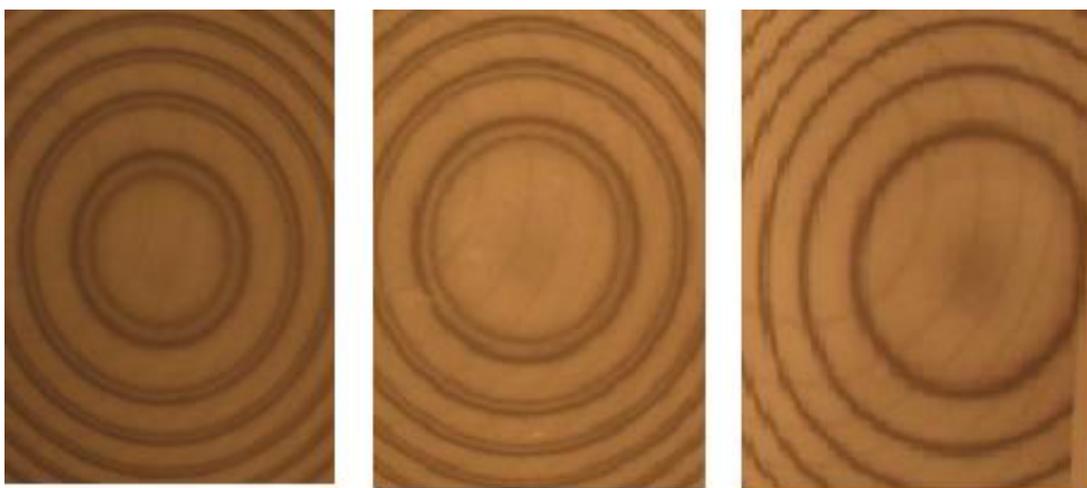
Следует отметить, что для всех исследованных образцов проводились исследования спектрального состава всего рассеянного излучения, то есть регистрировалось спектральное распределение излучения прошедшего образец и отраженного от образца в широком интервале длин волн. Для этой цели использовался спектрограф со скрещенной дисперсией СТЭ-1, линейная дисперсия которого в исследуемой области находилась в интервале 7,6-12,8 Å/мм.

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

В качестве образцов для исследования использовались синтетические опаловые матрицы, образованные плотноупакованными глобулами диоксида кремния одинакового диаметра (с точностью ~ 3%). Использовались образцы с диаметром глобул от 200 нм до 320 нм. Также исследовались нанокompозиты на основе данных матриц, а именно образцы, инфильтрованные различными нелинейными жидкостями.

В данных экспериментах для различных образцов и различных условий возбуждения исследовались спектры рассеянного излучения, распространяющегося навстречу накачке и попутно с ней. Причем, регистрация спектров для этих двух направлений осуществлялась одновременно. Было установлено, что при достижении порогового значения накачки, которое определялось характеристиками образца, возбуждалось вынужденное рассеяние света – вынужденное глобулярное рассеяние (ВГР). Для образцов синтетических опаловых матриц без заполнения молекулярными жидкостями регистрировалось рассеяние в направлении назад (большой контраст показателя преломления приводил к сильному светорассеянию, что делало затруднительным проведение спектральных измерений для излучения, прошедшего образец).

На рис. 3.2 приведены интерферограммы ВГР «назад» для различных значений интенсивности накачки. При достижении порогового значения интенсивности накачки, в спектре излучения, распространяющегося навстречу накачке, появляется дополнительная спектральная компонента. Рассеянное излучение имеет отчетливо выраженный направленный характер, расходимость составляет величину порядка 10^{-3} рад. При дальнейшем увеличении интенсивности накачки происходило увеличение интенсивности рассеяния, а спектральное смещение рассеянного излучения относительно излучения накачки не изменялось.



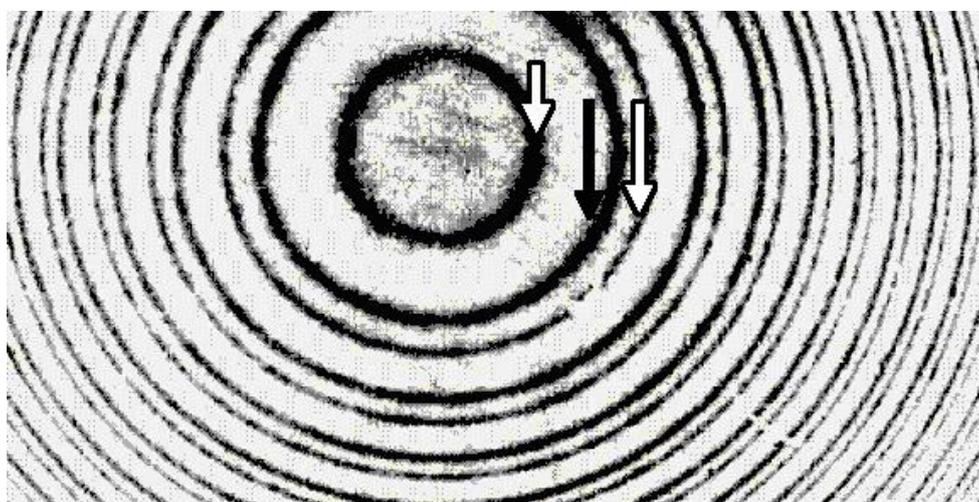
а)

б)

в)

Рис. 3.2. Интерферограмма рассеяния света в направлении назад при возбуждении рассеяния в незаполненной опаловой матрице при различных интенсивностях накачки а) $0,18 \text{ ГВт/см}^2$, б) $0,13 \text{ ГВт/см}^2$, в) $0,06 \text{ ГВт/см}^2$.

Смещение первой стоксовой компоненты ВГР «назад», возбуждаемой в опаловой матрице с диаметром глобул 200 нм, составило величину $0,44 \text{ см}^{-1}$. (Рис. 3.3).



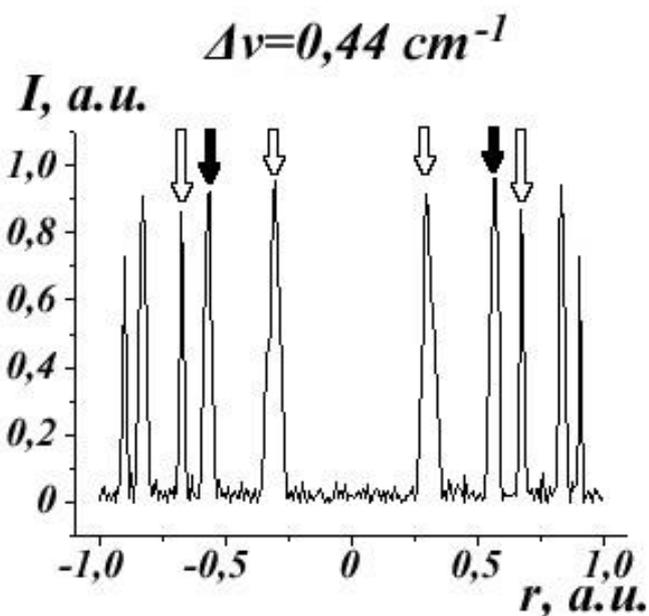
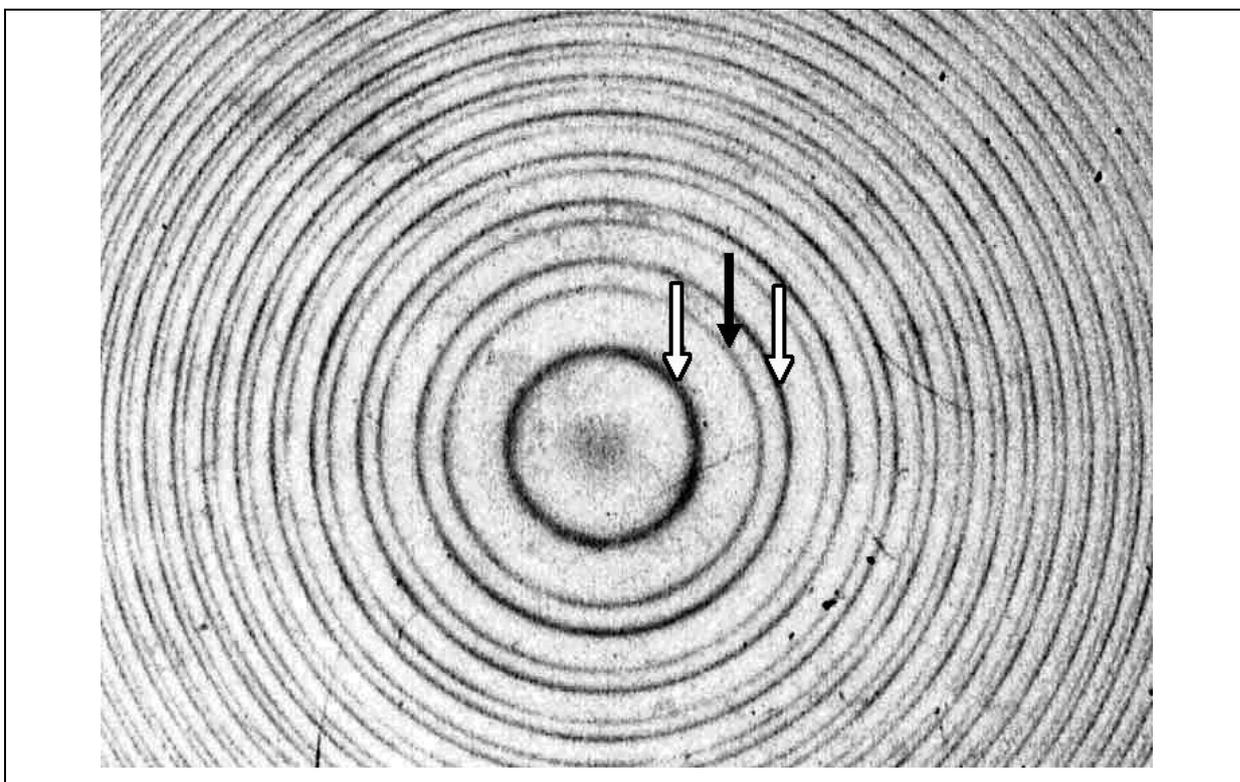


Рис. 3.3 Интерферограмма ВГР «назад» при возбуждении рассеяния в незаполненной опаловой матрице с диаметром глобул 200 нм. Интенсивность накачки 0,12 ГВт/см²

На Рис.3.4 - 3.6 представлены типичные интерферограммы спектров ВГР опалов, пропитанных ацетоном и этанолом, для различных геометрий рассеяния и режимов возбуждения.



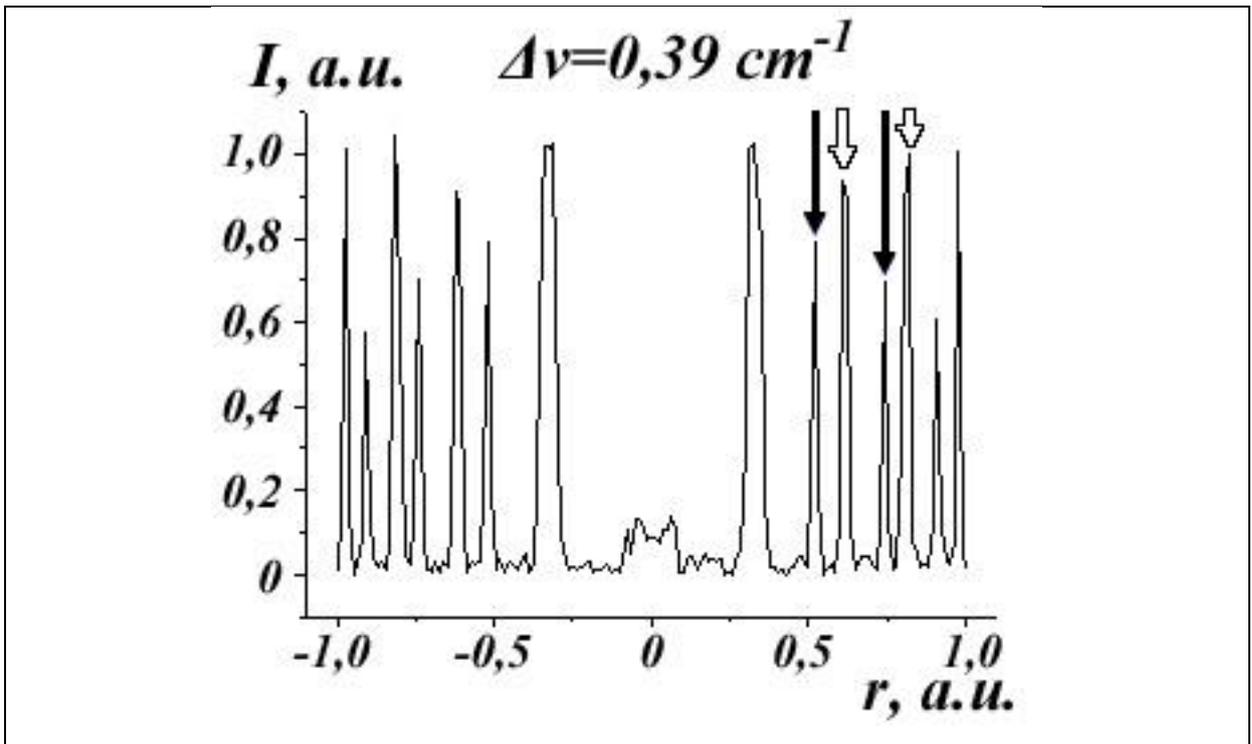


Рис.3.4. Интерферограмма ВГР в опале, заполненном этанолом при геометрии рассеяния «назад». Интенсивность 0,21 ГВт/см².

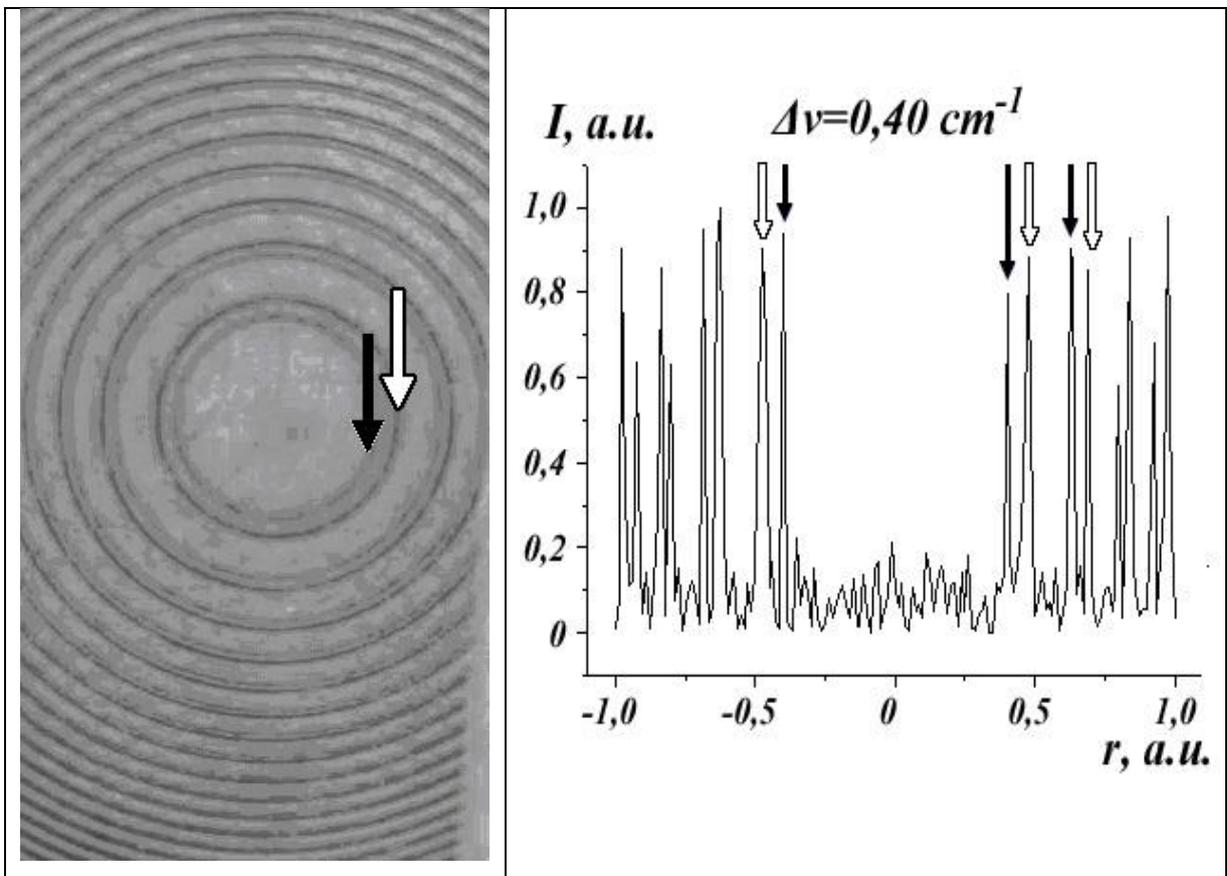


Рис.3.5 Интерферограмма ВГР в опале, заполненном ацетоном. Геометрия рассеяния "назад". Область дисперсии интерферометра $1,67 \text{ см}^{-1}$. Лазерному излучению ($\lambda=694,3 \text{ нм}$) соответствует кольцо большего диаметра. Интенсивность накачки $0,12 \text{ ГВт/см}^2$. Пространственный сдвиг стоксовой компоненты относительно возбуждающего излучения соответствует частотному сдвигу $0,40 \text{ см}^{-1}$.

При геометрии рассеяния «назад» при плотности мощности накачки более $0,12 \text{ ГВт/см}^2$ для опалов, пропитанных этанолом, на интерферограммах наблюдалась первая стоксовая компонента со сдвигом частоты $0,39 \text{ см}^{-1}$ и для опалов, пропитанных ацетоном, со сдвигом $0,40 \text{ см}^{-1}$. Увеличение интенсивности накачки приводило к появлению второй стоксовой компоненты с частотным сдвигом $0,65 \text{ см}^{-1}$ для опаловой матрицы, инфильтрованной ацетоном (Рис. 3.6) и $0,63 \text{ см}^{-1}$ для опаловой матрицы, инфильтрованной этанолом.

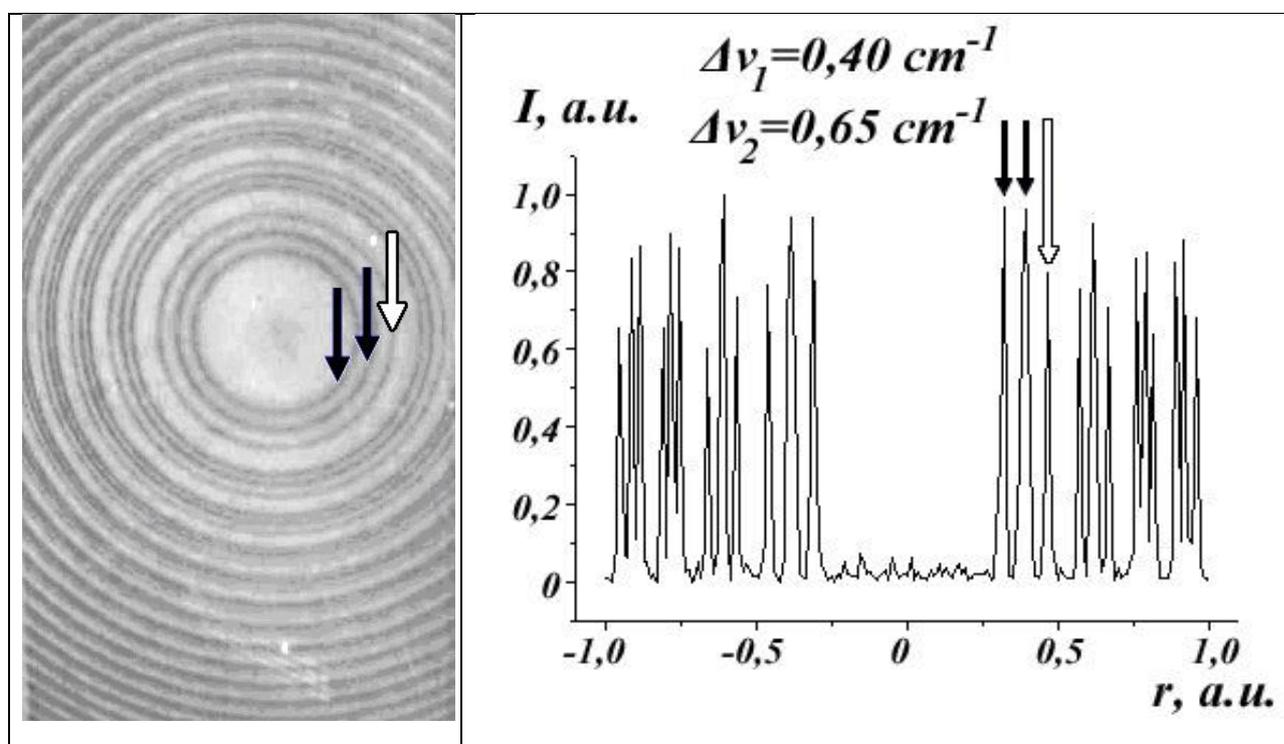


Рис.3.6. Интерферограмма ВГР в опале, заполненном ацетоном. Геометрия рассеяния "назад". Область дисперсии интерферометра $1,67\text{см}^{-1}$. Лазерному излучению ($\lambda=694,3$ нм) соответствует кольцо большего диаметра. Интенсивность накачки $0,21$ ГВт/см².

Пороговое значение интенсивности накачки, при котором начинается генерация второй стоксовой компоненты в направлении навстречу накачке, для образцов нанокмполитов с инфильтрацией ацетоном, составляло величину 0.21 ГВт/см², а для образцов, инфильтрованных этанолом – 0.23 ГВт/см².

При инфильтрации опаловой матрицы этиловым спиртом или ацетоном, образец становится практически прозрачным для видимого света, так как при этом показатели преломления жидкости и кремнезема отличаются несущественно. В этом случае ВГР возбуждалось как в направлении «вперед», так и в направлении «назад».

Прозрачность образца для возбуждающего излучения обеспечила возможность наблюдения ВГР при 0° – градусной геометрии.

На Рис.3.7 представлен спектр ВГР в опале, пропитанном ацетоном, при геометрии рассеяния «вперед». В каждом порядке возбуждения кольцо большего диаметра относятся к лазерному излучению, и кольцо меньшего диаметра соответствует ВГР.

В направлении «вперед» наблюдалась только одна стоксовая компонента с частотным сдвигом 0.4 см⁻¹ для опала, пропитанного ацетоном и $0,37$ см⁻¹ для опала, пропитанного этанолом.

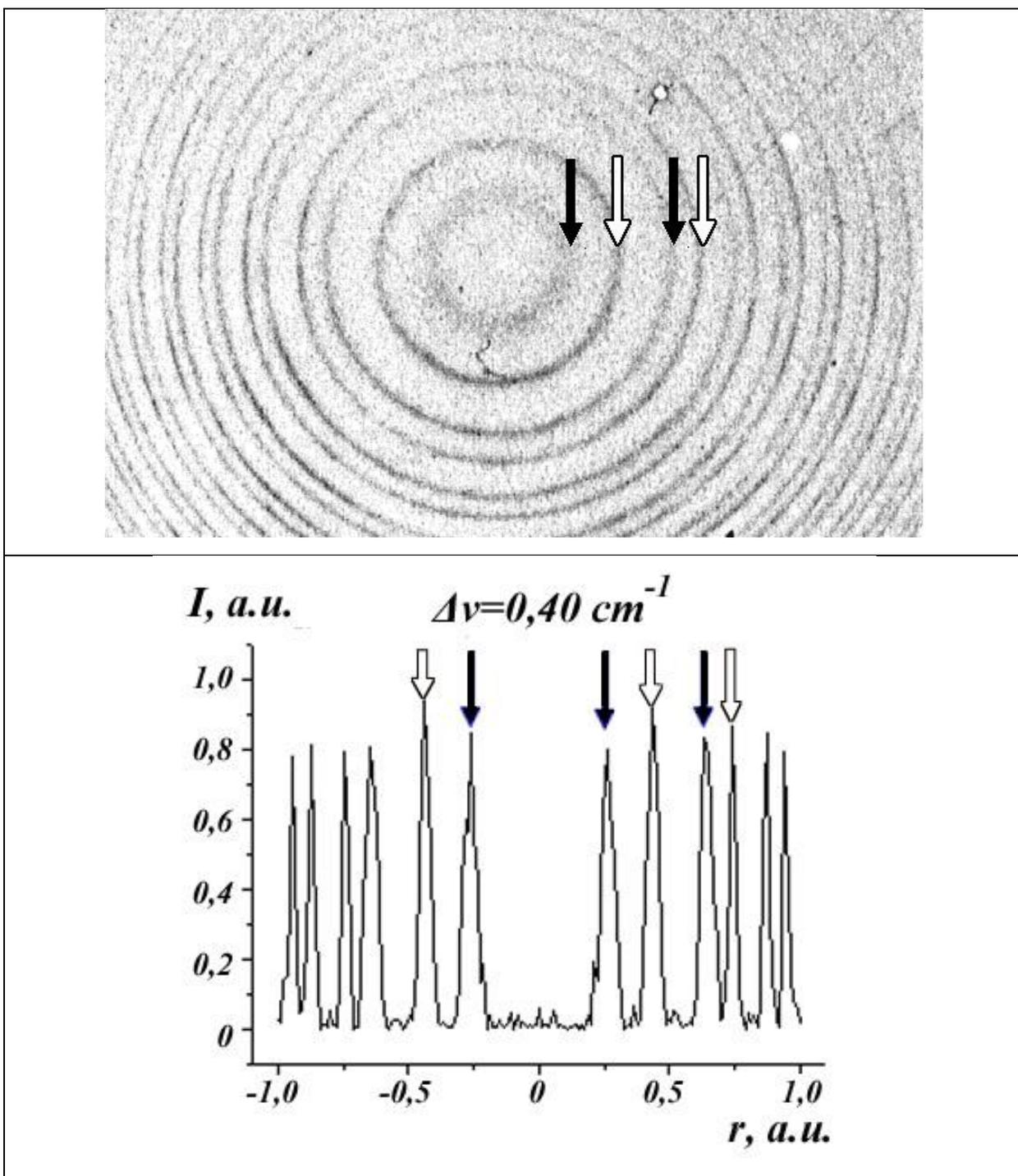


Рис.3.7 Интерферограмма ВГР в опале, заполненном ацетоном при геометрии рассеяния «вперед». Область дисперсии интерферометра $0,833 \text{ см}^{-1}$. Лазерному излучению (контурные стрелки на спектре и интерферограмме) ($\lambda=694,3\text{нм}$) соответствует кольцо большего диаметра.

Пороги появления первой стоксовой компоненты в направлениях «вперед» и «назад» были одинаковы. Вторая стоксовая компонента была зарегистрирована только для рассеяния «назад» в нанокompозитах, инфильтрованных ацетоном и этанолом. При интенсивностях возбуждающего излучения, используемого в эксперименте, порог возбуждения второй стоксовой компоненты ВГР не достигался. Понижение температуры образцов до температуры жидкого азота понижало порог генерации первой стоксовой компоненты ВГР примерно в 3 раза. Для нанокompозита с инфильтрацией ацетоном и этанолом пороговые значения интенсивности возбуждения понижались с $\sim 0,12 \text{ МВт/см}^2$ до значения $\sim 0,04 \text{ МВт/см}^2$ при понижении температуры образцов от 293К до 77К. Также при температуре жидкого азота понижались пороги генерации высших стоксовых компонент, в образце синтетической опаловой матрицы, инфильтрованной этанолом, в направлении вперед была получена генерация 3 стоксовых компонент ВГР. Пороговое значение интенсивности накачки в этом случае составило величину $0,35 \text{ ГВт/см}^2$.

Ширина линий ВГР для всех компонент была порядка ширины лазерной линии (около $0,015 \text{ см}^{-1}$). Расходимость излучения ВГР составляла величину порядка 10^{-3} рад и была близка к лазерной.

Из всего многообразия различных типов вынужденных рассеяний света, которые могут возбуждаться в рассматриваемых системах, вынужденное рассеяние Мандельштама-Бриллюэна является рассеянием, смещение частоты которого относительно возбуждающего излучения лежит в гигагерцовом диапазоне, то есть в том же, что и смещение ВГР. Для сравнения вида полученных спектров и спектров ВРМБ в используемых молекулярных жидкостях нами были получены интерферограммы спектров ВРМБ ацетона, этанола и плавленого кварца. Для регистрации спектров использовалась установка аналогичная той, на которой проводились измерения для синтетических опалов. Использовались ацетон и этанол, применяемые для спектральных измерений. На Рис.3.8 представлена

интерферограмма ВРМБ в ацетоне. ВРМБ, как и должно быть, возбуждалось только в направлении назад. Полученные результаты по смещению частоты ВРМБ относительно частоты возбуждающего излучения, соответствующие известным литературным данным, однозначно позволяют утверждать, что в условиях эксперимента в образцах синтетических опаловых матриц и нанокompозитов на их основе, ВРМБ не возбуждалось.

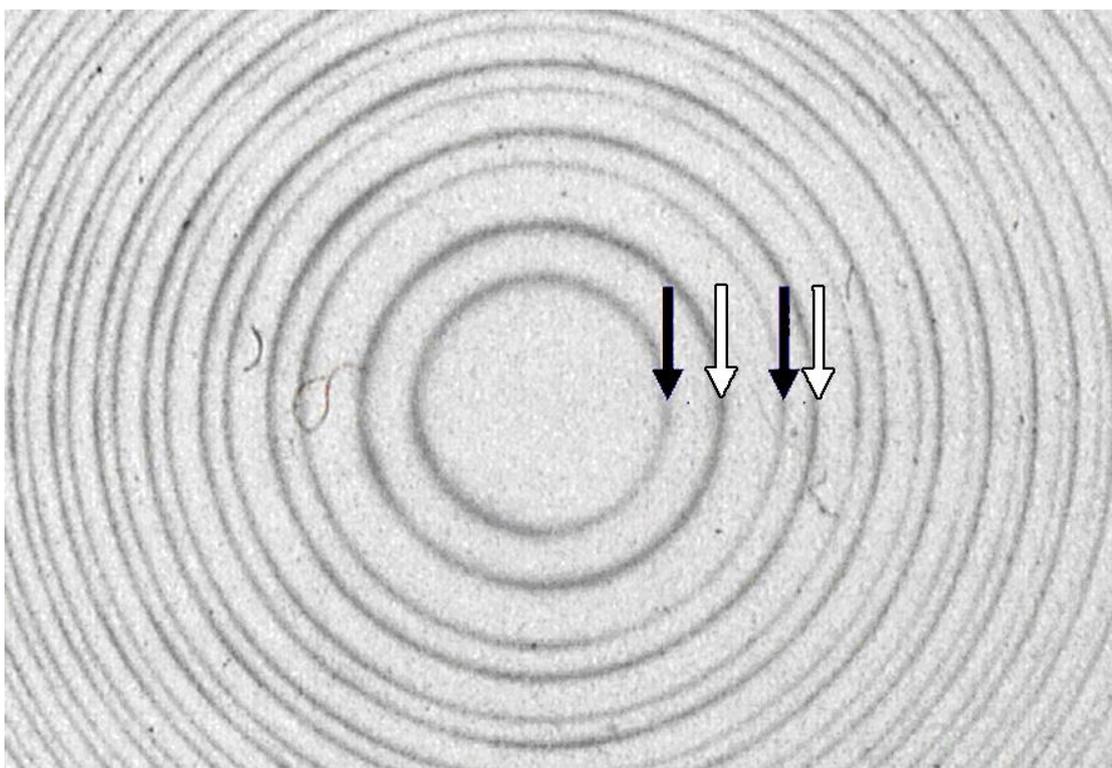


Рис. 3.8. Интерферограмма спектра ВРМБ в ацетоне при геометрии рассеяния «назад». Кольца на интерферограммах соответствуют лазерному излучению (наиболее интенсивное кольцо, обозначено контурными стрелками), и первой стоксовой компоненте (обозначено черной стрелкой).

В Табл. 3.2 приведены частотные сдвиги $\Delta\nu$ ВГР лазерного излучения в искусственных опалах и опаловых матрицах с диаметром глобул 200 нм, заполненных комбинационно-активными жидкостями, а также частотные сдвиги компонент ВРМБ этих жидкостей для различных геометрий эксперимента и для различной температуры образцов.

Таблица 3.2. 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, образующих синтетические опалы, а также значения параметров ВРМБ жидкостей, использовавшихся для заполнения опаловых матриц.

Образец	Геометрия рассеяния	$\Delta\nu, \text{см}^{-1}$ Эксперимент	$\Delta\nu, \text{см}^{-1}$ Расчет	$\nu, \text{ГГц}$ Эксперимент	$\nu, \text{ГГц}$ Расчет
Комнатная температура (293 К)					
Аморфный кварц	назад (ВРМБ)	~ 1	-	-	-
ацетон	назад (ВРМБ)	0,16	-	-	-
этанол	Назад (ВРМБ)	0,17	-	-	-
опал	назад	0,44	0,44	13,2	13,2
опал + ацетон	вперед	0,40	0,44	12,0	13,2
	назад	0,40 0,65	0,44 0,68	12,0 19,5	13,2 20,4
опал + этанол	вперед	0,37	0,44	11,1	13,2
	назад	0,39 0,63	0,44 0,68	11,7 18,9	13,2 20,4
Температура жидкого азота (77 К)					

опал этанол	+	вперед	0,40	0,44	12,0	13,2
			0,77	0,68	23,1	20,4
			1,13	1,07	33,9	32,1

Для сравнения значений полученных частотных сдвигов с частотами собственных колебаний глобул диоксида кремния, образующих синтетическую опаловую матрицу, в Табл.3.2 приведены значения частот в ГГц, соответствующие экспериментально наблюдаемым частотным сдвигам, а также теоретические значения собственных частот колебаний кварцевых глобул, рассчитанные по формулам, приведенным в работе [39].

Из Табл.3.2 видно, что при понижении температуры до 77К число компонент возрастает, то есть происходит перераспределение энергии в пользу компонент высшего порядка. В данных экспериментальных условиях в нанокompозите (опал инфильтрованный этанолом) возбуждалось три стоксовых компоненты.

Наблюдение ВГР оказалось возможным при использовании в качестве источника возбуждающего излучения лазера на рубине, работающего в режиме модуляции добротности (длина волны генерации 694,3 нм, пиковая мощность порядка 10^7 Вт), и при фокусировке возбуждающего излучения в вещество, чтобы обеспечить значение интенсивности около 1 ГВт/см^2 . Принципиальным моментом для наблюдения ВГР является достаточно узкая спектральная ширина возбуждающей линии, так как спектральные смещения ВГР составляют величину порядка десятых обратного сантиметра. Расходимость пучка ВГР была близка к расходимости пучка накачки.

ВГР в чистых опалах наблюдается в обратном направлении с частотным сдвигом $0,44 \text{ см}^{-1}$. ВГР в опаловых нанокompозитах (опал, пропитанный ацетоном и опал, пропитанный этанолом) наблюдается как в прямом, так и в обратном направлениях.

В случае прямой геометрии рассеяния наблюдается одна стоксовая компонента ВГР ($0,40 \text{ см}^{-1}$ для опала, пропитанного ацетоном и $0,37 \text{ см}^{-1}$ для опала, инфильтрованного этанолом), а в случае обратной геометрии – одна или даже две стоксовые компоненты, в зависимости от плотности мощности накачки. При этом частотный сдвиг первой компоненты Стокса немного меньше частоты соответствующего сдвига для чистого кристалла.

В обратном направлении для нанокомпозитов наблюдается вторая компонента Стокса с частотным сдвигом $0,65 \text{ см}^{-1}$ для опала, пропитанного ацетоном и $0,63 \text{ см}^{-1}$ для опала, пропитанного этанолом.

Отметим, что вторая стоксовая компонента ВГР наблюдалась не для всех исследованных образцов.

В таблице 3.2 были приведены значения собственных частот кварцевых глобул, с которыми сравнивались экспериментально полученные значения. Рассмотрим, как вычисляются эти частоты по аналогии с [281].

Уравнение движения объемного упругого тела запишем в виде

$$\rho \frac{\partial^2 \mathbf{D}}{\partial t^2} = (\lambda + \mu) \nabla (\nabla \cdot \mathbf{D}) + \mu \nabla^2 \mathbf{D} \quad (3.3)$$

где \mathbf{D} – смещение, λ и μ – коэффициенты Ламе. Решаем эти уравнения, введя скалярный и векторный потенциалы. Решение уравнения для скалярного потенциала имеет вид:

$$\phi_s \propto j_l(hr) P_l^m(\cos \theta) \frac{\cos m\phi}{\sin m\phi} \exp(-i\omega t), \quad (3.4)$$

где j_l - сферическая функция Бесселя, а $h = \omega/c$. Смещение, полученное из ϕ_s равно $\bar{D}_s = \bar{\nabla} \phi_s$. Векторный потенциал задан как $\bar{A} = (r\psi_v, 0, 0)$, где

$$\psi_v \propto j_l(kr) P_l^m(\cos \theta) \frac{\cos m\phi}{\sin m\phi} \exp(-i\omega t), \quad (3.5)$$

где $k = \omega/c_T$. Существует два типа смещения, определенные как

$$\bar{D}_{v1} = \bar{\nabla} \times \bar{A} \quad \text{и} \quad \bar{D}_{v2} = \bar{\nabla} \times \bar{\nabla} \times \bar{A} = \bar{\nabla} \times \bar{D}_{v1}. \quad (3.6)$$

Напряжения запишутся, как

$$\hat{R}R = \lambda \cdot \bar{\nabla} \cdot \bar{D} + 2\mu \hat{\partial}u / \hat{\partial}r \quad (3.7)$$

$$\hat{R}\theta = \mu[\hat{\partial}v / \hat{\partial}r - v/r + (1/r)\hat{\partial}u / \hat{\partial}\theta] \quad (3.8)$$

$$\hat{R}\varphi = \mu[1/(\sin \theta)(\hat{\partial}u / \hat{\partial}\varphi) + \hat{\partial}w / \hat{\partial}r - w/r] \quad (3.9)$$

где $\bar{D} = (u, v, w)$.

Согласно Лэмбу, в сфере существует 2 типа акустических мод – сфероидальная и торсионная. Они характеризуются квантовым числом углового момента l . Для сферических мод $l = 0, 1, 2, \dots$. Правила отбора для рассеяния света, полученные Дювалем [272], исключают комбинационную активность торсионных мод, разрешая появление в спектре рассеянного света только сфероидальных мод с $l = 0$ или 2. Последовательность собственных мод, в порядке возрастания энергии, обозначены числом $n = 1, 2, 3, \dots$, где $n=1$ соответствует поверхностным колебаниям, а величины с $n \geq 2$ связаны с внутренними колебаниями упругой сферы.

Решение для сфероидальных мод получается из граничных условий для напряжений, полученных из \bar{D}_s и \bar{D}_{v_2} при $r = R$, что приводит к следующим уравнениям:

$$\hat{R}R_s + \hat{R}R_{v_2} = 0 \quad \hat{R}\theta_s + \hat{R}\theta_{v_2} = 0 \quad \hat{R}\varphi_s + \hat{R}\varphi_{v_2} = 0, \quad (3.10)$$

Характеристическое уравнение для сфероидальных мод (с $l \geq 0$):

$$2 \left[\eta^2 + (l-1)(l+2) \left(\frac{\eta j_{l+1}(\eta)}{j_l(\eta)} - (l+1) \right) \right] \frac{\xi j_{l+1}(\xi)}{j_l(\xi)} - \frac{1}{2} \eta^4 + (l-1)(2l+1)\eta^2 + [\eta^2 - 2l(l-1)(2l+1)] \frac{\eta j_{l+1}(\eta)}{j_l(\eta)} = 0, \quad (3.11)$$

где η и ξ – собственные значения, а j_l – сферические функции Бесселя 1го порядка. Собственные значения могут быть выражены, как

$$\xi_{nl} = hR = \omega R / c_L = \pi v_{nl} d / c_L \text{ и } \eta_{nl} = hR = \omega R / c_T = \pi v_{nl} d / c_T, \quad (3.12)$$

где v_{nl} - частота сфероидальной моды, а c_L и c_T - соответственно продольная и поперечная звуковые скорости; d – диаметр сферы.

Уравнение (3.11) решается при заданном соотношении c_L / c_T . В работе [39] были вычислены частоты для кварцевых сфер, при продольной и поперечной скоростях акустических мод $c_L = 5279$ м/с и $c_T = 3344$ м/с. Как показано в этой работе, выражения для частот (в ГГц) можно представить в следующем виде:

$$v_{10} = 2.617/d, \quad v_{12} = 2.796/d, \quad v_{20} = 4.017/d, \quad v_{30} = 6.343/d,$$

где d – диаметр сферы (в 10^{-6} м).

Следует отметить, что при вычислениях значения скоростей звука берутся для объемного образца. Для синтетических опаловых матриц полученные экспериментально скорости распространения звука в образце на частотах порядка сотен мегагерц, полученные экспериментально для различных образцов, составляют порядка 2-3 км/с для продольных колебаний и порядка 1.5 - 2 км/с для поперечных. Для гигагерцового диапазона частот в литературе данные отсутствуют, хотя очевидно, что, когда длина звуковой волны приближается к размеру глобул, составляющих опаловую матрицу, возможно возникновение эффектов, обусловленных брэгговским отражением, в частности, формирование фононных запрещенных зон.

Как видно из таблицы 3.2, существует некоторая разница в значениях частот, полученных экспериментально и рассчитанных теоретически, для экспериментов с нанокompозитами на основе синтетических опалов. Причин данного рассогласования может быть несколько. Во - первых, скорость (а значит константы Ламэ) распространения звука в кварцевой глобуле, из которых состоит опаловая матрица, сильно зависят от структурных факторов, которые не учитываются в применяемой теоретической модели. Упругие

константы твердого тела являются макроскопическими параметрами, и поэтому их значения могут, пусть даже и не очень сильно, но отличаться от этих же констант применительно к соответствующей наночастице. Во-вторых, форма частиц, формирующих опаловую матрицу, отличается от сферической. В-третьих, операция упрочнения образцов, применяемая на конечной стадии производства, приводит к образованию достаточно прочных силоксановых связей в местах контакта глобул друг с другом. Это меняет граничные условия в задаче о нахождении собственных частот упругого шара и, естественно, меняет значения этих частот.

Для случая идеальной упругой сферы со свободными граничными условиями, используя значения продольной и поперечной скоростей для плавленого кварца, мы получаем следующие значения частот колебаний кварцевых глобул ($D = 200\text{нм}$): $\nu_{10} = 0,44\text{см}^{-1}$, $\nu_{20} = 0,68\text{см}^{-1}$ (см. Табл.3.2).

Как видно из Табл. 3.2, экспериментальные и теоретические значения смещения частоты рассеянного излучения относительно частоты возбуждающего излучения очень близки (с учетом сделанных замечаний), что служит вполне удовлетворительным свидетельством наблюдения принципиально нового вида ВР света, обнаруживаемого в ФК, созданных на основе опаловых матриц – вынужденного глобулярного рассеяния света (ВГР). Данный тип рассеяния является результатом взаимодействия собственных акустических колебаний кварцевых глобул, составляющих опаловую матрицу с импульсным лазерным излучением.

Как уже отмечалось выше, основным типом рассеяния, имеющим частотный сдвиг, в том же частотном диапазоне, что и ВГР, является ВРМБ. Основным критерием, отличающим ВГР «назад» от ВРМБ является отличие значения сдвигов стоксовых частот ВГР в опаловых матрицах, инфильтрованных молекулярными жидкостями, от соответствующих сдвигов ВРМБ (Таб.3.2).

Отметим ещё один важный экспериментальный факт, отличающий

процесс ВГР от ВРМБ. Как известно, ВРМБ вообще невозможно наблюдать, в направлении попутном с накачкой, что является следствием когерентности процесса спонтанного рассеяния Мандельштама-Бриллюэна, подразумевающей выполнения закона сохранения импульса. В случае процесса ВГР, спонтанное низкочастотное рассеяние, являющееся его спонтанным аналогом, так же как и спонтанное комбинационное рассеяние на молекулярных колебаниях, является некогерентным процессом, именно поэтому ВГР с одним и тем же частотным смещением распространяется как в направлении «вперед», так и в направлении «назад».

Результаты измерений зависимости параметров ВГР от диаметра сфер представлены в Табл.3.3.

Таблица 3.3. Частотные сдвиги $\Delta\nu_i$ ВГР положение максимума стоп-зон $\Lambda_{\text{ФЗЗ}}$ в спектре ВГР при прямой геометрии рассеяния в зависимости от размера кварцевых глобул при нормальном падении возбуждающего излучения.

Образец	$\Delta\nu_i$, ГГц Эксперимент	Диаметр сфер ¹ $D \pm 5$, нм	$\lambda_{\text{ФЗЗ}}$, нм Эксперимент
опал + этанол	5,1	315	656
	6,6	290	628
	7,8	270	575
	11,1	245	540

Спектральные измерения положения фотонной запрещенной зоны, проведенные для тех же образцов, показывают хорошее соответствие с экспериментальных результатов с теоретическими. Измерения проводились с использованием установки для оптической характеристики опаловых матриц

¹ По данным электронной микроскопии.

(Рис.2.2).

Экспериментальная зависимость частотного смещения частоты ВГР относительно частоты возбуждающего излучения от диаметра глобул, составляющих синтетический опал, показана на Рис.3.9.

Используемые образцы синтетических матриц были монодисперсны – отклонение размера глобул от заявленного производителем были в пределах 3%.

Основной результат из данного эксперимента следующий – увеличение диаметра кварцевых глобул приводит к уменьшению частотного смещения излучения ВГР относительно излучения накачки. Данный размерный эффект не только подтверждает обоснованность выводов о природе ВГР, но и показывает возможность эффективного управления параметрами частотной модуляции когерентного излучения.

Следует отметить тот факт, что положение стоп-зоны напрямую не влияет на спектральные характеристики ВГР. Положение стоп-зоны, (см. Табл.3.3), $\lambda_{\text{ФЗЗ}}$ зависит от размера глобул, из которых состоит опаловая матрица, а также от свойств вещества, заполняющего пустоты между глобулами. Причем в зависимости от этих свойств можно менять положение стоп-зоны в достаточно широких пределах, практически во всем видимом диапазоне. Влияние вещества, которым инфильтрована опаловая матрица, на ВГР, а именно на его частотное смещение, заключается в изменении граничных условий и некотором изменении собственной частоты кварцевых глобул. В приведенных экспериментах, изменение частоты было в пределах 10 процентов от его значения.

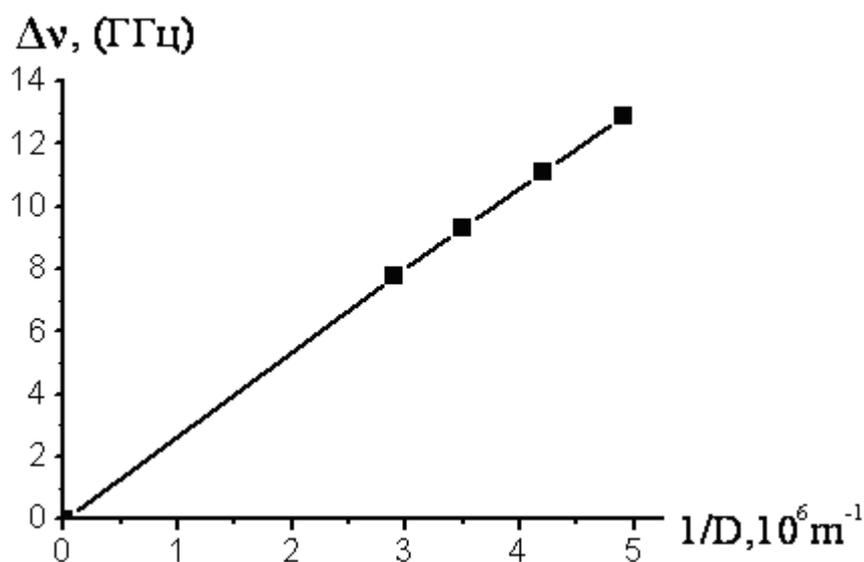


Рис.3.9 Зависимость сдвига частоты первой стоксовой компоненты ВГР от обратного диаметра кварцевых глобул, формирующих синтетический опал, для прямой геометрии рассеяния.

В таблице 3.4 приведены данные о различных типах вынужденного рассеяния света, которые экспериментально наблюдались в различных нанокompозитах на основе синтетических опалов, при использовании для возбуждения излучения лазера на рубине, работающего в режиме модуляции добротности. Здесь приведены следующие параметры жидкостей, которыми были инфильтрованы исследованные образцы: n/n_{SiO_2} – контраст показателя преломления (отношение показателя преломления среды, заполняющей синтетическую опаловую матрицу к значению показателя преломления плавленого кварца); эффективное значение показателя преломления $n_{\text{эфф}}$; λ_s – длина волны первой стоксовой компоненты ВКР, соответствующей среде, заполняющей образец; $\lambda_{\text{ФЗЗ}}$ – положение центра ФЗЗ; D – диаметр кварцевых глобул.

Таблица 3.4. Параметры образцов нанокompозитов для наблюдения вынужденного рассеяния (ВР): ВКР, ВГР в направлениях «вперед» (ВГРВ) и ВГР «назад» (ВГРН).

Вещество	n/n_{SiO_2}	$n_{эфф}$	λ_s , нм	$\lambda_{ФЗЗ}$, нм	D , нм	Геометрия реализованного ВР
Нитробензол $C_6H_5NO_2$	1,07	1,480	765,8	483,07	200	ВГРН
				555,5	230	ВГРН
				627,99	260	ВГРН
				724,605	300	ВГРН, ВКР
				772,95	320	ВГРН
Бензол C_6H_6	1,04	1,465	745,6	476,5	200	ВГРН
				547,98	230	ВГРН
				619,45	260	ВГРН
				714,75	300	ВГРН
				762,4	320	ВГРН
Четыреххлористый углерод CCl_4	1,01	1,455	717,2	474,9	200	ВГРН
				546,13	230	ВГРН
				617,37	260	ВГРН
				712,35	300	ВГРН
				759,84	320	ВГРН
Ацетон CH_3COCH_3	0,930	1,429	871,3	466,42	200	ВГРН, ВГРВ
				536,38	230	ВГРН, ВГРВ
				606,37	260	ВГРН, ВГРВ
				699,63	300	ВГРН
				746,27	320	ВГРН, ВГРВ
Этанол C_2H_5OH	0,930	1,430	871,1	466,75	200	ВГРН, ВГРВ
				536,8	230	ВГРН, ВГРВ
				606,78	260	ВГРН, ВГРВ
				700,125	300	ВГРН, ВГРВ
				746,8	320	ВГРН, ВГРВ
Вода H_2O	0,917	1,420	906,7	463,5	200	ВГРН, ВГРВ
				533,03	230	ВГРН, ВГРВ
				602,55	260	ВГРН, ВГРВ
				695,25	300	ВГРН
				741,6	320	ВГРН, ВГРВ
Опал SiO_2	0,690	1,350	715,2	440,64	200	ВГРН
				506,74	230	ВГРН
				572,83	260	ВГРН

				660,96	300	ВГРН
				705,024	320	ВГРН

Толщина образцов, используемых в этих экспериментах, составляла величину 2 мм. Образцы освещались сфокусированным пучком лазерного излучения; в процессе измерения менялась геометрия освещения активной среды, и интенсивность накачки. Регистрировался спектр рассеянного излучения в широком диапазоне (с помощью СТЭ-1), а также его тонкая структура с помощью интерферометров Фабри-Перо, причем спектральные измерения проводились как для рассеяния в направлении «вперед», так и в направлении «назад».

Во всех исследованных образцах нанокompозитов наблюдалось ВГР распространяющееся навстречу накачке с высокой эффективностью преобразования. ВГР в направлении вперед наблюдалось в нанокompозитах, инфильтрованных жидкостями с показателем преломления близким к показателю преломления диоксида кремния, то есть практически прозрачных для возбуждающего излучения. В случае сильного отличия показателей преломления, то есть высокого контраста показателей преломления, уменьшается длина свободного пробега фотонов в среде и режим распространения становится диффузным, что приводит к существенному понижению эффективности ВГРВ.

В ряде случаев ВГР в направлении вперед не возбуждалось для нанокompозитов с низким значением контраста показателя преломления. Такая ситуация возникала в случае попадания частоты возбуждающего излучения в область фотонной запрещенной зоны. Эффект фотонной запрещенной зоны приводил к существенному ослаблению накачки при её распространении в образце и порог возбуждения ВГР в направлении вперед не достигался.

ВГР в различных образцах отличалось по эффективности преобразования возбуждающего излучения в рассеянное и по числу линий в спектре. Максимальная эффективность преобразования волны накачки в стоксовую компоненту ВГР составляла величину 0,6 и была получена при температуре охлаждения образца синтетической опаловой матрицы, инфильтрованной ацетоном, до температуры жидкого азота. Энергетическая зависимость первой стоксовой компоненты от энергии накачки для всех образцов имеет характерный вид, показанный на рис. 3.10.

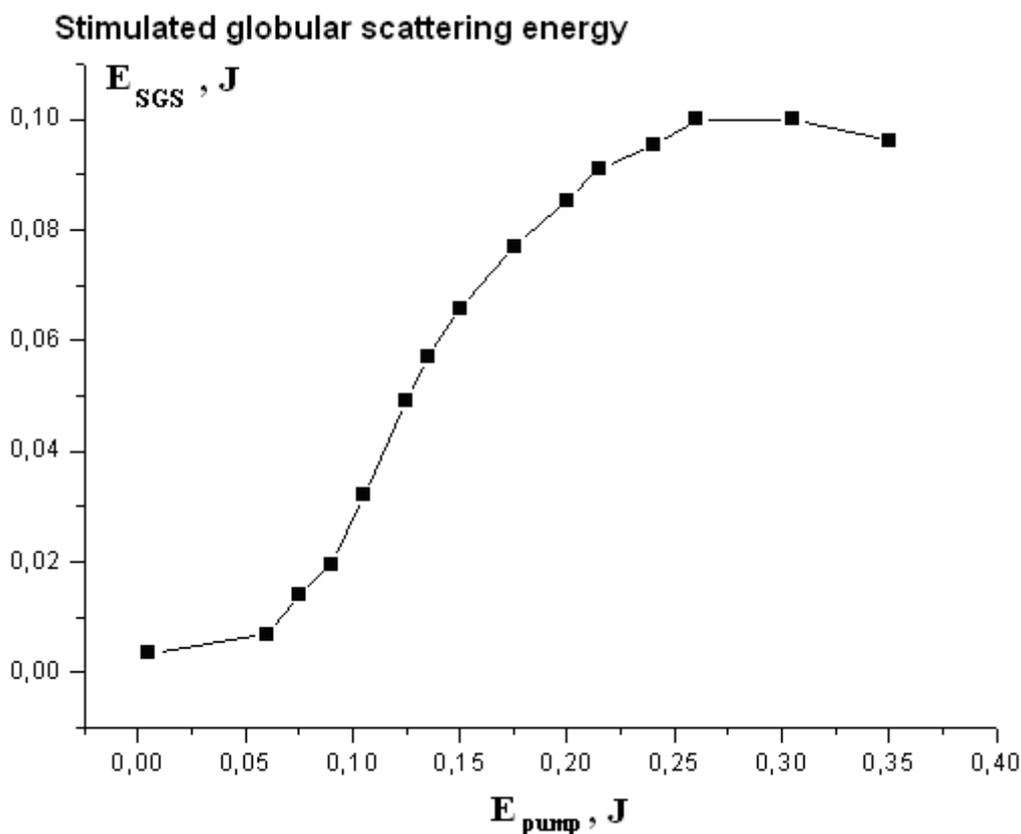


Рис.3.10. Зависимость энергии ВГР E_{SGS} от энергии накачки E_{pump} (в джоулях) для синтетической опаловой матрицы с диаметром глобул, равным 245 нм.

Оценим коэффициент усиления ВГР, используя известное условие экспериментальной регистрации вынужденных рассеяний света, а именно $GIL \sim 30$, где L – длина области взаимодействия, I - пороговое значение

интенсивности накачки, G - коэффициент усиления ВГР. Для используемых в эксперименте образцов максимальное значение коэффициента усиления составило величину $\sim 0,23$ см/МВт.

§3.3 Морфологически зависимый акустический резонанс в тонких пленках

Как было показано выше, взаимодействие импульсного лазерного излучения с нанокompозитами на основе синтетических опаловых матриц, при определенных условиях приводит к появлению нового типа вынужденного рассеяния света, обусловленному взаимодействием излучения с собственными колебаниями кварцевых глобул составляющих исследуемые образцы. Анализ полученных результатов показал, что влияние регулярности упаковки синтетических опаловых матриц на спектральные характеристики ВГР практически отсутствует. То есть, если использовать в качестве активной среды нерегулярные твердотельные структуры, состоящие из наноразмерных элементов обладающих набором собственных акустических частот, определяемых их морфологией, то при определенных условиях возможна реализация условий для возбуждения в таких системах вынужденного рассеяния света.

Как было показано в [50], в твердотельных объемных структурах, с функцией плотности вида $\delta(x,y)$, возможно формирование стержневых подструктур и волокнистого роста. Во всех случаях, как было показано [273,274], имеет место образование (с той или иной степенью текстурированности) поликристаллических (поликластерных) систем.

Такие структуры образованы нанокластерами с размерами, как правило, менее 0,5-1 мкм. Свойства таких структур, а это прежде всего пленки, определяются размерами структурных единиц, из которых они состоят. Пленки, которые образованы нанокластерами больших размеров, то есть около микрона, приближаются по своим свойствам к поликристаллическим, а пленки, образованные небольшими нанокластерами, – к рентгеноаморфным

системам.

Любая конденсированная система, состоящая, из атомов или молекул, характеризуется как частотами собственных колебаний составляющих ее молекул, так и частотами колебаний системы в целом и составляющих ее подсистем. Естественно, что молекулярные частоты и собственные частоты структурных единиц, составляющих произвольную наноразмерную систему, лежат в различных диапазонах. При определенных условиях эти частоты могут проявляться в спектрах спонтанного низкочастотного комбинационного рассеяния света, а значит, по аналогии с синтетическими опаловыми матрицами, возможна реализация вынужденного рассеяния света на собственных колебаниях нанокластеров. Отметим, что акустические колебания, возбуждаемые в наноразмерных системах, на частотах, соответствующих собственным частотам структурных единиц, составляющих эти системы, получили название морфологически зависимых резонансов.

Акустические колебания наноразмерных структурных единиц, составляющих исследуемые образцы тонких пленок различного типа по составу и условиям получения, лежат в гигагерцовой области спектра. Конкретные значения частот определяются константами Ламэ вещества (а значит значениями продольной и поперечной скоростей звука), размерами и формой наночастиц, образующих исследуемую систему.

Измерения проводились для пленок AlN и InSnOx на подложках из кварцевого стекла, для алмазоподобной углеродной пленки (АУП) на подложке из природного алмаза, а также для пленки кремнезема в виде регулярных упаковок наносфер SiO₂ (РУН). Образцы для измерений были предоставлены ООО Техномаш. Характерные размеры структуры таких пленок в виде волокон или глобул составляют 0,5 – 1 мкм.

Остановимся подробнее на исследуемых образцах. Нитрид алюминия – широкозонный полупроводник (ширина запрещенной зоны 6,28 эВ). Пленки AlN широко используются в микроэлектронике благодаря таким свойствам

как высокая теплопроводность, большое электрическое сопротивление, высокий порог электрического пробоя и высокая химическая стабильность. Пленки нитрида алюминия, благодаря прозрачности в видимом диапазоне электромагнитного спектра, эффективно используются при создании оптоэлектронных устройств. На рисунке 3.11 показано строение пленок AlN, полученное методом растровой электронной микроскопии (РЭМ).

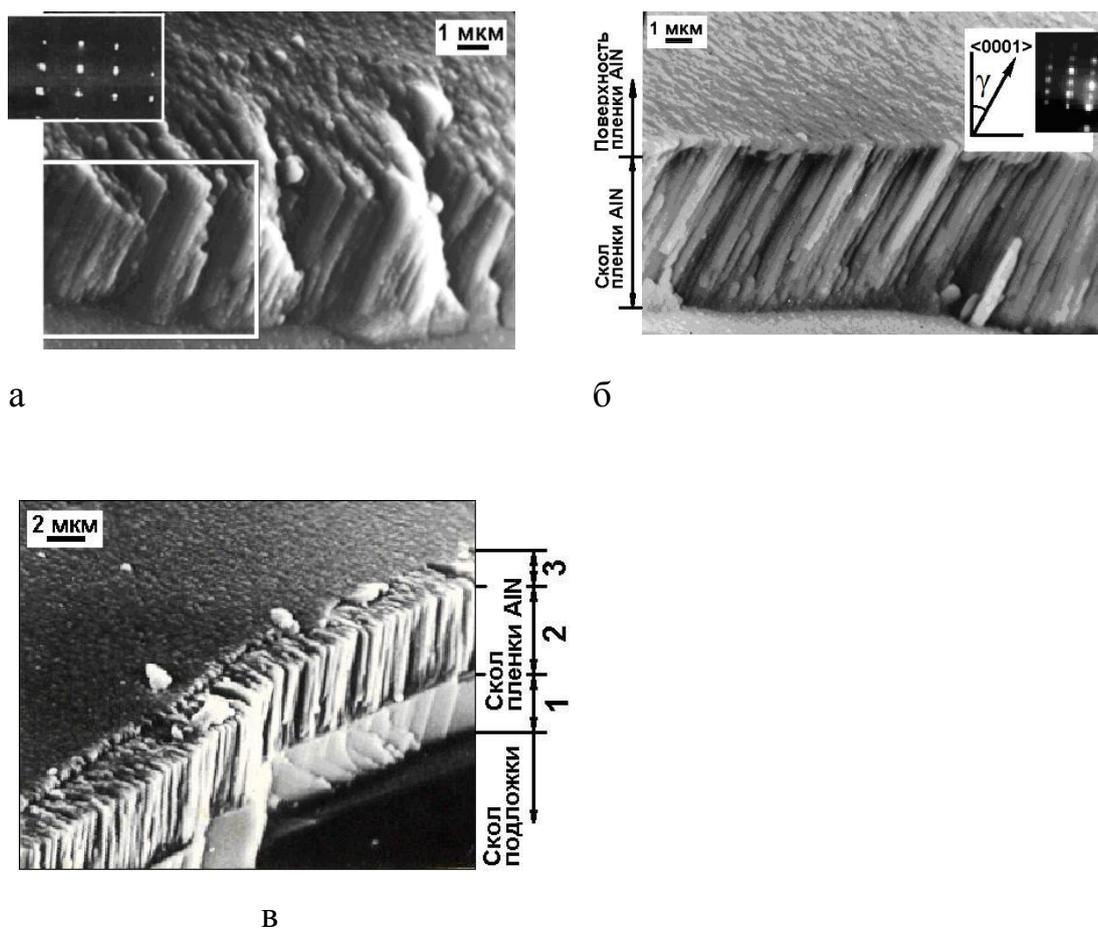


Рис.3.11. а), б)Строение пленок AlN, полученных на подложках из плавного кварца ВЧ-магнетронным реактивным распылением при различных условиях. Исследование проводилось методом растровой эмиссионной микроскопии (РЭМ). На рис. б дан увеличенный выделенный фрагмент; на рис. а,б на врезках представлены электронограммы на отражение. в) Переход пластинчатого строения пленки AlN (область 1) в волокнистое (область 2) и мелкозернистое с равноосными зернами (область 3).

Высокая лучевая прочность и прозрачность в видимом диапазоне спектра пленок нитрида алюминия позволили использовать данные образцы при максимально возможных энергиях накачки и проводить спектральные измерения как для направления «вперед», так и для направления «назад».

Проводящие прозрачные пленки InSnOx (ITO) содержат индий, кислород и олово, добавленное в качестве донора электронов. Атомы олова замещают атомы индия в структуре оксида индия. Доминирующим является оксид индия, который относится к оксидным полупроводникам с высокой запрещенной зоной (2,9 эВ), но также содержит большую концентрацию носителей с высокой подвижностью.

Пленки InSnOx благодаря уникальным свойствам (высокая оптическая прозрачность и высокая электропроводность) находят широкое практическое применение в устройствах оптоэлектроники, в том числе в качестве электродов солнечных батарей. На рисунке 3.12 приведено изображение поверхности пленки InSnOx на стеклянной подложке.

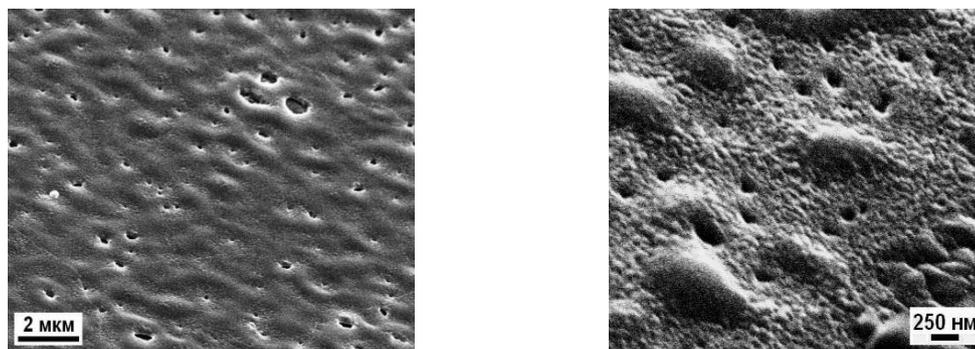


Рис.3.12. Структура (РЭМ) поверхности пленки InSnOx , полученной магнетронным реактивным распылением.

Твердость и теплопроводность - это те характеристики тонких алмазных пленок, которые обуславливают интерес к исследованию их оптических и акустических свойств. Алмазные пленки применяются для создания

акустических фильтров, электрохимических сенсоров и т.д. На рисунке 3.13 представлены фотографии, показывающие особенности строения поликристаллических пленок алмаза и пленок алмазоподобного углерода как иллюстрация начальной стадии формирования.

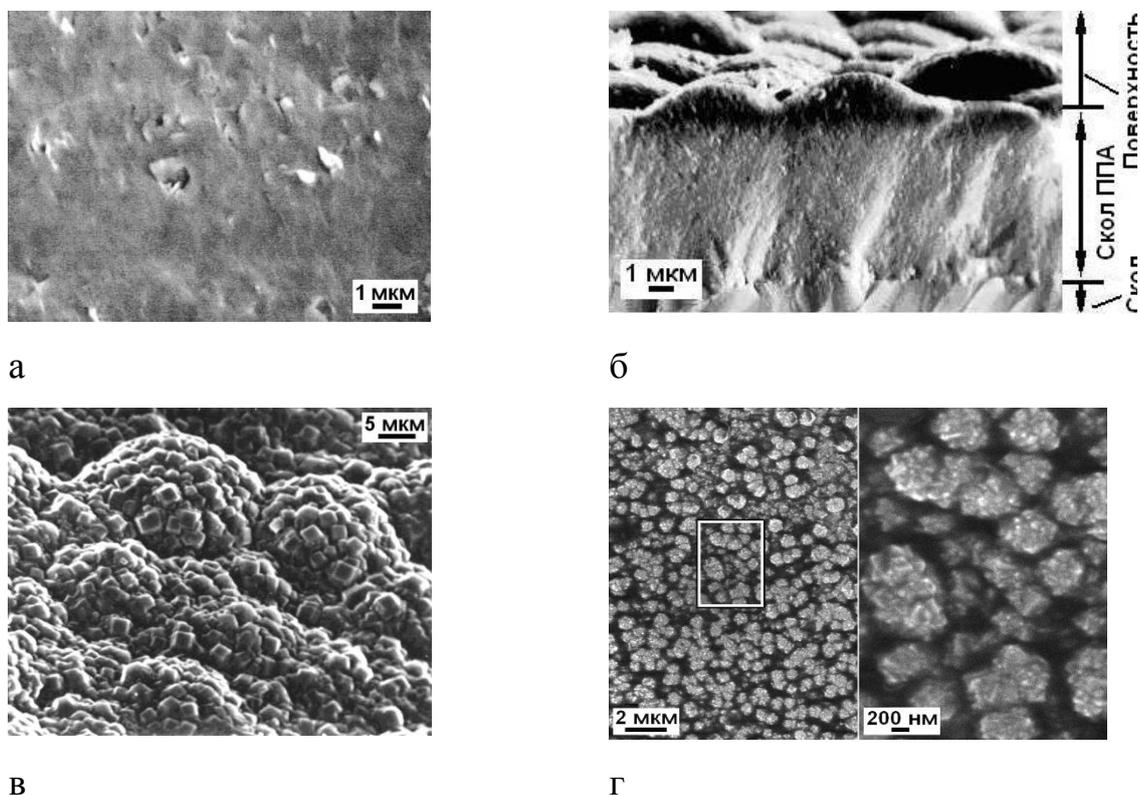


Рис.3.13 Структура (РЭМ) алмазоподобной углеродной пленки: а) поверхность пленки, сформированной методом тлеющего разряда; б) поперечный скол этой пленки; в), г) поверхности поликластерных пленок алмаза, полученных методом дугового и СВЧ разрядов, на стадиях глобулярного роста. Снимки б) и в) получены при съемке под углом 45° к поверхности образцов.

На рисунке 3.13 показаны фотографии и поверхности и скол алмазной пленки, сформированной методом тлеющего, дугового и СВЧ разряда.

Также использовались пленки кремнезема, а именно, регулярные упаковки наносфер SiO_2 , близкие по оптическим и акустическим

характеристикам к синтетическим опаловым матрицам.

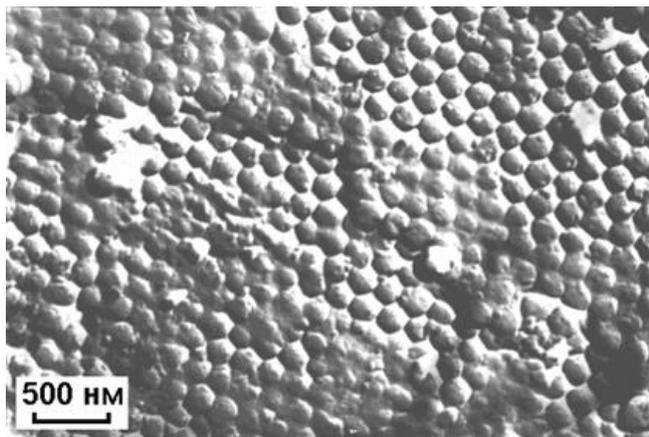


Рис.3.14 Электронно-микроскопическое изображение (реплика) планарной структуры на основе тонких слоев регулярных упаковок наносфер SiO_2

Данные, полученные с помощью РЭМ, в сочетании с измерениями областей когерентного рассеяния, позволяют определить параметры наноструктурирования в пленках различного типа.

Все эксперименты по изучению вынужденного рассеяния света в пленках проводились при температуре жидкого азота, что существенно повышало порог пробоя образцов. В качестве источника возбуждающего излучения использовался твердотельный лазер на рубине с длиной волны генерации 694,3 нм, шириной линии генерации $0,015\text{см}^{-1}$, длительностью импульса 20 нс и максимальной энергией 0,5 Дж. Для фокусировки использовались линзы с фокусным расстоянием 50 мм, 90 мм, 150 мм. Использование линз с различным фокусным расстоянием и проведение измерений с различным положением образца относительно фокусирующей линзы позволяло варьировать в широких пределах распределение интенсивности накачки в образце. Для одновременного измерения спектрального распределения рассеянного излучения в направлениях «вперед» и «назад», использовались интерферометры Фабри-Перо с соответствующей базой. Схема измерений представлена на рисунке 3.15.

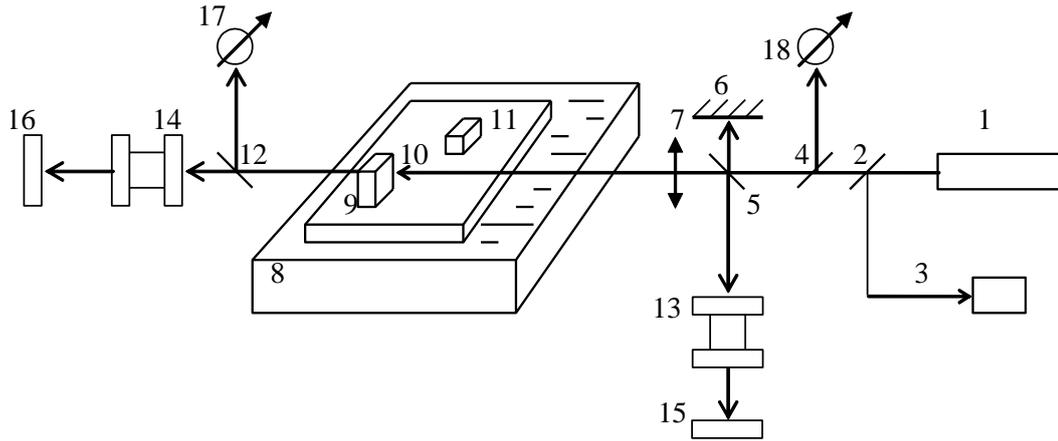


Рис.3.15. Экспериментальная схема. 1- лазер на рубине; 2, 4, 5, 12 – пластинки из кварцевого стекла; 3 – система контроля параметров лазера; 6 - зеркало; 7 – система фокусировки; 8 –ёмкость для жидкого азота; 9 – подложка из меди; 10, 11 – образцы; 13, 14 – интерферометры Фабри - Перо; 15, 16 – системы регистрации спектра; 17,18 – системы измерения энергии излучения, рассеянного в прямом и обратном направлениях.

Для всех исследованных образцов при достижении интенсивностью накачки порогового значения, определяемого свойствами образца, возбуждалось вынужденное рассеяние света. Экспериментально в спектре прошедшего образец и отраженного от образца излучения появлялась дополнительная спектральная компонента, смещенная относительно возбуждающей линии в стоксовую область спектра. Пороговое значение интенсивности накачки для рассеяния «вперед» и рассеяния «назад» было примерно одинаковым. Смещение частоты стоксовой компоненты относительно накачки для рассеяния в обоих направлениях было одинаковым. На рисунке 3.16 показана типичная интерферограмма.

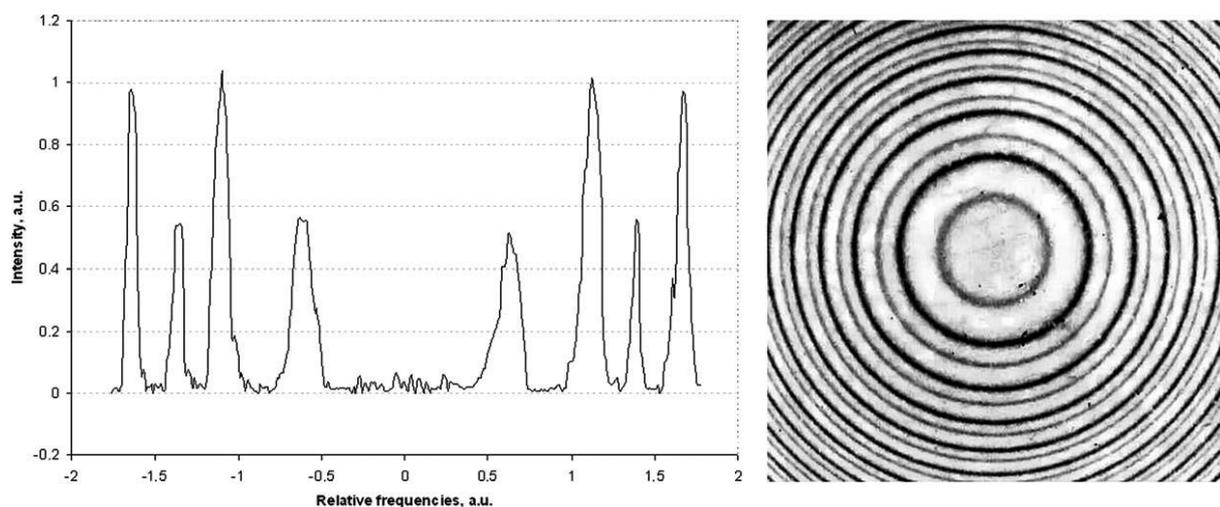


Рис.3.16 Интерферограмма спектра вынужденного рассеяния света в пленке $InSnO_x$ при геометрии рассеяния «вперед». Интенсивность накачки $0,17 \text{ ГВт/см}^2$.

В таблице 3.5 приведены характерные размеры наноструктурированности пленок, используемых в эксперименте, полученные по данным электронной микроскопии, а также рассчитанные по измеренному смещению частоты стоксовой компоненты относительно накачки, пороговые значения интенсивности накачки и эффективность преобразования.

Таблица 3.5. Параметры акустических колебаний в пленках

N	Пленка/ подложка	Эффектив- ность преобразо- вания	Пороговое значение интенсив- ности накачки, ГВт/см^2	Частоты акусти- ческих колебаний, ГГц	Характер- ный размер, мкм	Характерный размер нанострукту- ризации, мкм (по данным электронной микроскопии)

1	AlN/стекл о	10	0,16	8,1	0,82	0,8
2	AlN/стекл о	10	0,16	6,0	1,1	1
3	InSnOx /стекло	12	0,14	8,7	0,44	0,7
4	InSnOx /стекло	12	0,14	6,3	0,61	0,82
5	InSnOx /стекло	11	0,15	5,1	0,75	0,95
6	ППА/алм аз	20	0,1	10,2	1,1	0,8
7	ППА/алм аз	19,5	0,12	7,2	1,36	0,9
8	РУН/стек ло	8	0,11	7,2	0,27	0,25

Основным результатом, изложенным в данном параграфе, является обнаружение вынужденного рассеяния света в пленках, обусловленного морфологически зависимым акустическим резонансом. Морфология наноразмерных систем, используемых в качестве активных сред, полностью определяет оптические свойства ВР света в них. Во всех исследованных образцах наблюдается хорошее соответствие между характерным размером структурных неоднородностей, полученным с использованием электронной микроскопии и значением размера, вычисленным с использованием экспериментально измеренного смещения стоксовой компоненты вынужденного рассеяния относительно накачки. Важным экспериментальным фактом является обнаруженная зависимость смещения частоты рассеянной волны относительно частоты накачки от характерного

размера структурных неоднородностей, образующих исследуемые образцы: увеличение размера соответствует уменьшению частотного смещения, а значит, уменьшению собственной акустической частоты.

§3.4 Обсуждение экспериментальных результатов.

При рассмотрении процессов как упругого, так и неупругого рассеяния электромагнитного излучения на диэлектрической или проводящей сфере произвольного размера необходимо учитывать параметр, определяемый отношением длины волны электромагнитного излучения к диаметру сферы. Задача рассеяния плоской монохроматической волны на однородной сфере произвольного диаметра и состава, находящейся в однородной среде, подробно рассматривалась Ми [275]. При рассмотрении давления света на проводящую сферу Дебай [276] также получил аналогичное решение данной дифракционной задачи. Задача дифракции электромагнитного излучения на ансамблях наночастиц различной природы (металлических, полупроводниковых, диэлектрических) рассматривалась многими авторами [16], использующими подход, развитый Ми. Одним из условий применимости данного математического аппарата для анализа распространения электромагнитного излучения в системах частиц субмикронного размера является требование к расстоянию между частицами, которое должно быть больше длины волны электромагнитного излучения.

Упругое рассеяние света, обусловленное дифракцией на сферических частицах (рассеяние Ми), естественно, происходит без изменения частоты. Электромагнитное излучение, рассеянное различными сферами, некогерентно [16].

При неупругом рассеянии света частота рассеянного излучения отличается от частоты возбуждающего излучения на величину, определяемую собственной частотой системы или структурных единиц, образующих систему. Рассеяние света на акустических колебаниях наночастиц различной природы и произвольного размера относится к

неупругому типу рассеяния, происходящему с изменением частоты на величину, определяемую частотой собственных акустических колебаний наночастиц. Как и в случае упругого рассеяния света на сфере произвольного диаметра и состава, можно выделить два основных подхода к рассмотрению процесса рассеяния света на собственных акустических колебаниях наночастиц, обусловленных различными соотношениями между размером наночастиц и длиной волны падающего на систему света.

Первый подход соответствует предельному случаю, когда длина волны падающего излучения много меньше диаметра рассеивающих сфер – этот случай рассеяния света на фонах в твердых телах и жидкостях известен как рассеяние Мандельштама-Бриллюэна [277]. Рассеяние Мандельштама-Бриллюэна – это рассеяние на адиабатических флуктуациях плотности или давления, которые представляют собой упругие волны различных частот. Электромагнитное излучение взаимодействует непосредственно с этими упругими волнами, расходящимися во всех направлениях. Такое взаимодействие приводит к модуляции звуковой волной оптических свойств среды и, следовательно, к модуляции самой световой волны. Когерентный характер рассеяния Мандельштама-Бриллюэна обусловлен необходимостью выполнения законов сохранения энергии и импульса, что определяет зависимость спектральных характеристик рассеяния Мандельштама-Бриллюэна от волнового вектора падающей волны.

Когда длина волны падающего излучения много больше размера рассеивающих частиц [41], то неупругое рассеяние на наноразмерных частицах описывается по аналогии с комбинационным рассеянием света на молекулах, а тип данного рассеяния называют низкочастотным комбинационным (НКР). Этот тип рассеяния очень близок к КР света, в частности, возбуждение среды не зависит от волнового вектора (данное рассеяние – это некогерентный процесс) и поэтому является изотропным.

Колебание молекулы с частотой ω_k активно в спектре спонтанного КР лишь

в том случае, когда при таком колебании изменяется поляризуемость молекулы. Вопрос об активности молекул в смысле КР является достаточно хорошо проработанным и решается путем анализа симметрии молекулы на основе теории групп.

Вопрос о возможностях проявления тех или иных частот в спектрах НКР или инфракрасного поглощения рассмотрен во многих работах [272] и аналогичен подходу, разработанному для спонтанного КР света. Однако при рассмотрении наночастиц в качестве элементарных рассеивателей возникает ряд проблем, связанных, прежде всего с неопределенностью формы наночастиц, влиянием, при наличии, контакта с соседними наночастицами, а также влиянием матрицы (твердой или жидкой), в которой находятся наночастицы. Большое количество наносистем различных характерных размеров, формы и природы, стимулируют большое количество работ, посвященных анализу различных типов колебаний наночастиц с точки зрения их проявления в спектрах НКР или ИК поглощения. Можно отметить, что колебания, симметричные по отношению ко всем элементам симметрии молекулы, или полносимметричные колебания, могут проявляться в спектрах НКР. При этом линии НКР полносимметричных колебаний всегда поляризованы [271].

В работе [272] было показано с использованием теоретико-группового анализа, что при НКР активны только симметричные ($l = 0$) и квадрупольные ($l = 2$) сферические моды. Это правило отбора было подтверждено вычислениями компонент напряжения, связанных с собственными акустическими колебаниями сферических частиц и анализом их симметрии. Моды $l = 0$ дают поляризованный спектр НКР, в то время как мода $l = 2$ дает неполяризованный спектр.

Следует отметить, что в случае таких специфических систем как фотонные глобулярные кристаллы или пленки, состоящие из наноразмерных кристаллитов, приходится иметь дело с упорядоченной или неупорядоченной

системой связанных между собой способных совершать собственные колебания упругих наноразмерных структурных единиц, с диаметром, сопоставимым с длиной волны видимого излучения.

Очевидно, что процесс рассеяния в этом случае представляет собой достаточно сложное явление, в основе которого может лежать как бриллюэновский, так и комбинационный механизм. Естественно, встает вопрос о том, какой механизм является определяющим: бриллюэновский или комбинационный. Ответ на этот вопрос нетривиален, так как на параметры рассеяния, а именно, на распределение интенсивности и его спектральное распределение будут оказывать влияние одновременно много факторов: конфигурация среды, форма структурных единиц, составляющих исследуемую систему, характер и регулярность связей между ними, степень совершенства решетки в целом, распределение диэлектрической проницаемости среды и т.д.

В спектрах света, рассеянного на глобулярных фотонных кристаллах, проявляется набор самых различных мод, и провести аналогию с КР для случая рассеяния на сферах диаметром порядка длины волны исходного излучения достаточно проблематично, в том числе из-за наличия в таких структурах многократного рассеяния и также влияния структуры образца, особенно в случае плотной упаковки (даже в случае неупругого рассеяния электромагнитного излучения на системе наночастиц, расстояние между которыми меньше или порядка длины волны излучения, возникает достаточно сложная картина индикатрисы рассеяния, а основные спектральные закономерности могут существенно отличаться от того, что предсказывается теорией Ми).

Для более полного анализа природы физических процессов, ответственных за неупругое рассеяние света на твердотельных наноразмерных системах, таких как глобулярные ФК или наноструктурированные пленки, необходимо рассматривать процесс рассеяния при изменении параметра qd , где q – волновой вектор падающего

излучения, d – характерный размер наноструктурной единицы (в случае синтетической опаловой матрицы - это диаметр глобул). То есть необходимо рассматривать эволюцию проявления комбинационно-активных мод по мере изменения параметра qd . Методы расчета спектрального распределения НКР на наночастицах различной природы в зависимости от значения qd должны определяться физическим механизмом, отвечающим за рассеяние.

В частности, в работе [279] было показано, что для частиц с размером, сравнимым с длиной волны света, будут существенны одновременно как КР, так и рассеяние Мандельштама-Бриллюэна. Очевидно, что амплитуда такого рассеяния не будет простой суммой амплитуд каждого типа рассеяния. Относительная важность двух механизмов также меняется. Вклад p -й моды с частотой ω^p в стоксову компоненту спектра может быть учтен в следующей форме [279]:

$$I_{\alpha\beta}^p(q) \propto \frac{n(\omega^p)+1}{\omega^p} \left| \sum_i e^{-iqx^i} [-iq \cdot \epsilon(i, p) \pi_{\alpha\beta}^i + Q_{\alpha\beta}^i] \right|^2 = \frac{n(\omega^p)+1}{\omega^p} C_{\alpha\beta}(\omega^p) \quad (6)$$

где $n(\omega^p)$ есть фактор Бозэ-Эйнштейна и $C_{\alpha\beta}(\omega^p)$ - это коэффициент, характеризующий взаимодействия мод излучения.

Первый член, $-i \sum_i \pi_{\alpha\beta}^i e^{-iqx^i} q \cdot \epsilon(i, p)$, описывает флуктуации поляризации из-за смещения элементарных составляющих наночастицы из своего положения равновесия, то есть, можно сказать, что плотность микроскопической поляризации ячеек, атомов, ионов и связей модулируется акустическими колебаниями. Неупругое нейтронное рассеяние и, обычно, большинство рассеяний бриллюэновского типа происходят из-за этих флуктуаций плотности, порожденных продольными акустическими фононами. Этот член выражения описывает вклад в рассеяние механизма бриллюэновского типа.

Второй член выражения $\sum_i e^{-iqx^i} Q_{\alpha\beta}^i$ описывает проявление двух эффектов: 1) локальное поле изменяется из-за движения окружающих диполей (диполи, возбуждающие диполи); 2) электронная поляризация

меняется вместе с изменением атомных расстояний (поляризация связи). Этот член описывает вклад комбинационного механизма в низкочастотное рассеяние.

Фактически, рассеянное излучение во всех случаях будет обусловлено обоими типами механизмов, но для $qd \ll 1$ основная роль принадлежит механизму комбинационного типа, в то время как для $qd \gg 1$ доминирующим полагается механизм рассеяния Манделъштама-Бриллюэна.

Эксперименты, проведенные различными исследователями, скорректировали некоторые предположения, в частности, о правиле отбора низкочастотных мод, которое строго выполняется далеко не в каждом эксперименте рассеяния на системах с частицами размером порядка длины падающей волны [39, 279].

Экспериментальные результаты по изучению вынужденного рассеяния света на собственных акустических колебаниях наноразмерных твердотельных систем, приведенные в этой главе, показывают, что в условиях эксперимента, основным физическим механизмом, ответственным за возникновение данного типа рассеяния, является комбинационный механизм. Независимость характеристик соответствующего типа спонтанного рассеяния от волнового вектора приводит к реализации в эксперименте вынужденного рассеяния, распространяющегося в направлении попутно и навстречу накачке, причем с одинаковым спектральным смещением.

Сформулируем основные результаты, изложенные в данной главе.

- В работе впервые было получено вынужденное рассеяние света в твердотельных наноразмерных структурах. Данный тип вынужденного рассеяния света является результатом взаимодействия лазерного излучения с собственными акустическими колебаниями наноразмерных структурных единиц, составляющих исследуемые образцы.

- Рассеяние возбуждается как в прямом, так и в обратном, по отношению к накачке, направлении. Смещение частоты рассеяния относительно частоты накачки одинаково для прямого и обратного направлений рассеяния. Это смещение частоты определяется морфологией образцов.

- Понижение температуры образцов до температуры жидкого азота повышало эффективность преобразования волны накачки в рассеянную волну и понижало порог возникновения вынужденного рассеяния.

- Высокое значение эффективности преобразования волны накачки, а также возможность перестройки частотного смещения рассеянной волны относительно накачки открывает перспективу использования данного процесса в схемах для генерации сигналов в гигагерцовом диапазоне в качестве бигармонической накачки.

ГЛАВА 4

ВЫНУЖДЕННОЕ НИЗКОЧАСТОТНОЕ КОМБИНАЦИОННОЕ РАССЕЯНИЕ СВЕТА В СУСПЕНЗИЯХ НАНОЧАСТИЦ

§4.1. Введение

Наноразмерные системы в настоящее время являются объектом интенсивных теоретических и экспериментальных исследований [237]. Наноконпозиты на основе диэлектрических, полупроводниковых и металлических наночастиц, внедренных в различные диэлектрические матрицы, а также суспензии наночастиц различных типов обладают более высокими значениями нелинейных восприимчивостей, чем соответствующие объемные образцы. Причем данный эффект увеличения эффективности нелинейно-оптического взаимодействия проявляется в системах наночастиц различной природы, это металлы, полупроводники и диэлектрики. Физические механизмы, отвечающие за это увеличение, различны для различных систем. Наиболее эффективное усиление происходит вблизи поверхности металлических наночастиц за счет плазмонного резонанса, а именно при совпадении внутренних коллективных колебаний электронов в металлической наночастице с колебаниями, генерируемыми электромагнитной волной. Это обстоятельство обуславливает интерес к системам металлических наночастиц с точки зрения использования их для повышения эффективности и понижения порога различных нелинейно-оптических эффектов, в том числе различных типов вынужденных рассеяний света. При этом следует отметить, что, независимо от природы наночастицы, она оказывает влияние на характеристики спонтанного излучения атомов или молекул, находящихся вблизи её поверхности. Такое влияние связано с

трансформацией модовой структуры излучения из-за граничных условий, задаваемых поверхностью наночастицы. Меняя радиус и форму наночастиц, можно изменять положение резонанса в соответствии с желаемыми длинами волн.

В связи с этим данные материалы считаются весьма перспективными для использования в качестве активных сред в оптоэлектронике. Одним из многочисленных методов исследования наноразмерных систем, наряду с различными микроскопическими методиками, является использование низкочастотного комбинационного рассеяния (НКР) света, впервые экспериментально реализованного в 1986 году [42]. Низкочастотное КР в полупроводниковых, диэлектрических и металлических нанобъектах, представляющее собой неупругое рассеяние света на локализованных акустических фонах, дает важную информацию об их колебательной динамике [39-49]. Сдвиг частоты рассеянного света определяется собственными частотами структурных неоднородностей исследуемой системы. Следует отметить отсутствие зависимости величины частотного сдвига от угла между волновыми векторами возбуждающего и рассеянного света, в отличие от рассеяния света на акустических фонах в однородной среде (рассеяния Мандельштама-Бриллюэна). Вид спектрального распределения низкочастотного КР определяется распределением наночастиц по размерам и, как показано в [237], данный тип рассеяния может быть использован для определения формы и размеров наночастиц в различных системах. В работе [280] было предложено использовать низкочастотное КР на колебаниях формы жидкой капли для определения спектра аэрозольных частиц по размерам.

Нелинейное взаимодействие сильной лазерной волны с изначально слабыми полями низкочастотного КР может приводить к возникновению вынужденного низкочастотного комбинационного рассеяния (ВНКР) света. Результаты, изложенные в третьей главе, явно продемонстрировали, что в синтетических опаловых матрицах, представляющих собой трехмерные

структуры фрактального типа, образованные из плотноупакованных монодисперсных сфер кремнезёма с характерным диаметром 200 - 700 нм, при использовании для накачки импульсного излучения твердотельного лазера с узкой спектральной линией ($0,015 \text{ см}^{-1}$) возбуждается вынужденное рассеяние света со смещением частоты относительно частоты лазера на величину порядка нескольких десятых долей см^{-1} . Данное смещение частоты определяется значением собственной частоты наносфер, образующих опаловую матрицу и является вынужденным аналогом спонтанного низкочастотного комбинационного рассеяния света. Аналогично было реализовано вынужденное рассеяние света, вызванное взаимодействием лазерного излучения с локализованными акустическими модами структурных неоднородностей. Исследовались поликластерные алмазные пленки, пленки нитрида алюминия (AlN) и пленки оксида индия и олова (ITO). Все эти материалы можно охарактеризовать средними размерами структурных неоднородностей, которые определяются условиями роста. Размеры неоднородностей – порядка нескольких сотен нанометров (от 900 нм до 1000 нм), что соответствует акустическим частотам, лежащим в гигагерцовом диапазоне.

Данная глава посвящена описанию экспериментов, в которых было реализовано вынужденное рассеяние света, вызванное взаимодействием лазерного излучения с суспензиями наночастиц различного типа. В качестве образцов использовались водные суспензии наночастиц серебра, золота, сульфида цинка, фторида лантана. Результаты, изложенные в данной главе, были опубликованы в работах [281-289].

§4.2. Технология получения образцов и экспериментальная установка.

Для приготовления суспензии наноразмерного ZnS использовали гептагидрат сульфата цинка, нонагидрат сульфида натрия (Sigma-Aldrich, 99%) и L-глицин (Reanal) без дополнительной очистки. Глицин использовался для модифицирования наночастиц ZnS, что предотвращало их

агрегацию. Для приготовления всех растворов использовали дистиллированную воду. Синтез вели при комнатной температуре. В 20 мл водного раствора глицина добавляли капля за каплей по 0.03 мл 0.5 М растворов $ZnSO_4$ и Na_2S при перемешивании. Таким образом получали оптически прозрачную суспензию [290]. Гистограмма распределения наночастиц ZnS по размерам приведена на рис.4.1.

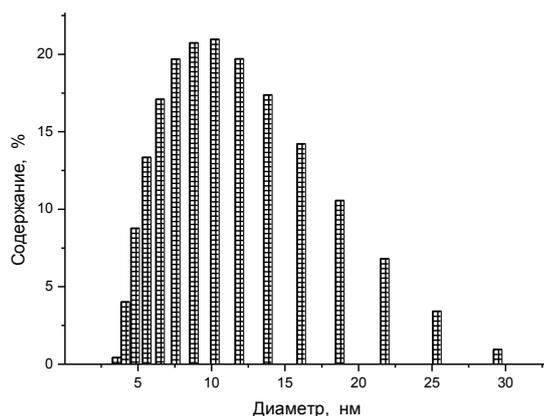


Рис. 4.1. Гистограмма распределения наночастиц ZnS по размерам.

Получение суспензий наночастиц золота и серебра осуществлялось по стандартной схеме, изложенной в [291]. Рассмотрим методику приготовления золей металлов.

а. Методика синтеза золей наночастиц серебра.

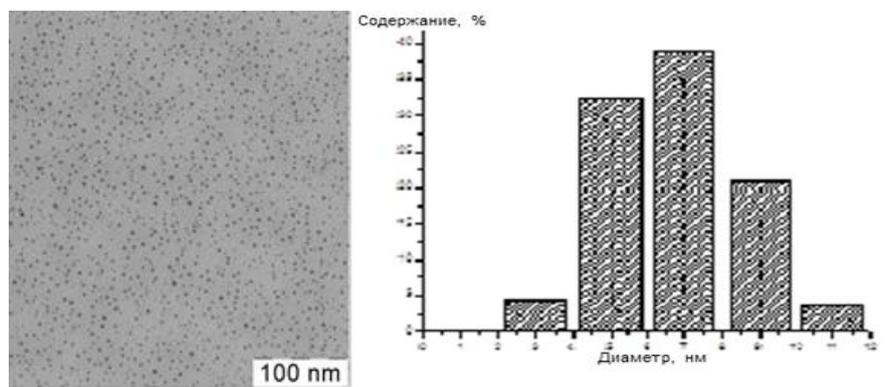
Синтез аквазолей проводили в химическом стакане емкостью 100 мл в поле ультразвуковой ванны ПСБ-2835-05М. В стакан помещали 20 мл дистиллированной воды, 0,44 г. (1,2 ммоль) бромиды цетилтриметиламмония, 0,17 г. (1 ммоль) нитрата серебра, после чего полученную смесь подвергали действию ультразвука в течение 10 минут. Затем туда же в течение 10 минут, при непрерывном воздействии звуковой волны, при помощи шприцевого инфузионного дозатора вводили 5 мл раствора, содержащего 0,72 г (2 ммоль) боргидрида натрия. При этом смесь приобретала интенсивную красно-коричневую окраску. После введения восстановителя систему

дополнительно подвергали действию ультразвука (озвучивали) в течение 20 минут.

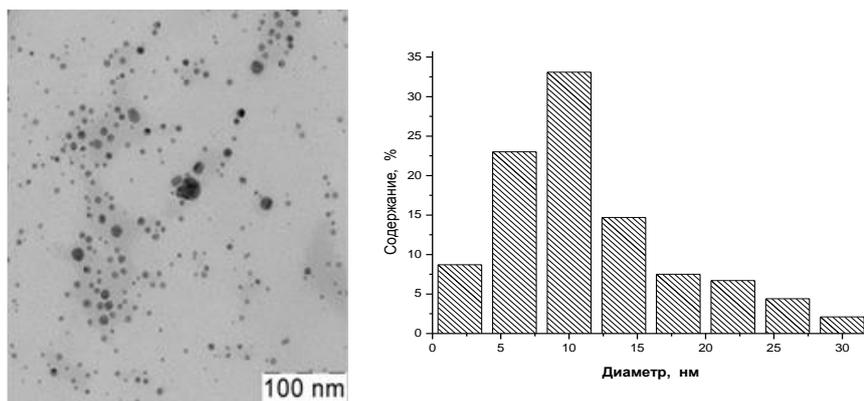
б. Методика синтеза золей наночастиц золота.

Синтез аквазолей проводили в химическом стакане емкостью 100 мл в поле ультразвуковой ванны ПСБ-2835-05М. В стакан помещали 19,78 мл дистиллированной воды, 0,22 мл 0,44 М (0,1 ммоль) раствора золотохлороводородной кислоты, 0,044 г. (0,12 ммоль) бромида цетилтриметиламмония, после чего полученную смесь озвучивали в течение 10 минут. Затем туда же в течение 10 минут, при непрерывном действии ультразвука, при помощи шприцевого инфузионного дозатора вводили 5 мл раствора, содержащего 0,072 г. (0,2 ммоль) боргидрида натрия. При этом смесь приобретала интенсивную рубиново красную окраску. После введения восстановителя систему дополнительно подвергали действию ультразвука в течение 20 минут.

На рис. 4.2 приведены микрофотографии суспензий наночастиц золота и серебра и гистограммы распределения наночастиц по размерам.



а



б

Рис.4.2. Электронная микрофотография и гистограмма распределения наночастиц по размерам для суспензии золотых (а) и серебряных (б) наночастиц.

Приготовление наночастиц LaF_3 осуществлялось следующим образом. Раствор аминокислоты в 100 мл воды нейтрализовался NaOH (до pH, равного 8.5). Раствор нагревался до 75°C . Растворы LaCl_3 (или смесь LaCl_3 и $\text{Eu}(\text{NO}_3)_3$) в 20 мл воды и NaF в 20 мл воды добавлялись по каплям в раствор аминокислоты, который во время синтеза непрерывно перемешивался при 75°C . Все реактивы, использованные для синтеза, имели марку ЧДА. Количества реагентов, использованных для синтеза, приведены в таблице 4.1.

Таблица 4.1 Количества (в молях) реагентов, использованных для синтеза коллоидных растворов LaF_3

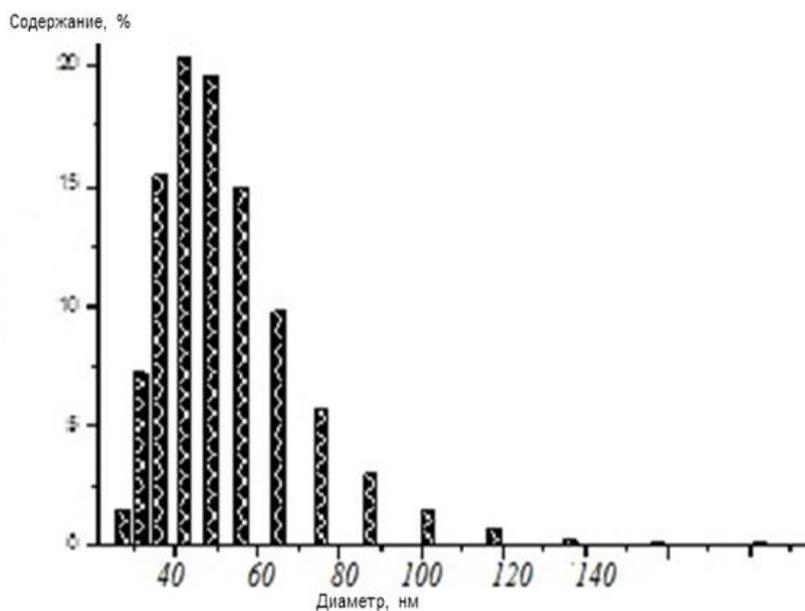
Образец	LaCl_3	$\text{Eu}(\text{NO}_3)_3$	NaF	Глицин
I	$4.95 \cdot 10^{-3}$	$5 \cdot 10^{-5}$	$5 \cdot 10^{-3}$	$5 \cdot 10^{-3}$
II	$1.67 \cdot 10^{-3}$	—	$5 \cdot 10^{-3}$	$1.67 \cdot 10^{-3}$
III	$4.9997826 \cdot 10^{-3}$	$0.2174 \cdot 10^{-6}$	$1.5 \cdot 10^{-2}$	$5 \cdot 10^{-3}$

Все коллоидные растворы исследовались в том виде, в котором были получены.

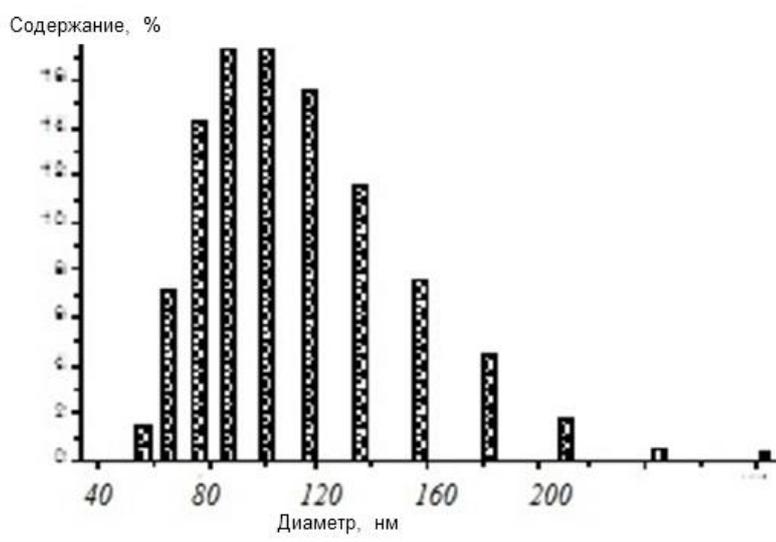
Распределение частиц в коллоидных растворах по размерам исследовалось с помощью метода динамического рассеяния света (DLS) на

анализаторе Zetasizer Nano ZS (Malvern).

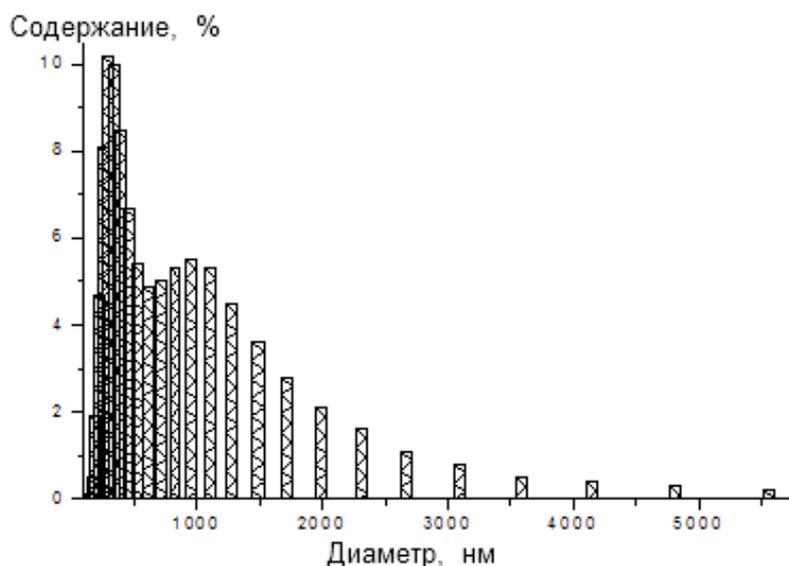
На рисунке 4.3 приведены распределения наночастиц LaF_3 по размерам для различных образцов.



а)



б)



в)

Рис.4.3 Гистограммы распределения наночастиц по размерам для суспензии наночастиц LaF_3 для различных образцов.

Схема экспериментальной установки приведена на рис.4.4. 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 $^{-1}$).

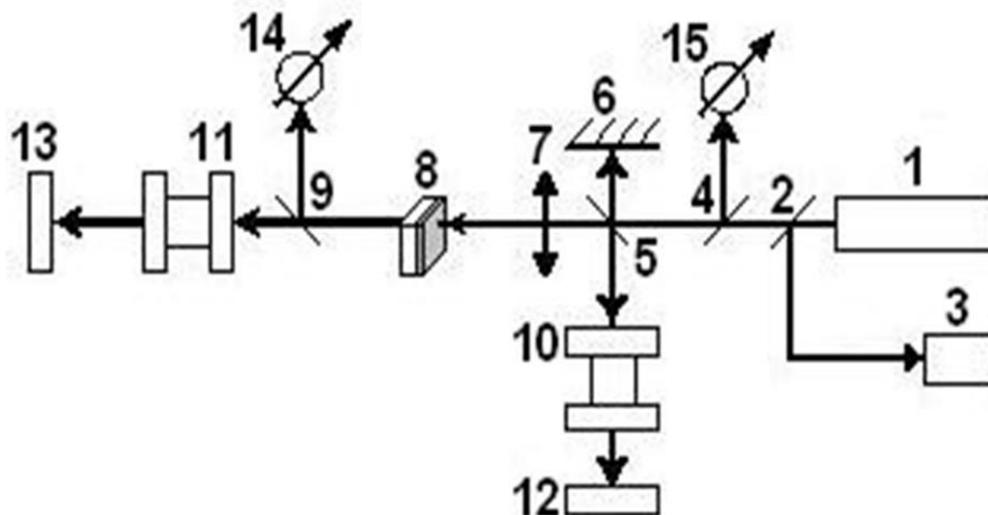


Рис.4.4. Схема экспериментальной установки.

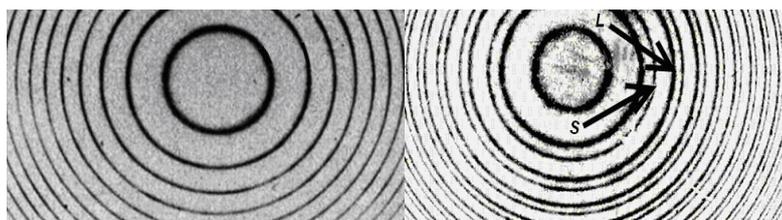
Возбуждающее излучение фокусировалось в образцы (8) линзами (7). Полупрозрачные стеклянные пластины (9, 5, 4, 2) использовались для направления световых пучков на регистрирующие системы. Система (3) использовалась для контроля энергетических, пространственных и временных параметров возбуждающего лазерного излучения. Энергия излучения, прошедшего образец и отраженного от него, измерялась с помощью калиброванных светодиодов (14) и (15). Спектры ВНКР в направлениях вперед и назад регистрировались с помощью интерферометров Фабри-Перо (11, 10) с переменной базой, что позволяло варьировать область дисперсии в широких пределах, от 0.42 см^{-1} до 16.67 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. Длина кюветы с исследуемой средой составляла 3 сантиметра.

§4.3 Экспериментальные результаты

Во всех исследованных образцах при превышении лазерным излучением порогового значения наблюдалось вынужденное низкочастотное комбинационное рассеяние (ВНКР), являющееся результатом нелинейного взаимодействия импульсного лазерного излучения и собственных акустических колебаний элементов структуры объекта.

Экспериментально эффект проявляется в появлении в спектре прошедшего образца и отраженного от образца излучения стоксовой линии со смещением относительно линии возбуждающего излучения на величину от 0.17 до 14.5 см^{-1} , определяемую собственными частотами колебаний наночастиц, лежащими в гигагерцовом или терагерцовом диапазонах. Максимальная эффективность преобразования возбуждающего излучения в

рассеянное излучение достигает 27 %. Расходимость и ширина линии рассеянного света близки к соответствующим величинам возбуждающего излучения. Порог возникновения эффекта зависит от характеристик образца. На рис. 4.5 представлен спектр первой стоксовой компоненты ВНКР, возбуждаемой в суспензии наночастиц серебра.



а)

б)

Рис.4.5. Интерферограмма излучения ВНКР, возбуждаемого в суспензии наночастиц серебра а) интенсивность накачки меньше порога возбуждения – кольца на интерферограмме соответствуют лазерному излучению б) интенсивность накачки превышает пороговое значение - две системы колец на интерферограмме соответствуют лазерному излучению и излучению первой стоксовой компоненты ВНКР.

Появление второй системы колец соответствует излучению ВНКР, причем частотные смещения стоксовой компоненты относительно частоты лазерного излучения для рассеяния «вперед» и «назад» совпадают.

В таблице 4.2 приведены максимальная эффективность преобразования (η), пороговое значение интенсивности (P), частотное смещение первой стоксовой компоненты (ν) и размер частицы (D) в суспензии, соответствующий максимальной концентрации.

Таблица 4.2. Основные характеристики ВНКР света в исследованных суспензиях

Образец	η	P	ν	D

	%	ГВт/см ²	ГГц	нм
ZnS	10	0.1	430	10
LaF ₃ (образец 1)	27	0.05	6.3	50
LaF ₃ (образец 2)	22	0.05	5.1	80
Au	19	0.09	435	7.1
Ag	20	0.1	330	9.9

При используемых интенсивностях лазерного излучения другие типы вынужденного рассеяния, прежде всего, вынужденное комбинационное рассеяние (ВКР) и вынужденное рассеяние Манделъштама - Бриллюэна (ВРМБ) в исследуемых суспензиях не возбуждались.

Все исследованные суспензии можно охарактеризовать размером наночастиц (D), которому соответствует максимальная концентрация. В случае несимметричного распределения наночастиц по размерам именно эта величина, а не среднее значение размера, определяет частотное смещение ВНКР. Этот характерный размер D , а также константы Ламэ и плотность материала наночастицы, а также соответствующие характеристики жидкости, определяют значения частоты ВНКР в конкретной суспензии.

Рассматривая наночастицу как свободную упругую сферу, можно показать, что её осцилляции можно описать двумя типами мод – сфероидальными и торсионными. По правилам отбора для комбинационного рассеяния на наночастицах в спектрах могут проявляться только сфероидальные моды с четным угловым моментом (l). Экспериментально в спектрах спонтанного низкочастотного рассеяния регистрируются моды со значениями углового момента $l = 0$ (сферическая) и с $l = 2$ (квадрупольная). Соответствующие частоты определяются следующими выражениями [40]: ν

$\nu_{\text{сф}} = \frac{\xi_c \nu_l}{D}$ и $\nu_{\text{кв}} = \frac{\xi_k \nu_t}{D}$, где ν_l , ν_t - значения продольной и поперечной скоростей звука в сплошной среде, ξ_c , ξ_k - константы, определяемые свойствами среды. (Значение этих констант близко к 1, поэтому часто для оценки значения частоты используют величину равную отношению скорости звука к диаметру наночастицы). Наиболее точно сферической форме соответствуют наночастицы металлов, прежде всего золота и серебра. Для золотых наночастиц значения этих констант составляют величины 0.94 и 0.845, а для серебряных наночастиц 0.902 и 0.83 соответственно. Для наночастиц, используемых в настоящих экспериментах, значения частот сферической моды составляют 439.4 ГГц и 332.6 ГГц для золота и серебра соответственно, что очень близко к экспериментально полученным величинам смещения первой стоксовой компоненты в суспензиях золотых и серебряных наночастиц (см. Таблицу 4.2). Проявление сферической моды и отсутствие квадрупольной моды в спектре вынужденного рассеяния хорошо согласуется с результатами экспериментов по исследованию спонтанного низкочастотного комбинационного рассеяния света. Как было показано в ряде работ (например, [292]), при использовании в качестве источника возбуждения лазера с частотой, не совпадающей с частотой поверхностного плазмонного резонанса системы наночастиц, основным механизмом модуляции диэлектрической восприимчивости является «объёмный» механизм, в котором упругая деформация наночастицы создает область с повышенной плотностью, и, следовательно, повышенной поляризуемостью. Данный механизм, описываемый деформационным потенциалом, проявляется при взаимодействии электромагнитного излучения со сферическими модами ($l = 0$), меняющими объем осциллирующей наночастицы.

Оценим коэффициент усиления для процесса ВНКР, возбуждаемого в суспензиях золота и серебра. Прежде всего, отметим, что принципиального порога возникновения процесса ВНКР, так же как и для практически любого

вынужденного рассеяния света, не существует. Под порогом подразумевается экспериментальный порог регистрации. Условием экспериментального наблюдения процесса вынужденного рассеяния света является выполнение условия $G I z \sim 30$, где G – коэффициент усиления, I – интенсивность накачки, при достижении которой появляется сигнал вынужденного рассеяния, а z – эффективный путь волны вынужденного рассеяния по области взаимодействия. В наших экспериментальных условиях коэффициент усиления для суспензии наночастиц серебра составлял величину порядка $0,1$ см/МВт. Это достаточно большая величина. Для сравнения, коэффициент усиления ВРМБ в CS_2 – $0,15$ см/МВт.

Наночастицы ZnS , используемые в эксперименте, были модифицированы глицином, что позволяло избежать агрегации. По результатам, полученным методом динамического рассеяния света (DLS), распределение наночастиц по размерам сохранялось более суток с момента приготовления суспензии. В суспензии наночастиц немодифицированного ZnS агрегация и дальнейшее осаждение, приводящее к существенному изменению распределения наночастиц по размерам, начинались через 15-20 минут после приготовления суспензии. В течение этого времени параметры ВНКР, возбуждаемого в суспензии наночастиц немодифицированного ZnS , совпадали с параметрами ВНКР, возбуждаемого в суспензии наночастиц ZnS , модифицированного глицином. Смещение частоты первой стоксовой компоненты ВНКР, возбуждаемого в суспензии наночастиц модифицированного ZnS , составило 430 ГГц. Для наночастиц ZnS , используемых в настоящих экспериментах, минимальное значение частоты сферической моды составляет 475.6 ГГц. Несовпадение значений частот обусловлено двумя основными причинами. Первая состоит в том, что окружающая наночастицы среда может существенно влиять на значение собственных акустических частот наночастицы даже в случае, когда величины продольной и поперечной скоростей звука, а также плотности наночастицы и окружающей её среды существенно отличаются [45, 46].

Вторая причина несовпадения измеренной и рассчитанной частот – это несовершенство сферической формы частиц. Отклонение формы наночастиц от сферической может приводить к нарушению правил отбора и появлению в спектре низкочастотного рассеяния частот, соответствующих торсионным колебаниям с нечетным угловым моментом [46].

Форма наночастиц LaF_3 существенно отличалась от сферической. Исследовались три образца суспензий наночастиц LaF_3 , отличающихся средним размером и формой распределения наночастиц по размерам. Третий образец (рис. 4.3 в.) имел в распределении два максимума в районе 250 и 1100 нм, и в нем ВНКР не возбуждалось. Это связано с шириной распределения по размерам и наличием двух максимумов. Эффективная генерация первой стоксовой компоненты ВНКР наблюдалась в первом (рис. 4.3а.) и во втором (рис.45.3б.) образцах.

Отметим принципиальную разницу между ВНКР и процессом вынужденного рассеяния света на акустических фонах в сплошной среде – вынужденного рассеяния Мандельштама - Бриллюэна (ВРМБ). В случае ВРМБ выполнение законов сохранения энергии и импульса, обуславливающее зависимость частотного смещения рассеянной волны от волнового вектора, приводит к тому, что рассеяние происходит только в направлении «назад» (волновой вектор рассеянной волны составляет угол 180° с волновым вектором волны накачки). Низкочастотное спонтанное рассеяние света на акустических колебаниях наноразмерных частиц является процессом, не требующим выполнения условия фазового синхронизма, как и в случае спонтанного комбинационного рассеяния [240]. Поэтому для спонтанного низкочастотного рассеяния отсутствует зависимость частоты рассеянной волны от волнового вектора возбуждающего излучения и, соответственно, вынужденный аналог низкочастотного рассеяния, ВНКР, распространяется в направлениях «вперед» (сонаправленно с волной накачки) и «назад» с одинаковыми частотными сдвигами, также как и ВКР.

Сформулируем основные результаты, изложенные в данной главе:

Результаты экспериментальных исследований, изложенные в данной главе, показывают, что в суспензиях наночастиц различной природы, имеющих размер от 7 до 160 нм, при определенных условиях наблюдается вынужденное низкочастотное комбинационное рассеяние света, обусловленное взаимодействием лазерного излучения с собственными акустическими колебаниями элементов структуры. Частоты компонент рассеянного света соответствуют собственным колебаниям элементов структуры, лежащим в гигагерцовом и терагерцовом диапазонах. Изменяя состав образцов и характерный размер элементов структуры, можно целенаправленно менять частотный сдвиг между накачкой и рассеянным излучением. Таким образом, ВНКР представляет собой высокостабилизированный источник бигармонической накачки для решения целого ряда практических задач.

ГЛАВА 5

ПРЕОБРАЗОВАНИЕ АМПЛИТУДНО-ФАЗОВЫХ ХАРАКТЕРИСТИК КОГЕРЕНТНОГО ИЗЛУЧЕНИЯ ПРИ ВКР СВЕТА

§ 5.1 Введение

В этой главе приводятся результаты экспериментальных исследований, посвященных изучению процессов регистрации, восстановления и обработки оптической информации методами основанными на нелинейно-оптических эффектах. Описаны различные схемы, предложенные автором для обработки оптической информации на основе вынужденных рассеяний света; определены их оптимальные параметры, показаны преимущества различных схем для определенных экспериментальных условий. Реализованы восстановление и обработка изображений амплитудных и фазовых объектов при ВР света одновременно на нескольких частотах. Обсуждается роль сопутствующих нелинейных эффектов. Предлагаются возможности использования описанных схем для практических приложений. Приведены результаты поиска новых нелинейных эффектов и новых сред, перспективных для использования в системах оптической обработки информации. Основные результаты, изложенные в этой главе, опубликованы в работах [57-109].

Для решения задач, связанных с передачей и хранением оптической информации, важную роль играет разработка методов преобразования характеристик сложных световых полей, дающих возможность восстановления и обработки оптических изображений. Применение вынужденных рассеяний для преобразования когерентного излучения является весьма перспективным, поскольку дает возможность изменять в широких пределах длину волны излучения с высокой эффективностью преобразования, одновременно осуществлять восстановление изображений на нескольких частотах и управлять характеристиками преобразованного излучения. На процесс восстановления изображения при ВР света

существенное влияние оказывают такие нелинейные эффекты как двухфотонное поглощение, высокочастотный Керр-эффект, другие виды вынужденных рассеяний света, возникающие в нелинейных средах под действием лазерного излучения с высокой плотностью мощности. В связи с этим представляется существенным рассмотрение конкуренции различных видов нелинейных рассеяний, зависимость их характеристик от условий возбуждения, а также выбор оптимальных параметров схем и оптимальных энергетических и геометрических условий возбуждения.

§ 5.2 Экспериментальная установка.

Принципиальная схема экспериментальной установки для исследования характеристик ВР света, распространяющегося в направлении возбуждающего излучения и в противоположном направлении приведена на рис.5.1. Установка включала в себя источник импульсного лазерного излучения (1) и системы регистрации пространственных, временных и энергетических характеристик возбуждающего и рассеянного света.

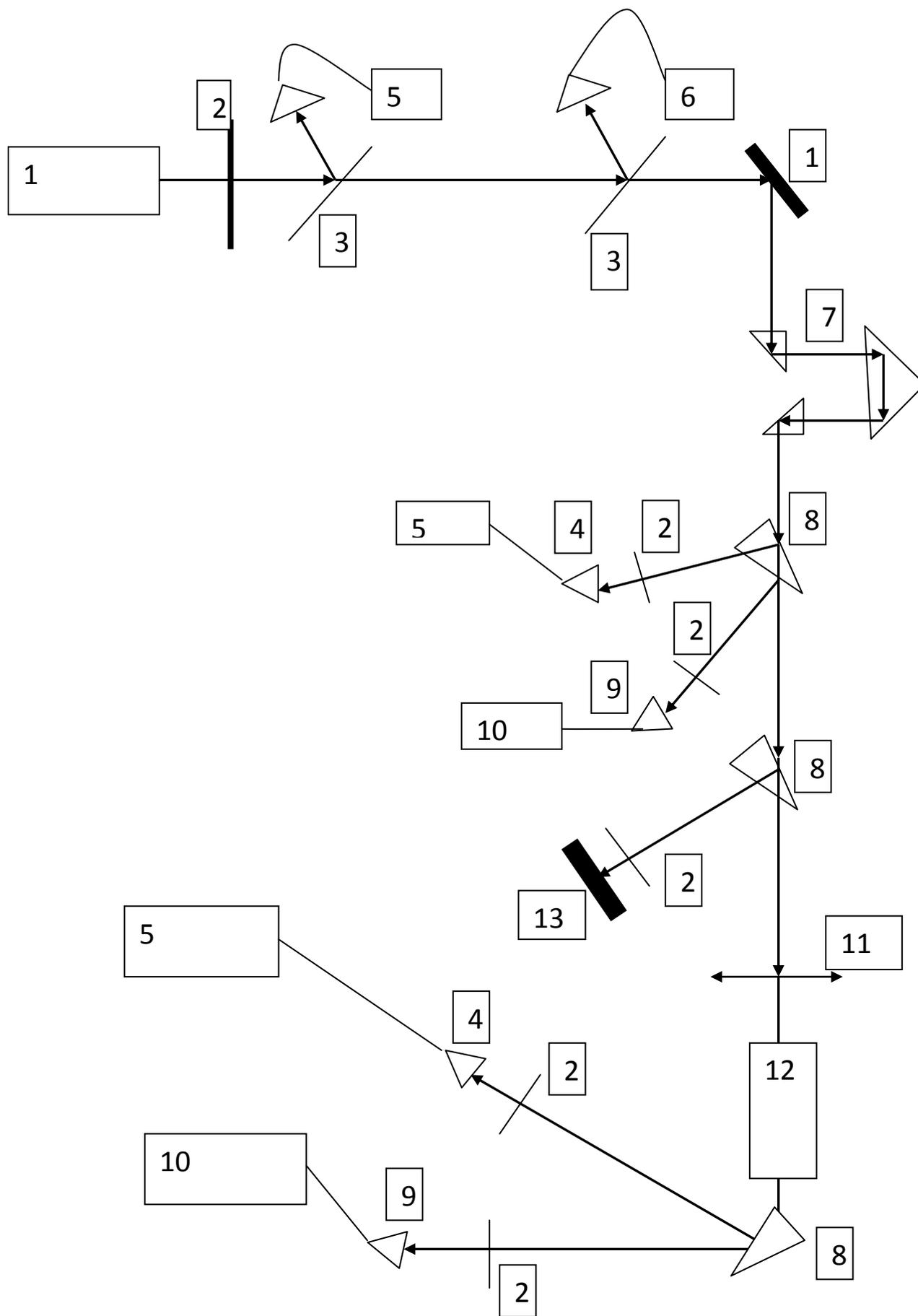


Рис.5.1 Схема экспериментальной установки

Излучение лазера фокусировалось в кювету (12) с исследуемой средой линзой (11). В случае использования для возбуждения ВР параллельным пучком накачки вместо линзы (11) использовалась телескопическая система. Энергия лазера варьировалась с помощью нейтральных светофильтров (2). Параметры излучения лазера контролировались с помощью фотодиодов (4) ФД-24К, сопряженных с импульсным вольтметром В4-17 (5) (для измерения энергии) и запоминающим осциллографом С8-7А (6) (для контроля количества пиков). Для предотвращения обратной связи между активной средой и лазером выставлялась оптическая линия задержки (7). Для каждого лазерного импульса измерялись одновременно энергия ВР "назад", энергия ВР "вперед" с помощью фотодиодов ФД-24К (4) и импульсных вольтметров ВЧ-17 (5), временная структура импульсов ВР "назад" и ВР "вперед" регистрировалась с помощью скоростных фотоэлементов ФЭК-17КМ или ФЭК-15 (9) и осциллографов типа С7-19 и С7-15 (10). Регистрация осциллограммы, отражающей временную форму импульса, осуществлялась с помощью фотоприставки. Пространственное распределение в пучке ВР "назад" регистрировалось на фотопластинку или ПЗС матрицу (13). Для разделения спектральных компонент ВР использовался трехпризменный спектрограф НУЕТ -3 с дисперсией в красной области 47 А/мм, спектрограф СТЭ-1 с дисперсией 12,8 А/мм, а также стеклянные селективные светофильтры, помещаемые перед приемниками оптического излучения. Юстировка оптической системы осуществлялась с помощью гелий-неонового лазера. При юстировке системы для регистрации ВР "назад" на место нелинейной среды ставилось диэлектрическое зеркало перпендикулярно оптической оси системы.

В качестве источников когерентного излучения использовались лазеры с модуляцией добротности с активными элементами из рубина, стекла и алюмо-иттриевого граната (YAG), активированных неодимом.

В качестве активного элемента рубинового лазера использовались рубиновые стержни с сапфировыми наконечниками диаметром 8 мм, длиной

180 мм (длина активной части 120 мм). Для получения одномодового режима при использовании кристалла рубина весьма существенна его оптическая однородность. В связи с этим в используемом лазере в качестве активных элементов специально отбирались рубиновые стержни с наилучшими исходными параметрами. Эти кристаллы подвергались дополнительному диффузионному отжигу в течение 40 часов для устранения остаточных напряжений. При использовании таких рубинов для получения одной продольной моды в излучении генератора было достаточно селективирующего действия зеркал резонатора и пассивного затвора. Модуляция добротности осуществлялась с помощью пассивного затвора, которым служил раствор криптоцианина в этиловом спирте двойной перегонки. Начальное пропускание затвора составляло 10% при $\lambda=694,3$ нм. Накачка рубина осуществлялась двумя импульсными лампами ИФП-2000. Для питания ламп использовался блок питания БП5000 и батарея конденсаторов емкостью 900 мкФ при напряжении 2,6 кВ. Резонатор лазера состоял из двух плоскопараллельных отражателей. В качестве концевого отражателя использовалось диэлектрическое зеркало с коэффициентом отражения 98% на длине волны 6943 А. Выходной отражатель представлял собой плоскопараллельную пластинку с коэффициентом отражения 8%. Параметры излучения, которые удавалось получить с использованием такого лазера составляли: максимальная энергия 0,7 Дж, длительность импульса 20 нсек, расходимость излучения составляла 3,5', ширина линии генерации 0,015 см⁻¹ .

В работе использовался также моноимпульсный неодимовый квантовый генератор с преобразователем частоты типа ЛТИПЧ-1, состоящий из генератора и усилителя. Активные элементы генератора и усилителя из стекла, активированного неодимом марки ГЛС-1 (или ГЛС-247-2), длиной 130 мм и диаметром 10 мм помещались в двухламповые осветительные головки одинаковой конструкции. Для накачки активных элементов использовались лампы ИФП-1200. В качестве источника питания

использовался блок БП 5000 и две батареи конденсаторов по 800 мкФ. Резонатор задающего генератора состоял из двух отражателей. Концевой отражатель представлял собой диэлектрическое плоское зеркало с коэффициентом отражения $K > 98\%$ на длине волны 1060 нм. Выходной отражатель был выполнен в виде стопы из двух плоскопараллельных стеклянных пластин. Для модуляции добротности резонатора использовался раствор красителя 3955 в нитробензоле. Начальное пропускание раствора на длине волны 1060 нм составляло 35-40%. Как правило, после усилителя устанавливался нелинейный кристалл КДР, удваивающий частоту излучения неодимового лазера, и селективный фильтр из стекла СЗС-21, выделяющий вторую гармонику с $\lambda = 530$ нм. Одиночные импульсы неодимового лазера имели длительность 20 нсек и расходимость 2'. Максимальная энергия импульса после усилителя составляла 2 Дж на основной длине волны 1060 нм и 0.25 Дж на длине волны второй гармоники (530 нм). В спектре генерации наблюдалась одна продольная мода, ширина линии составляла $0,01 \text{ см}^{-1}$.

Проводились эксперименты также с YAG:Nd^{3+} лазером. Лазер состоял из двух каскадов - усилителя и генератора. Активный элемент, кристалл YAG:Nd^{3+} как в усилителе, так и в генераторе, помещался в цилиндрический отражатель, изготовленный из легированного кварца и покрытый серебром по внешней поверхности. Использование легированного кварца марки КЛЖ-7 позволяло отфильтровать ультрафиолетовую часть излучения лампы накачки, которая приводит к разрушению активного элемента. Модуляция добротности осуществлялась четвертьволновым электро-оптическим затвором, изготовленным из кристалла дейтерированного дигидрофосфата калия (ДКДР). Лазерное излучение с выхода усилителя поступало на преобразователь частоты, который представлял собой кристалл дигидроарсенида цезия (СДА) размером 10x10x40 мм. Кристалл помещался в герметизированную капсулу с защитными стеклами для предохранения полированных граней от механических повреждений и действия влаги, так

как кристалл СДА обладает значительной гигроскопичностью. Поверхности защитных стекол капсулы просветлены на длинах волн основной частоты $\lambda=1064$ нм и второй гармоники $\lambda=532$ нм. Капсула с кристаллом помещена в термостат, позволяющий стабилизировать температуру кристалла. Кристаллы вырезаны так, что излучение распространяется под углом 90 градусов к оси (90-градусный синхронизм). Указанное направление совпадает с направлением синхронизма при температуре $319\pm 3^\circ\text{K}$. В качестве источника питания использовался ИПТЛ-1. Лазер мог работать в диапазоне частот от однократного до 25 Гц. Энергия одиночного импульса лазерного излучения для длины волны $\lambda=532$ нм составляла 0,12 Дж, длительность лазерного импульса 15 нс.

Следует отметить, что все описанные выше лазеры охлаждались либо дистиллированной водой с помощью двухконтурного термостата, либо температура активных элементов лазеров поддерживалась постоянной (5°C) путем пропускания через осветительные головки паров жидкого азота. Температура в осветителях контролировалась термопарой медь-константан, соединенной с микроамперметром М-95.

При работе с пикосекундными лазерными импульсами использовался YAG:ND³⁺ лазер JGH-48-QUANTEL. С помощью этого генератора можно было получать импульсы длительностью 25, 50, 100 и 200 пс на длинах волн 1064 нм и 532 нм. Энергия на выходе системы 10 мДж на длине волны 1064 нм и 3 мДж на длине волны 532 нм. Лазер генерировал одну поперечную моду. Блок-схема лазера приведена на рис.5.2.

Для синхронизации мод лазера использовался раствор красителя Eastman Kodak А 9740. Растворитель хлорбензол. Интенсивность насыщения красителя несколько десятков Мвт/см², время релаксации 8 пс. Раствор может эффективно использоваться до 20000 выстрелов. Выходное зеркало состоит из четырех пластин Фабри-Перо. Длительность импульса определяется их толщиной.

Селектор поперечных мод состоит из металлических диафрагм,

выделяющих осевую моду TEM_{00} . Генератор 4 излучает цуг из 7-8 импульсов света. Селектор для выделения одиночного импульса состоит из ячейки Поккельса, помещенной между двумя скрещенными призмами Глана. На ячейку Поккельса с помощью специального электронного устройства за время равное длительности одиночного импульса подается напряжение, поворачивающее плоскость поляризации излучения на $\pi/2$. Вторая призма Глана ориентирована на пропускание этого света.

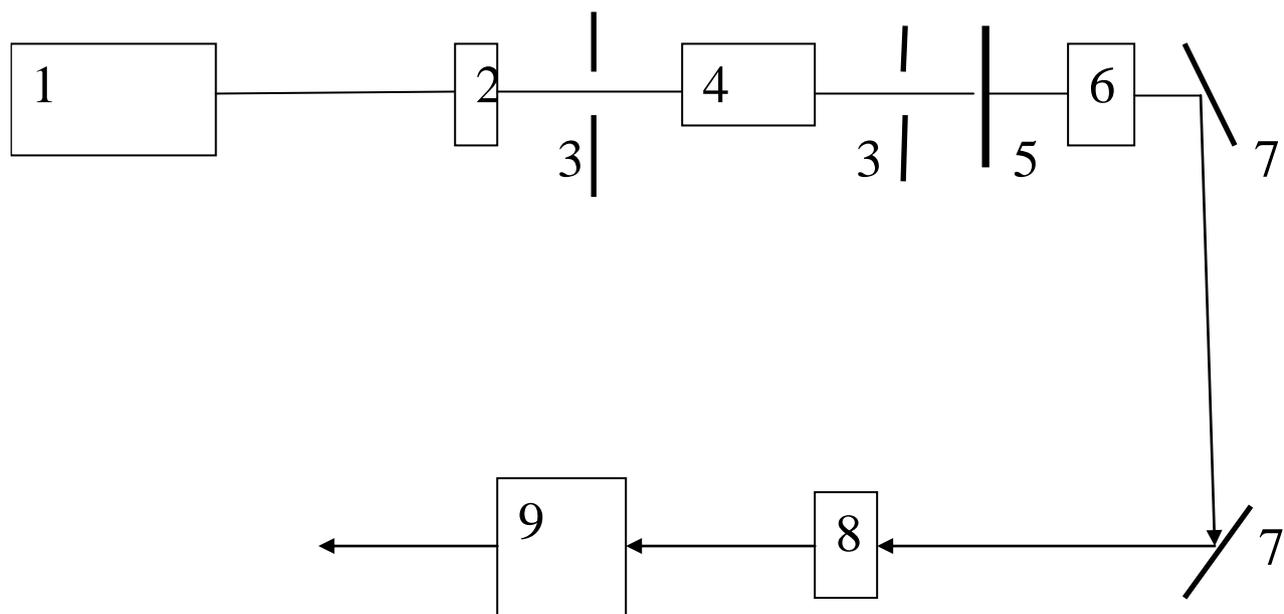


Рис.5.2. Блок-схема пикосекундного лазера.

1 - Гелий-неоновый лазер для юстировки системы, 2 - кювета-модулятор добротности на красителе и зеркало с радиусом кривизны 5 м, 3 - селектор поперечных мод, 4 – генератор, 5 - выходное зеркало (стопа из четырех пластин), 6 - селектор одиночного импульса, 7 - поворотные зеркала, 8 – усилитель, 9 - блок удвоителя частоты

Усилитель одиночного импульса включает спектральную импульсную лампу и кристалл АИГ, активированный неодимом размером 6х65 мм. Торцы кристалла скошены на 6° к направлению распространения света. Излучение после усилителя попадало на удвоитель частоты, включающий в себя:

кристалл КДР, систему регулировки температуры, селективный фильтр, пропускающий 98% света с длиной волны второй гармоники и почти полностью поглощающий излучение основной гармоники.

Для измерения энергий импульсов ВР, а также лазерных импульсов в наносекундной области использовались фотодиоды типа ФД-24К (или ФД-17К), работающие в фотодиодном режиме. Для каждой серии экспериментов осуществлялся контроль попадания измеряемого излучения на приемную площадку фотодиода, в ряде случаев использовались линзы для фокусировки измеряемого излучения. Сигналы с фотодиодов поступали на импульсные вольтметры типа В4-17.

В некоторых случаях (маленькая энергия исследуемого импульса) использовались калориметры типа ВЧД-2 или термоэлементы РТН-4. В последнем случае для фокусировки излучения на приемные площадки термоэлементов использовались цилиндрические линзы. Сигнал с приемников поступал на микровольтамперметр Ф-116. Юстировка приемников осуществлялась с помощью гелий-неонового лазера. Перед каждой серией экспериментов показания используемых приемников калибровались с помощью измерителя средней мощности и энергии импульсов лазера типа ИМО-2. Погрешность полученных результатов складывалась главным образом из погрешности калибровочного прибора (приблизительно 10%), неточности юстировки (приблизительно 10%) и погрешности из-за нестабильности угловых характеристик измеряемого пучка. Таким образом, погрешность измерения абсолютных значений энергии импульсов электромагнитного излучения составляла около 25%. Погрешность относительных измерений не превышала 15%.

При регистрации энергии пикосекундных импульсов использовались два типа регистрирующих систем. Первая система включала в себя детектор - фотодиод EDGERTON SGD-100, вторая система включала в себя фотодиод Hamamatsu s1223. Сигналы с диодов подавались на интегрирующий фильтр, обеспечивающий регистрацию сигнала запоминающим осциллографом с

полосой пропускания 10 МГц. С помощью этих измерительных систем можно было измерять в широком энергетическом диапазоне энергию пикосекундных импульсов длительностью от 25-50 пс на длине волны 532 нм. Обе системы также калибровались перед каждой серией измерений.

Временные измерения импульсов наносекундной длительности проводились с помощью коаксиальных фотоэлементов типа ФЭК-17КМ с временем нарастания сигнала 0,3 нс. Регистрация сигнала с приемника осуществлялась скоростным осциллографом С7-19 (полоса 5 ГГц) или С7-15. Затем осциллограмма регистрировалась специальной фотоприставкой. Использование согласованных разветвителей позволяло одновременно на одной развертке осциллографа смотреть два импульса и определять время задержки импульсов относительно друг друга.

Для изучения пространственного распределения когерентного излучения в основном использовалась фотографическая методика. Использовались фотопластинки: I 750, I 840, I 1050, ROT rapid, Kodak 4164 и другие. Фотопластинка помещалась на пути исследуемого пучка света в зависимости от поставленной задачи в ближнем или дальнем поле. Нейтральными светофильтрами подбиралась интенсивность падающего на фотопластинку света, так чтобы не было передержек. На эту же фотопластинку фотографировались марки почернения. Для регистрации марок почернения использовался ступенчатый ослабитель. Для получения равномерной засветки перед ступенчатым ослабителем устанавливалась рассеивающая линза и матовая пластинка. Фотопластинки проявлялись метолгидрохиноновым проявителем ДК-50. Распределение почернений на фотопластинке фотометрировалось на двухлучевом регистрирующем микрофотометре ИФО-451. Почернение переводилось в интенсивности с помощью марок почернения.

В отдельных случаях для регистрации пространственного распределения интенсивности в сечении пучков ВКР и лазерного излучения использовалась ПЗС-матрица EG/G RETICON MC-9000, сопряженная с

компьютером.

Исследуемые среды.

Исследования свойств ВР (прежде всего, вынужденного комбинационного рассеяния – ВКР) света, а также пространственной деформации оптического изображения при распространении через нелинейную среду осуществлялись для большого класса веществ, оптические характеристики которых (эффективное сечение соответствующего типа ВР, постоянная Керра) варьировались в широких пределах. Все основные результаты, приведенные в данной главе, были получены в веществах, название, химическая формула и частотное смещение первой стоксовой компоненты ВКР которых приведены в табл.5.1. Использовались только жидкости высокой степени очистки, обычно применяемые для спектральных измерений. При работе с кальцитом использовались монокристаллы кальцита высокой оптической однородности, марки "экстра", сорт ИЖВ для призм Глана. Максимальный размер кристалла был 25x25x23 мм. Кристаллы в экспериментах ориентировались таким образом, чтобы их оптическая ось совпадала с направлением распространения лазерного излучения.

Таблица 5.1. Среда, используемые в эксперименте.

Название	Формула	$V, \text{ см}^{-1}$
Жидкий азот	N_2	2330
Кальцит	CaCO_3	1086
Бензол	C_6H_6	991
Ацетон	CH_3COCH_3	2921
Четыреххлористый углерод	CCl_4	459
Толуол	C_7H_8	1004
Хлороформ	CHCl_3	667

Окна кюветы с исследуемыми жидкостями и грани кристалла образовывали угол по отношению друг к другу или располагались под углом к оптической оси системы для предотвращения возникновения обратной связи.

§ 5.3. Преобразование амплитудно-фазовых характеристик лазерного импульса при прохождении через нелинейную среду с двухфотонным поглощением (ДФП) и высокочастотным Керр-эффектом.

При распространении через нелинейную среду с ДФП и высокочастотным Керр-эффектом лазерное излучение претерпевает существенные изменения амплитудно-фазовых характеристик. Причем эти изменения параметров импульса нелинейно зависят от его интенсивности. Рассмотрим результаты экспериментальных исследований зависимостей амплитуды и фазы лазерного импульса наносекундной длительности, распространяющегося в нелинейной среде, от его интенсивности для случая, когда основными процессами в нелинейной среде были ДФП и высокочастотный Керр-эффект. В качестве исследуемых сред использовались: ацетон, четыреххлористый углерод, бензол и т. д..

Измерение ДФП в исследуемых средах проводилось следующим образом: излучение рубинового лазера, работающего в режиме модуляции добротности, фокусировалось в кювету с активной средой. Длина кюветы со средой подбиралась таким образом, чтобы исключить возбуждение ВР в кювете. Одновременно регистрировались: энергия лазерного импульса до кюветы, и энергия излучения, прошедшего кювету. Измерение энергии осуществлялось с помощью фотодиодов ФД-17К, которые калибровались с помощью прибора ИМО-2. Калибровка осуществлялась перед каждой серией экспериментов.

Измерения изменения фазы излучения, сфокусированного в кювету с

нелинейной средой, в зависимости от энергии падающего на кювету излучения проводились с помощью интерферометра типа Маха-Цендера.

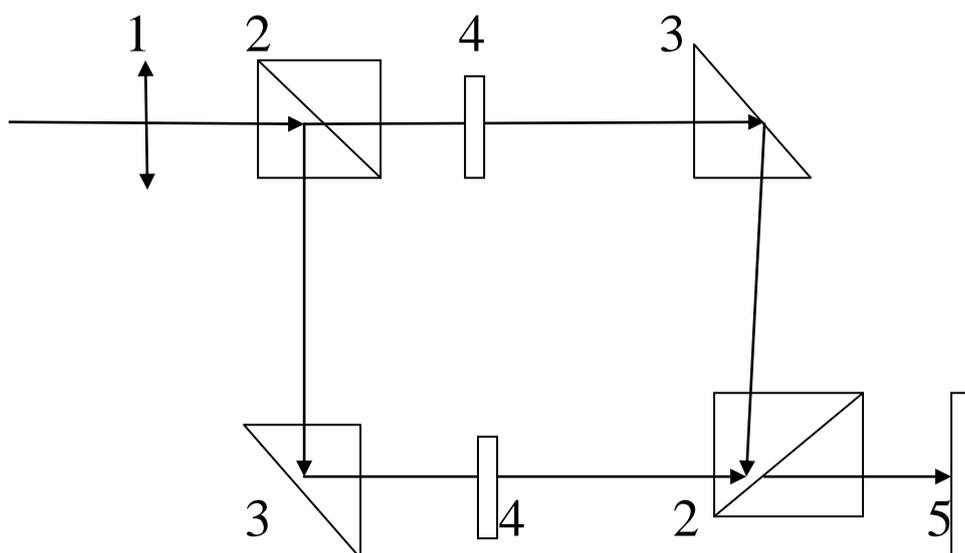


Рис.5.3 Интерферометр Маха-Цендера

1 – линза, 2 – делительные кубики, 3 – призмы, 4 – нелинейная среда, 5 – система регистрации пространственного распределения интенсивности лазерного излучения.

Кювета с исследуемой средой помещалась в одно из плеч интерферометра и освещалась сфокусированным в центр кюветы пучком лазерного излучения. В другом плече интерферометра устанавливалась идентичная кювета, освещенная несфокусированным пучком накачки. В этой кювете даже при максимальной энергии падающего излучения среда оставалась прозрачной, так как порог регистрации ДФП не достигался. Интерференция двух пучков излучения - сфокусированного и несфокусированного в кюветы с ацетоном - регистрировалась на выходе интерферометра на фотопластинки. Изменение фазы лазерного импульса

определялось по сдвигу интерференционных полос на фотопластинке относительно реперной линии. Стабильность работы интерферометра контролировалась дополнительным гелий-неоновым лазером. Изменение фазы прошедшего излучения (и, одновременно, пропускания), в зависимости от его энергии, полученное экспериментально, представлено на рис.5.4.

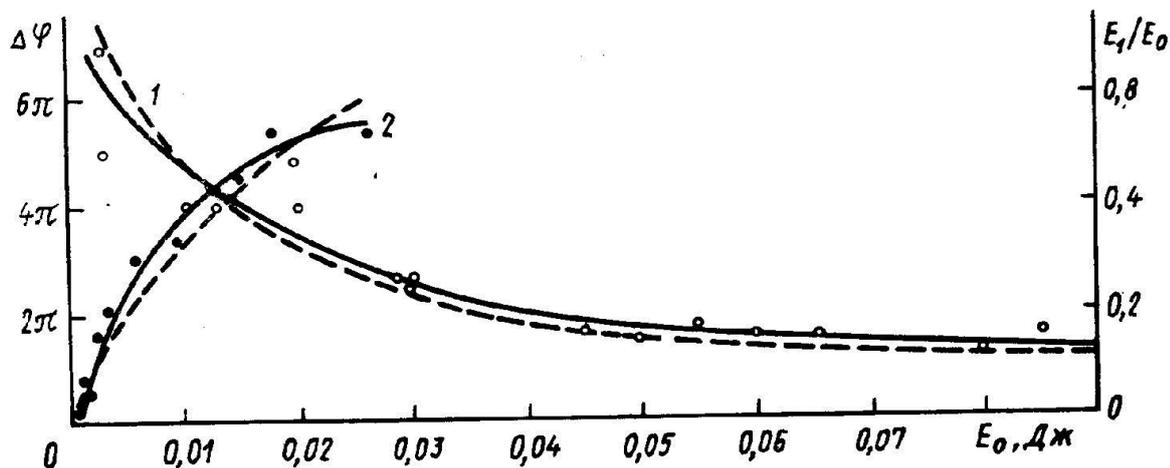


Рис. 5.4. Зависимость пропускания (1) и изменения фазы(2) от энергии лазерного импульса при его прохождении через слой нелинейной среды. Сплошная линия – эксперимент, штриховая линия – теория.

Данный эксперимент был выполнен при использовании линзы, фокусирующей лазерное излучение в кювету, с фокусным расстоянием равным 50 мм и толщиной слоя нелинейной среды 5 мм. В качестве нелинейной среды использовался ацетон. Эксперименты такого рода проводились, как при использовании рубинового лазера, так и с лазером на стекле с неодимом, работающими в режиме модуляции добротности. Таким образом, при прохождении через среду, обладающую ДФП и высокочастотным Керр-эффектом, лазерного импульса наносекундной длительности имеет место не только ослабление его интенсивности, но и существенное изменение фазы.

Следует отметить, что эксперименты по измерению изменения фазы проводились при энергиях меньших 0,03 Дж. При максимальных энергиях

лазерного излучения иногда возникал пробой, что легко было обнаружить по резкому падению пропускания активной среды и исчезновению интерференционной картины пучков, выходящих из интерферометра Маха-Цендера.

Оценим значение нелинейного показателя преломления n_2 и коэффициента ДФП δ из полученных экспериментальных результатов. Интенсивность при стационарном прохождении света через среду с ДФП определяется следующим выражением

$$I(l) = \frac{I_0}{1 + I_0 k_1} \quad (5.1)$$

где I_0 - интенсивность падающего света; $k_1 = \delta l$; δ - коэффициент ДФП; l - эффективная длина взаимодействия излучения со средой, которую мы полагаем равной длине фокальной перетяжки. Диаметр фокальной перетяжки d в данной серии измерений определялся экспериментально и составлял 0,02 мм. Полная энергия на выходе $W_1 = I(l)S\tau$, где S - сечение лазерного пучка в среде, τ - длительность импульса излучения. Коэффициент пропускания нелинейной среды можно записать в виде

$$\eta(W_0) = \frac{W(l)}{W_0} = \frac{1}{1 + kW_0}; W_0 = I_0 S \tau \quad (5.2)$$

Величину $k = k_1/S\tau = \delta l/S\tau$ можно найти из графика эмпирически методом наименьших квадратов

$$k = \frac{1 - \eta}{\eta W_0} \quad (5.3)$$

Из графика $\eta(W_0)$ получаем $k = 102 \text{ Дж}^{-1}$, т.е.

$$\eta(W_0) = \frac{1}{1 + 102W_0}$$

Из рисунка 5.4 видно, что экспериментальная и теоретическая зависимости пропускания в присутствии ДФП от энергии накачки близки. Формула (5.2) получена в приближении однородных плоских волн, а в эксперименте используются сфокусированные пучки лазерного излучения. В

[61] было показано, что выражение (5. 2) применимо и в более общих случаях.

Сдвиг фазы при распространении лазерного импульса через нелинейную среду определяется следующим выражением

$$\Delta\varphi = 2\pi\lambda^{-1} \int_0^l \Delta n(x) dx \quad (5.4)$$

где $\Delta n(x)$ - изменение показателя преломления в сильном поле; λ - длина волны; $\Delta n(x) = n_2 E^2 = (8\pi n_2 / \ln) I(x)$, где $I(x) = (cn/8\pi) E^2(x)$, n_2 - нелинейный показатель преломления, c - скорость света. E - медленная амплитуда поля. Подставляя $\Delta n(x)$ в выражение для $\Delta\varphi$ и интегрируя получаем

$$\Delta\varphi = \ln(1 + \delta I_0 l) = K \ln(1 + kW_0) \quad (5.5)$$

где $K = 16\pi^2 n_2 / \lambda c \delta n$. Обработывая кривую $\Delta\varphi(W_0)$ по методу наименьших квадратов, получаем $K=15$ и окончательно

$$\Delta\varphi = 15 \ln(1 + 102W_0) \quad (5.6)$$

Форма кривой (6) близка к экспериментальной (рис.1.5). Зная $k=102 \text{ Дж}^{-1}$ и $K=15$, можно оценить δ и n_2 и сравнить с литературными данными. Для оценки δ из эксперимента необходимо знать длительность импульса $\tau=20$ нс, l и сечение $S = \pi d^2/4$, где l и d длина и диаметр фокальной перетяжки.

Однако, для гауссовых пучков l и d связаны так: $l=2\pi d^2/\lambda$ в нашем случае непосредственно измеренное $d = 0,02$ мм и, соответственно, при $\lambda=694.3$ нм имеем $l=3,62$ мм и $\delta = kSt/l = k\lambda t/8 = 1,77 \cdot 10^{-13}$ м/Вт. Таким образом, для гауссовых пучков связь между δ и k не зависит от параметров фокальной перетяжки.

Соответственно, $n_2 = \lambda c \delta n / 16\pi^2 = 6,53 \cdot 10^{-13}$ ед. СГСЭ. Теоретически δ можно рассчитать по формуле [110]

$$\delta = 96\pi^2 \omega^2 \text{Im}\chi_3 / c^2 n^2$$

Где χ_3 - компонента тензора третьего ранга, ответственная за ДФП; n - показатель преломления. В работе [58] приводятся относительные значения

$\text{Im } \chi_3$ для различных веществ. Используя хорошо известные абсолютные данные для сероуглерода вычислим для ацетона $\text{Im } \chi_3 = 1,04 \cdot 10^{-15}$ ед. СГСЭ, с помощью которого и $n=1,362$ получаем $\delta = 1,6 \cdot 10^{-3}$ м/Вт, что согласуется с вышеприведенным экспериментальным значением $\delta = 1,77 \cdot 10^{-3}$ м/Вт.

Нелинейный показатель преломления n_2 в ацетоне для наносекундных импульсов света определялся ранее в работах, связанных с проблемой самофокусировки света. В нашем случае знак изменения показателя преломления положительный и n_2 по порядку величины близко к $n_2 = 2,2 \cdot 10^{-13}$ в ацетоне, обусловленному высокочастотным эффектом Керра [112]. При прохождении через жидкие диэлектрики лазерного излучения при наносекундной длительности главными механизмами, ответственными за n_2 , являются эффект Керра, электрострикция и нелинейная электронная поляризация (роль этих механизмов в различных веществах различна). Из литературы [113] известно, что константа электрострикции K_p для ацетона в семь раз больше константы Керр-эффекта K_a , однако, за счет инерционности электрострикции при импульсах длительностью $2 \cdot 10^{-8}$ с отношение соответствующих изменений показателя преломления $(\Delta n)_p / (\Delta n)_a$, приближенно составляет 0,07 [113]. В связи с этим, по-видимому, вклад электрострикции в Δn не является главным. Следует отметить, что малая толщина (5 мм) слоя нелинейной среды (в данном случае ацетона) и присутствие ДФП служили препятствием для развития самофокусировки света.

В заключение этого параграфа рассмотрим применимость использованного нами выражения (5.2) в общем случае. Выражение (5.2) получено для ДФП в случае однородных плоских волн. Тем не менее, оно хорошо согласовано с экспериментом, в котором излучение фокусируется. Покажем на некоторых примерах, что (5.2) имеет более широкую область применимости.

Для начала докажем следующую теорему. Если излучение проходит последовательно две области пространства 1 и 2, в которых происходит ДФП

и в каждой из которых справедлив закон (5.2) (с коэффициентами k_1 и k_2 соответственно), то в суммарной области справедлив закон (5.2) с $k=k_1+k_2$. Пусть $w_1=w_0/(1+k_1w_0)$, $w_2=w_0/(1+k_2w_0)$, где w_0 , w_1 - мощность соответственно входящего и выходящего излучения для области 1, а w_1 и w_2 -то же самое для области 2. Подставляя w_1 в выражение для w_2 и делая элементарные преобразования, получаем

$$w_2 = \frac{w_0}{1+(k_1+k_2)w_0} = \frac{w_0}{1+kw_0} \quad (5.7)$$

то есть теорема доказана. Таким образом, если можно разбить всю область ДФП на несколько участков, в каждом из которых справедлив закон (15.2), то и в целом (5.2) будет справедлив.

Покажем теперь, что выражение (5.2) справедливо в частном случае расходящейся (сходящейся) однородной волны. Используем приближение геометрической оптики [114]. Представим амплитуду волны $U(r)=A(r)\exp[i\psi(r)]$, где амплитуда и эйконал ψ - вещественные функции. Тогда в первом приближении уравнения для них будут

$$(\Delta\psi)^2=n^2 \quad (5.8)$$

(уравнение эйконала) и

$$A\Delta\psi + 2\nabla\psi\nabla A = -\Delta A^3 \quad (5.9)$$

(уравнение переноса), где n - показатель преломления, который будем считать постоянным. Справа в (5.9) мы учли ДФП. В случае расходящегося сферического однородного пучка (5.8) и (5.9) примут вид:

$$\psi = nr \quad (5.10)$$

$$2\partial A/\partial r = -2A/r - \partial A^3/\partial r \quad (5.11)$$

где r - расстояние от центра кривизны расходящейся волны.

Если перейти к мощности w сферической однородной волны с расходимостью α

$$w = \alpha r^2 c A^2 / 2\pi n \quad (5.12)$$

то (5.11) примет вид

$$\partial w / \partial r = -\mu w^2 / r^2 \quad (5.13)$$

где $\mu = 2\lambda\delta / \alpha c$. Решая (5.13) с начальным условием $w(r_0) = w_0$, получаем для расходящейся волны

$$w(r) = \frac{w_0}{1 + \mu(1/r_0 - 1/r)w_0} \quad (5.14)$$

аналогично для сходящейся волны

$$w(r) = \frac{w_0}{1 + \mu(1/r_0 + 1/r)w_0} \quad (5.15)$$

где r_0 - радиус кривизны начальной волны, w_0 - начальная мощность. Таким образом, закон (5.2) выполняется.

Рассмотрим теперь другой важный пример - плоскую гауссову волну, распространяющуюся вдоль оси X, у которой интенсивность в поперечном сечении зависит от полярного радиуса ρ .

$$I(\rho, 0) = I_0 \exp(-\rho^2 / a^2) \quad (5.16)$$

В слое среды с протяженностью l с ДФП интенсивность на выходе будет

$$I(\rho, l) = I_0 \exp(-\rho^2 / a^2) / [1 + k_1 I_0 \exp(-\rho^2 / a^2)] \quad (5.17)$$

если учесть, что начальная мощность

$$w_0 = 2\pi I_0 \int_0^\infty \rho d\rho \exp(-\rho^2 / a^2) = I_0 \pi a^2 \quad (5.18)$$

то мощность излучения на выходе из слоя

$$w(l) = \int_0^\infty 2\pi \rho d\rho \frac{I_0 \exp(-\rho^2 / a^2)}{1 + k_1 I_0 \exp(-\rho^2 / a^2)} = \frac{w_0}{k_1 I_0} \ln(1 + k_1 I_0) \quad (5.19)$$

Если учесть разложение, справедливое при $x > 1/2$

$$\ln x = (x-1)/x + (x-1)^2 / 2x^2 + \dots$$

то из (5.19) получим

$$w(l) \sim w_0 / (1 + k_1 I_0) = w_0 / (1 + k_2 w_0),$$

где $k_2 = k_1 / \pi a^2$, т.е. можно считать, что закон (5.2) и в этом случае выполняется.

Приведенные расчеты показывают, что хорошее согласие формулы (5.2) с экспериментом можно объяснить следующим образом. Область ДФП в

нашем случае можно разбить на несколько областей, в каждой из которых выполняется зависимость (5.2) с достаточной точностью, например, область сходящейся и область расходящейся волн, область перетяжки, которую тоже можно разбить на участки, где, например, выполняется (5.15), и т.п. В силу доказанной теоремы, (5.2) будет справедливо и для всей областиДФП.

§ 5.4 Образование изображения при освещении объекта когерентным светом. Метод фазового контраста с использованием нелинейно-оптического фильтра.

Рассмотрим образование изображения произвольного объекта при освещении когерентным светом, как это сделано, например, в [16]. Пусть объект O освещается плоской волной. В задней фокальной плоскости объектива, расположенного за объектом (F'), возникает дифракционная картина Фраунгофера. Каждая точка этой картины является источником вторичных когерентных волн, результатом интерференции которых в плоскости изображений O' и будет изображением объекта. Качество изображения будет определяться количеством точек дифракционной картины Фраунгофера, участвующих в построении изображения. Исключение каких-либо участков дифракционной картины Фраунгофера из участия в построении изображения приводит к его деформации. Но наиболее существенное влияние имеют те участки, в которых сосредоточено максимальное количество энергии.

Распределение возмущения в плоскости F' определяется формулой

$$U(\zeta, \theta) = C_1 \iint_A F(x, y) \exp(-ik[\frac{\zeta}{f}x + \frac{\theta}{f}y]) dx dy \quad (5.20)$$

где $F(x, y)$ - функция пропускания предмета, C_1 - постоянная, $\xi=pf$, $\theta= qf$ где f - фокусное расстояние объектива. Перейдя к плоскости изображений, путем несложных преобразований, можно записать:

$$V(x', y') = C_1 C_2 \iint_A \iint_B F(x, y) \exp(-i \frac{k}{f} [x + \frac{f}{\theta} x'] \zeta + [y + \frac{f}{\theta} y'] \theta) dx d\zeta d\theta, \quad (5.21)$$

где C_1, C_2 – постоянные, $x' = p'\theta'$ и $y' = q'\theta'$ координаты точки в плоскости изображения, интегрирование производится по А (площадь, занятая предметом), В - отверстие в плоскости F'. Рассмотрим теперь способы изменения изображения объекта в плоскости изображений, путем направленного изменения Фурье-спектра объекта (дифракционной картины Фраунгофера). Разработка этих методов в основном определялась необходимостью исследования фазовых объектов (т.е. объектов, меняющих фазу, а не амплитуду падающего света). Для визуализации такого объекта необходимо преобразовать фазовую модуляцию прошедшего объект света в амплитудную. Это реализуется с помощью специальных методов, таких как, например, метод темного поля, когда с помощью диафрагмы устраняется нулевой порядок Фурье-спектра, метод свилей, в котором исключаются все спектры по одну сторону от нулевого порядка. Остановимся более подробно на эффективном методе, методе фазового контраста [16]. В этом методе в заднюю фокальную плоскость F' объектива помещают фазовую пластинку, вызывающую отставание или опережение фазы в нулевом порядке относительно фазы высших порядков на четверть периода. Рассмотрим, что происходит с изображением. Разделим интеграл (1.20) на две части:

$$U(\zeta, \theta) = U_0(\zeta, \theta) + U_1(\zeta, \theta) \quad (5.22)$$

где

$$U_0(\zeta, \theta) = C_1 \iint_A \exp(-ik[\frac{\zeta}{f}x + \frac{\theta}{f}y]) dx dy$$

$$U_1(\zeta, \theta) = C_1 \iint_A (F(x, y) - 1) \exp(-ik[\frac{\zeta}{f}x + \frac{\theta}{f}y]) dx dy$$

U_0 соответствует нулевому порядку Фурье-спектра, т.е. свету, прошедшему объект без отклонения. Этот свет концентрируется в небольшой области B_0 плоскости F' вблизи точки $\xi = \theta = 0$. U_1 - та часть света, которая претерпевает дифракцию на объекте. В методе фазового контраста зона B_0

перекрывается частично поглощающей свет фазовой пластинкой. Действие этой пластинки описывается следующей функцией пропускания;

$$A = ae^{(i\alpha)} \quad (5.23)$$

Если пластинка является чисто фазовой, то $a=1$.

Для света, прошедшего через фазовую пластинку можно записать

$$U(\zeta, \theta) = AU_0(\zeta, \theta) + U_1(\zeta, \theta) \quad (5.24)$$

В этом случае распределение комплексной амплитуды в изображении будет иметь вид

$$V(x', y') = V_0(x', y') + V_1(x, y) \quad (5.25)$$

где

$$V_0 = AC_2 \iint_A U_0(\zeta, \theta) \exp\left(-\frac{ik}{\theta'}[x'\zeta + y'\theta]\right) d\zeta d\theta \quad (5.26)$$

$$V_1 = C_2 \iint_A U_1(\zeta, \theta) \exp\left(-\frac{ik}{\theta'}[x'\zeta + y'\theta]\right) d\zeta d\theta \quad (5.27)$$

Подставляя выражения для U_0 и U_1 в (5.25) и (5.27) и проведя интегрирование, получим:

$$V_0(x', y') = CA \quad (5.28)$$

$$V_1(x', y') = C[F(x, y) - 1] \quad (5.29)$$

Отсюда следует, что интенсивность в плоскости изображения будет определяться выражением:

$$I(x', y') = |C|^2 |A + F(x, y) - 1|^2 \quad (5.30)$$

Если объект фазовый, то:

$$F(x, y) = \exp[i\varphi(x, y)] \quad (5.31)$$

то для распределения интенсивности в области изображения можно записать:

$$I(x', y') = |C|^2 [a^2 + 2\{1 - a \cos \alpha - \cos(\varphi(x, y)) + a \cos(\alpha - \varphi(x, y))\}] \quad (5.32)$$

Если φ мало, то (5.32) сводится к

$$I(x', y') = |C|^2 [a^2 + 2a\varphi(x, y) \sin \alpha] \quad (5.33)$$

Действие фазовой пластинки приводит к тому, что

$$I(x', y') = |C|^2 [a^2 \pm 2a\varphi(x, y)] \quad (5.34)$$

Формула (5.34) дает распределение интенсивности света в плоскости изображения в случае наблюдения фазового объекта по методу фазового контраста. Наличие a в формуле (5.23), т.е. наличие поглощения в фазовой пластине ($0 < a < 1$), приводит к увеличению контрастности изображения. Если $a=0$, то реализуется метод темного поля, когда весь нулевой порядок Фурье-спектра поглощается.

Для дальнейшего необходимо рассмотреть такую ситуацию, когда исследуемый объект является амплитудно-фазовым, т.е. его функция пропускания имеет вид

$$F = k \exp(i\varphi), \quad 0 < k < 1 \quad (5.35)$$

Также предположим, что в области нулевой компоненты Фурье-спектра расположен амплитудно-фазовый фильтр (5.23), а остальные компоненты проходят через фильтр с функцией пропускания

$$V = b \exp(i\beta) \quad (5.36)$$

В этом случае величина, характеризующая распределение интенсивности света в плоскости изображения, будет определяться следующим выражением

$$\eta = \frac{b^2}{a^2} (k^2 + 1 - 2k \cos \varphi) + 2 \frac{b}{a} (k \cos(\beta + \varphi - \alpha) - \cos(\beta - \alpha)) \quad (5.37)$$

Рассмотрим распределение интенсивности света в плоскости изображения объекта для случаев амплитудного, фазового, амплитудно-фазового объекта, когда в область Фурье-спектра объекта помещены различные типы фильтров. Предполагается, что действию фильтров будут подвергаться нулевой и, отдельно, высшие порядки Фурье-спектра. В таблице представлены результаты вычислений распределения интенсивностей в плоскости изображения для случаев использования фазового и амплитудно-фазового фильтра действующих только на нулевой или на нулевой и первый порядки Фурье-спектра объекта.

Таблица 5.2 Распределение интенсивности в плоскости изображения

для объектов различного типа при амплитудно-фазовой фильтрации в области Фурье-спектра.

		1	2	3
Фильтр	Объект	Амплитудный фильтр 0-й порядок $b=1$ $\beta=0$ $0 \leq a \leq 1$ $\alpha=0$	Амплитудный фильтр 0, 1-й порядок $0 \leq a \leq 1$ $\alpha=0$ $0 \leq b \leq 1$ $\beta=0$	Фазовый фильтр 0-й порядок $a=1$ $\alpha \neq 0$ $b=1$ $\beta=0$
Ампл. $0 \leq k \leq 1$ $\varphi=0$		$\eta_{11}=(1-k)\{-2/a+(1-k)/a^2\}$ одна точка перехода (- +)	$\eta_{12}=(1-k)b/a \odot$ $\odot \{b/a(1-k)-2\}$ одна точка (- +) насыщение контраста для слабого ампл. объекта может не быть точки из-за насыщения b/a	$\eta_{13}=(1-k)^2 -$ $-2(1-k)\cos \alpha$ много точек (- + - +)
Фазовый $k=1$ $\varphi \neq 0$		$\eta_{21}=2(1-\cos\varphi)(1-a)/a^2$ нет точки перехода (+)	$\eta_{22}=2b/a\{(1-\cos\varphi) \cdot$ $\cdot (b/a-1)\}$ нет точки (+) насыщение контраста $\eta_{22} = \eta_{21} (a \rightarrow a / b)$	$\eta_{23}=8\sin(\varphi/2) \cdot$ $\cdot \sin(\alpha/2) \cdot$ $\cdot \cos(\varphi/2 - \alpha/2)$ много точек
Ампл.- фазовый $0 \leq k \leq 1$ $\varphi \neq 0$		$\eta_{31} = (1-k)^2/a^2 - 2(1-k)/a +$ $+ \{2k(1-\cos\varphi)(1-a)\}/a^2 =$ $= \eta_{11} + k \eta_{21}$ одна точка	$\eta_{32} = \eta_{12} + k \eta_{22}$ фазовый фильтр сдвигает точку перехода в меньшие интенсивности	$\eta_{33} = \eta_{13} + k \eta_{22}$ много точек

		4	5	6
Фильтр	Объект	Фазовый фильтр 0,1-й порядок $a=1$ $\alpha \neq 0$ $b=1$ $\beta \neq 0$	Амплитудно- фазовый фильтр 0-й порядок $0 \leq a \leq 1$ $\alpha \neq 0$ $b=1$ $\beta=0$	Амплитудно- фазовый фильтр 0,1-й порядок $0 \leq a \leq 1$ $\alpha \neq 0$ $0 \leq b \leq 1$ $\beta \neq 0$
Ампл.		$\eta_{14} = \eta_{13}$, где	$\eta_{15} = (1-k)^2/a^2 -$	$\eta_{16} = \eta_{15}$

	$0 \leq k \leq 1$ $\varphi = 0$	$\alpha \rightarrow \alpha - \beta$ $\eta_{14} = (1-k)^2 -$ $-2(1-k)\cos(\alpha - \beta)$ бесконечное число точек (- + - + ...)	$-2\cos \alpha (1-k) / a$ может быть одна или несколько или много точек	$(a \rightarrow a / b,$ $\alpha \rightarrow \alpha - \beta)$ $a/b \rightarrow \sqrt{\lambda}$ может и не быть корней есть насыщение a/b
	Фазовый $k=1$ $\varphi \neq 0$	$\eta_{24} = \eta_{23} (\alpha \rightarrow \alpha - \beta) =$ $= 8\sin(\varphi/2) \cdot$ $\cdot \sin\{(\alpha - \beta)/2\} \cdot$ $\cdot \cos\{\varphi/2 - (\alpha - \beta)/2\}$ много точек	$\eta_{25} = \eta_{21} + \eta_{23}/a$ либо нет точек, либо одна, либо много	$\eta_{26} = \eta_{25} (a \rightarrow a / b,$ $\alpha \rightarrow \alpha - \beta) =$ $= \eta_{22} + b \eta_{24}/a =$ $\eta_{21}(a \rightarrow a / b) +$ $+ b \eta_{23}(\alpha \rightarrow \alpha - \beta)/a$
	Ампл.- фазовый $0 \leq k \leq 1$ $\varphi \neq 0$	$\eta_{34} = \eta_{33} (\alpha \rightarrow \alpha - \beta) =$ $= \eta_{14} + k \eta_{24}$ много точек	$\eta_{35} = \eta_{15} + k \eta_{21} +$ $+ k \eta_{23}/a =$ $= \eta_{15} + k \eta_{25}$	$\eta_{36} = \eta_{35} (a \rightarrow a / b,$ $\alpha \rightarrow \alpha - \beta) =$ $= \eta_{16} + k \eta_{22} +$ $+ k b \eta_{24}/a =$ $= \eta_{16} + k \eta_{26} =$ $= \eta_{15}(a \rightarrow a / b) +$ $+ k \eta_{25}(a \rightarrow a / b,$ $\alpha \rightarrow \alpha - \beta)$

Способность среды менять амплитуду и фазу когерентного излучения нелинейным образом может быть использовано для фильтрации составляющих различной интенсивности в поле накачки и, следовательно, для управления оптическим изображением.

Схема эксперимента представлена на рис.5.5. Объект-транспарант освещался импульсом излучения рубинового или второй гармоникой неодимового лазера,

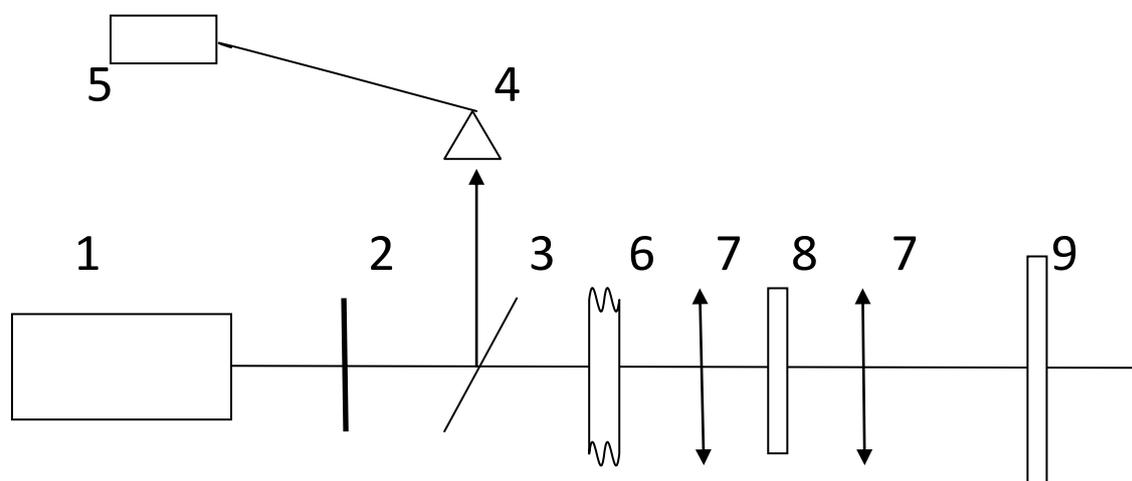


Рис.5.5. Схема экспериментальной установки.

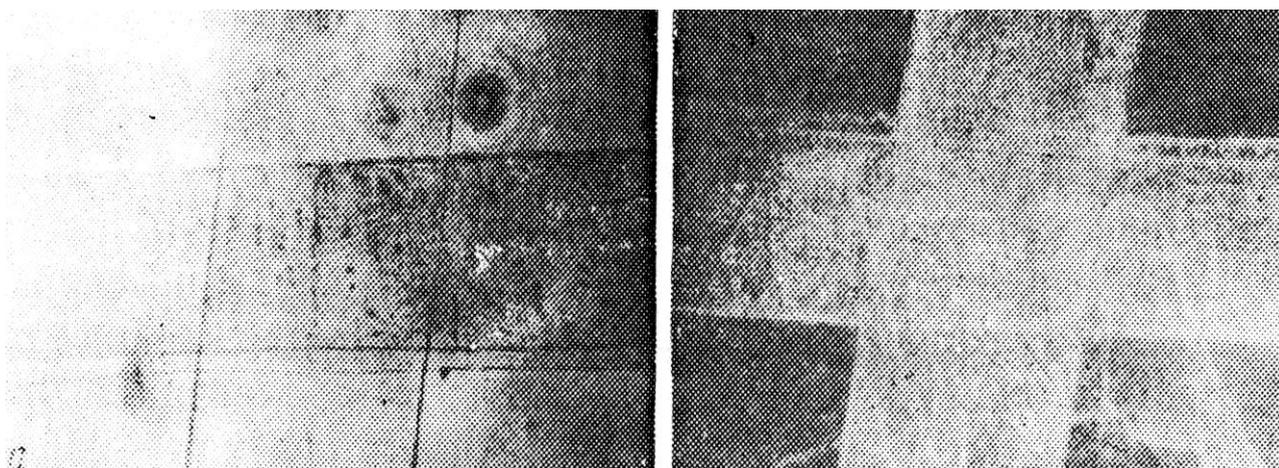
1 - лазер, 2 - нейтральные фильтры, 3 - поворотная пластина, 4 - калиброванный фотодиод, 5 - вольтметр, 6 - исследуемый объект, 7 - линза, 8 - нелинейная среда, 9 - система регистрации пространственного распределения интенсивности когерентного излучения.

работающих в режиме модуляции добротности, длительность импульса лазерного излучения - 20 нс. Фурье-спектр объекта проецировался с помощью линзы в слой нелинейной среды, обладающей ДФП и высокочастотным Керр-эффектом. Использовались линзы с фокусным расстоянием $F = 50, 90, 100$ мм. Длина активной среды обычно выбиралась 5-10 мм. Свет, прошедший объект без отклонений и создающий в плоскости изображения интенсивный фон, концентрировался в нулевой составляющей Фурье-спектра. Если объект отражающий, то элементы 7, 8, 9 располагались на пути отраженного от объекта излучения, то есть после поворотной пластины 3. Для обычных транспарантов, используемых в экспериментах, доля энергии в нулевой компоненте Фурье-спектра составляла $> 90\%$. Под действием импульса света в области фокуса линзы (нулевой порядок Фурье-спектра) возникает своеобразный амплитудно-фазовый экран, связанный с двухфотонным поглощением и высокочастотным эффектом Керра. Действие этого экрана аналогично действию фазосдвигающей и частично

поглощающей свет пластинки, используемой в методе фазового контраста. В данном методе, в отличие от метода фазового контраста, фаза волны и ее поглощение нелинейно зависят от интенсивности (рис.5.4). Варьируя энергию исходной волны, можно подобрать определенное соотношение фаз между нулевой и высшими компонентами Фурье-спектра исследуемого объекта. Подробно, возможные варианты пространственного распределения интенсивности в изображении были рассмотрены и представлены в табл.5.2. Роль амплитудно-фазового фильтра, селективно действующего на компоненты Фурье-спектра различной интенсивности, выполняет в нашем случае нелинейная среда. ДФП и высокочастотный эффект Керра отвечают за ослабление и изменение фазы прошедшего среду света. Используя среды с различными коэффициентами ДФП и Керр-эффекта, тем самым, используем амплитудно-фазовые фильтры с различными характеристиками. Наиболее интересным представляется использование такого фильтра для решения следующих задач оптической обработки изображения: инверсия контраста амплитудных объектов и визуализация фазовых (или слабопоглощающих свет) объектов.

Использование нелинейной среды в качестве амплитудно-фазового фильтра приводит к тому, что модуляция фазы в исходном прозрачном переходе переходит в модуляцию амплитуды в изображении. Это позволяет получить более полную информацию об объекте (в данном случае становятся видны области различной толщины объекта).

Также возможны исследования с помощью данного метода фазовых неоднородностей сильно отражающих объектов. Рассмотрим некоторые примеры использования данного метода для решения различных задач обработки оптического изображения с использованием схемы, показанной на рис.5.5



а)

б)

Рис.5.6 Изображение лавсановой пленки: а) изображение получено с использованием схемы (Рис51.5), но без нелинейной среды в области фокуса; б) изображение получено в той же схеме с нелинейной средой в области фокуса.

На рис 5.6 а показано изображение лавсановой пленки (толщина 12 мкм), нанесенной на зеркало (зеркало с коэффициентом отражения 90% для длины волны генерации используемого лазера). В качестве нелинейной среды использовался ацетон. Рис.5.6 б) - изображение того же объекта в отсутствие нелинейной среды. Следует отметить, что основными параметрами, характеризующими полученное изображение, являются: энергия лазерного импульса, длина волны, длительность импульса.

Именно эти параметры, а также распределение энергии по компонентам Фурье-спектра объекта определяют то значение энергии лазерного импульса, при котором происходит визуализация фазового объекта. Так, в эксперименте, результат которого представлен на рис.5.6, это пороговое значение энергии лазерного импульса (Е) составляло примерно 0,012 Дж. При энергиях лазера меньше этой величины, при наличии нелинейной среды в области Фурье-спектра объекта в области изображения наблюдалась картина типа показанной на рис.5.6 а, т.е. изображение при энергиях лазера меньше Е и при отсутствии нелинейной среды были

идентичными.

Остановимся на результатах эксперимента по обработке изображения амплитудных объектов. В качестве последних обычно в экспериментах использовались сеточки с характерными размерами: толщина проволочек от 0,1 мм - 0,5 мм, размер отверстий - от 0,5 мм до 1 мм.

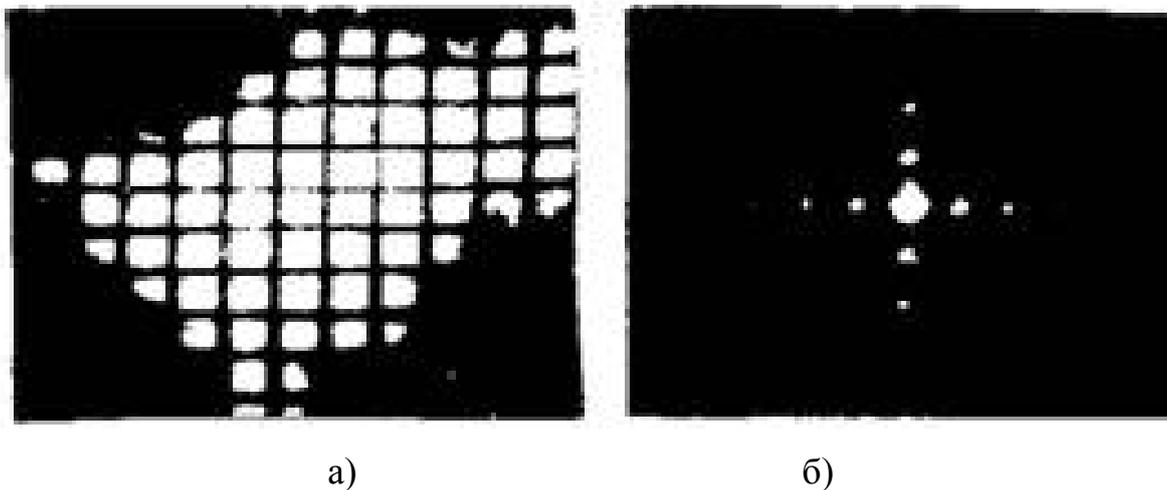


Рис.5.7 Амплитудный объект (а) и его Фурье-спектр (б).

На рис.5.7 показаны объект (сеточка) и его Фурье-спектр. Использовалась установка, показанная на рис.5.5. Наиболее типичный пример обработки изображения амплитудного объекта при использовании наносекундного рубинового лазера показан на рис.5.8. При наличии нелинейной среды в области Фурье-спектра, но при энергиях лазера меньше некоторого порогового значения E , в области изображения регистрировалась картина сеточки точно такая же, как и в отсутствие среды - рис. 5.8а. При достижении энергией лазера значения E регистрировалось инвертированное изображение сеточки - рис.5.8б.

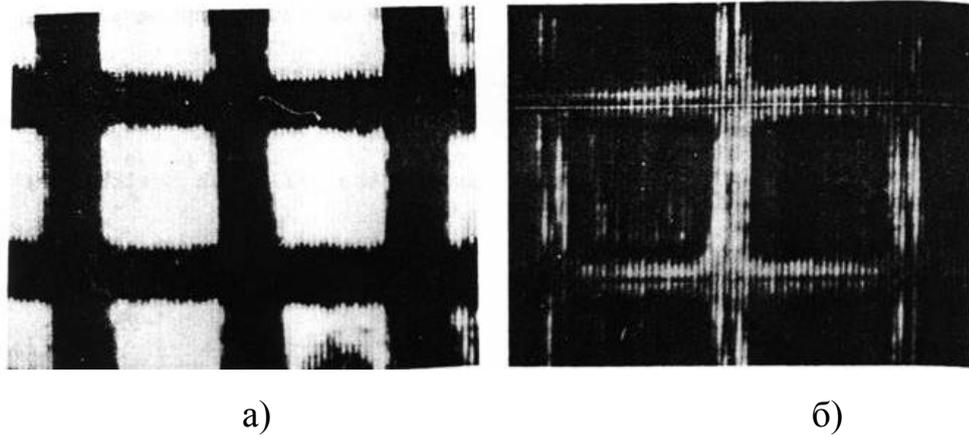


Рис.5.8 Изображение амплитудного объекта при энергии лазерного импульса а) меньше E б) больше E .

В данном эксперименте E составляла 0,2 Дж. Значение E , как и в случае с фазовыми объектами, определялось параметрами нелинейной среды (для данного случая использовался ацетон) и распределением энергии по компонентам Фурье-спектра. Существенное влияние на величину E оказывало наличие в среде других нелинейных процессов, особенно, наличие ВР. В случае использования лазерных импульсов наносекундной длительности возбуждение ВР в среде (для используемых уровней интенсивности накачки это происходило при увеличении слоя нелинейной среды) приводило к существенной деформации изображения объекта. Поэтому при работе с наносекундными импульсами длина активной среды выбиралась такой, чтобы исключить возбуждение ВР. При использовании пикосекундных лазерных импульсов ситуация несколько иная, чем та, которая обсуждалась выше. Рассмотрим результаты обработки оптического изображения при использовании лазерных импульсов длительностью 25 пс с длиной волны 0.53 мкм. Для ряда сред, используемых в качестве нелинейного амплитудно-фазового экрана, при уровнях энергии лазерного импульса достигался порог ВР (при пикосекундных лазерных импульсах это, в основном, ВКР). При небольшом превышении энергии лазера над порогом возбуждения ВКР не приводило к искажению изображения. Нами были

проведены детальные исследования процесса преобразования изображения для сред с различными порогами ВКР. Были экспериментально исследованы: ацетон, хлороформ, сероуглерод, бензол, четыреххлористый углерод, циклогексан, толуол, нитробензол. Эксперимент проводился по схеме, представленной на рис.5.5, одновременно регистрировалось ВКР. В качестве объекта использовалась сеточка. Линза, фокусирующая излучение в нелинейную среду, имела фокусное расстояние 5 см. Толщина кюветы для нелинейной среды составляла 2 см. Использовались одиночные лазерные импульсы длительностью 25 пс, максимальная энергия 3 мДж, размер лазерного пятна по половине интенсивности на линзе 2,6 мм. Типичная картина распределений интенсивности в плоскости изображения показана на рис.5.9.

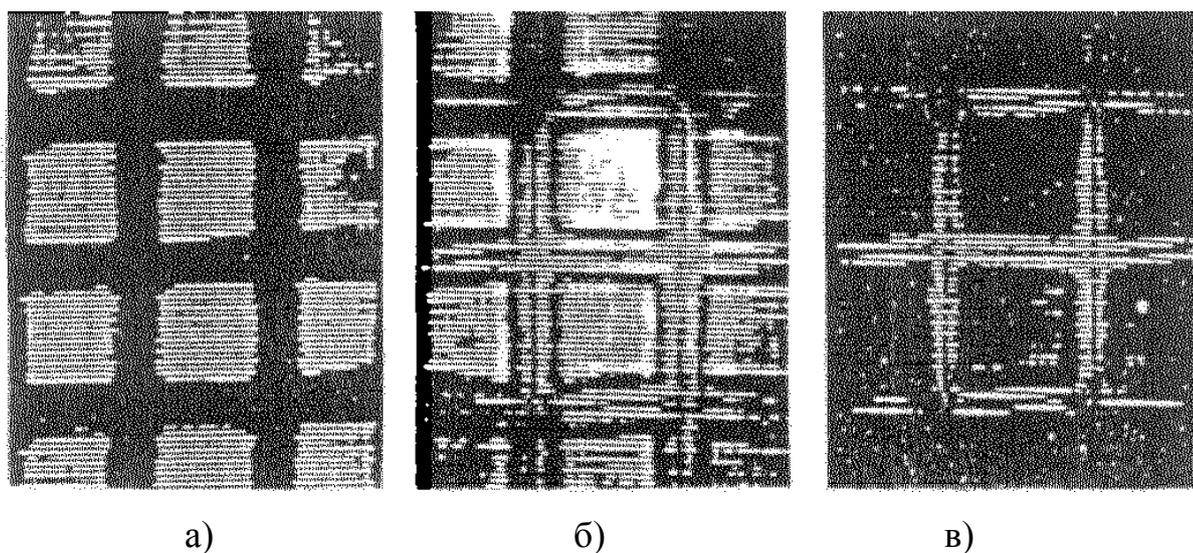


Рис.5.9 Изображение амплитудного объекта при энергиях лазерного импульса: а) 0,02 мДж, б) 0,03 мДж, в) 0,04 мДж

На этом рисунке показана эволюция изображения сеточки при увеличении лазерной энергии от 0,02 мДж до 0,04 мДж. Этот эксперимент был реализован с использованием ацетона в качестве нелинейно-оптического фильтра. Как видно из рисунка, при энергии E , равной 0,04 мДж происходит обращение контраста изображения. Интересно, что при этой же энергии

возбуждается ВКР, но это не сильно влияет на качество изображения. Однако, дальнейшее превышение энергии лазера над порогом возбуждения ВКР приводит к сильной деформации изображения. Основные результаты этих исследований представлены в таблице 5.3.

Таблица 5.3. Оценка качества инверсии контраста для различных сред.

Среда	Качество инверсии контраста	E _и – значение энергии, при котором наблюдается инверсия контраста		χ	относительное значение χ	Порог ВКР (мДж)
		Абсолютное значение (мДж)	E _и (ацетон)/E _и			
ацетон	очень хорошее	0,04	1	1	1	0,04
хлороформ	очень хорошее	0,02	2	2	1,3	0,2
сероуглерод	хорошее	0,0013	31	68	16	0,02
бензол	хорошее	0,006	6,5	5	3	0,007
CCl ₄	хорошее	0,31	0,13	1	1	0,12
циклогексан	нет инверсии	0,18	22	1	0	0,026
толуол	нет инверсии	0,005	8	4	0	0,06

нитро-бензол	нет инверсии	0,006	6,5	13	0	>0,8
--------------	--------------	-------	-----	----	---	------

Здесь качественно оценено обращение контраста, приведены значения энергии лазера, при которой наступает инверсия контраста, а также даны некоторые нелинейные константы данных сред (χ', χ'' - компоненты тензора нелинейной восприимчивости, ответственные за нелинейное изменение показателя преломления и двухфотонное поглощение, соответственно). Интересно отметить, что в ряде сред (например, CCl_4), в которых отсутствует (или очень мало) ДФП, может наблюдаться инверсия контраста. Как правило, для таких сред это имеет место при энергиях лазера выше порога возбуждения ВКР. Дело в том, что зависимость пропускания в такой среде при условии возбуждения в ней ВКР в интересующей нас области энергий примерно аналогична зависимости пропускания в условиях присутствия ДФП. Этим, вероятно, и объясняется наличие инверсии контраста при использовании такого рода сред.

Преобразование пространственного распределения лазерного излучения с помощью нелинейно-оптических явлений позволяет при использовании лазерных импульсов наносекундного и пикосекундного диапазонов длительности путем селективного нелинейного воздействия на Фурье-спектр объекта обрабатывать его изображения. Такие важные задачи обработки оптического изображения, как визуализация фазовых или слабопоглощающих свет объектов, повышение контраста амплитудных объектов могут быть решены на основе описанного метода. Возможно использование этого метода для получения инверсии контраста изображения амплитудных объектов. Эта операция представляет большой практический интерес. Существует много методов (линейных и нелинейных) получения инверсии контраста. Типичными примерами таких методов являются: энергообмен в нелинейной среде между опорной и сигнальной волнами

[115], "выгорание" инверсии населенности уровней в возбужденной среде [116], возникновение негативного изображения в усиливающей среде [117], получение инверсии контраста при четырехволновом взаимодействии [118]. Способ выгодно отличается от других простотой экспериментальной реализации и практически отсутствием сложной юстировки. Следует отметить, что использование в этом методе непрерывных газовых лазеров и специальных сред (например, фоторефрактивных кристаллов), при сохранении схемы эксперимента существенно упрощает (и удешевляет) реализацию этого метода и применение его для решения практических задач. Однако для изучения быстропротекающих процессов более предпочтительным является использование коротких лазерных импульсов и быстрорелаксирующих сред.

§ 5.5 Восстановление и обработка изображений при ВР света. Нелинейно-оптическая фильтрация при ВР как способ обработки оптического изображения.

При восстановлении изображений при ВР света информация об амплитудно-фазовой структуре светового поля регистрируется в нелинейной среде и затем считывается пучком ВР. В результате этого процесса происходит восстановление объемного изображения трехмерного объекта и его Фурье-спектра. Изменяя свойства нелинейной среды и условия возбуждения, можно изменять свойства восстановленных изображений.

Регистрация амплитудно-фазовой структуры светового поля в среде может осуществляться различными способами. Если слой нелинейной среды достаточно велик и вблизи входной поверхности уровень насыщения не достигается, информация может быть зарегистрирована в виде вариаций коэффициента усиления, т.е. амплитудной усиливающей голограммы. Пучок ВР, возникающий в фокусе, может считать голограмму и восстановить амплитудно-фазовую структуру поля в том случае, если параметры этого

пучка близки к параметрам пучка накачки. Волновой фронт пучка вынужденного рассеяния Мандельштама-Бриллюэна (ВРМБ) может при определенных условиях иметь волновой фронт, обращенный по отношению к пучку накачки [51]. Аналогичный эффект может наблюдаться и при вынужденном комбинационном рассеянии света. При определенной толщине рассеивающего слоя (для нелинейных жидкостей больше 20 мм) и при плотности мощности накачки больше 2 ГВт/см² яркость, распределение интенсивности, расходимость пучка ВКР в направлении, противоположном направлению накачки ("назад") становятся близки к аналогичным параметрам пучка лазерного излучения, падающего на нелинейную среду. В этом случае пучок ВКР имеет волновой фронт, подобный волновому фронту лазерного излучения, но со смещением по частоте. Такой пучок, падая на динамическую усиливающую голограмму, дифрагирует на ней и восстанавливает изображение объекта, помещенного в пучок накачки, и его Фурье-спектр. При этом характеристики восстановленного изображения объекта (увеличение, контраст) зависят от свойств нелинейной среды и от геометрических и энергетических условий возбуждения. Так, продольное и поперечное увеличение восстановленного изображения описываются следующими выражениями:

$$v_s = [\mu / v_0 + (1 - \mu) / u_0]^{-1}, \quad N = [1 + v_0(1 / \mu - 1) / u_0]^{-1},$$

где $\mu = \lambda_s / \lambda_0$ (отношение длин волн ВКР и накачки), v_0 и v_s – расстояния от входной окна используемой кюветы, до изображения объекта на длине волны накачки и на длине волны ВКР, соответственно, u_0 – расстояние от входного окна до фокуса линзы, N – отношение поперечных размеров изображения и объекта. При этом следует отметить, что изображение объекта в такой схеме может быть расположено и вне слоя нелинейного вещества. Восстановление изображений объектов осуществляется с помощью различных видов вынужденных рассеяний света, прежде всего ВРМБ и

вынужденного рассеяния крыла линии Релея (ВРКР). В тех случаях, когда длина волны рассеянного света близка к длине волны возбуждающего излучения (ВРМБ, ВРКР) изображения объектов расположены на таком же расстоянии от среды, как и объект, и имеют такой же размер. Если длина волны рассеянного излучения сильно отличается от длины волны накачки, изображение может существенно отличаться от объекта по величине и положению.

Информация об амплитудно-фазовой структуре светового поля может быть зарегистрирована в нелинейной среде и другими способами, например, при проецировании в вещество уменьшенного действительного изображения объекта. Преимущества такой схемы заключаются в хорошем качестве восстановленного изображения и возможности работать практически при любой энергии возбуждения, включая область насыщения. Схема позволяет также получить увеличение контраста восстановленного изображения, что существенно при исследовании слабопоглощающих объектов. Но наиболее эффективной схемой, позволяющей осуществлять восстановление и обработку оптического изображения, является схема восстановления по Фурье-спектру объекта.

В схеме восстановления изображений по Фурье-спектру пучок лазерного излучения после прохождения через объект проецируется в тонкий слой нелинейного вещества.

Вынужденное рассеяние возбуждалось в этом случае в областях, соответствующих различным компонентам Фурье-спектра. Наблюдалось восстановление, как изображения объекта, так и его Фурье-спектра. Схема такого процесса может быть представлена в следующем виде:

$$O(x,y) \xrightarrow{TF} S(u,v) \xrightarrow{T} S_R(u,v) \xrightarrow{TF^{-1}} \Theta'(x,y)$$

где $O(x,y)$ -- поле накачки после прохождения объекта, TF - Фурье-преобразование, $S(u,v)$ - поле пространственных частот в излучении накачки,

T - преобразование накачки в ВКР, $S_R(\mathbf{u},\mathbf{v})$ - поле пространственных частот ВКР, $T F^{-1}$ - обратное преобразование Фурье, $O'(\mathbf{x},\mathbf{y})$ - поле рассеянного излучения, строящее изображение объекта.

Экспериментальная установка, используемая в данных экспериментах представлена на рис.5.10

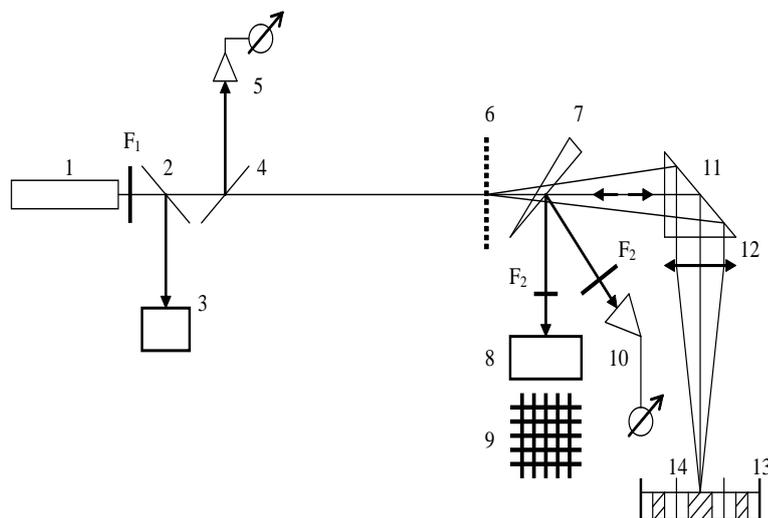


Рис.5.10 Схема экспериментальной установки.

Излучение лазера 1 проходило через объект 6, помещенный в передней фокальной плоскости линзы 12, фокусирующей световой пучок в кювету с нелинейной средой 13. Использовались как амплитудные объекты (металлические сетки с толщиной проволоки от 0,1 до 0,5 мм и величиной ячейки от 0,1 до 1,5 мм), так и фазовые (в том числе фотографические изображения сеточек, обработанные по специальной отбеливающей методике). Для того чтобы исключить влияние окон и избежать их разрушения, излучение направлялось в открытую кювету призмой 11. Толщина активной среды была меньше длины фокальной перетяжки. В этом случае области среды, освещенные лазерным излучением, представляли собой дискретные объемы, соответствующие разным компонентам Фурье-спектра (заштрихованные области на рисунке). Таким образом, ВР возбуждалось в пространственно независимых объемах среды,

соответствующих различным компонентам Фурье-спектра объекта в свете накачки. Излучение ВР в направлении назад клином 7 отводилось на системы регистрации энергии 10 и изображения 8. Изображение 9 регистрировалось с помощью ПЗС-матрицы или фотопластинки. Регистрировался также Фурье-спектр восстановленного изображения. Селективные фильтры F_2 выделяли нужные спектральные компоненты. Параметры возбуждающего излучения регистрировались с помощью систем 3 и 5. Энергия лазерного излучения варьировалась нейтральными фильтрами F_1 .

В качестве источников возбуждения использовались вторая гармоника Nd:YAG лазера с длиной волны 530 нм, длительностью импульса 25 пс и максимальной энергией 5 мДж и рубиновый лазер с длиной волны 690 нм, длительностью импульса 20 нс и максимальной энергией 0.2 Дж.

Восстановление изображения объектов и их Фурье-спектров при ВКР и ВРМБ было получено в ряде жидкостей. В таблице 5.4 приведены смещения частот ВКР ($\Delta\nu$), показатели преломления (n) и коэффициенты усиления ВКР (g) для исследованных жидкостей. Качество восстановленного изображения и коэффициент преобразования в ВР существенно образом зависят от геометрии возбуждения и от энергии накачки. Так, оптимальным является фокусное расстояние линзы, фокусирующей излучение накачки в нелинейную среду, 100 мм. При этом максимальный коэффициент преобразования возбуждающего излучения в ВКР наблюдался при фокусировке накачки на глубину 5 мм, в то время как наилучшее качество восстановленного изображения и Фурье-спектра соответствовало проецированию центральной части фокальной перетяжки на поверхность вещества.

Таблица 5.4 Параметры активных сред, используемых в схеме восстановления и обработки изображения при ВКР.

Среда	$\Delta \nu$	n	$g, \cdot 10^{-2}$
-------	--------------	-----	--------------------

	cm^{-1}		cm/MW
Ацетон CH_3COCH_3	2921	1.359	0.14
Бензол C_6H_6	991	1.504	0.28
Вода H_2O	3300	1.333	0.01
Нитробензол $\text{C}_6\text{H}_5\text{NO}_2$	1345	1.553	0.21
Сероуглерод CS_2	656	1.632	2.4
Четыреххлористый углерод CCl_4	459	1.464	0.13
Этанол $\text{C}_2\text{H}_5\text{OH}$	2921	1.362	0.11

В случае возбуждения в нелинейной среде высших компонент ВКР или возбуждения ВКР одновременно на нескольких молекулярных колебаниях возможна реализация восстановления и обработки изображений одновременно на нескольких частотах. Амплитудно-фазовые соотношения в этом случае на каждой частоте могут быть различны, а распределение интенсивности в плоскости восстановленного изображения можно описать, принимая во внимание характер объекта и нелинейные свойства вещества.

Качество восстановленного изображения и коэффициент преобразования в ВР существенным образом зависят от геометрии возбуждения и от энергии накачки. Так, оптимальным является фокусное расстояние линзы, фокусирующей излучение накачки в нелинейную среду, 100 мм. При этом максимальный коэффициент преобразования возбуждающего излучения в ВР наблюдался при фокусировке накачки на глубину 5 мм, в то время как наилучшее качество восстановленного изображения и Фурье-спектра соответствовало проектировке центральной части фокальной перетяжки на поверхность вещества. При оптимальных геометрических условиях изменение энергии возбуждения приводило к

существенному изменению свойств восстановленного изображения.

Качество восстановленного изображения определяется тем, насколько точно соотношения интенсивностей и фаз между компонентами Фурье-спектра исходного изображения воспроизводятся в восстановленном изображении. На процесс восстановления изображения при ВР существенное влияние оказывают такие нелинейные процессы, как двухфотонное поглощение, высокочастотный Керр-эффект, другие виды вынужденных рассеяний света. Варьируя интенсивность возбуждающего излучения, геометрию освещения объёма, нелинейные параметры активной среды, можно эффективно управлять восстановленным изображением (получать инверсию контраста в изображении амплитудных объектов, осуществлять визуализацию изображений фазовых объектов, повышать контраст изображения слабопоглощающих свет объектов и т.д.), меняя амплитудно-фазовые соотношения между компонентами Фурье-спектра. Данный метод управления оптическим изображением аналогичен классическому методу фазового контраста, обладая следующими особенностями:

- изображение восстанавливается на длине волны, смещённой относительно исходной (смещение обусловлено свойствами активной среды и может принимать значения от сотен до нескольких тысяч обратных сантиметров);

- амплитудно-фазовый экран, который в методе фазового контраста воздействует на нулевую компоненту, в данной схеме воздействует на все компоненты Фурье-спектра, причём воздействие это существенно нелинейно;

- экран возникает в самой среде под действием лазерного излучения, приводящего к нелинейным эффектам, а не является внесённым извне, как в методе фазового контраста.

Следуя теории построения изображения Аббе, можно описать действие

среды, как действие амплитудно-фазовых фильтров типа:

$$A = a(x, y) \exp(i\alpha(x, y)) \quad \text{и} \quad B = b(x, y) \exp(i\beta(x, y)),$$

где $a(x, y), \alpha(x, y)$ и $b(x, y), \beta(x, y)$ - функции, описывающие амплитуду, то есть эффективность преобразования, и фазу волн нулевой и первой компонент Фурье-спектра, соответственно (в общем случае они зависят от интенсивности возбуждающего излучения). Если распределение амплитуды и фазы лазерного поля в области объекта задаётся функцией

$O(x, y) = k(x, y) \exp(i\varphi(x, y))$, то распределение интенсивности поля в области изображения описывается функцией $I(x', y') = C^2 (A + B * O - B)^2$, где C -константа. Введём параметр

$$\eta = \frac{I_d}{I_o} = \frac{b^2}{a^2} (k^2 + 1 - 2k \cos \varphi) + 2 \frac{b}{a} (k \cos(\beta + \varphi - \alpha) - \cos(\beta - \alpha))$$

где I_d, I_o - интенсивности света, дифрагированного на объекте (ему соответствуют высшие компоненты Фурье-спектра в фокальной плоскости линзы), и света, прошедшего объект без отклонения (ему соответствует нулевая компонента Фурье-спектра), в области за нелинейным фильтром (например, в области изображения). Выражение для η , при подборе соответствующих параметров фильтров, хорошо описывает процесс восстановления изображения амплитудных и амплитудно-фазовых объектов при использовании сред с различными типами нелинейностей. В таблице 5.2 представлены выражения η для различного типа фильтров и объектов.

Экспериментально оптимальные условия для восстановления и обработки оптического изображения подбираются варьированием распределения интенсивности в нелинейной среде. Таким образом, подбираются необходимые амплитудно-фазовые соотношения между компонентами Фурье-спектра восстанавливаемого изображения. Практически это реализуется использованием линз с различным фокусным

расстоянием и (или) изменением положения фокальной перетяжки относительно активной среды. На рисунке 5.11 показан результат восстановления изображения амплитудного объекта (сетки) на длине волны первой стоксовой компоненты ВКР, распространяющегося навстречу накачке, при возбуждении в ацетоне пикосекундным лазерным импульсом второй гармоники Nd-YAG лазера, работающего в режиме синхронизации мод.

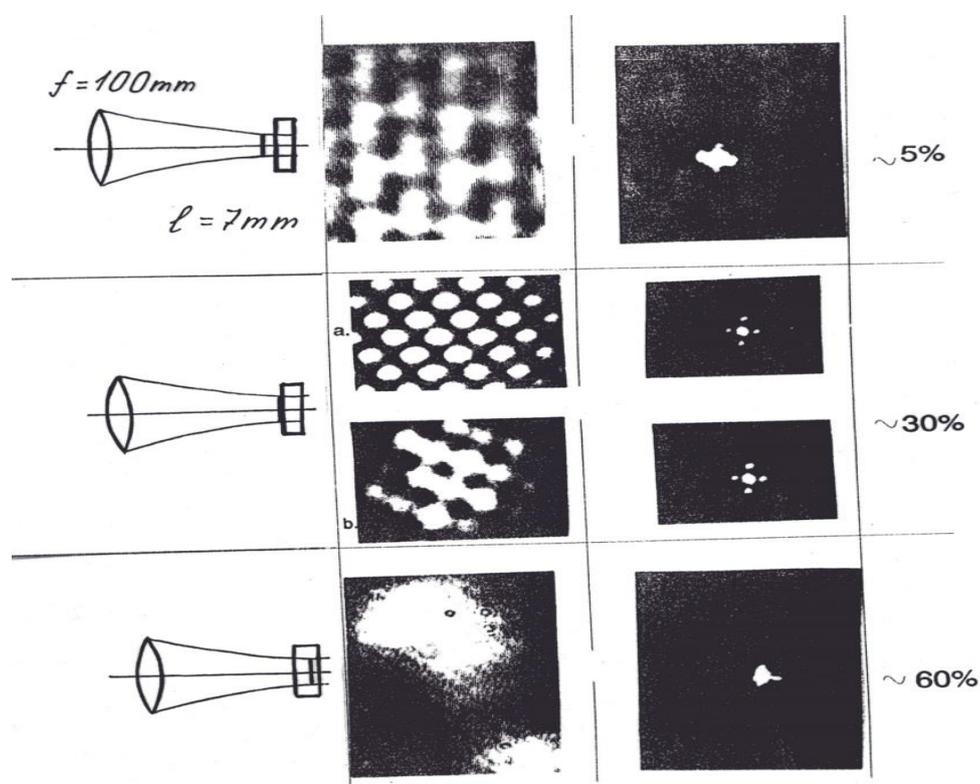
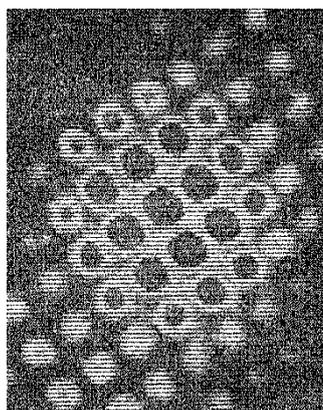


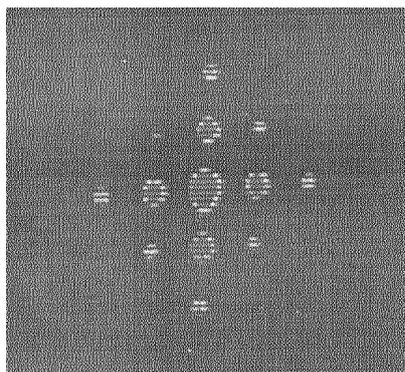
Рис.5.11 Восстановленный объект и его Фурье – спектр для различных положений фокальной перетяжки относительно активной среды (сверху вниз: расстояние от центра фокальной перетяжки до активной среды 5 мм (фокус находится перед средой), 0 мм (фокусировка осуществляется прямо на поверхность среды), 5 мм (фокус находится в среде)).

Три восстановленных изображения соответствуют различным положениям фокальной перетяжки относительно среды. Верхняя фотография

соответствует случаю, когда фокальная перетяжка находится перед средой. В этом случае эффективность преобразования волны накачки в волну первой стоксовой компоненты составляла величину порядка 5% при интенсивности накачки 2 ГВт/см^2 . При этих условиях наблюдалось достаточно низкое качество как восстановленного изображения, так и его Фурье-спектра. Следующая фотография относится к случаю, когда фокусировка осуществляется прямо на поверхность активной среды. Качество восстановленного изображения и его Фурье-спектра являлось наилучшим. При данной геометрии, варьируя интенсивность накачки, были получены в пучке ВКР как точное изображение объекта и его Фурье-спектра (интенсивность накачки 2 ГВт/см^2 , эффективность преобразования около 30%), так и изображение с инверсией контраста с Фурье – спектром (интенсивность накачки $1,85 \text{ ГВт/см}^2$). При фокусировке в среду (фокальная перетяжка находилась в среде на расстоянии 5 мм от входного окна) наблюдалось увеличение эффективности преобразования до 60%. При этом восстановление изображения отсутствовало. Если вместо амплитудных используются слабопоглощающие свет объекты, то при восстановлении по рассмотренной схеме, меняя амплитудно-фазовые соотношения между компонентами Фурье-спектра, можно существенно повысить контраст в восстановленном изображении. При использовании фазовых объектов, варьируя энергию возбуждающего лазерного излучения, легко реализовать их визуализацию.



а)



б)

Рис.5.12. Восстановленное изображение фазового объекта (а) и его Фурье-спектра (б).

На рис.5.12 приведено изображение фазового объекта - сеточки и его Фурье-спектр, восстановленные в пучке первой стоксовой компоненты ВКР в ацетоне при возбуждении пикосекундным лазерным импульсом (530 нм). Интенсивность лазерного импульса была $1,9 \text{ ГВт/см}^2$. Эффективность преобразования волны накачки в волну ВКР была 28%. В качестве активной среды использовался ацетон. Фокусировка осуществлялась на поверхность активной среды.

Рис. 5.13 иллюстрирует восстановление изображения ещё одного фазового объекта. В данном случае, в качестве объекта использовалась стеклянная пластинка, две части которой отличались по толщине на $\lambda/2$. В обычном пучке лазерного света это различие не обнаруживается (верхний снимок); в восстановленном изображении происходит визуализация фазовых изменений, которые вносит объект в характеристики светового пучка (нижний снимок). Мощность лазерного излучения была $1,5 \text{ ГВт/см}^2$. Эффективность преобразования была 32 %.

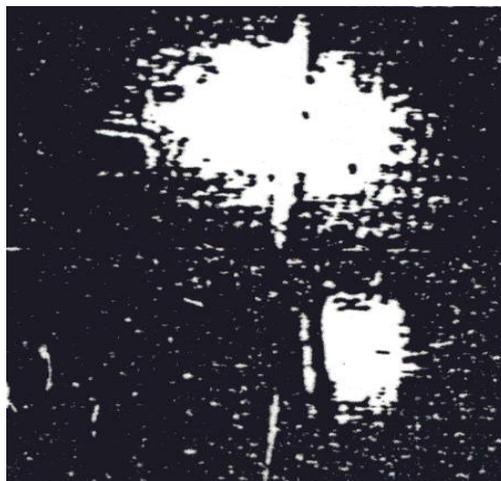


Рис.5.13 Визуализация фазового объекта при ВКР в ацетоне.

Как видно из приведенной фотографии, модуляция фазы, которая не проявляется в верхнем снимке, проявляется в модуляции амплитуды (нижний снимок).

В случае возбуждения в нелинейной среде высших компонент ВКР или возбуждения ВКР одновременно на нескольких молекулярных колебаниях, возможна реализация восстановления и обработки изображений одновременно на нескольких частотах. Амплитудно-фазовые соотношения в этом случае на каждой частоте могут быть различны, а распределение интенсивности в плоскости восстановленного изображения можно описать, принимая во внимание характер объекта и нелинейные свойства вещества. Были получены изображения фазового объекта и его Фурье-спектра, восстановленные одновременно в пучках первых стоксовых компонент ВКР в бензоле (колебания 992 см^{-1} и 3064 см^{-1}) и второй стоксовой компоненты колебания 992 см^{-1} . На рис.5.14 приведены изображения фазового объекта, восстановленные в пучках первой (в) и второй (а) стоксовых компонент колебания 992 см^{-1} и в пучке первой стоксовой компоненты колебания 3064 см^{-1} в бензоле (б).

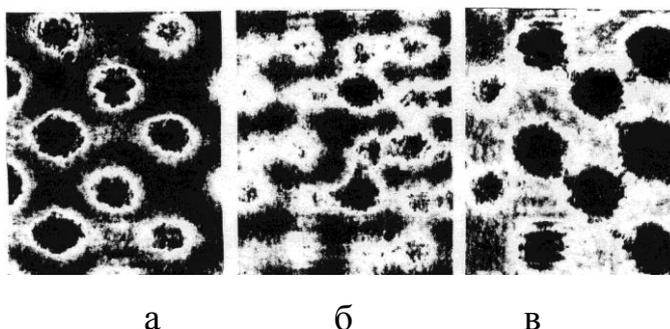


Рис.5.14. Изображения фазового объекта, восстановленные одновременно на различных частотах в бензоле.

На рис.5.15 представлены Фурье-спектры восстановленных изображений фазового объекта для тех же частот (а и б – Фурье-спектры, восстановленные в пучках первых стоксовых компонент колебаний 992 см^{-1} и 3064 см^{-1} , в – Фурье-спектр, восстановленный в пучке второй стоксовой

компоненты колебания 992 см^{-1}).

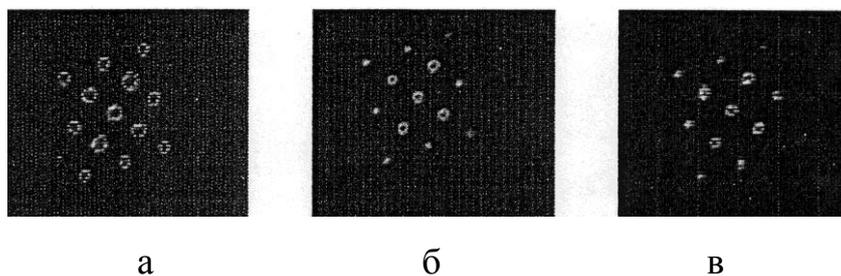


Рис.5.15. Фурье-спектры восстановленных изображений фазового объекта.

Приведенные результаты показывают, что использование данной схемы, позволяет осуществлять восстановление и обработку изображений объектов при вынужденных рассеяниях света одновременно на нескольких частотах. Метод может найти применение для исследования амплитудных и фазовых неоднородностей веществ в реальном масштабе времени.

§5.6 Энергетические характеристики ВКР в средах, используемых для восстановления и обработки оптического изображения.

Были исследованы энергетические зависимости 1-ой стоксовой компоненты ВКР для сред, которые использовались в схемах восстановления и обработки оптического изображения при различных геометрических условиях освещения активной среды.

Использовались линзы с различными фокусными расстояниями (5 - 50 см). Измерения проводились при различных положениях фокальной перетяжки в объеме активной среды (глубины фокусировки) и для различных длин используемых сред. Измерения проводились для первой стоксовой компоненты, распространяющейся в направлении назад. В качестве источника возбуждающего излучения использовались излучение лазера на рубине (длительность 20 нс) и вторая гармоника Nd-YAG лазера (25 пс).

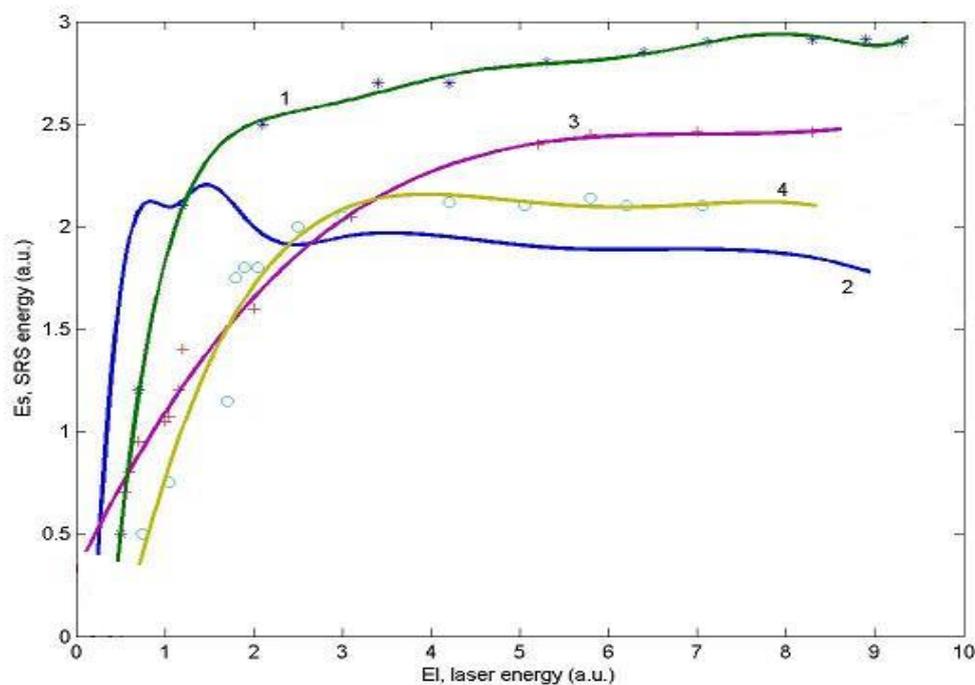


Рис. 5.16 Зависимость энергии первой стоксовой компоненты ВКР «назад» E_s от энергии излучения лазера E_l при $F=5$ см (1, 2) и 10 см (3, 4) для глубины фокусировки 50 (1), 12 (2), 42 (3) и 24 мм (4).

На рис.5.16 показана типичная зависимость энергии первой стоксовой компоненты ВКР - «назад» от энергии накачки при фокусировке в нелинейную среду на различную глубину линзами с различными фокусными расстояниями. Данные измерения проводились с использованием лазера на рубине. Изменение пространственного распределения излучения накачки в активной среде приводит к существенному изменению хода кривой зависимости энергии ВКР - «назад» от энергии возбуждающего излучения. При уменьшении расстояния между входной границей активной среды и положением фокальной перетяжки уменьшаются энергия ВКР - «назад» и значение энергии возбуждающего излучения, при котором прекращается рост энергии ВКР и начинается насыщение. Максимальная энергия ВКР «назад» достигается при использовании короткофокусной линзы и максимальном заглублении фокальной перетяжки.

На рис. 5.17 приведены зависимости коэффициента преобразования волны накачки в волну ВКР - «назад» для условий возбуждения, аналогичных показанным на рис.5.16. Возрастание энергии лазерного излучения приводит к росту коэффициента преобразования, который достигает максимума вблизи насыщения, затем спадает по гиперболическому закону. Как видно из рис.5.17, максимальное значение коэффициента преобразования достигается при малой глубине фокусировки с использованием короткофокусных линз.

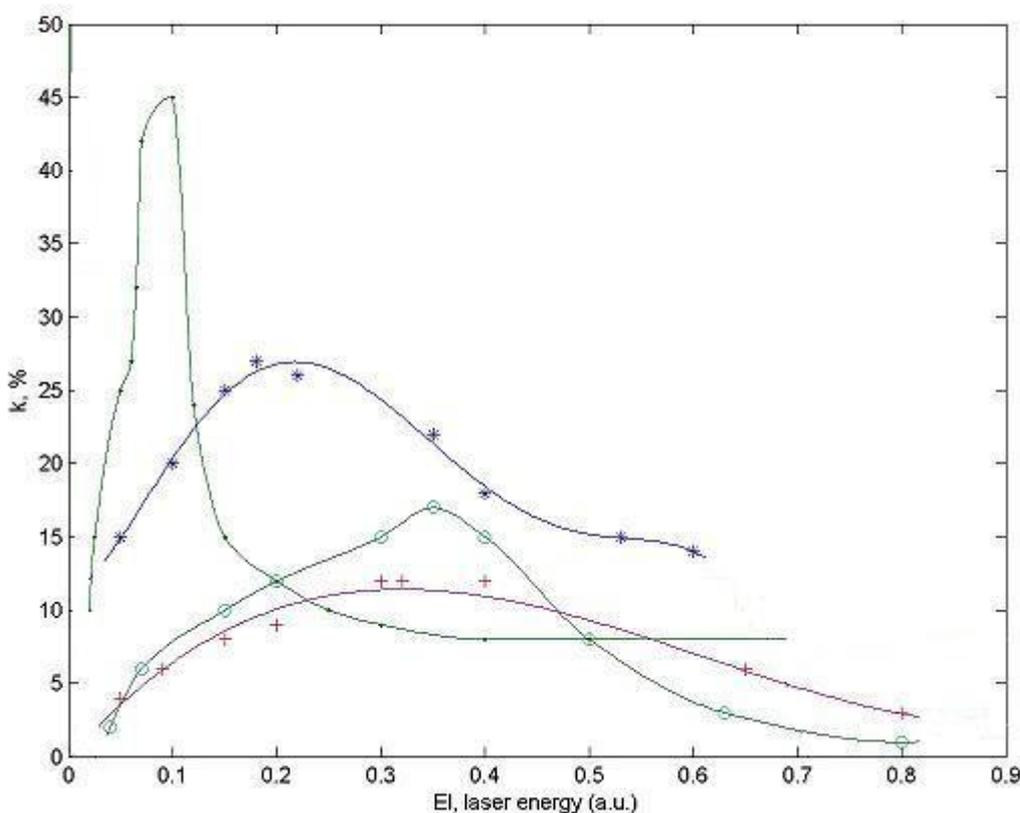


Рис.5.17. Зависимость коэффициента преобразования энергии в ВКР «назад» от энергии излучения лазера E_l при $F=5$ см (*, .) и 10 см (+, 0) для глубины фокусировки 50 (*), 12 (.), 42 (+) и 24 мм (o).

Зависимость энергии 1-ой стоксовой компоненты ВКР «назад» от энергии возбуждающего лазерного импульса для различных жидкостей, при использовании для возбуждения лазерных импульсов пикосекундной

длительности, представлена на рис.5.18.

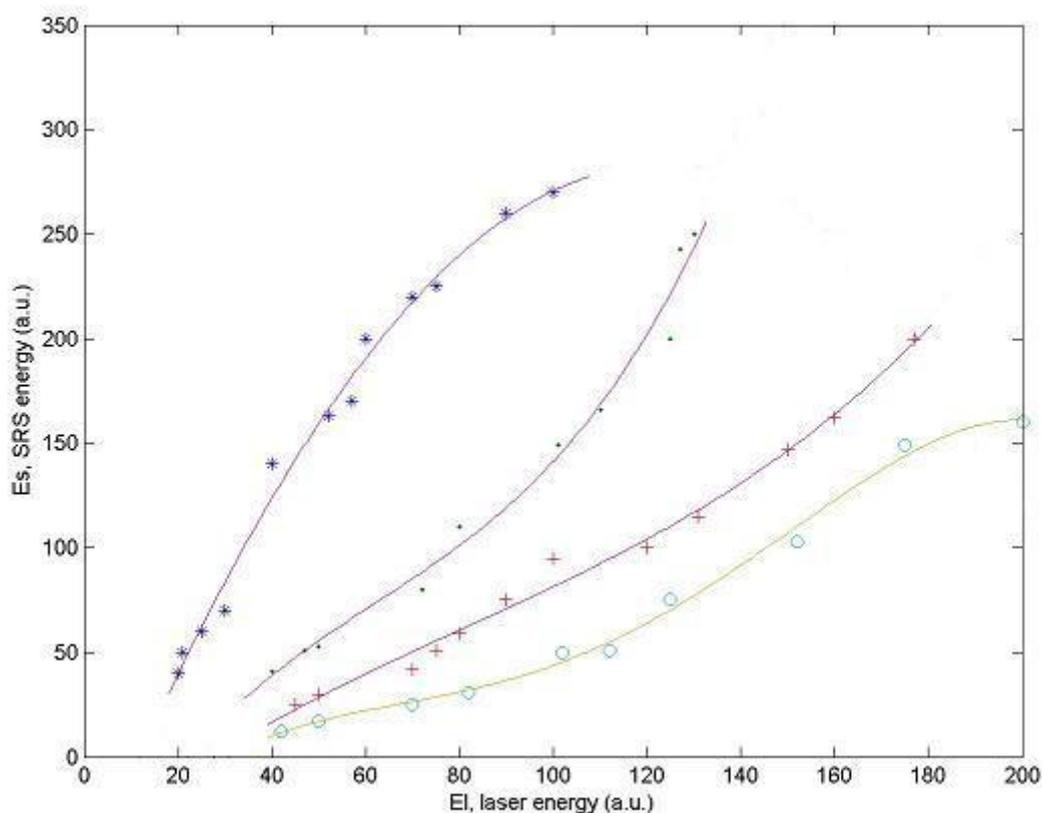


Рис.5.18. Зависимость энергии импульсов ВКР «назад» (E_s) от энергии лазерного излучения (E_l) в относительных единицах; $\ell = 5$ см, $F = 10$ см;

* – ацетон, + – бензол, . – вода, o – циклогексан.

Излучение лазера фокусировалось вблизи входной границы нелинейной среды. Использовалась линза с фокусным расстоянием $F=100$ мм. Фокусировка возбуждающего излучения осуществлялась на глубину 10 мм от входного окна кюветы. Эффективность преобразования волны накачки в волну ВКР определялась как коэффициентом усиления, так и наличием в нелинейной среде конкурирующих нелинейных процессов. При использовании для возбуждения лазерных импульсов наносекундного диапазона длительности такими процессами в исследуемых средах были в первую очередь ВРМБ и нелинейное (двухфотонное) поглощение света, а в

случае использования для возбуждения ВКР пикосекундных лазерных импульсов – вынужденное рассеяние крыла линии Рэля или (для воды) вынужденное либрационное рассеяние. Эффективность данных процессов определяется как нелинейными характеристиками используемых сред, так и геометрическими и энергетическими условиями возбуждения.

На рис. 5.19 показана зависимость энергии импульса ВКР - «назад» от положения фокальной перетяжки в объеме нелинейной среды относительно входного окна кюветы при фиксированной энергии лазерного излучения для воды и ацетона, при возбуждении пикосекундными импульсами.

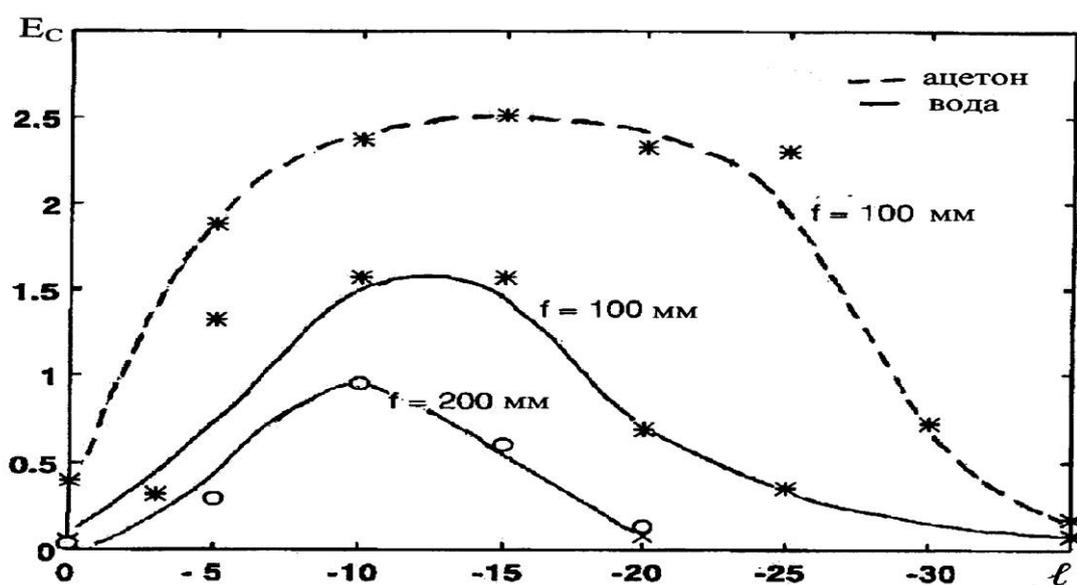


Рис.5.19. Зависимость энергии ВКР - «назад» E_C от положения фокальной перетяжки l относительно поверхности жидкости для мощности излучения лазера $P_0 = 30$ МВт (l в мм, E_C в относительных единицах).

Как видно из приведенных графиков, максимум преобразования волны накачки в волну ВКР имеет место при положении фокальной перетяжки вблизи входной границы среды, на расстоянии порядка длины фокальной перетяжки используемой линзы (в условиях эксперимента ~ 5 мм). При выбранных условиях возбуждения ВКР эта длина активной среды является

оптимальной, так как влияние конкурирующих нелинейных процессов (в первую очередь это ВРМБ и ДФП) невелико. В этих условиях (при возбуждении ВКР -“назад” в слое жидкости в несколько миллиметров) отмечались большие флуктуации энергий стоксовых импульсов с дисперсией $\sim 100\%$. Этот факт является проявлением статистических свойств затравочных спонтанных фотонов. На рис.5.20 показана зависимость мощности первой стоксовой компоненты ВКР - “назад” в воде и ацетоне от мощности исходного лазерного импульса. Рассеяние возбуждалось в среде длиной 5 мм. Использовалась кювета без входного окна. Зависимости были получены для возбуждающих импульсов различной поляризации. Как видно из приведённых графиков, сильные флуктуации наблюдаются во всём динамическом диапазоне возбуждения.

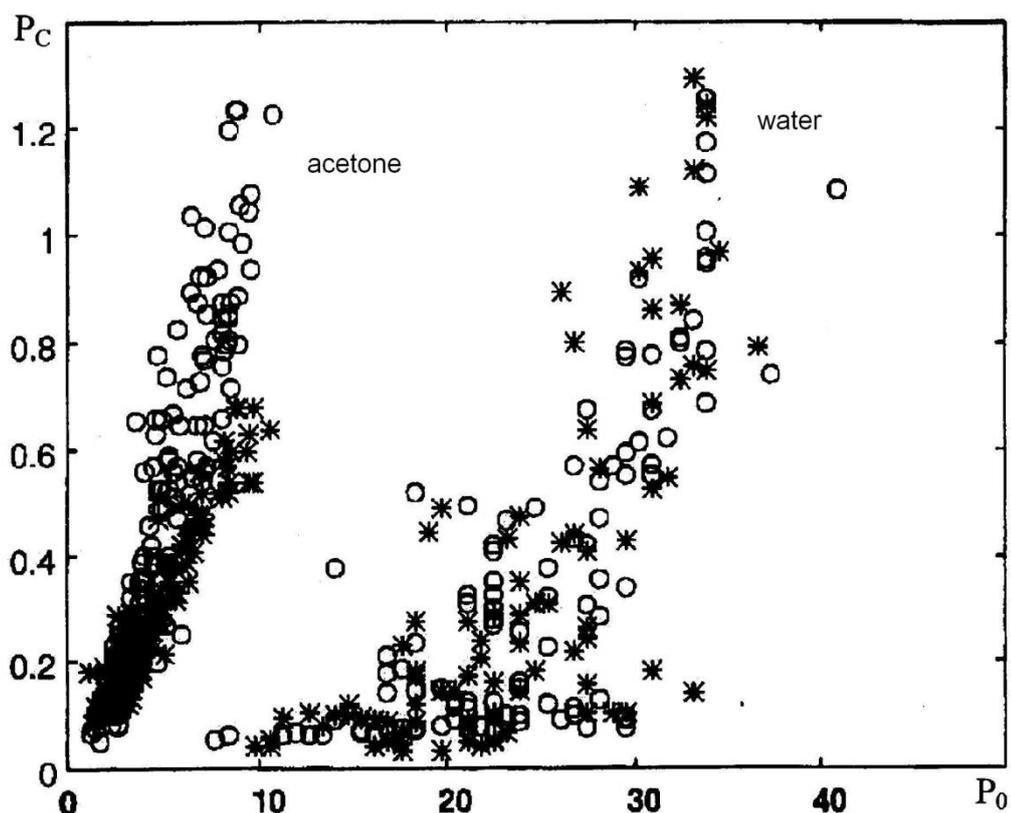


Рис. 5.20. Зависимость мощности ВКР - «назад» P_C от мощности лазерного излучения P_0 при $F = 10$ см для воды и ацетона; \circ – циркулярно поляризованный лазерный пучок, $*$ - линейно поляризованный лазерный пучок.

В условиях наносекундного возбуждения основным процессом, конкурирующим с вынужденным комбинационным рассеянием (ВКР), является вынужденное рассеяние Манделштама - Бриллюэна (ВРМБ), имеющее более низкий порог возбуждения. Для того, чтобы уменьшить влияние ВРМБ или избежать его возникновения можно понижать температуру вещества или уменьшать длительность импульсов возбуждающего излучения. В пикосекундном режиме ВРМБ не возбуждается, и основным вынужденным процессом, конкурирующим с ВКР, является либрационное рассеяние, имеющее гораздо более низкий порог генерации, но значительно меньший коэффициент усиления, чем ВКР. Рассмотрим конкуренцию этих двух видов рассеяния на примере воды. Вода является очень важным объектом исследований, т.к. ее роль в природе и в различных процессах в технике велика, что открывает возможности для самых разнообразных приложений.

Спектроскопия водных составов различной природы (чистая вода, тяжелая вода, морская вода, различного рода водные растворы), в том числе спектроскопия комбинационного рассеяния света [119-121], позволяют получить важную информацию о составе, наличии примесей и их концентрации. Основные характеристики (спектральные, эффективное сечение) спонтанного КР света в объеме чистой воды были представлены в работах [122-125]. Спектр спонтанного комбинационного рассеяния света охватывает широкий интервал частот $3000 - 3700 \text{ см}^{-1}$. Абсолютная величина эффективного сечения оценивается как $8 \cdot 10^{-30} \text{ см}^2/\text{ср}$ на молекулу. Спектр КР в воде достаточно сложный, он состоит из составной колебательной моды, включающей собственные колебания воды, связанные с межмолекулярным взаимодействием, резонансы между главными колебаниями и их обертонами и колебаниями на комбинационных частотах [123].

Изучение КР в воде может дать важную информацию о кислород-водородных связях (ОН-связях), колебательные частоты которых находятся в диапазоне $3100 - 3500 \text{ см}^{-1}$, в то время как колебательные частоты

свободного образования ОН составляют 3700 см^{-1} . Исследования ОН-связей в воде на границе раздела (например, вода-пар или вода-воздух) особенно важны для биологии. Характерная температурная зависимость спектра КР воды была исследована во многих работах, в частности, в [126]. В работе [127] было подробно описано влияние примесей и изотропного композита на колебательный спектр воды при ультрафиолетовом лазерном излучении. Вынужденный аналог КР, ВКР в воде и водных растворах активно исследуется с начала 1960-х годов, когда впервые наблюдался спектр ВКР в воде [128]. Спектр ВКР имел широкие спектральные линии: около 300 см^{-1} , с двумя пиками 3260 и 3420 см^{-1} . Связь между характеристиками спектра ВКР и структурой воды привлекает много внимания и обсуждается во многих работах [129, 130]. Четырехфотонное параметрическое рассеяние света в воде экспериментально исследовалось в [131]. Также было зарегистрировано вынужденное гиперкомбинационное рассеяние (ВГКР) света в воде на частоте 3400 см^{-1} [132].

«ВКР–назад» (ВКРН) на ОН-колебаниях в воде и одновременно либрационное ВКР (ЛВКР) исследовались экспериментально [101]. В проведенном эксперименте наблюдалась конкуренция между процессами либрационного ВКР (ЛВКР) и ВКРН. В случае наносекундного возбуждения, ВРМБ является основным процессом, который имеет большое влияние на ВКР (порог ВРМБ в воде много ниже, чем порог ВКР). При пикосекундном возбуждении, ЛВКР наблюдается при сравнительно невысокой интенсивности накачки в стоксовой области со смещением частоты относительно возбуждающего излучения около 500 см^{-1} . По мере роста интенсивности возбуждающего излучения достигается порог ВКР на ОН-связях. При этом интенсивность линии высокочастотного ВКР быстро возрастает, в то время как интенсивность ЛВКР падает. Когда эффективность преобразования ВКР достигает 18%, ЛВКР исчезает. Причиной такому поведению служит большее значение комбинационного усиления на ОН-моде по сравнению с усилением ВКР на либрационном колебании.

Экспериментально свойства ЛВКР и ВКР, возбуждаемых в воде второй гармоникой NdYag лазера (длительность импульса 40 пс), исследовались с использованием схемы, приведенной на Рис.5.21. Фокусировка осуществлялась в открытую кювету линзами с фокусными расстояниями 5, 10, 20, 25 сантиметров. В процессе измерений менялась геометрия освещения объема активной среды, а именно, положение фокальной перетяжки относительно кюветы, с целью определения условий получения максимальной эффективности преобразования волны накачки в волну ВР.

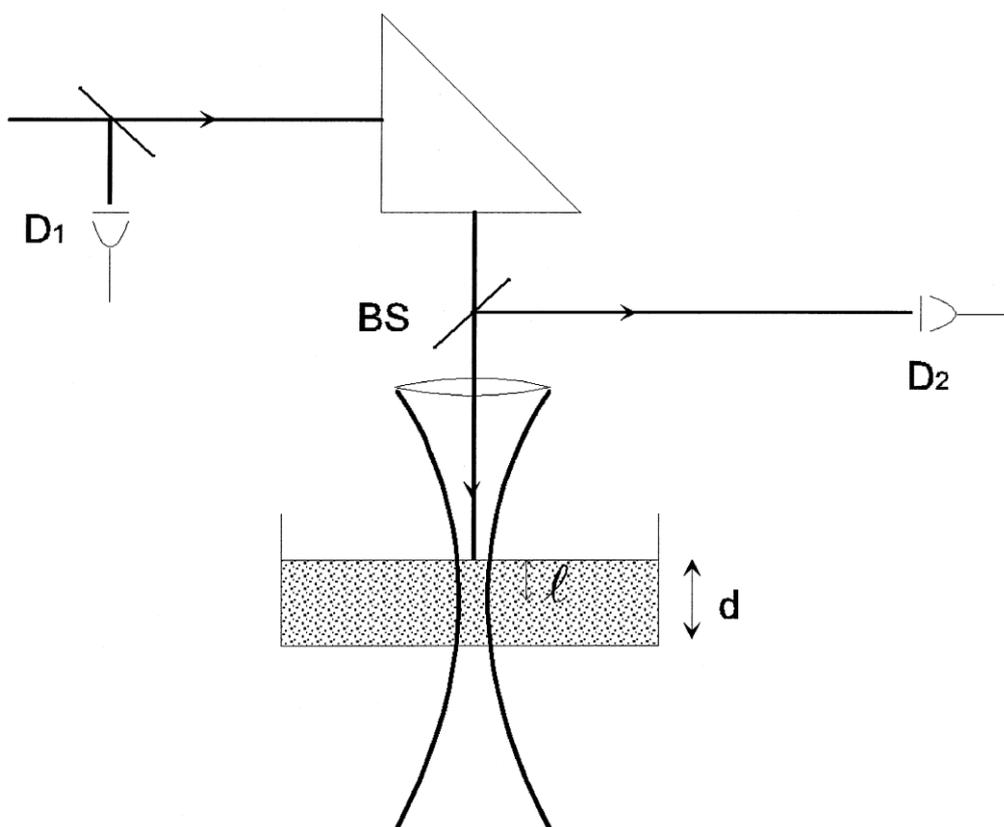


Рис 5.21. Экспериментальная схема для исследования ЛВКР и ВКР, возбуждаемых в воде, распространяющихся в направлении «назад». D_1 и D_2 системы регистрации энергетических и спектральных характеристик, соответственно, лазерного и рассеянного в направлении назад излучений.

На рис.5.22 приведены результаты экспериментальных исследований динамики возникновения ВКР "назад" одновременно с вынужденным

либрационным рассеянием, также распространяющимся в направлении назад. Фокусировка лазерного излучения осуществлялась линзой с фокусным расстоянием 10 см, длина активной среды была 1 см.

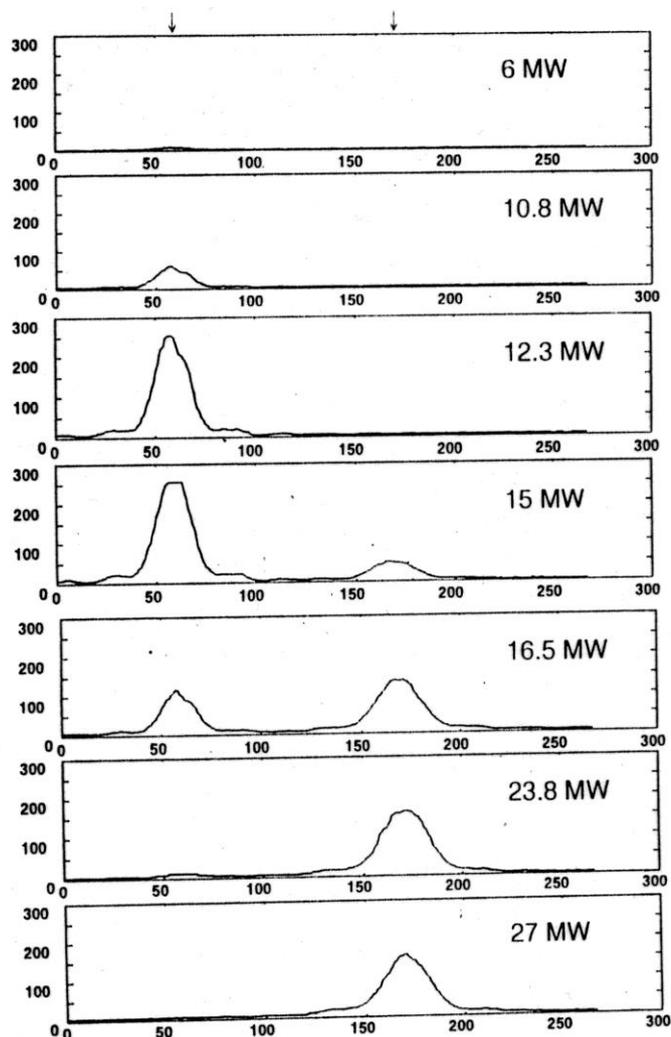


Рис.5.22. Спектральная зависимость энергии рассеянного света (отн.ед.) для различных интенсивностей возбуждающего лазерного излучения.

Вынужденное либрационное рассеяние появляется при меньших интенсивностях накачки, испытывая нелинейный рост с увеличением лазерной интенсивности, после появления ВКР (имеющего более высокий порог возбуждения) ЛВКР существенно уменьшается. Экспериментально установлено, что порог ВКР в два раза больше порога возникновения вынужденного либрационного рассеяния, а их интенсивности становятся

равны при превышении интенсивности накачки в 1,2 раза. Оценки значения коэффициента усиления либрационного рассеяния показали, что он в 3,6 раза меньше коэффициента усиления ВКР. Эти оценки находятся в хорошем соответствии с имеющимися экспериментальными результатами других авторов, относящимися к случаю ЛВКР, распространяющегося в направлении попутно с накачкой.

Сформулируем основные результаты работ, изложенных в данной главе.

1) Предложены и экспериментально реализованы схемы обработки оптического изображения с использованием нелинейно – оптической фильтрации в области его Фурье-спектра.

2) С использованием предложенных схем получены: визуализация фазовых и слабопоглощающих свет объектов, инверсия контраста в изображении амплитудных объектов. Определены основные механизмы, обеспечивающие амплитудно-фазовую фильтрацию в области Фурье-спектра.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Основные научные результаты, полученные автором в процессе выполнения диссертационной работы, являются новыми и состоят в следующем:

1) Впервые было реализовано ВКР в трехмерном фотонном кристалле (синтетической опаловой матрице, инфильтрованной нитробензолом) с коэффициентом преобразования по энергии 6%. Показано, что при соответствующем выборе параметров фотонного кристалла, а именно, в случае попадания частоты возбуждающего лазерного излучения в окрестность высокочастотного края ФЗЗ синтетического опала, а частоты первой стоксовой компоненты – в окрестность низкочастотного края, возможно существенное понижение порога ВКР. Экспериментально было реализовано 20 кратное понижение порога ВКР в синтетических опаловых матрицах, инфильтрованных комбинационно - активными, жидкостями по сравнению с чистыми молекулярными жидкостями.

2) В работе впервые было получено вынужденное рассеяние света нового типа в твердотельных наноразмерных структурах. Данное вынужденное рассеяние света является результатом взаимодействия лазерного излучения с собственными акустическими колебаниями

наноразмерных структурных единиц, составляющих исследуемые образцы. Рассеяние возбуждается как в прямом, так и в обратном, по отношению к накачке, направлении. Смещение частоты рассеяния относительно частоты накачки одинаково для прямого и обратного направлений рассеяния. Это смещение частоты определяется морфологией образцов. Понижение температуры образцов до температуры жидкого азота повышало эффективность преобразования волны накачки в рассеянную волну и понижало порог возникновения вынужденного рассеяния. Высокое значение эффективности преобразования волны накачки, а также возможность перестройки частотного смещения рассеянной волны относительно частоты накачки открывает перспективу использования данного процесса в схемах для генерации сигналов в гигагерцовом диапазоне в качестве бигармонической накачки.

3) Обнаружен новый тип вынужденного рассеяния света - вынужденное низкочастотное комбинационное рассеяние света в суспензиях наночастиц различной природы, имеющих размер от 7 до 160 нм. Вынужденное низкочастотное комбинационное рассеяние света обусловлено взаимодействием лазерного излучения с собственными акустическими колебаниями элементов структуры. Частоты компонент рассеянного света соответствуют собственным колебаниям элементов структуры, лежащим в гигагерцовом и терагерцовом диапазонах. Изменяя состав образцов и характерный размер элементов структуры, можно целенаправленно менять частотный сдвиг между накачкой и рассеянным излучением. Таким образом, ВНКР представляет собой источник бигармонической накачки для решения целого ряда практических задач.

4) Предложены и экспериментально реализованы схемы обработки оптического изображения с использованием нелинейно – оптической фильтрации в области его Фурье-спектра. С использованием предложенных схем получены: визуализация фазовых и слабопоглощающих свет объектов, инверсия контраста в изображении амплитудных объектов. Определены

основные механизмы, обеспечивающие амплитудно-фазовую фильтрацию в области Фурье-спектра объекта.

Благодарности

Выражаю глубокую благодарность научному консультанту профессору Горелику Владимиру Семёновичу, руководителю Отделения оптики профессору Масалову Анатолию Викторовичу, ведущему научному сотруднику Кудрявцевой Анне Дмитриевне, а также всему коллективу Отделения оптики.

ЛИТЕРАТУРА

- [1]. Ахманов С.А., Хохлов Р.В. Проблемы нелинейной оптики.// Москва.: ВИНТИ, -1964.- 295 с.
- [2]. Шен И.Р. Принципы нелинейной оптики // Москва.: Наука,-1989.-557с.
- [3]. M. Fleischmann, P. J. Hendra, and A. J. McQuillan, "Raman spectra of pyridine adsorbed at silver electrode // Chem. Phys. Lett. . –1974. –26(2), pp.163–166
- [4] Быков В.П., Спонтанное излучение в периодической структуре // ЖЭТФ. –1972. –т.62. –вып.2. с.505-513
- [5] E. Yablonovitch, Inhibited spontaneous emission in solid-state physics and electronics // Phys. Rev. Lett. –1987. –Vol.58. –pp.2059-2062
- [6] S. John, Strong Localization of Photons in Certain Disordered Dielectric Superlattices // Phys. Rev. Lett. –1987. Vol.58. –pp.2486-2489
- [7] E. Yablonovitch, T.J. Gmitter, K.M. Leung. Photonic band structure: The face-centered-cubic case employing nonspherical atoms // Phys. Rev. Lett. –1991. – Vol.67. –p.2295-2298
- [8] Sakoda K., Optical Properties of Photonic Crystals // –2nd ed (Berlin: Springer). –2005. –223 p.
- [9] Soukoulis C. M., Photonic Band Gap Materials // Dordrecht: Kluwer–Academic Publishers. –ed. 1996. –271 p.

- [10] Busch K., Lokes S., Wehrspohn, R.B., Foll, H., Photonic Crystals, Advanced in Design, Fabrication and Characterization // New York: Wiley/VCH, Weinheim. –ed.2004
- [11] Joannopoulos J.D., Meade R.D. and Winn J.N., Photonic Crystals // Princeton, NJ: Princeton University Press. –1995
- [12] Bowden C.M., Dowling J.P. and Everitt N.O. (ed.), Development and applications of materials exhibiting Photonic Band Gaps // J. Opt. Soc. Am. B – 1993. –10. –pp.279-413
- [13] Kurizki G. and Haus J.W., Photonic band gap structures. // J. Mod. Opt. – 1994. –Vol.41. –pp.171-404
- [14] Bertolotti M., Bowden C. M. and Sibilica C., Nanoscale Linear and Nonlinear Optics // New York: AIP conference proceedings. –ed.2001. –Vol.560
- [15] Florescu L., Busch K. and John S., Spatially Inhomogeneous Gain Modification in Photonic Crystals // J. Opt. Soc. Am. B. –2002. –Vol.19. –p.2215
- [16] Борн М., Вольф Э., Основы оптики // 2-е изд.. –М.: Наука. –1973. – 720 с.: ил.
- [17] Burstein E., Weisbuch C., Confined Electrons and Photons // New Physics and Applications. –1995. –Plenum Press, N.Y.
- [18] Joannopoulos J.D., Villeneuve P.R., Fan S.. Photonic crystals: putting a new twist on light // Nature. –1997. –Vol.386. –pp.143-149
- [19] Lupu A., Carencu A., Win P., Sik H., Boulet, P., Carre, M., Slempek, S. Spectral response apodization of Bragg-like optical filters with anovel grating chirp design // OFC/IOOC apos. –1999. –Vol.2. –pp.271-273
- [20] Bertolotti M., Wave interactions in photonic band structures: an overview // J. Opt. A: Pure Appl. Opt. – 2006. –Vol.8. –pp.9–32
- [21] Loudon R., The Quantum Theory of Light // Oxford: Oxford University Press, –2000. –448 p. –ISBN 0-19-851155-8.
- [22] Gabrielse G. and Dehmelt H., Observation of inhibited spontaneous emission // Phys. Rev. Lett. –1985. –Vol.55. –pp.67

- [23] Busch K. and John S., Photonic band gap formation in certain selforganizing systems // *Phys. Rev. E.* –1998. –Vol.58. –pp.3896–3908
- [24] Lodahl P., von Diehl A.F., Nikolaev I.S., Irman A., Overgaag K., Vanmalkelberg D. and Vos W., Controlling the dynamics of spontaneous emission from quantum dots by photonic crystals // *Nature.* –2004. –Vol.430. –pp.654-657
- [25] Nikolaev I. S., Lodahl P. and Vos W. L., Quantitative analysis of directional spontaneous emission spectra from light sources in photonic crystals // *Phys. Rev. A.* –2005. –Vol.71. –p.53813
- [26] Centini M., D’Aguanno G., Scalora M., Bloemer M.J., Bowden C.M., Sibilia C., Mattiucci N. and Bertolotti M., Dynamics of counterpropagating pulses in photonic crystals: Enhancement and suppression of stimulated emission processes // *Phys. Rev. E.* –2003. –Vol.67. –p.36617
- [27] De Martini, F., et al., Spontaneous and stimulated emission in the thresholdless microlaser // *J. Opt. Soc. Am. B.* –1993. –Vol.10. –p.360
- [28] Gourley, P. L., Wendt, J. R., Vawter, G. A., Brennan, T. M. and Hammons, B. E. Optical Properties of Two-Dimensional Photonic Lattices Fabricated as Honeycomb Nanostructures in Compound Semiconductures // *Appl. Phys. Lett.* –1994. –Vol.64. –pp.687-689
- [29] Brown E.R., Parker C.D. and Yablonovitch E.J., Radiation properties of a planar antenna on a photonic-crystal substrate // *J. Opt. Soc. Am. B.* –1993. –Vol.10. –p.404
- [30] Kosaka H., Kawashima T., Tomita A. et al. Superprism phenomena in photonic crystals: Toward microscale lightwave circuits // *J. Lightwave Technology.* –1999. –Vol.17. –pp.2032-2038
- [31] Kosaka H., Kawashima T., Tomita A. et al. Self-collimating phenomena in photonic crystals // *Appl. Phys. Lett.* –1999. –Vol.74. –pp.1212-1214
- [32] K.Busch, N.Vats, S.John, and B.C.Sanders, Radiating dipoles in photonic crystals // *Phys. Rev. E.* –2000. –Vol.62. –pp.4251-4260

- [33] Londergan J.T., Carini J.P., Murdock D.P., Binding and Scattering in Two-Dimensional Systems: Application to Quantum Wires, Waveguides and Photonic Crystals // Lect. Note in Phys., Springer-Verlag, New York. –1999. –Vol. 60
- [34] Astratov V.N., Bogomolov V.N., Kaplyanskii A.A., Prokofiev A.V., Samoilovich L.A., Samoilovich S.M., Vlasov Yu.A., Optical spectroscopy of opal matrices with CdS embedded in its pores -quantum confinement and photonic band gap effects // Nuovo Cimento. –1995. –Vol.D17. –pp.1349-1354
- [35] Богомолов В.Н., Павлова Т.М. Трехмерные кластерные решетки // ФТП. –1995. –**29**. –с.826
- [36] Балакирев В.Г., Богомолов В.Н., Журавлёв В.В., Кумзеров Ю.А., Петрановский В.П., Романов С.Г., Самойлович Л.А., Трехмерные сверхрешетки в матрицах опалов // Кристаллография. –1993. –Vol.38. –Issue 3. –pp.111-120
- [37] Wijnhoven J.E.G.J., W.L. Vos, Preparation of photonic crystals made of air spheres in titania // Science. –1998. –Vol.28. –pp.802-804
- [38] Горелик В.С., Оптика глобулярных фотонных кристаллов //–М.:ФИАН. –2006. – 67 с. : ил.
- [39] Kuok M.H., Lim H.S., Ng S.C., Liu N.N., and Wang Z.K., Brillouine Study of the Quantization of Acoustic Modes in Nanospheres // Phys. Rev. Lett. –2003. – Vol.90. –p.255502
- [40] Tanaka A., Onari S., and Arai T., Low-frequency Raman scattering from CdS microcrystals embedded in a germanium dioxide glass matrix // Phys. Rev. B. –1993. –Vol.47. –p.1237
- [41] Fujii M., Kanzaeva Y., Hayashi S., and Yamamoto K., Raman scattering from acoustic phonons confined in Si nanocrystals // Phys. Rev. B. –1996. –Vol.54. – p.R8373
- [42] Duval E., Boukenter A., and Champagnon B., Vibration Eigenmodes and Size of Microcrystallites in Glass: Observation by Very-Low- Frequency Raman Scattering // Phys. Rev. Lett. –1986. –Vol.56. –p.2052

- [43] Ikezawa M., Okuno T., Masumoto Y., and Lipovskii A.A., Complementary detection of confined acoustic phonons in quantum dots by coherent phonon measurement and Raman scattering // *Phys. Rev. B.* –2000. –Vol.64. –pp.201315
- [44] Verna P., Cordts W., Irmer G., and Monecke J.. Acoustic vibrations of semiconductor nanocrystals in doped glasses // *Phys. Rev. B.* –1999. –Vol.60. – p.5778
- [45] Saviot L., Champagnon B., Duval E., Kudriavtsev I.A., and Ekimov A.I.. Size dependence of acoustic and optical vibrational modes of CdSe nanocrystals in glasses // *J. Non-Cryst. Solids.* –1996. –Vol.197. –p.238
- [46] Denisov E.P., Karpov S.V., Kolobkova E.V., Novikov B.V., Suslikov A.I., Fedorov D.L. and Yastrebova M.A.. Specific features in low-frequency vibrations of nanocrystals in fluorophosphate glassy matrices // *Phys. Solid. State.* –1999. – Vol.41. –p.1194
- [47] Roy A., and Sood A.K.. Growth of CdS_xSe_{1-x} nanoparticles in glass matrix by isochronal thermal annealing: Confined acoustic phonons and optical absorption studies // *Solid State Commun.* –1995. –Vol.97. –p.97
- [48] Deiguez A., Romano-Rodriguez A., Vila A., and Morante J.R.. The complete Raman spectrum of nanometric SnO₂ particles // *J. Appl. Phys.* –2000. –Vol.90. – p.1550
- [49] Nandakumar P., Vijayan C., Rajalakshmi M., Arora A.K., and Y.V.G.S. Murti, Raman spectra of CdS nanocrystals in Na fion: longitudinal optical and confined acoustic phonon modes // –*Physica E (Amsterdam).* –2001. –Vol.11. – Issue 4. –pp.377-383
- [50]Самойлович М.И., Белянин А.Ф., Талис А.Л. Наноматериалы. I. Основы теории симметрии наноструктурных состояний. II. Тонкие пленки алмазоподобных материалов как наноструктурированные системы. М.: Техномаш. 2006. 400 с.
- [51]Зельдович Б.Я., Пилипецкий Н.Ф., Шкунов В.В. Обращение волнового фронта // М., Наука.-1985.-252 с.

- [52] Economou E.N., Penciu R.S. Lect. Notes Phys., **630**, 175 (2003).
- [53] Maurizio Montagna and Roberto Dusi, Raman scattering from small spherical particles // Phys. Rev. B **52**, 10080 1995
- [54] M. Mattarelli, M. Montagna, F. Rossi, A. Chiasera, and M. Ferrari, Mechanism of low-frequency Raman scattering from the acoustic vibrations of dielectric nanoparticles // Phys. Rev. B **74**, 153412 , 2006
- [55] Mile Ivanda, Krešimir Furić, Svetozar Musić et al Low wavenumber Raman scattering of nanoparticles and nanocomposite materials //Journal of Raman Spectroscopy, **38**, 2007 pp 647-659
- [56] Быковский Ю.А., Манькин Э.А., Нахутин И.Е., Рубежный Ю.Г. Комбинационное рассеяние света на колебаниях формы жидкой сферической частицы // , Квантовая электроника, **2**, 1803 (1975).
- [57] Н.В. Чернега, А.Д. Кудрявцева, А.И. Соколовская, «Амплитудно-фазовый экран в средах с двухфотонным поглощением света»// в сб. «Применение методов голографии в науке и технике» (Сборник трудов Восемнадцатой Всесоюзной школы по физическим основам голографии), Ленинград, С. 48-521, 1987.
- [58] Ng. Phu Xuan, J.L. Ferrier, J. Gazengel, G. Rivoire, G.L. Brekhovskikh, A.D.Kudryavtseva, A.I. Sokolovskaya, and N.V.Tcherniega, “Changes in the structures of light beams induced by nonlinear optical phenomena: application to phase contrast and image processing”, Optics Communications, V. 68, P. 244-249, 1988.
- [59] Ng. Phu Xuan, J.L. Ferrier, J. Gazengel, G. Rivoire, G.L. Brekhovskikh, A.D. Kudryavtseva, A.I. Sokolovskaya, and N.V.Tcherniega, “Use of nonlinearities for optical imaging: visualization of phase objects and improvement in the contrast of amplitude objects”, “Scattering and Diffraction, H.A.Ferwerda, Editor, SPIE Proc. V.1029, P. 137-142, 1989.
- [60] Н.В. Чернега, Г.Л. Бреховских, А.Д. Кудрявцева, Б.П. Кирсанов, А.И. Соколовская, «Преобразование амплитудно-фазовых характеристик

сфокусированного лазерного излучения с помощью нелинейно-оптических явлений в ацетоне и жидком азоте», Квантовая электроника, Т. 16, № 12, С.2530-2537, 1989.

[61] A.I.Sokolovskaya, G.L.Brekhovskikh, A.D.Kudryavtseva, N.V.Tcherniega, "Image processing in real-time on the basis of nonlinear phenomena in condensed materials", SPIE Proc., V. 1295, P. 149-158, 1990.

[62] Н.В. Чернега, А.Д. Кудрявцева, А.И. Соколовская, «Преобразование временных характеристик ВКР в бензоле», КСФ, № 12, С. 17-18, 1990.

[63] A.D. Kudryavtseva, N.V. Tcherniega, G.L. Brekhovskikh, A.I. Sokolovskaya, "Spatial frequency filtering on the basis of the nonlinear optics phenomena", SPIE Proc., D.J. Svetkoff, Editor, V. 1385, P. 190-199, 1991.

[64] Н.В. Чернега, А.Д. Кудрявцева, А.И. Соколовская, «Задержка импульсов ВКР света при сфокусированной накачке», КСФ, № 1, С. 32-35, 1993.

[65] N.V.Tcherniega, A.D. Kudryavtseva, A.I. Sokolovskaya, N.P. Xuan, G. Rivoire, "Spatial quantization of SRS energy", International Quantum Electronic Conference (IQEC'94), Anaheim, California, 10-12 May 1994, Technical Digest, Postconference Edition, V. 9, P. 93, 1994.

[66] G.L.Brekhovskikh, A.D.Kudryavtseva, A.I.Sokolovskaya, N.V.Tcherniega, G.Rivoire, R.Chevalier, "Some properties of stimulated Raman scattering excited by picosecond light pulses", in the book : "Recent Developments in Quantum Optics", Plenum Press, New York, P. 511-513, 1993.

[67] N.V.Tcherniega, A.D.Kudryavtseva, A.I.Sokolovskaya, S.Er-rhaimini, N.P.Xuan, G.Rivoire, "Controllable transparencies and object image reconstruction by its Fourier-spectrum at the stimulated scatterings of light", OSA Proceedings on Advances in Optical Imaging and Photon migration, V. 21, edited by R.R.Alfano, P. 202-206, 1994.

[68] А.Д. Кудрявцева, А.И. Соколовская, Н.В. Чернега, Ж. Ривуар, Н.Ф.Суан, С.Эр-раймейни, «Восстановление при вынужденных рассеяниях света изображений транспарантов и фазовых объектов по их Фурье-спектру», КСФ, № 1-2, С. 10-14, 1994.

- [69] Н.В. Чернега, А.И. Соколовская, А.Д. Кудрявцева, “Статистика флуктуаций энергии стоксовых импульсов при ВКР “назад”, КСФ, № 11-12, С. 18-21, 1994.
- [70] A.D. Kudryavtseva, A.I. Sokolovskaya, N.V. Tcherniega, “Transformation of the amplitude and phase of the complex light fields by the nonlinear optics methods”, Abstracts of the OSA Annual Meeting, Dallas, Texas, USA, October 2-7, P.140, 1994.
- [71] A.D. Kudryavtseva, A.I. Sokolovskaya, N.V. Tcherniega, "Image reconstruction at stimulated scatterings by Fourier-spectrum", Laser Physics, V. 5, No 1, P. 142-146, 1995.
- [72] A.D.Kudryavtseva, A.I.Sokolovskaya, N.V.Tcherniega, S.Er-Rhaimini, G.Rivoire, N.P. Xuan, “Object Image Reconstruction by its Fourier-spectrum at the Stimulated Scatterings of Light,” XV International Conference on Coherent and Nonlinear Optics, Technical Digest, V. 1, P. 403-404, 1995.
- [73] S. Er Rhaimini, F. Vaudelle, N.P. Xuan, G. Rivoire, N. Tcherniega, A .Kudryavtseva, A. Sokolovskaya, “Study of the phase relationship between laser wave and stimulated Raman scattering wave through nonlinear imaging,” XV International Conference on Coherent and Nonlinear Optics, Technical Digest, V. 1, P. 405-406, 1995.
- [74] T.S. Gordeeva, A.D. Kudryavtseva, A.I. Sokolovskaya, N.V. Tcherniega, “Energetic characteristics of the two-photon excited luminescence in organic polycrystals,” XV International Conference on Coherent and Nonlinear Optics, Technical Digest, V. 2, P. 63-64, 1995.
- [75] T.S. Gordeeva, A.D. Kudryavtseva, A.I. Sokolovskaya, N.V. Tcherniega, “Object image reconstruction by its Fourier spectrum at SBS in the liquid surface layer,” CLEO 95, Conference on Lasers and Electro-Optics, Technical Digest, Post Conference Edition, P. 85, 1995.
- [76] А.Д.Кудрявцева, А.И.Соколовская, Н.В.Чернега, “Восстановление изображения объекта по Фурье-спектру при вынужденных рассеяниях света”, Труды конференции Лазерная физика-95, 17-22 октября 1995 г.,

Национальная Академия Наук Армении, Институт Физических исследований, Аштарак, Армения, С.65-68, 1995.

[77] T.S. Gordeeva, A.D. Kudryavtseva, A.I. Sokolovskaya, N.V. Tcherniega, "Energetic characteristics of the two-photon excited luminescence in organic polycrystals," in ICONO 95: Nonlinear Spectroscopy and Ultrafast Phenomena, V.Shuvalov, A.Zheltikov, Editors, Proc.SPIE, V. 2797, p.258-264, 1996.

[78] S. Er Rhaimini, F. Vaudelle, N.P. Xuan, G. Rivoire, N. Tcherniega, A. Kudryavtseva, A. Sokolovskaya, "Study of the phase relationship between laser wave and stimulated Raman scattering wave through nonlinear imaging," in ICONO'95 Nonlinear Optical Interaction and wave Dynamics, N.Koroteev, V.Makarov, K.Drabovich, Editors, Proc.SPIE, V. 2800, P. 286-294, 1996.

[79] A.D.Kudryavtseva, A.I.Sokolovskaya, N.V.Tcherniega. " Frequency filtering in a spatial spectrum of an object on the base of nonlinear optics phenomena: method of real-time image processing ", Journal of Russian Laser Research., V.17, № 3, P.247-258, 1996.

[80] В.С.Горелик, А.Д.Кудрявцева, А.И.Соколовская, Н.В.Чернега, "Энергетические характеристики двухфотонно-возбуждаемой люминесценции в органических средах", Оптика и спектроскопия, Т. 81, № 3, С. 409-413, 1996.

[81] А.Д.Кудрявцева, А.И.Соколовская, Л.И.Тихонов, Н.В.Чернега, М.Ю.Виноградов, «Визуализация фазовых неоднородностей на основе явлений нелинейной оптики», Тезисы докладов Четвертой научно-технической конференции «Оптические методы исследования потоков», Москва, 25-27 июня 1997 г., С. 64-65, 1997.

[82] А.Д.Кудрявцева, А.И.Соколовская, Н.В.Чернега, «Восстановление амплитудно-фазовой информации при вынужденных рассеяниях света», Оптический журнал, Т. 64, № 4, С. 95-100, 1997.

[83] А.Д.Кудрявцева, А.И.Соколовская, Л.И.Тихонов, Н.В.Чернега, "Преобразование амплитудно-фазовых характеристик световых полей при вынужденных рассеяниях света", в Трудах Международной конференции

"Комбинационное рассеяние-70 лет исследований," Москва, РИИС ФИАН, С. 285-190, 1998.

[84] В.С.Горелик, А.Д.Кудрявцева, А.И.Соколовская, Л.И.Тихонов, Н.В.Чернега, "Энергетические характеристики двухфотонно-возбуждаемой люминесценции в растворах ароматических соединений", в Трудах Международной конференции "Комбинационное рассеяние-70 лет исследований", Москва, РИИС ФИАН, С. 335-339, 1998.

[85] A.D.Kudryavtseva, A.I.Sokolovskaya, N.V.Tcherniega, L.I.Tihonov, "Stimulated Scattering of light in thin layers of active materials, neighbour to the surface", XVI International Conference on Coherent and Nonlinear Optics (ICONO'98), Moscow, Russia, June 29 – July 03, 1998, Technical Digest, P.76, 1998.

[86] A.D.Kudryavtseva, A.I.Sokolovskaya, N.V.Tcherniega, L.I.Tihonov, "Stimulated Scattering of light in thin layers of active materials, neighbour to the surface", in: Nonlinear Optical Phenomena and Coherent Optics in Information Technologies, S.S.Chesnokov, V.P.Kandidov, N.I.Koroteev, Editors, Proceedings of SPIE, V. 3733, P.43-49, 1999.

[87] Anna D. Kudryavtseva, Albina I. Sokolovskaya, Nikolai V. Tcherniega, "Control of the light beams temporal characteristics by stimulated Raman scattering", Abstracts of the 1888 OSA Annual Meeting and Exhibit "Optics in High-Tech Industries", USA, P. 83, 1999.

[88] A.D. Kudryavtseva., A.I.Sokolovskaya, N.V.Tcherniega. "Nonlinear optical systems for image processing and complex fields monitoring", Advanced Materials and Optical Systems for Chemical and Biological Detection., M.Fallahi, B.I. Swanson, Editors, Proc.SPIE, V. 3858, P. 218-224, 1999.

[89] Н.В.Чернега, А.Д. Кудрявцева, А.И. Соколовская, «Преобразование временных характеристик световых пучков при вынужденном комбинационном рассеянии», Тезисы докладов. Пятая международная научно-техническая конференция «Оптические методы исследования потоков», 23-25 июня 1999, Москва, С. 261-262, 1999.

- [90] А.М.Агальцов, В.С.Горелик, А.Д.Кудрявцева, Н.В.Чернега, “Двухфотонно-возбуждаемая люминесценция в кристаллах LiTaO_3 , KTiOPO_4 и ZnSe ”, Известия Академии Наук, серия физическая, Т. 64, N 6, С.1137-1139, 2000.
- [91] N.Tcherniega, A.Sokolovskaya, A.D.Kudryavtseva, R.Barille, G.Rivoire. “Backward stimulated Raman scattering in water”, Optics Communications, V.181, P.197-205, 2000.
- [92] R. Barille , A.D. Kudryavtseva, G. Rivoire, A.I. Sokolovskaya, N.V.Tcherniega, “Statistical properties of SRS excited in acetone”, Raman scattering, Vladimir S. Gorelik, Anna D. Kudryavtseva, Editors, Proc. SPIE, V. 4069, P. 134-142, 2000.
- [93] A.N. Baranov, A.D. Kudryavtseva, A.I. Sokolovskaya, N.V. Tcherniega, "Stimulated scatterings in water and water solutions", in *Optics in the New Millenium*", OSA Annual Meeting 2000, USA, Oct. 22-26, P. 77, 2000.
- [94] N.V. Tcherniega, A. Kudryavtseva, A. Sokolovskaya, R. Barille, G. Rivoire, "Stimulated Raman Scattering in water: high conversion efficiency", Proceeding of the Seventh International Conference on Raman Spectroscopy, August 20-25, 2000 Peking University, Beijing, China, JON WILEY & SONS, LTD, P. 1132-1133, 2000.
- [95] А.Н.Баранов, В.С.Горелик, А.Д.Кудрявцева, А.И.Соколовская, Н.В.Чернега, «Спонтанное и вынужденное рассеяние света в воде», Сборник трудов Международного оптического конгресса «Оптика», конференция "Фундаментальные проблемы оптики", Санкт-Петербург, С. 72-73, 2000.
- [96] Н.В.Чернега, А.Д.Кудрявцева, А.Н.Баранов, "Спектральные, энергетические и пространственные характеристики вынужденных рассеяний света в воде", «Оптические методы исследования потоков», Труды 6 Международной научно-технической конференции, 27-29 мая 2001 г., Москва, Издательство МЭИ С. 192-195, 2001.

- [97] А.Н.Баранов, В.С.Горелик, А.Д.Кудрявцева, Н.В.Чернега, «Спонтанное и вынужденное комбинационное рассеяние света в воде», Тезисы докладов на Всероссийской конференции «Необратимые процессы в природе и технике», 23-25 января 2001 г., Москва, МГТУ им. Н.Э.Баумана, С. 299, 2001.
- [98] A.D. Kudryavtseva, A.N. Baranov, A.I. Sokolovskaya, N.V. Tcherniega, R. Barille, G.Rivoire, "Backward stimulated Raman scattering in water and water solutions", Proc SPIE, vol.4199, p. 59-66, 2001.
- [99] A.D. Kudryavtseva, N.V. Tcherniega, A.N. Baranov, "Stimulated scattering temporal characteristics in water", Abstract, OSA Annual Meeting, October 14-18, 2001, Long Beach, California, P. 62, 2001.
- [100] A.D.Kudryavtseva, N.V.Tcherniega, A.N.Baranov, "Spatial and temporal characteristics of the Stimulated Raman Scattering in water," Proc. SPIE, V .4575, P. 73-77, 2002.
- [101] А.Д.Кудрявцева, Н.В.Чернега Восстановление изображений объектов по Фурье-спектру одновременно на нескольких частотах. Сборник трудов 5 Международной конференции "Прикладная оптика-2002", Санкт-Петербург, Т. 1, Оптическое приборостроение, С. 118, 2002.
- [102] Anna Kudryavtseva and Nikolai Tcherniega, "Spatial, spectral and temporal characteristics of the stimulated scattering of light in water," J. of Russian Laser Research, V. 23, N 3, P. 288-297, 2002.
- [103] A. Baranov, A. Kudryavtseva, N. Tcherniega, "Multifrequency processing at stimulated Raman scattering", IQEC/LAT 2002, Technical Digest, P. 243, 2002.
- [104] Н.В.Чернега, А.Д.Кудрявцева, Хоанг Нгок Кам, "Восстановление амплитудно-фазовых характеристик сложных световых полей при ВКР в присутствии других нелинейных эффектов (Керр-эффект, многофотонные процессы)". Труды 7 международной научно-технической конференции "Оптические методы исследования потоков", Москва, Издательство МЭИ, С. 294-297, 2003.

- [105] Н.В.Чернега, А.Д.Кудрявцева, "Восстановление амплитудно-фазовых характеристик сложных световых полей методами нелинейной оптики одновременно на нескольких частотах" тезисы докладов Второй Всероссийской конференции "Необратимые процессы в природе и технике" 22-24 января 2003 г., Москва, МГТУ им. Н.Э.Баумана, с.284.
- [106] A.D.Kudryavtseva, N.V.Tcherniega, "Multifrequency processing at stimulated Raman scattering", International conference Frontiers in Optics 2004, Laser Science XX, p.128, 2004.
- [107] В.С.Горелик, А.Д.Кудрявцева, Н.В.Чернега, "Вынужденное инфракрасное излучение при возбуждении конденсированных молекулярных диэлектриков гигантскими импульсами лазера на рубине", Препринт ФИАН № 15, стр.1-17, 2005.
- [108] В.С.Горелик, А.Д.Кудрявцева, Н.В.Чернега, "Вынужденное инфракрасное излучение при возбуждении конденсированных молекулярных диэлектриков гигантскими импульсами лазера на рубине", Тезисы докладов Третьей Всероссийской конференции "Необратимые процессы в природе и технике", 24-26 января 2005 г., Москва, МГТУ им. Н.Э.Баумана, стр.285-287, 2005.
- [109] V.S.Gorelik, A.D.Kudryavtseva, and N.V.Tcherniega "Stimulated infrared emission under excitation of condensed molecular dielectrics with giant pulses of a ruby laser", Journal of Russian Laser Research, V.27, N 2, P. 81-91, 2006.
- [110] Бредихин В.И., Галанин М.Д., Генкин В.Н. Двухфотонное поглощение света. – УФН, 1973, 110, с.7.
- [111] Giordmaine S.A., Howe J. Phys. Rev. Lett., 1963, 11, p.207
- [112] Hellwarth R.W. Progr.Quant. Electron., 1977, 5, p.1
- [113] Shen Y.N. Electrostriction, optical Kerr effect and selffocusing of laser beams. – Phys.Letters, 1966, 20, p. 378-380
- [114] Кравцов Ю.А., Орлов Ю.И. Геометрическая оптика неоднородных сред. Москва, Наука, 1980
- [115] Markov V., Odulov S., Soskin M. Opt. and Laser. Tech., 1981, 4, P.1372

- [116] Бункин Ф.В., Земсков К.И., Казарян М.А., Матвеев В.М., Петраш Г.Г., Савранский В.В., Шафеев Г.А. Квантовая электроника, 1981, 8, с.1372
- [117] Кузнецова Т.И., Кузнецов Д.Ю, Условия возникновения изображения в усилителе оптических сигналов.- Квантовая электроника, 1984, 11, с.2185-2190
- [118] Бень В.Н., Ивакин Е.В., Рубанов А.С. Инверсия контраста в обращенной волне при ВЧВВ путем фазовой модуляции накачки.- в сб. «Обращение волнового фронта лазерного излучения в нелинейных средах». Минск, 1987. С.131-138
- [119] S.Burikov, T.Dolenko, V.Fadeev, A.Sugonyaev. New opportunities in the determination of inorganic compounds in water by the method of laser Raman spectroscopy // Laser Physics . –2005. –Vol.15. –No.8. –pp.1-5
- [120] Q.Du, R.Superfine, E.Freysz, Y.R.Shen, Vibrational spectroscopy of water at the vapor/water interface // Phys. Rev. Lett. –1993. –Vol.70. –p.2313
- [121] A.Bunkin, S.Pershin Study of cluster molecular structures in various types of liquid waters using spontaneous Raman spectroscopy // Bull. Russ. Acad. Sci. Phys. Vibr. –1997. –Vol.61. –Issue 3. –pp.158-163
- [122] G.M.Gale et. al., Femtosecond dynamics of hydrogen bonds in liquid water; a real time study // Phys. Rev. Lett. –1999. –Vol.82(5). –p.1068
- [123] N.P.Romanov, V.S.Shuklen, Raman scattering cross-section of liquid water // Opt. Spectrosc., –1975. –Vol.38(6). –p.646
- [124] J.S.Bartlett, K.J.Voss, S. Sathyendranath, A. Vodacek, Raman scattering by pure water and sea water // Appl. Opt. –1998. –Vol.37(15). –p.3324
- [125] S.Burikov, S.Dolenko, T,Dolenko, S.Patsaeva, V.Yuzhakov. Decomposition of water Raman stretching band with a combination of optimization methods // Molecular Physics. –2010. –Vol.108. –No.6. –p.739-747
- [126] O.Rahn, M.Maier, W.Kaiser, Stimulated Raman vibrational and Brillouin scattering in water // Opt. Comm. –1969. –Vol.1. –p.109
- [127] V.I.Bespalov, Yu.K.Kerevkin, G.A.Pasmanik, Stimulated Raman scattering of ultrashort pulses in water // Opt. Spectrosc. –1975. –Vol.38(6). –p.643

- [128] M.J.Coles, G.E.Walrafen, K.W.Wecht, Stimulated Raman spectra from H₂O, D₂O, HDO, and solutions of NaClO₄ in H₂O and D₂O // Chem. Phys. Lett. –1970. –Vol.4. –Issue 10. –pp.621-624
- [129] M.Sceats, S.A.Rice, J.E.Butler, The SRS spectrum of water and its relationship to liquid structure // J. Chem. Phys. –1975. –Vol.63(12). –p.5390
- [130] G.E.Walrafen, Comment on SRS from water // J. Chem. Phys. –1976. –Vol.64(6). –p.2700
- [131] V.A.Babenko, A.A.Sychev, Four-photon parametric light scattering of ultrashort laser pulses in water in case of weak self-phase modulation // Quantum Electron. –2009. –Vol.39(10). –pp.938–942
- [132] Chris Xu, Jason B. Shear, and Watt W. Web., Hyper-Rayleigh and Hyper-Raman Scattering Background of Liquid Water in Two-Photon Excited Fluorescence Detection // Anal. Chem. –1997. Vol.69. –pp.1285-1287
- [133] Горелик В.С., Зубов В.А., Сущинский М.М., Чирков В.А. Письма в ЖЭТФ, 1966, т.4, вып.2, с.52-54.
- [13] Терпугов Е.Л., Висковатич В.А., Дегтярева О.В., Фесенко Е.Е. Биофизика, 1998, 6, с.3-12.
- [135] Терпугов Е.Л., Дегтярева О.В. Письма в ЖЭТФ, 2001, 73, с.320.
- [136] Terpuгов E.L., Degtyareva O.V. J.Mol.Struct., 2001, 289, pp.565-566.
- [137] Горелик В.С., Рахматуллаев И.А. Препринт № 13 Физического института им.П.Н.Лебедева РАН, 2004, стр.37.
- [138] Yablonovitch E. Photonic band-gap crystals // J.Phys.: Condens.Matter. – 1993. –5. –Vol.16. –p.2443
- [139] Maxwell Garnett J.C., Colours in Metal Glasses and in Metallic Films // Phil. Trans. R. Soc. Lond. A. –1904. –Vol.203. –pp.(359-371) 385-420
- [140] Maxwell Garnett J.C., Colours in Metal Glasses, in Metallic Films, and in Metallic Solutions // II Phil. Trans. R. Soc. Lond. A. –1906. –Vol.205. –pp.(387-401) 237-288
- [141] G.Mie, Beitrage zur optic trüber medien, speziell kolloidaler metallösungen // Ann. d. Physique. –1908. –Vol.25. –p.377

- [142] Rouard P. and Messen A. Optical Properties of Thin Metal Films // Progress in Optics, –ed. Wolf E. (Amsterdam: North-Holland). –1977. –Vol.XV. –Issue 77. –p.137
- [143] Nan C.W. Physics of inhomogeneous inorganic materials // Prog. Mater. Sci. –1997. –Vol.37. –pp.1-116
- [144] Flytzanis C., Hache F., Klein C., Ricard D. and Roussignol P., Nonlinear optics in composite materials // in: Progress in Optics XXIX. –edited by E. Wolf (Elsevier Science Publishers B.V.). –1991. –pp.321–411
- [145] Gupta S.D. Nonlinear optics of stratified media // in: Progress in Optics XXXVIII. (Elsevier Science Publishers B.V.). –1998. –pp.1-84
- [146] Roustagi K.C. and Flytzanis C. Optical nonlinearities in semiconductor-doped glasses // Optics Letters. –1984. –Vol. 9. –Issue 8. –pp.344-346
- [147] Ricard D., Roussignol P. and Flytzanis C. Surface-mediated enhancement of optical phase conjugation in metal colloids // Opt. Lett. –1985. –Vol.12. –pp.511-513
- [148] Roussignol P., Ricard D., Lakasik J. and Flytzanis C., New results on optical phase conjugation in semiconductor-doped glasses // J. Opt. Soc. Am. B. –1987. –Vol.4. –Issue 1. –pp.5-13
- [149] Boyd R.W. and Sipe J.E. Nonlinear susceptibility of composite optical materials in the Maxwell Garnett model // Phys. Rev. A. –1992. –Vol.46. –pp.1614-1629
- [150] Robert W. Boyd and J. E. Sipe. Nonlinear optical susceptibilities of layered composite materials // J. Opt. Soc. Am. B. –1994. –Vol.11. –Issue 2. pp.297-303
- [151] Fukaya N., Ohsaki D., Baba T., Two-dimensional photonic crystal waveguides with 60 bends in a thin slab structure // Jpn. J. Appl. Phys. –2000 – Vol.39. –p.2619
- [152] Mattei G., Marucci A., Yakovlev V.A. and Pagannone, Porous silicon optical filters or application to laser technology // Laser Phys. –1998. –V.8. –No.3 – pp.755-758
- [153] Dolgova T.V., Maidykovski A.I., Martemyanov M.G., Fedyanin A.A., Aktsipetrov O.A., Marowsky G., Yakovlev V.A., Mattei G., Ohta N. and

- Nakabayashi S., Giant optical second-harmonic generation in single and coupled microcavities formed from one-dimensional photonic crystals // *J. Opt. Soc. Am. B.* –2002. –V.19. –Issue 9. –pp.2129-2140
- [154] Levenson, Second-harmonic generation in a doubly resonant semiconductor microcavity // *J.A. Opt. Lett.* –1997. –Vol.22. –Issue 23. –pp.1775-1777
- [155] Trull J., Vilaseca R., Martorell J. and Corbalan R., Second-harmonic generation in local modes of a truncated periodic structure // *Opt. Lett.* –1995. –Vol.20. –Issue 17. –pp.1746-1748
- [156] Painter G, Lee R K, Scherer A, Yariv A, O'Brien J .D., Dapkus P.D. and Kim I., Two-dimensional photonic band-gap defect mode laser // *Science.* –1999. –Vol.284. –No.5421. –pp.1819-1821
- [157] P.Borri, S.Schneider, W.Langbein and D.Bimberg, Ultrafast carrier dynamics in InGaAs quantum dot materials and devices // *J. Opt. A: Pure Appl. Opt.* –2006. –Vol.8. –No.4. –pp.33-46
- [158] Koenderink A., Johnson P.M., Galisteo Lopez J.F. and Vos W. Three-dimensional photonic crystal as a cage for light // *C. R. Physique.* –2002. –Vol.3. –p.67-77
- [159] Galisteo Lopez J.F., Palacios-Lidon E., Castillo-Martinez E. and Lopez C. Optical study of the pseudogap in thickness and orientation controlled artificial opals // *Phys. Rev. B.* –2003. –Vol.68. –p.115109
- [160] E.J. Ayars, H.D. Hallen // *Appl. Phys. Lett.* –2000. –Vol.76. –pp.3911
- [161] M. Moscovits // *J. Raman spectroscopy.* –2005. –Vol.36. –pp.485
- [162] G.A. Connell, R.G. Nemanich and C.C. Tsai // *Appl. Phys. Lett.* –1979. –Vol.36. –pp.31
- [163] R.Iwamoto, M. Miya, K.Ohta, S.Mima // *J. Chem. Phys.* –1981. –Vol.74. –pp.4780
- [164] K. J. Yi, H. Wang, Z.Y. Yang Enhanced Raman scattering by self-assembled silica spherical microparticles // *J. Appl. Phys.* –2007. –Vol.74. –pp.4780

- [165] Kashkarov P.K., Golovan L.A., Fedotov A.B., Efimova A.I., Kuznetsova L.P., Timosheko V.Y., Sidorov-Biryukov D.A. and Zheltikov, A.M., Joseph W. Haus, Photonic bandgap materials and birefringent layers based on anisotropically nanostructured silicon // *J. Opt. Soc. Am. B.* –2002. –Vol.19. –Issue 9. –pp.2273-2281
- [166] Martorell J., Vilaseca R. and Corbalan R., Second harmonic generation in a photonic crystal // *Appl. Phys. Lett.* –1997. –Vol.70. –pp.702-704
- [167] Zheludev N.I. and Emel'yanov V.I., Phase matched second harmonic generation from nanostructured metallic surfaces // *J. Opt. A: Pure Appl. Opt.* – 2004. –Vol.6. –pp.26-28
- [168] D'Aguanno G, Centini M., Scalora M., Sibilia C., Bertolotti M., Bloemer M.J. and Bowden C.M., Energy exchange properties during second-harmonic generation in finite one-dimensional photonic band-gap structures with deep gratings // *Phys. Rev. E.* –2003. –Vol.67. –p.16606
- [169] Bethune D.S. Optical harmonic generation and mixing in multilayer media: analysis using optical transfer matrix techniques // *J. Opt. Soc. Am. B.* –1989. – Vol.6. –p.910
- [170] de Sterke C.M., Salinas D.G. and Sipe J.E., Coupled-mode theory for light propagation through deep nonlinear gratings // *Phys. Rev. E.* –1996. –Vol.54. – pp.1969-1989
- [171] Andreev A.V., Balakin A.V., Kozlov A.B., Ozheredov I.A., Prudnikov I.R., Shkurinov A.P., Masselin P. and Mouret G., Four-wave mixing in one-dimensional photonic crystals: inhomogeneous-wave excitation // *J. Opt. Soc. Am. B.* –2002. – Vol.19. – Issue 8. –pp.1865-1872
- [172] Chen W. and Mills D.L. Optical response of a nonlinear dielectric film // *Phys. Rev. B.* –1987. –Vol.35. –pp.524-532
- [173] Winful H.G., Marburger J.H. and Garmire E., Theory of bistability in nonlinear distributed feedback structures // *Appl.Phys.Lett.* –1979. –Vol.35. – pp.379-381

- [174] de Sterke C.M. and Sipe J.E., Gap Solitons // in Progress in Optics, –ed. E Wolf (Amsterdam: North-Holland). –1994. Vol.33. –p.203
- [175] Pereira S., Chak P. and Sipe J.E., Gap-soliton switching in short microresonator structures // J. Opt. Soc. Am. B. –2002. –Vol.19. –Issue 9. –pp.2191-2202
- [176] Tkeshelashvili L., Pereira S. and Busch K., General theory of nonresonant wave interaction: Giant soliton shift in photonic band gap materials // Europhys. Lett. –2004. –Vol.68. –pp.205-211
- [177] Sipe J.E. and Winful H.G. Nonlinear Schrödinger solitons in a periodic structure // Opt. Lett. –1988. –Vol.13. –Issue 2. –pp.132-133
- [178] Haus J.W., Soon B.Y., Scalora M., Sibilica C. and Zheltikov A., Spatio-temporal instabilities for counter-propagating waves in periodic media // Opt. Express. –2002. –Vol.10. –pp.114-121
- [179] Klepper D., Inhibited Spontaneous Emission // Phys. Rev. Lett. –1981. –Vol.47. –pp.233-236
- [180] Settini A., Severini S., Centini M., Sibilica C., Bertolotti M., Napoli A. and Messina A., Coherent control of stimulated emission inside one-dimensional photonic crystals // Phys. Rev. E. –2005. –Vol.71. –Issue 6. –p.66606
- [181] Gaponenko S.V., Photon density of states effects on Raman scattering in mesoscopic structures // Phys. Rev. B. –2002. –Vol.65. –p.140303
- [182] Sakoda K., Enhanced light amplification due to group-velocity anomaly peculiar to two- and three-dimensional photonic crystals // Opt. Express. –1999. –Issue 4. –pp.167-176
- [183] Purcell E.M., Spontaneous emission probabilities at radio frequencies // Phys. Rev. –1946. –Vol.69. –p.681
- [184] Yablonovitch E. and Gmitter T.J., Photonic band structure: The face-centered-cubic case // Phys. Rev. Lett.. –1989. –Vol.63. –Issue 18. –pp.1950
- [185] Severini S., Settini A., Sibilica C., Bertolotti M., Napoli A. and Menna A., Second quantization and atomic spontaneous emission inside one-dimensional

- photonic crystals via a quasinormal-modes approach // *Phys. Rev. E.* –2004. – Vol.70. –p.56614
- [186] Bendickson J.M., Dowling J.P. and Scalora M., Analytic expressions for the electromagnetic mode density in finite, one-dimensional, photonic band-gap structures // *Phys. Rev. E.* –1996. –Vol.53. –pp.4107-4121
- [187] Ogawa S., Imada M., Yoshimoto S., Okano M. and Noda S., Control of light emission by 3D photonic crystals // *Science.* –2004. –Vol.305. –pp.227-229
- [188] Lodahl P. et al., Controlling the dynamics of spontaneous emission from quantum dots by photonic crystals // *Nature.* –2004. –Vol.430. –p.654
- [189] Goy P., Raimond J.M., Gross M. and Haroche S. Observation of cavity-enhanced single-atom spontaneous emission // *Phys. Rev. Lett.* –1983. –Vol.50. – pp.1903-1906
- [190] Brown E.R. and McMahon O.B., High zenithal directivity from a dipole antenna on a photonic crystal // *Appl. Phys. Lett.* –1996. –Vol.68. –pp.1300-1302
- [191] Nihei H. and Okamoto A., Spontaneous emission from a three-level atom embedded in anisotropic photonic band gap structures // *J. Mod. Opt.* –2004. – Vol.51. –Issue 13. –pp.1983-1998
- [192] Bogomolov N., Gaponenko S.V., Germanenko I.N., Kapitonov A.M., Petrov E.P., Prokofiev N.V., Ponyavina A.N., Silvanovich N.I. and Samoilovich S.M., Photonic band gap phenomenon and optical properties of artificial opals // *Phys. Rev. E.* –1997. –Vol.55. –p.7619
- [193] Blanco A., Lopez C., Mayoral R., Miguez H., Meseguer F., Mifsud A. and Herrero J., CdS Photoluminescence Inhibition by a Photonic Structure // *Appl. Phys, Lett.* –1998. –Vol.73. –p.1781-1783
- [194] Megens M., Wijnhoven J.E., Lagendijk A. and Vos W., Light sources inside photonic crystals // *J. Opt. Soc. Am. B.* –1999. –Vol.16. –pp.1403-1408
- [195] Vlasov Y.A., Deutsch M. and Norris D.J., Single-domain spectroscopy of self-assembled photonic crystals // *Appl. Phys. Lett.* –2000. –Vol.76. –p.1627
- [196] Schriemer H.P., van Driel H.M., Koenderink A. and Vos W., Modified spontaneous emission spectra of laser dye in inverse opal photonic crystals // *Phys.*

Rev. A. –2001. –Vol.63. –1-4. –p.011801

[197] Lin Y., Zhang J., Sargent E.H. and Kumacheva E., Photonic pseudo-gap-based modification of photoluminescence around polymer microspheres in a photonic crystal // Appl. Phys. Lett. –2002. –Vol.81. –pp.3134-3136

[198] Koenderink A.F., Lagendijk A. and Vos W., Optical extinction due to intrinsic structural variations of photonic crystals // Phys. Rev. B. –2005. –Vol.72. –pp.153102-153106

[199] Sinitskii A., Abramova V., Laptinskaya T., Tretyakov Yu.D., Domain mapping of inverse photonic crystals by laser diffraction // Physics Letters A, –2007. –Vol.366. –pp.516-522

[200] Sinitskii A.S., Knot'ko A.V., Tretyakov Yu.D.. Silica photonic crystals: synthesis and optical properties // Solid State Ionics. –2004. –Vol.172. –pp.477-479

[201] Blance A., et al. Large-scale synthesis of a silicon photonic crystal with a complete three-dimensional bandgap near 1.5 micrometres // Nature. –2000. –Vol.405. –pp.437

[202] Yang S.M. and Ozin G.A., Opal chips: vectorial growth of colloidal crystal patterns inside silicon wafers // Chemical Communications. –2000. –Vol.24. –pp.2507-2508

[203] Stein A., Sphere Templating Methods for Periodic Porous Solids // Microporous and Mesoporous Materials. –2001. –Vol.44-45. –pp.227-239

[204] Аракчеева Е.М., Танклевская Е.М., Нестеров С.И., Максимов М.В., Гуревич С.А., Seekamp J., Sotomayor Torres С.М.. Получение фотонных кристаллов в структурах на основе полупроводников и полимеров с использованием метода наноимпринта // ЖТФ. –2005. –т.75. –вып.8. –с.80-84

[205] Sotomayor Torres C.M., Zankovych S., Seekamp J. et al. Nanoimprint lithography: an alternative nanofabrication approach // Materials Science and Engineering. –2003. –Vol.23. –pp.23-31

[206] Lin S.J., Fleming J.G., Hetherington D.L., Smith B.K., Biswas R., Ho K.M., Sigalas M.M., Zubrzycki W., Kurtz S.R., Bur J., A three-dimensional photonic

crystal operating at infrared wavelengths // Nature. –1998. –Vol.6690. –pp.251-253

[207] Yamamoto N., Noda S., Chutinan A., Development of one period of a three-dimensional photonic crystal in the 5-0 mm wavelength region by wafer fusion and laser beam diffraction pattern observation techniques // Jpn. J. Appl. Phys.. –1998. –Vol.37. –p.L1052

[208] Johnson N.P., McComb D.W., Richel A., Treble B.M., De La Rue R.M., Synthesis and optical properties of opal and inverse opal photonic crystals // Synthetic Metals. –2001. –Vol.116. –No.1. –pp.469-473

[209] Toader O. and John S., Proposed Square Spiral Microfabrication Architecture for Large Three-Dimensional Photonic Band Gap Crystals // Science. –2001. –Vol.292. –No.5519. –pp.1133-1135

[210] Синицкий А.С., Кнотько А.В., Третьяков Ю.Д., Особенности синтеза фотонных кристаллов методом самоорганизации коллоидных микрочастиц // Неорганические материалы. –15/11/2005. –Т.41. –№11. –с.1336-1342

[211] Sinitskii A.S., Klimonsky S.O., Garshev A.V., Primenko A.E., Tretyakov Yu.D.. Synthesis and microstructure of silica photonic crystals // Mendeleev Communications. –2004. –Vol.14(4). –pp.165-167

[212] Stober W., Fink A., Bohn E., J. Controlled Growth of Monodisperse Silica Spheres in Micron Size Range // Colloid Interface Sci. –1968. –Vol.26. –pp.62- 69

[213] Mayoral R., Requena J., Moya J.S., Lopez C., Cintas A., Miguez H., 3-D long-range ordering in an SiO₂ submicrometer-sphere sintered superstructure // Adv. Mater. –1997. –Vol.9. –p.257

[214] M.Dongbin, L. Hongguang, C. Bingying, L. Zhaolin, Z. Daozhong, D. Peng, Visible and near-infrared silica colloidal crystals and photonic gaps // Phys. Rev. B. –1998. –Vol.58. –pp.35-38

[215] Sacks M.D., Tseng T.-Y., Preparation of SiO₂ Glass from Model Powder Compacts 1. Formation and Characterization of Powders, Suspensions, and Green Compacts // J. Am. Ceram. Soc. –1984. –Vol.67(8). –pp.526-532

- [216] A. van Blaaderen, Ruel R., Wiltzius P., Template-Directed Colloidal Crystallization // *Nature*. –1997. –Vol.385. –pp.321-323
- [217] Барышев А.В., Анкудинов А.В., Каплянский А.А., Кособукин В.А. , Лимонов М.Ф., Самсуев К.Б., Усвят Д.Е., Оптическая характеристика синтетических опалов // *ФТТ*. –2002. –т.44. –вып.9. –с.1573
- [218] Li M., Zhang P., Li J., Zhou J., Sinitskii A., Abramova V., Klimonsky S.O. and Tretyakov Y.D.. Directional emission from rare earth ions in inverse photonic crystals // *Applied Physics B*. –2007. –Vol.89. –pp.251-255
- [219] Sinitskii A., Neumeier S., Nelles J., Fischler M., Simon U.. Ordered arrays of silicon pillars with controlled height and aspect ratio // *Nanotechnology*. –2007. –pp.305-307
- [220] Bruce A.D., Wilding N.B., Ackland G.J. Free energies of crystalline solids: a lattice-switch Monte Carlo method // *Phys. Rev. Lett.* –1997. –Vol.79. –p.16
- [221] Woodcock L.V., Entropy difference between the face-centred cubic and hexagonal close-packed crystal structures // *Nature*. –1997. –Vol.385. –pp.141-143
- [222] M.Furuuchi, S.Mori, K.Gotoh, Sediment structure of fine silica spheres in an electrolyte solution // *Powder Technol.*. –1994. –Vol.80. –Issue 2. –pp.159-163
- [223] Tsunekawa S., Barnakov Yu.A., Pobarchiis V.V., Samoilovia S.M., Kasuya A., Nishina Y., Characterization of precious opals: AFM and SEM observations, photonic band gap, and incorporation of CdS nano-particles // *Microporous Mater.*. –1997. –Vol.8. –pp.275-282
- [224] Sarychev A.K., Shalaev.V.N. Electrodynamics of Metamaterials // *World Scientific*. –2007. –Vol.240
- [225] Самойлович М.И.. Наноматериалы. III. Фотонные кристаллы и наноконпозиты на основе опаловых матриц // Ред. М.И.Самойлович. –2007. – М.: ОАО ЦНИТИ «Техномаш». –с.303
- [226] Богомолов В.Н., Прокофьев А.В., Шелых А.И.. Оптико-структурный анализ фотонных кристаллов на основе опалов // *ФТТ*.. –1998. –т.40. –вып.4

- [227] Holland B.T., Blanford C.F., Stein A., Synthesis of Macroporous Minerals with Highly Ordered Three-Dimensional Arrays of Spheroidal Voids // *Science*. – 1998. –Vol.281. –No.537. –pp.538-540
- [228] Zakhidov A.A., Baughman R.H., Iqbal Z., Cui C., I.Khayrullin, S.Dantas, J.Marti, V.G.Ralchenko, Carbon Structures with Three-Dimensional Periodicity at Optical Wavelengths // *Science*. –1998. –Vol.282. –No.5390. –pp.897-901
- [229] G.Subramania, K.Constant, R.Biswas, M.M.Sigalas, K.M.Ho, Optical Photonic crystals fabricated from colloidal systems // *Appl. Phys. Lett.* –1998. – Vol.74. –p.3933
- [230] S.G.Romanov, N.P.Johnson, R.M.De La Rue, Progress in Three-dimensional Photonic Bandgap Structures at Visible Wavelengths // *Opt. Photonics News*. – 1997. –Vol.8(12). –pp.35-36
- [231] В.Н.Богомолов, Д.А.Курдюков, А.В.Прокофьев, С.М.Самойлович. Эффект фотонной запрещенной зоны в оптическом диапазоне твердотельных SiO₂ кластерных решетках – опалах // *Письма в ЖЭТФ*. –1996. –т.63. –вып.7. –с.496
- [232] М.В.Рыбин, К.Б.Самусев, М.Ф.Лимонов. Об уширении полос в спектрах пропускания синтетических опалов // *ФТТ*. –2008. –т.50. –вып.3
- [233] Yu.A.Vlasov, M.A.Kaliteevski, V.V.Nikolaev, Different regimes of light localization in a disordered photonic crystal // *Phys. Rev. B*. –1999. –Vol.60. – Issue 3. –pp.1555-1562
- [234] C.Reichardt, Solvents and Solvent Effects in Organic Chemistry // Second, completely revised and enlarged edition. –VCH Publishers. –Weinheim. –1988
- [235] H.Lamb, On the Vibrations of an Elastic Sphere // *Proc. London Math. Soc.* –1882. –Vol.13. –187p.
- [236] Л.А.Головань, М.А. Желтиков, П.К. Кашкаров, Н.И.Коротеев, М.Г.Лисаченко, А.Н. Наумов, Д.А.Сидоров-Бирюков, В.Ю.Тимошенко, А.Б. Федотов. Генерация второй оптической гармоники на структурах с фотонной запрещенной зоной на основе пористого кремния // *Письма в ЖЭТФ*. –1999. – т.69. –вып.4. –с.274-279

- [237] M.Ivanda et al. Low wavenumber Raman scattering of nanoparticles and nanocomposites materials // Journal of Raman spectroscopy –2007. –Vol.38. – p.647-659
- [238] Л.И.Мандельштам, К вопросу о рассеянии света неоднородной средой // Журнал Русского физико-химического общества. Часть физическая. –М.: Л.: Госиздат, 1926. –т.58. –с.381-386
- [239] Ландсберг Г. С., Мандельштам Л. И. Новое явление при рассеянии света. //ЖРФХО. Ч. физ.- 1928. Т. 60.- С. 335-338.
- [240] М.М.Сущинский, Вынужденное рассеяние света // –М.: Наука. –1985. – 176 с.
- [241] Плачек Г. Рэлеевское рассеяние и Раман эффект // Пер.с нем. Киев-Харьков: ОНТИУ, –1935. –172 с
- [242] Зубов В.А., Перегудов Г.В., Сущинский М.М. и др. Наблюдение ВКР в кристаллических порошках // Письма в ЖЭТФ. –1967. –т.5, –с.188-189
- [243] Lucia Florescu and Xiang Zhang, Semiclassical model of stimulated Raman scattering in photonic crystals // Phys. Rev. E. –2005. –Vol.72. –p.016611
- [244].Запорожченко Р.Г., Килин С.Я., Смирнов А.Г. Вынужденное комбинационное рассеяние света в фотонном кристалле // Квантовая электроника – 2000/- Т. 30, № 11, С.997-1001.
- [245] Makarov N.S., Bepalov V.G. Quasi-phase matching generation of blue coherent radiation at stimulated Raman scattering // Opt. Comm. 2002. V. 203 (3–6). P. 413–420.
- [246] V.S.Gorelik, A.D.Kudryavtseva, N.V.Tcherniega, “Stimulated Raman scattering in three-dimensional photonic crystals”, JRLR, V. 29, № 6, С. 551-55, 2008.
- [247] Н.В.Чернега, А.Д.Кудрявцева, «Нелинейно-оптические свойства фотонных кристаллов», Поверхность. Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования, № 7, стр.23-29, 2009.

- [248] V.S. Gorelik, A.D. Kudryavtseva, V.A. Orlovich, M.V. Tareeva, N.V. Tcherniega, and A.I. Vodchits, "Stimulated Raman scattering of light in artificial opal filled by water", JRLR, 2011, V.32, No 3, P. 277-286.
- [249] V.S. Gorelik, A.D. Kudryavtzeva, N.V. Tcherniega, A.I. Vodchits, V.A. Orlovich A method for reducing the stimulated raman scattering threshold in liquids embedded into photonic crystals JRLR, v.34, N1, pp 1-9, 2013
- [250] Водчиц А.И., Войнов Ю.П., Горелик В.С., Кудрявцева А.Д., Орлович В.А. и Чернега Н.В., «Вынужденное комбинационное рассеяние света в фотонных кристаллах и фотонных стеклах, заполненных нелинейными жидкостями», глава в коллективной монографии «Комбинационно рассеяние – 85 лет исследований», Красноярск: Институт физики им.Л.В.Киренского СО РАН, 2013, ISBN 978-5-904603-02-1, стр. 136-141.
- [251] V.S. Gorelik, A.D. Kudryavtseva, V.A. Orlovich, P.P. Sverbil, N.V. Tcherniega, A.I. Vodchits, Yu.P. Voinov, and L.I.Zlobina, «Raman scattering in light and heavy water», Journal of Russian Laser Research, V.34, No 6, P. 523-530 (2013).
- [252] Vasnetsov M.V., Orlova T.N., Bazhenov V.Yu., Shevchuk A.V., Kudryavtseva A.D., Tcherniega N.V., «Photonic bandgap examination in an immersed synthetic opal», Appl. Phys. B, Lasers and Optics, DOI 10.1007/s00340-013-5730-9, published online 05 December 2013.
- [253] A.A.Esakov, V.S.Gorelik, A.D.Kudryavtseva, M.V.Tareeva and N.V.Tcherniega, "Stimulated globular scattering and photonic flame effect: new nonlinear optics phenomena", in: Photonic Crystals and Photonic Crystal Fibers for Sensing Applications II; Henry H. Du, Ryan Bise; Eds, SPIE Proceedings, V. 6369, P. 6369 OE1 - 6369 OE12, 2006.
- [254] В.С.Горелик, А.Д.Кудрявцева, Н.В.Чернега, "Вынужденное глобулярное рассеяние света в трехмерных фотонных кристаллах", КСФ, № 8, стр.43-50, 2006.
- [255] N.V.Tcherniega, A.D.Kudryavtseva, "Photonic flame effect", Journal of Russian Laser Research, V.27, N 5, стр.400-409, 2006.

- [256] В.С.Горелик, А.Д.Кудрявцева, М.В.Тареева, Н.В.Чернега, "Спектральные характеристики излучения кристаллов искусственного опала при эффекте фотонного пламени", Письма в ЖЭТФ, т.**84**, вып.9, стр.575-578, 2006. (V.S.
- [257] V.S.Gorelik, A.D.Kudryavtseva, M.V.Tareeva, N.V.Tcherniega, " Stimulated globular scattering in photonic crystals", SPIE Proceedings, V.6613, Laser Optics 2006: Wavefront Transformation and Laser Beam Control, Leonid N. Soms, Editor, p.6613OG-1 - 6613OG-7, 2007.
- [258] V.S.Gorelik, A.D.Kudryavtseva, N.V.Tcherniega, A.I.Vodchits, Stimulated Globular Scattering of Laser Radiation in Photonic Crystals: Temperature Dependences", Journal of Russian Laser Research, V. 28, № 6, p. 500-508, 2007.
- [259] Н.В.Чернега, А.Д.Кудрявцева, М.И.Самойлович, "Эффект фотонного пламени", Поверхность. Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования, № 8, С. 1-7, 2008.
- [260] В.С. Горелик, А.Д.Кудрявцева, М.В. Тареева, Н.В.Чернега, «Вынужденное комбинационное рассеяние в трехмерных фотонных кристаллах», «Комбинационное рассеяние – 80 лет исследований: коллективная монография». Редактор – В.С.Горелик. – Москва: Физический институт им.П.Н. Лебедева РАН, С. 285-293, 2008.
- [261] Н.В.Чернега, А.Д.Кудрявцева, М.И.Самойлович, А.Ф.Белянин, С.М.Клещева, «Способ генерации акустических волн», Патент на изобретение № 2371259, приоритет 7 июня 2008 г., зарегистрирован 27 октября 2009 г.
- [262] М.И.Самойлович, А.Ф.Белянин, С.М.Клещева, Н.В.Чернега, А.Д.Кудрявцева, «Устройство для генерации поверхностных акустических волн», Патент на изобретение № 2371261, приоритет 7 июня 2008 г., зарегистрирован 27 октября 2009 г.
- [263] Н.В.Чернега, М.И.Самойлович, А.Д.Кудрявцева, А.Ф.Белянин, Ю.В.Гуляев, А.С.Багдасарян, П.В.Пашенко, Н.Н.Дзбановский,

«Морфологически зависимый акустический резонанс в тонких пленках»,
Наука и нанотехнологии в промышленности, № 3, стр. 69-75, 2009.

[264] N.V.Tcherniega, M.I.Samoylovich, A.D.Kudryavtseva, A.F.Belyanin, P.V.Pashchenko, and N.N.Dzbanovski, "Stimulated scattering caused by the interaction of light with morphology-dependent acoustic resonance", *Optics Letters*, V.35, Issue 3, P. 300-302, 2010.

[265] М.И.Самойлович, Н.В.Чернега, А.Д.Кудрявцева, А.Ф.Белянин, С.М.Клещева, "Опаловые матрицы как метаматериал: оптико-акустические эффекты в решетчатых упаковках", *Нано- и микросистемная техника*, № 5 (118), С. 5-17, 2010.

[266] М.В. Тареева, В.С. Горелик, А.Д. Кудрявцева, Н.В. Чернега, «Спектральные и энергетические характеристики вынужденного глобулярного рассеяния света», *КСФ*, № 11, С. 3 - 9, 2010.(M.V.Tareeva, V.S.Gorelik,

[267] Чернега Н.В., Самойлович М.И., Белянин А.Ф., Кудрявцева А.Д., Клещева С.М. Генерация электромагнитного и акустического излучений в наноструктурированных системах // *Нано- и микросистемная техника*. 2011. № 4. С. 21–31.

[268] Н.В.Чернега, М.И.Самойлович, А.Д.Кудрявцева, А.Ф.Белянин, П.В.Пашченко, Н.Н.Дзбановский, «Нелинейно-оптические и акустические свойства тонких пленок», *Неорганические материалы*, 2011, Т. 47, № 9, С. 1-6.

[269] В.С. Горелик, А.Д. Кудрявцева, М.В. Тареева, Н.В. Чернега, «О генерации пульсирующих акустических волн в глобулярных фотонных кристаллах», *Вестник МГТУ им. Н.Э. Баумана, Серия «Естественные науки»*, 2(41), 2011, С. 3-15.

[270] В.И.Малышев, *Введение в экспериментальную спектроскопию* // –М.: Наука. –1979. –489 с.

[271] A.Tamura, K.Higeta and T.Ichinokawa, *Lattice vibrations and specific heat of a small particle* // *J. Phys. C: Solid State Phys.* –1982. –Vol.15. –pp.4975-499

- [272] E.Duval, Far-infrared and Raman vibrational transitions of a solid sphere: Selection rules // *Phys. Rev. B.* –1992. –Vol.46. –p.5795
- [273] Самойлович М.И., Белянин А.Ф., Талис А.Л. Наноматериалы. I. Основы теории симметрии наноструктурных состояний. II. Тонкие пленки алмазоподобных материалов как наноструктурированные системы. М.: Техномаш. 2006. 400 с.
- [274] Наноматериалы. III. Фотонные кристаллы и наноккомпозиты на основе опаловых матриц. /Ред. М.И.Самойлович. М. ЦНИТИ «Техномаш». 2007. 303 с.
- [275] G.Mie, Beitrage zur optic trüber medien, speziell kolloidaler metallösungen // *Ann. d. Physique.* –1908. –Vol.25. –p.377
- [276] P.Debye, Der Lichtdruck auf Kugeln von beliebigen Material // *Ann. d. Physique.* –1909. –Vol.30. –p.57
- [277] Brillouin L., Diffusion of light and X-rays by a transparent homogeneous body // *Ann. De physique.* –1922. –Vol.17. –p.88
- [278] H.S.Lim, M.H.Kuok, S.C.Ng, and Z.K.Wang, Brillouin Observation of Bulk and Confined Acoustic Waves in Silica Microspheres // *Appl. Phys.Lett.* –2004. – Vol.84. –p.4182
- [279] Montagna M., Brillouin and Raman scattering from the acoustic vibrations of spherical particles with a size comparable to the wavelength of the light // *Phys. Rev. B.* –2008. –Vol.77. –p.045418
- [280] Быковский Ю.А., Манькин Э.А., Нахутин И.Е., Полуэктов П.П., Рубежный Ю.Г. Комбинационное рассеяние света на произвольных колебаниях формы (РИКФ) жидкой сферической частицы, *Журнал прикладной спектроскопии*, **23**, 866, (1975).
- [281] Н.В.Чернега, А.Д.Кудрявцева, М.И.Самойлович, А.С.Шевчук, С.М.Клещева, "Вынужденное низкочастотное комбинационное рассеяние света в наноструктурах", *Автометрия*, Т. 48, № 3, С. 39-45, 2012.(N.V.Tcherniega,

[282] A.D. Kudryavtseva, N.V. Tcherniega, M.I. Samoylovich, A.S. Shevchuk, “Photon- Phonon Interaction in Nanostructured Systems”, Journal of Thermophysics, published online 10 August 2012, Volume 33, Issue 10 (2012), Page 2194-2202.

[283] К.И. Земсков, А.Д. Кудрявцева, Г.В. Лисичкин, А.Ю. Оленин, В.В. Савранский, А.В. Сафронихин, Н.В. Чернега, Г.В. Эрлих, «Коллективное возбуждение ансамбля наночастиц при лазерной накачке: от гигагерц к терагерцам», III Международная научная конференция «Наноструктурные материалы – 2012: Россия – Украина - Беларусь», Тезисы докладов, НАНО 2012, Санкт-Петербург, 19 – 22 ноября 2012 года, стр. 150.

[284] М.П. Жиленко, К.И. Земсков, А.Д. Кудрявцева, Г.В. Лисичкин, В.В. Савранский, Н.В. Чернега, Г.В. Эрлих, «Взаимодействие лазерного излучения с нанодисперсным сульфидом цинка», III Международная научная конференция «Наноструктурные материалы – 2012: Россия – Украина - Беларусь», Тезисы докладов, НАНО 2012, Санкт-Петербург, 19 – 22 ноября 2012 года, стр. 320.

[285] Anna Kudryavtseva and Nikolay Tcherniega, “Stimulated Low-Frequency Raman Scattering in Nanoparticles Suspensions”, Proceedings of the 18th Symposium on Thermophysical Properties, June 24-29, 2012, Boulder, USA.

[286] . N. V. Tcherniega, A. D. Kudryavtseva, A. S. Shevchuk, I. S. Burkhanov, S. V. Krivokhizha, L. L. Chaikov, V. V. Savranskiy, D.Yu. Korobov, “Effective acousto-optical interaction in suspensions of nanodiamond particles”, Journal of Russian Laser Research, №5, 2012, стр. 496-502.

[287] М.П. Жиленко, К.И. Земсков, А.Д. Кудрявцева, Г.В. Лисичкин, В.В. Савранский, Н.В. Чернега, Г.В. Эрлих, «Нелинейно-оптические эффекты в суспензиях наночастиц», II Всероссийская конференция по фотонике и информационной оптике: Сборник научных трудов. М.: НИЯУ МИФИ, 2013, С. 77-78. ISBN 978-5-7262-1789-5.

[288] N.V.Tcherniega, K.I.Zemskov, V.V.Savranskii, A.D.Kudryavtseva, A.Yu.Olenin, and G.V.Lisichkin, “Experimental observation of stimulated low

frequency Raman scattering in water suspensions of silver and gold nanoparticles”, Optics Letters, V. 38, N 6, March 15, 2013, P. 824-826

[289] М.П. Жиленко, К.И. Земсков, Г.В. Лисичкин, А.Д. Кудрявцева, Н.В.Чернега, Г.В. Эрлих, «Новый вид вынужденного рассеяния света – вынужденное низкочастотное рассеяние», глава в коллективной монографии «Комбинационно рассеяние – 85 лет исследований», Красноярск: Институт физики им.Л.В.Киренского СО РАН, 2013, ISBN 978-5-904603-02-1, стр. 126-135.

[290] Ehrlich H., Shcherba T., Zhilenko M. & Lisichkin G. Materials Letters, **65**, 107 (2011).

[291] Vasil’eva S.Yu., Olenin A.Yu., Romanovskaya G.I., Krutyakov Yu.A., Pogonin V.I., Korotkov A.S., and Zuev B.K.// Journal of Analytical Chemistry, **64**, 1214 (2009).

[292] G. Bachelier et al Size dispersion effects on the low-frequency Raman scattering of quasispherical silver nanoparticle: experiment and theory // Phys. Rev. B. –2007. –Vol.76. – 235419