

[5] Степанов С.И. Нестационарные механизмы голографической записи в фоторефрактивных кристаллах. В сб.: Оптическая голография с записью в трехмерных средах. / Ред. Ю.Н. Денисюк. Л.: Наука, 1986. С. 17-30.

[6] Erdmann A., Kowarschik R. // IEEE J. Quant. El. 1988. V. 24. P. 155-161.

Институт электрофизики
УО АН СССР,
Свердловск

Поступило в Редакцию
1 июля 1990 г.

Письма в ЖТФ, том 16, вып. 20

26 октября 1990 г.

01; 07

© 1990

ЧИСЛЕННОЕ МОДЕЛИРОВАНИЕ КОНЦЕНТРАЦИОННЫХ
И ТЕМПЕРАТУРНЫХ ВОЛН
В ХИМИЧЕСКИ АКТИВНОМ ГАЗЕ
ПОД ДЕЙСТВИЕМ ОПТИЧЕСКОГО ИЗЛУЧЕНИЯ

М.И. Калининко, В.А. Трофимов

В настоящее время интенсивно исследуется проблема оптической бистабильности (см., например, [1-6]), что связано со многими ее практическими приложениями, например, для задач хранения и обработки информации. При этом особый интерес представляют колебательные режимы изменения параметров среды. Как правило, такие режимы, во-первых, позволяют отобрать из имеющихся математических моделей наиболее полно описывающую реальный процесс; во-вторых, они представляют непосредственный интерес для синергетики [5]; в-третьих, для проблемы обработки информации: очевидно, в этом случае они вредны, и необходимо знать способы их устранения.

В настоящем сообщении на основе численного моделирования исследуется динамика развития периодических режимов изменения концентраций газов и температуры среды в процессе стимулированной оптическим излучением химической реакции. Заметим, что экспериментально колебательные режимы изменения интенсивности оптического излучения на выходе из химически активной кюветы наблюдались в [5]. В [6] в приближении тонкого слоя они обосновывались развитием термодиффузионных потоков вещества без учета химической кинетики. В [5] также указывалось на возможность возникновения аналогичного поведения характеристик среды в условиях развитой химической реакции в отсутствие диффузионных и термодиффузионных потоков газа. Однако динамика этого процесса

не рассматривалась, а возможные его режимы в оптически тонкой кювете с химически активным газом были представлены качественно. Ниже изложены результаты исследования динамики развития колебательных режимов в оптически толстой кювете, которая описывается следующей системой безразмерных уравнений:

$$\begin{aligned} \partial N / \partial t &= (1-N)^2 \exp(-1/T) - kN \exp(-T_c/T) + D_N \Delta N, \\ \varepsilon (\partial T / \partial t) &= q I \delta_c(T) N - T + T_{out} + D_T \Delta T, \\ (\partial I / \partial z) + I \delta_c(T) N \delta &= 0, \end{aligned} \quad (1)$$

с граничными условиями

$$N \Big|_{z=0} = T \Big|_{z=0} = 0, \quad I \Big|_{z=0} = \psi(t). \quad (2)$$

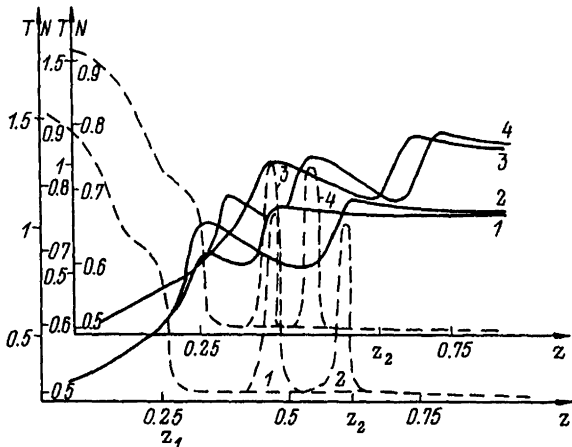
Здесь $t = t' k_A N_*$, t' - время, k_A - константа прямой реакции, N_* - безразмерная максимальная концентрация исходных веществ. Температура T измеряется в энергиях активации обратной реакции T_A , T_c - отношение энергий активации обратной реакции к T_A , N - концентрация продукта реакции, а $(1-N)$ исходных веществ (схема реакции $A + B \xrightleftharpoons[k_c]{k_A} C$, $k = k_c / (k_A N_*)$), ε - характеризует отношение скорости уменьшения температуры смеси за счет теплооттока из области, занятой пучком, вызванного поперечной диффузией (слагаемое $T - T_{out}$) к скорости прямой реакции, T_{out} - температура невозмущенной среды. Данный подход общепринят и его часто используют [2, 7]. D_N, D_T - коэффициенты диффузии соответственно N и T вдоль z . Они определяются как коэффициентами диффузии газов и тепла, так и продольным размером кюветы. Помимо этого диффузию газа можно изменять за счет его концентрации. $\Delta = \partial^2 / \partial z^2$, q - отношение начальной мощности светового пучка к характерной мощности теплопотерь, $\delta_c(T)$ - коэффициент поглощения излучения интенсивности I продуктом реакции, имеющий вид $\delta_c(T) = \exp(-T_H / T)$, где $T_H = T_{H0} / T_A$, T_{H0} характеризует энергию активации поглощения излучения (конкретная зависимость $\delta_c(T)$ может быть весьма разнообразной [8]), δ - безразмерный коэффициент поглощения оптического излучения, который зависит от сечения поглощения газа, его средней концентрации и длины кюветы.

Систему (1-2) дополним начальными условиями

$$T \Big|_{t=0} = T_0, \quad N \Big|_{t=0} = N_0, \quad (3)$$

где N_0 находится из уравнения равновесного состояния реакции

$$(1-N_0)^2 \exp(-1/T_0) - k N_0 \exp(-T_c/T_0) = 0. \quad (4)$$



Распределения N (сплошная кривая) и T (пунктирная кривая) вдоль z при $q=5$, $\delta=8$ в моменты времени $t=60$ (1), 83 (2), 106 (3), 114 (4).

Отметим, что при выполнении условия $\delta^{-1} \gg D_{N,T}$ диффузией вдоль z можно пренебречь (в наших расчетах $D_{N,T} \sim 10^{-3}$ не оказывали практического влияния на поведение системы по сравнению с $D_{N,T}=0$). Пренебрежение влиянием диффузии также широко встречается в работах (см., например, [9-11]), посвященных исследованию нестационарного взаимодействия оптического излучения, например, с полупроводниковыми пластинами.

Нами анализировалось поведение системы «среда – пучок» для случая $T_c > 1$ и $\mathcal{E} \ll 1$, что является необходимым условием для релаксационных колебаний в (1-4). Типичный характер изменения N и T представлен на рисунке для $T_c=2$, $T_N=1$, $k=1$, $\mathcal{E}=0.01$, $T_{out}=0.22$, $q=5$, $\delta=8$. Отметим, что расчеты для $D_{N,T}=10^{-3}$ и $D_{N,T}=0$ практически совпадают.

Уравнения (1-4) решались с использованием симметричной нелинейной разностной схемы. Из исследования точечной модели следует, что колебания возможны лишь в ограниченном интервале величин qI для наших значений (2.8; 3.12). В оптически толстом случае это приводит к следующему эффекту.

Пусть интенсивность оптического излучения такова, что qI превышает необходимое для колебаний значение. Тогда вдоль оси z возможно наличие трех областей. В первой $0 < z < z_1$ колебаний нет. Однако из-за поглощения при $z=z_1$ значение qI снижается до необходимой для колебаний величины, и в области $z_1 < z < z_2$ они развиваются. При $z > z_2$ значение qI недостаточно для стимулирования собственных колебаний, но изменения поглощения при $z_1 < z < z_2$ приводят к колебаниям интенсивности и вызывают соответствующие изменения N и T (значительно более

выраженные для N). В результате вдоль z , начиная с z_1 , распространяются волны исходного вещества, сопровождающиеся „вытеснением“ продукта реакции, и области высокой температуры (см. рисунок). Их распространение замедляется с ростом z , что объясняется понижением средней по t величины qI вдоль z из-за поглощения. Как показывают расчеты, для оптически тонкого случая период колебаний при $qI = 3.12$ равен 40 единицам времени и в 3 раза меньше, чем для $qI = 2.8$. Заметим, что в оптически толстом случае интенсивность на выходе из среды колеблется.

В заключение отметим, что с некоторыми изменениями уравнения (1-4) могут найти применение и в задачах оптической бистабильности в полупроводниковых пластинках [1, 12]. В этом случае можно объяснить имеющиеся в экспериментах осцилляции интенсивности на выходе из полупроводниковой пластинки температурной зависимостью коэффициента поглощения, сечения перехода носителей заряда в верхнее и в основное состояние. Известно также, что колебания выходной интенсивности получаются при воздействии света на полупроводниковую пластинку [13] и при наличии временной модуляции интенсивности входного импульса [14], что здесь не требуется.

С п и с о к л и т е р а т у р ы

- [1] Г и б б с Х. Оптическая бистабильность. М.: Мир, 1988. 518 с.
- [2] А л и м о в Д.Т. и др. // Квантовая электроника. 1984. Т. 11. № 5. С. 923-932.
- [3] N i t z a n А., R o s s J. // J. of Chemical Phys 1973. V. 59. N 1. P. 241-251.
- [4] О р а е в с к и й А.Н., П р о ц е н к о И.Е. // Тр. ФИАН АН СССР. 1988. Т. 187. С. 144-177.
- [5] Б у н к и н Ф.В., К и р и ч е н к о Н.А., Л у к ь я н - ч у к Б.С. // Квантовая электроника. 1984. Т. 11. № 6. С. 1183-1198.
- [6] Б у н к и н Ф.В., К и р и ч е н к о Н.А. и др. Препринт ИПМ АН СССР. 1986. № 40.
- [7] L a m b s d o r f f M. et al. // Z. Phys. (B.) - Condensed Matter. 1986. V. 64. P. 409.
- [8] Лазерные системы / Под ред. В.Н. Чеботаева. Новосибирск. 1980. 240 с.
- [9] L i n d b e r g M., K o s h S. et al. // Phys. Rev. A. 1986. V. 33. N 1. P. 407-415.
- [10] H e n n e b e r g e r F., R o s s m a n H. // Phys. Stat. Sol. (b). 1984. V. 121. P. 685.
- [11] G i b b s H., O l b r i g h t G. et al. // Phys. Rev. A. 1985. V. 32. N 1. P. 692-694.
- [12] Б а л к а р е й Ю.И. и др. // Квантовая электроника. 1987. Т. 14. №1. С. 128-134.

- [13] R o s a n o v N.N. et al. // Phys. Stat. Sol. (b). 1988. V. 150. N 2. P. 545-555.
 [14] Ш м е л е в В.М. и др. // Хим. физ. 1989. Т. 8. № 3. С. 318-322.

Поступило в Редакцию
 2 декабря 1989 г.

Письма в ЖТФ, том 16, вып. 20

26 октября 1990 г.

07

© 1990

НАБЛЮДЕНИЕ УЗКОПОЛОСНОЙ ЛЮМИНЕСЦЕНЦИИ КОМПЛЕКСОВ ИОНОВ С ОДНИМ $3d$ -ЭЛЕКТРОНОМ В КРИСТАЛЛАХ

М.Г. З у е в

Поиск активаторов, обладающих набором новых спектроскопических свойств является актуальной задачей. Среди переходных металлов группы железа узкополосная люминесценция, обусловленная интерконфигурационными переходами, известна у ионов G^{3+} . В спектрах ионов с одним $3d$ -электроном нет узких линий из-за того, что уровни имеют одну мультиплетность и, следовательно, нет запрещенных по спине переходов. В настоящей работе сообщается о наблюдении узкополосной люминесценции, обусловленной ионами $V^{4+}(d^1)$, имеющих короткую связь $V^{4+}-O$ (1.58 Å) в смешанных кристаллах $MV_xV_{1-x}^{5+}Ta_2O_9$ и $MV_xV_{1-x}^{5+}Nb_2O_9$, где $M = Y, La, Gd, Lu$.

Образцы получены по методике [1]. По данным ЭПР в кристаллах, где $M = Y, La$, наблюдаются сигналы, центр тяжести которых соответствует g -фактору, равному 1.96-1.97. Количество парамагнитных центров (ПЦ) возрастает при переходе от Y к La в два раза и практически одинаково для танталатов и ниобатов. Наблюдаемые спектры характерны для ионов V^{4+} . Сверхтонкая структура (СТС) обусловлена взаимодействием d^1 -электрона V^{4+} с собственным ядром ($I = 7/2$). Регистрируемые сигналы описываются аксиальным спин-гамильтонианом с параметрами:

$$g_{\perp} = 1.984, \quad A_{\perp} = 58 \text{ Гс}, \\ g_{\parallel} = 1.915, \quad A_{\parallel} = 173 \text{ Гс}.$$

В спектрах ЭПР СТС смазывается при значительном электрон-электронном взаимодействии. Отсутствие связи между степенью разрешения и числом ПЦ позволяет предположить, что ионы V^{4+} находятся, по крайней мере, в двух неэквивалентных позициях: