ФЕДЕРАЛЬНОЕ ГОСУДАРСТВЕННОЕ БЮДЖЕТНОЕ УЧРЕЖДЕНИЕ НАУКИ ФИЗИЧЕСКИЙ ИНСТИТУТ ИМ. П.Н. ЛЕБЕДЕВА РОССИЙСКОЙ АКАДЕМИИ НАУК

На правах рукописи

Бурханов Илья Сергеевич

ИССЛЕДОВАНИЕ НЕЛИНЕЙНОГО ХАРАКТЕРА РАССЕЯНИЯ СВЕТА НА ЧАСТИЦАХ ЛАТЕКСА И АЛМАЗА В ВОДНЫХ СУСПЕНЗИЯХ

Специальность 01.04.05 – Оптика

Диссертация на соискание ученой степени кандидата физико-математических наук

Научный руководитель

кандидат физико-математических наук

Чайков Леонид Леонидович

Москва – 2017

ОГЛАВЛЕНИЕ

1	.1 Введение	•••
1	.2 Спонтанное молекулярное рассеяние света	•••
1	.3 Спектр спонтанного молекулярного рассеяния света	2
1	.4 Фурье разложение и вектор рассеяния	
1	.5 Упругое и неупругое рассеяние	
1	.6 Спонтанное рассеяние Мандельштама-Бриллюэна	
1	.7 Спонтанное комбинационное рассеяние света	
1	.8 Спонтанное рассеяние крыла линии Рэлея	
1	.9 Спонтанное рассеяние Рэлея	, ,
1	.10 Вынужденное рассеяние света. Частотные сдвиги	
1	.11 Вынужденное комбинационное рассеяние света	, ,
1	.12 Вынужденное рассеяние крыла линии Рэлея	
1	.13 Вынужденное температурное рассеяние	
1	.14 Вынужденное рассеяние Мандельштама-Бриллюэна	
1	.15 Вынужденное рассеяние на флуктуациях (вариациях) концентрации компонент	
С	месей и частиц	• •
1	.16 Вынужденное концентрационное рассеяние на субмикронных и наночастицах в	
Ж	кидкостях	•••
1	.17 Описание вынужденного концентрационного рассеяния света (ВКоРС) в смесях	
1	.18 Возникновение и усиление ВКоРС на субмикронных частицах в жидкости.	
ŀ	Сонцентрационная волна	
1	.19 Градиентная сила, действующая на диэлектрическую частицу в жидкости	
1	.20 Затягивание частиц с размером больше длины волны, в интерференционную	
p	ешетку интенсивности	'

2.1 Корреляционная функция

2.2 Связь корреляционной функции со спектральными характеристиками	48
2.3 Коэффициент диффузии и ширина линии концентрационного спонтанного	
рассеяния	49
2.4 Методы получения корреляционной функции	50
2.5 Принцип работы коррелятора	51
2.6 Программное обеспечение	52
2.7 Приготовление растворов и взвесей	54
2.8 Оптические схемы экспериментальных установок	56
2.9 Методика определения величины и знака частотного сдвига ВКоРС на	
субмикронных частицах в жидкости	59
2.10 Отсутствие влияния концентрационной волны на измерение скорости	
конвекционного потока	61
2.11 Измерение линейности фотоприемника и ФЭУ в световодной схеме	63
2.12 Вид корреляционной функции при наличии ВКоРС на субмикронных частица	ХВ
жидкости	64
2.13 Вид корреляционной функции ВКоРС на субмикронных частицах в жидкости	при
наличии конвекции	68
2.14 Оценка расстояния от световода до области максимальной интенсивности	
рассеяния и скорость конвекции в этой области	69
2.15 Коэффициент отражения спонтанного рассеяния	73
2.16 Оценка диффузионной силы, действующей на частицу и дифракционная	
эффективность брэгговской решетки	74
2.17 Оценка порога ВКоРС на субмикронных частицах в жидкости	76
2.18 Оценка коэффициента усиления по Ильичеву	78
2.19 Оценка коэффициента усиления по Афанасьеву	80

Глава 3. Экспериментальные результаты

3.1 Функции корреляции интенсивности рассеяния взвесью кремния	83
3.2 Функции корреляции света, рассеянного частицами алмаза в воде в оптической	
схеме №1	84
3.3 Результаты аппроксимации корреляционных функций взвеси алмаза	86
3.4 Экспериментальная оценка коэффициента усиления д для алмаза	90

3.5 Эксперимент с частицами латекса в воде в оптической схеме №2
3.6 Экспериментальная оценка коэффициента усиления д для латекса
3.7 ВКоРС на субмикронных частицах латекса радиусом 750 нм в условиях
конвекционного потока жидкости97
3.8 ВКоРС на частицах латекса радиусом 375 нм в условиях конвекционного потока
жидкости
3.9 ВКоРС на частицах латекса радиусом 480 нм в условиях конвекционного потока
жидкости
3.10 Обсуждение результатов для частиц латекса радиусами 375, 480, 750 нм в
присутствии конвекционного потока жидкости108
3.11 Проверка влияния рассеянного излучения на излучение лазера111
3.12 Проверка наличия ВКоРС на субмикронных частицах в жидкости в поперечном
резонаторе
Заключение
Благодарности
Приложение 1
Список используемой литературы125

введение

Работа посвящена экспериментальному обнаружению и исследованию вынужденного режима концентрационного рассеяния света на субмикронных частицах в жидкостях, его особенностей для частиц различных размеров и составов, а также изучению величин и направления спектральных сдвигов линии рассеяния и измерению коэффициента его усиления для частиц различных размеров, сравнению этих сдвигов и коэффициентов усиления, измеренных экспериментально, с теоретическими оценками.

Актуальность работы и степень ее разработанности

В настоящее время для исследования размеров частиц во взвесях широко применяется метод динамического рассеяния света (ДРС). Рассеяние света на частицах имеет целый ряд особенностей, которые часто не учитываются в измерениях, но которые могут сильно искажать получаемый результат. Такими особенностями являются например наличие потока в жидкостях и вынужденное рассеяние света.

У каждого типа спонтанного рассеяния (СР) света имеется свой аналог в виде вынужденного рассеяния (BP), а именно вынужденное комбинационное рассеяние (BKP, на уровнях возбуждения молекул) [1; 2], вынужденное рассеяние Мандельштама-Бриллюэна (ВРМБ, на флуктуациях/вариациях давления) [3; 4], вынужденное рассеяние крыла линии Рэлея (ВРКЛР, на флуктуациях/вариациях анизотропии) [5–7], вынужденное температурное рассеяние (ВТР, на флуктуациях/вариациях энтропии) [4; 8-10]. Недавно было открыто вынужденное глобулярное рассеяние (ВГР, низкочастотное комбинационное рассеяния на собственных колебаниях частиц) [11; 12], а также вынужденное рассеяние Ми-Брэгга, связанное с изменением среднего показателя преломления среды за счет изменения свойств проводящих частиц [13–17]. Однако вынужденное концентрационное рассеяние (ВКоРС) на флуктуациях/вариациях концентрации частиц в жидкостях до сих пор не было экспериментально обнаружено. Работа является актуальной потому что факт обнаружения нелинейного (вынужденного) режима концентрационного рассеяния света дополняет картину, свойственную другим типам рассеяния (ВКР, ВРМБ, ВРКЛР, ВТР, ВГР), где для каждого спонтанного процесса рассеяния удалось наблюдать его вынужденный режим. ВКоРС на вариациях концентрации частиц в жидкостях можно назвать и вынужденным диффузионным рассеянием света (ВДРС), поскольку его частотный сдвиг, как и время релаксации флуктуаций

концентрации частиц, определяется коэффициентом их диффузии. Нужно отметить, что в ранней работе [14] о вынужденном рассеянии Ми-Брэгга авторы предположили в качестве объяснения также и концентрационный механизм ВР, от которого впоследствии отказались. В результате ВКоРС иногда называют также вынужденным рассеянием Ми, что терминологически не совсем правильно.

Спектральные Мандельштама-Бриллюэна линии спонтанного рассеяния И комбинационного рассеяния смещены относительно линии возбуждающего света. Линии ВКР и ВРМБ смещены примерно на такую же величину. Линии спонтанного деполяризованного (на флуктуациях анизотропии) рэлеевского рассеяния и рассеяния на флуктуациях энтропии не сдвинуты относительно возбуждающего света, а только уширены. При этом, однако, линии ВРКЛР и ВТР сдвинуты приблизительно на половину ширины линии соответствующего спонтанного рассеяния. Этот сдвиг связан с тем, что коэффициент усиления ВТР и ВРКЛР пропорционален как коэффициенту спонтанного рассеяния, так и плотности состояний, линейно зависящей от частотного сдвига [18; 19]. Таким образом, частотный сдвиг рассеянного света, равный полуширине линии спонтанного рассеяния, для таких видов рассеяния является важнейшим признаком появления вынужденного рассеяния. Вторым важным признаком появления вынужденного рассеяния является нелинейный рост интенсивности рассеянного света.

Попытки исследования вынужденного концентрационного рассеяния (ВКоРС) – аналога спонтанного концентрационного рассеяния (СКоРС) на флуктуациях концентрации веществ, составляющих раствор, предпринимались неоднократно. Так в [20] в бинарных растворах хинолин-этиловый спирт и нитробензол – CCl₄ было зафиксировано резкое увеличение светимости объёма рассеяния при переносе фильтра из возбуждающего пучка в положении перед камерой при отсутствии разрешаемого спектрального сдвига рассеянного света. На основе этого авторы [20] сделали вывод о наблюдении вынужденного концентрационного рассеяния в бинарном растворе. В [21] в бинарных газовых смесях в схеме с использованием мощного лазера и сверхрегенеративного усиления рассеянного света с помощью интерферометра Фабри-Перо в спектре рассеянного света была обнаружена линия, частотный сдвиг которой ~ 0.033–0.042 см⁻¹ авторы связали с наличием ВКоРС. В [22] Бломбергеном и сотрудниками был измерен частотный сдвиг ВКоРС в смеси Не-Хе, который составил ~ 0.005–0.018 см⁻¹. На основе проведенных ими экспериментов была разработана соответствующая теория ВКоРС в смеси газов [23].

Попытки измерения ВКоРС в водных растворах лутидинов предпринимались в работе [24], но частотный сдвиг рассеянного света измерить не удалось при разрешении 0.003 см⁻¹. Однако по временной зависимости интенсивности рассеяния авторы сделали заключение о наличии вынужденного рассеяния на несмещенной частоте, которое интерпретировали как ВКоРС в растворе. Однако ВКоРС на нано- и субмикронных частицах в жидкости так и не было обнаружено. В нашей работе [25] нам удалось, нетрадиционным для исследований вынужденного рассеяния методом, измерить частотный сдвиг ВКоРС. Поэтому работа является актуальной для общей картины перехода от спонтанного рассеяния света в вынужденный режим.

В последнее время было обнаружено нелинейное рассеяние на золотых нанотрубках диаметром 13 нм и длиной 90 нм в воде, на нанокристалах CdSe/Cds/ZnS в хлороформе и на наночастицах Au, Au/Ag и Ag в толуоле [13–17], но в этих взвесях также не удалось измерить сдвиг спектральной линии вынужденного рассеяния при разрешении до 0.005 см⁻¹, хотя и был получен нелинейный рост интенсивности рассеяния назад. По росту интенсивности и появлению специфического пика на временной зависимости интенсивности ВР авторы [13–17], так же как и авторы [24], сделали вывод о наблюдении вынужденного рассеяния на частицах. Однако механизм наблюдаемой нелинейности не был однозначно интерпретирован. В [13] авторы предположили возможность как «зависящего от интенсивности пространственного перераспределения наночастиц золота» (т.е. вынужденного концентрационного рассеяния на субмикронных частицах в жидкости), так и изменения среднего показателя преломления среды за счёт поверхностно-плазмонного резонанса на частицах. Однако после того, как в [14] им не удалось зафиксировать ВР на наночастицах платины, в своих последующих работах [15–17] они склонились именно ко второму варианту.

Таким образом, частотный сдвиг ВКоРС был ранее измерен только в газовых смесях. Ни в жидких растворах, ни во взвесях частиц в жидкости измерить и даже обнаружить такой частотный сдвиг не удавалось, так как для жидких растворов полуширина линии спонтанного рассеяния назад (и величина спектрального сдвига линии ВР) составляет 0.3–3 МГц, что существенно меньше, чем для газов. Для частиц в жидкости этот сдвиг еще меньше и составляет ~ 30–12000 Гц. В [13–17; 24] авторы использовали обычный для исследования ВР способ спектральных измерений с помощью интерферометра Фабри-Перо, разрешения которого явно недостаточно для измерения указанных частотных сдвигов.

7

Методология и методы исследования

Для измерения малых сдвигов подходящим является метод корреляционной спектроскопии, который позволяет измерять частотные сдвиги от 1 до 10⁵ Гц. При этом нужно использовать непрерывный лазер, а не мощный импульсный, к чему все привыкли при исследовании вынужденного рассеяния. Поэтому актуальность нашей работы с методической точки зрения определяется необходимостью разработки новой методики исследования малых сдвигов вынужденного рассеяния.

Первые попытки зафиксировать частотный сдвиг и нелинейный рост интенсивности вынужденного диффузионного (концентрационного) рассеяния света на субмикронных частицах в жидкости с помощью непрерывного лазера и коррелятора были предприняты нами во взвесях наночастиц кремния в масле и алмаза в воде [25].

В результате интерференции возбуждающего пучка и рассеянной назад волны создается интерференционная решетка интенсивности, в пучности которой при определенной амплитуде решетки начинают затягиваться частицы [26]. В результате построения периодической структуры из частиц интенсивность рассеянного света увеличивается и, следовательно, увеличивается амплитуда интерференционной картины, в которую начинают затягиваться все больше частиц. На самом деле такая периодическая структура частиц в жидкости представляет собой волну, которая движется относительно жидкости [27]. Направление движения волны относительно возбуждающего пучка определяет направление частотного сдвига спектральной линии ВКоРС. Поэтому работа актуальна с точки зрения разработки нового метода определения направления спектрального сдвига с помощью корреляционной спектроскопии в условиях потока.

Заметим, что в настоящее время появляется множество новых композитных материалов, наносистем и других объектов, в которых происходят процессы с большими характерными временами. Таким образом, настоящая работа актуальна с точки зрения фундаментальной науки как дополнение к общей картине перехода от спонтанного рассеяния света в режим вынужденного рассеяния, с методической точки зрения как разработка нового метода исследования вынужденного рассеяния с малыми частотными сдвигами и метода определения знака этих сдвигов и с практической точки зрения как работа, с одной стороны определяющая пределы применимости широко используемого метода динамического рассеяния света (ДРС) [28], особенно при измерения рассеяния назад при щуповых измерениях, а с другой стороны

расширяющая возможности корреляционной спектроскопии для определения не только величины, но и направления частотного сдвига в потоке жидкости или в движущимся объекте.

Цель и задачи работы

Цель работы – получить нелинейное рассеяние (ВКоРС) на субмикронных частицах различных видов и размеров в различных оптических схемах, измерить спектральные сдвиги ВКоРС на субмикронных частицах в жидкости, сравнив их с теоретическими значениями, показать нелинейный рост интенсивности рассеяния с ростом интенсивности возбуждающего излучения и таким образом экспериментально показать переход рассеяния на субмикронных частицах в жидкости в мидкости в режим.

Для достижения поставленной цели необходимо было решить следующие задачи:

- Разработать методику и создать оптическую схему рассеяния назад для регистрации малых частотных сдвигов (~ 100 Гц) и интенсивности вынужденного рассеяния света с помощью корреляционной спектроскопии и непрерывного лазера.
- Экспериментально получить корреляционные функции ВКоРС на субмикронных агрегатах наночастиц алмаза и измерить частотный сдвиг линии ВР, зафиксировать нелинейный рост интенсивности рассеянного назад света при увеличении мощности возбуждающего света.
- Разработать методику и экспериментально реализовать световодную оптическую схему рассеяния назад для регистрации полных частотных сдвигов (~ 1000 Гц) в условиях конвекции при наблюдении ВКоРС с одновременным независимым измерением скорости потока жидкости.
- 4. Экспериментально получить корреляционные функции ВКоРС на субмикронных частицах латекса разных размеров в жидкости в условиях конвекции, определить величину и направление спектрального сдвига ВКоРС, зафиксировать нелинейный рост интенсивности рассеянного назад света при увеличении мощности возбуждающего света в световодной схеме.
- Получить аппроксимационные формулы для определения величины спектральных сдвигов ВКоРС на субмикронных частицах в жидкости из корреляционной функции с косинусоидальной составляющей для определения спектральных

сдвигов линий ВКоРС на субмикронных частицах в жидкости при наличии и в отсутствие конвекционного потока жидкости.

6. Оценить теоретические значения спектральных сдвигов ВКоРС на субмикронных частицах в жидкости и коэффициента усиления д для используемых в эксперименте взвесей по известным соотношениям И сопоставить С экспериментально полученными значениями спектральных слвигов И коэффициентов усиления g.

Научная новизна диссертации

В работе получены следующие новые результаты:

- Разработана и применена методика регистрации малых частотных сдвигов (~ 100 Гц) нелинейного и вынужденного рассеяния света с помощью метода корреляционной спектроскопии и непрерывного лазера.
- Разработана и применена методика измерения малых частотных сдвигов (~ 1000 Гц) нелинейного и вынужденного рассеяния с одновременным измерением скорости потока жидкости при регистрации вынужденного рассеяния света в направлении потока и в противоположном направлении, для определения знака частотного сдвига.
- 3. Показано, что при увеличении мощности возбуждающего лазерного излучения в корреляционной функции рассеянного света появляется косинусоидальная компонента, то есть в спектре появляется сдвинутая линия, измерен спектральный сдвиг этой линии и показано, что измеренные частотные сдвиги соответствуют полуширинам спонтанного рассеяния на флуктуациях концентрации частиц для взвесей с различными частицами.
- 4. Показана нелинейность в интенсивности света, рассеянного частицами в жидкости, при увеличении мощности возбуждающего лазерного излучения.
- 5. Измерен спектральный сдвиг линии вынужденного концентрационного рассеяния света на субмикронных частицах в жидкости.
- Экспериментально измерен коэффициент усиления *g* вынужденного концентрационного рассеяния света для взвеси субмикронных частиц алмаза и латекса в жидкости.

- Экспериментально показано наличие стоксова и антистоксова спектрального сдвига линии вынужденного концентрационного рассеяния света на субмикронных частицах в жидкости и зависимость направления сдвига от размера частиц.
- Таким образом показан переход концентрационного рассеяния на субмикронных частицах в жидкости в вынужденный режим.

Положения, выносимые на защиту:

- Экспериментальный метод регистрации спектральных линий нелинейного или вынужденного режима концентрационного рассеяния света во взвесях субмикронных частиц в жидкостях, основанный на использовании корреляционной спектроскопии и непрерывного лазера, позволяющий измерять малые сдвиги спектральной линии вынужденного рассеяния света ~ 10 Гц – 20 кГц.
- Методика определения знака частотного сдвига света, рассеянного взвесью частиц в нелинейном или вынужденном режиме в потоке жидкости по разности полной скорости концентрационной волны и скорости конвекции жидкости, измеряемой методом Допплера.
- 3. Частотный сдвиг линии вынужденного режима концентрационного рассеяния света меняет знак в зависимости от радиуса частиц.
- 4. Экспериментально обнаружен нелинейный режим концентрационного рассеяния света во взвесях субмикронных частиц в жидкостях, по нелинейному характеру зависимости интенсивности света, рассеянного взвесью, от мощности возбуждающего излучения, по наличию частотного сдвига спектральной линии рассеяния, близкого к полуширине линии спонтанного рассеяния света и по изменению знака этого сдвига в зависимости от размера субмикронных частиц в жидкости, указывающий на начальную фазу перехода рассеяния в вынужденный режим.

Научная и практическая значимость работы

Результаты диссертационной работы имеют научное, методическое и прикладное значение.

Научная значимость работы определяется экспериментальным обнаружением нелинейного или вынужденного режима концентрационного рассеяния света на субмикронных частицах в жидкости, которое дополняет картину, свойственную всем другим типам рассеяния, где для каждого спонтанного процесса рассеяния ранее удалось наблюдать его вынужденный режим.

Методическое значение заключается в новом способе получения величины и направления спектрального сдвига линии рассеянного света в условиях потока жидкости с помощью одновременного измерения корреляционной функции рассеянного света и скорости потока допплеровским методом. Меняя направления вектора рассеяния *q* на противоположное, можно точно определять направление частотного сдвига вынужденного рассеяния в условиях потока. Это новый способ получения информации о спектральных сдвигах при измерении корреляционных функций, которые обычно дают только величину сдвига. Данный способ в целом ряде случаев проще и дешевле в реализации, чем метод со сдвинутым изначально по частоте опорным пучком.

Прикладное значение заключается в том, что вынужденное концентрационное рассеяние света на субмикронных частицах в жидкости изменяет вид и время когерентности корреляционной функции, что ведет к искажению результатов измерений размеров частиц, измеряемых широко распространенным методом динамического рассеяния света. Показано, что наличие такого вида ВКоРС на субмикронных частицах в жидкости определяет границы применимости широко используемых коммерческих приборов для определения размеров частиц в жидкостях методом динамического рассеяния света, особенно в световодных схемах, и определяет тип лазеров, мощность излучения и оптические схемы, которые не должны использоваться для таких измерений. Например, из полученных результатов следует, что при измерениях размеров частиц в жидкости методом ДРС, для частиц с радиусом 400 нм и объёмной концентрацией 7 × 10⁻⁴ % при линзе, фокусирующей пучок возбуждающего излучения, с фокусом 10 см нельзя использовать лазер с мощностью более 15 мВт. Кроме того, наличие вынужденного рассеяния указывает на возможность создания решетки концентрации и следовательно на возможность создания периодических структур частиц в жидкости, которые могут быть зафиксированы в процессе отверждения жидкости для получения новых композиционных материалов.

12

Личный вклад автора

Диссертация представляет собой результат самостоятельной научной работы автора, выполненной под руководством его научного руководителя. Личный вклад автора диссертации состоит в участии в обсуждении постановки задач, в подборе и анализе литературы по теме диссертации, в совместном с соавторами анализе полученных результатов и написании статей. Автор участвовал в разработке и сборке всех оптических схем и самостоятельно создал часть компонентов для регистрации ВКоРС на субмикронных частицах в жидкости, проводил юстировку этих установок и все измерения, подготавливал экспериментальные образцы, обработал и аппроксимировал все полученные результаты. Он получил формулы аппроксимации для обработки полученных результатов, формулу затягивающей силы, действующей на частицы в жидкости, которая изменяет знак для различных размеров частиц и определяет направление сдвига.

Степень достоверности результатов

Достоверность и обоснованность результатов определяется соответствием экспериментальных результатов, полученных на различных экспериментальных оптических схемах и для различных частиц различных размеров, а также согласием результатов теоретических предсказаний с экспериментальными данными, тестовыми измерениями на оптической установке размеров частиц методом ДРС, воспроизводимостью результатов измерений. Достоверность результатов подтверждена публикациями в ведущих рецензируемых оптических научных журналах, таких как «Optics Communications» и «Квантовая Электроника».

Апробация работы

Результаты этой работы были доложены на 6 международных и 4 всероссийских конференциях и представлены в сборниках трудов:

- 1. VII Международная конференция «Фундаментальные проблемы оптики», Санкт-Петербург, 2012.
- 2. XIV Школа молодых ученых «Актуальные проблемы физики» Звенигород, 2012.
- 3. 11-th International Conference «Correlation Optics 13», Chernivtsi, Ukrain, 2013.

- 4. V Всероссийская молодежная конференция «Фундаментальные и инновационные вопросы современной физики» октябрь 2013, ФИАН, Москва.
- 5. III Международная молодежная научная школа-конференция Современные проблемы физики и технологий, Москва 2014.
- XV Школа молодых ученых «Актуальные проблемы физики» Москва, ФИАН, 2014.
- IX Международная конференция молодых ученых и специалистов «Оптика-2015», 12–16 октября, Санкт-Петербург.
- VI Всероссийская молодежная конференция «Фундаментальные и инновационные вопросы современной физики», 16–21 ноября ФИАН 2015, Москва.
- 9. 2-я международная конференция «Плазменные, лазерные исследования и технологии», январь 2016, НИЯУ МИФИ.
- 10. V Международной молодежной научной школы-конференции «Современные проблемы физики и технологий» 2016, НИЯУ МИФИ.

Публикации

Основные результаты диссертационной работы опубликованы в 5 статьях в рецензируемых научных изданиях [25; 29–31; 33], индексируемых в базах данных Web of Science и Scopus, и в 9 публикациях в материалах научных конференций.

Статьи:

- Burkhanov I.S., Krivokhizha S.V, Chaikov L.L. Stokes and anti-stokes stimulated Mie scattering on nanoparticle suspensions of latex // Optics Communications. – 2016. – Vol. 381. – P. 360–364.
- Бурханов И.С., Кривохижа С.В., Чайков Л.Л. Вынужденное концентрационное (диффузионное) рассеяние света на наночастицах жидкой суспензии // Квантовая электроника. – 2016. – Т. 46. – № 6. – С. 548–554.
- Бурханов И.С., Чайков Л.Л. Экспериментальная проверка возможности обнаружения вынужденного «диффузионного» рассеяния на частицах в жидкости // КСФ. – 2012. –Т. 39. – № 3. – С. 22.
- Burkhanov I.S., Krivokhizha S.V, Chaikov L.L. Influence of convection on the stimulated concentration light scattering // Journal of Physics: Conference Series 735. – 2016. – P. 012022.

 Burkhanov I.S., Krivokhizha S.V., Chaikov L.L. The spectra of stimulated concentration scattering (Mie scattering) on nanoparticles latex suspension in the presence of convection // Journal of Physics: Conference Series 747. – 2016. – P. 012055.

Публикации в материалах научных конференций:

- Экспериментальная проверка возможности обнаружения вынужденного «диффузионного» рассеяния на частицах в жидкости / Бурханов И.С., Чайков Л.Л.
 // VII Международная конференция «Фундаментальные проблемы оптики», НИУИТМО, Санкт-Петербург. – 2012. – С. 69–71.
- Экспериментальная проверка возможности обнаружения вынужденного «диффузионного» рассеяния на частицах в жидкости / Бурханов И.С., Чайков Л.Л.
 // XIV Школа молодых ученых «Актуальные проблемы физики» Звенигород, ФИАН, Москва. – 2012. – С. 59–60.
- Вынужденное диффузионное рассеяния света на вариациях концентрациях частиц в жидкости / Бурханов И.С., Чайков Л.Л. / V Всероссийская молодежная конференция «Фундаментальные и инновационные вопросы современной физики», ФИАН, Москва. – 2013. – С. 34.
- Stimulated diffusion light scattering on variations of particles concentration in liquids / Burkhanov I.S., Chaikov L.L. // 11-th International Conference «Correlation Optics'13», Chernivtsi, Ukrain, Proc. SPIE 9066. – 2013. – P. 906610.
- Вынужденное концентрационное рассеяния света на вариациях концентрациях частиц в жидкости / Бурханов И.С., Чайков Л.Л. // XV Школа молодых ученых «Актуальные проблемы физики», ФИАН, Москва. – 2014. – С. 69–70.
- Особенности вынужденного диффузионного рассеяния света на вариациях концентрации наночастиц в жидкости / Бурханов И.С., Чайков Л.Л. // Ш Международная молодежная научная школа-конференция «Современные проблемы физики и технологий», Москва. – 2014. – С. 248–249.
- Влияние конвекции на вынужденное концентрационное рассеяние света / Бурханов И.С., Кривохижа С.В., Чайков Л.Л. // IX Международная конференция молодых ученый и специалистов «Оптика–2015», НИУИТМО, Санкт-Петербург. – 2015. – С. 256–258.
- 8. Вынужденное диффузионное рассеяние света на вариациях концентрации наночастиц в жидкости при наличии конвекции / Бурханов И.С., Чайков Л.Л. // VI

Всеросийская молодежная конференция по фундаментальным и инновационным вопросам современной физики, ФИАН, Москва. – 2015. – С. 60.

9. Вынужденное концентрационное рассеяние света (ВКоРС) на частицах в жидкости: стокс и анти-стокс / Бурханов И.С., Кривохижа С.В., Чайков Л.Л. // Тезисы докладов. «Современные проблемы физики и технологии» V-я Международная молодежная научная школа-конференция, НИЯУ МИФИ, Москва. – 2016. – Ч. 1.– С. 376.

Структура диссертации

Диссертация состоит из введения, трех глав, заключения, приложения и списка литературы. Объем диссертации составляет 130 страниц, включая 67 рисунков и 4 таблицы. Список литературы включает в себя 79 наименований.

Содержание работы

Во введении обоснована актуальность работы, сформулирована цель и задачи, перечислены полученные в диссертации результаты, показана их новизна, а также научная и практическая ценность, представлены положения, выносимые на защиту, и описана структура диссертации.

Глава 1 посвящена обзору имеющейся литературы по теме диссертации. Описана теория спонтанного рассеяния света и история открытия этого явления, представлен спектр спонтанного молекулярного рассеяния, приведены значения характерных спектральных сдвигов, ширин спектральных линий, времен релаксации, а также коэффициентов усиления для различных видов вынужденных рассеяний. Описаны признаки вынужденного рассеяния и процессы, определяющие тип вынужденного рассеяния и частотного сдвига спектральной линии вынужденного рассеяния. Выведена градиентная сила, действующая на сферическую частицу в жидкости в интерференционной решетке интенсивности возбуждающего излучения и рассеянного назад света. Показано, что затягивающая сила F_e имеет нули при определенных радиусах частиц R, и от радиуса частицы R зависит ее знак, который определяет, в максимумы или минимумы интерференционной картины будут затягиваться частицы, от чего зависит направление спектрального сдвига линии ВКоРС на субмикронных частицах в жидкости. Иллюстрируется затягивание в максимумы или минимумы интерференционной картины

частиц, в диаметр которых укладывается несколько периодов интерференционной решетки, и рассмотрены примеры для определенных размеров частиц.

Глава 2 посвящена описанию методов получения корреляционных функций на экспериментальных установках для регистрации вынужденного рассеяния и описана работа коррелятора и программного обеспечения. Описана подготовка образцов и приведены теоретические оценки для затягивающей силы и коэффициентов усиления д ВКоРС на субмикронных частицах в жидкости. Проведена проверка линейности измерения для интенсивность детекторов, регистрирующих падающего излучения, выведен ВИД корреляционной функции вынужденного рассеяния света в условиях покоя жидкости и при наличии потока в объеме рассеяния и оценено эффективное расстояние от конца световодного щупа до точки регистрации корреляционной функции. Также показан вывод дифракционной эффективности Брэгговской решетки и её применение для оценки порога вынужденного концентрационного рассеяния света на субмикронных частицах в жидкости. Схематично представлен вид спектров спонтанного и вынужденного рассеяния света и форма коэффициента усиления д вынужденного рассеяния. Описан метод определения частотного сдвига ВКоРС на субмикронных частицах в жидкости и его направления при наличии конвекционного потока.

<u>В Главе 3</u> диссертации представлены корреляционные функции рассеянного света для наночастиц кремния в масле, алмаза и латекса в воде. По периоду косинусоидальной составляющей определен сдвиг спектральной линии ВКоРС на субмикронных частицах в жидкости и измерены коэффициенты усиления для частиц алмаза и латекса. Для частиц латекса в условиях потока жидкости определены величины и направления спектральных сдвигов ВКоРС. Успешно проведены дополнительные измерения для подтверждения наблюдаемого эффекта путем добавления в схему оптической развязки или поперечного резонатора.

<u>В заключении</u> приведены основные результаты диссертационной работы.

Глава 1. Литературный обзор

1.1 Введение

Рассеяние света в самом общем смысле представляет собой процесс изменения свойств падающего света при взаимодействии с веществом.

Причиной возникновения рассеяния света в среде является оптическая неоднородность. В одном случае это существование инородных частиц вещества с показателем преломления n_p в среде с показателем преломления n_m , где $n_p \neq n_m$, то есть наличие твердых, жидких или газообразных частиц в жидкостях или газах. Во втором случае это статистические явления (флуктуации), вызванные тепловой природой движения частиц.

Впервые удачные экспериментальные работы по рассеянию света были сделаны Д. Тиндалем в 1869 г., в них изучалось прохождение света через оптически неоднородную среду. Тиндаль объяснил голубой цвет неба рассеянием на частицах, но не смог преодолеть противоречия: в горах, где воздух чище, голубой цвет неба еще насыщеннее [34].

Лорд Рэлей в 1871 г. создал теорию, которая описывает интенсивность рассеяния света на отдельных атомах или любых других маленьких частицах, имеющих показатель преломления, отличающийся от показателя преломления среды, и размер которых много меньше длины световой волны. Рэлей впервые объяснил голубой цвет неба днем и красноватый оттенок на закате [35]. Для расчета рассеяния он складывал интенсивности излучающих диполей, то есть поляризованных световой волной частиц, расположенных друг от друга дальше длины когерентности видимого света.

Из теории Рэлея следует, что интенсивность *I* рассеянного света обратно пропорциональна четвертой степени длины волны λ рассеянного света $I \sim \lambda^{-4}$ и пропорциональна шестой степени линейного размера рассеивающей частицы $I \sim V^2 \sim r^6$. Для естественно поляризованного света:

$$I = I_0 \frac{9\pi^2 \varepsilon^2 V_p^2}{L^2 \lambda^4} \left(\frac{\varepsilon - \varepsilon_0}{\varepsilon + \varepsilon_0}\right)^2 (1 + \cos^2 \theta).$$
(1.1.1)

Здесь I_0 – интенсивность падающего света, ε_0 – диэлектрическая проницаемость сплошной среды, ε – диэлектрическая проницаемость сферической частицы, V_p – объем

частицы, L – расстояние от рассеивающей частицы до точки наблюдения, λ – длина волны падающего света, деполяризованного и немонохроматичного, θ – угол рассеяния.

Рассеяние света на мелких частицах представляет собой отдельный класс оптических явлений – Рэлеевское рассеяние. Для рассеяния на крупных частицах существует теория Ми, созданная немецким ученым Г. Ми в 1908 г. [36], которая позволяет точно рассчитать индикатрису рассеяния на каждой частице [37].

1.2 Спонтанное молекулярное рассеяние света

Рассеяние света в средах, состоящих из большого количества частиц, отличается от рассеяния света отдельными частицами. Спонтанным молекулярным рассеянием света называется рассеяние света на неоднородностях, которые вызываются флуктуациями термодинамических параметров, которое было описано Смолуховским [38].

Спонтанное молекулярное рассеяние света в сплошной среде объясняется наличием в среде неоднородностей показателя преломления, вызванных тепловыми флуктуациями таких статистических изменений свойств среды, как давление P или плотность ρ , энтропия S или температура T, анизотропия и концентрация C примеси или частиц раствора. Молекулярное рассеяние света следует отличать от комбинационного рассеяния света, которое происходит на энергетических уровнях молекул.

Если в газе средняя длина свободного пробега молекулы больше длины волны падающего света, то молекула представляет собой оптическую неоднородность, и на ней происходит рассеяние света. Если представить себе молекулу как осциллятор, то падающая на него световая волна частоты ω заставит осциллятор колебаться с той же частотой ω (вынужденное колебание) и излучать в разные стороны свет той же частоты. Это и будет рассеяние света отдельной молекулой. Общий поток рассеянного света в этом случае определяется суммой переизлучения всех освещенных молекул. Если отдельные молекулы находятся в движении, то частота рассеянного каждой молекулой света будет изменена вследствие эффекта Допплера [39; 40]. Обычно такое изменение невелико, и оно ведет к уширению линии рассеянного света, если рассеяние возбуждалось монохроматическим светом.

В системе неподвижных близко расположенных с постоянной плотностью молекул сумма рассеянных волн будет идентична возбуждающей волне, в этом случае о рассеянии на отдельной молекуле говорить нельзя, рассеяние будет происходить при таких флуктуациях физических величин, которые ведут к возникновению оптических неоднородностей. Линейные

размеры таких неоднородностей вдали от критических точек много меньше длины волны света. Световая волна, встречающая на своем пути такую неоднородность, дифрагирует на ней. В этом случае рассеянный свет и есть дифрагируемый свет.

Идея рассеяния света на флуктуации плотности, возникающей в результате хаотического теплого движения молекул, принадлежит Смолуховскому [38]. На основе этой идеи в 1910 г. Эйнштейн создал количественную теорию молекулярного рассеяния света [41]. Вероятно, что в результате теплового хаотического движения молекул в очень маленьком объеме в определенном месте и в определенное время соберутся молекулы с несколько большим или меньшим импульсом (количеством движения), чем в среднем по большому объему. Это означает, что возникла флуктуация давления. Если в маленьком объеме в определенное время и в определенное время соберутся молекулы с несколько большому объему. Это означает, что возникла флуктуация давления. Если в маленьком объеме в определенное время и в определенном месте соберутся молекулы с несколько большей или меньшей энергией, чем средняя по большому объему, то возникнет флуктуация температуры. Аналогично определяется флуктуация концентрации.

Пользуясь классическими работами Эйнштейна флуктуации названных выше величин можно вычислить, выразив их через измеряемые величины [41]. Если среда состоит из анизотропных молекул, то следует ожидать, что будут наблюдаться флуктуации анизотропии. Это означает, что в малом объеме в определенное время в определенном месте оси наибольшей (или наименьшей) поляризуемости молекул будут преимущественно ориентированы в какомлибо направлении.

Флуктуации происходят благодаря статистическому характеру теплового движения, они возникают, исчезают и вновь возникают по всему объему образца. Разные флуктуации будут возникать и исчезать по разным законам. Так, флуктуация давления не останется в том месте, где возникла, а побежит по образцу со скоростью звука. Флуктуация концентрации будет возникать и исчезать со скоростью, определяемой коэффициентом диффузии *D* и её характерным размером. Флуктуация анизотропии будет возникать и исчезать за время, определяемое временем релаксации анизотропии (поворотная диффузия).

Молекулярное рассеяние света, а в особенности спектры молекулярного рассеяния света, позволяют получать большое количество информации о свойствах вещества.

1.3 Спектр спонтанного молекулярного рассеяния света

Рассеяние света называется спонтанным, когда под действием возбуждающего пучка лазерного излучения интенсивность возникающего рассеянного света линейно

20

пропорциональна интенсивности возбуждающего пучка лазерного излучения. На Рис. 1.3.1 изображен наблюдаемый спектр спонтанного молекулярного рассеяния: поляризованная линия Рэлея (рассеяние на флуктуациях энтропии с полушириной 1–10 МГц), компоненты Мандельштама-Бриллюэна (рассеяние на флуктуациях плотности среды со сдвигом ~ 5 ГГц и полушириной 100 МГц), крыло линии Рэлея (деполяризованное рассеяние на флуктуациях анизотропии), спонтанное концентрационное рассеяния – рассеяние на флуктуациях концентрации примеси или частиц (полуширина спектральной линии ~ 0.2 Гц – 10 КГц), а так же комбинационное рассеяние. Компоненты спектра рассеянного света, сдвинутые в область уменьшения частоты, называются Стоксовыми компонентами, в сторону увеличения – Антистоксовыми.



Рисунок 1.3.1 – Спектр спонтанного молекулярного рассеяния света. *ω*₀ – частота возбуждающего света; ± *Ω*₀ – частотный сдвиг компонент Мандельштама-Бриллюэна. СТР – спонтанное рассеяния на флуктуациях энтропии рассеяние света, СРМБ – спонтанное рассеяние Мандельштама-Бриллюэна, СРКЛР – спонтанное рассеяние крыла линии Рэлея, СКРС – спонтанное комбинационное рассеяние света, СРКП – спонтанное рассеяние на концентрации примеси.

1.4 Фурье разложение и вектор рассеяния

Для выяснения природы изменений длины волны рассеянного света, возникающих вследствие рассеяния на флуктуациях давления, можно принять дебаевскую модель твердого тела. При расчете теплоемкости твердого тела Дебай (1912 г.) рассматривал твердое тело как сплошную среду, но с конечным числом собственных колебаний 3N, где N – число атомов или молекул в изучаемом образце [44]. Таким образом, кинетическая энергия теплового движения представляется в виде энергии упругих колебаний, причем минимальная длина упругих волн Λ определяется величиной межчастичных расстояний d, а следовательно максимальная частота v_{max} равна отношению скорости звука v в такой среде к межчастичному расстоянию:

$$v_{max} = \frac{v}{d}.\tag{1.4.1}$$

Для твердого тела (алмаз, сапфир, кварц и т.п.) эта частота наибольшая: ~ $10^{13}-10^{14}$ Гц, для плотных газов ~ 10^{12} Гц. Поскольку *N* велико, количество упругих волн также огромно, они распространяются по всевозможным направлениям, а их частоты лежат в интервале от 0 до максимальной частоты $\Omega_{max} = 2\pi v_{max}$. Рассеяние света есть дифракция света на этих дебаевских тепловых упругих волнах. Если на среду направить параллельный пучок монохроматического света с частотой ω , а рассеянный (дифрагированный) свет рассматривать под некоторым углом к направлению падающего света (углом рассеяния θ), то выделяется практически единственная тепловая упругая волна с длиной Λ , на которой наблюдается дифракция (рассеяние света) (Рис. 1.4.1).

Другими словами, свет, дифрагированный на упругой волне *Λ* под углом *θ*, определяется условием Брэгга, которое коротко можно записать следующим образом:

$$2nA\sin\frac{\theta}{2} = \lambda. \tag{1.4.2}$$

Здесь n – показатель преломления, а λ – длина волны падающего света в вакууме. То есть это свет, отраженный от синусоидальной плоской решетки сжатия и разрежения, бегущей со скоростью звука v упругой тепловой волны частоты Ω , т.е. от одной пространственной Фурье – компоненты флуктуаций давления.



Рисунок 1.4.1 – Схема дифракции (рассеяния) света на тепловой упругой волне. *q* = 2*π*/Λ – волновое число упругой волны, *k*₀, *k*_S – волновые числа возбуждающего и рассеянного света соответственно [42].

Вследствие эффекта Допплера частота рассеянного света будет увеличена или уменьшена на величину Ω в зависимости от направления распространения упругой волны. Таким образом, если возбуждающий свет имеет частоту ω_0 , то в спектре рассеянного света будут две компоненты с частотами $\omega_0 + \Omega$ и $\omega_0 - \Omega$. Эти компоненты называются компонентами Мандельштама-Бриллюэна. С этой точки зрения флуктуацию давления нужно рассматривать как результат интерференции упругих тепловых волн. Задача экспериментального обнаружения смещенных компонент в свете, рассеянном твердым телом, была сформулирована Л.И. Мандельштамом [45]. Это все очевидно для рассеяния Мандельштама-Бриллюэна. Но на самом деле, то же самое происходит при любом виде рассеяния, поэтому данное рассмотрение удобно, и мы его используем. Когда мы смотрим рассеяние на определенной длине волны под определенным углом, мы выделяем и видим одну Фурье-компоненту. Только в случае рассеяния с несдвинутой спектральной линией волна показателя преломления неподвижна, сдвига спектральной линии нет, а релаксация флуктуаций дает уширение спектральной линии.

Таким образом описываются все виды рассеяния: на флуктуациях давления, на флуктуациях анизотропии, на флуктуации энтропии, на флуктуациях концентрации примесей, на частицах или, что то же самое на флуктуациях концентрации частиц [41; 46].

1.5 Упругое и неупругое рассеяние

Все рассеяние также можно поделить на 2 подвида. Если частота возбуждающего и рассеянного света совпадают, то такое рассеяние называют упругим. К упругому рассеянию относятся Рэлеевское рассеяние и рассеяние на частицах в дисперсионной среде. Если же частота возбуждающего и рассеивающего света имеют отличие, то такое рассеяние называется неупругим. К этому виду рассеяния относят комбинационное рассеяние света (КРС) и рассеяние Мандельштама-Бриллюэна.

1.6 Спонтанное рассеяние Мандельштама-Бриллюэна

Спонтанное рассеяние Мандельштама-Бриллюэна (СРМБ) происходит на тепловых флуктуациях давления, которые вызывают флуктуации показателя преломления. Такие флуктуации образуют упругую тепловую волну и модулируют рассеянный свет функцией $\Phi(t)$. Следовательно рассеянный свет можно описать через возбуждающую волну E(t) и модулирующую функцию выражением:

$$E'(t) = E(t)\Phi(t).$$
 (1.6.1)

Схема процесса РМБ представлена на Рис. 1.6.1.

В идеализированное среде, в которой отсутствуют потери и дисперсия, вышеприведенные флуктуации будет описывать следующее волновое уравнение:

$$\ddot{\phi} + v^2 \nabla^2 \phi = 0. \tag{1.6.2}$$

Как известно, решением волнового уравнения может быть любая функция вида:

$$\Phi(t) = \Phi_0 \cos(\Omega_0 t - qr - \varphi), \qquad (1.6.3)$$

где Φ_0 – максимальное значение амплитуды $\Phi(t)$, Ω_o – круговая частота, \boldsymbol{q} – волновой вектор, \boldsymbol{r} – координата, \boldsymbol{v} – скорость звука, φ – начальная фаза колебаний.

Подставляя (1.6.3) в (1.6.1) получаем

$$E'(t) = \frac{\Phi_0 E_0}{2} [exp\{i[(\omega_o + \Omega_o)t - q\mathbf{r} - \varphi]\} + exp\{i[(\omega_o - \Omega_o)t - q\mathbf{r} - \varphi]\}].$$
(1.6.4)

Напомним, что в среде существуют волны со всеми ω и всеми направлениями q, а выбрав длину волны λ и угол рассеяния θ , мы выбираем одну волну, удовлетворяющую условию Брэгга или одну Фурье компоненту. Из закона сохранения энергии и импульса, из рассмотрения Допплер-эффекта или из (1.6.4) получается одно и то же:



Рисунок 1.6.1 – Рассеяние Мандельштама-Брюллюэна на упругой звуковой волне давления.

$$\omega_s - \omega_0 = \pm \Omega_o, \qquad k_s - k_0 = \pm q, \qquad (1.6.5)$$

где ω_s – частота рассеянного света, ω_0 – частота возбуждающего света, Ω_o – частота упругой волны, k_s , q – волновые вектора рассеянного света и упругой волны соответственно.

Учитывая малую величину $\Omega/\omega_o~(\sim 10^{-5})$ можно положить $|k_s| \sim |k_o|$, тогда:

$$|q| = \frac{2\pi}{\Lambda} = \frac{2\pi n}{\lambda} \sin \frac{\theta}{2},\tag{1.6.6}$$

где Л, θ – длина упругой волны и угол рассеяния. Из (1.6.6) можно получить:

$$\Omega_o = vq = \frac{4\pi nv}{\lambda} \sin\frac{\theta}{2} = 2n\frac{v}{c}\omega_o \sin\frac{\theta}{2}.$$
(1.6.7)

Из формулы (1.6.7) видно, что частотный сдвиг пропорционален показателю преломления, отношению скорости звука к скорости света, и синусу половины угла рассеяния.

$$\frac{\Delta\omega}{\omega_0} = 2n\frac{v}{c}\sin\frac{\theta}{2}.$$
(1.6.8)

1.7 Спонтанное комбинационное рассеяние света

Идею комбинационного рассеяния света заложил Л.И. Мандельштам. Она основывалась на том, что в среде существуют собственные колебательные процессы, которые модулируют падающую световую волну. Однако явление экспериментально подтвердили практически одновременно в 1928 г. Л.И. Мандельштам и Г.С. Ландсберг, а также Ч.В. Раман и К.С. Кришнан.

В процессе СКРС наблюдается рассеянный свет с частотами, соответствующими переходам с возбужденного виртуального уровня на колебательные уровни, более высокие, чем основной уровень. Поэтому частотный сдвиг линии СКРС не зависит от частоты возбуждающего света и определяется разностью энергий колебательных уровней. Если молекулы возбуждаются на реальный уровень или выше, то наблюдается люминесценция с частотой, соответствующей разности это реального и основного уровней.

Для различных веществ набор комбинационных линий отличается, поскольку различается молекулярный состав этих веществ и, следовательно, колебательные уровни молекул. Это

рассеяние является некогерентным, так как начальные фазы атомов отличаются и не зависят друг от друга [46].

1.8 Спонтанное рассеяние крыла линии Рэлея

Спонтанное рассеяние крыла линии Рэлея происходит на флуктуациях анизотропии среды. Спектральная линия СРКЛР не имеет сдвига и состоит из деполяризованной и поляризованной частей [42; 47; 48].

$$\Gamma = \frac{1}{\tau} = D_r = \frac{k_B T}{8\pi\eta R^3},$$
(1.8.1)

где τ – время релаксации, D_r – коэффициент вращательной диффузии, k_B – константа Больцмана, T – абсолютная температура и η – вязкость среды, в которой взвешены частицы радиуса R.

1.9 Спонтанное рассеяние Рэлея

Рэлеевским рассеянием называют рассеяние света на мелких взвешенных или отдельных частицах, молекулах, либо в любом веществе, в котором в малых областях, распределенных в статистическом беспорядке, показатель преломления отличается от других таких же малых соседних областей. Рассеяние может называться Рэлеевским, если размер частиц гораздо меньше длины световой волны и частицы так далеко расположены друг от друга, что их взаимодействием можно пренебречь.

Рассеяние света на нераспространяющихся в пространстве флуктуациях энтропии (изобарические флуктуации), на флуктуациях концентрации и на частицах даёт несдвинутые спектральные линии относительно возбуждающего света. Такое рассеяние не имеет частотного сдвига и носит также название квазиупругого.

1.10 Вынужденное рассеяние света. Частотные сдвиги

В изучении явлений рассеяния света произошел огромный скачок с появлением лазеров, так как появились высококогерентные источники плоских пучков больших мощностей. Поэтому увеличились интенсивности возбуждающего света, а следовательно и рассеянного. Это в свою очередь определило новый этап развития физики и открытие новых физических явлений.

Данный технологический прогресс позволил наблюдать новый класс явлений в рассеянии света, называемый вынужденным рассеянием света (ВР). Основное отличие ВР от спонтанного рассеяния света (СР) заключается в том, что у первого наблюдается линейная зависимость интенсивности рассеянного света от интенсивности возбуждающего света, а ВР имеет нелинейную зависимость интенсивности от интенсивности возбуждающего света, а также в этом процессе наблюдается изменение спектра. Это изменение наиболее кардинально для всех видов рассеяния света, спектр которых в спонтанном режиме не сдвинут относительно возбуждающего света.

При взаимодействии возбуждающего пучка и рассеянного назад света образуется интерференционная решетка интенсивности и соответственно решетка показателя преломления. Свет, рассеянный на этой решетке, отражается более эффективно. В результате этого процесса амплитуда рассеянного назад света увеличивается и, взаимодействуя с возбуждающим пучком, увеличивает амплитуду интерференционной картины. Данный процесс аналогичен ядерной цепной реакции и называется вынужденным рассеянием света.

Все спонтанные виды рассеяния имеют свой вынужденный аналог и соответствующий частотный сдвиг:

- вынужденное комбинационное рассеяние (ВКР, на уровнях возбуждения молекул) связано с квантовыми переходами (электронными, колебательными, вращательными) в рассеивающих центрах (молекулах или атомах).
 - о частотный сдвиг вынужденного рассеяния определяется энергетическим расстоянием между основным и конечным метастабильным состоянием.
- вынужденное рассеяние Мандельштама-Бриллюэна (ВРМБ, на флуктуациях/вариациях давления) связано с нелинейным взаимодействием между электромагнитным полем лазерного пучка и полем акустической волны, усиленной за счёт электрострикции.
 - о частотный сдвиг вынужденного рассеяния при заданном угле рассеяния определяется длиной волны лазера и скоростью звука.
- вынужденное рассеяние крыла линии Рэлея (ВРКЛР, на флуктуациях/вариациях анизотропии) связано с Керр-эффектом 2го порядка – переориентацией анизотропных молекул под действием возбуждающего и рассеянного пучков (изначально тепловые флуктуации анизотропии, в спонтанном рассеянии это Рэлеевская деполяризованная линия).

- о частотный сдвиг вынужденного рассеяния определяется вязкостью рассеивающей среды, размером молекул и равен приблизительно полуширине линии спонтанного рассеяния. Также при таком типе рассеяния наблюдаются более быстрые процессы угловых колебаний или «дрыгания» частиц, называемые либрационными [43].
- вынужденное температурное рассеяние (ВТР, на флуктуациях/вариациях энтропии) возникает в линейно поглощающих средах на мощных температурных вариациях энтропии, при возбуждении лазерным пучком. ВТР-І – возникает вследствие электрокалорического эффекта, а ВТР-ІІ вследствие прямого поглощения света средой.
 - Частотный сдвиг стоксов для ВТР-I и антистоксов для ВТР-II и равен приблизительно полуширине линии спонтанного рассеяния.

В данной работе не имеем возможности рассматривать механизмы ВТР-I и ВТР-II, важно лишь то, что возникает частотный сдвиг линии приблизительно на полуширину линии спонтанного рассеяния.

Недавно также открыто вынужденное глобулярное рассеяние (ВГР), низкочастотное комбинационное рассеяния на собственных колебаниях частиц, сфазированных в интерференционной решетке возбуждающего и рассеянного света [11].

У рассеяния света есть 2 отличительных фактора, при наличии которых можно утверждать, что данное рассеяния является вынужденным:

Тип вынужденного рассеяния	Сдвиг, см ⁻¹	Ширина линии, см ⁻¹	Время релаксации, с	Коэффициент усиления <i>g</i> для ВР, см/Вт
Комбинационное	25-4000	5-100	10 ⁻¹²	5×10^{-12}
Мандельштама- Бриллюэна	0.3	5×10^{-3}	10 ⁻⁹	10 ⁻⁹
Крыла линии Рэлея	50	5	$10^{-11} - 10^{-13}$	10 ⁻¹²
На флуктуациях энтропии	10 ⁻⁴ -10 ⁻³	10 ⁻⁴ -10 ⁻³	10 ⁻⁸	10-9
На флуктуациях концентрации в смеси газов	0.005–0.05	1–500	10 ⁻⁷	10 ⁻⁹ -10 ⁻¹¹

Таблица 1.10.1 – Характеристики вынужденного рассеяния.

Нелинейная (экспоненциальная) зависимость роста интенсивности рассеянного света *I*_{st} при увеличении мощности возбуждающего пучка *I*_L [22].

$$I_{st} = I_{sp} e^{I_L g L} + I_{sp}. (1.10.1)$$

Экспериментально коэффициент усиления *д* можно измерить, зная:

- 1. Интенсивность вынужденного рассеяния *I*_{st}.
- 2. Интенсивность спонтанного рассеяния I_{sp} .
- 3. Интенсивность возбуждающего пучка I_L.
- 4. L длину взаимодействия I_L и I_{sp} .

Если спектральная линия спонтанного рассеяния изначально не сдвинута, то в спектре вынужденного рассеяния появляется дополнительная спектральная линия, сдвинутая на полуширину линии спонтанного рассеяния от частоты возбуждающего излучения. Для случая изначально сдвинутой спектральной линии спонтанного рассеяния, в спектре вынужденного рассеяния появляется дополнительный сдвиг относительно линии спонтанного рассеяния, однако он пропорционален отношению ширины линии к её сдвигу, и обычно незаметен на фоне других искажающих эффектов.

Основные характеристики различных видов вынужденного рассеяния света представлены в Табл. 1.10.1 [22; 30; 42; 43]. Время релаксации представляет собой скорость затухания соответствующих флуктуаций, то есть время, требуемое возмущенной системе для возврата в состояние равновесия.

1.11 Вынужденное комбинационное рассеяние света

ВКР возникает при больших мощностях возбуждающего лазерного излучения. Механизм его действия аналогичен СКР, но существует принципиальное отличие. Как мы уже знаем, процесс СКР не когерентен. При ВКР эффективность взаимодействия возбуждающего и рассеянного света со средой увеличивается, вследствие чего ориентируются молекулы в пространстве и фазируются их колебания. Образуется среда, в которой имеются когерентные колебания молекул, испускающих рассеянный свет (оптические фононы), интенсивность которого в разы выше, чем при СКР. Обычно наблюдают в рассеянном свете спектральный сдвиг в стоксову сторону, а для получения интенсивного рассеяния со сдвигом в антистоксову сторону используют четырехфотонный когерентный процесс (КАРС) [49].

1.12 Вынужденное рассеяние крыла линии Рэлея

В спонтанном рассеянии света мощность лазерного пучка незначительна, поэтому она оказывает крайне малое влияние на анизотропию среды. При использовании мощного возбуждающего лазерного излучения появляется решетка интерференции и происходят биения возбуждающего и рассеянного света, которые приводят к вращательной диффузии и соответственно ориентирует анизотропные молекулы, тем самым изменяя анизотропию среды [47; 53]. Коэффициент g_{RW} усиления ВР записывается как:

$$k_{RW} = g_{RW} |E_1|^2 = \frac{2\pi\omega_s}{cn} Im(X_{RW}^{(3)}) |E_1|^2 =$$

= $16 \pi \frac{\omega_s}{cn} \frac{N(\Delta \alpha)^2 \Omega \tau_D |E_1|^2}{45k_B T(1 + \Omega^2 \tau_D^2)},$ (1.12.1)

где $k_{\rm RW}$ – показатель усиления, I_L – интенсивность возбуждающего излучения, $X_{RW}^{(3)}$ – $8N\tau_D(\Delta \alpha)^2/9\nu(1+i\Omega \tau_D)$, $\tau_D = \nu/5k_BT$ – дебаевское время релаксации, ν – коэффициент кинематической вязкости для отдельной молекулы, $\Delta \alpha = \alpha_{\parallel} - \alpha_{\perp}$, α_{\parallel} и α_{\perp} – оптическая поляризуемость вдоль и перпендикулярно оси молекулы, $\Omega = \omega_s - \omega_o$.

Максимальное усиление достигается при $\Omega = 1/\tau_D$, для жидкости обычно $\tau_D \sim 10^{-11}$ с, $(k_{RW})_{max} \sim 10^{-3}$ см/МВт.

1.13 Вынужденное температурное рассеяние

При взаимодействии мощного возбуждающего лазерного излучения и света, рассеянного на флуктуациях энтропии, возникает интерференционная решетка интенсивности и, как следствие, температурные волны. В результате такие волны создают периодическую решетку диэлектрической постоянной, на которой происходит передача энергии накачки в рассеянный свет и снова в температурную волну [9].

Усиливается стоксова часть с максимумом усиления на частоте Ω_{max} , соответствующей полуширине центральной поляризованной линии тонкой структуры теплового рассеяния на флуктуациях энтропии. Для стоксова ВТР коэффициент усиления равен [5]:

$$g^{T}(\Omega) = -2\varkappa_{\omega} + B_{T}|k_{1}|\frac{\Omega/\Omega_{max}}{1 + \Omega^{2}/\Omega^{2}_{max}},$$
(1.13.1)

где \varkappa_{ω} – коэффициент поглощения света; B_T – постоянная для данной среды, тем большая, чем больше $|(\partial \varepsilon / \partial T)_P|$, $\Omega_{max} = q^2 \chi / 2$.

В экспериментальных работах Старунова и Фабелинского [5; 7–10] и теоретических исследованиях [50–52] было выяснено, что ВТР может возникать вследствие двух различных причин. Из общего рассмотрения явления ВТР следует, что линия ВТР, вызванного электрокалорическим эффектом, должна быть смещена в стоксову сторону относительно частоты возбуждающего излучения (ВТР-I), а линия ВТР, возникшего вследствие прямого поглощения света, должна иметь антистоксов сдвиг (ВТР-II) [9].

Из теории, описывающей вынужденное рассеяние, вызванное электрокалорическим эффектом и поглощением света, следует, что коэффициент усиления ВР $g_{\rm T}$ в стационарном режиме равен [9]:

$$k_{T} = g_{T} |E_{0}^{m}|^{2} = \frac{|k_{1}| \left(\frac{\partial \varepsilon}{\partial T_{p}}\right) C}{8\pi\rho C_{p}^{2}} \times \left\{2\kappa_{\omega} + \frac{1}{2n^{2}c} T_{0}\chi q^{2} \left(\frac{\partial \varepsilon}{\partial T}\right)_{p}\right\} \frac{\Omega}{\Omega^{2} + (\chi q^{2} + \delta\omega_{0})^{2}} |E_{0}^{m}|^{2}.$$

$$(1.13.2)$$

Здесь k_T – показатель усиления, $\Omega = \omega_s - \omega_o$, ω_o и ω_s – частоты возбуждающей и рассеянной световых волн, c – скорость света в вакууме, χ – коэффициент температуропроводности, $\delta\omega_0$ – полуширина линии возбуждающего излучения, ρ – плотность, C_P – теплоемкость, T_0 – температура жидкости, E_0^m – электрическое поле падающей волны, остальные обозначения обычные.

Из (1.13.2) видно, что для жидкостей ($(\partial \varepsilon / \partial T)_P < 0$) при

$$2\varkappa_{\omega} < \frac{1}{2nc} T_0 \chi q^2 \left| \left(\frac{\partial \varepsilon}{\partial T} \right)_P \right|, \qquad (1.13.3)$$

коэффициент усиления положителен ($g_T > 0$) при $\Omega > 0$ (стокс), а при больших $2\varkappa_{\omega}$ коэффициент усиления положителен при $\Omega < 0$ (антистокс).

Действительно, исследования показали, что в жидкостях могут реализоваться либо ВТР-I, либо ВТР-II, в зависимости от величины коэффициента поглощения света [53].

1.14 Вынужденное рассеяние Мандельштама-Бриллюэна

При ВРМБ возбуждающий пучок лазера с частотой ω_0 рассеивается на вариациях показателя преломления, обусловленных вариациями давления δP , представляющих собой частоты Ω_{\cdot} В результате рассеяния происходит звуковую волну формирование интерференционной решетки диэлектрической проницаемости, которая совпадает со звуковой волной. Такая решетка движется в сторону распространения возбуждающего пучка, в результате чего наблюдается частотный сдвиг в сторону стоксовых компонент $\omega_s = \omega_0 - \Omega$. С другой стороны происходит пространственное увеличение длины решетки в сторону, противоположную направлению лазерного излучения, за счет увеличения амплитуд решетки плотности и интенсивности рассеянного света. Для объяснения усиления лазерным светом звуковой волны существуют два физических механизма: электрострикция и оптическое поглощение [54; 55].

Перераспределение энергии между возбуждающим пучком, рассеянным светом и звуковой волной происходит аналогично ВТР, образование периодической решетки показателя преломления описано ранее.

Экспериментально наблюдение ВРБМ впервые провел Chiao в 1964 г. ВРБМ, как и другие виды ВР, обычно наблюдается при обратном рассеянии, так как одним из главных факторов его образования является длина взаимодействия световых полей, а она максимальна при рассеянии назад.

1.15 Вынужденное рассеяние на флуктуациях (вариациях) концентрации компонент смесей и частиц

Поскольку все спонтанные виды рассеяния имеют свой вынужденный аналог и соответствующий частотный сдвиг, для спонтанного рассеяния света на флуктуациях концентрации частиц должен существовать свой вынужденный аналог. Впервые возможность наблюдения ВКоРС в растворах жидкостей была показана Беспаловым и Кубаревым в 1967 г. в работе [20]. Они зафиксировали резкое увеличение светимости объёма рассеяния при переносе фильтра из возбуждающего пучка в положение перед камерой при отсутствии разрешаемого спектрального сдвига рассеянного света в бинарных растворах хинолин – этиловый спирт и нитробензол – CCl₄. На основе этого авторы [20] сделали вывод о наблюдении вынужденного концентрационного рассеяния в бинарном растворе. В 1971 г. Бломбергеном и сотрудниками

было показано, что для наблюдения ВКоРС нужны специальные условия, в которых над ВКоРС не будут преобладать другие виды вынужденного рассеяния [23], и самый простой способ его зафиксировать – это взять смесь двух газов с сильным отличием в массе и поляризуемости частиц. В 1972 г. было зафиксировано ВКоРС на вариациях концентрации примеси одного газа в другом и впервые измерен его частотный сдвиг. Для регистрации ВКоРС использовался рубиновый лазер, который фокусировался в кювету, при этом интенсивность каждого импульса была $\approx 200 \text{ MBt/cm}^2$, а ширина линии излучения $\approx 0.005 \text{ см}^{-1}$. Спектр рассеянного света анализировался интерферометром Фабри-Перо (ИФП). Сдвиг линии ВКоРС в смеси Не-Хе составил $\sim 0.005-0.022 \text{ см}^{-1}$, а в смеси He-SF₆ $\sim 0.005-0.018 \text{ см}^{-1}$. Авторы смотрели две моды вынужденного рассеяния света, концентрационную и Мандельштам-Бриллюэновскую. При давлении в 5 и 10 атмосфер и концентрации больше 60% в смеси они смогли их разделить на два конкурирующих вида рассеяния и померить их частотные сдвиги [22].

Аналогичные эксперименты по получению вынужденного рассеяния на флуктуациях концентрации различных молекул вещества были проведены Арефьевым и Морозовым в 1969 г. [21]. В этой работе применялся метод сверхрегенеративного усиления излучения на моде лазера (свет, рассеянный смесью назад, усиливался в лазере) с газовой смесью гелий-ксенон и соотношением их концентраций 10:1. Накачкой служил импульс рубинового лазера, его мощность составляла ~ 150–200 МВт, длительность ~ 10⁻⁸ сек, а фокусное расстояние 20, 40 см. Спектр регистрировался интерферометром Фабри-Перо. Были получены следующие результаты:

- При 3–7 атм. видна стоксова линия ~ 0.055 см⁻¹, что соответствует теоретической величине сдвига ВРМБ (~ 0.056 см⁻¹).
- При 3–4 атм. стоксова линия со смешением 0.033–0.042 см⁻¹ интерпретирована как ВКоРС на флуктуациях концентрации молекул, так как эта линия отсутствует в спектре лазерного излучения и в спектре рассеяния в чистом гелии.
- При давлении больше 4 атм. и меньше 3 атм. отсутствует спектральная линия ВР.
 В первом случае наступает пробой, во втором слишком мал коэффициент усиления.

В 1990 г. в работе [24] использовались водные растворы диметилпиридинов, 2.6 и 3.4 лутидинов и β -пиколин. Вторая гармоника Nd:YAG лазера с длиной волны $\lambda = 532$ нм, длительностью импульса $\tau = 20$ нс и шириной линии $\delta_{\nu} = 0.003$ см⁻¹ фокусировалась в кварцевую термостабилизированную кювету. Спектр рассеянного назад света регистрировался с помощью ИФП. На временной осциллограмме рассеянного света появился дополнительный

пик интенсивности, который интерпретировался как вынужденное концентрационное рассеяние света на флуктуациях (вариациях) концентрации частиц среды.

В 2004–2005 гг. авторы [56; 57] наблюдали двухфотонный процесс нелинейного рассеяния на молекулах красителя в жидкости, который они интерпретировали как «вынужденное Рэлеевское рассеяние».

1.16 Вынужденное концентрационное рассеяние на субмикронных и наночастицах в жидкостях

Из работ [58–62] известно, что существует оптическая нелинейность во взвесях частиц, которая связана с тем, что из-за неоднородности светового поля частицы смещаются в пространстве или упорядочиваются. При интерференция двух когерентных лазерных пучков (обычно от одного и того же лазера) образуется интерференционная решетка интенсивности, которая создает решетку концентрации частиц в жидкости или создает концентрационную решетку в растворе. На этом явлении построен известный метод принудительного рэлеевского рассеяния (Forced Rayleigh Scattering (FRS) [58–62]) для создания периодической решетки показателя преломления n, которая соответствует решетке концентрации частиц.

Работы по поиску и исследованию ВКоРС на сегодняшний день активно развиваются. Например, в работе [13], было обнаружено ВКоРС на золотых наночастицах в воде, авторы называют его вынужденным Ми-Брэгговским рассеянием света. В этой работе использовались нанотрубки золота диаметром 13 нм и длиной 90 нм, взвешенные в воде, и Nd:YAG лазер с длиной волны 816 нм, шириной линии 0.022 см⁻¹, расходимостью 0.36 мрад и энергией в каждом импульсе от 10 мкДж до 6 мДж, при длительности импульса 10 нс, который фокусировался в кювету с взвесью. Заключение о вынужденном рассеянии света назад сделано по временной форме возбуждающих и рассеянных назад импульсов света, так же как и в работе Давыдова и Шипилова [24]. При разрешающей способности ИФП 0.43 см⁻¹ авторы [13] сделали заключение, что спектральный сдвиг отсутствует.

Аналогичные результаты получены в работе [14] для наночастиц золота, серебра, смеси золота и серебра, но не на частицах платины. Также по временному изменению интенсивности импульса рассеяния был сделан вывод о наблюдении ВР Ми, но без спектрального сдвига.

Однако механизм наблюдаемой нелинейности не был однозначно интерпретирован. В [20] авторы предположили возможность как «зависящего от интенсивности пространственного перераспределения наночастиц золота» (т.е. вынужденного концентрационного рассеяния на

субмикронных частицах в жидкости), так и изменения среднего показателя преломления среды за счёт поверхностно-плазмонного резонанса на частицах. После того, как в [14] им не удалось зафиксировать ВР на наночастицах платины, в своих последующих работах [14–17] они склонились именно ко второму варианту.

Известно, что теоретически спектральный сдвиг ВКоРС на частицах в жидкостях должен быть равен полуширине спонтанного концентрационного рассеяния и равен Dq^2 , где D – коэффициент диффузии, а q – волновой вектор. Такой сдвиг для частиц радиусом 10–1000 нм будет составлять 21000–200 с⁻¹, что составляет 3300–30 Гц или 10⁻⁷–10⁻⁹ см⁻¹.

По этим оценкам можно видеть, что величина такого сдвига намного меньше того, что может зарегистрировать ИФП. Измерить сдвиг данного типа ВР можно только методами спектроскопии оптического смешения.

1.17 Описание вынужденного концентрационного рассеяния света (ВКоРС) в смесях

Механизм образования ВКоРС в газовых смесях впервые был описан Бломбергеном в работе [22]. Предполагается, что в газовых смесях для усиления ВКоРС молекулы смешиваемых газов должны сильно отличаться по массе и поляризуемости друг от друга. Давление в газах должно быть низким, но еще соответствовать гидродинамическому режиму, так как коэффициент усиления ВРМБ *g* прямо пропорционален квадрату давления в газе и обратно пропорционален плотности, в то время как коэффициент усиления ВКоРС зависит от плотности линейно.

В газовой смеси при взаимодействии возбуждающей и рассеянной назад волн создается интерференционная решетка интенсивности, в пучности которой затягиваются частицы одного из газов. В результате одновременно создаются периодическая решетка концентрации и плотности, и ВРМБ накладывается на ВКоРС. Но при определенных условиях, например, при определенных давлении и концентрации одного газа в другом, волна давления и волна концентрации разделяются, и эти вынужденные рассеяния можно различить, что и было сделано в работах [22; 23].

В работе [23] отмечается, что время релаксации возмущения концентрации велико, поэтому предпочтительнее использовать длинные импульсы лазерного излучения.

В присутствии электрического поля уравнение диффузии имеет вид:

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D \left[\nabla^2 C - \frac{K_P}{P_0} \nabla^2 P \right] - \frac{D \left(\partial \epsilon / \partial C \right) \nabla^2 E^2 + D E^2 \nabla^2 \left(\partial \epsilon / \partial C \right)}{8 \pi \rho_0 \left(\partial \mu / \partial C \right)},$$

$$K_P = -P \frac{\left(\frac{\partial P}{\partial C} \right)_{P,T}}{\rho^2 \left(\frac{\partial \mu}{\partial C} \right)_{P,T}},$$
(1.17.1)

где *Р* – давление, *р* – плотность масс, *µ* – химический потенциал, *С* – концентрация.

Видно, что в правую часть уравнения (1.17.1) входит E^2 , а это говорит о том, что амплитуда вариаций концентрации в установившемся режиме зависит от интенсивности возбуждающего излучения, и следовательно рассеяние будет нелинейным.

В работах [22; 23] показано, что ВКоРС наблюдается при определенных условиях, газы должны смешиваться в определенной концентрации и измерения проводятся при определенном давлении. Величина спектрального сдвига ВКоРС составляет 30–150 МГц при концентрации Не от 0.6 до 0.9 в смеси He-SF₆ при 5 атмосферах, а коэффициент усиления $g = 10^{-10}-10^{-11}$ см/Вт. Теоретически предсказанный спектральный сдвиг составляет ~ $1 \times 10^{-3}-5 \times 10^{-3}$ см⁻¹, а экспериментально полученный ~ $5 \times 10^{-3}-19 \times 10^{-3}$ см⁻¹.

1.18 Возникновение и усиление ВКоРС на субмикронных частицах в жидкости. Концентрационная волна

Для ВКоРС на частицах теоретические оценки были проведены в 2004 г. Афанасьевым [27]. При падении возбуждающего лазерного излучения I_{las} на взвесь частиц в жидкости, часть света I_{sca} отражается (рассеивается) назад от этих частиц. В результате рассеянный назад свет I_{sca} интерферирует с падающим возбуждающим пучком I_{las} и образует синусоидальную периодическую интерференционную решетку интенсивности, в максимумы или минимумы которой затягиваются частицы под действием электрической силы, в зависимости от параметров частиц и среды. Таким образом образуется периодическая решетка концентрации частиц в жидкости, которая рассеивает свет назад гораздо эффективнее, чем неупорядоченные частицы. Далее рассеянная волна с большей интенсивностью взаимодействует с падающим излучением и амплитуда максимумов и минимумов интерференционной решетки интенсивности растёт, следовательно частицы сильнее затягиваются или выталкиваются из соответствующих областей. Получается лавинообразный процесс постоянного роста амплитуды решетки концентрации, интенсивности рассеяния и силы затягивания или
выталкивания и конечно же интенсивности ВКоРС на субмикронных частицах в жидкости. Данный процесс схематично представлен на Рис. 1.18.1.



Рисунок 1.18.1 – Схема процесса возникновения ВКоРС на субмикронных частицах в жидкости.

Таким образом во взвеси образуется решетка концентрации, которая из-за отставания движения частиц от изменения интенсивности во времени представляет собой движущую волну концентрации. Авторы работы [27] рассматривали решение уравнения Планка-Нерста с учетом диффузионного предела для возмущения концентрации частиц в жидкости при воздействии лазерного излучения в присутствии диффузии и образование интерференционной решетки. Такое решение может быть записано как:

$$N(x,t) = N_0(x,t) + \delta N(x,t)e^{-i(\Omega_{st}t - qx)} + c.c., \qquad (1.18.1)$$

где $N_0(x,t)$ – начальная концентрация частиц во взвеси, $\delta N(x,t)$ – амплитуда возмущения концентрации частиц, Ω_{st} – спектральный сдвиг ВКоРС, q – волновой вектор. Эта волна (1.18.1) движется со скоростью $V_{gr} = \Omega_{st}/q$.

Подставив (1.18.1) в уравнение Планка-Нерста и его решение в укороченные волновые уравнения, получили коэффициент усиления вынужденного концентрационного рассеяния света в виде:

$$g_{\rm C} = 2\pi N_{\nu} \frac{k}{n_L^2} \frac{D}{k_B T} \alpha^2 V_P q^2 \left(R \frac{2\pi}{k_0 - k_x} \right)^{\frac{3}{2}} J_{\frac{3}{2}}(R(k_0 - k_x)) \times$$
(1.18.2)

$$\times \frac{\Omega}{1/\tau_D^2 + \Omega^2} = \beta \frac{\Omega}{1/\tau_D^2 + \Omega^2}.$$

Из выражения (1.18.2) хорошо видно, что концентрационная волна имеет максимум усиления на частоте $\Omega = 1/\tau_D = Dq^2$. Коэффициент усиления положителен, $g_C > 0$, когда $\Omega < 0$ и $J_{\frac{3}{2}}(R(k_0 - k_x)) < 0$ и соответственно частотный сдвиг линии ВКоРС на субмикронных частицах в жидкости стоксов, или $\Omega > 0$ и $J_{\frac{3}{2}}(R(k_0 - k_x)) > 0$ и тогда сдвиг антистоксов, аналогично работе [4].

1.19 Градиентная сила, действующая на диэлектрическую частицу в жидкости

Изменение энергии частицы в жидкости в присутствии поля *E* определяется выражением [63]

$$\Delta W(r,t) = -\frac{\varepsilon_P - \varepsilon_L}{2} \int_{V_p} E(r,t) E^*(r,t) \, dV_p, \qquad (1.19.1)$$

где ε_P – диэлектрическая проницаемость частицы, ε_L – диэлектрическая проницаемость жидкости, в которой находится частица.

В этой работе и выведена формула градиентной силы, действующей на диэлектрическую частицу в жидкости, но в условиях Гауссова пучка, мы же ограничимся выводом для плоской волны.

Для падающей лазерной волны E_L и рассеянной назад на частицах волны E_{SC} в виде

$$E_L = E_{10}e^{i(\omega t - kx)},$$

$$E_{SC} = E_{20}e^{i(\omega t + kx + \varphi)}.$$
(1.19.2)

Суперпозиция полей $E_L + E_{SC}$ дает

$$E^{2} = E_{L}^{2} + E_{SC}^{2} + E_{L}E_{SC}\cos(2kx + \varphi) =$$

= $\frac{8\pi}{c}I_{L}\sqrt{\zeta_{g}}\cos(2kx + \varphi),$ (1.19.3)

где ζ_g – коэффициент отражения от решетки концентрации.

Тогда для сферической частицы радиусом R, расположенной на оси x, при положении ее центра при $\varphi = x_0$

$$\int_{V_p} E_1(r,t) E_2^*(r,t) \, dV_p = E_L E_{SC} \cos(2kx + \varphi) =$$

$$= \frac{8\pi}{c} I_L \sqrt{\zeta_g} \frac{\pi}{2k^3} [2kR \cos(2kR) - \sin(2kR)] \sin(2k\varphi).$$
(1.19.4)

Сила F_e , действующая на сферическую частицу с поляризуемостью $\alpha = n_L \frac{n_P - n_L}{n_P + 2n_L}$, является производной энергии по $x_0 = \varphi$ и равна

$$F_{e} = \alpha \frac{dW}{dx_{0}} = \alpha \frac{\varepsilon_{P} - \varepsilon_{L}}{2} \frac{8\pi}{c} \frac{I_{L} \sqrt{\zeta_{g}} \pi}{k^{2}} \times \\ \times [2kR \cos(2kR) - \sin(2kR)] \sin(2kx_{0}) =$$
(1.19.5)
$$= \alpha (\varepsilon_{P} - \varepsilon_{L}) \frac{4\pi}{c} \frac{I_{L} \sqrt{\zeta_{g}} \pi}{k^{2}} [2kR \cos(2kR) - \sin(2kR)] \cos(2kx_{0}).$$

Это выражение для силы, действующей на сферическую частицу в жидкости, в решетке интенсивности возбуждающего излучения и рассеянного назад света, в зависимости от радиуса частицы. На Рис. 1.19.1 представлена эта сила для значения $\sqrt{\zeta_g} = 1$ для частиц латекса в воде при мощности лазера $P_{las} = 50$ мВт и радиусе пятна фокусировки $r_f = 4.7 \times 10^{-3}$ см в положении $cos(2kx_0) = 1$ в зависимости от радиуса частицы. Хорошо видно, что затягивающая сила F_e имеет нули при определенных радиусах частиц R, и ее знак зависит от радиуса частицы R. Знаком электрической силы F_e определяется, будут частицы затягиваться в максимумы или минимумы интерференционной картины, от чего, по-видимому, зависит направление спектрального сдвига линии ВКоРС на субмикронных частицах в жидкости.

На Рис. 1.19.2 показаны такие зависимости величины затягивающей силы $F_e(R)$, действующей на частицу в интерференционной решетке интенсивности возбуждающего излучения и рассеянного назад света, при разной мощности возбуждающего излучения P_{las} . Максимальное значение силы достигается, когда на частицу действует максимальный градиент поля, а это достигается когда центр частицы находится в точке $\frac{\lambda}{2} + n\lambda$, то есть $cos(2kx_0) = 1$, и оно равно:

$$F_e = \alpha (\varepsilon_P - \varepsilon_L) \frac{4\pi}{c} \frac{l_L \sqrt{\zeta_g} \pi}{k^2} [2kR \cos(2kR) - \sin(2kR)].$$
(1.19.6)

Зависимость затягивающей силы $F_e(R)$, действующей на частицу в интерференционной решетке интенсивности возбуждающего излучения и рассеянного назад света, при различном начальном положении центра частицы в этой интерференционной решетке представлена на Рис. 1.19.3.

Из этой зависимости хорошо видно, что чем дальше центр частицы от максимума или минимума интерференционной решетки интенсивности, тем больше величина затягивающей силы.

Рассмотрим часть формулы (1.19.9), которая определяет знак и величину затягивающей силы F_e , действующую на частицу, в зависимости от соотношения между радиусом частицы R и периодом интерференционной картины Λ (Рис. 1.19.4). Для периодической интерференционной решетки интенсивности, получаемой на зеленом лазере с длиной волны $\lambda = 532$ нм, период такой решетки будет равен $\Lambda = \lambda/2n = 199.6$ нм.



Рисунок 1.19.1 – Затягивающая сила F_e , действующая на частицу в интерференционной решетке интенсивности возбуждающего излучения и рассеянного назад света в зависимости от размера частицы R при $cos(2kx_0) = 1$ и $\zeta_g = 1$. $P_{las} = 50$ и радиуса пятна фокусировки $r_f = 4.7 \times 10^{-3}$ см.



Рисунок 1.19.2 – Затягивающая сила F_e , действующая на частицу в интерференционной решетке интенсивности возбуждающего излучения и рассеянного назад света, при $cos(2kx_0)$ и $\zeta_g = 1$ и при разной мощности возбуждающего излучения P_{las} . Сплошная линия – $P_{las} = 50$ мВт, пунктирная – $P_{las} = 25$ мВт, точечная линия – $P_{las} = 10$ мВт при радиусе пятна фокусировки $r_f = 4.7 \times 10^{-3}$ см.



Рисунок 1.19.3 – Зависимость затягивающей силы F_e , действующей на частицу в интерференционной решетке интенсивности возбуждающего излучения и рассеянного назад света, при различном начальном положении центра частицы x_0 при мощности лазера $P_{las} = 50$ и радиуса пятна фокусировки $r_f = 4.7 \times 10^{-3}$ см. Сплошная линия – $x_0 = 0$, пунктирная – $x_0 = 0.3\pi$, точечная линия – $x_0 = 0.5\pi$, линия пунктир точка – $x_0 = 0.6\pi$.



Рисунок 1.19.4 – Зависимость затягивающей силы F_e , действующей на частицу латекса в воде при мощности лазера $P_{las} = 50$ и радиусе пятна фокусировки $r_f = 4.7 \times 10^{-3}$ см в зависимости от соотношения между радиусом частицы R и периодом интерференционной решетки интенсивности $\Lambda = 199.6$ нм.

В результате такого затягивания полная картина неоднородностей показателя преломления приобретает пространственную Фурье-компоненту, соответствующую решетке показателя преломления с волновым вектором $4\pi n/\lambda$.

В данном параграфе мы рассматривали только плоские волны. В экспериментах мы проводили изучение ВКоРС как на плоских, так и на сферических волнах. При взаимодействии сферических волн скорее всего численный результат будет несколько иным, но для качественных оценок вполне достаточно приближения плоских волн так как объем рассеяния достаточно мал, площадь взаимодействия на сферической волне составляет ~ 0.2 мм.

1.20 Затягивание частиц с размером больше длины волны, в интерференционную решетку интенсивности

Частицы большого размера $R >> \lambda$, в диаметр которых укладывается несколько периодов интерференционной решетки, затягиваются в максимумы или минимумы интерференционной картины, согласно формуле (1.19.6), в том смысле, что к максимумам (или минимумам) смещается центр частиц.

На Рис. 1.20.1 рассмотрены 3 возможных случая затягивания частиц в зависимости от их радиуса *R*:

- а) При отношении радиуса частицы к периоду решетки *R/A*, равному 1.5, в интерференционной решетке интенсивности сила затягивания *F_e* положительна и затягивает центр частицы в максимум интерференционной решетки интенсивности, как в наиболее выгодное энергетическое положение (Рис. 1.20.1 а)). Это можно объяснить тем, что сумма объемов частицы, находящаяся в областях положительных градиентов интенсивности (красные линии) больше, чем сумма объемов, находящихся в областях отрицательных градиентов (синие линии).
- б) При отношении радиуса частицы к периоду решетки *R/A*, равному 1.1, в интерференционной решетке интенсивности сила затягивания *F_e* отрицательна и затягивает центр частицы в минимум интерференционной решетки интенсивности, как в наиболее выгодное энергетическое положение (Рис. 1.20.1 б)). Это можно объяснить тем, что сумма объемов частицы, находящаяся в областях положительных градиентов интенсивности (красные линии) меньше, чем сумма объемов, находящихся в областях отрицательных градиентов (синие линии).
- в) При отношении радиуса частицы к периоду решетки *R/Л*, равному 1.15, в интерференционной решетке интенсивности сила затягивания *F_e* равна 0 и сумма всех сил одинаково тянет центр частицы как в минимум, так и в максимум (Рис. 1.20.1 в)).

В данное время на западе начинает складываться терминология, в которой ВКоРС на частицах в жидкости называют вынужденным рассеянием Ми. Это название представляется неудачным. В данном случае происходит рассеяние на отдельных частицах, как и говорится в теории Ми, но отличие от случая Ми заключается в коллективности эффекта и для описания ВКоРС складываются не интенсивности от каждой частицы, а поля рассеянного света. Из-за смещения частицы в пространстве в рассеянном на ней свете появляется дополнительная фаза, связанная с координатой и фазой интерференционной решетки интенсивности.

Благодаря пространственному смещению частицы разность фаз поля света, рассеянного назад разными частицами, оказывается ближе к $\pi\lambda n/2$, то есть создается эффективная решетка показателя преломления концентрации.



в) R/Л = 1.15

Рисунок 1.20.1 – Пример размеров частиц, затягивающихся в максимум или минимум интерференционной картины с периодом $\Lambda = 199.6$ нм. Красные стрелки – силы, пропорциональные частям объема частицы, находящимся в областях положительных градиентов интенсивности, синие стрелки – силы, пропорциональные частям объема частицы, находящимся в областях отрицательных градиентов интенсивности. Центр частицы при $R/\Lambda = 1.5$, затягивается в максимум интерференционной решетки интенсивности (а), $R/\Lambda = 1.15$, затягивается в минимум интерференционной решетки (б), $R/\Lambda = 1.1$ никуда не затягивается (в).

Глава 2. Корреляционная спектроскопия, экспериментальная установка и теоретические оценки

2.1 Корреляционная функция

Хаотическое броуновское движение частиц раствора вызывает микроскопические флуктуации их локальной концентрации. При прохождении лазерного луча через среду часть света будет рассеяна на таких неоднородностях. Временная автокорреляционная функция интенсивности, согласно определению, имеет следующий вид [64]:

$$G^{(2)}(\tau) = \langle I(0) I(t-\tau) \rangle = \lim_{t_m \to \infty} \frac{1}{t_m} \int_{0}^{t_m} I(0) I(t-\tau) dt.$$
(2.1.1)

А временная автокорреляционная функция поля:

$$G^{(1)}(\tau) = \langle E(0)E^*(\tau) \rangle.$$
 (2.1.2)

Пример флуктуаций интенсивности изображен на рисунке Рис. 2.1.1.

Из-за квадратичности детектирования фотодетектор измеряет функцию автокорреляции интенсивности:

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{G^{(2)}(\tau)}{\langle I_s \rangle^2} = \frac{\langle I(0)I(\tau) \rangle}{\langle I_s \rangle^2}.$$
 (2.1.3)

Связь же между $g^{(1)}(\tau)$ и $g^{(2)}(\tau)$ для гауссовой статистики определяется соотношением Зигерта [64]:

$$g^{(2)}(\tau) = 1 + \left| g^{(1)}(\tau) \right|^2.$$
(2.1.4)

Свет, рассеянный на флуктуациях основных термодинамических переменных и концентрации примесей или числа частиц, аналогичен по статистике свету теплового источника и изначально пространственно не когерентен.



Рисунок 2.1.1 – Пример флуктуаций интенсивности рассеянного света во времени, где *t*_S – время выборки.

Пространственно-временную функцию когерентности рассеянного света можно записать как

$$g^{(1)}(r_1, r_2, t_1, t_2) = \frac{\langle E(r_1, t_1) E^*(r_2, t_2) \rangle}{\langle I_s \rangle} = \gamma(r_1 - r_2) g^{(1)}(\tau), \qquad (2.1.5)$$

где r_1 и r_2 – точки волнового фронта исследуемой волны, $\gamma(r_1 - r_2) = \langle E(r_1, 0)E^*(r_2, 0) \rangle$ – коэффициент пространственной когерентности, который при $(r_1 - r_2) = 0$ равен 1, а при $(r_1 - r_2) \rightarrow \infty$ быстро убывает до нуля.

Фотоприемник фиксирует не функцию $g^{(2)}(\tau)$, а её усреднение по площади рассеивающего объема:

$$g^{(2)}(\tau, S) = 1 + \frac{1}{S^2} \int_S dr_1 \int_S dr_2 \left| g^{(1)}(r_1, r_2, \tau) \right|^2 =$$

= $1 + \frac{\left| g^{(1)}(\tau) \right|^2}{S^2} \int_S dr_1 \int_S dr_2 \gamma(r_1 - r_2) =$ (2.1.6)
= $1 + A \left| g^{(1)}(\tau) \right|^2$,

где *A* ≤ 1 и при постоянной апертуре стремится к нулю при увеличении размеров источника света.

Для достаточно малой диафрагмы *A* ≈ 1 . При условии, что выполнено условие когерентности:

$$d \le \left(\frac{1.22Z\lambda}{2r_d}\right)^2 = d_c, \tag{2.1.7}$$

где *d* – диаметр круглой диафрагмы (диаметр фотоприемника), *r_d* – радиус источника, *d_c* – «диаметр когерентности» диафрагмы, *Z* – расстояние от источника до диафрагмы, мы увидим функцию корреляции с большой амплитудой.

Стационарный случайны процесс, обусловленный тепловыми движениями частиц приводит к тому, что функция корреляции поля для монодисперсной взвеси частиц [64, 65]:

$$g^{(1)}(\tau) = e^{-Dq^2\tau} = e^{-\Gamma\tau}, \qquad (2.1.8)$$

$$\Gamma = Dq^2, \tag{2.1.9}$$

где *D* – коэффициент диффузии, а *q* – волной вектор. Если форма частиц известна или задана, их размер может быть рассчитан с использованием соответствующей формулы. Для твердых сферических частиц можно использовать формулу Стокса-Эйнштейна [66]:

$$D = \frac{k_B T}{6\pi\eta R'},\tag{2.1.10}$$

где k_B – константа Больцмана, T – абсолютная температура и η – сдвиговая вязкость среды, в которой взвешены частицы радиуса R. Коэффициент диффузии D представляет собой связь термодинамических и гидродинамических параметров среды и частиц.

Из соотношения (2.1.4) следует, что можно посчитать $G^{(1)}(\tau)$ из экспериментально измеренной интенсивности падающей волны $G^{(2)}(\tau)$, зафиксированной квадратичным фотодетектором, а из $G^{(1)}(\tau)$ определить коэффициент диффузии D и, следовательно, радиус частиц R.

Очевидно, что при $\tau = 0$ автокорреляционная функция равна среднему квадрату интенсивности $\langle I^2 \rangle$. Для больших времен корреляция отсутствует, и автокорреляционная функция равна квадрату средней интенсивности рассеяния:

$$G^{(2)}(\tau) = \langle I(t) | (t - \tau) \rangle = \langle I(t) \rangle \langle I(t - \tau) \rangle = \langle I \rangle^2.$$
(2.1.11)

Коррелятор на самом дел считает корреляционную функцию тока детектора, пропорционального интенсивности рассеянного частицами света. Поэтому данный метод

позволяет непосредственно измерять корреляционную функцию интенсивности рассеянного света.

2.2 Связь корреляционной функции со спектральными характеристиками

Оптический спектральный прибор (решётка, интерферометр и т.п.) разлагает поле по его частотным компонентам, а среднеквадратичные значения огибающих этих компонент регистрируются как спектральные плотности потока энергии на соответствующих частотах. Математическое выражение для спектра $S(\omega)$ имеет вид [64]:

$$S(\omega) = \left\langle \lim_{T \to \infty} \frac{1}{T} \left| \int_{-T/2}^{T/2} E_1(t_1) E_2^*(t_1) e^{-i\omega t} dt \right|^2 \right\rangle.$$
(2.2.1)



Рисунок 2.2.1 – Виды флуктуаций, интенсивностей рассеяния света на флуктуациях частиц и вид спектра в кристаллической решетке; жидкости, в которой частицы не движутся; в жидкости с движущимися частицами [65].

В случае стационарного поля:

$$S(\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} \langle E(\tau) E^*(0) \rangle e^{-i\tau\omega} d\tau, \qquad (2.2.2)$$

т.е. спектр представляет собой Фурье-преобразование корреляционной функции поля, которая определяется выражением:

$$g^{(1)}(\tau) = \frac{\langle E(\tau)E^*(0)\rangle}{l}.$$
 (2.2.3)

Интенсивность I(t) представляет собой квадрат огибающей амплитуды поля (с коэффициентом $c/4\pi$ в системе СГС). Примеры флуктуаций интенсивности, интенсивности рассеянного света и их спектров, представлены на Рис. 2.1.1

2.3 Коэффициент диффузии и ширина линии концентрационного спонтанного рассеяния

В соответствии с гипотезой Онзагера, релаксация микроскопических флуктуаций концентрации к равновесному состоянию может быть описана первым законом Фика (уравнением диффузии):

$$\frac{\partial C(\overline{r},t)}{\partial t} = -D\nabla C(\overline{r},t), \qquad (2.3.1)$$

где $C(\overline{r}, t)$ – концентрация частиц и D – коэффициент диффузии частиц. Можно показать, что автокорреляционная функция интенсивности экспоненциально затухает во времени и характерное время релаксации однозначно связано с D [66]. Корреляционная функция интенсивности рассеянного света имеет вид:

$$G(\tau) = Aexp\left(\frac{-2\tau}{\tau_c}\right) + B,$$
(2.3.2)

где в соответствии с решением уравнения диффузии обратное время релаксации флуктуации равно:

$$\frac{1}{\tau_c} = D_t q^2 = \Gamma. \tag{2.3.3}$$

Здесь Γ — ширина линии рассеяния света, а модуль волнового вектора Фурьесоставляющей флуктуаций концентрации, выбранной за счёт угла рассеяния и длины волны λ равен:

$$q = \frac{4\pi n_L}{\lambda} \sin\left(\frac{\theta}{2}\right). \tag{2.3.4}$$

В выражении (2.3.2) *А* и *В* – константы, а в (2.3.4) *n*_L – показатель преломления жидкости (дисперсионной среды), в которой взвешены дисперсные частицы.

Свет из объема рассеяния направляется на фотокатод квадратичного по полю фотоприемника. При этом падающий свет должен быть пространственно когерентен. Этого мы добиваемся выбором соответствующей геометрии эксперимента (см. (2.1.6) и описание установки). На катоде возникают биения между различными частотными компонентами спектра падающего света. При этом освещенность фотокатода, а следовательно и фототок, будут промодулированы от нуля до частоты, равной ширине спектра.

2.4 Методы получения корреляционной функции

Существует три метода получения информации о корреляционной функции $g^{(1)}(\tau)$ или о спектре исследуемого сигнала из корреляционного анализа фототока.

- Оптическое гетеродинирование, когда на фотодетектор попадает как рассеянный свет, несущий информацию об исследуемом объекте, так и некий опорный пучок, частоты которых отличаются. Фиксируется корреляционная функция биений опорного и объектного пучков света.
- Оптическое гомодинирование представляет собой тоже самое что и гетеродинирование, но средние частоты опорного и несущего информацию света совпадают.
- Метод самобиений измерение корреляционной функции самобиений рассеянного света или флуктуаций интенсивности рассеянного света (без опорной волны), обусловленных биениями разных спектральных составляющий этого света.

Заметим, что у классиков корреляционной спектроскопии [64] под гетеродинированием часто понимается смешение рассеянного света как со смещенным по частоте опорным пучком, так и с несмещенным, а под гомодинированием – метод самобиений. Мы пользуемся именно методом самобиений.

2.5 Принцип работы коррелятора

Прибором, производящим цифровое накопление корреляционной функции в реальном времени, является коррелятор со сдвиговым регистром (Рис. 2.5.2). В корреляторе имеются кварцевые часы, управляющие всей схемой. Эти часы вырабатывают тактовые импульсы через интервалы времени длительностью t_s , которые задаются вручную. Отрезок времени длительностью t_s называется временем выборки. Важно отметить, что время выборки должно быть намного меньше характерного времени флуктуации интенсивности, то есть времени когерентности τ_c . Тогда в соответствии с изменениями флуктуирующей интенсивности l(t) будет изменяться и число фотоотсчетов за *l*-е от начала эксперимента время выборки $n(\tau) = n(lt_s)$. Суть цифровой обработки импульсного сигнала коррелятором состоит в том, чтобы с помощью коррелятора получить функцию:

$$G_{d}^{(2)}(mt_{s}) = \langle I(\tau)I(0) \rangle =$$

$$= \sum_{l=m}^{N_{r}} [n(lt_{s})n(lt_{s} + mt_{s})] =$$

$$= N_{t} \langle n(0)n(mt_{s}) \rangle g^{(2)}(mt_{s}),$$
(2.5.1)

где N_t – число времен выборки за время накопления функции.



Рисунок 2.5.2 – Структурная схема полного коррелятора. І – сдвиговый регистр, ІІ – схемы перемножения, ІІІ – счетчики-накопители каналов памяти; БФЧФ – блок формирования числа фотоотсчетов.

Накопление происходит следующим образом. В момент начала эксперимента сдвиговый регистр, счетчики-накопители каналов памяти и блок формирования числа фотоотсчетов (БФЧФ) содержат нули. Импульсы, приходящие с фотодетектора за время выборки t_s накапливаются в счетчике БФЧФ. По сигналу каждого тактового импульса производятся следующие операции.

- В каждой из *r* схем перемножения производится умножение содержимого БФЧФ и соответствующего канала сдвигового регистра. Результаты перемножений накапливаются в соответствующих каналах памяти коррелятора.
- Содержимое каждого из каналов сдвигового регистра передается в следующий канал.
- 3) Содержимое БФЧФ передается в первый канал сдвигового регистра.
- 4) Счетчик БФЧФ зануляется.

Таким образом, через *r* времен выборки каналы сдвигового регистра заполняются числами фотоотсчетов за *r* последовательных времен выборки и в каждом *m*-м канале памяти начинается накопление функции.

Коррелятор, работающий таким образом, накапливает фактически значения функции корреляции интенсивности при временах задержки $\tau_m = mt_s$. Эти значения получаются сразу в цифровой форме, что удобно для численной обработки, и сразу во всех каналах, что соответствует обработке сигнала в реальном времени.

2.6 Программное обеспечение

Для обработки информации, получаемой с квадратичного фотодетектора, использовалась программа Photocor-FC. Алгоритмы данной программы широко используются лидерами рынка для определения размеров частиц из полученной корреляционной функции [28]. Для наших целей требовалось только получение корреляционной функции рассеянного света.

Коррелятор совместно с программой Photocor-FC (Рис. 2.6.1) может работать в двух режимах: линейном и Multiple tau. Для получения линейной корреляционной функции флуктуации интенсивности рассеянного света используется 120 каналов. В линейном режиме время отсчетов между измерениями значений интенсивности можно задать от 1.3×10^{-3} до 2×10^{-8} секунд, а интервалы накопления по всем каналам одинаковы. Режим Multiple tau использовался для определения размеров частиц. Отличие от линейного режима состоит в том, что через каждые 8 каналов интервалы накопления удваиваются, что соответствует



логарифмической шкале. Пример обычной линейной корреляционной функции без вынужденного рассеяния света, полученной в линейном режиме, представлен на Рис. 2.6.2.

Рисунок 2.6.1 – Скриншот программы Photocor-FC. Левое верхнее окно показывает корреляционную функцию ВКоРС на субмикронных частицах в жидкости. Правое верхнее окно: точки показывают изменение интенсивности рассеянного света во время измерения, сплошная линия – среднее значение интенсивности. Левое нижнее окно сохраняет данные в файл «reading», который может экспортироваться для компьютерной обработки. Правое нижнее окно определяет режим накопления, задает время выборки линейного режима и определяет способ обработки входящего сигнала.



Рисунок 2.6.2 – Пример корреляционной функции рассеянного света, полученной в линейном режиме программы Photocor-FC без вынужденного рассеяния света.

Данный коррелятор имеет возможность работать в «циклах». Можно задать длительность накопления одной корреляционной функции, количество таких накоплений, задержку во времени между накоплениями и максимальное отклонение от среднего значения, чтобы не брать в расчет для усреднения те функции, которые сильно отличаются от средних значений. Это необходимо для набора достаточного количества статистически достоверных результатов для установившихся процессов, повышения точности эксперимента и фильтрации неверных корреляционных функции, например, из-за попадания пыли. В другом случае метод регистрации корреляционной функции циклами позволяет записывать такие функции в короткие промежутки времени и с минимальной задержкой между такими накоплениями, в результате чего можно смотреть динамику различных процессов, речь о которых пойдет ниже. Основные результаты были получены именно в режиме «циклов» (Рис. 2.6.3), используя минимум 5 накопленных корреляционных функций для усреднения. Дальнейшие расчеты проводились уже на усредненных корреляционных функция.

- Cycle		Units for data filtration	
Number of runs	1	Duration of unit (s)	5
Delay between runs (s)	0	Number of units	5
Status of cycle	Stop	Duration of run (s)	25.
– Data filtration			
Spike tolerance (%)	10	Correct units (%)	100.
Repeat data filtration		Standard deviation (%)	1.58
	Stop		

Рисунок 2.6.3 – Правое нижнее окно программы Photocor-FC для настройки работы коррелятор в режиме циклов.

2.7 Приготовление растворов и взвесей

Частицы кремния радиусом R = 1300 нм разводились в машинном масле И20-А. Для растворов использовались обеспыленные и обезжиренные кюветы. Весовая концентрация кремния во взвеси кремний-масло составляла $C_m = 9.6 \times 10^{-6}$.

Производители алмазной нанопасты, которая разводилась водой для получения нашей взвеси, заявляли, что размер частиц алмаза составляет 2–4 нм. Концентрация во взвеси составляла $C_{\nu} = 1.65 \times 10^{-3}$ %. Средний радиус *R* агрегатов алмазных наночастиц, измеренный методом динамического рассеяния света при малых интенсивностях возбуждающего излучения (0.89 мВт) составил 488 нм. Но как будет показано ниже, во взвеси присутствовали только

агрегаты с радиусами 106 ± 3 и 1193 ± 10 нм. При этом, как было показано в работе [62] по времени седиментации частиц, содержание алмаза в агрегате составляло примерно 12%.

Для приготовления образцов третьей группы частиц латекса в воде, использовались наночастицы монодисперсного латекса фирмы Φ ГУП «НИИСК» представляющие собой водную дисперсию однородных сферических частиц с узким распределением по размерам с объемной концентрацией 6%. Данные взвеси частиц латекса разводились на аналитических весах в бидистиллированной воде до необходимых концентраций. В растворах использовались частицы радиусами R = 80, 100, 375, 480 и 750 нм. Для измерений использовались как пробирки, которые предварительно обезжиривались и обеспыливались, так и плоские кюветы – «матрасы», подробно описанные в разделе 2.8. После добавления частиц латекса в воду, раствор активно перемешивался ультразвуком в водяной бане при мощности на преобразователе 60 Вт в течении 40–60 секунд.



Рисунок 2.7.1 – Фотография частиц латекса диаметром 1.5 мкм в воде в оптическом режиме интерференционнофазового микроскопа.

На Рис. 2.7.1 представлены изображения взвеси латекса радиусом R = 750 нм. в бидистиллированной воде в оптическом режиме на интерференционно-фазовом микроскопе.

Для взвесей субмикронных агрегатов наночастиц алмаза и латекса в воде проводились эксперименты для оценки поглощения. Для этого несфокусированный луч зеленого лазера, мощностью 40 мВт заводился в термоизолированную кювету и с помощью термопары измерялось изменение температуры образцов. Использовались два образца: латекс радиусом 100 нм и агрегаты алмаза радиусом R = 250 нм с объемной концентрацией $C_v = 8.5 \times 10^{-3}$ % в воде в одной и той же кварцевой кювете. Для частиц взвеси алмаза изменение температуры составило 0.07 ± 0.02 °C, для взвеси латекса 0.15 ± 0.02 °C за 15 минут.

$$P = P_L e^{-\sigma l} \approx P_L (1 - \sigma l), \qquad (2.7.1)$$

где показатель поглощения σ выражается через $k = \sigma l, l = 2$ см – длина кюветы

$$k = \frac{\Delta T}{C_P k P_L t'} \tag{2.7.2}$$

где ΔT – температура нагрева, $C_P = 4.183$ Дж/г×град – теплоемкость воды, $P_L = 40$ мВт – мощность излучения, t = 900 с – время нагрева.

Для взвеси частиц алмаза $\sigma_d = 0.732 \times 10^{-2}$, латекса $\sigma_L = 1.560 \times 10^{-2}$.

2.8 Оптические схемы экспериментальных установок

Оптическая схема №1 (традиционная) для регистрации вынужденного концентрационного рассеяния на субмикронных частицах в жидкостях была смонтирована на установке для динамического рассеяния света [25], путем ее нескольких модификаций и приведена на Рис. 2.8.1. В качестве поляризаторов использовались пленочный поляризатор ПФ (P_I) и призма Франка-Риттера (P_2). Поляризатор P_I позволял регулировать мощность пучка без его смещения в пространстве. Плоскопараллельная пластина A отражала часть лазерного излучения ($\approx 8\%$) на фотодетектор для контроля мощности лазерного излучения. Диафрагма D очищала лазерный луч. Полупрозрачное зеркало S устанавливалось так, чтобы плоскость отражающего слоя включала в себя ось гониометра. Лазерный пучок линзой L_I с фокусным расстоянием 30 мм фокусировался в кювету C с образцом. Апертурная диафрагмы $D_a = 300$ мкм и катодная диафрагма $D_s = 160$ мкм служили для выбора площади когерентности. Объектив оптической системы фокусировал параллельный пучок на катодную диафрагму. Информация об интенсивности рассеянного света с ФЭУ (PM) поступала в коррелятор, а корреляционная функция выводилась на компьютер программой Photocor-FC.

Оптическая схема №2 для регистрации ВКоРС на субмикронных частицах в жидкости с применением светового щупа изображена на Рис. 2.8.2. В качестве источника света использовался тот же непрерывный твердотельный лазер с длиной волны $\lambda = 532$ нм. Излучение лазера, пройдя через поляризатор P_1 , позволяющий регулировать мощность возбуждающего излучения, заводилось в освещающий световод световодного щупа линзой L_1 с фокусным расстоянием 15 мм. Выходной конец освещающего световода *IF* заделывался в один тонкий цилиндрический блок, выполненный в форме щупа *Probe*, с входным концом собирающего

световода *CF*. Эти световоды были параллельны и помещались в непосредственной близости друг от друга. Их оси отстояли на расстояние 0.3 мм. Щуп опускался в кювету с исследуемой суспензией (Рис. 2.8.3). Через собирающий световод из кюветы выводился свет, собранный из объема рассеяния вблизи конца щупа. Рассеянный свет из собирающего световода, пройдя через поляризатор P_2 и систему обеспечения пространственной когерентности *SCS*, поступал на катод ФЭУ. Система *SCS* состояла из апертурной D_a и катодной D_s диафрагм и объектива L_2 . Световодная схема практически не требовала юстировки, кроме ввода света в освещающий световод и совмещения изображения конца собирающего световода с диафрагмой D_s .

Оптическая схема №3 для одновременной регистрации вынужденного концентрационного рассеяния света на субмикронных частицах в жидкостях и скорости конвекционного потока представлена на Рис. 2.8.4 и представляет собой комбинацию оптической схемы №2, представленной на Рис. 2.8.2 и допплеровского измерителя вертикальной скорости потока жидкости.



Рисунок 2.8.1 – Оптическая схема №1 (традиционная) для регистрации вынужденного рассеяния света назад. *Laser* – твердотельный зеленый лазер 532 нм 50 мВт; *P*₁ и *P*₂ – поляризаторы; *A* – плоскопараллельная пластинка; *F* – измеритель мощности; *D* – диафрагма; *S* – полупрозрачное зеркало, *L*₁ – собирающая линза; *C* – кювета; *D*_a – апертурная диафрагма; *L*₂ – система линз; *D*_s – катодная диафрагма перед ФЭУ; *PM* – ФЭУ; *Corr.* – коррелятор.

Для выяснения роли и измерения скорости конвекции в оптическую схему были включён He-Ne лазер, вертикальный удвоитель пучка DP и линзы L_3 с фокусом 10–30 см, составляющие обычную допплеровскую двухлучевую схему, как это описано, например, в [39]. Свет, рассеянный под малым углом относительно оси He-Ne лазера в горизонтальной плоскости, объективом O_2 через красный фильтр F фокусировался в световод DF и через него попадал в систему SCS. Простым переключением световодов CF и DF на входе системы SCS легко было перейти от измерения вынужденного рассеяния к измерению вертикальной скорости потока.



Рисунок 2.8.2 – Оптическая схема №2 (световодная) для регистрации ВКоРС на субмикронных частицах в жидкости. Laser – твердотельный зеленый лазер 50 мВт; P_i – поляризаторы; L_i – собирающие линзы; IF – освещающий световод; CF – собирающий световод; Probe – оптический щуп; C – кювета; SCS – система обеспечения пространственной когерентности; D_a – апертурная диафрагма; D_s – диафрагма перед ФЭУ (катодная); PM – фотоумножитель; *Corr.* – коррелятор.



Рисунок 2.8.3 – Фотография кюветы *С* вместе со световодами *IF* и *CF* и скрещенными лучами He-Ne лазера для измерения скорости конвекции.



Рисунок 2.8.4 – Оптическая схема №3 со световодным щупом и измерением скорости потока Допплеровским методом. *Laser* – непрерывные лазеры с $\lambda = 532$ и 633 нм; P_i – поляризаторы; L_i – линзы, PR – световодный щуп, IF – освещающий световод, C – кювета, CF – собирающий световод, S – переключатель световодов, SCS – система обеспечения пространственной когерентности, D_a – апертурная диафрагма, D_s – катодная диафрагма (перед ФЭУ), PM – фотоумножитель, *Corr.* – коррелятор , DP – раздвоитель пучка 50/50%, D_I – диафрагма на входе в допплеровский световод DF (прицельная); D_2 – двойная диафрагма, F – красный фильтр, DF – световод, передающий допплеровский сигнал, d – расстояние между концом световодного щупа и пересечением двух красных лучей, ~ 2.5 мм.

2.9 Методика определения величины и знака частотного сдвига ВКоРС на субмикронных частицах в жидкости

В световодной схеме №3 по периоду косинусоидальной компоненты корреляционной функции, измеренной на зеленом лазере через световод *CF* (Рис. 2.8.4), можно вычислить полную скорость концентрационной волны ВКоРС на субмикронных частицах в жидкости по формуле:

$$V_{tot} = \frac{\Omega_{tot}c}{2\omega_o} = \frac{\Omega_{tot}\lambda_{532}}{4\pi n_L} = \frac{\lambda_{532}}{2T_{532}n_L},$$
(2.9.1)

где λ_{532} – длина волны возбуждающего излучения. Полная скорость концентрационной волны $V_{tot} = V_c \pm V_{gr}$ включает в себя, как скорость решетки V_{gr} , так и скорость конвекционного потока V_c .

Одновременно с измерением корреляционный функции рассеянного назад света, измерялись корреляционные функции рассеяния двух скрещенных пучков He-Ne лазера через

световод *DF* (Рис. 2.8.4), с применением красного фильтра. По периоду косинусоидальной составляющей в этой корреляционной функции можно определить значения скорости конвекционного потока *V*_c:

$$V_c = \frac{\Lambda}{T_{633}} = \frac{\Omega_{Vc} \lambda_{633}}{4\pi n \sin(\alpha/2)} = \frac{\lambda_{633}}{2 T_{633} \sin(\alpha/2)},$$
(2.9.2)

где Λ – длина волны решётки интерференционной картины пересечения пучков красного лазера, T_{633} – величина периода косинусоидальной компоненты, λ_{633} – длина волны He-Ne лазера, α – угол схождения красных пучков в воздухе.

Из периодов косинусоидальных составляющих в корреляционных функциях ВКоРС на субмикронных частицах в жидкости, полученных на зеленом лазере, по формуле (2.9.1) определяется полная скорость концентрационной решетки $V_{tot} = V_c \pm V_{gr}$. Из корреляционных функций, полученных на красном лазере методом допплера, по формуле (2.9.2) определили скорость конвекционного потока жидкости V_c .

Зная полную скорость концентрационной волны V_{tot} и скорость конвекции жидкости V_c можно определить из их разности величину частотного сдвига спектральной линии ВКоРС на субмикронных частицах в жидкости по формуле:

$$\Omega_{st}^{E} = \frac{4\pi n_L V_{gr}}{\lambda_{532}} = \frac{4\pi n_L |V_{tot} - V_c|}{\lambda_{532}}.$$
(2.9.3)

Скорость конвективного потока измерялась на расстоянии ~ 2.5 мм от конца световода. Это расстояние оценивается как наиболее эффективное для фиксации вынужденного рассеяния из дистанционных зависимостей площади перекрытия конусов освещённости и поля зрения световода и зависимости $I \sim 1/r^2$ (см. ниже раздел 2.14.).

Из знака разности $V_{tot} - V_c$ можно также определить направление частотного сдвига ВКоРС на субмикронных частицах в жидкости. На Рис. 2.9.1 показаны направление скоростей концентрационной решетки в случае стоксова $V_{gr}(S)$ и антистоксова $V_{gr}(As)$ сдвигов и конвекционного потока жидкости V_c , который всегда направлен вверх. При направлении света вверх, при $V_{tot} - V_c > 0$, скорость решетки $V_{gr}(S)$ направлена вверх, и спектральная линия ВКоРС смещена в стоксову сторону, а при $V_{tot} - V_c < 0$, скорость решетки $V_{gr}(As)$ направлена вниз и спектральная линия ВКоРС смещена в антистоксову сторону. При направлении света вниз при $V_{tot} - V_c < 0$ скорость решетки $V_{gr}(S)$ направлена вниз, и спектральная линия ВКоРС смещена в стоксову сторону, а при $V_{tot} - V_c > 0$, скорость решетки $V_{gr}(As)$ направлена вверх и спектральная линия ВКоРС смещена в антистоксову сторону.



Рисунок 2.9.1 – Схема сложения скоростей концентрационной решетки V_{gr} и конвекции V_c в случае стоксова $V_{gr}(S)$ и антистоксова $V_{gr}(As)$ сдвигов линии ВКоРС на субмикронных частицах в жидкости.

2.10 Отсутствие влияния концентрационной волны на измерение скорости конвекционного потока

Интенсивность допплеровского сигнала на одной частице, измеряемая на скрещенных красных лучах при наличии решетки и ВКоРС на субмикронных частицах в жидкости:

$$I_P(t) = \cos\left(\frac{2\pi}{\Lambda} (V_c + V_{gr})t\right).$$
(2.10.1)

Координата смещения частицы в волне концентрации относительно жидкости $x_{gr} = \frac{\lambda}{8m} \sin \Omega t$, тогда $V_{gr} = \frac{\lambda \Omega}{8m} \cos \Omega t$, где $m - доля \frac{\lambda}{8}$, на которую смещается частица.

$$I_P(t) = \cos\left(\frac{2\pi}{\Lambda}\left(V_c + \frac{\lambda\Omega}{8m}\cos\Omega t\right)t\right).$$
(2.10.2)

Поскольку для пересекающихся красных лучей концентрационная волна условию Брэгга, конечно, не удовлетворяет, рассеяние красного света на разных частицах оказывается некогерентным, и полная интенсивность рассеяния окажется суммой интенсивности рассеяния на всех частицах. Корреляционную функцию интенсивности запишем как

$$\langle I_{P}(t)I_{P}(t+\tau)\rangle = I_{P}^{2} \left\langle \cos\left[\frac{2\pi}{\Lambda}\left(V_{c} + \frac{\lambda\Omega}{8m}\cos\Omega t\right)\right]\tau + \\ + \cos\left[\frac{2\pi}{\Lambda}\left(V_{c} + \frac{\lambda\Omega}{8m}\cos\Omega t\right)(2t+\tau)\right]\right\rangle \equiv \\ \equiv \frac{1}{2}I_{P}^{2} \left\langle \cos\left[\frac{2\pi}{\Lambda}\left(V_{c} + \frac{\lambda\Omega}{8m}\cos\Omega t\right)\tau\right]\right\rangle_{t} = \\ = \frac{1}{2}I_{P}^{2} \left\langle \cos\left(\frac{2\pi}{\Lambda}V_{c}\tau\right)\times\cos\left(\frac{2\pi}{\Lambda}\frac{\lambda\Omega}{8m}\tau\cos\Omega t\right)\right.$$
(2.10.3)
$$- \sin\left(\frac{2\pi}{\Lambda}V_{c}\tau\right)\times\sin\left(\frac{2\pi}{\Lambda}\frac{\lambda\Omega}{8m}\tau\cos\Omega t\right) \rangle.$$

 $cos\left(\frac{2\pi}{\Lambda}\frac{\lambda\Omega}{8m}\tau cos\left(\Omega t\right)\right)$ при усреднении дает 0.77, а $sin\left(\frac{2\pi}{\Lambda}\frac{\lambda\Omega}{8m}\tau cos\left(\Omega t\right)\right)$ при усреднении дает 0 (Рис. 2.10.1).

Таким образом наличие или отсутствие концентрационной волны практически не сказывается на виде косинуса в корреляционной функции рассеянного света красных пересекающихся лучей, то есть корреляционной функции при допплеровских измерениях. Мелкие колебания интенсивности, связанные с колебаниями частиц в концентрационной волне, усредняются за время пролета частицами волн интенсивности интерференционной решетки красных лучей.



Рисунок 2.10.1 – Функции $cos(\Omega x)$ – сплошная синяя линия, $cos(A cos(\Omega x))$ – штриховой фиолетовый пунктир, при усреднении дает 0.77; $sin(A cos(\Omega x))$ – точечный горчичный пунктир, при усреднении дает 0.

2.11 Измерение линейности фотоприемника и ФЭУ в световодной схеме

Чтобы убедиться, что измеряется именно интенсивность рассеяния и её нелинейность, была проверена линейность приборов. Результаты исследования детектора представлены в Табл. 2.11.1–2.11.2, из которой видно, что ФЭУ никакого отношения к нелинейности не имеют. Результаты измерения линейности измерителя интенсивности представлены в 0, из которой также хорошо видно, что нелинейности, превышающей 2.2%, в этом приборе нет

Таблица 2.11.1 – Линейность ФЭУ. Максимальная интенсивность 21000.

Набор фильтров		Интенсивность	Пропускание	K1×K2×K3	Отличие	
			21000	100%		
нсзс-18			15600	74.29%		
	нс-7		10300	49.05%		
		зс-10	7450	35.48%		
нсзс-18	нс-7		7900	37.62%	36.44%	1.18%
	нс-7	зс-10	4100	19.52%	17.40%	2.12%
нсзс-18	нс-7	зс-10	3050	14.52%	12.93%	1.60%

Таблица 2.11.2 – Регистратор интенсивности лазера. Максимальная интенсивность 40500.

Набор фи.	льтров		Интенсивность	Пропускание	K1×K2×K3	Отличие
			40500	100%		
нсзс-18			27300	67.41%		
	нс-7		22050	54.44%		
		зс-10	16500	40.74%		
нсзс-18	нс-7		14850	36.67%	36.70%	0.03%
	нс-7	зс-10	9750	24.07%	22.18%	1.89%
нсзс-18	нс-7	зс-10	6300	15.56%	14.95%	0.60%

2.12 Вид корреляционной функции при наличии ВКоРС на субмикронных частицах в жидкости

В спектре рассеянного света при наличии вынужденного процесса появляется дополнительная спектральная линия. Соотношение между интенсивностью такой линии с интенсивностью возбуждающего света I_L есть коэффициент преобразования возбуждающего излучения в вынужденное рассеяние. Интенсивность вынужденного рассеяния I_{st} , в свою очередь, пропорциональна экспоненте от gLI_L , а при малых интенсивностях возбуждающего излучения эта зависимость становиться квадратичной. Если окажется, что этот коэффициент преобразования зависит от интенсивности линейно, то есть интенсивность сдвинутой спектральной линии пропорциональна квадрату интенсивности возбуждающего света, то есть основания полагать, что мы наблюдаем вынужденное рассеяние на флуктуациях концентрации частиц.

Вынужденное температурное рассеяние света аналогично вынужденному концентрационному в том смысле, что спектральная линия спонтанного рассеяния не сдвинута относительно возбуждающего света [9], а спектральная линия вынужденного рассеяния появляется на расстоянии полуширины спонтанного рассеяния.

Чтобы из экспериментальной корреляционной функции получить сдвиг дополнительной спектральной линии вынужденного рассеяния с помощью аппроксимации, необходимо посчитать, какой вид будет иметь функция корреляции при наличии двух спектральных линий различной интенсивности.

Для такого расчета мы использовали метод, аналогичный использованному в [67] для описания функции корреляции рассеянного света в присутствии гетеродинирующего пучка. Только в своей работе авторы [67] описывали гетеродинирующий пучок, модулированный ультразвуком.

Представим поле каждого вида рассеяния в виде несущей частоты, промодулированной процессом рассеяния.

$$E_{sp}(q,t) \to E_{sp}(q,0) = E_{sp}(0)exp\{-i(\omega_0 t - qr)\},\$$

$$E_{sp}(q,t+\tau) \to E_{sp}(q,\tau) = E_{sp}(\tau)exp\{-i(\omega_0 (t+\tau) - qr)\},\$$

$$E_h(q,t) \to E_h(q,0) = E_h(0)exp\{-i(\omega_0 t - qr)\},\$$

$$E_h(q,t+\tau) \to E_h(q,\tau) = E_h(\tau)exp\{-i(\omega_0 (t+\tau) - qr)\},\$$

$$E_{st}(q,t) \to E_{st}(q,0) = E_{st}(0)exp\{-i(\omega_{st}t - qr)\},\$$
(2.12.1)

$$E_{st}(q,t+\tau) \to E_{st}(q,\tau) = E_{st}(\tau)exp\{-i(\omega_{st}(t+\tau)-qr)\},\$$

где $E_{\rm sp}(q,\tau)$ – поле несмещенной спектральной линии, то есть спонтанного рассеяния, $E_h(q,\tau)$ – поле гетеродинирующего света на несмещенной частоте, $E_{\rm st}(q,\tau)$ – поле смещенной спектральной линии, которая, возможно, является линией вынужденного рассеяния.

Запишем функции корреляции интенсивности с усреднением для нашего случая :

$$C(q,\tau) = \langle |E_{sp}(q,\tau) + E_{h}(q,\tau) + E_{st}(q,\tau)|^{2} \times |E_{sp}(q,0) + E_{h}(q,0) + E_{st}(q,0)|^{2} \rangle.$$
(2.12.2)

Распишем функцию корреляции (2.12.2):

$$C(q,\tau) = \langle [E_{sp}(q,\tau)E_{sp}^{*}(q,\tau) + E_{sp}(q,\tau)E_{h}^{*}(q,\tau) + E_{sp}(q,\tau)E_{h}^{*}(q,\tau) + E_{sp}(q,\tau)E_{st}^{*}(q,\tau) + E_{h}(q,\tau)E_{sp}^{*}(q,\tau) + E_{h}(q,\tau)E_{h}^{*}(q,\tau) + E_{st}(q,\tau)E_{st}^{*}(q,\tau) + E_{st}(q,\tau)E_{st}^{*}(q,\tau)] \times [E_{sp}(q,0)E_{sp}^{*}(q,0) + E_{st}(q,\tau)E_{sp}^{*}(q,0) + E_{h}(q,0)E_{sp}^{*}(q,0) + E_{h}(q,0)E_{sp}^{*}(q,0) + E_{h}(q,0)E_{sp}^{*}(q,0) + E_{h}(q,0)E_{sp}^{*}(q,0) + E_{h}(q,0)E_{sp}^{*}(q,0) + E_{st}(q,0)E_{sp}^{*}(q,0) + E_{st}(q,0)E_{sp}^{*}(q,0)] \rangle.$$

В результате перемножения получим 81 слагаемое.

Все слагаемые, в которых встречается $\langle E_i(q,\tau)E_i(q,0)\rangle$ или $\langle E_i^*(q,\tau)E_i^*(q,0)\rangle$ и содержится множитель $e^{-2i\omega t}$ при усреднении дают 0 (*i=sp, st, h*).

Так же все слагаемые вида $\langle E_{sp}(q,\tau)E_{sp}^*(q,\tau)E_{st}(q,0)E_h^*(q,0)\rangle = 0$, в которых встречаются как минимум 3 различные волны, из-за их независимости также при усреднении дадут 0.

Так как интенсивности спонтанного, вынужденного рассеяния и опорного (гомодинирующего) пучка

$$I_{sp}(q,\tau) = E_{sp}^{*}(q,\tau)E_{sp}(q,\tau),$$

$$I_{st}(q,\tau) = E_{st}^{*}(q,\tau)E_{st}(q,\tau),$$

$$I_{h}(q,\tau) = E_{h}^{*}(q,\tau)E_{h}(q,\tau),$$
(2.12.4)

в результате получится:

$$C(q,\tau) = \langle I_{sp}^{2} (1 + exp\{-2\Gamma_{sp}\tau\}) + I_{h}^{2} (1 + exp\{-2\Gamma_{h}\tau\}) + I_{st}^{2} (1 + exp\{-2\Gamma_{st}\tau\}) + 4I_{sp}I_{h}exp\{-\Gamma_{sp}\tau\} + 8I_{st}I_{h}exp\{-\Gamma_{st}\tau\}\cos(\Omega_{st}\tau) + 8I_{sp}I_{st}exp\{-(\Gamma_{sp} + \Gamma_{st})\tau\}\cos(\Omega_{st}\tau)),$$

$$(2.12.5)$$

где $\Omega_{st} = |\omega_{st} - \omega_0|$. Ввиду быстрого затухания слагаемым $I_{sp}I_{st}exp\{-(\Gamma_{sp} + \Gamma_{st})\tau\}cos(\Omega_{st}\tau)$ можно пренебречь, а $exp\{-2\Gamma_h\tau\} = 1$.

В итоге получим корреляционную функцию вынужденного рассеяния, опорного несдвинутого луча и спонтанного рассеяния:

$$C(q,\tau) = \langle I_{sp}^{2} + 2I_{h}^{2} + I_{st}^{2} \rangle + \langle I_{sp}^{2} exp\{-2\Gamma_{sp}\tau\} + I_{st}^{2} exp\{-2\Gamma_{st}\tau\} + 4I_{sp}I_{h}exp\{-\Gamma_{sp}\tau\} + 8I_{st}I_{h}exp\{-\Gamma_{st}\tau\}cos(\Omega_{st}\tau)\rangle.$$

$$(2.12.6)$$

Поэтому, вспомнив, что линия вынужденного рассеяния должна быть сдвинута примерно на полуширину спонтанного, для аппроксимации полученных корреляционных функций следовало бы использовать следующую формулу:

$$C^{(I)}(\tau) = I_{sp}^{2} exp(-2\Gamma_{sp}\tau) + I_{st}^{2} exp(-2\Gamma_{st}\tau) +$$

+4 $I_{sp}I_{h}exp(-\Gamma_{sp}\tau) + 8I_{st}I_{h}exp(-\Gamma_{st}\tau) cos(\Omega_{st}\tau) +$
+ $\langle I_{sp} + I_{st} + 2I_{h} \rangle^{2}.$ (2.12.7)

где $C^{(l)}(\tau)$ – функция корреляции интенсивности рассеянного света, Γ_{sp} – полуширина линии спонтанного рассеяния, Γ_{st} – полуширина линии вынужденного рассеяния, Ω_{st} – частотный сдвиг спектральной линии ВКоРС на субмикронных частицах в жидкости.

 $I_{sp}^{2} exp(-2\Gamma_{sp}\tau)$ – часть корреляционной функции, соответствующая самобиениям спонтанного рассеяния света назад

 $I_{st}^{2} exp(-2\Gamma_{st}\tau)$ – часть корреляционной функции, соответствующая самобиениям вынужденного рассеяния света назад

 $I_{sp}I_hexp(-\Gamma_{sp}\tau)$ – корреляционая функция биений спонтанного рассеяния света и опорного пучка

 $I_{st}I_{h}exp(-\Gamma_{st}\tau)cos(\Omega_{st}\tau)$ – корреляционая функция биений вынужденного рассеяния света и опорного пучка. Косинусоидальная компонента говорит о наличии спектрального сдвига линии вынужденного рассеяния света.

Выяснилось, однако, что подгонка с таким количеством параметров является неустойчивой, поэтому аппроксимационную формулу пришлось несколько упростить.

$$G^{(l)}(\tau) = Aexp(-\Gamma_{sp}\tau) + Bexp(-\Gamma_{st}\tau)\cos(\Omega_{st}\tau), \qquad (2.12.8)$$

где $A = 2I_{sp}I_h$, $B = 2I_{sp}I_h$. Однако, поскольку косинусоида лежит в области малых значений корреляционной функции, определение B и Γ_{st} было ненадёжно. А нас интересовали в первую очередь именно значения амплитуды смешанной корреляционной функции B, точнее отношение B/A. Оказалось, что подгонка проводится лучше в логарифмическом масштабе.

$$\ln G(\tau) = \ln \left[A exp(-\Gamma_{sp}\tau) + B exp(-\Gamma_{st}\tau) cos(-\Omega_{st}\tau) \right].$$
(2.12.9)

Но и она не совсем точно описывала полученные результаты. Улучшило аппроксимацию добавление фона *F*, и аппроксимация проводилась с помощью функции:

$$\ln G(\tau) = \ln \left[Aexp(-\Gamma_{sp}\tau) + Bexp(-\Gamma_{st}\tau)cos(-\Omega_{st}\tau) + F \right].$$
(2.12.10)

Мы использовали 10 вариаций данной формулы, сокращая количество переменных, вводя логарифмический масштаб и используя подгонку в 2 этапа: используя приближенное выражение и на основе параметров использование более точной формулы, но это не позволило получить точность более $\chi^2 = 0.18$, а иногда и еще меньше. Предположительная проблема аппроксимации заключается в том, что мы получаем не идеальную функцию, релаксационные процессы могут сильно влиять на хвост корреляционной функции, ввиду чего уменьшается амплитуда и немного смешается положение второго пика в косинусоидальной компоненте, изза этого результаты подгонки ввиду большого количества параметров не совсем стабильны. Данный вопрос о поиске лучшей функции аппроксимации выходит за рамки данной работы.

2.13 Вид корреляционной функции ВКоРС на субмикронных частицах в жидкости при наличии конвекции

Используя расчёт, аналогичный приведенному в разделе 2.13, можно вывести вид корреляционной функции для ВКоРС на субмикронных частицах в жидкости при наличие конвекционного потока:

$$C^{(I)}(\tau) = A[I_{sp}^{2}exp(-2\Gamma_{sp}\tau) + I_{st}^{2}exp(-2\Gamma_{st}\tau) + +8I_{sp}I_{h}exp(-\Gamma_{sp}\tau)cos(\Omega_{Vc}\tau) +$$
(2.13.1)
+8I_{st}I_{h}exp(-\Gamma_{st}\tau)cos(\Omega_{st}\tau)] + \langle I_{sp} + I_{st} + I_{h} \rangle^{2}.

Рассмотрим за что отвечает каждое слагаемое в выражении (2.13.1):

 $I_{sp}^{2} exp(-2\Gamma_{sp}\tau)$ – часть корреляционной функции, соответствующая самобиениям спонтанного рассеяния света назад

 $I_{st}^{2} exp(-2\Gamma_{st}\tau)$ – часть корреляционной функции, соответствующая самобиениям вынужденного рассеяния света назад

 $I_{sp}I_h exp(-\Gamma_{sp}\tau) cos(\Omega_{Vc}\tau)$ – часть корреляционной функции, обусловленная биениями полей гомодинирующего света с частотной возбуждающей волны и света, спонтанно рассеянного частицами, движущимися в конвекционном потоке со скоростью V_c .

Косинусоидальная компонента говорит о наличии допплеровского сдвига Ω_{Vc} , обусловленного конвективным потоком.

 $I_{st}I_{h}exp(-\Gamma_{st}\tau)cos(\Omega_{st}\tau)$ – часть корреляционной функции, связанная с биениями полей ВКоРС и гомодинирующего пучка. Косинусоидальная компонента говорит о наличии спектрального сдвига линии вынужденного рассеяния света, причем Ω_{st} связана с полной скоростью концентрационной решетки вынужденного рассеяния V_{tot} , включающей в себя как собственную скорость решетки относительно жидкости V_{gr} , так и скорость конвекционного потока жидкости V_{c} .

Однако для минимальной мощности лазера, когда ВР ещё ниже порога регистрации, период T_{min} функции $cos(\Omega_{Vc}\tau)$, обусловленный конвективным потоком, равен 5.3×10^{-3} с, а $\tau_D = 1/\Gamma_1$ = оказывается 2.1×10^{-3} с, первый максимум, отнесённый к амплитуде корреляционной функции, имеет величину $e^{-\Gamma_1 T_{min}} = 0.08$ и практически ненаблюдаем. При увеличении мощности лазера T уменьшается, однако резко (квадратично или быстрее)

увеличивается I_{st} , и влияние $cos(\Omega_{Vc}\tau)$ уменьшается. Поэтому мы по-прежнему аппроксимировали полученные КФ формулой (2.12.10).

2.14 Оценка расстояния от световода до области максимальной интенсивности рассеяния и скорость конвекции в этой области

Угол расхождения света из световодов 22 градуса, толщина световодов $R = 150 \times 10^{-4}$ см, диаметр сердцевины волокна $d = 100 \times 10^{-4}$ см, расстояние между центрами световодов h = 2R. Ясно, что свет начинает расходиться на выходе световода не из точки, а из области, равной толщине сердцевины световода (Рис. 2.14.1). Найдем виртуальную точку из которой будет расходиться свет R_{ν} .

$$R_{\nu} = \frac{d/2}{tg\left(\frac{\alpha}{2}\right)}.$$
(2.14.1)

Тогда воображаемая точка, из которой выходит свет, утоплена в световод на $R_v = 0.026$ см. Теперь найдем расстояние до пересечения конусов освещающего и собирающего световодов.

$$L = \frac{R}{tg\left(\frac{\alpha}{2}\right)}.$$
(2.14.2)



Рисунок 2.14.1 – Схематичное изображение освещаемой области и области сбора рассеянного света вблизи конца световодного щупа. *Н* – точка пересечения освещающей и собирающей областей. *R* – радиус световода.



Рисунок 2.14.2 - Схематический срез пересечения освещающей и собирающей областей.

Получаем L = 0.082 см. После этого расстояния конусы освещающего и собирающего световода начинают пересекаться, образуя сплюснутый конус, на Рис. 2.14.2 показан его разрез. Нас интересует закон изменения площади фигуры *AECF* в зависимости от удаленности от световода.

Получается, что длина полуоси *AB* сплюснутого конуса *AECF* в зависимости от удаленности от конца световодного щупа запишется как *AB* = *AD* $tg^{-1}\left(\frac{\alpha}{2}\right)$. Нам нужно найти площадь фигуры S(AEBF) = 2(S(DFAE) - S(DFBE)). Длина отрезка *EF* будет всегда определять площадь сектора и она завит от расстояния *x* от точки пересечения конусов *H* (Рис. 2.14.1) как $EF = 2 tg\left(\frac{\alpha}{2}\right) x$.

Тогда нужная нам площадь фигуры AECF:

$$S(x) = \pi \left(x tg\left(\frac{\alpha}{2}\right) \right)^2 \frac{\arccos\left(\frac{R}{x tg\left(\frac{\alpha}{2}\right)}\right)}{360} - R x tg\left(\frac{\alpha}{2}\right) \right).$$
(2.14.3)

Интенсивность рассеяния света, как известно, обратно пропорциональна x^2 , тогда

$$I(x) \sim \frac{2}{x^4} \left(\pi \left(x tg\left(\frac{\alpha}{2}\right) \right)^2 \frac{\arccos\left(\frac{R}{x tg\left(\frac{\alpha}{2}\right)}\right)}{360} - R x tg\left(\frac{\alpha}{2}\right) \right).$$
(2.14.4)

Из Рис. 2.14.3 хорошо видно, что на зависимости I(x) есть максимум и сильное падение интенсивности при удалении от пересечения конусов раствора световодов. В нашем случае максимум интенсивности I(x) располагается на $x_{max} = 2.2$ мм.

Стояла задача определить зависимость скорости потока жидкости от расстояние от конца световода до точки измерения. Был проведен эксперимент по установлению зависимости скорости потока жидкости от расстояния до световода методом Допплера (Рис. 2.8.4) [40].

Для направленного вертикально вниз возбуждающего света положение максимальной интенсивности рассеяния и скорости потока практически совпадают. Для света, направленного вверх, это расстояние больше на 1 мм, по-видимому из-за завихрений потока при обтекании плоского конца световода, скорее всего в это является причиной отличия в скорости потока *V* на Рис. 2.14.4 и Рис. 2.14.5 более чем в 4 раза при максимальной интенсивности.



Рисунок 2.14.3 – Рассчитанная зависимость регистрируемой интенсивности спонтанного рассеяния от расстояния до световода.



Рисунок 2.14.4 – Зависимость скорости потока жидкости от расстояния до конца световода, направленного вертикально вниз, при разных интенсивностях, измеренная методом Допплера, для частиц латекса радиусом R = 480 нм и концентрацией $C_v = 7 \times 10^{-4}$ % в воде.



Рисунок 2.14.5 – Зависимость скорости потока жидкости от расстояния до конца световода, направленного вертикально вверх, при различных интенсивностях, измеренная методом Допплера, для частиц латекса радиусом R = 480 нм и концентрацией $C_v = 7 \times 10^{-4}$ % в воде.
2.15 Коэффициент отражения спонтанного рассеяния

Интенсивность спонтанного рассеяния для взвеси круглых частиц в воде в приближении Релея-Ганса-Дебая (РГД) определяется известным соотношением [37, 68]

$$I_{sca} = I_L \frac{k^4 V_p^2 V_{sc} (m-1)^2 N_p}{4\pi^2 L^2} G^2, \qquad (2.15.1)$$

где I_L – интенсивность падающего света, волновой вектор в среде $k = \frac{2\pi n_L}{\lambda_r}$, $V_p = \frac{4\pi R^3}{3}$ – объем частицы, $V_{sc} = \pi r^2 l$ – объем рассеяния, где r – радиус перетяжки, l – длина объема рассеяния, $G = \frac{3}{(qR)^2} (sin(qR) - qRsin(qR))$, где $q = 2k = \frac{4\pi n_L}{\lambda_r} sin(\frac{\theta}{2})$ – модуль волнового вектора рассеяния при рассеянии назад, L – длина от кюветы до линзы, N_p – числовая концентрация частиц (см⁻³), R – радиус частицы, $m = n_p/n_L$ – относительный показатель преломления частицы.

Чтобы экспериментально оценить интенсивность рассеяния для частиц латекса, в формуле (2.15.1), сделали замену $N_{\rm p}V_p = C_{\nu}$ (объемная концентрация латекса) и получили:

$$I_{sca} = I_L \frac{\left(\frac{2\pi n_L}{\lambda}\right)^4 \left(\frac{4\pi R^3}{3}\right)^2 V_{sc} (m-1)^2}{4\pi^2 L^2} G^2 =$$

$$= I_L \frac{16\pi^3 n_L^4 R^3}{\lambda^4} \frac{R^3}{3} (m-1)^2 \frac{V_{sc}}{L^2} C_{\nu} G^2.$$
(2.15.2)

Так как по определению [42]

$$I_{sca} = I_L R_{sca} \frac{V_{sc}}{L^2},$$
 (2.15.3)

то $R_{sca} = \frac{16\pi^3 n_L^4}{\lambda^4} \frac{R^3}{3} (m-1)^2 C_{\nu} G^2.$

Подставим значения для R = 480 нм, L = 3 см, $C_{\nu} = 7 \times 10^{-4}$ %, $V_{sc} = \pi r^2 l = 5 \times 10^{-6}$ см³, где $r = 1.5 \times 10^{-3}$ см – радиус луча в перетяжке, l = 0.43 см – длина перетяжки, $G^2 = 1.29 \times 10^{-4}$ в формулу (2.15.2) и принимая во внимание (2.15.3) получим:

$$R_{sca} = 2.4 \times 10^{-2} \text{ cm}^{-1}. \tag{2.15.4}$$

Как известно коэффициент отражения спонтанного рассеяния равен отношению потока излучения, отраженного от тела, к потоку, упавшему на тело:

$$\zeta_{sp} = \frac{P_{sca}}{P_L} = \frac{I_{sca}S_{sca}}{I_LS_L}.$$
(2.15.5)

Например, на полупрозрачном зеркале *S* (Рис. 2.8.1) $S_{sca} = S_L$, тогда коэффициент отражения спонтанного рассеяния на частицах латекса радиусом R = 480 нм в воде:

$$\zeta_{sp} = 2.2 \times 10^{-9}. \tag{2.15.6}$$

2.16 Оценка диффузионной силы, действующей на частицу и дифракционная эффективность брэгговской решетки

Из элементарной механики известно, что частица в механическом или гравитационном поле движется из области с высокой потенциальной энергией в область низкой. То есть существует градиентная сила F_{grad} действующая на частицу, которая записывается в виде

$$F_{grad} = -\nabla V(\bar{r}), \qquad (2.16.1)$$

где $V(\bar{r})$ – потенциал.

На движущуюся частицу в жидкости действует определенное сопротивление среды или сила трения. На каждую отдельную частицу действует также эффективная сила F_{dif} , а её среднее по времени [69]:

$$F_{dif} = -\frac{1}{N_p} \frac{dp(x)}{dx},$$
 (2.16.2)

где N_p – концентрация частиц латекса в воде (см⁻³). Для осмотического давления *p* справедлив газовый закон

$$p = N_p k_B T. (2.16.3)$$

Откуда находим, что

$$F_{dif} = -k_B T \frac{1}{N_p} \left(\frac{dN_p(x)}{dx} \right).$$
(2.16.4)

Из этого уравнения видно, что градиент концентрации создает эффективную термодинамическую (диффузную) силу для диффузии частиц из области большей концентрации N_p в область меньшей [70]. Скорость V движения частиц определяется формулой Стокса:

$$V = -\frac{F_{dif}}{6\pi\eta R}.$$
(2.16.5)

На частицу в жидкости в электрическом поле действуют две силы – электрическая сила и диффузионная сила. В нашем случае электрическая градиентная сила F_e возникает в результате появления градиента интенсивности при интерференции возбуждающего луча и рассеянного назад света. Такая сила F_e будет затягивать в максимумы или минимумы интерференционной решетки частицы в зависимости от их размера [63]. Кроме электрической силы F_e , на частицу будет действовать диффузионная сила F_{dif} (2.16.4) [69], пытающаяся вернуть частицу в равновесное положение. Если $\delta N_p \sim cos$ (qx), что видно из (1.18.1), то

$$F_{dif} = \frac{k_B T}{N_p} \sin(qx) \,\delta N_p. \tag{2.16.6}$$

Диффузионная сила F_{dif} максимальна при sin(qx) = 1

$$F_{dif} = \frac{k_B T}{N_p} q \,\delta N_p. \tag{2.16.7}$$

Здесь δN_p – отклонение от N_p в интерференционной решетке.

При взаимодействии двух когерентных пучков лазера под углом *α* образуется периодическая синусоидальная Брэгговская решетка. За основу был взят расчет коэффициента отражения (дифракции) света от Брэгговской решетки [71].

Согласно теории [71], дифракционная эффективность ζ_g для отражающей объемной Брэгговской решетки, полученная из решения скалярного волнового уравнения, рассчитывается как:

$$\zeta_g = \left(1 + \frac{1 + \xi^2 / \Phi^2}{\sinh^2(\xi^2 + \Phi^2)^{1/2}}\right)^{-1},$$
(2.16.8)

где ξ – параметр дефазировки, принимающий во внимание отклонение от условия Брэгга, которого в нашем случае нет, поэтому $\xi = 0$, и

$$\zeta_g = \left(1 + \frac{1}{\sinh^2 \sqrt{\Phi^2}}\right)^{-1},$$
(2.16.9)

где Ф – параметр, определяющий дифракционную эффективность или набег фазы:

$$\Phi = \frac{\pi t \delta n}{\lambda_g}.$$
(2.16.10)

Здесь t = 0.3 см – толщина Брэгговской решетки, δn – амплитуда решетки показателя преломления, $\lambda_g = 532$ нм – длина волны, формирующая Брёгговскую решетку.

$$\delta n = \frac{\delta \varepsilon}{2n_L} = \frac{\delta C_v(\varepsilon_P - \varepsilon_L)}{2n_L},$$
(2.16.11)

где δC_v – амплитуда волны концентрации.

Соответственно полное выражение для коэффициента отражения вынужденного рассеяния имеет вид:

$$\zeta_g = \frac{\sinh^2 \sqrt{\left(\frac{\pi t}{\lambda_g} \frac{\delta C_v(\varepsilon_P - \varepsilon_L)}{2n_L}\right)^2}}{1 + \sinh^2 \sqrt{\left(\frac{\pi t}{\lambda_g} \frac{\delta C_v(\varepsilon_P - \varepsilon_L)}{2n_L}\right)^2}}.$$
(2.16.12)

Выражение (2.16.12) понадобится нам для оценки электрической силы и коэффициента усиления. В нём все параметры известны из эксперимента, кроме δC_v .

2.17 Оценка порога ВКоРС на субмикронных частицах в жидкости

В стационарном случае приравняем две силы действующие на частицу в жидкости, диффузионную F_{dif} (2.16.7) и затягивающую силу F_e (1.19.6)

$$\alpha(\varepsilon_P - \varepsilon_L) \frac{4\pi}{c} \frac{I_L \sqrt{\zeta_g} \pi}{k^2} [2kR \cos(2kR) - \sin(2kR)] =$$
(2.17.1)

$$=\frac{k_BT}{N_p}2k\delta N_p.$$

В 2.16 мы записали выражение для коэффициента отражения для брэгговской решетки:

$$\zeta_{g} = \frac{\sinh^{2} \sqrt{\left(\frac{\pi t}{\lambda} \frac{\delta C_{v}(\varepsilon_{P} - \varepsilon_{L})}{2n_{L}}\right)^{2}}}{1 + \sinh^{2} \sqrt{\left(\frac{\pi t}{\lambda} \frac{\delta C_{v}(\varepsilon_{P} - \varepsilon_{L})}{2n_{L}}\right)^{2}}}.$$
(2.17.2)

Подставим ζ_g из (2.17.2) в (2.17.1) и получим трансцендентное уравнение, обе части которого зависят от δN_v

$$\alpha(\varepsilon_{P} - \varepsilon_{L}) \frac{4\pi}{c} \frac{I_{L}\pi}{k^{2}} \sqrt{\frac{\sin h^{2} \sqrt{\left(\frac{\pi t}{\lambda} \frac{\delta C_{v}(\varepsilon_{P} - \varepsilon_{L})}{2n_{L}}\right)^{2}}}{1 + \sinh^{2} \sqrt{\left(\frac{\pi t}{\lambda} \frac{\delta C_{v}(\varepsilon_{P} - \varepsilon_{L})}{2n_{L}}\right)^{2}}} \times [2kR\cos(2kR) - \sin(2kR)] = \frac{k_{B}T}{N_{p}} 2k\delta N_{p}.$$

$$(2.17.3)$$

На Рис. 2.17.1 показано решение трансцендентного уравнения (2.17.3) при 3 различных интенсивностях $P_{las} = 10, 25, 50$ мВт затягивающей силы F_e для частиц латекса радиусом R = 375 нм и диффузионной силы F_{dif} при $N_p = 7 \times 10^{-4}$ %. Где $\alpha = \frac{n_p^2}{n_L^2} - 1$ – поляризуемость среды, $n_L = 1.333$ – показатель преломления воды, $n_p = 1.580$ – показатель преломления латексных частиц, $c = 3 \times 10^{10}$ см/с – скорость света, $I_L = P/S = 6.36 \times 10^9$ эрг/см²с – интенсивность возбуждающего излучения, P – мощность излучения приходящаяся на площадь $S, k = 2\pi n_L/\lambda$ – волновой вектор, $\lambda = 532$ нм, длина Брэгговской решетки t = 3 мм, температура T = 293 К.

Зная амплитуду концентрации $\delta C_v = 4 \times 10^{-9}$, можно оценить амплитуду показателя преломления $\delta n = \frac{\delta C_v(\varepsilon_P - \varepsilon_L)}{2n_L} = 1.1 \times 10^{-9}$ и коэффициент отражения от Брэгговской решетки

$$\zeta_g = 6.4 \times 10^{-9}, \tag{2.17.4}$$

который сравним с коэффициентом рассеяния спонтанного рассеяния на частицах латекса $\zeta_{sp} = 2.2 \times 10^{-9}$, полученным в разделе 2.15.



Рисунок 2.17.1 – Графическое решение уравнения (2.17.3). Сплошная линия – диффузионная сила F_{dif} прерывистые – затягивающая сила F_{e} , пунктирная линия $P_{las} = 10$ мВт, штриховой пунктир $P_{las} = 25$ мВт, штрих-пунктирная линия $P_{las} = 50$ мВт.

2.18 Оценка коэффициента усиления по Ильичеву

Из решения уравнений для распространения излучения в стационарном случае можно получить уравнения для коэффициента отражения вынужденного рассеяния назад ζ_g через коэффициент спонтанного рассеяния ζ_{sp} [73]:

$$\frac{A - 2\sqrt{\zeta_g \zeta_{sp}}}{B + \sqrt{\zeta_g \zeta_{sp}}} = \frac{A}{B} \exp\left[-\sqrt{4\zeta_{sp} + f^2}\right],\tag{2.18.1}$$

где

$$f = \frac{1}{2}gIL(1 - \zeta_g),$$

$$A = f + \sqrt{4\zeta_{sp} + f^2},$$

$$B = -f + \sqrt{4\zeta_{sp} + f^2}.$$

(2.18.2)

Используя (2.18.2) выражение (2.18.1) можно упростить:

$$AB - 2B\sqrt{\zeta_g \zeta_{sp}} = \left(AB + 2A\sqrt{\zeta_g \zeta_{sp}}\right) exp\left[\sqrt{4\zeta_{sp} + f^2}\right].$$
(2.18.3)

Подставим $AB = 4\zeta_{sp} + f^2 - f^2 = 4\zeta_g$ в (2.18.3):

$$4 - 2B\sqrt{\frac{\zeta_g}{\zeta_{sp}}} = \left(4 + 2A\sqrt{\frac{\zeta_g}{\zeta_{sp}}}\right)exp\left[-\sqrt{4\zeta_{sp} + f^2}\right].$$
(2.18.4)

Если $\zeta_{sp} << f, B \sim 0$

$$1 = \left(1 + \frac{A}{2}\sqrt{\frac{\zeta_g}{\zeta_{sp}}}\right) exp\left[-\sqrt{4\zeta_{sp} + f^2}\right],\tag{2.18.5}$$

$$1 = \left(1 + 2f\sqrt{\frac{\zeta_g}{\zeta_{sp}}}\right) exp\left[-\sqrt{4\zeta_{sp} + f^2}\right].$$
(2.18.6)

Разложим $exp[-\sqrt{4\zeta_{sp}+f^2}]$ в ряд

$$1 = 1 + 2f \sqrt{\frac{\zeta_g}{\zeta_{sp}}} - f - 2f^2 \sqrt{\frac{\zeta_g}{\zeta_{sp}}} + \frac{f^2}{2} \sqrt{\frac{\zeta_g}{\zeta_{sp}}} + f^3 \sqrt{\frac{\zeta_g}{\zeta_{sp}}} - \dots =$$
$$= 1 - f \left(1 - 2\sqrt{\frac{\zeta_g}{\zeta_{sp}}} \right) + f^2 \left(\frac{1}{2} - 2\sqrt{\frac{\zeta_g}{\zeta_{sp}}} \right) - \dots =$$
$$-f^3 \left(\frac{1}{6} - \sqrt{\frac{\zeta_g}{\zeta_{sp}}} \right) - \dots = 0$$
(2.18.7)

Используя разложение только до вторых степеней, получим что

$$f \approx \left(\frac{1 - 2\sqrt{\zeta_g}/\zeta_{sp}}{\frac{1}{2} - 2\sqrt{\zeta_g}/\zeta_{sp}}\right).$$
(2.18.8)

Поскольку увеличение интенсивности рассеянного света I_{st} за счет ВР на 35% соответствует $f = 1/2gI_L l = 0.4$, при l = 0.3 см и $I_L = 2 \times 10^{-9}$ [эрг/с×см²], то коэффициент усиления равен

$$g = 1.3 \times 10^{-9} \left[\frac{c \times cM}{9 pr} \right] = 1.3 \times 10^{-2} \left[\frac{cM}{BT} \right].$$
 (2.18.9)

2.19 Оценка коэффициента усиления по Афанасьеву

Оценим коэффициент усиления ВКоРС по формуле, представленной в работе [27]

$$\frac{dI_0}{dI} = -g^T I_0 I, (2.19.1)$$

где

$$g^{T} = 2\pi N_{p} \frac{k}{n_{L}^{2}} \frac{D}{k_{B}T} \alpha^{2} V_{P} q^{2} V_{z} \frac{\Omega}{1/\tau_{2}^{2} + \Omega^{2}},$$
(2.19.2)

$$V_z = \left(R \; \frac{2\pi}{q}\right)^{3/2} J_{3/2}\left(2\pi R \frac{q}{2\pi}\right) = \left(2\frac{\pi R}{q}\right)^{3/2} J_{3/2}(qR). \tag{2.19.3}$$

Известно, что

$$J_{3/2}(x) = \frac{\sqrt{\frac{2}{\pi}} \left(\frac{\sin(x)}{x} - \cos(x)\right)}{\sqrt{x}} = \frac{\sqrt{\frac{2}{\pi}} (\sin(x) - x\cos(x))}{x^{3/2}}.$$
(2.19.4)

Тогда подставляя (2.19.4) и (2.19.3) в (2.19.2) и учитывая, что $I = \frac{E^2 c}{8\pi}$ и $N_p V_P = C_V$, получим выражение для g^T в удобном для экспериментатора виде:

$$g^{T} = \frac{64\pi^{3}}{3cn_{L}}\frac{1}{\lambda\eta}\alpha^{2}C_{V}\frac{1}{qR}(sin(qR) - qRcos(qR))\frac{\Omega}{1/\tau_{2}^{2} + \Omega^{2}}.$$
(2.19.5)

В Табл. 2.19.1 приведены значения коэффициента усиления, рассчитанные из (2.19.5), для частиц латекса с радиусами R = 375, 480, 750 нм и объемной концентрацией $C_v = 7 \times 10^{-4}$ %, для частиц латекса с радиусом R = 480 нм и объемной концентрацией $C_v = 5 \times 10^{-5}$ %, и для агрегатов алмаза с R = 1200 нм и объемной концентрацией $C_v = 3.4 \times 10^{-3}$ % при вязкости

жидкости $\eta = 0.0089$ пуаз. Для алмаза показатель преломления и α определялись из расчета содержания алмаза в агрегатах 12%, что определялось по интенсивности рассеяния и времени седиментации [62]. Видно, что знак сомножителя (sin(qR) - qRcos(qR)) в коэффициенте усиления меняется в зависимости от радиуса частиц, это означает, что меняется направление спектрального сдвига Ω ВКоРС на субмикронных частицах в жидкости, аналогично изменению знака затягивающей силы в разделе 1.19.

Таблица 2.19.1 –	Приведены	значения	коэффициента	усиления g^T	бот ради	уса частиц	<i>R</i> , типа
частиц и концент	рации.						

Радиус R, нм	Концентрация С _v ,%	g, с×см/эрг	g, см/Вт
1200	3.4×10^{-3}	5×10^{-10}	5×10^{-3}
375	$7 imes 10^{-4}$	- 4.9 × 10 ⁻⁸	- 4.9 × 10 ⁻¹
480	$7 imes 10^{-4}$	$5.4 imes 10^{-8}$	5.4×10^{-1}
480	5×10^{-5}	$3.5 imes 10^{-9}$	3.5×10^{-2}
750	7×10^{-4}	-5.9×10^{-9}	-5.9×10^{-2}

2.20 Спектральные сдвиги

Сдвиг спектральной линии вынужденного рассеяния и спектральная линия спонтанного рассеяния схематично представлены на Рис. 2.20.1.

Если перемножить лоренциан на *x*, тогда мы получим вид спектра, у которого линия ВР не узкая как на Рис. 2.20.1, а вытянутая, как показано Рис. 2.20.2. При таком виде спектральной линии ВР, сдвиг может точно не соответствовать полуширине спектральной линии спонтанного рассеяния, а немного смещаться от этого значения в большую сторону.



Рисунок 2.20.1 – Схематичное изображение спектра спонтанного рассеяния и его полуширины Γ_{sp} , вынужденного рассеяния и его полуширины Γ_{st} .



Рисунок 2.20.2 – Схематичное изображение спектра спонтанного рассеяния света (сплошная линия) и коэффициента усиления *g* вынужденного рассеяния света (пунктирная линия), полученное путем перемножения лоренциана на Ω.

Глава 3. Экспериментальные результаты

3.1 Функции корреляции интенсивности рассеяния взвесью кремния

Корреляционные функции света, рассеянного назад взвесью частиц кремния в трансформаторном масле, заметно отличаются от обычного экспоненциального вида и меняют свою форму при увеличении мощности возбуждающего пучка с длинной волны $\lambda = 532$ нм P_{las} с 3.2 до 21 мВт (Рис. 3.1.1). Из-за большого поглощения у частиц кремния форма корреляционных функций получается очень сложной и аппроксимация не представлялась возможной.

Поэтому было принято решение использовать другие частицы в другой жидкости. Свой выбор мы остановили на частицах алмаза в воде.



Рисунок 3.1.1 – Изменение формы корреляционной функции рассеянного назад света при увеличении мощности лазера *P*_{las} для взвеси наночастиц кремния в трансформаторном масле.

3.2 Функции корреляции света, рассеянного частицами алмаза в воде в оптической схеме №1

Была проведена серия экспериментов по получению корреляционных функций рассеянного назад света с возбуждающем лазером с $\lambda = 532$ нм при интенсивностях P_{las} от 2.8 до 38.6 мВт в оптической схеме №1 с объемной концентрацией наночастиц алмаза $C_V = 3.4 \times 10^{-3}$ % с радиусом R = 1200 нм. Таким образом в объеме рассеяния $V_{sc} = 2\pi r^2 l$ находилось порядка 90 частиц с расстоянием между частицами ~ 6 × 10⁻⁴ см.

Результаты исследования взвеси алмаза были опубликованы в работе [25], где приведен средний гидродинамический радиус агрегатов алмаза r_a =488 нм, полученный из данных динамического рассеяния света методом кумулянтов. Однако на самом деле состав взвеси был более сложным (Рис. 3.2.1). Из этого рисунка видно, что максимум рассеяния света приходится на частицы с радиусом 1193 нм.



Рисунок 3.2.1 – Результаты обработки программой DynaLS функции корреляции света, рассеянного назад взвесью алмаза, в отсутствие ВР (при мощности лазера 1 мВт). Слева гистограмма распределения интенсивности рассеяния по радиусам частиц, справа – результаты в числовом виде.

Были получены корреляционные функции и зависимость относительной интенсивности рассеянного назад света от мощности возбуждающего пучка в присутствии гомодинирующего опорного пучка в виде блика на зеркале. При интенсивностях рассеянного света больше 5×10^5 отсчетов в секунду перед ФЭУ помещались два фильтра HC-3 и TC-6, коэффициент ослабления которых равен 7.4 и 4.0 соответственно.

Полученные в линейном режиме работы коррелятора Photocor-FC с временем выборки $t_s = 5 \times 10^{-4}$ с при различных мощностях возбуждающего пучка функции корреляции рассеянного назад света представлены на Рис. 3.2.2. Из Рис. 3.2.2. видно, что при мощности лазера $P_{las} = 2.8$ мВт функция корреляции имеет привычный для таких измерений методом ДРС

экспоненциальный вид. При увеличении мощности лазера P_{las} до 14.6 мВт в корреляционной функции появляется косинусоидальная компонента с небольшой амплитудой. При $P_{las} = 38.6$ мВт наблюдается косинусоидальная компонента с хорошей амплитудой и стабильным значением периода. Это указывает на то, что в спектре рассеянного назад света появляется новая спектральная линия, сдвинутая относительно частоты возбуждающего излучения на частоту такой косинусоидальной компоненты. Теоретически это сдвиг должен быть равен полуширине спектральной линии спонтанного рассеяния. В разделе 2.13 показано, что такое соотношение действительно имеется. Следовательно, такая сдвинутая спектральная линия является первым признаком, указывающим на наличие вынужденного рассеяния (Рис. 3.2.2) интерпретируемого как ВКоРС на субмикронных частицах в жидкости, аналогично ВТР, ВРКЛР. Одновременно с корреляционной функцией измерялась отношение относительной интенсивность рассеянного назад света к интенсивности накачки при росте интенсивности накачки, представленное на Рис. 3.2.3, где показан нелинейный рост такой зависимости. Его рост показывает в явном виде нелинейность рассеяния света в нашем случае.



Рисунок 3.2.2 — Функция корреляции света $G(\tau)$, рассеянного назад взвесью наночастиц алмаза в воде при различных мощностях P_{las} возбуждающего пучка.



Рисунок 3.2.3 – Нелинейный рост отношения интенсивности рассеянного света *I_{sca}* рассеянного назад взвесью агрегатов алмазных наночастиц в воде к интенсивности возбуждающего пучка при увеличении интенсивности *I_{las}* возбуждающего лазера.

Эти два признака позволяют сделать заключение, что мы наблюдаем вынужденное концентрационное рассеяния света на субмикронных частицах в жидкости.

Нас интересовала еще одна очень важная зависимость отношения интенсивности рассеянного света к мощности накачки I_{sca}/I_{las} от интенсивности накачки I_{las} или интенсивности рассеянного света I_{sca} от интенсивности накачки I_{las} . Из Рис. 3.2.3 видно, что с ростом интенсивности лазерного излучения I_{las} нелинейно увеличивается интенсивность рассеянного света. Увеличение относительной интенсивности составило $\approx 36\%$, виден устойчивый рост I_{sca}/I_{las} с увеличением интенсивности лазера I_{las} . Эти результаты позволяют сделать вывод, что нелинейность в данном процессе присутствует. Рост небольшой, и это свидетельствует о том, что мы наблюдаем эффект на стадии его зарождения.

Следующей задачей была цифровая обработка полученных корреляционных функцией.

3.3 Результаты аппроксимации корреляционных функций взвеси алмаза

Формулы для аппроксимации корреляционных функций мы получили в разделе 2.13. Примеры результатов аппроксимации без учета фона и с учетом фона представлены ниже на

Рис. 3.3.1 – Рис. 3.3.2. Функция аппроксимации с фоном (2.12.10) лучше ложится на график и ошибка аппроксимации становится меньше, чем аппроксимации без учета фона (2.12.9).



Рисунок 3.3.1 – Функция корреляции света *G*, рассеянного взвесью наночастиц алмаза в воде, ось *ln(G)* в логарифмическом масштабе. Сплошная линия – аппроксимация функцией (2.12.9) *P*_{las} = 14.6 мВт.



Рисунок 3.3.2 – Функция корреляции света *G*, рассеянного взвесью наночастиц алмаза в воде, ось *ln(G)* в логарифмическом масштабе. Сплошная линия – аппроксимация функцией (2.12.10) *P*_{las} = 36.8 мВт.



Рисунок 3.3.3 – Зависимость отношения амплитуды косинусоидальной составляющей *B* к сумме амплитуд корреляционной функции спонтанного рассеяния назад взвесью наночастиц алмаза в воде *A* с косинусоидальной составляющей *B* от роста мощности возбуждающего пучка *P*_{las}. Красная линия – аппроксимация экспонентой.

Больше всего нас интересовало получение значений частотного сдвига ВКоРС на субмикронных частицах в жидкости и значения амплитуды корреляционной функции A спонтанного рассеяния и амплитуды косинусоиды B, отвечающей за интенсивность ВКоРС, а также их отношение B/A. Полученные значения отношения амплитуд B/A на Рис. 3.3.3.

Из Рис. 3.3.3 видно, что при максимально доступных для нас уровнях мощности лазера наблюдается заметный, примерно в 6 раз, рост отношения B/A что указывает на резкое увеличение интенсивности сдвинутой спектральной линии. Однако видно также и то, что при мощности пучка лазера ~ 40 мВт, то есть при мощности пучка в кювете около 20 мВт, этот процесс только начинается.

Кроме того, при измерениях для гомодинирования рассеянного света нам необходимы были блики возбуждающего излучения (отражение от линзы и кюветы, рассеяние на зеркале). Мы наблюдаем не самобиения линий спонтанного и вынужденного рассеяния, а биения бликов и рассеянного света, то есть гомодинирование обеих спектральных линий. При аппроксимации корреляционных функций формулой (2.12.10) мы получаем для обеих спектральных линий характерное времени корреляции $1/\Gamma$, а не $1/2\Gamma$.

Для взвеси частиц алмаза с радиусом R = 1193 нм, при температуре T = 26.2 °C, при которой проводился эксперимент, при рассеянии назад теоретическое значение полуширины линии спонтанного рассеяния будет:

$$\Omega_{st}^{T(almaz)} = Dq^2 = \frac{k_B T}{6\pi\eta R} \left(\frac{4\pi n}{\lambda} \sin\frac{\theta}{2}\right)^2 = \frac{k_B T}{6\pi\eta R} \left(\frac{4\pi n}{\lambda}\right)^2 =$$

= 207 ± 13 c⁻¹. (3.3.1)

Погрешность возникает из-за неточности определения температуры. Определим экпериментальную величину сдвига спектральной линии ВКоРС на субмикронных частицах в жидкости из периода косинусоидальной компоненты корреляционной функций по формуле:

$$\Omega_{st}^{E(almaz)} = \frac{4\pi n_L V_{gr}}{\lambda} = \frac{4\pi n_L}{\lambda} \frac{\lambda}{2T_{almaz} n_L} = \frac{2\pi}{T_{almaz}},$$
(3.3.2)

где $V_{gr} = \Omega_{st}/q$ – скорость концентрационной волны (1.18.1). На Рис. 3.3.4 видно, что сдвиг Ω линии ВКоРС практически не зависит от мощности излучения и составляет примерно $\Omega_{st}^{E} = 240 \pm 20 \,\mathrm{c}^{-1}$. Ошибка представляет собой ошибку аппроксимации формулой (2.12.9). Таким образом отличие экспериментального сдвига линии ВКоРС Ω_{st}^{E} и теоретического значения сдвига спектральной линии ВКоРС Ω_{almaz}^{T} составляет около 14%. Первые 3 точки графика Рис. 3.3.4 мы не рассматриваем, поскольку из-за малой мощности возбуждающего излучения и амплитуды косинусоидальной компоненты вынужденного рассеяния, результаты аппроксимации некорректны, так как интенсивность вынужденного рассеяния слишком мала по сравнению с интенсивностью спонтанного рассеяния света.

Таким образом, мы обнаружили ВКоРС на субмикронных частицах алмаза в жидкости, зафиксировав два признака вынужденного рассеяния. Во-первых, зафиксирован нелинейный рост интенсивности рассеянного света I_{sca} при росте мощности возбуждающего излучения P_{las} . Во-вторых, подтверждено наличие спектрального сдвига линии ВКоРС Ω_{st}^{E} и получено его численное значение из периода косинусоидальных компонент экспериментально полученных корреляционных функций ВКоРС на субмикронных частицах в жидкости, и оно оказалось близко к полуширине спектральной линии спонтанного концентрационного рассеяния.



Рисунок 3.3.4 – Зависимость спектрального сдвига Ω_{st}^{E} вынужденного рассеяния (косинусоидальной составляющей в корреляционной функции) от мощности возбуждающего пучка P_{las} во взвеси наночастиц алмаза в воде в классической схеме рассеяния назад. Величины ошибок представляют собой ошибки аппроксимации величины спектрального сдвига Ω_{st}^{E} формулой (2.12.10).

3.4 Экспериментальная оценка коэффициента усиления g для алмаза

На Рис. 3.4.1 представлен рост интенсивности света, рассеянного назад взвесью алмазных наночастиц в воде от мощности лазера. Врезанный фрагмент показывает рост отношения I_{sca}/I_{las} при росте мощности накачки I_{las} , с учетом приборных ошибок для каждой измерения.

Экспериментальная зависимость интенсивности рассеянного света *I*_{sca} от интенсивности возбуждающего пучка *I*_{las}, представленная на Рис. 3.2.3, аппроксимировалась формулой:

$$y = A \exp[gLx] + Cx. \tag{3.4.1}$$

Получены следующие значения параметров аппроксимации:

$$y = 6577 exp[(0.37 \pm 0.07) \times 10^{-9}x] + 3.31 \times 10^{-4}x.$$
(3.4.2)

Так как $I_{st} = I_{sp} exp[gI_LL]$, то $gL = 0.37 \times 10^{-9} \text{ см}^2 \times \text{с/эрг}$, следовательно при L = 0.3 см коэффициент усиления ВКоРС для взвеси агрегатов наночастиц алмаза получится:

$$g_A^E = (1.22 \pm 0.23) \times 10^{-9} \frac{c \times cM}{9pr} = (1.22 \pm 0.23) \times 10^{-2} \frac{cM}{BT}.$$
 (3.4.3)

Для наглядности была сделана подгонка этих результатов в логарифмическом масштабе. Из экспериментальных значений интенсивности рассеянного света (Рис. 3.4.1) вычли линейную часть, состоящую из спонтанного рассеяния I_{sp} и гетеродина I_h и от получившегося значения I_{pst} , отвечающего за вынужденное рассеяние, взяли логарифм и аппроксимировали линейной функцией от интенсивности возбуждающего пучка $Ln(I_{pst}) = A + gI_LL$. Результат представлен на Рис. 3.4.2.



Рисунок 3.4.1 – Аппроксимация формулой (3.4.1) роста относительной интенсивности рассеяния ВКоРС на субмикронных агрегатах наночастиц частиц алмаза в жидкости при росте мощности накачки P_{las} Пунктирная линия $I_{sca} = AI_{las}$, где $A = (I_{sca}/I_{las})$ при $I_{las} \rightarrow 0$ (см. вставку). Ошибки определялись как среднее квадратичное отклонение по результатам 30–120 посекундных измерений.

Экспериментальная зависимость интенсивности рассеянного света *I*_{sca} от интенсивности возбуждающего пучка *I*_{las}, представленная в логарифмическом масштабе на Рис. 3.4.2, аппроксимировалась формулой:

$$y = A + Bx. \tag{3.4.4}$$

Получены следующие значения параметров аппроксимации:

$$y = 10.06 + [(4.32 \pm 0.33) \times 10^{-10}]x, \qquad (3.4.5)$$



Рисунок 3.4.2 – Зависимость логарифма интенсивности ВР $Ln(I_{pst}) = Ln(I_{sp} - I_{sp} - I_h)$ на субмикронных агрегатах наночастиц алмаза в жидкости от интенсивности накачки I_{las} . Сплошная линия – аппроксимация формулой (3.4.4).

где $B = gL = (4.32 \pm 0.33) \times 10^{-10}$ см²×с/эрг, следовательно при L = 0.3 см коэффициент усиления ВКоРС для взвеси субмикронных агрегатов наночастиц алмаза получится:

$$g_A^E = (1.44 \pm 0.11) \times 10^{-9} \frac{c \times cM}{\Im pr} = (1.44 \pm 0.11) \times 10^{-2} \frac{cM}{BT}.$$
 (3.4.6)

Теоретическое значение коэффициента усиления, полученное в разделе 2.19, составляет $g_A^T = 5 \times 10^{-10}$ см×с/эрг в предположении, что агрегат включает 12% алмаза [62]. Поскольку мы достоверно не знаем величину относительного показателя преломления и α агрегатов наночастиц алмаза, то совпадение по порядку величины можно считать удовлетворительным. Если же алмаза в агрегате 18%, то оказывается, что $g_A^T = 1.25 \times 10^{-9}$ см×с/эрг, что с точностью до ошибки соответствует полученным результатам.

Следующим шагом нужно было подтвердить, что обнаруженный эффект является не особенностью данных частиц и экспериментальной установки. Поэтому мы сделали принципиально другую оптическую схему и провели эксперимент на других частицах.

3.5 Эксперимент с частицами латекса в воде в оптической схеме №2

В оптической схеме №2 со световодным щупом был осуществлен эксперимент по регистрации ВКоРС на субмикронных частицах в жидкости на частицах латекса радиусом R = 480 нм и объемной концентрацией $C_v = 5 \times 10^{-5}$ % в воде. Таким образом в объеме рассеяния $V_{sc} = 2\pi r^2 l$ находилось ~ 2000 частиц с расстоянием между частицами ~ 5×10^{-4} см. Вид корреляционных функций представлен на Рис. 3.5.1 для различных мощностей возбуждающего пучка. Из Рис. 3.5.1 видно, что вид корреляционных функций качественно совпадает с результатами, полученными в стандартной световой схеме №1. Это является прямым подтверждением, что наблюдается явления ВКоРС, так как результаты полученные на двух различных оптических схемах для двух различных типов частиц в жидкости согласуются. Рис. 3.5.1 показывает, что на малых интенсивностях ВКоРС на субмикронных частицах в жидкости отсутствует, так как вид корреляционной функции рассеянного назад света имеет обычный вид экспоненты. При увеличении мощности в корреляционной функции начинает появляться косинусоидальная составляющая, амплитуда которой растёт с увеличением мощности накачки P_{las} , что говорит о увеличении доли ВКоРС в рассеянном свете.



Рисунок 3.5.1 – Корреляционные функции рассеянного света, полученные на оптической схеме №2 со световодом на частицах латекса радиусом R = 480 нм и объемной концентрацией $C_v = 5 \times 10^{-5}$ % при мощностях возбуждающего пучка $P_{las} = 5$, 10, 25, 29 мВт.

При сравнении корреляционных функций, полученных на взвесях алмаза и латекса, видно, что в первом случае период косинусоидальной составляющей не изменяется с ростом мощности возбуждающего пучка (Рис. 3.2.2), во втором же случае период зависит от мощности падающего излучения. Из экспериментально полученных данных видно, что величина спектрального сдвига ВКоРС зависит от мощности падающего излучения для частиц латекса в воде, но по теории ВКоРС такого быть не должно. Оставим пока этот вопрос открытым и ответим на него дальше.

Для аппроксимации корреляционных функций рассеянного назад света использовали формулу (2.12.10). Примеры аппроксимации приведены на Рис. 3.5.2 для мощностей возбуждающего пучка *P*_{*las*} = 5, 10, 20, 29 мВт.



Рисунок 3.5.2 – Примеры аппроксимаций формулой (2.12.10) корреляционных функций рассеянного назад света для частицах латекса радиусом R = 480 нм и объемной концентрацией $C_v = 5 \times 10^{-5}$ % при мощностях возбуждающего пучка $P_{las} = 5$, 10, 25, 29 мВт.

3.6 Экспериментальная оценка коэффициента усиления g для латекса

Аппроксимация экспериментальной зависимости интенсивности рассеянного частицами латекса света *I*_{sca} от мощности возбуждающего пучка *P*_{las}, формулой:

$$y = Aexp[Bx] + Cx, \tag{3.6.1}$$

показана на Рис. 3.6.1. Получили следующие значения параметров аппроксимации:

$$y = 369 \exp[(1.92 \pm 0.35) \times 10^{-9}x] + 4.3 \times 10^{-6}x.$$

Так как $I_{st} = I_{sp} exp[gI_LL]$, то $gL = 1.92 \times 10^{-9}$ см²×с/эрг, следовательно при L = 0.3 см, коэффициент усиления ВКоРС для взвеси субмикронных частиц латекса получится:



Рисунок 3.6.1 – Аппроксимация формулой (3.4.1) роста относительной интенсивности рассеяния ВКоРС при росте интенсивности накачки I_{las} для субмикронных частиц латекса с R = 480 нм в воде к в оптической схеме №2 (световодной), объемная концентрация частиц $C_v = 7 \times 10^{-4}$ %. Пунктирная линия $I_{sca} = AI_{las}$, где $A = (I_{sca}/I_{las})$ при $I_{las} \rightarrow 0$ (см. вставку). Ошибки определялись как среднее квадратичное отклонение по результатам 30–120 посекундных измерений.

Для наглядности была сделана подгонка этих результатов в логарифмическом масштабе. Из экспериментальных значений интенсивности рассеянного света (Рис. 3.6.1) вычли линейную часть, состоящую из спонтанного рассеяния I_{sp} и гетеродина I_h и от получившегося значения I_{pst} , отвечающего за вынужденное рассеяние, взяли логарифм и аппроксимировали линейной функцией от интенсивности возбуждающего пучка $Ln(I_{pst}) = A + gI_LL$. Результат представлен на Рис. 3.6.2.



Рисунок 3.6.2 – Зависимость логарифма интенсивности ВР $Ln(I_{pst})$ от интенсивности накачки I_{las} для субмикронных частиц латекса с R = 480 нм в воде в оптической схеме №2 (световодной), объемная концентрация частиц $C_v = 7 \times 10^{-4}$ %. Сплошная линия – аппроксимация формулой (3.6.3).

Экспериментальная зависимость интенсивности рассеянного света *I*_{sca} от интенсивности возбуждающего пучка *I*_{las}, представленная в логарифмическом масштабе на Рис. 3.6.2, аппроксимировалась формулой:

$$y = A + Bx. \tag{3.6.3}$$

Получены следующие значения параметров аппроксимации:

$$y = 6.63 + [(1.62 \pm 0.14) \times 10^{-9}]x, \qquad (3.6.4)$$

где $B = gL = (1.62 \pm 0.14) \times 10^{-9}$ см²×с/эрг, следовательно при L = 0.3 см коэффициент усиления ВКоРС для взвеси агрегатов частиц латекса получится:

$$g_A^E = (5.4 \pm 0.47) \times 10^{-9} \frac{c \times c_M}{9 p_\Gamma} = (5.4 \pm 0.47) \times 10^{-2} \frac{c_M}{B_T}.$$
 (3.6.5)

Теоретическое значение коэффициента усиления, полученное в разделе 2.19, составляет $g_L^T = 3.5 \times 10^{-9}$ см×с/эрг. Такое совпадение g_L^T и g_A^E можно считать удовлетворительным.

3.7 ВКоРС на субмикронных частицах латекса радиусом 750 нм в условиях конвекционного потока жидкости

При измерениях корреляционных функций субмикронных частиц латекса с радиусом R = 480 нм в воде, было зафиксировано изменение периода косинусоидальной составляющей и, следовательно, величины спектрального сдвига линии ВКоРС (Рис. 3.5.1). Как оказалось, в оптической схеме №2 присутствовал конвекционный поток жидкости, так как частицы латекса, в отличие от алмаза, обладают несколько большим коэффициентом поглощения на длине волны $\lambda = 532$ нм. Его оказывается достаточно, чтобы создать в кювете с суспензией конвекционный поток. Тогда к оптической схеме №2 был добавлен допплеровский измеритель скорости потока (схема №3) для одновременного измерения как полной скорости концентрационной волны ВКоРС, так и скорости конвекционного потока жидкости методом Допплера.

Были измерены зависимости величины спектрального сдвига линии для ВКоРС и параллельно скорости конвекционного потока от мощности возбуждающего излучения P_{las} , которое заводилось в кювету двумя способами, вертикально сверху (возбуждающий пучок направлен вниз) и вертикально снизу (Приложение 1, Табл. 3.12.1 – Табл. 3.12.4). Корреляционные функции ВКоРС, полученные для частиц латекса с радиусом R = 750 нм и объемной концентрацией $C_V = 7 \times 10^{-4}$ % представлены на Рис. 3.7.1, полученные при возбуждающем излучении, направленном вниз, а на Рис. 3.7.2 – направленном вверх. Таким образом в объеме рассеяния $V_{sc} = 2\pi r^2 l$ находилось ~ 750 частиц с расстоянием между частицами ~ 4.5 × 10⁻⁴ см.

Напомним, что по периоду косинусоидальной компоненты корреляционной функции (Рис. 3.7.1) и (Рис. 3.7.2), измеренной на зеленом лазере через световод *CF* (Рис. 2.8.4), вычислялась полная скорость концентрационной волны ВКоРС на субмикронных частицах в жидкости:

$$V_{tot} = \frac{\Omega_{tot}c}{2\omega_o} = \frac{\Omega_{tot}\lambda_{532}}{4\pi n_L} = \frac{\lambda_{532}}{2T_{532}n_L}.$$
(3.7.1)

Здесь λ_{532} – длина волны возбуждающего излучения. Полная скорость концентрационной волны V_{tot} включает в себя как скорость решетки концентрации V_{gr} , так и скорость конвекционного потока V_c (см. раздел 2.9).

Одновременно с измерением корреляционной функции рассеянного назад света измерялись корреляционные функции интенсивности рассеяния двух скрещенных пучков Не-Ne лазера через световод *DF* (Рис. 2.8.4), с применением красного фильтра для направления света вниз (Рис. 3.7.3) и вверх (Рис. 3.7.4), и по периоду косинусоидальной составляющей определялась скорость конвективного потока V_c (2.9.2), что подробно описано в разделе 2.9.



Рисунок 3.7.1 – Корреляционные функции света, рассеянного назад взвесью частиц латекса радиусами *R* = 750 нм, при увеличении мощности возбуждающего излучения *P*_{*las*}, направленного вниз.



Рисунок 3.7.2 – Корреляционные функции света, рассеянного назад взвесью частиц латекса радиусами R = 750 нм, при увеличении мощности возбуждающего излучения P_{las} , направленного вверх.



Рисунок 3.7.3 – Корреляционные функции света, рассеянного частицами в конвекционном потоке скрещенных лучей He-Ne лазера, для взвеси частиц латекса радиусом *R* = 750 нм при увеличении мощности возбуждающего излучения *P*_{las}, направленного вниз.



Рисунок 3.7.4 – Корреляционные функции света, рассеянного частицами в конвекционном потоке скрещенных лучей He-Ne лазера, для взвеси частиц латекса радиусами *R* = 750 нм при увеличении мощности возбуждающего излучения *P*_{*las*}, направленного вверх.



Рисунок 3.7.5 – Зависимость полной скорости концентрационной волны ВКоРС на субмикронных частицах в жидкости V_{tot} и скорости конвекционного потока V_c от мощности накачки P_{las} при положении световода вертикально вниз (слева) и вверх (справа) для частиц латекса радиусом R = 750 нм, определенные из корреляционных функций по формулам (3.7.1) и (2.9.2). Величины ошибки соответствуют среднему квадратичному отклонению по 5 измерениям.

На Рис. 3.7.5 представлены пересчитанные по формулам (2.9.2) и (3.7.1), полная скорость концентрационной волны ВКоРС на субмикронных частицах в жидкости V_{tot} и скорость конвекционного потока жидкости V_c при изменении мощности лазера P_{las} от 5 до 35 мВт. Эти скорости изменялись от 0.4×10^{-2} до 1.6×10^{-2} см/с при направления возбуждающего излучения

вниз и от 0.5×10⁻² до 3.0×10⁻² см/с при направления возбуждающего излучения вверх. При направлении света вниз полная скорость концентрационной волны больше скорости конвекции жидкости $V_{tot} > V_c$, а при направлении вверх $V_{tot} < V_c$ (при мощности $P_{las} > 17$ мВт, когда уже установилось ВКоРС). Это следствие того, что при постоянном направлении конвекционного потока вертикально вверх направление скорости концентрационной волны ВКоРС на субмикронных частицах в жидкости меняется на противоположное при различных направлениях возбуждающего излучения. Видно, что между полной скоростью концентрационной решетки V_{tot} и скоростью конвекционного потока V_c после 17 мВт устанавливается постоянная разница. До 17 мВт отличие этих скоростей непостоянно, что скорее всего связано с неустойчивостью слабого ВКоРС в конвекционном потоке. Ошибки на Рис. 3.7.5 и всех последующих графиках рассчитаны как среднее квадратичное отклонение по 5 измерениям.

Напомним, что зная полную скорость концентрационной волны V_{tot} и скорость конвекции жидкости V_c можно определить из их разности величину и направление частотного сдвига спектральной линии ВКоРС по формуле:

$$\Omega_{st}^{E} = \frac{4\pi n_L V_{gr}}{\lambda_{532}} = \frac{4\pi n_L |V_{tot} - V_c|}{\lambda_{532}}.$$
(3.7.2)

Полученные таким образом экспериментальные сдвиги линии ВКоРС для частиц латекса радиусом R = 750 нм представлены на Рис. 3.7.6. Видно, что значение спектрального сдвига ВКоРС для направления вверх и вниз при мощности лазера $P_{las} > 17$ мВт практически совпадают. Экспериментально полученные значение $\Omega_{st}^{E(Lat750nm)} = 419 \pm 18 \text{ c}^{-1}$ отличаются на 26% от предсказанного теоретически $\Omega_{st}^{T(Lat750nm)} = 308 \pm 28 \text{ c}^{-1}$.

По знаку разности скоростей в формуле (3.7.2) можно судить, что сдвиг для взвеси частиц латекса R = 750 нм антистоксов, что прекрасно согласуется с теоретическими оценками (1.19.6). На Рис. 3.7.7 представлена увеличенная часть графика Рис. 1.19.1 для частицы латекса радиусами R от 740 до 760 нм, из которого видно, что знак затягивающей силы F_e положительный.

Период измерялся по точке максимума первого пика косинусоидальных компонент в корреляционных функциях, так как при аппроксимации формулой (2.12.10), из-за более сложного вида корреляционны функций латекса, по сравнению с алмазом, аппроксимация при 5–6 параметрах была неустойчивой, и при фиксации больше чем одного параметра визуально было видно, что программа аппроксимации не справляется с поставленной задачей определения

периода косинусоидальной компоненты. Ошибка определения периода при аппроксимации этой формулой корреляционных функций рассеянного света частица латекса в воде составляла 428 ± 290 с⁻¹. Поэтому применялся более простой способ определения периода косинусоидальной компоненты по положению ее максимума.



Рисунок 3.7.6 – Зависимость экспериментальных спектральных сдвигов линии ВКоРС Ω_{st}^{E} для взвеси частиц латекса радиусом R = 750 нм, полученных по формуле (3.7.2). Штриховым-пунктиром показан диапазон теоретических значений сдвига ВКоРС Ω_{st}^{T} . Ошибки соответствуют среднеквадратичному отклонению по 5 измерениям.



Рисунок 3.7.7 – Вид функции (1.19.6) (увеличенная часть графика Рис. 1.19.1) для радиусов частиц от 740 до 760 нм. *F_e* > 0 для *R* = 750 нм.

3.8 ВКоРС на частицах латекса радиусом 375 нм в условиях конвекционного потока жидкости

Мы провели эксперимент, аналогичный описанному в предыдущем параграфе (3.7), на взвеси частиц латекса с радиусом R = 375 нм и объемной концентрацией $C_V = 7 \times 10^{-4}$ % в воде, и получили следующие результаты (Приложение 1, Табл. 3.12.5 – Табл. 3.12.8). Таким образом в объеме рассеяния $V_{sc} = 2\pi r^2 l$ находилось ~ 6000 частиц с расстоянием между частицами ~ 4.5×10^{-4} см. На Рис. 3.8.1 представлены корреляционные функции ВКоРС взвеси латекса, полученные через световод *CF* (Рис. 2.8.4) в зеленом свете $\lambda = 532$ нм. Хорошо видно, что период косинусоидальной компоненты сокращается с ростом мощности, как и в прошлых экспериментах.



Рисунок 3.8.1 – Корреляционные функции ВКоРС взвеси латекса с частицами радиусом R = 375 нм, полученные в отпической схеме №3 на зеленом лазере $\lambda = 532$ нм при различных мощностях накачки P_{las} для направления лазера вниз (слева) и вверх (справа).

Из значений периодов косинусоидальной компоненты графиков Рис. 3.8.1 по формулам (3.7.1) получены полная скорость концентрационной волны ВКоРС на субмикронных частицах в жидкости V_{tot} . Из корреляционных функций, полученных на красном лазере методом Допплера, по формуле (2.9.2) получили скорости конвекционного потока жидкости V_c . При изменении мощности лазера P_{las} от 5 до 35 мВт, скорости изменялись от 0.6×10^{-2} до 1.6×10^{-2} см/с для направления возбуждающего луча вниз и от 1×10^{-2} до 6×10^{-2} см/с для направления возбуждающего луча вниз и от 1×10^{-2} до 6×10^{-2} см/с для направления



Рисунок 3.8.2 – Зависимость полной скорости концентрационной волны ВКоРС на субмикронных частицах в жидкости V_{tot} и скорости конвекционного потока V_c от мощности накачки P_{tas} при положении световода вертикально вниз (слева) и вверх (справа) для частиц латекса радиусом R = 375 нм, определенные из экспериментальных данных по формулам (3.7.1) и (2.9.2). Ошибки соответствуют среднеквадратичному отклонению по 5 измерениям.



Рисунок 3.8.3 – Зависимость экспериментально определенных по формуле (3.7.2) спектральных сдвигов линии ВКоРС Ω_{st}^{E} от мощности возбуждающего пучка P_{las} для взвеси частиц латекса радиусом R = 375 нм. Штриховымпунктиром показан диапазон теоретических значений сдвига ВКоРС Ω_{st}^{T} с учетом погрешности температуры. Ошибки соответствуют среднеквадратичному отклонению по 5 измерениям.

Для взвеси частиц латекса R = 375 нм наблюдаем картину, аналогичную взвеси с латексом R = 750 нм: при направлении света вниз полная скорость концентрационной волны больше скорости конвекции жидкости $V_{tot} > V_c$, а при направлении вверх $V_{tot} < V_c$ при установившемся режиме ВКоРС на субмикронных частицах в жидкости, когда $P_{las} > 17$ мВт.

По полной скорости концентрационной волны V_{tot} и скорости конвекции жидкости V_c можно определить величину и направление частотного сдвига спектральной линии ВКоРС по формуле (3.7.2). Результат для частиц латекса радиусом R = 375 нм. представлен на Рис. 3.8.3. Видно, что экспериментально полученные значения $\Omega_{st}^{E(Lat375nm)} = 800 \pm 46 \text{ c}^{-1}$ отличаются на 23% от предсказанного теоретически $\Omega_{st}^{T(Lat375nm)} = 616 \pm 56 \text{ c}^{-1}$, как и в случае взвеси наночастиц алмаза и латекса радиусом R = 750 нм.

По знаку выражения ($V_{tot} - V_c$) в формуле (3.7.2) можно определить, что сдвиг антистоксов, что согласуется с теоретическими оценками формулы (1.19.6). На Рис. 3.8.4 представлена увеличенная часть графика Рис. 1.19.1 для частицы латекса радиусами *R* от 370 до 380 нм, из которого видно, что знак затягивающей силы F_e положительный.



Рисунок 3.8.4 – Вид функции (1.19.6) (увеличенная часть графика Рис. 1.19.1) для радиусов частиц от 360 до 380 нм. *F_e* > 0 для *R* = 375 нм.

3.9 ВКоРС на частицах латекса радиусом 480 нм в условиях конвекционного потока жидкости

Такие же измерения были проведены для частиц латекса радиусом 480 нм через световод *CF* (Рис. 2.8.4) для регистрации корреляционных функций ВКоРС и через световод *DF* (Рис. 2.8.4) для регистрации корреляционных функций света, рассеянного скрещенными пучками Не-Ne лазера. Корреляционные функции регистрировали при направлении возбуждающего излучения *P*_{las} вниз и вверх (Приложение 1, Табл. 3.12.9 – Табл. 3.12.12). На Рис. 3.9.1 представлены пересчитанные по формулам (2.9.2) и (3.7.1) полная скорость концентрационной волны ВКоРС на субмикронных частицах в жидкости V_{tot} и конвекционного потока жидкости V_c при изменении мощности лазера P_{las} от 5 до 35 мВт, скорости изменялись от 0.4×10^{-2} до 1.6×10^{-2} см/с для полной скорости концентрационной волны и от 0.5×10^{-2} до 3.0×10^{-2} см/с для скорости конвекционного потока. Для взвеси частиц латекса с радиусом R = 480 нм и объемной концентрацией $C_V = 7 \times 10^{-4}$ % наблюдаем противоположную картину, нежели для взвесей с латексом R = 375 и 750 нм: при направлении света вниз полная скорость концентрационной волны меньше скорости конвекции жидкости $V_{tot} < V_c$, а при направлении вверх $V_{tot} > V_c$ для установившегося режима ВКоРС на субмикронных частицах в жидкости, при $P_{las} > 17$ мВт.

По полной скорости концентрационной волны V_{tot} и скорости конвекции жидкости V_c определим величину и направление частотного сдвига спектральной линии ВКоРС по формуле (3.7.2). Результат таким образом определенных из эксперимента сдвигов для частиц латекса радиусом R = 480 нм представлен на Рис. 3.9.2. Видно, что экспериментально полученные значения спектрального сдвига линии ВКоРС $\Omega_{st}^{E(Lat480nm)} = 642 \pm 55 \text{ c}^{-1}$ превышают на 26% предсказанные теоретические $\Omega_{st}^{T(Lat480nm)} = 478 \pm 44 \text{ c}^{-1}$, как и в случае предыдущих экспериментов.



Рисунок 3.9.1 – Зависимость полной скорости концентрационной волны ВКоРС на субмикронных частицах в жидкости V_{tot} и скорости конвекционного потока V_c от мощности накачки P_{las} при направлении световода вертикально вниз (слева) и вверх (справа) для взвеси частиц латекса радиусом R = 480 нм. Ошибки соответствуют среднеквадратичному отклонению по 5 измерениям.



Рисунок 3.9.2 – Зависимость экспериментальных спектральных сдвигов линии ВКоРС Ω_{st}^{E} для взвеси частиц латекса радиусом R = 480 нм, полученных по формуле (3.7.2). Штриховым-пунктиром показан диапазон теоретических значений сдвига ВКоРС Ω_{st}^{T} с учетом погрешности температуры. Ошибки соответствуют среднеквадратичному отклонению по 5 измерениям.

По знаку выражения (V_{tot} – V_c) в формуле (3.7.2) получается, что сдвиг стоксов, что согласуется с теоретическими оценками формулы (1.19.6). На Рис. 3.9.3 представлена увеличенная часть графика Рис. 1.19.1 для частиц латекса радиусами *R* от 470 до 490 нм., из которой видно, что знак затягивающей силы *F_e* отрицательный.



Рисунок 3.9.3 – Вид функции (1.19.6) (увеличенная часть графика Рис. 1.19.1) для радиусов частиц от 470 до 490 нм *F_e* < 0 для *R* = 480 нм.

3.10 Обсуждение результатов для частиц латекса радиусами 375, 480, 750 нм в присутствии конвекционного потока жидкости

Сводный график для полной скорости концентрационной волны ВКоРС на субмикронных частицах в жидкости вместе с конвекционным потоком V_{tot} и скорости конвекционного потока V_c для частиц латекса радиусами R = 375, 480, 750 нм и направлением возбуждающего света вниз показан на Рис. 3.10.1, а для направления света вверх на Рис. 3.10.2. Видно, что при мощности возбуждающего пучка P_{las} более 17 мВт скорости V_{tot} и V_c отличаются на постоянную величину Также хорошо видно, что для взвеси частиц латекса с радиусами R = 480 нм соотношение между V_c и V_{tot} обратное относительно взвесей частиц латексов с радиусами R = 750 и 375 нм, что и говорит о том, что для частиц с радиусами R = 480 нм сдвиг – стоксов, а для частиц латексов с радиусами R = 750 и 375 нм – антистоксов.



Рисунок 3.10.1 – Полная скорость концентрационной волны ВКоРС на субмикронных частицах в жидкости вместе с конвекционным потоком V_{tot} и скорость конвекционного потока V_c для взвесей частиц латекса радиусами R = 375, 480, 750 нм при направлении возбуждающего света вертикально вниз. Ошибки соответствуют среднеквадратичному отклонению по 5 измерениям.
На Рис. 3.10.3 представлен сводный график спектральных сдвигов ВКоРС на субмикронных частицах в жидкости Ω_{st}^{E} , полученных в световодной схеме №3 из экспериментальных корреляционных функций для взвесей частиц латекса радиусами R = 375, 480, 750 нм. Видно, что при мощности возбуждающего пучка $P_{las} > 17$ мВт наблюдается установившийся режим ВКоРС на субмикронных частицах в жидкости.



Рисунок 3.10.2 – Полная скорость концентрационной волны ВКоРС на субмикронных частицах в жидкости вместе с конвекционным потоком V_{tot} и скорость конвекционного потока V_c для взвесей частиц латекса радиусами R = 375, 480, 750 нм при направлении возбуждающего света вертикально вверх. Ошибки соответствуют среднеквадратичному отклонению по 5 измерениям.

На Рис. 3.10.4 показаны теоретические значения и знак спектрального сдвига $\Omega_{st}^{T} = Dq^{2}$ в зависимости от радиуса частиц и определенные из эксперимента по формуле (3.7.2) спектральные сдвиги ВКоРС на субмикронных частицах в жидкости Ω_{st}^{E} из измеренных корреляционных функций для взвесей частиц латекса радиусами R = 375, 480, 750 нм в воде.



Рисунок 3.10.3 – Вычисленные из экспериментальных корреляционных функций по формуле (3.7.2) спектральные сдвиги линий ВКоРС на субмикронных частицах в жидкости Ω_{st}^{E} , полученные для взвесей частиц латексов радиусами R = 375, 480, 750 нм для направления возбуждающего пучка вверх и вниз. Горизонтальные линии показывают теоретический расчет величины сдвига ВКоРС на субмикронных частицах в жидкости Ω_{st}^{T} . Сплошная – точное значение, пунктирные – возможное отклонение за счет отклонения по температуре. Видно, что при мощности возбуждающего пучка $P_{las} > 17$ мВт наблюдается установившийся режим ВКоРС на субмикронных частицах в жидкости. Ошибки соответствуют среднеквадратичному отклонению по 5 измерениям.



Рисунок 3.10.4 – Полые круговые точки – теоретические значения спектрального сдвига линии ВКоРС на субмикронных частицах в жидкости $\Omega_{st}^{T} = Dq^{2}$, сплошные круговые точки – вычисленные из экспериментальных корреляционных функций по формуле (3.7.2) спектральные сдвиги ВКоРС на субмикронных частицах в жидкости Ω_{st}^{E} для частиц радиусами R = 375, 480, 750 нм.

3.11 Проверка влияния рассеянного излучения на излучение лазера

Для исключения сомнений о влияния рассеянного света, попадающего обратно в резонатор лазера и его возможного влияния на модовую и временную структуру излучения лазера была собрана оптическая схема с оптической развязкой, которая пропускает назад не больше, чем 10⁻⁵ света. Оптическая развязка состоит из 2 поляризаторов и ячейки Фарадея (Рис. 3.11.1).

Провели эксперимент, аналогичный описанному в параграфе 3.7, с оптической развязкой и без нее, для частиц латекса радиусом R = 480 нм при 2 различных мощностях возбуждающего пучка. Результаты зависимостей вида корреляционной функции для двух интенсивностей лазерного пучка I_1^k и I_2^k на входе в кювету с оптической развязкой и без нее представлены на Рис. 3.11.2, из которого хорошо видно, что период косинусоидальной составляющей в корреляционных функциях не изменяется и, следовательно, рассеянное излучение никак не изменяет структуру лазерного излучения.



Рисунок 3.11.1 – Оптическая схема с оптической развязкой. *Laser* – Твердотельный зеленый лазер 50 мВт; P_i – поляризаторы; B – ячейка фарадея; L_i – собирающие линзы; IF – освещающий световод; CF – собирающий световод; PR – оптический щуп; SCS – система обеспечения пространственной когерентности; C – кювета; D_a – апертурная диафрагма; D_s – диафрагма перед ФЭУ (катодная); PM – ФЭУ; *Corr.* – коррелятор.



Рисунок 3.11.2 – Корреляционные функции ВКоРС на субмикронных частицах в жидкости, полученные на установке без оптический развязки (залитые точки) и с оптической развязкой (полые точки) для двух интенсивностей лазерного пучка I_1^k и I_2^k на входе в кювету.

3.12 Проверка наличия ВКоРС на субмикронных частицах в жидкости в поперечном резонаторе

Чтобы еще раз убедиться в том, что мы наблюдаем сдвиг именно вынужденного концентрационного рассеяния, была разработана оптическая схема для получения ВКоРС на субмикронных частицах в жидкости в поперечном резонаторе, которая представлена на Рис. 3.12.1. Данная схема с поперечным резонатором является дополнительным фактором проверки наличия нелинейных процессов [74–79]. Поперечный резонатор позволяет наблюдать ВРМБ, ВКР, ВРКЛР. Например в работе [74] поперечный резонатор использовался для получения компонент ВРМБ, которых было более 12, а также наблюдалась самосинхронизация компонент ВРБМ, что говорит о нелинейной зависимости показателя преломления среды от электрического поля световой волны. В работе [79] показывается, что наблюдение ВРМБ в поперечном резонаторе «дает прямое подтверждение квантовой и классической теории ... ВР».

В качестве источника света использовался тот же непрерывный твердотельный лазер с длиной волны $\lambda = 532$ нм. Излучение лазера, пройдя через поляризатор P_1 , позволяющий регулировать мощность возбуждающего излучения, и P₂ для получения вертикальной поляризации, попадало на плоскопараллельную пластинку G₁, пропускающую 92.2% света. Далее свет проходил через цилиндрическую линзу L₁ и фокусировался в кювету C с взвесью частиц латекса с радиусом R = 100 нм и объемной концентрацией $C_V = 1.4 \times 10^{-4}$ %, в которой образовывалась концентрационная решетка. Второй луч от плоскопараллельных пластинок G₁ и G_2 , пройдя через систему фильтров *F*, от плоскопараллельной пластинки G_3 попадал в ФЭУ. Этот второй луч играл роль гомодинирующей опорной волны для получения косинусоидальной составляющей корреляционной функции при появлении частотного сдвига линий ВКоРС на субмикронных частицах в жидкости. Серебряное зеркало M₁ глухое и отражает 99,5% света. Зеркало M_2 отражает обратно в резонатор 97%, а пропускает 3%. Зеркала резонатора M_1 и M_2 были расположены на расстоянии 110 мм и юстировались параллельно друг другу. Внутри резонатора стояла плоскопараллельная пластинка G4, которая с помощью рычага А поворачивалась винтом b, а смещение конца рычага измерялось микрометром Q. Такая конструкция была необходима для изменения оптической длины резонатора и подбора моды резонатора для образования ВКоРС на субмикронных частицах в жидкости. Свет после G₃ поступал на катод лавинного ФЭУ, и с помощью коррелятора мы получали корреляционные функции биений ВКоРС на субмикронных частицах в жидкости и гомодинирующего пучка от G_{3} .

На Рис. 3.12.2 представлена зависимость интенсивности рассеянного света от поворота угла пластинки G_4 и соответственно оптического пути внутри резонатора. Видно, что пик очень узкий и сильно зависит от оптического пути. Интенсивность рассеяния возрастает на 16% при попадании в моду резонатора. На Рис. 3.12.3 представлены полученные корреляционные функции ВКоРС на субмикронных частицах в жидкости на 2 различных модах резонатора. Если в моду не попадаем, то косинусоидальная составляющая в корреляционной функции не наблюдается. Видно, что корреляционные функции довольно хорошо согласуются по первому максимому, из которого и определяется величина сдвига.



Рисунок 3.12.1 – Оптическая схема с поперечным резонатором. *Laser* – непрерывный лазеры с $\lambda = 532$ нм; P_i – поляризаторы; L_i – цилиндрическая линза; M_i – зеркала; G_i – плоскопараллельные пластинки; F – фильтры; C – кювета; PM – фотоумножитель; *Corr*. – коррелятор; b – болт, для регулировки угла поворота плоскопараллельной пластинки G_4 ; A – поворотный рычаг пластинки G_4 ; Q – микрометр.

Для частиц латекса размеров 100 нм из теоретического расчета по формуле (3.3.1)

$$\Omega_{100nm}^{T}(90^{\circ}) = 1184 \pm 37 \ (c^{-1}). \tag{3.12.1}$$

Период косинусоидальной компоненты корреляционной функции на Рис. 3.12.3 по результатам 5 измерений равен $5.6 \times 10^{-3} \pm 0.2 \times 10^{-3}$ с. Экспериментальный результат, полученный по формуле (3.3.2) дает следующее значение:

$$\Omega_{100nm}^E(90^\circ) = 1122 \pm 42 \ (c^{-1}). \tag{3.12.2}$$

Экспериментальное значение $\Omega_{100nm}^{E}(90^{\circ})$ согласуется с теоретическим $\Gamma_{100nm}^{T}(90^{\circ})$ и ошибка составляет менее 5%.

Таким образом, показано, что в поперечном резонаторе также возникает ВКоРС на частицах латекса R = 100 нм в воде при условии попадания частоты возбуждающего излучения и линии ВКоРС в моду резонатора.



Рисунок 3.12.2 – Интенсивность рассеянного света из резонатора в зависимости от угла поворота стеклянной пластинки.



Рисунок 3.12.3 – Корреляционные функции ВКоРС на субмикронных частицах в жидкости измеренные на различных модах резонатора.

Заключение

В работе были получены следующие основные результаты:

- Разработана методика и создана оптическая схема для определения малых частотных сдвигов (~ 100 Гц) и интенсивности нелинейного или вынужденного рассеяния света методом корреляционной спектроскопии с использованием непрерывного лазера.
- 2. Разработана методика определения направления спектрального сдвига линии нелинейного или вынужденного рассеяния методом корреляционной спектроскопии при наличии потоков жидкости по измеренным скорости потока и полному частотному сдвигу линии вынужденного рассеяния в направлениях вдоль и против потока.
- Зафиксирован нелинейный рост интенсивности света, рассеянного частицами в жидкости в 2 различных оптических схемах во взвесях микронных агрегатов наночастиц алмаза с радиусом 1200 нм в воде и субмикронных частиц латекса с радиусом 480 нм в воде.
- 4. Зафиксировано появление спектральной линии, соответствующей линии вынужденного рассеяния света, сдвинутой относительно возбуждающего излучения полуширине на частоту, близкую к линии спонтанного концентрационного рассеяния $\Gamma = Dq^2$, на частицах в жидкости для 4 различных взвесей.
- 5. Экспериментально показано, что для частиц латекса радиусом R = 375 и 750 нм сдвиг антистоксов, а для частиц латекса радиусом R = 480 нм стоксов, что полностью согласуется с теоретическим описанием зависимости направления спектрального сдвига ВКоРС от радиуса частиц R.
- Экспериментально измерены коэффициенты усиления ВКоРС для взвеси агрегатов наночастиц алмаза и взвеси субмикронных частиц латекса, которые удовлетворительно согласуются с теоретическими оценками.
- Обнаружен режим нелинейного концентрационного рассеяния света на частицах в жидкости, указывающий на начальную фазу перехода рассеяния в вынужденный режим, что подтверждается:

а) экспоненциальным ростом интенсивности рассеянного света при увеличении мощности возбуждающего пучка.

 б) появлением спектральной линии рассеянного света с частотным сдвигом,
 близким к полуширине линии спонтанного рассеяния света на флуктуациях концентрации частиц.

в) изменением знака частотного сдвига в зависимости от размера частиц, совпадающего с ранее предсказанным теоретически.

г) удовлетворительным согласием полученных экспериментально значений коэффициентов усиления ВКоРС с предсказанными теоретическими.

Благодарности

Автор выражает глубокую благодарность своему научному руководителю Леониду Леонидовичу Чайкову, сотрудникам лаборатории нелинейной оптики и рассеяния света и сотрудникам оптического отдела им. Г.С. Ландсберга за уделенное внимание к работе, анализ, полезные вопросы, советы и детальное обсуждение работы, в особенности Светлане Владимировне Кривохижа, Анатолию Викторовичу Масалову, а также Иосифу Геннадиевичу Зубареву за ценные замечания.

Приложение 1

Таблица 3.12.1 – Периоды косинусоидной составляющей измеренных корреляционных функций на зеленом лазере оптической схемы №3 для частиц латекса с R = 750 нм в воде с объемной концентрацией $C_V = 7 \times 10^{-4}$ % при направлении возбуждающего излучения вниз

<i>P_{las}</i> , мВт		×	$10^{-4} T_{53}$	2, C.		× $10^{-4} T_{532}$, c.	<i>V_{tot}</i> , см/с	$\Omega_{tot}, \mathrm{c}^{-1}$	$\sigma \Omega_{tot}$
5.2				56.0	48.0	52.00	0.0039	1208	93
7.8				50.0	42.0	46.00	0.0044	1366	119
10.4				32.0	29.0	30.50	0.0066	2060	101
13.0	23.2	26.5	24.9	25.5	26.0	25.22	0.0080	2491	92
15.6	21.4	21.6	22.0	22.1	22.5	21.92	0.0092	2866	44
18.1	19.5	19.6	20.0	20.3	20.4	19.96	0.0101	3148	52
20.7	16.8	17.0	17.2	17.3	17.4	17.14	0.0118	3666	41
23.3	14.5	14.8	15.0	15.0	15.2	14.90	0.0135	4217	57
25.9	14.8	14.9	15.0	15.2	15.4	15.06	0.0134	4172	53
28.5	14.4	14.4	14.6	14.9	15.1	14.68	0.0137	4280	75
31.1	13.6	13.7	13.8	13.8	14.0	13.78	0.0146	4560	34
33.7	13.2	13.4	13.3	13.4	13.5	13.36	0.0151	4703	31
35.0	13.0	13.1	13.2	13.3	13.3	13.17	0.0153	4771	42

Таблица 3.12.2 Периоды косинусоидной составляющей измеренных корреляционных функций на красном лазере оптической схемы №3 для частиц латекса с R = 750 нм в воде с объемной концентрацией $C_V = 7 \times 10^{-4}$ % при направлении возбуждающего излучения вниз

<i>P_{las}</i> , мВт		×	$10^{-3} T_{633}$	e, C		$\times 10^{-3} T_{633},$ c	<i>V_c</i> , см/с	Ω_{Vc}, c^{-1}	$\sigma\Omega_{Vc}$
10.4	110.0	112.0				112.00	0.0067	2094	37
13.0	102.0	102.5	106.5	107.0	109.0	105.40	0.0071	2225	53
15.6	87.5	88.0	88.5	88.5	89.0	88.30	0.0085	2656	13
18.1	83.0	84.5	86.0	87.5	89.0	86.00	0.0087	2727	57
20.7	67.0	66.0	67.0	70.0	72.0	68.40	0.0110	3428	104
23.3	62.0	64.0	62.0	61.0	60.0	61.80	0.0122	3794	64
25.9	60.0	62.0	64.0	63.0	63.0	62.40	0.0121	3758	67
28.5	58.0	60.0	59.6	61.0	63.0	60.32	0.0125	3887	87
31.1	54.5	56.0	56.5		60.0	56.75	0.0133	4132	118
33.7	53.0	54.0	55.0	55.3	58.0	55.06	0.0137	4259	60
35.0	54.0	54.0	54.5	54.0	54.0	54.10	0.0139	4334	60

		-					-	-	-
P _{las} , мВт		×	$10^{-4} T_{53}$	2, C.		$\times 10^{-4} T_{532},$ c.	<i>V_{tot}</i> , см/с	$\Omega_{tot}, \mathrm{c}^{-1}$	$\sigma \Omega_{tot}$
10.8				34	44	39.00	0.0052	1611	93
12.6				27	30	28.50	0.0071	2205	119
14.4				24	28	26.00	0.0078	2417	101
16.2		21.0	21.5	21.3	22.0	21.45	0.0094	2929	92
18.0	18.8	17.3	17.6	18.0	18.3	18.00	0.0112	3491	44
19.8		15.5	16.5	15.5	16.5	16.00	0.0126	3927	52
22.4	14.8	13.2	13.8	14.0	14.1	13.98	0.0144	4494	41
23.5	12.8	13.4	13.1	13.5	13.5	13.26	0.0152	4738	57
25.3	12.0	11.8	11.6	11.4	12.2	11.80	0.0171	5325	53
27.1	10.4	10.0	10.0	9.9	9.8	10.02	0.0201	6271	75
28.9	9.4	9.2	9.3	9.7	9.4	9.40	0.0214	6684	34
30.7	8.5	8.5	8.3	8.7	8.5	8.50	0.0237	7392	31
32.5	8.0	7.9	7.8	7.6	7.5	7.94	0.0254	7913	42
35.0	6.9	6.6	7.0	7.1	7.6	7.04	0.0286	8925	70

Таблица 3.12.3 – Периоды косинусоидной составляющей измеренных корреляционных функций на зеленом лазере оптической схемы №3 для частиц латекса с R = 750 нм в воде с объемной концентрацией $C_V = 7 \times 10^{-4}$ % при направлении возбуждающего излучения вверх

Таблица 3.12.4 – Периоды косинусоидной составляющей измеренных корреляционных функций на красном лазере оптической схемы №3 для частиц латекса с R = 750 нм в воде с объемной концентрацией $C_V = 7 \times 10^{-4}$ % при направлении возбуждающего излучения вверх

P _{las} , мВт		×	$10^{-3} T_{633}$, c		× $10^{-3} T_{633}$, c	<i>V_c</i> , см/с	Ω_{Vc}, c^{-1}	$\sigma\Omega_{Vc}$
12.6	112.0	114.0	120.0	120.0	122.0	117.60	0.0064	1994	35
14.4	96.0	96.0	100.0	94.0	96.0	78.40	0.0096	2991	28
16.2	76.0	77.0	78.0	79.0	84.0	78.80	0.0095	2976	55
18.0	68.0	65.0	66.0	71.0	67.0	67.40	0.0112	3479	60
19.8	58.0	58.0	59.0	59.0	59.0	58.60	0.0128	4001	19
22.4	45.0	46.0	48.0	49.5	50.5	47.80	0.0157	4906	112
23.5	45.4	45.6	45.4	45.6		45.50	0.0165	5154	7
25.3	40.0	42.0	41.0	42.0	40.4	41.08	0.0183	5708	64
27.1	34.0	33.8	34.2	36.0	37.0	35.00	0.0215	6700	129
28.9	33.0	32.0	34.0	33.0	33.0	33.00	0.0228	7106	76
30.7	30.0	30.0	30.0	29.0	31.0	30.00	0.0251	7816	89
32.5	27.0	27.5	28.0	28.0	27.0	27.50	0.0273	8527	79
35.0		25.3	25.5	25.3	25.1	25.30	0.0297	9327	30

Таблица 3.12.5 – Периоды косинусоидной составляющей измеренных корреляционных функций на зеленом лазере оптической схемы №3 для частиц латекса с R = 480 нм в воде с объемной концентрацией $C_V = 7 \times 10^{-4}$ % при направлении возбуждающего излучения вверх

P _{las} , мВт		×	$10^{-4} T_{53}$	2, C.		$\times 10^{-4} T_{532},$ c.	<i>V_{tot}</i> , см/с	$\Omega_{tot}, \mathrm{c}^{-1}$	$\sigma \Omega_{tot}$
5.8	26.0	44.0	26.0	44.0	35.0	35.00	0.0058	2260	310
8.8			30.0	29.0	28.0	29.00	0.0069	2218	35
11.7	25.0	28.0	27.0	25.0	26.0	26.20	0.0077	2497	67
14.6	22.0	22.0	23.0	24.0	24.5	23.10	0.0087	2833	71
19.0	19.5	19.5	19.0	19.0	20.0	19.40	0.0104	3293	35
20.4		19.0	18.0	19.0	20.0	19.00	0.0106	3396	57
23.3	18.0	17.5	18.0	17.5	18.0	17.80	0.0113	3578	32
26.3	17.0	18.0	17.0	17.0	16.0	17.00	0.0119	3785	63
29.2	17.0	15.5	16.0	16.5	17.0	16.40	0.0123	3957	81
32.1	16.0	15.0	15.5	15.0	15.5	15.40	0.0131	4167	57
35.0	15.5	14.0	14.5	15.0	15.5	14.90	0.0135	4369	98

Таблица 3.12.6 – Периоды косинусоидной составляющей измеренных корреляционных функций на красном лазере оптической схемы №3 для частиц латекса с R = 480 нм в воде с объемной концентрацией $C_V = 7 \times 10^{-4}$ % при направлении возбуждающего излучения вниз

P _{las} , мВт		×	$10^{-3} T_{63}$	3, C		$\times 10^{-3} T_{633},$ c	<i>V_c</i> , см/с	Ω_{Vc}, c^{-1}	$\sigma\Omega_{Vc}$
8.8	95.0	100.0	95.0	100.0	97.0	97.4	0.0063	2407	52
11.7	81.0	85.0	83.0	80.0	85.0	82.8	0.0077	2832	61
14.6	71.0	70.0	72.0	72.0	70.0	71.0	0.0091	3303	38
19.0	62.0	59.0	62.0	60.0	60.5	60.7	0.0106	3863	66
20.4	59.0	59.0	59.0	60.0	58.0	59.0	0.0124	3974	27
23.3	55.0	57.0	58.0	56.0	56.5	56.5	0.0127	4150	59
26.3	53.0	54.0	52.0	54.0	54.0	53.4	0.0133	4391	59
29.2	54.0	52.0	52.0	52.0	52.0	52.4	0.0141	4475	55
32.1	50.0	50.0	50.0	50.5	50.0	50.1	0.0144	4680	15
35.0	50.0	49.2	49.2	48.0	51.0	49.5	0.0150	4739	76

Таблица 3.12.7 – Периоды косинусоидной составляющей измеренных корреляционных функций на зеленом лазере оптической схемы №3 для частиц латекса с R = 480 нм в воде с объемной концентрацией $C_V = 7 \times 10^{-4}$ % при направлении возбуждающего излучения вверх

P _{las} , мВт	×	$10^{-4} T_{5}$	32, C.		× $10^{-4} T_{532}$, c.	<i>V_{tot}</i> , см/с	Ω_{tot}, c^{-1}	$\sigma \Omega_{tot}$
12.1	18.0	22.0	18.0	22.0	20	0.0101	3142	106
14.5	17.5	14.5	17.5	14.5	16	0.0126	3927	149
18.1	9.0	10.0	9.0	10.0	9.5	0.0212	6614	116
21.7	7.2	7.0	7.3	7.4	7.3	0.0276	8607	50
22.9	7.2	7.0	6.8	6.8	7	0.0288	8976	68
25.3	6.4	6.3	6.4	5.8	6.2	0.0325	10134	78
29.0	5.6	5.4	5.5	5.6	5.45	0.0370	11529	51
31.4	4.9	4.8	4.9	4.7	4.8	0.0420	13090	70
33.8	4.6	4.5	4.5	4.4	4.5	0.0448	13963	53
35.0	4.3	4.5	4.1	4.3	4.29	0.0470	14646	104

Таблица 3.12.8 – Периоды косинусоидной составляющей измеренных корреляционных функций на красном лазере оптической схемы №3 для частиц латекса с R = 480 нм в воде с объемной концентрацией $C_V = 7 \times 10^{-4}$ % при направлении возбуждающего излучения вверх

P _{las} , мВт		×	$10^{-3} T_{63}$	3, C		× $10^{-3} T_{633}$, c	<i>V_c</i> , см/с	Ω_{Vc}, c^{-1}	$\sigma\Omega_{Vc}$
12.1	90.0	84.0	90.0	91.0	90.0	89.0	0.0085	2635	29
14.5	60.0	60.0	62.0	59.0	60	60.2	0.0125	3895	23
18.1	37.0	38.0	39.0	38.0	40.0	38.4	0.0196	6106	67
21.7	29.0	29.5	29.0	29.0	30.0	29.3	0.0257	8003	48
22.9	29.0	28.0	29.0	28.0	28.0	28.4	0.0265	8257	71
25.3	24.5	24.5	24.5	25.0	25.0	24.7	0.0304	9493	46
29.0	21.5	21.5	22.0	21.4	21.0	21.5	0.0350	10917	58
31.4	19.2	19.0	19.0	18.6	18.6	18.9	0.0398	12420	75
33.8	17.7	17.5	17.6	17.6	17.6	17.6	0.0427	13323	15
35.0	16.6	17.0	17.0	16.0	16.5	16.6	0.0452	14109	130

Таблица 3.12.9 – Периоды косинусоидной составляющей измеренных корреляционных функций на зеленом лазере оптической схемы №3 для частиц латекса с R = 375 нм в воде с объемной концентрацией $C_V = 7 \times 10^{-4}$ % при направлении возбуждающего излучения вниз

<i>Р_{las}</i> , мВт		×	$10^{-4} T_{53}$	2, C.		$\times 10^{-4} T_{532},$ c.	<i>V_{tot}</i> , см/с	Ω_{tot}, c^{-1}	$\sigma \Omega_{tot}$
7.0		30.0	20.0	30.0	20.0	25.00	0.0081	2513	628
10.5		25.0	21.0	25.0	21.0	23.00	0.0088	2732	260
14.0	18.6	18.9	19.1	19.2	19.3	19.02	0.0106	3303	37
17.5		16.0	16.3	16.5	17.0	16.45	0.0123	3820	67
21.0		16.8	16.3	15.8	16.2	16.28	0.0124	3861	66
24.5		15.1	14.8	15.0	15.0	14.98	0.0135	4196	24
28.0		13.9	14.1	14.0	13.9	13.98	0.0144	4496	24
31.5		13.3	13.4	13.2	13.5	13.35	0.0151	4707	35
35.0	13.5	13.4	12.9	12.5	12.2	12.90	0.0156	4871	176

Таблица 3.12.10 – Периоды косинусоидной составляющей измеренных корреляционных функций на красном лазере оптической схемы №3 для частиц латекса с R = 375 нм в воде с объемной концентрацией $C_V = 7 \times 10^{-4}$ % при направлении возбуждающего излучения вниз

P _{las} , мВт		×	$10^{-3} T_{633}$, c		$\times 10^{-3} T_{633},$ c	<i>V_c</i> , см/с	Ω_{Vc}, c^{-1}	$\sigma\Omega_{Vc}$
7.0	117	130	130	120	122.0	123.8	0.0061	1973	80
10.5	103.0	105.0	103.0	105.0	120.0	107.2	0.0070	2297	98
14.0	79.0	84.0	89.0	86.0	85.0	84.6	0.0089	2855	83
17.5	74.0	74.0	79.0	78.0	78.0	76.6	0.0098	3147	84
21.0	75.0	75.0	77.0	75.0	78.0	76.0	0.0099	3135	48
24.5	70.0	73.0	69.0	68.0	66.0	69.2	0.0109	3481	97
28.0	60.0	65.0	63.0	63.0	63.0	62.8	0.0120	3802	68
31.5		61.0	59.0	60.0	60.0	60.0	0.0125	3941	33
35.0	61.0	57.0	56.0	58.0	57.0	57.8	0.0130	4155	99

 P_{las} , $\times 10^{-4} T_{532}$ $\times 10^{-4} T_{532}$, c. V_{tot} , см/с Ω_{tot}, c^{-1} $\sigma \Omega_{tot}$ мВт c. 10.0 10.5 12.5 7.8 11.00 0.0183 5712 152 7.2 0.0274 8549 10.4 7.3 7.4 7.5 7.35 38 13.0 7.0 7.2 7.2 7.04 0.0286 8928 67 6.8 15.6 6.4 5.6 6.0 6.00 0.0336 10472 155 11614 18.1 5.4 5.4 5.6 5.4 5.3 5.41 0.0372 56 20.7 4.7 4.6 4.5 4.60 0.0438 13659 67 24.6 4.3 4.3 4.25 4.3 4.3 4.3 0.0474 14784 60 28.5 3.8 4.1 4.1 4.1 4.0 3.99 0.0505 15747 126 32.4 3.5 3.6 3.6 3.5 107 3.7 3.47 0.0581 18107 35.0 3.3 3.3 3.3 3.2 3.2 0.0614 19156 112 3.4

Таблица 3.12.11 – Периоды косинусоидной составляющей измеренных корреляционных функций на зеленом лазере оптической схемы №3 для частиц латекса с R = 375 нм в воде с объемной концентрацией $C_V = 7 \times 10^{-4}$ % при направлении возбуждающего излучения вверх

Таблица 3.12.12 – Периоды косинусоидной составляющей измеренных корреляционных функций на красном лазере оптической схемы №3 для частиц латекса с R = 375 нм в воде с объемной концентрацией $C_V = 7 \times 10^{-4}$ % при направлении возбуждающего излучения вверх

P _{las} , мВт		×	$10^{-3} T_{63}$	3, C		$\times 10^{-3} T_{633},$ c	<i>V_c</i> , см/с	Ω_{Vc}, c^{-1}	$\sigma\Omega_{Vc}$
7.8	46.0	46.0	46.0	44.0	47.0	45.80	0.0111	2632	30
10.4	36.0	36.0	35.5	35.0	35.0	35.50	0.0164	3941	29
13.0	28.0	29.5	28.5	27.5	28.0	28.30	0.0212	5061	64
15.6	22.2	22.2	22.2	22.0	22.4	22.20	0.0266	6404	14
18.1	18.4	19.0	19.0	19.0	19.2	18.92	0.0339	8031	51
20.7	16.3	16.1	16.2		16.3	16.23	0.0397	9493	25
24.6	15.1	15.1	14.9	15.1	15.0	15.04	0.0464	11000	28
28.5	14.0	14.0	14.0	14.0	14.4	14.08	0.0500	11868	57
32.4	12.2	12.6	12.6	12.4	12.2	12.40	0.0534	12732	95
35.0		11.4	12.0	11.6	12.0	11.75	0.0606	14513	161

Список используемой литературы

- [1] Сущинский М. М. Вынужденное комбинационное рассеяние света Москва : Наука, 1985. 231 с.
- [2] Бломберген Н. Вынужденное комбинационное рассеяние света // УФН. 1969. Т. 97. № 2. С. 307–352.
- [3] Chiao, R. Y., Townes C. N. and Stoioheff B. P. Stimulated Brillouin Scattering and Coherent Generation of Intense Hypersonic Waves // Phys. Rev. Lett. – 1964. – Vol. 12. – № 21. – P. 592.
- [4] Старунов В.С., Фабелинский И.Л. Вынужденное рассеяние Мандельштама-Бриллюэна и вынужденное энтропийное (температурное) рассеяние света // УФН. – 1969. – Vol. 98. – С. 441–491.
- [5] Маш Д.И., Морозов В.В., Старунов В.С., Фабелинский И.Л. Вынужденное рассеяние света крыла линии Релея // Письма в ЖЭТФ. 1965. Vol. 2. № 1. С. 41.
- [6] Sogomonian S., Barille R. and Rivoire G. Forward stimulated Rayleigh-wing scattering in CS₂ by pumping with a Bessel beam // Opt. Comm. – 1998. – Vol. 157. – № 1–6. – P. 182–186.
- [7] Зайцев Г.И., Кызыласов Ю.И., Старунов В.С., Фабелинский И.Л. Экспериментальное исследование вынужденного рассеяния света в крыле линии Релея // Письма в ЖЭТФ. – 1967. – Vol. 6. – № 2. – С. 505.
- [8] Jirauschek C., Jeffrey E.M. and Faris G.W. Electrostrictive and thermal stimulated Rayleigh spectroscopy in liquids // Phys. Rev. Lett. – 2001. – Vol. 87. – № 23. – P. 233902.
- [9] Зайцев Г.И., Кызыласов Ю.И., Старунов В.С., Фабелинский И. Л. Вынужденное температурное рассеяние света в жидкостях // Письма в ЖЭТФ. – 1967. – Vol. 6. – № 8. – С. 802.
- [10] Кызыласов Ю.И., Старунов В.С., Фабелинский И.Л. Вынужденное энтропийное (температурное) рассеяние света в жидкостях // Письма в ЖЭТФ. – 1970. – Vol. – № 11. – С. 110.
- [11] Горелик В.С., Кудрявцева А.Д., Чернега Н.В. Вынужденное глобулярное рассеяние света в трехмерных фотонных кристаллах // КСФ. – 2006. – № 8. – С. 43–50.
- [12] Тареева М.В., Горелик В.С., Кудрявцева А.Д., Чернега Н.В. Спектральные и энергетические характеристики вынужденного глобулярного рассеяния света // КСФ. – 2010. – №11. – С. 3–9.

- [13] Guang S. He, Ken-Tye Yong, and Prasad P.N. Observation of stimulated Mie-Bragg scattering from large-size-gold-nanorod suspension in water // Phys. Rev. A. – 2012. – Vol. 85. – № 4. – P. 043839.
- [14] Guang S. He, Wing-Cheung Law, Alexander Baev, Sha Liu, Mark T. Swihart. Nonlinear optical absorption and stimulated Mie scattering in metallic nanoparticle suspensions // J. Chem. Phys. – 2013. – Vol. 138. – № 2. – P. 024202.
- [15] Guang S. He, Wing-Cheung Law, Liwei Liu, Xihe Zhang, and Paras N. Prasad. Stimulated Mie scattering in nanocrystals suspension // Appl. Phys. Lett. – 2012. – Vol. 101. – № 1. – P. 011110.
- [16] Shi J., Wu H., Liu J., Li S., He X. Stimulated scattering effects in gold-nanorod-water samples pumped by 532 nm laser pulses // Sci. Rep. – 2015. – Vol. 5. – P. 1– 1964.
- [17] Shi J., Wu H., Yan F., Yan F., Yang J., He X J. Experimental study on stimulated scattering of ZnO nanospheres dispersed in water // J. Nanopart Res. – 2016.
- [18] Шуберт М., Вильгельми Б. О рассеянии лазерного излучения на молекулах и в твердых телах (обзор) // Квант. электрон. 1974 Vol. 1. № 5. С. 1056–1080.
- [19] Фабелинский И. Л. Спектры света молекулярного рассеяния и некоторые их применения // УФН. 1994. Vol. 164. № 9. С. 897–93.
- [20] Беспалов В.И., Кубарев А.М. // Письма в ЖЭТФ. 1967. Т.6. № 2. . С. 500.
- [21] Арефьев И.М., Морозов В.В. Вынужденное концентрационное рассеяние света // Письма в ЖЭТФ. 1969. Vol. 9. № 8. С. 448.
- [22] Lowdermilk W.H., Bloembergen N. Stimulated Concentration Scattering in the Binary-Gas Mixtures Xe-He and SF₆-He // Phys. Rev. A. – 1972. – Vol. 5. – №3. – P. 1423.
- [23] Bloembergen N., Lowdermilk W.H., Matsuoka M., Wang C.S. Theory of Stimulated Concentration Scattering // Phys. Rev. A. – 1971. – Vol. 3. – № 1. – P. 404.
- [24] Давыдов М.А., Шипилов К.Ф., Вынужденное концентрационное рассеяние света в расслаивающихся растворах // Письма в ЖЭТФ. 1990. Т. 52. № 3. С. 789–792.
- [25] Бурханов И.С., Чайков Л.Л. Экспериментальная проверка возможности обнаружения вынужденного «диффузионного» рассеяния на частицах в жидкости // КСФ. – 2012. – Т. 39. – № 3. – С. 22.
- [26] Zemanek P., Jonas A. Simplified description of optical forces acting on a nanoparticle in the Gaussian standing wave // J. Opt. Soc. Am. A. – 2002. – Vol. 19. – № 5. – P. 1025–1034.

- [27] Афанасьев А.А., Рубинов А.Н., Михневич С.Ю., Ермолаев И.Е., Теория вынужденного концентрационного рассеяния света в жидкой суспензии прозрачных микросфер // Оптика и спектроскопия. – 2007. – Т. 102. – № 1. – С. 106–121.
- [28] http://www.photocor.com/download/dynals/dynals-white-paper.htm [Online].
- [29] Burkhanov I.S., Chaikov L.L. Stimulated diffusion light scattering on variations of particles concentration in liquids // Proc. SPIE 9066. – 2013. Eleventh International Conference on Correlation Optics – P. 906610.
- [30] Бурханов И.С., Кривохижа С.В., Чайков Л.Л. Вынужденное концентрационное (диффузионное) рассеяние света на наночастицах жидкой суспензии // Квантовая электроника. – 2016 – Т. 46. – № 6. – С. 548–554.
- [31] Burkhanov I.S., Krivokhizha S.V, Chaikov L.L. Influence of convection on the stimulated concentration light scattering // Journal of Physics: Conference Series 735. – 2016. – P. 012022.
- [32] Burkhanov I.S., Krivokhizha S.V, Chaikov L.L. Stokes and anti-stokes stimulated Mie scattering on nanoparticle suspensions of latex // Optics Communications. 2016. Vol. 381.
 P. 360–364.
- [33] Burkhanov I.S., Krivokhizha S.V., Chaikov L.L. The spectra of stimulated concentration scattering (Mie scattering) on nanoparticles latex suspension in the presence of convection // Journal of Physics: Conference Series 747. – 2016. – P. 012055.
- [34] Tyndall J. On the blue color of the sky, the polarization of skylight, and polarization of light by cloudy matter generally // Journal of the Franklin Institute. Pergamon. – 1869
- [35] Rayleigh. On the light from the sky, its polarization and colour // Phil. Mag. 1871. Vol. 41.
 P. 107–120, 274–279.
- [36] G. Mie Beiträge zur Optik trüber Medien, speziell kolloidaler Metallösungen // Annalen der Physik. – 1908. – Vol. 330. – № 3. – P. 377-445.
- [37] Борен К., Хафмен Д. Поглощение и рассеяние света малыми частицами: Пер. с англ. Москва: Мир. 1986. – 660 с.
- [38] Smoluchowski M. Molekular-kinetische Theorie der Opaleszenz von Gasen im kritischen Zustande, sowie einiger verwandter Erscheinungen // Ann. Phys. – 1908. – Vol. 25. – P. 205– 226.
- [39] Pecora R. Doppler Shifts in Light Scattering from Pure Liquids and Polymer Solutions // J. Chem. Phys. – 1964. – Vol. 40. – № 6. – P. 1604.

- [40] Ринкевичюс Б.С. Допплеровский метод измерения локальных скоростей с помощью лазеров // УФН. 1973. Т. 111. № 2. С. 305–330.
- [41] Einstein A. Theorie der Opaleszenz von homogenen Flüssigkeiten und Flüssigkeitsgemischen in der Nähe des kritischen Zustandes // Ann. Phys. 1910. Vol. 33. P. 1275–1298.
- [42] Фабелинский И.Л. Молекулярное рассеяние света. Москва: Наука. 1965.
- [43] Шуберт М., Вильгельми Б., О рассеянии лазерного излучения на молекулах и в твердых телах // Квант. Электрон. 1974. Т. 1. № 5. С. 1056–1080.
- [44] Debye. Zur Theorie der spezifischen Waerme // Annalen der Physik (Leipzig). 1912. Vol. 39. № 4. P. 789.
- [45] Мандельштам Л.И. Полное собрание трудов: В 5 т. Москва: Изд-во АН СССР. 1948.
 Т. 1. 280 с.
- [46] Robert W. Boyd, Nonlinear Optics. 2nd ed. Academic Press. 2003. P. 412.
- [47] Шен И.Р. Принципы нелинейной оптики. Москва «Наука». 1989.
- [48] Ландсберг Г.С. Оптика. Москва: физматлит «Наука» 2003.
- [49] http://bernstein.harvard.edu/research/cars-why.htm
- [50] Rank D.H., Cho C.W., Foltz N.D., Wiggins T.A. Stimulated Thermal Rayleigh Scattering // Phys. Rev. Lett. – 1967. – Vol. 19. – P. 828.
- [51] Wiggins T.A., Cho C.W., Dietz D.R., Foltz N.D.. Stimulated Thermal Rayleigh Scattering in Gases // Phys. Rev. Lett. – 1968. – Vol. 20. – P. 831.
- [52] Herman R.M., Gray M.A.. Theoretical Prediction of the Stimulated Thermal Rayleigh Scattering in Liquids // Phys. Rev. Lett. – 1967. – Vol. 19. – P. 824.
- [53] Фабелинский И.Л. Избранные труды. В 2 т. Т.1 М.: ФИЗМАТЛИТ, 2005. 448 с.
- [54] Shen Y.R. Electrostriction, optical Kerr effect and self-focusing of laser beams // Physics Letters. – 1966. – Vol. 20. – № 4. – P. 378–380.
- [55] Whinnery J.R. Laser measurement of optical absorption in liquids // Acc. Chem. Res. 1974.
 Vol. 7. № 7. P. 225–231.
- [56] Guang S. He, Tzu-Chau Lin, and Paras N. Prasad Stimulated Rayleigh-Bragg scattering enhanced by two-photon excitation // Optical Society of America. – 2004. – Vol. 12. – № 24. – P. 5952–5961.
- [57] Guang S. He, Changgui Lu, Qingdong Zheng, and Paras N. Prasad, Stimulated Rayleigh-Bragg scattering in two-photon absorbing media // Phys. Rev. – 2005. – Vol. 71. – № 6. – P. 063810.

- [58] Holoubek J. Some applications of light scattering in materials science // Journal of Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer. – 2007. – Vol. 106. – P. 104–121.
- [59] Eichler H., Salie G., Stahl H., Forced Rayleigh scattering // J. App. Phys. 1973. 44.
- [60] Thyagaraian K., Zallemand P. Determination of the thermal diffusion ratio in a binary mixture by forced Rayleigh scattering // Opt. com. – 1978. – Vol. 26. – № 1. – P. 54–57.
- [61] Ware B.R. Electrophoretic light scattering // Adv. Coll. Interface Sci. 1974. Vol. 4. № 1.
 P. 1–44.
- [62] Burkhanov, I.S., Chaikov, L.L., Korobov, D.Yu. et. al. Effective acousto-optical interactions in suspensions of nanodiamond particles // Journal of Russian Laser Research. – 2012. – Vol. 33. – P. 496-502.
- [63] Zemanek P. and Jonas A. Simplified description of optical forces acting on a nanoparticle in the Gaussian standing wave // J. Opt. Soc. Am. A. – 2002. – Vol. – 19. – № 5. – P. 1025.
- [64] Камминс Г., Пайк Э. Спектроскопия оптического смешения и корреляции фотонов Москва: МИР, – 1978.
- [65] Berne B.J., Pecora R., Dynamic light scattering Krieger, Malabar, Florida. 1990.
- [66] A. Einstein Annalen der Physik (ser. 4). 34. 591-592
- [67] Palberg T., Reiber H., Koller T. Super-heterodyne light scattering on interacting colloidal suspensions: theory and experiment // arXiv:0811.2321. – 2008.
- [68] Лопатин В.Н., Приезжев А.В., Апонасенко А.Д., Шепелевич Н.В., Лопатин В.В., Пожиленкова П.В., Простакова И.В. Методы светорассеяния в анализе дисперсных биологических сред – М.: ФИЗМАТЛИТ, 2004. – 384 с.
- [69] Брауновское движение А. Эйнштейн М. Смолуховский . Москва : ОНТИ, 1936.
- [70] Поль Р.В. Механика, акустика и учение о теплоте, Москва: Государственно издательство технико-теоретической литературы, 1985. 415 с.
- [71] Ciapurin I.V., Glebov L.B., Smirno V.I. Modeling of Gaussian beam diffraction on Volume Bragg gratings in PTR glass, Practical Holography XIX: Materials and Applications, edited by Tung H. Jeong, Hans I. Bjelkhagen, Proc. of SPIE – 19. 5742 (SPIE, Bellingham, WA, 2005) doi: 10.1117/12.591215.
- [72] Kogelnik H. Coupled Wave Theory for Thick Hologram Grating // Bell Labs Technical Journal. – 1969. . – Vol. 48. – № 9. – P. 2909–2947.
- [73] Ильичев Н.Н. Коэффициент отражения от ВРМБ зеркала // Квантовая электроника. 1999. Т. 28. – № 3. – С. 256.

- [74] Заскалько О.П., Сердюченко Ю.Н., Старунов В.С., Фабелинский И.Л. Вынужденное рассеяние Мандельштама-Бриллюэна во внешнем поперечном резонаторе // Письма в ЖЭТФ. – 1980. – Т. 31. – № 2. – С. 103–107.
- [75] Заскалько О.П., Старуханов В.С. Самосинхронизация излучения при вынужденном комбинационном рассеянии света во внешнем резонаторе // Письма в ЖЭТФ. – 1980. – Т. 32 – № 3 – С. 252.
- [76] Заскалько О.П., Маликов М.Р., Постовалов В.Е., Старунов В.С., Фабелинский И.Л. Самосинхронизация излучения при вынужденном рассеянии света крыла линии Релея во внешнем резонаторе // Письма в ЖЭТФ. – 1980. – Т. 31. – № 8. – С. 483.
- [77] Заскалько О.П., Старунов В.С. Спектральные и временные характеристики вынужденного рассеяния света крыла линии Релея во внешнем поперечном резонаторе // Письма в ЖЭТФ. – 1977. – Т. 26. – №3. – Р. 145.
- [78] Александров Е.Б., Бонч-Бруевич А.М., Костин Н.Н., and Ходовой В.А. Исследование вынужденного комбинационного и бриллюэновского рассеяния в селективных резонаторах // ЖЭТФ. – 1965. – Т. 49. – № 5. – С. 1434.
- [79] Alan S. Pine. Stimulated Brillouin Scattering in Liquids // Phys. Rev. 1966. Vol. 149. P. 113–125.