

РАССЕЯНИЕ СВЕТА

Вынужденное концентрационное (диффузионное) рассеяние света на наночастицах жидкой суспензии

И.С.Бурханов, С.В.Кривохижа, Л.Л.Чайков

При рассеянии света назад во взвесах агрегатов алмаза и наночастиц латекса в воде обнаружен нелинейный рост интенсивности рассеяния и измерен частотный сдвиг спектральной линии рассеянного света относительно линии возбуждающего излучения, который соответствует полуширине линии спонтанного рассеяния на частицах. Это позволяет сделать вывод о существовании вынужденного концентрационного (диффузионного) рассеяния света на вариациях концентрации частиц, называемого также вынужденным рассеянием Ми. В световодной схеме обнаружен рост сдвига спектральной линии рассеяния с ростом мощности возбуждающего пучка. Изменение сдвига с увеличением мощности объясняется появлением конвекции в жидкости.

Ключевые слова: вынужденное рассеяние света, диффузионное рассеяние, концентрационное рассеяние, вынужденное рассеяние Ми, наночастицы, жидкость, корреляционная спектроскопия.

1. Введение

У каждого типа спонтанного рассеяния (СР) света имеется свой аналог в виде вынужденного рассеяния (ВР). Так, для СР на флуктуациях/вариациях сфазированного возбуждения молекул это вынужденное комбинационное рассеяние (ВКР) [1], для СР на флуктуациях/вариациях давления [2, 3] – вынужденное рассеяние Мандельштама – Бриллюэна (ВРМБ), для СР на флуктуациях/вариациях анизотропии – вынужденное рассеяние крыла линии Рэлея (ВРКЛР) [4–6], для СР на флуктуациях/вариациях энтропии – вынужденное температурное рассеяние (ВТР) [3, 7–9]. Недавно было открыто вынужденное глобулярное рассеяние (ВГР) – низкочастотное комбинационное рассеяние на собственных колебаниях частиц [10, 11]. Спектральный сдвиг линии ВГР лежит в диапазоне 12–20 ГГц. Существует также вынужденное концентрационное рассеяние (ВКоРС) на флуктуациях/вариациях концентрации частиц или компонентов смеси.

Спектральные линии спонтанного рассеяния Мандельштама–Бриллюэна и комбинационного рассеяния смещены относительно линии возбуждающего света, причем линии ВКР и ВРМБ смещены примерно на такую же величину. Линии спонтанного деполаризованного (на флуктуациях анизотропии) релеевского рассеяния и рассеяния на флуктуациях энтропии не сдвинуты относительно линий возбуждающего света, а только уширены. При этом, однако, линии ВРКЛР и ВТР сдвинуты относительно линий возбуждающего излучения приблизительно

на половину ширины линий соответствующего СР. 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. Таким образом, частотный сдвиг рассеянного света, равный полуширине линии спонтанного рассеяния, является важнейшим признаком появления ВР. Вторым важным признаком появления ВР является нелинейный рост интенсивности рассеянного света с ростом интенсивности возбуждающего света.

Попытки исследования ВКоРС – аналога спонтанного концентрационного рассеяния (СКоРС) на флуктуациях концентрации веществ, составляющих раствор, – предпринимались неоднократно. Так, в [12] 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 $0.033–0.042\text{ см}^{-1}$ авторы связали с наличием ВКоРС. В [13] Бломбергеном и сотрудниками был измерен частотный сдвиг ВКоРС в смеси He–Xe, который составил $0.005–0.022\text{ см}^{-1}$, а в смеси He–SF₆ он был $0.005–0.018\text{ см}^{-1}$. На основе проведенных ими экспериментов была разработана соответствующая теория [14].

Попытки измерения ВКоРС в водных растворах лутидинов предпринимались в работе [15], но при разрешении спектральной аппаратуры 0.003 см^{-1} частотный сдвиг рассеянного света измерить не удалось. Однако по временной зависимости интенсивности рассеяния авторы сделали заключение о наличии вынужденного рассеяния на несмещенной частоте, которое интерпретировали как ВКоРС.

Были попытки обнаружить ВКоРС на золотых нанотрубках диаметром 13 нм и длиной 90 нм в воде, на нанокристаллах CdSe/CdS/ZnS в хлороформе и на наночастицах Au, Au/Ag, Ag и Pt размером 10 нм в толуоле [16–18], но в этих взвесах также не удалось измерить сдвиг спектральной линии ВР при разрешении до 0.005 см^{-1} , хотя и был получен нелинейный рост интенсивности рассеяния

И.С.Бурханов, С.В.Кривохижа. Физический институт им. П.Н.Лебедева РАН, Россия, 119991 Москва, Ленинский просп., 53; e-mail: ilyaburkhanov@gmail.com, skrivokh@sci.lebedev.ru

Л.Л.Чайков. Физический институт им. П.Н.Лебедева РАН, Россия, 119991 Москва, Ленинский просп., 53; Национальный исследовательский ядерный университет «МИФИ», Россия, 115409 Москва, Каширское ш., 31; e-mail: chaik@sci.lebedev.ru

Поступила в редакцию 24 октября 2014 г., после доработки – 4 февраля 2016 г.

назад. По росту интенсивности и появлению специфического пика на временной зависимости интенсивности ВР авторы [16–20], так же как и авторы [15], сделали вывод о наблюдении ВР на частицах.

ВКоРС в жидкостях можно назвать также вынужденным диффузионным рассеянием света (ВДРС), поскольку его частотный сдвиг, как и время релаксации флуктуаций концентрации частиц, определяется коэффициентом их диффузии, а ВКоРС на вариациях концентрации частиц в жидкостях теперь часто называют вынужденным рассеянием Ми [16–20].

Таким образом, частотный сдвиг ВКоРС был измерен только в газовых смесях. Ни в жидких растворах, ни во взвесах 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 [15–20] авторы использовали обычный для исследования ВР способ спектральных измерений с помощью интерферометра Фабри–Перо, разрешения которого явно недостаточно для регистрации указанных частотных сдвигов.

Для измерения таких сдвигов подходит метод корреляционной спектроскопии, который позволяет измерять частотные сдвиги до нескольких герц. При этом для возбуждения нужно использовать непрерывный лазер, а не мощный импульсный, как это делается при типичных исследованиях ВР.

Первые попытки зафиксировать частотный сдвиг и нелинейный рост интенсивности ВДРС с помощью непрерывного лазера и коррелятора были предприняты нами ранее при исследовании взвесей наночастиц кремния в масле и агрегатов алмаза в воде [21].

Цель настоящей работы состояла в том, чтобы при увеличении интенсивности возбуждающего света зафиксировать нелинейный рост интенсивности рассеяния и появление в его спектре линии, сдвинутой по частоте на полуширину линии СР, во взвесах агрегатов алмаза и сертифицированных наночастиц латекса в воде и таким образом показать возникновение ВКоРС (ВДРС, вынужденного рассеяния Ми) [22] и исследовать особенности его появления при использовании разных оптических схем.

2. Применение метода динамического рассеяния света для исследования ВКоРС (ВДРС)

При ВКоРС происходит интерференция возбуждающей и рассеянной волн и создается интерференционная решетка интенсивности, в пучности (или в минимумах) которой затягиваются частицы взвеси (см., напр., [23, 24]). В результате образуется решетка концентрации частиц и, следовательно, показателя преломления [23]:

$$N(z, t) = N_0 + \delta N(t) \exp(-i\Omega t + i|k_L - k_S|z). \quad (1)$$

Здесь $N(z, t)$, N_0 – локальная и средняя концентрации частиц; $\delta N(t)$ – амплитуда решетки концентрации; Ω – частотный сдвиг спектральной линии ВР; z – координата вдоль направления распространения возбуждающей волны; k_L и k_S – волновые векторы возбуждающего и рассе-

янного света. Решетка концентрации (1) движется со скоростью $V_{gr} = \Omega/q$, $q = k_S - k_L$ – волновой вектор рассеяния.

Поскольку полуширина несмещенной линии света, спонтанно рассеянного частицами в жидкости, составляет $\Gamma_1 = Dq^2$, где D – коэффициент диффузии частиц в жидкости, то процесс ВКоРС (ВДРС) должен приводить к появлению в спектре рассеянного света линии, сдвинутой относительно линии возбуждающего света на ту же величину $\Omega = Dq^2$ (аналогично тому, как это имеет место при ВТР). Для частиц радиусом 480 нм в воде этот сдвиг должен быть ~ 500 с⁻¹, или 80 Гц. Сдвиг такой величины можно зарегистрировать методом корреляционной спектроскопии, а с использованием интерферометров Фабри–Перо этого сделать нельзя.

Если в рассеянном свете, попадающем на квадратичный фотодетектор, присутствуют две спектральные линии, сдвинутые относительно друг друга на величину $\Delta\omega$, то в корреляционной функции интенсивности рассеянного света из-за биения частот должна появляться косинусоидальная составляющая. Аналогично тому, как это сделано в [25], можно получить выражение для функции корреляции интенсивности рассеяния при возникновении биений между опорной волной (I_h) и линией вынужденного рассеяния (I_2) в присутствии линии спонтанного рассеяния (I_1) [21]:

$$\begin{aligned} G^{(l)}(\tau) \langle I(t)I(t+\tau) \rangle &= I_1^2 \exp(-2\Gamma_1\tau) + I_2^2 \exp(-2\Gamma_2\tau) \\ &+ 2I_1I_h \exp(-\Gamma_1\tau) + 2I_2I_h \exp(-\Gamma_2\tau) \cos(\Omega\tau) \\ &+ \langle I_1 + I_2 + I_h \rangle^2, \end{aligned} \quad (2)$$

где $G^{(l)}(\tau)$ – функция корреляции интенсивности рассеянного света; Γ_2 – полуширина линии вынужденного рассеяния; в случае плоских волн и установившегося режима $\Omega = \Gamma_1 = Dq^2$. Для вынужденного процесса с ростом интенсивности возбуждающего света интенсивность сдвинутой линии должна расти экспоненциально, а при малых интенсивностях – квадратично.

3. Образцы и экспериментальная установка

В качестве объектов исследования ВКоРС (ВДРС) использовались два типа образцов: взвеси агрегатов наночастиц алмаза в воде и водные суспензии монодисперсных латексов.

Образцы взвеси алмаза готовились из алмазной пасты путем многократного разведения ее в обеспыленной бидистиллированной воде. Согласно характеристике производителей, алмазная паста состояла из наночастиц алмаза размером 2–4 нм. В результате разведения в растворе возникали агрегаты алмазных частиц размером 100–1200 нм (рис.1). Приведённые ниже результаты относятся к взвеси с агрегатами со средним эффективным радиусом 488 ± 8 нм и объемной концентрацией $C_V = 4 \times 10^{-5}\%$ [21]. Однако на самом деле в состав взвеси входили частицы радиусами 106 и 1200 нм (рис.1). Это распределение интенсивности рассеяния по радиусам частиц получено методом динамического рассеяния света при малых интенсивностях возбуждающего излучения ($\lambda = 532$ нм, $P = 0.89$ мВт).

Из рис.1 видно, что максимум рассеяния света приходится на частицы с радиусом 1193 нм. По интенсивности рассеяния можно определить, что такие агрегаты, как

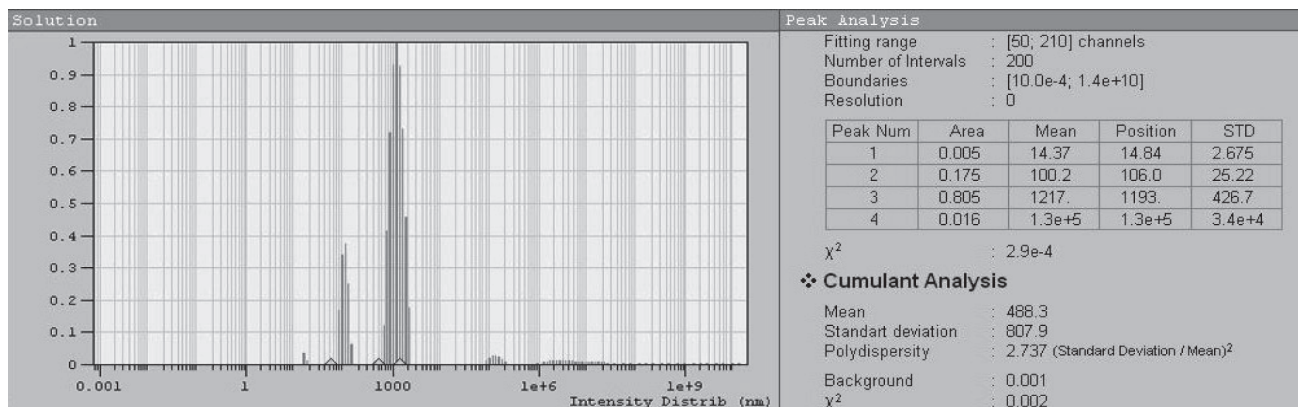


Рис.1. Результаты обработки программой DynaLS функции корреляции света, рассеянного назад взвесью наночастиц алмаза, в отсутствие ВР (при мощности лазера 0.89 мВт). Слева гистограмма распределения интенсивности рассеяния по радиусам частиц, справа результаты в числовом виде.

было показано ранее [26], содержат не только алмаз, но и воду, причем содержание воды примерно 60% – 70% (по объему).

Для подготовки образцов суспензий латекса использовались монодисперсные взвеси сферических частиц латекса в воде фирмы ФГУП «НИИСК» с узким распределением по размерам и с начальной концентрацией 6% по весу. Радиусы частиц составляли 80 и 480 нм. Эти латексы разводились в бидистиллированной обеспыленной воде на аналитических весах до объемной концентрации $C_V = 5 \times 10^{-3}\%$ и $0.7 \times 10^{-3}\%$ и затем заливались в специальные обеспыленные кюветы. Для частиц радиусом 480 нм при $C_V = 7 \times 10^{-4}\%$ концентрация частиц составляла $N_p = 1.5 \times 10^7 \text{ см}^{-3}$, а среднее расстояние между ними было 40 мкм.

Рассеяние во взвешах агрегатов алмазных наночастиц исследовалось в классической оптической схеме измерений рассеяния назад [21, 27], в которой вместо используемого обычно мощного импульсного лазера применялся непрерывный твердотельный лазер, с длиной волны излучения $\lambda = 532 \text{ нм}$, мощностью излучения до 50 мВт, с расходимостью излучения 0.5 мрад и диаметром пучка 2 мм.

Мощность возбуждающего излучения регулировалась двумя поляризаторами – призмой Франка–Риттера и пленочным поляризатором. Последний позволял регулировать мощность возбуждающего излучения без смещения пучка. Далее прошедший через полупрозрачное (пропускание 50%) зеркало свет фокусировался в кювету с исследуемой взвесью при помощи линзы с фокусным расстоянием 30 мм. Свет, рассеянный назад, из кюветы возвращался на полупрозрачное зеркало, отражался от него и объективом фокусировался на катодную диафрагму перед фотоумножителем, пройдя через апертурную диафрагму. Эти диафрагмы обеспечивали пространственную когерентность рассеянного света. Сигнал с фотоумножителя поступал на коррелятор марки «Photocor FСm» (ООО «Антек-97», ныне ООО «Фотокор»).

Юстировка описанной установки достаточно сложна. Гораздо более простой в использовании оказалась другая оптическая схема, а именно схема с использованием световодного щупа (рис.2).

В качестве источника света использовался тот же непрерывный твердотельный лазер. Излучение лазера с длиной волны $\lambda = 532 \text{ нм}$, пройдя через поляризатор ПЗ,

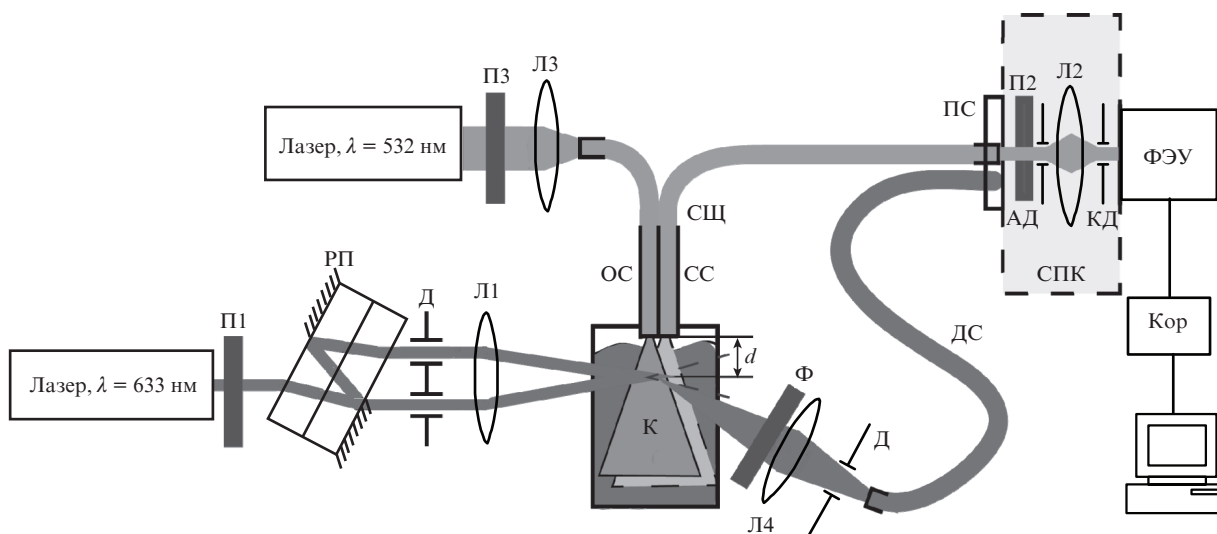


Рис.2. Оптическая схема экспериментальной установки со световодным щупом:

П1–П3 – поляризаторы; Л1–Л4 – линзы; СЩ – световодный щуп; ОС – освещающий световод; К – кювета; СС – собирающий световод; ПС – переключатель световодов; СПК – система обеспечения пространственной когерентности; АД – апертурная диафрагма; КД – катодная диафрагма; Кор – коррелятор; РП – раздвоитель пучка 50%/50%; Д – диафрагмы; Ф – красный фильтр; ДС – световод, передающий доплеровский сигнал; $d \approx 2.5 \text{ мм}$.

позволяющий регулировать мощность возбуждающего излучения, заводилось в освещающий световод световодного щупа линзой ЛЗ с фокусным расстоянием 15 мм. Выходной конец освещающего световода заделывался в один тонкий цилиндрический блок, выполненный в форме щупа, с входным концом собирающего световода. Эти световоды были параллельны, расстояние между их осями составляло 0.3 мм. Щуп опускался в кювету с исследуемой суспензией. Через собирающий световод из кюветы выводилось излучение, рассеянное в объеме вблизи конца щупа. Это излучение, выйдя из собирающего световода, через поляризатор П2 и систему обеспечения пространственной когерентности (СПК), поступало на катод того же ФЭУ, который использовался в классической оптической схеме измерений рассеяния назад. СПК состояла из апертурной и катодной диафрагм и линзы Л2. Схема с использованием световодов практически не требовала юстировки. Нужно было только обеспечить ввод света в освещающий световод и совместить изображение торца собирающего световода с диафрагмой, а также следить, чтобы свет из световодного щупа не попадал на стенки кюветы. Роль опорной волны в системе играл свет, отраженный от дна сосуда.

Для выяснения роли конвекции и измерения ее скорости в оптическую схему были внесены He–Ne-лазер, вертикальный раздвоитель пучка РП и линзы Л1 с фокусным расстоянием 10 или 30 см, составляющие обычную доплеровскую двухлучевую схему, как это описано, например, в [28]. Свет, рассеянный под малым углом относительно оси He–Ne-лазера в горизонтальной плоскости, объективом через красный фильтр фокусировался на торец ДС и через него попадал в СПК. Простым переключением световодов СС и ДС на входе СПК легко было перейти от регистрации рассеянного света к измерению вертикальной скорости потока.

В установленном режиме рассеяния измерялись корреляционные функции рассеянного зеленого света, прошедшего через СС при направлении световодов как вниз, так и вверх, а затем – корреляционные функции рассеянного света двух пучков He–Ne-лазера, прошедшего через ДС (рис.2). Период T косинуса корреляционных функций рассеянного света двух пучков He–Ne-лазера давал значение скорости конвективного потока:

$$V_c = \Lambda/T = \lambda/[2T\sin(\alpha/2)], \tag{3}$$

где Λ – длина волны решетки интерференционной картины в области пересечения пучков He–Ne-лазера; λ – длина волны его излучения; α – угол схождения пучков в воздухе.

Скорость конвективного потока измерялась на расстоянии ~ 2.5 мм от конца световодного щупа. Это расстояние оценивается из дистанционных зависимостей интенсивности возбуждающего излучения и площади перекрытия конусов освещенности и поля зрения световода как наиболее эффективное для фиксации ВР.

4. Результаты эксперимента

В ходе измерений корреляционных функций света, рассеянного взвесьями агрегатов алмазных наночастиц в классической оптической схеме измерений и наночастиц латекса в световодной схеме рассеяния назад, было обна-

ружено, что при увеличении мощности возбуждающего света меняется вид корреляционной функции интенсивности $G^{(I)}(\tau)$. В ней появляется косинусоидальная составляющая (рис.3), что свидетельствует о возникновении в спектре рассеяния линии, сдвинутой на частоту Ω относительно частоты возбуждающего излучения (см. (2)) [21, 27].

Оказалось, что амплитуда косинусоидальной составляющей (при $I_h = \text{const}$) растет с увеличением P_{las} (рис.3) [27], а интенсивность ВР I_2 зависит от I_{las} экспоненциально (рис.4). Полная интенсивность рассеянного света хорошо аппроксимируется выражением $I_{\text{sca}} = A \exp(gLI_{\text{las}}) + BI_{\text{las}}$, где последний член включает в себя и интенсивность опорной волны; g – коэффициент усиления; L – длина взаимодействия.

Более наглядно нелинейность рассеяния демонстрирует отношение интенсивности рассеянного света I_{sca} к мощности возбуждающего света P_{las} , растущее квадратично (рис.5) или еще более резко.

Полученные при ВР излучения с $\lambda = 532$ нм корреляционные функции интенсивности рассеянного света аппроксимировались выражением

$$\ln G^{(I)}(\tau) = \ln[C \exp(-2G_1\tau) + D \exp(-2G_2\tau) \cos(\Omega\tau) + F]. \tag{4}$$

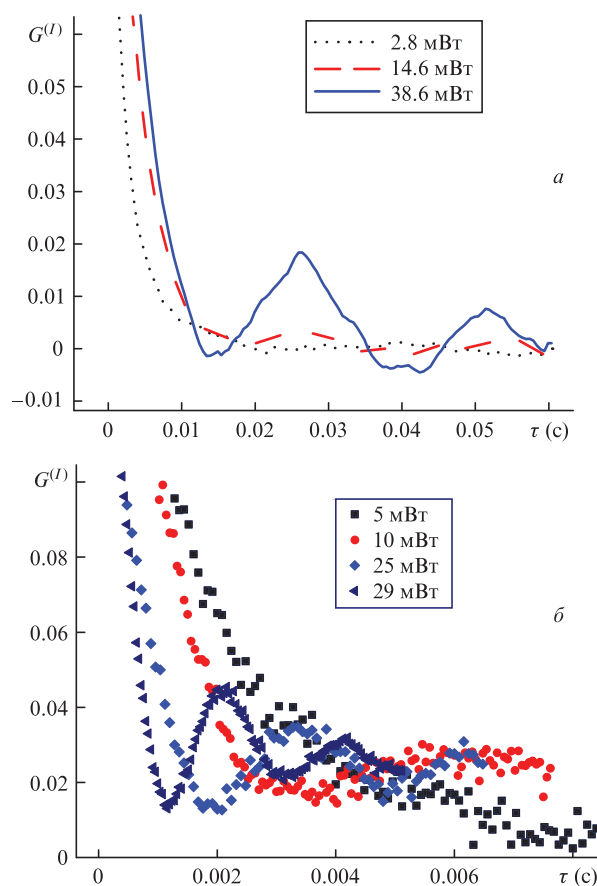


Рис.3. Функции корреляции света, рассеянного взвесью агрегатов наночастиц алмаза с радиусом 1200 нм в воде при мощности возбуждающего излучения $P_{\text{las}} = 2.8, 14.6$ и 38.6 мВт (классическая схема рассеяния назад, установившийся режим) (а) и суспензией частиц латекса радиусом 480 нм при $P_{\text{las}} = 5, 10, 25$ и 29 мВт (световодная схема рассеяния назад (рис.2), установившийся режим) (б).

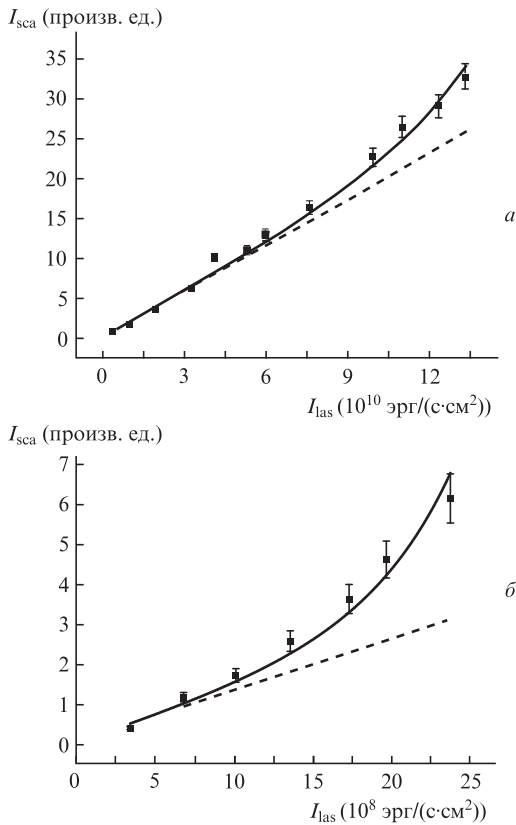


Рис.4. Полная интенсивность рассеянного света I_{sca} в зависимости от интенсивности возбуждающего света I_{las} во взвеси наночастиц алмаза в воде (классическая схема рассеяния назад, [21]), $C_V = 4 \times 10^{-5}\%$, (а) и в эмульсии частиц латекса радиусом 480 нм в воде (световодная схема, рис.2 [25]), $C_V = 5 \times 10^{-3}\%$ (б). Штриховые линии – линейная часть I_{sca} .

Результатом такой аппроксимации явились величины Ω для взвесей агрегатов алмаза в диапазоне 230 – 248 c^{-1} . Они не обнаруживали какой-либо закономерности изменения с увеличением P_{las} и в среднем (с учетом ошибок каждого измерения) составляли $240 \pm 20 c^{-1}$, что несколько отличается от теоретического значения, равного полуширине спектральной линии спонтанного рассеяния $\Gamma_1 = Dq^2 = 209 c^{-1}$, но очень близко к нему.

Ширины линий вынужденного рассеяния Γ_2 практически не зависят от мощности P_{las} и в эмульсии агрегатов наночастиц алмаза оказываются в пределах $50 \pm 6 c^{-1}$, а в эмульсии частиц латекса с радиусом 480 нм в воде составляет $325.0 \pm 13.2 c^{-1}$.

Однако величины Ω для частиц латекса в световодной схеме измерения при увеличении P_{las} от 10 до 29 мВт росли от 750 до почти 2800 cm^{-1} . Хотя для взвеси частиц радиусом 480 нм в воде при 25 °С ширина линии спонтанного рассеяния назад $\Gamma_1 = 504 c^{-1}$, сдвиг Ω линии ВР должен быть таким же и в рамках стационарной модели не должен зависеть от интенсивности возбуждающего излучения. Как выяснилось, отличие экспериментальных результатов от предсказанных теоретически связано с возникновением конвекции.

5. Влияние конвекции

Частицы латекса, в отличие от наночастиц алмаза, обладают несколько большим коэффициентом поглощения на $\lambda = 532$ нм. Этого оказывается достаточно, чтобы соз-

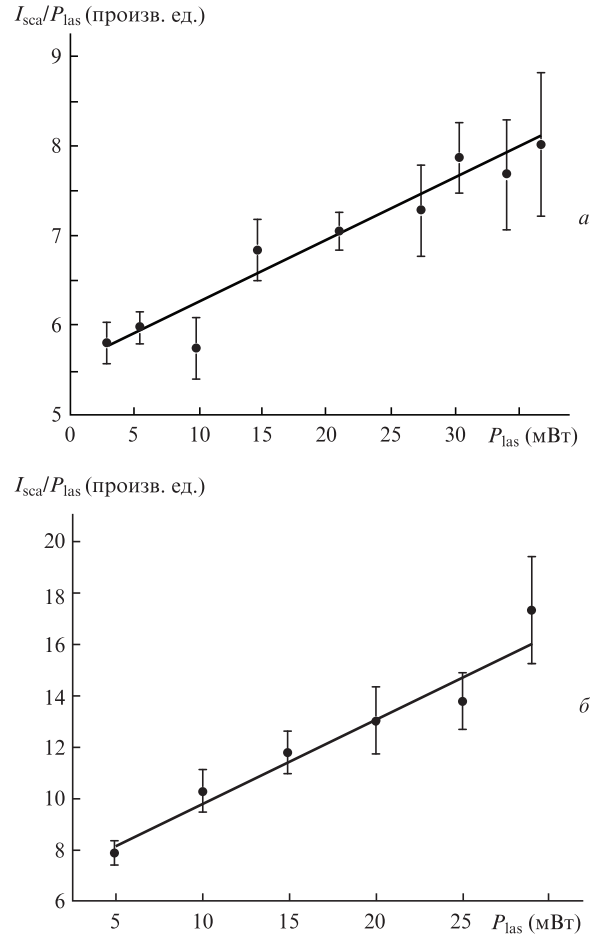


Рис.5. Отношение I_{sca}/P_{las} в зависимости от P_{las} для взвеси наночастиц алмаза в воде (классическая схема рассеяния назад, [21]) (а) и для эмульсии частиц латекса радиусом 480 нм в воде (световодная схема, рис.2) (б).

дать в кювете с суспензией конвекционный поток. Скорость такого потока V_c увеличивается с ростом P_{las} и ее зависимость от вертикальной координаты имеет максимум на расстоянии ~ 2.4 мм от конца световодов. Во взвеси частиц латекса радиусом 480 нм с концентрацией $C_V = 7 \times 10^{-4}\%$ при изменении мощности лазера от ~ 5 до 33 мВт скорость V_c на расстоянии 2.4 мм от конца световодов менялась от ~ 0.005 до 0.05 см/с (рис.6,а). При этом на частотный сдвиг линии ВР накладывается доплеровский сдвиг из-за движения частиц вместе с потоком вдоль пучка, и функция корреляции интенсивности рассеянного назад света несколько меняется по сравнению с (2):

$$G^{(I)}(\tau) = I_1^2 \exp(-2\Gamma_1\tau) + I_2^2 \exp(-2\Gamma_2\tau) + 2I_1I_h \times \exp(-2\Gamma_1\tau) \cos(\Omega_c\tau) + 2I_2I_h \exp(-2\Gamma_2\tau) \times \cos(\Omega_m\tau) + \langle I_1 + I_2 + I_h \rangle^2. \tag{5}$$

Здесь $\Omega_m = \Omega_{st} + \Omega_c$ – измеренный полный сдвиг линии ВР; $\Omega_c = 4\pi n V_c / \lambda$ – сдвиг, обусловленный конвективным потоком; Ω_{st} – сдвиг, обусловленный ВР; n – показатель преломления воды.

Однако для минимальной мощности лазера, когда ВР еще ниже порога регистрации, период T_{min} функции $\cos(\Omega_c\tau)$, обусловленный конвективным потоком, равен 5.3×10^{-3} с, а $\tau_D = (\Gamma_1)^{-1}$ составляет 2.1×10^{-3} с. При этом

первый максимум корреляционной функции, отнесенный к ее амплитуде, $\exp(-\Gamma_1 T_{\min})$, равен 0.08 и практически не наблюдается. При увеличении мощности лазера период T уменьшается, однако резко (квадратично или быстрее) увеличивается I_2 . Поэтому влияние $\cos(\Omega_c \tau)$ на величину функций корреляции уменьшается и мы по-прежнему аппроксимировали их формулой (4).

Результаты измерений скорости конвективного потока V_c и полного частотного сдвига линии ВР Ω_m в зависимости от мощности лазера приведены на рис.6.

Решетка показателя преломления (и концентрации частиц), на которой происходит ВР, движется относительно жидкости со скоростью $V_{gr} = c\Omega_{st}/2\omega_0 = \Omega_{st}\lambda/4\pi n$ (ω_0 – круговая частота световой волны). Оказалось, что скорость конвекции V_c больше скорости решетки V_{gr} . Доплеровский сдвиг Ω_c , обусловленный конвективным потоком, равен $4\pi n V_c / \lambda$. Отсюда в предположении простого сложения скоростей решетки и конвективного потока для случая, когда световодный щуп направлен вниз, если сдвиг линии ВР стоксов, $\Omega_m^{down} = \Omega_c - \Omega_{st}$ ($V_m = V_c - V_{gr}$), а для случая, когда световодный щуп направлен вверх, $\Omega_m^{up} = \Omega_c + \Omega_{st}$, т.к. направления сдвигов совпадают (рис. 7).

На рис.8 представлен результат вычитания доплеровского сдвига, обусловленного скоростью конвективного потока Ω_c , из измеренного частотного сдвига линии ВР Ω_m , представленного на рис.6, в зависимости от мощности возбуждающего излучения.

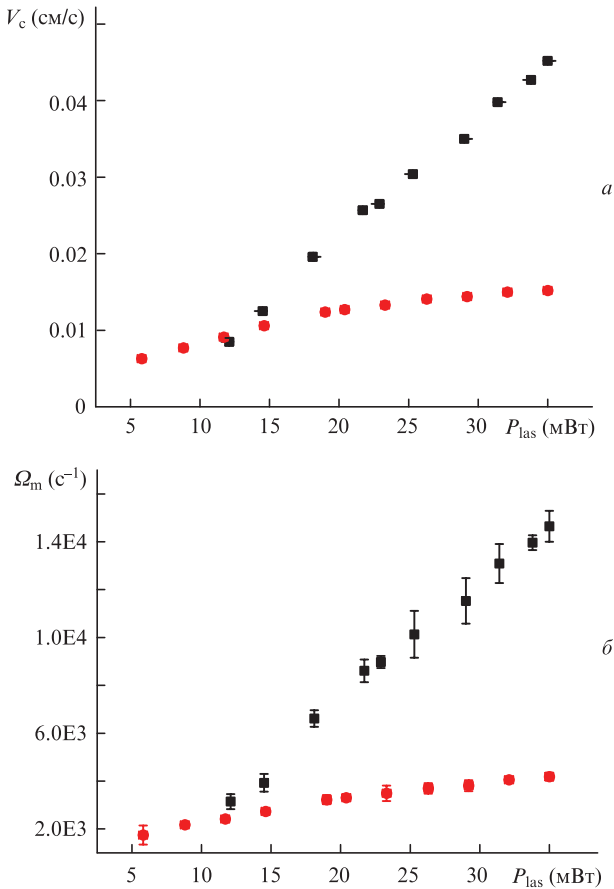


Рис.6. Зависимости от мощности излучения лазера скоростей конвекции V_c (а) и измеренных полных частотных сдвигов ВР Ω_m (б) для взвеси в воде частиц латекса радиусом 480 нм с концентрацией $C_V = 7 \times 10^{-4}\%$ в случае, когда световодный щуп направлен вниз (●) и вверх (■).

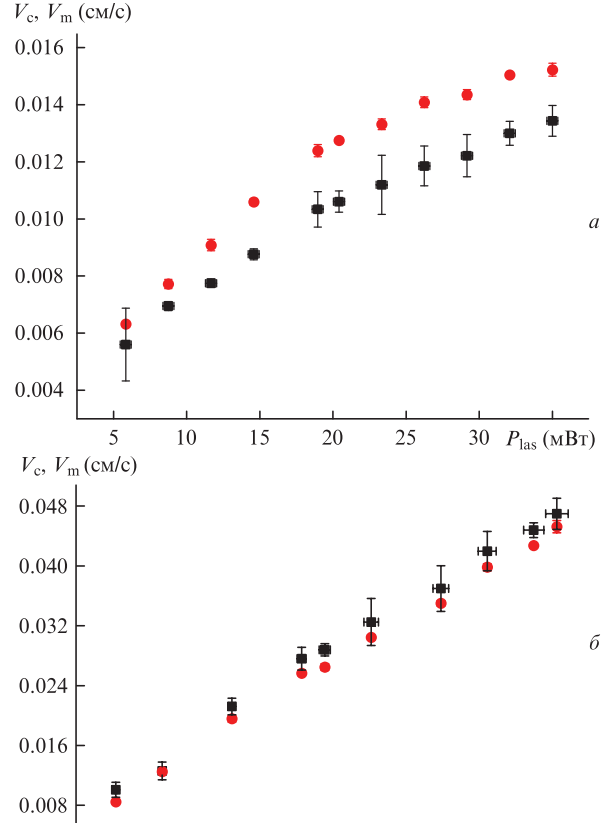


Рис.7. Зависимости от мощности излучения лазера полной скорости решетки $V_m = \Omega_m \lambda / 4\pi n$ (■) и скорости конвекции V_c (●) для взвеси в воде частиц латекса радиусом 480 нм с концентрацией $C_V = 7 \times 10^{-4}\%$ в случае, когда световодный щуп направлен вниз (а) и вверх (б).

Видно, что в области развитого ВКорПС ($P_{las} > 20$ мВт) полученные таким образом экспериментальные значения Ω_{st} приближаются к теоретическому значению $\Omega_{st} = Dq^2 = 504 \text{ c}^{-1}$ для направления щупа вниз (-504 c^{-1} для направления щупа вверх), хотя и несколько превышают его, как и в случае взвеси алмаза. Уменьшение Ω_{st} при уменьшении P_{las} объясняется, видимо, влиянием третьего члена с $\cos(\Omega_c \tau)$ в формуле (5), не учтенного при аппроксимации функций корреляции.

Частотный сдвиг линии ВР (частота максимума коэффициента усиления) также может несколько изменяться из-за искажения частотной зависимости коэффициента усиления ВР g , аналогично тому, как это происходит при

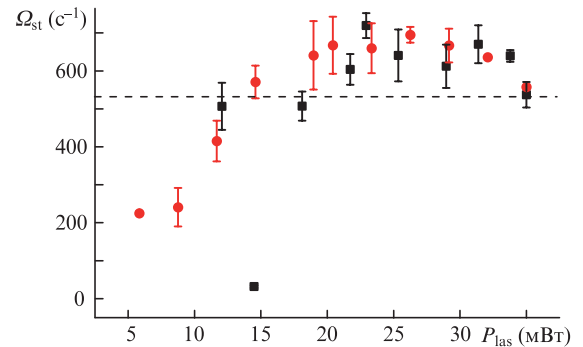


Рис.8. Зависимость $\Omega_{st} = |\Omega_m - \Omega_c|$ от мощности возбуждающего излучения по результатам, представленным на рис.6. Горизонтальная линия соответствует $\Omega_{st} = \Gamma_1 = 504 \text{ c}^{-1}$, световодный щуп направлен вниз (●) и вверх (■).

четырёхволновом взаимодействии в движущейся среде [29]. Однако этот тонкий эффект не рассматривается в настоящей работе.

Аппроксимация зависимости интенсивности рассеянного света от интенсивности возбуждающего излучения формулой $I_{\text{sca}} = A \exp(gLI_{\text{las}}) + BI_{\text{las}}$, приведенная на рис.4, дает для коэффициента усиления ВКОРС во взвеси частиц латекса радиусом 480 нм значения $g_{\text{lat}} = (6.5 \pm 2.4) \times 10^{-9} \text{ с} \times \text{см/эрг}$ при $L = 0.3 \text{ см}$, а во взвеси агрегатов наночастиц алмаза в воде при $L = 0.042 \text{ см}$ значение $g_{\text{d}} = (1.22 \pm 0.23) \times 10^{-10} \text{ с} \cdot \text{см/эрг}$. В [23] авторы получили для g выражение, которое в более удобном для оценки виде можно представить как

$$g = \frac{64\pi^3}{3c} \frac{1}{\lambda\eta qR} (\sin qR - qR \cos qR) \alpha_0^2 C_V \frac{\Omega_{\text{st}}}{(Dq)^2 + \Omega_{\text{st}}^2}, \quad (6)$$

где c – скорость света; η – вязкость воды; R – радиус частиц; $\alpha_0 = (3/4\pi)n(m^2 - 1)/(m^2 + 2)$ – поляризуемость среды; m – относительный показатель преломления материала частицы.

Это выражение для нашей взвеси частиц латекса с $C_V = 5 \times 10^{-5}\%$ дает значение $g_{\text{lat}} = 3.5 \times 10^{-9} \text{ с} \cdot \text{см/эрг}$, а для взвеси алмаза, в предположении, что алмазные агрегаты содержат 70% воды, – значение $g_{\text{td}} = 5.0 \times 10^{-10} \text{ с} \cdot \text{см/эрг}$. При имеющемся уровне точности оценки величины L совпадение экспериментального g_{lat} и теоретического g_{lat} значений для латекса можно считать вполне удовлетворительным. Что же касается взвеси алмаза, то, по-видимому, вследствие слабой конвекции в направлении, перпендикулярном оси пучка, решетка концентрации просто не успевала сформироваться до стационарного уровня, и поэтому оказывается, что $g_{\text{d}} < g_{\text{td}}$.

Все эти факты по аналогии с комплексом явлений, происходящих при появлении ВТР или ВРКЛР, дают основания считать, что мы имеем дело с вынужденным рассеянием света на вариациях концентрации частиц в жидкости, т.е. вынужденным концентрационным (диффузионным) рассеянием света частицами, или вынужденным рассеянием Ми.

Видимо, именно из-за образования конвективного потока нам не удалось наблюдать ВКОРС (ВДРС) в суспензии латекса в классической схеме рассеяния назад, т.к. при мощности возбуждающего излучения 30 мВт время образования решетки концентрации составляет несколько секунд, а время пересечения диаметра световода конвективным потоком – 0.1 с. Таким образом, суспензия проходит через освещенную область быстрее, чем успевает образоваться решетка концентраций, на которой происходит ВКОРС.

6. Заключение

При рассеянии света назад во взвесах агрегатов алмаза и наночастиц латекса в воде при интенсивности возбуждающего лазерного излучения более 100 Вт/см² и радиусах частиц взвесей 1200 и 480 нм обнаружен нелинейный рост интенсивности рассеяния. В традиционной схеме рассеяния назад обнаружен частотный сдвиг спек-

тральной линии рассеянного света, который соответствует полуширине линии спонтанного рассеяния. В световодной схеме обнаружен сдвиг спектральной линии рассеяния, соответствующий сумме (или разности для случая световода, направленного вниз) скоростей решетки концентрации $V_{\text{gr}} = Dq^2\lambda/4\pi n$ и конвективного потока V_c .

Таким образом, можно утверждать, что в указанных суспензиях в описанных условиях наблюдается вынужденное концентрационное (диффузионное) рассеяние света на вариациях концентрации частиц, или вынужденное рассеяние Ми. С помощью непрерывного лазера и коррелятора был измерен его частотный сдвиг, не превышающий теоретически предсказанную величину больше, чем на 15%.

1. Сушинский М.М. *Вынужденное комбинационное рассеяние света* (М.: Наука, 1985).
2. Chiao R.Y., Townes C.N., Stoioheff V.P. *Phys. Rev. Lett.*, **12** (21), 592 (1964).
3. Старунов В.С., Фабелинский И.Л. *УФН*, **98**, 441 (1969).
4. Маш Д.И., Морозов В.В., Старунов В.С., Фабелинский И.Л. *Письма в ЖЭТФ*, **2** (1), 41 (1965).
5. Sogomonian S., Barille R., Rivoire G. *Opt. Commun.*, **157**, 182 (1998).
6. Зайцев Г.И., Кызыласов Ю.И., Старунов В.С., Фабелинский И.Л. *Письма в ЖЭТФ*, **6** (2), 505 (1967).
7. Jirauschek C., Jeffrey E.M., Faris G.W. *Phys. Rev. Lett.*, **87** (23), 233902 (2001).
8. Зайцев Г.И., Кызыласов Ю.И., Старунов В.С., Фабелинский И.Л. *Письма в ЖЭТФ*, **6** (8), 802 (1967).
9. Старунов В.С. *ЖЭТФ*, **57**, 1012 (1969).
10. Горелик С., Кудрявцева А.Д., Чернега Н.В. *Кр. сообщ. физ. ФИАН*, №8, 43 (2006).
11. Тареева М.В., Горелик В.С., Кудрявцева А.Д., Чернега Н.В. *Кр. сообщ. физ. ФИАН*, №11, 3 (2010).
12. Арефьев И.М., Морозов В.В. *Письма в ЖЭТФ*, **9**, 448 (1969).
13. Lowdermilk W.H., Bloembergen N. *Phys. Rev. A*, **5**, 1423 (1972).
14. Bloembergen N., Lowdermilk W.H., Matsuoka M., Wang C.S. *Phys. Rev. A*, **3** (1), 404 (1971).
15. Давыдов М.А., Шипилов К.Ф. *Письма в ЖЭТФ*, **52** (3), 789 (1990).
16. Guang S.He, Ken-Tye Yong, Jing Zhu, Prasad P.N. *Phys. Rev. A*, **85**, 043839 (2012).
17. Guang S.He, Wing-Cheung Law, Liwei Liu, Xihe Zhang, Prasad P.N. *Appl. Phys. Lett.*, **101**, 011110 (2012).
18. Guang S.He, Wing-Cheung Law, Baev A., Sha Liu, Swihart M.T., Prasad P.N. *J. Chem. Phys.*, **138**, 024202 (2013).
19. Shi J., Wu H., Liu J., Li S., He X. *Sci. Rep.*, **5**, 11964 (2015).
20. Shi J., Wu H., Yan F., Yan F., Yang J., He X. *J. Nanopart. Res.*, (2016); doi 10.1007/s11051-016-3333-1.
21. Бурханов И.С., Чайков Л.Л. *Кр. сообщ. физ. ФИАН*, **39** (3), 22 (2012).
22. Зельдович Б.Я., Собельман И.И. *УФН*, **101** (1), 3 (1970).
23. Афанасьев А.А., Рубинов А.Н., Михневич С.Ю., Ермолаев И.Е. *Оптика и спектроскопия*, **102** (1), 116 (2007).
24. Zemanek P., Jonas A. *J. Opt. Soc. Am. A*, **19** (5), 1025 (2002).
25. Palberg Th., Reiber H., Köller T., et al. arXiv:0811.2321v1.
26. Burkhanov I.S., Chaikov L.L., Korobov D.Yu., Krivokhizha S.V., Kudryavtseva A.D., Savranskiy V.V., Shevchuk A.S., Tcherniega N.V. *J. Russ. Laser Res.*, **33**, 496 (2012).
27. Burkhanov I.S., Chaikov L.L. *Proc. SPIE Int. Soc. Opt. Eng.*, **9066**, 906610 (2013).
28. Кривохижа С.В., Лаптева Е.С., Чайков Л.Л., Шаповалова Д.М. *Кр. сообщ. физ. ФИАН*, **38** (4), 32 (2011).
29. Одулов С.Г., Соскин М.С., Хижняк А.И. *Лазеры на динамических решетках* (М.: Наука, Физматлит, 1990).