

Глава IV

Динамическое многократное рассеяние в условиях светоиндуцированного движения рассеивателей

Хорошо известно, что при падении лазерного излучения достаточной мощности на суспензию микрочастиц может иметь место ускорение частиц в поле электромагнитного излучения. В результате в среде формируется сложное поле скоростей частиц. Это явление многократно наблюдалось экспериментально [156–159]. В рамках настоящей диссертации представляется интересным, во-первых, рассмотреть возможности использования методов ДВС для диагностики индуцированных лазерным излучением потоков частиц в концентрированных суспензиях и, во-вторых, рассчитать поправки к временной автокорреляционной функции многократно рассеянного излучения, обусловленные эффектами лазерного ускорения рассеивающих центров в случайно-неоднородной среде.

Проблема диагностики и визуализации светоиндуцированных потоков в концентрированных суспензиях возникает естественным образом при повышении концентрации суспензии. Действительно, при низкой концентрации частиц их движение можно наблюдать в оптический микроскоп, без труда определяя траектории и скорости отдельных частиц. Эта возможность обеспечивается, по сути, тем простым фактом, что в суспензиях с низкой концентрацией рассеивающих центров име-

ет место режим однократного рассеяния излучения: свет от источника излучения рассеивается на определенной частице и затем распространяется к объективу микроскопа, не претерпевая повторного рассеяния на других частицах среды. Для суспензий с высокой концентрацией частиц ситуация существенным образом меняется: наступает режим многократного рассеяния излучения и траектория отдельного фотона в среде напоминает скорее траекторию броуновской частицы, чем прямую линию. Поэтому наблюдатель не может видеть отдельных частиц внутри среды; в окуляре микроскопа видно либо равномерно засвеченное поле (в некогерентном свете), либо флуктуирующая во времени спекл-картина (в когерентном свете). Как было показано в предыдущих главах, флуктуации спекл-картины несут информацию о динамической структуре среды (т.е. об индуцированном лазерным излучением движении частиц в среде). Ниже мы анализируем возможность извлечения этой информации методами ДВС.

Помимо задачи диагностики светоиндуцированных потоков взвешенных в жидкости микрочастиц представляет интерес анализ роли эффектов лазерного ускорения в задачах многократного рассеяния вообще. Действительно, все известные нам эксперименты по динамическому многократному рассеянию света в случайно-неоднородных средах интерпретировались до сих пор в предположении того, что излучение *не влияет* на динамику рассеивающих центров в среде. Хотя это предположение, без сомнения, оправдано при малых интенсивностях I излучения, оно может стать неприемлемым при больших I . Выяснению условий, при которых светоиндуцированное движение рассеивающих центров в случайно-неоднородных средах необходимо принимать во внимание при использовании методики ДВС, посвящена вторая часть настоящей главы.

4.1 Эффекты лазерного ускорения микрочастиц

Воздействие лазерного излучения на взвеси частиц микронного или субмикронного размеров в жидкости или газе представляет из себя достаточно сложный процесс. Хотя экспериментально надежно установлено, что лазерное излучение ускоряет взвешенные частицы, строгий теоретический анализ этого явления оказывается затруднительным ввиду наличия различных механизмов ускорения частиц излучением лазера.

Рассмотрим для определенности сферическую частицу радиуса a , взвешенную в жидкости. Будучи помещенной в лазерный пучок, частица оказывается под действием

- силы светового давления $\mathbf{F}_p$,
- градиентной силы $\mathbf{F}_\nabla$,
- конвекционного увлечения,
- радиометрического давления,
- светореактивного давления.

В случае, когда размер частицы меньше длины волны лазерного излучения λ , выражения для силы светового давления и градиентной силы имеют вид:

$$\mathbf{F}_p \simeq \frac{2}{3}\alpha^2 k^4 E^2 \hat{n}, \quad (4.1)$$

$$\mathbf{F}_\nabla \simeq \alpha \nabla \langle E^2 \rangle, \quad (4.2)$$

где α — поляризуемость частицы, E — напряженность электрического поля в световой волне, $k = 2\pi/\lambda$, $\hat{n}$ — единичный вектор, параллельный направлению распространения световой волны. Для диэлектрической частицы с проницаемостью ε , взвешенной в среде с проницаемостью ε_0 , $\alpha \simeq a^3(\varepsilon - \varepsilon_0)/(\varepsilon + 2\varepsilon_0)$.

В отличие от сил, определяемых выражениями (4.1, 4.2) и обусловленных электромагнитным воздействием лазерного излучения, эффекты конвекционного увлечения, радиометрического и светореактивного давления связаны с поглощением света средой. Конвекционное увлечение частиц возникает при достаточно большом коэффициенте поглощения света в суспензии. Ввиду неравномерного нагревания суспензии лазерным пучком, массы жидкости (находящейся в гравитационном поле) начинают перемещаться внутри образца, а вместе с ними в движение вовлекаются и взвешенные частицы. Радиометрическое давление появляется из-за поглощения излучения материалом самих взвешенных частиц и их неизбежного нагрева. Поскольку лазерное излучение распространяется в определенном направлении, температура одной стороны частицы оказывается выше, чем температура другой, и это обстоятельство приводит к появлению радиометрической силы. Наконец, так называемое светореактивное давление обусловлено испарением материала частицы и возникающей в связи с этим реактивной силой, действующей на остов частицы.

Необходимо отметить, что группа сил, не связанных с непосредственным электромагнитным действием лазерного излучения, может играть существенную роль в некоторых реальных экспериментах. Конвекционное увлечение и радиометрическое давление, например, были основным препятствием в первых экспериментах по измерению давления света [160]. Точный расчет этих сил выходит за рамки вопросов, рассматриваемых в настоящей диссертации.

Существуют также и другие механизмы ускорения взвешенных в жидкости или газе микрочастиц лазерным излучением (например, лазерное излучение может инициировать в среде ударную акустическую волну, которая затем будет воздействовать на взвешенные частицы [158]). Далее мы ограничимся случаем, когда оптические характе-

ристики среды и параметры рассеивающих свет частиц не меняются существенным образом под действием лазерного излучения.

4.2 Возможности диагностики светоиндуцированного движения частиц в концентрированных суспензиях методами диффузионно-волновой спектроскопии

4.2.1 Постановка задачи

Рассмотрим кювету, заполненную концентрированной суспензией частиц микронного или субмикронного размера в жидкости (см. рис. 4.1). Пусть размер кюветы в любом направлении много больше транспортной длины свободного пробега фотона в среде ℓ^* . Достаточно мощный лазерный пучок (длина волны λ_0 , излучение может быть как непрерывным, так и импульсно-периодическим), сфокусированный на левую стенку кюветы, ускоряет взвешенные частицы вдоль оси z , как показано на рис. 4.1. Будем считать, что ускоренные лазерным излучением частицы движутся в пределах достаточно узкой цилиндрической области диаметра $d < \ell^*$, положение которой задается координатами x_0 и y_0 . Такой режим ускорения микрочастиц наблюдался экспериментально в работе [157]. Для упрощения анализа мы предположим, что скорость частиц v не зависит от их положения внутри области светоиндуцированного движения.

Диагностику светоиндуцированного потока частиц мы предлагаем проводить с помощью второго лазерного пучка (длина волны λ , излучение непрерывное или импульсное с длительностью импульса τ_p , много большей времени жизни фотона в среде $(\mu_a c)^{-1}$), сфокусированного на переднюю стенку кюветы. Радиус-вектор $\mathbf{r}_s = (x_s, y_s, 0)$ задает точку падения пучка на стенку кюветы. В отличие от первого, ускоряющего микрочастицы пучка, будем называть этот второй пучок зондиру-

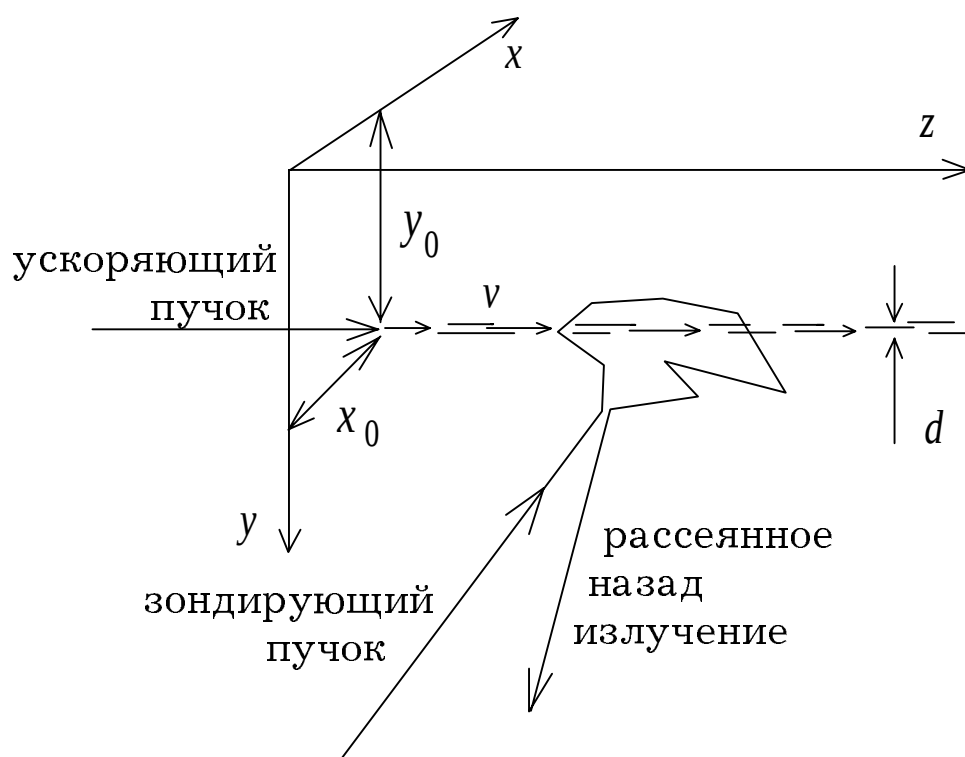


Рис. 4.1: Схема предлагаемого эксперимента. Большая кювета заполнена взвесью частиц микронного или субмикронного размера. Под действием ускоряющего лазерного пучка, сфокусированного на левую стенку кюветы, частицы движутся слева направо в пределах узкой цилиндрической области диаметра d . Зондирующий пучок сфокусирован на переднюю стенку кюветы, многократно рассеянное излучение, покидающее кювету, регистрируется детектором.

ющим. Его мощность предполагается достаточно низкой, поэтому его воздействием на взвешенные частицы можно пренебречь.

Пусть $\mathbf{r} = (x, y, 0)$ — точка на границе среды, в которой проводятся измерения временной автокорреляционной функции $G_1(\tau)$ многократно рассеянного излучения. Будем считать, что излучение ускоряющего пучка не достигает регистрирующего G_1 устройства (детектора). В эксперименте это можно реализовать, например, помещая светофильтр, поглощающий излучение на длине волны λ_0 , непосредственно перед детектором и используя пучки с двумя различными длинами волн $\lambda_0 \neq \lambda$.

Без потери общности, рассмотрим сначала частицы, размер которых намного меньше, чем длина волны зондирующего излучения λ . В этом случае частицы можно приближенно считать точечными рассеивателями. Кроме того, мы предположим, что коэффициент поглощения света в суспензии на длине волны λ зондирующего излучения пренебрежимо мал. Тогда для описания многократного рассеяния света в суспензии необходимо знать только величину длины свободного пробега фотона ℓ . Относительно последней предположим, что ℓ не только много больше, чем d , что соответствует модели узкого потока частиц в суспензии, но также, что ℓ превышает линейный размер пятна фокусировки зондирующего пучка на стенке кюветы (это соответствует сильной фокусировке пучка). Такое предположение дает нам возможность считать источник излучения на длине волны λ точечным.

При выключенном ускоряющем пучке взвешенные частицы находятся в неупорядоченном броуновском движении с коэффициентом диффузии D_B , определяемым их размером, вязкостью и температурой суспензии. Включение ускоряющего пучка приводит к возникновению направленного потока частиц, наложенного на их броуновское блуждание. При этом для расчета временной автокорреляционной функции рас-

сеянного излучения можно использовать выражение (1.47):

$$G_1(\tau) = \sum_{n=1}^{\infty} I(\mathbf{r}_s, \mathbf{r}, n) \exp \left\{ -\frac{1}{2} \langle \Delta \varphi_n^2(\tau) \rangle \right\}, \quad (4.3)$$

где, однако, величину $\langle \Delta \varphi_n^2(\tau) \rangle$ необходимо рассчитать с учетом конкретной геометрии потока рассеивателей. При условии, что броуновское и направленное движения частиц можно считать независимыми, имеем

$$\langle \Delta \varphi_n^2(\tau) \rangle = \langle \Delta \varphi_n^{(B)2}(\tau) \rangle + \langle \Delta \varphi_n^{(F)2}(\tau) \rangle, \quad (4.4)$$

где первое слагаемое описывает эффекты декорреляции фотонов, обусловленные броуновским движением рассеивателей, а второе — эффекты декорреляции, связанные со светоиндуцированным потоком частиц.

Как обсуждалось в п. 1.1.3.1,

$$\langle \Delta \varphi_n^{(B)2}(\tau) \rangle = \frac{\tau}{\tau_0} n, \quad (4.5)$$

где $\tau_0 = (4k^2 D_B)^{-1}$ и $k = 2\pi/\lambda$.

4.2.2 Расчет рассеяния на светоиндуцированном потоке

Выражение для второго слагаемого в формуле (4.4) можно найти, используя метод интегралов по траекториям (см. п. 1.1.3). Поскольку поперечный размер области потока d предполагается малым ($d < \ell$), то мы можем использовать внутри этой области приближение однократного рассеяния: каждый фотон, траектория которого пересекает область потока, испытывает ровно один акт рассеяния на ускоренной лазерным излучением частице. Конечно, отдельные фотоны пересекут область потока, не встретив на своем пути ни одной частицы, а другие — наоборот — рассеются внутри области потока дважды, однако вероятность таких событий мала и, кроме того, можно ожидать, что их влияние на $G_1(\tau)$ будет взаимно компенсироваться.

Рассмотрим траекторию фотона, включающую n актов рассеяния, из которых m -ный происходит на ускоренной лазерным излучением частице, движущейся со скоростью $\mathbf{v}$, а остальные — на покоящихся рассеивателях. Разность фаз между двумя фотонами, рассеивающимися вдоль одной и той же траектории в моменты времени, разделенные промежутком τ , будет обусловлена смещением движущегося рассеивателя за этот промежуток времени и, как не трудно заметить, равна

$$\Delta\varphi_{mn}^{(F)}(\tau) = k\tau (\hat{e}_m \cdot \mathbf{v}) \delta(x_m - x_0) \delta(y_m - y_0), \quad (4.6)$$

где $\hat{e}_m$ — единичный вектор, задающий направление распространения рассеянной волны после акта рассеяния номер m в цепочке из n актов рассеяния ($m = 1, \dots, n$), $\{x_m, y_m, z_m\}$ — координаты точки, в которой происходит этот акт рассеяния, и мы предположили, что поток частиц параллелен оси z , а его положение задается координатами x_0, y_0 (см. рис. 4.1).

Чтобы найти $\langle \Delta\varphi_n^{(F)2}(\tau) \rangle$ необходимо просуммировать (4.6) по всем $m = 1, \dots, n$, возвести эту сумму в квадрат и усреднить результат по всем возможным траекториям фотонов в среде. Поскольку векторы $\hat{e}_m$ и $\mathbf{v}$ независимы, то $\langle (\hat{e}_m \cdot \mathbf{v})^2 \rangle = v^2/2$, и окончательно получаем

$$\langle \Delta\varphi_n^{(F)2}(\tau) \rangle = \frac{1}{2} (kv\tau)^2 \sum_{m=1}^n \langle \delta(x_m - x_0) \delta(y_m - y_0) \rangle. \quad (4.7)$$

Нетрудно понять, что стоящая в правой части сумма есть, фактически, ненормированная вероятность $P_n(x_0, y_0)$ того, что n -кратно рассеянный фотон испытает один из актов рассеяния внутри области светоиндуцированного потока, а m -ный член этой суммы — ненормированная вероятность $P_{mn}(x_0, y_0)$ того, что этот акт рассеяния будет иметь порядковый номер m . Эти вероятности связаны между собой очевидным

соотношением:

$$P_n(x_0, y_0) = \sum_{m=1}^n P_{mn}(x_0, y_0). \quad (4.8)$$

В свою очередь, $P_{mn}(x_0, y_0)$ можно представить в виде

$$P_{mn}(x_0, y_0) = \int_{-\infty}^{\infty} P_{mn}(x_0, y_0, z) dz, \quad (4.9)$$

где $P_{mn}(x_0, y_0, z) dz$ — вероятность того, что акт рассеяния номер m произойдет в окрестности точки (x_0, y_0, z) , а интегрирование по всем z отражает тот факт, что скорость светоиндуцированного потока $\mathbf{v}$ направлена вдоль оси z .

В силу вышесказанного, выражение (4.7) можно переписать в виде

$$\langle \Delta \varphi_n^{(F)2}(\tau) \rangle = 2 \left[\frac{\tau}{\tau_F} \right]^2 \times P_n(x_0, y_0), \quad (4.10)$$

где $\tau_F = 2(kv)^{-1}$ — характерное время, связанное с наличием в среде светоиндуцированного потока рассеивателей.

При расчете $P_{mn}(x_0, y_0, z)$, $P_{mn}(x_0, y_0)$ и $P_n(x_0, y_0)$ мы должны принимать во внимание только те из возможных траекторий фотонов, которые начинаются в точке расположения источника излучения $\mathbf{r}_s$, заканчиваются в точке расположения детектора $\mathbf{r}$ и в промежутке между этими точками не пересекают границу среды. Заметим, что величину $P_n(x_0, y_0)$ можно также рассматривать как среднее число актов рассеяния фотонов внутри области светоиндуцированного потока.

Вычисление $P_{mn}(x_0, y_0, z)$ проведем аналогично тому, как была получена формула (1.55) в разделе 1.1.3.2:

$$P_{mn}(x_0, y_0, z) = \frac{I(\mathbf{r}_s, \{x_0, y_0, z\}, m) \times I(\{x_0, y_0, z\}, \mathbf{r}, n - m)}{I(\mathbf{r}_s, \mathbf{r}, n)}, \quad (4.11)$$

где для нахождения $I(\mathbf{r}_s, \mathbf{r}, n)$ мы воспользуемся диффузионным прибли-

жением (см. (1.48)), считая среду полубесконечной:

$$I(\mathbf{r}_s, \mathbf{r}, n) = \left(\frac{3}{4\pi\ell^2 n} \right)^{3/2} \times \left[\exp \left\{ -\frac{3(x - x_s)^2}{4\ell^2 n} \right\} - \exp \left\{ -\frac{3(x + x_s)^2}{4\ell^2 n} \right\} \right] \times \exp \left\{ -\frac{3((y - y_s)^2 + (z - z_s)^2)}{4\ell^2 n} \right\}. \quad (4.12)$$

Для получения этой формулы мы воспользовались решением (1.49) уравнения (1.48) в неограниченной среде, применив метод изображений, чтобы удовлетворить нулевому граничному условию для I на границе среды $x = 0$.

Далее, подставив (4.12) в (4.11) и выполнив интегрирование в (4.9), получаем следующий результат:

$$P_{mn}(x_0, y_0) = \frac{9x_0^2 n^2}{4\pi\ell^2 m^2 (n - m)^2} \times \exp \left\{ -\frac{3x_0^2 n}{4\ell^2 m (n - m)} \right\} \times \exp \left\{ -\frac{3(y_0 - y_s)^2}{4\ell^2 m} - \frac{3(y_0 - y)^2}{4\ell^2 (n - m)} + \frac{3(y - y_s)^2}{4\ell^2 n} \right\}. \quad (4.13)$$

Заметим, что переход к случаю рассеивающих свет частиц конечного размера (порядка длины волны λ зондирующего излучения) может быть сделан путем замены длины свободного пробега фотона ℓ транспортной длиной свободного пробега ℓ^* во всех выписанных выше формулах. Теперь, однако, роль одного акта рассеяния в вышеприведенных рассуждениях будет играть более сложное событие, а именно, — несколько последовательных актов рассеяния, в результате которых направление распространения рассеянного излучения становится случайным (необходимое для этого число актов однократного рассеяния равно, очевидно, ℓ^*/ℓ). При этом рассматриваемая теоретическая модель будет верна только в случае $\ell^* > d$.

4.2.3 Возможность диффузионно-волновой спектроскопии в светоиндуцированных потоках

Предположим для упрощения анализа, что $y = y_s = 0$, т.е. что зондирующий пучок сфокусирован в начало координат, находящееся на передней стенке кюветы, и что временная автокорреляционная функция диффузно отраженного света измеряется в той же точке. Кроме того, мы положим $x_s = \ell^*$, считая, что падающий на среду лазерный пучок приводит к формированию изотропного источника излучения на расстоянии ℓ^* от границы среды. В этом случае выражение (4.13) упрощается и обладает следующими интересными особенностями.

Во-первых, $P_{mn}(x_0, y_0) = 0$ при $m = 0$ и $m = n$. При относительно небольших n ($n < n_0 = 3/2[(x_0/\ell^*)^2 + (y_0/\ell^*)^2]$) $P_{mn}(x_0, y_0)$ как функция n имеет колоколообразный вид, достигая максимума при $m = n/2$. Если, однако, $n > n_0$, то зависимость $P_{mn}(x_0, y_0)$ от n становится двугорбой: максимальные значения P_{mn} достигаются при $m_{1,2} = n/2[1 \mp (1 - n_0/n)^{1/2}]$, а при $m = n/2$ имеет место локальный минимум.

Таким образом, фотоны, имеющие относительно короткие траектории ($n < n_0$) имеют наибольшую вероятность испытать рассеяние на вовлеченной в поток частице в середине своей траектории ($m = n/2$). Эти фотоны рассеиваются в основном вблизи границы среды и могут достичь области потока только в том случае, если “распределят” предписанные им n элементарных шагов оптимальным образом: половина должна быть затрачена на путь от источника излучения до области потока, а другая половина — на обратный путь. Менее “рациональная” стратегия оказывается неудачной — вероятность того, что фотон достигнет области потока снижается.

В то же время, фотоны, имеющие длинные траектории ($n > n_0$), проникают, как правило, достаточно глубоко в среду (глубже, чем рас-

положена область потока), и для них наиболее вероятным становится рассеяние на ускоренных частицах либо ближе к началу пути ($m = m_1$), либо ближе к его концу ($m = m_2$).

Рассмотрим теперь зависимость $G_1(\tau)$ от τ при различных скоростях v светоиндуцированного потока. На рис. 4.2 представлены нормированные временные автокорреляционные функции $g_1(\tau) = G_1(\tau)/G_1(0)$, рассчитанные для $v = 0, 1, 10$, и 100 м/с. Для получения этого рисунка мы воспользовались формулами (4.3, 4.4, 4.5, 4.8, 4.10, 4.12, 4.13) и положили $\tau_0 = 10^{-4}$ с, что типично для водных суспензий полистироловых сфер субмикронного размера при нормальных условиях. Чтобы получить представление о порядке величины характерного времени τ_F , связанного с направленным потоком рассеивателей, положим $\lambda = 0.5$ мкм. Тогда τ_F будет меняться от 16 мкс при $v = 10^{-2}$ м/с до 1.6 нс при $v = 100$ м/с.

При $v = 0$ (нет потока) $g_1(\tau)$ убывает с ростом τ исключительно из-за броуновского движения взвешенных частиц. При наличии потока ($v > 0$) убывание $g_1(\tau)$ становится более быстрым. Как видно из рис. 4.2, чем больше v , тем быстрее убывает $g_1(\tau)$, а значит ее измерения могут быть использованы для диагностики светоиндуцированных потоков в случайно-неоднородных средах (например, для определения скоростей таких потоков).

Стоит отметить, что основной вклад в убывание корреляционной функции вносится все же не потоком рассеивателей, а их броуновским движением, интенсивность которого одинакова для всех кривых на рис. 4.2. Причина этого состоит в том, что во броуновское движение вовлечены все частицы среды, а в направленное светоиндуцированное — лишь их небольшая часть. Поэтому направленное движение оказывает влияние только на часть рассеянных фотонов, в то время, как броуновское — на все. Скорость убывания $g_1(\tau)$ оказывается чувствительной к ско-

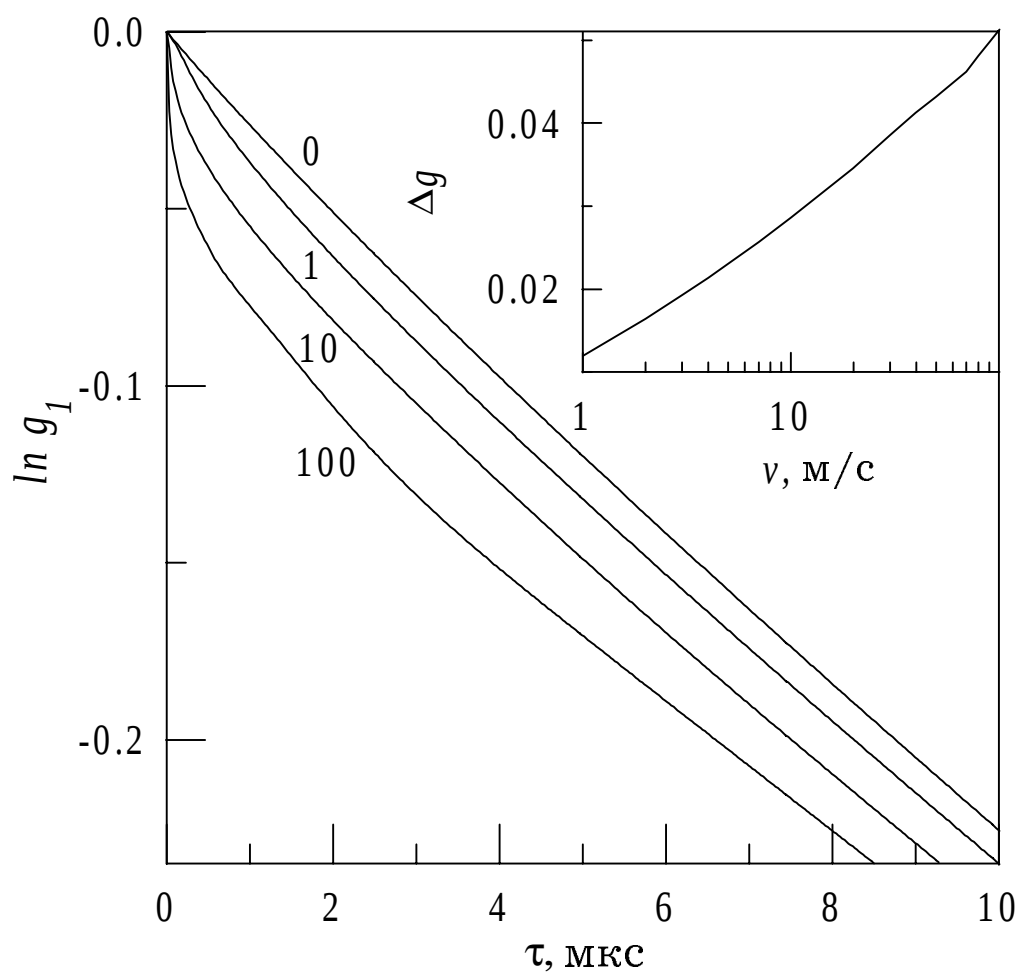


Рис. 4.2: Нормированная временная автокорреляционная функция диффузно отраженного излучения, рассчитанная при $x_0 = 5l^*$, $y_0 = 0$, $\tau_0 = 10^{-4}$ с. Различные кривые соответствуют скоростям потока $v = 0$ (нет потока), 1, 10 и 100 м/с. На вставке показано максимальное отклонение нормированной автокорреляционной функции от ее значения в отсутствие потока.

рости v потока при $\tau < \tau_F$ и даже при $\tau \sim \tau_F$. При больших τ , как видно из рис. 4.2, скорость убывания $g_1(\tau)$ определяется в основном броуновским движением рассеивателей.

На основе проведенного выше анализа представляется возможным предложить по крайней мере два различных способа определения характерной скорости светоиндуцированного потока на основе измеренных зависимостей $g_1(\tau)$. Во-первых, при малых τ , как видно из рис. 4.2, производная $dg_1/d\tau$ возрастает с ростом v . Поэтому анализируя поведение $g_1(\tau)$ при малых τ можно определять скорость потока. Однако, такой способ измерения v может оказаться трудно реализуемым при больших v , поэтому возможно также действовать подобно тому, как это было сделано в пп. 3.3, 3.4, вычисляя максимальное отклонение $g_1(\tau)$ в присутствие потока от ее значения в его отсутствие (см. (2.30)). Эта величина представлена на вставке рис. 4.2 как функция v . Видно, что Δg является почти линейной функцией $\ln v$.

4.3 Роль пондеромоторного действия света в задачах диффузионно-волновой спектроскопии

4.3.1 Постановка задачи

Пусть полупространство $z > 0$ заполнено концентрированной взвесью микрочастиц в жидкости (объемная плотность частиц $0.01 < \Phi < 0.1$). Будем характеризовать среду средней длиной свободного пробега фотона ℓ , транспортной длиной свободного пробега фотона ℓ^* , коэффициентом поглощения μ_a и динамической вязкостью η [84]

$$\eta = \eta_0 \left(1 + \frac{5}{2} \Phi \right), \quad (4.14)$$

где η_0 — вязкость жидкости. В отсутствие внешних воздействий будем считать частицы среды покоящимися, т.е. пренебрежем их броу-

новским движением. Пусть в точке $\mathbf{r}_0 = \{0,0,0\}$ на среду падает лазерный импульс, сфокусированный в область с поперечными размерами d (длина волны в жидкости λ , длительность τ_p , пиковая интенсивность I_0 , $\lambda < d < \ell^*$), направленный вдоль оси z (см. рис. 4.3). Как и в п. 4.2, будем считать, что τ_p много больше времени жизни фотона в среде. Если I_0 достаточно мало, то импульс претерпевает многократное рассеяние на частицах среды, часть его энергии поглощается (вызывая незначительный нагрев среды), а часть покидает среду, причем временная когерентность рассеянного излучения не ухудшается по сравнению с падающим на среду пучком.

Если, однако, I_0 становится достаточной для того, чтобы вызвать движение частиц среды, излучение претерпевает рассеяние уже не на покоящихся, а на движущихся частицах, что приводит к ухудшению временной когерентности рассеянного светового поля. Механизм ускорения частиц в поле лазерного импульса может быть различным [156–161]; на данном этапе анализа не имеет смысла его конкретизировать. Мы предполагаем, однако, что под действием лазерного излучения масса, форма, объем и другие параметры микрочастиц не меняются существенным образом на временах порядка времени жизни фотона в среде.

Определим характер движения частиц среды под действием лазерного излучения. Поскольку мы рассматриваем сильную фокусировку пучка света ($\lambda < d < \ell^*$), то точку падения пучка на среду можно приближенно рассматривать как источник частиц, вылетающих в направлении оси z . Вследствие гидродинамического взаимодействия эти частицы будут увлекать за собой соседние, что приведет к формированию сложного поля $\mathbf{v}(\mathbf{r})$ скоростей частиц в среде (формированию струи). Будем считать, что наличие у рассматриваемой нами среды границы при $z = 0$ незначительно сказывается на виде поля $\mathbf{v}(\mathbf{r})$ вдали

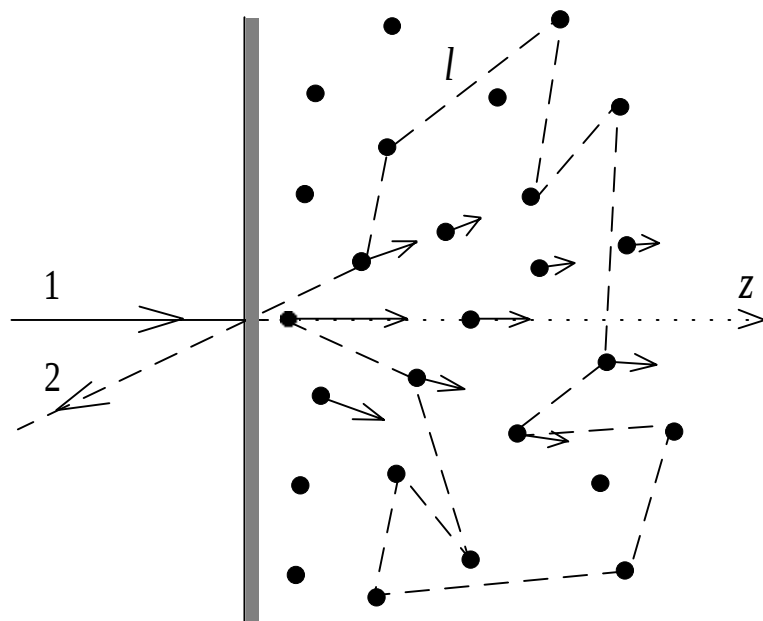


Рис. 4.3: Схема рассматриваемой экспериментальной ситуации. Сфокусированный в область размера d на границе среды лазерный пучок 1 вызывает формирование светоиндуцированной струи, которая приводит к потере когерентности многократно рассеянного в обратном направлении излучения 2.

от границы (при $z > \ell^*$). Чтобы найти $\mathbf{v}(\mathbf{r})$, рассмотрим уравнение движения вязкой суспензии, заполняющей все пространство, записанное в предположении ее несжимаемости [84]:

$$\frac{\partial}{\partial t} \text{rot} \mathbf{v} + (\mathbf{v} \cdot \nabla) \text{rot} \mathbf{v} - (\text{rot} \mathbf{v} \cdot \nabla) \mathbf{v} = \nu \Delta \text{rot} \mathbf{v}. \quad (4.15)$$

Здесь $\nu = \eta/\rho$ — кинематическая вязкость суспензии, а ρ — ее плотность. Это уравнение можно решить аналитически лишь в очень небольшом числе случаев, однако для описанной выше ситуации тонкой струи микрочастиц, бьющей из точки $\{0,0,0\}$ в направлении оси z (задача о затопленной струе, см. [84]), решение может быть найдено. В сферической системе координат для не слишком больших скоростей струи оно имеет вид [84]:

$$v_r = \frac{P}{4\pi\eta} \frac{\cos \theta}{r}, \quad v_\theta = -\frac{P}{8\pi\eta} \frac{\sin \theta}{r}, \quad v_\phi = 0, \quad (4.16)$$

где P — полный поток импульса в струе, равный в наших условиях импульсу, передаваемому лазерным излучением частицам среды в единицу времени. Линии тока, соответствующие выражениям (4.16), приведены на рис. 4.4.

4.3.2 Расчет временной корреляционной функции

Для расчета временной корреляции излучения, многократно рассеянного в полубесконечной случайно-неоднородной среде, где поле скоростей рассеивающих центров имеет вид (4.16), воспользуемся методом интегрирования по траекториям (см. п. 1.1.3.2). Сначала рассмотрим случай точечных рассеивателей (размер рассеивателя $a \ll \lambda$).

Для поля скоростей (4.16) расчет тензора напряжений (1.52) дает

$$\sigma_{rr} = -\frac{P \cos \theta}{2\pi r^2}, \quad \sigma_{\phi\phi} = \sigma_{\theta\theta} = \frac{P \cos \theta}{4\pi r^2}, \quad \sigma_{r\theta} = \sigma_{r\phi} = \sigma_{\theta\phi} = 0. \quad (4.17)$$

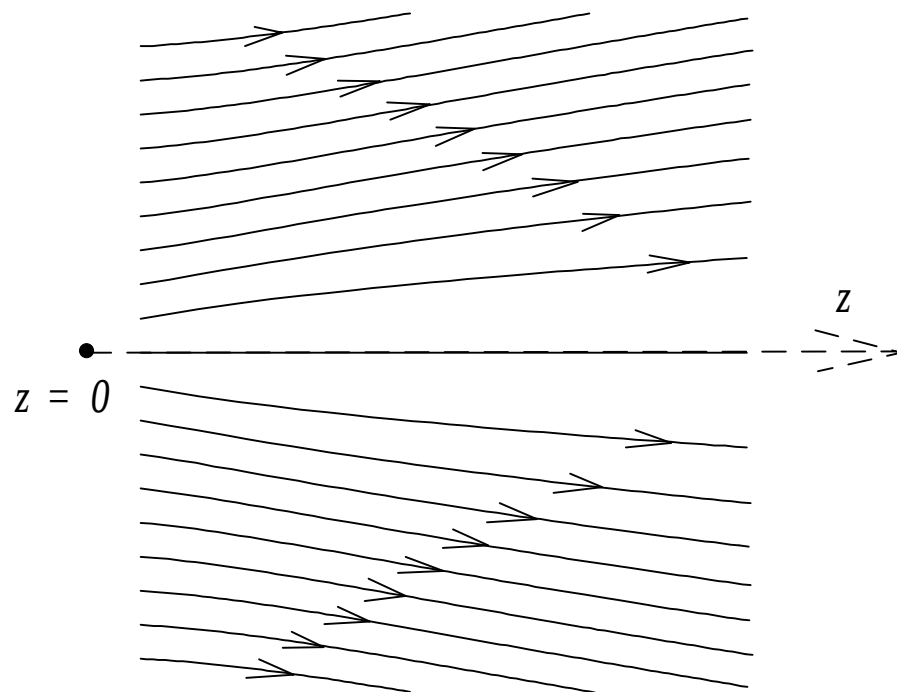


Рис. 4.4: Картина линий тока, соответствующая задаче о затопленной струе [84].

Чтобы найти $G_1(\tau)$, теперь необходимо вычислить интеграл (1.54)

$$\xi(n) = \frac{1}{\eta^2} \int \left(\sum_{i \neq k} \sigma_{ik}^2(\mathbf{r}_1) \right) \rho_n(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_1, \mathbf{r}) d^3 \mathbf{r}_1, \quad (4.18)$$

подставить его в выражение (1.53)

$$\langle \Delta \varphi_n^2(\tau) \rangle = \frac{2}{15} k^2 \ell^2 \tau^2 n \xi(n), \quad (4.19)$$

а затем рассчитать корреляционную функцию по формуле

$$G_1(\tau) = \sum_{n=1}^{\infty} I(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}, n) \exp \left\{ -\frac{1}{2} \langle \Delta \varphi_n^2(\tau) \rangle \right\}, \quad (4.20)$$

где $I(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}, n)$ — функция Грина для рассматриваемой геометрии задачи (т.е. средняя интенсивность излучения в точке $\mathbf{r}$, создаваемая точечным источником когерентного излучения, расположенным в точке $\mathbf{r}_0$, соответствующая n -кратно рассеянному излучению).

В формуле (4.18) интегрирование производится по всему объему случайно-неоднородной среды; $\rho_n(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_1, \mathbf{r})$ — это доля n -кратно рассеянных фотонов, проходящих от источника излучения в точке $\mathbf{r}_0$ к точке $\mathbf{r}$ через точку $\mathbf{r}_1$. Для определенности будем считать, что в рассматриваемом нами случае рассеянный свет регистрируется в непосредственной близости от точки падения лазерного пучка на границу среды. Тогда можно приближенно положить $\mathbf{r} \simeq \mathbf{r}_0 = \{0, 0, 0\}$ и воспользоваться выражением для $\rho_n(\mathbf{r}_1) = \rho_n(0, \mathbf{r}_1, 0)$, полученным в работе [80] (см. также п. 1.1.3.2) в диффузионном приближении:

$$\rho_n(\mathbf{r}_1) = \frac{3}{2\pi \ell^2 n r_1} \exp \left\{ -\frac{3r_1^2}{\ell^2 n} \right\}. \quad (4.21)$$

Подставляя (4.17, 4.21) в (4.18) и распространяя интегрирование в (4.18) на область $r_1 > \ell$, где рассеяние света хорошо описывается в диффузионном приближении, из выражения (4.19) находим

$$\langle \Delta \varphi_n^2(\tau) \rangle = \left(\frac{\tau}{\tau_c} \right)^2 f(n), \quad (4.22)$$

где

$$\tau_c = \sqrt{10} \frac{\eta \ell \lambda}{P} \quad (4.23)$$

— характерное время когерентности, связанное с возникновением светоиндуцированной струи;

$$f(n) = \exp \left\{ -\frac{3}{n} \right\} + \frac{3}{n} \text{Ei} \left\{ -\frac{3}{n} \right\}, \quad (4.24)$$

$\text{Ei}(x)$ — интегральная показательная функция [162]. Функция $f(n)$, определяющая относительную роль процессов рассеяния разных порядков, оказалась независимой от параметров задачи и определяется только порядком рассеяния n .

Проанализируем зависимость $f(n)$ (см. рис. 4.5). Используя асимптотические выражения для функций, входящих в выражение (4.24), получаем

$$f(n) \simeq \frac{n}{3} \exp \left\{ -\frac{3}{n} \right\}, \quad n \rightarrow 0, \quad (4.25)$$

$$f(n) \simeq 1 - \frac{3}{n} \ln n, \quad n \rightarrow \infty. \quad (4.26)$$

Таким образом, $f(n)$ обращается в нуль при $n = 0$ и стремится к постоянному пределу, равному единице, при $n \rightarrow \infty$. Поэтому τ_c является характерным временем когерентности излучения, соответствующим, строго говоря, рассеянию бесконечно высокой кратности. Процессам рассеяния конечной кратности соответствуют времена когерентности, большие чем τ_c . Как видно из рис. 4.5, $f(n)$ монотонно возрастает с ростом n . Это означает, что фотоны, рассеявшиеся большее число раз, вносят больший вклад в декорреляцию излучения.

Используя выражение для функции Грина $I(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}, n)$, полученное в диффузионном приближении [92] (см. также (4.12)), и считая, что точка падения лазерного излучения на среду $\mathbf{r}_0$ и точка $\mathbf{r}$, в которой производятся измерения временной автокорреляционной функции, находятся

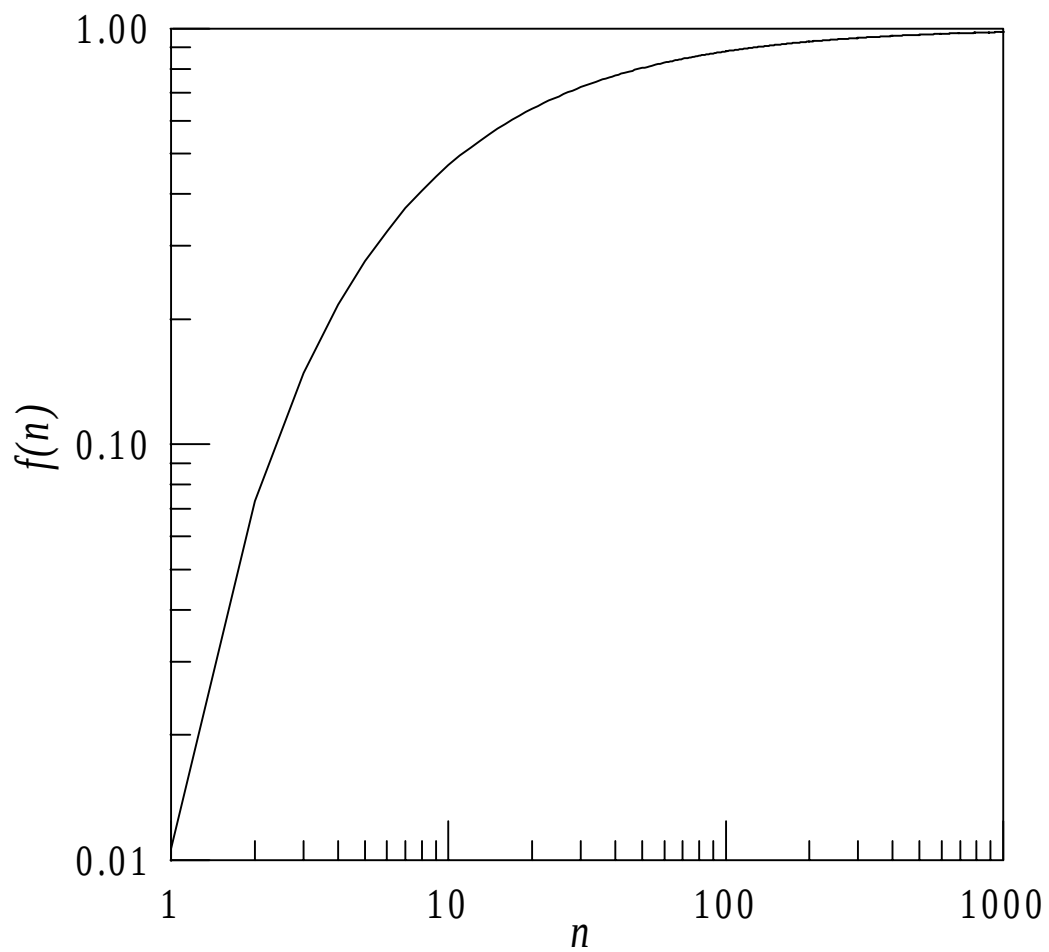


Рис. 4.5: Фактор $f(n)$, определяющий дисперсию разности фаз фотонов, рассеявшихся на одних и тех же частицах среды в моменты времени, разделенные промежутком τ (см. (4.24)).

на расстоянии порядка ℓ , получаем окончательное выражение для $G_1(\tau)$:

$$G_1(\tau) \propto \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{n^{5/2}} \exp \left\{ -\frac{1}{2} \langle \Delta \varphi_n^2(\tau) \rangle - \mu_a \ell n \right\}, \quad (4.27)$$

где $\langle \Delta \varphi_n^2(\tau) \rangle$ дается формулой (4.22). Как отмечалось выше, проведенный анализ справедлив для случая, когда размер рассеивателей $a \ll \lambda$. Если $a \sim \lambda$ (или $a > \lambda$), то анализ существенно усложняется. Однако, как указывалось в п. 1.1.3.2, соответствующие этому случаю приближенные результаты могут быть получены путем замены ℓ на ℓ^* во всех формулах настоящего раздела.

4.3.3 Обсуждение результатов

На рис. 4.6 представлены нормированные временные автокорреляционные функции рассеянного назад света $G_1(\tau)/G_1(0)$ для различных значений произведения $\mu_a \ell$ (для определенности будем считать, что ℓ одинакова для всех трех кривых, а коэффициент поглощения μ_a различен). Отметим, что коэффициент поглощения μ_a оказывает относительно малое влияние на нормированную корреляционную функцию рассеянного света. Влияние поглощения будет проявляться в основном через увеличение P (а значит уменьшение τ_c , см. (4.23)) с ростом μ_a . Различие между кривыми, соответствующими различным значениям коэффициента поглощения, обусловлено тем, что при малых μ_a ($\mu_a \ll \ell^{-1}$) достаточно большая часть рассеянного назад света возникает в результате процессов рассеяния высоких порядков, которые вносят существенный вклад в декорреляцию излучения. При относительно больших μ_a ($\mu_a \sim \ell^{-1}$), как видно из (4.27), большим n соответствуют пренебрежимо малые интенсивности (из-за наличия слагаемого $-\mu_a \ell n$ в аргументе экспоненты), поэтому основная часть рассеянного излучения возникает как результат процессов рассеяния низких порядков. Несмотря на то, что этот случай не совсем корректно описывается в использованном нами диф-

фузионном приближении, формула (4.27) по-прежнему дает физически понятный результат: корреляционная функция теперь спадает не так быстро, как при малых μ_a , поскольку фотоны, претерпевшие меньшее число актов рассеяния, декоррелированы слабее.

Отметим, что при $\tau/\tau_c \gg 1$ кривые, соответствующие различным μ_a , становятся параллельными. Это связано с тем, что при больших τ наибольшее влияние на временную автокорреляционную функцию рассеянного излучения оказывают фотоны, рассеявшиеся малое число раз, и вследствие этого почти “не чувствующие” наличия малого поглощения света в среде.

Из рис. 4.6 видно, что время когерентности рассеянного излучения оказывается почти на порядок больше, чем τ_c . Это связано с тем, что, как обсуждалось выше, τ_c является временем когерентности, соответствующим рассеянию бесконечно большой кратности, а в соответствии с формулой (4.27) временная автокорреляционная функция формируется как сумма вкладов процессов рассеяния различных порядков n . Вклад процессов рассеяния порядка n в отсутствие поглощения пропорционален $n^{-5/2}$ (см. (4.27)), поэтому основную роль в сумме (4.27) играют члены, соответствующие небольшим n . Для этих слагаемых характерное время когерентности может заметно превышать τ_c за счет того, что фактор $f(n)$ оказывается значительно меньше единицы (см. (4.22) и рис. 4.5).

Необходимо отметить различный вид зависимости $\langle \Delta\varphi_n^2(\tau) \rangle$ от τ для броуновского движения рассеивателей ($\langle \Delta\varphi_n^{(B)2}(\tau) \rangle \propto \tau$) и светоиндуцированной струи ($\langle \Delta\varphi_n^{(F)2}(\tau) \rangle \propto \tau^2$). Эффекты лазерного ускорения, таким образом, качественно меняют вид временной корреляционной функции диффузно отраженного излучения. Кроме того, определенный интерес представляет выражение для характерного времени когерентности τ_c (4.23). Это выражение представляет из себя комбинацию

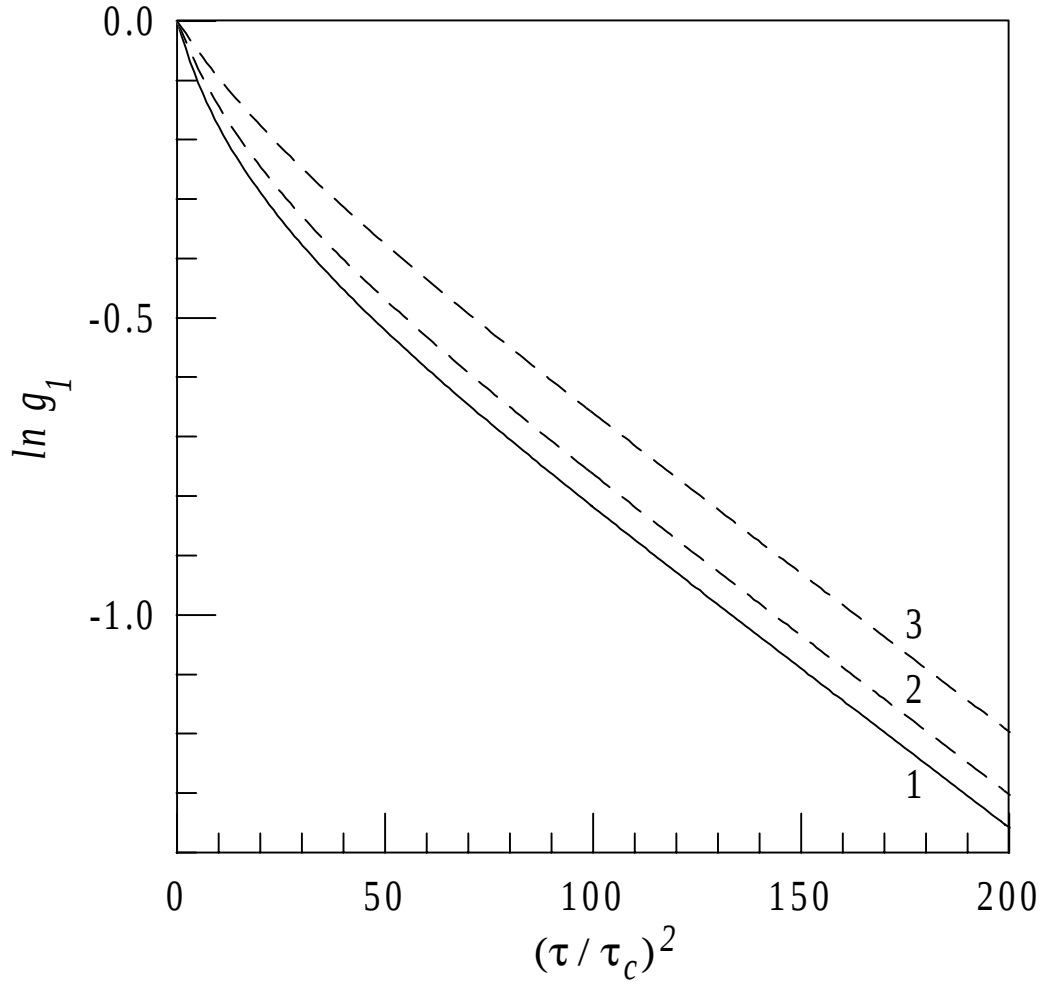


Рис. 4.6: Логарифм нормированной временной автокорреляционной функции $g_1(\tau) = G_1(\tau)/G_1(0)$ как функция квадрата отношения τ/τ_c для трех различных значений коэффициента поглощения μ_a при фиксированном импульсе P , передаваемом от электромагнитного поля к частицам среды в единицу времени: $\mu_a = 0$ (1), $\mu_a = 0.1 \ell^{-1}$ (2), $\mu_a = 0.5 \ell^{-1}$ (3).

гидродинамического (η) и оптических (ℓ , λ) параметров с величиной, описывающей эффективность передачи импульса от электромагнитного поля к среде (P) и могло быть получено (с точностью до численного множителя) из соображений размерности. Отметим, что, по крайней мере при низких интенсивностях, броуновское блуждание и светоиндуцированное движение рассеивателей можно считать независимыми. Тогда выражение для $\langle \Delta \varphi_n^2(\tau) \rangle$ с учетом обоих типов движения можно записать в виде суммы двух членов:

$$\langle \Delta \varphi_n^2(\tau) \rangle = \langle \Delta \varphi_n^{(B)2}(\tau) \rangle + \langle \Delta \varphi_n^{(F)2}(\tau) \rangle. \quad (4.28)$$

Оценим условия, при которых пондеромоторное действие света существенно при расчете временной когерентности рассеянного света. Для этого, очевидно, необходимо конкретизировать основной механизм ускорения взвешенных частиц в поле лазерного излучения. Например, для полистироловых шариков субмикронного размера, взвешенных в воде, основную роль будет играть давление света, т.к. поглощение света в полистироле мало, а все другие механизмы ускорения как раз связаны с поглощением света (см. п. 4.1). Поэтому $P \simeq W/c$, где W — мощность излучения, c — скорость света в среде. Второе слагаемое в формуле (4.28) превысит первое, если мощность излучения будет больше некоторого критического значения $W_c(\tau, n)$:

$$W > W_c(\tau, n) \simeq 4c\ell \sqrt{\frac{5\pi\eta k_B T}{3a} \times \frac{n}{\tau f(n)}}, \quad (4.29)$$

где k_B — постоянная Больцмана, а T — температура суспензии. При выводе формулы (4.29) мы воспользовались выражением для коэффициента диффузии сферических частиц в суспензии: $D_B = k_B T / (6\pi\eta a)$.

Как видно из выражения (4.29), критическая мощность зависит и от порядка рассеяния n , и от временной задержки τ . Анализ показывает, что отношение $n/f(n)$ минимально при $n = 5$, поэтому максималь-

ное влияние эффекты лазерного ускорения будут оказывать на фотоны, рассеявшиеся небольшое число раз (порядка пяти). Как функция τ , W_c является монотонно убывающей.

Чтобы провести оценку, положим $a \sim 0.1$ мкм и зададим объемную концентрацию частиц равной 1%; тогда $\ell^* \sim 200$ мкм.¹ Для воды $\eta \sim 10^{-3}$ Па·с; длину волны излучения λ примем равной 0.5 мкм. В результате, при $n = 5$ критическая мощность W_c будет меняться от 15 Вт при $\tau = 1$ мкс до 0.5 Вт при $\tau = 1$ мс. Как видно, эти критические значения мощности излучения достаточно малы для того, чтобы описанный в настоящей работе эффект можно было наблюдать экспериментально. Тем не менее, до сих пор многократное рассеяние света на индуцированной им же самим струе микрочастиц не наблюдалось. Причина этого, по-видимому, заключается в том, что обычно эксперименты проводятся при мощности лазера, не превышающей 1 Вт, и в диапазоне временных задержек $\tau < 1$ мс.

Выводы к главе IV

1. Методика диффузионно-волновой спектроскопии может применяться для изучения индуцированных мощным лазерным излучением потоков микрочастиц в концентрированных суспензиях.
2. При мощности сильно сфокусированного лазерного пучка, превышающей $1 \div 10$ Вт, эффекты лазерного ускорения микрочастиц могут оказывать заметное влияние на временную автокорреляционную функцию света, диффузно отраженного от суспензии частиц микронного или субмикронного размера.

¹Расчет проводился с использованием стандартных формул теории Ми [76].