

Вынужденное рассеяние лазерного излучения в водной суспензии стеклянных микросфер

А. Ф. Бункин, М. А. Давыдов¹⁾, А. Н. Федоров, О. В. Уваров

Институт общей физики им. А. М. Прохорова РАН, 119991 Москва, Россия

Поступила в редакцию 19 сентября 2022 г.

После переработки 27 сентября 2022 г.

Принята к публикации 27 сентября 2022 г.

В водной суспензии полых стеклянных микросфер зафиксировано возбуждение сигнала вынужденного рассеяния лазерного излучения на нескольких эквидистантных частотах. Также обнаружена частотная асимметрия рассеяния и отсутствие вынужденного рассеяния Мандельштама–Бриллюэна, сопровождающего нелинейные процессы в конденсированных средах при возбуждении узкополосным лазерным импульсом длительностью порядка десятков наносекунд. Наблюдавшиеся особенности обусловлены, на наш взгляд, вынужденным рассеянием лазерного излучения на модах шепчущей галереи стеклянных микросфер.

DOI: 10.31857/S1234567822210054, EDN: lgwzbi

Введение. Природные жидкости, содержащие смесь наноразмерных частиц, представляют собой актуальный объект исследования методами нелинейной оптики и когерентной спектроскопии. Примером таких сред являются практически все жидкости, содержащиеся в биологических объектах, причем нано- и микро-размерные частицы в этом случае могут представлять собой полые объекты сферической или квазисферической формы. Есть основания полагать, что в этом случае взаимодействие лазерного излучения с такими объектами, содержащимися в жидкости в виде взвеси, будет приводить к рассеянию на модах шепчущей галереи (МШГ) [1] дисперсных частиц и сопровождаться известными явлениями [2–5], наблюдаемыми при взаимодействии лазерного излучения с микрорезонаторами. Модельной средой для изучения подобных явлений может служить жидкость, содержащая полые сферы размерами от единиц до нескольких десятков микрон. Целью данной работы являлось изучение особенностей вынужденного рассеяния лазерного излучения в подобной модельной среде.

Эксперимент. В качестве объекта исследования была использована водная суспензия микросфер, изготовленных из боросиликатного стекла. Образцы, полученные нами в московском Институте стекла, представляли собой порошок, состоящий из полых стеклянных сфер наружным диаметром $\sim 15\text{--}160$ мкм, плотностью $\sim 0.24\text{--}0.40$ г/см³ [6] (рис. 1²⁾).

¹⁾e-mail: sbs_michail@mail.ru

²⁾Фотография микросфер получена с использованием оптического микроскопа Karl Zeiss в центре коллективного пользования ИОФ РАН.

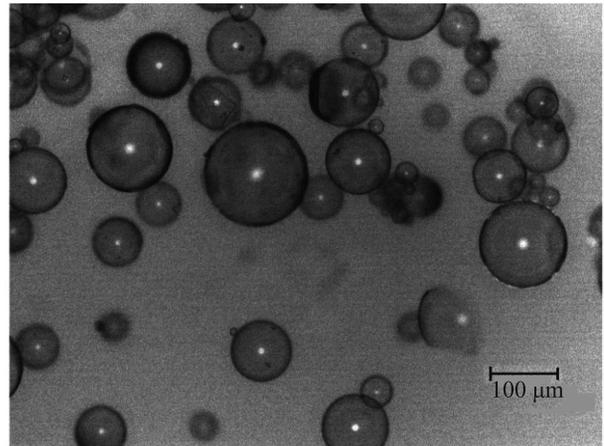


Рис. 1. Микрофотография образца полых стеклянных микросфер, полученная с помощью микроскопа Karl Zeiss (яркая точка в центрах сфер – точка контакта поверхности сферы с предметным стеклом)

Внутри микросфер находился остаточный угарный газ. Данные образцы были залиты бидистиллированной водой и тщательно перемешаны с помощью ультразвуковой мешалки ВАКУ мощностью 50 Вт. Полученная суспензия была залита в кварцевую кювету рабочей длиной ~ 20 мм. Кювета помещена на установку, описанную ранее [7], состоящую из YAG:Nd³⁺ лазера (параметры излучения: длина волны излучения $\lambda = 532$ нм, ТЕМ₀₀, ширина линии излучения $\delta\nu \sim 0.005$ см⁻¹, длительность импульса излучения $t_p \sim 10$ нс, энергия в импульсе E_p до 30 мДж, нестабильность по энергии импульса $\sim 5\text{--}7\%$) и системы регистрации спектров. Интерферометры (область дисперсии 2.5 см⁻¹ = 75 ГГц) системы ре-

гистрации были расположены на расстоянии более 100 см от кюветы с суспензией, перед интерферометрами были установлены диафрагмы диаметром ~ 1 см. Суспензия в кювете была подвергнута воздействию сфокусированного импульсного лазерного излучения, при этом энергию излучения последовательно увеличивали от ~ 1 до ~ 30 мДж. Лазерное излучение поступало в кювету на двух разных уровнях (рис. 2). Геометрия установки была одинакова для всего цикла измерений. Все измерения проводили при комнатной температуре.

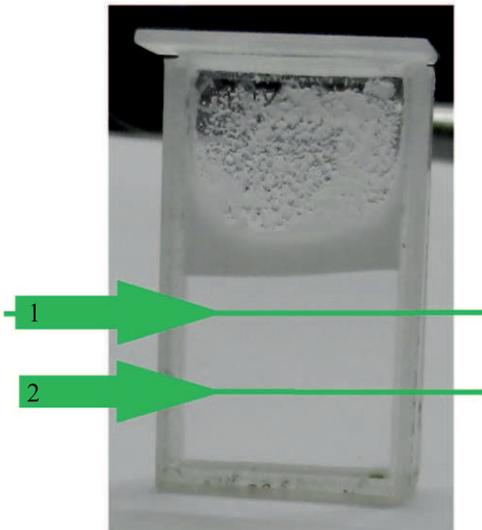


Рис. 2. (Цветной онлайн) Кварцевая кювета, заполненная суспензией микросфер в бидистиллированной воде (фотография сделана по окончании проведения измерений – микросферы полностью всплыли вверх и находятся выше условной стрелки “1”). Стрелками указаны направления и уровни, по которым в кювету поступало возбуждающее лазерное излучение

Результаты и обсуждение. Выявлены следующие особенности сигнала рассеяния:

1. Спектр состоит из линий, сравнимых по ширине и направленности с линией лазера.
2. Отсутствует сигнал вынужденного рассеяния Мандельштама–Бриллюэна (ВРМБ) воды.
3. Сигнал рассеяния имеет выраженную направленность и частотную асимметрию.
4. Вблизи лазерной линии присутствует линия с антистоксовым сдвигом частоты. Между парными линиями рассеяния имеет место такой же по величине сдвиг частоты, что у антистоксова сигнала вблизи лазерной линии (рис. 3с).

5. Различия в спектрах, полученные с уровней 1 и 2 (обусловлены, по-видимому, различием концентраций микросфер на этих уровнях в суспензии).

Результаты измерений сведены в табл. 1. Наи-

больший интерес представляют спектры, полученные при возбуждении рассеяния на уровне “1” в кювете. Соответствующие образцы интерферограмм приведены на рис. 3а–d.

Спектры наблюдались при энергиях в импульсе от 15 мДж и выше. Регистрируемое рассеянное излучение имело малую расходимость и интенсивность, сравнимую с интенсивностью падающей лазерной волны (рис. 3). Поляризацию рассеянного излучения в настоящей работе не изучали. Отсутствие сигнала ВРМБ связано, по-видимому, со значительной концентрацией полых микросфер (рис. 1) в области лазерного пучка, что не позволяло развиваться данному виду рассеяния. Наблюдавшийся многокомпонентный спектр (рис. 3) обусловлен, на наш взгляд, накачкой стеклянных сфер (микрорезонаторов) внешним лазерным излучением – так называемым рассеянием на модах шепчущей галереи [1, 8]. Оценим добротность этих микрорезонаторов. В тонкостенных стеклянных сферах диаметром порядка десятков – сотен микрометров, могут возникать акустические моды шепчущей галереи (далее МШГ), которые для гиперзвуковых частот лежат в диапазоне нескольких гигагерц. Используем для расчетов собственных частот МШГ ν_k оценочную формулу [8]:

$$\nu_k \cong k \frac{c}{2\pi r},$$

где k – азимутальное квантовое число, c – скорость звука в материале оболочки сферы, в стекле, r – радиус сферы. Вообще говоря, пространственное распределение МШГ связано, помимо азимутального квантового числа, еще с двумя квантовыми числами m , n , но они никоим образом на значение частоты не влияют, так как мода является вырожденной по m , n [8].

Как известно, добротность Q колебательной моды зависит от ее времени жизни. В приближении эйконала, можно предположить, что время жизни будет порядка времени τ распространения волны на длине замкнутого контура $l = 2\pi r$. Тогда для добротности можно записать:

$$Q = \pi N \cong \pi \frac{\tau}{T} = \pi \frac{2\pi r}{\lambda} \cong \pi k,$$

где N – число колебаний за время релаксации, T – период колебаний. Откуда видно, что добротность Q будет расти с увеличением отношения радиуса сферы r к длине волны λ , т.е. пропорционально азимутальному числу k . Может показаться, что при увеличении радиуса сферы добротность будет безгранично возрастать. На самом деле это не так. В реальных

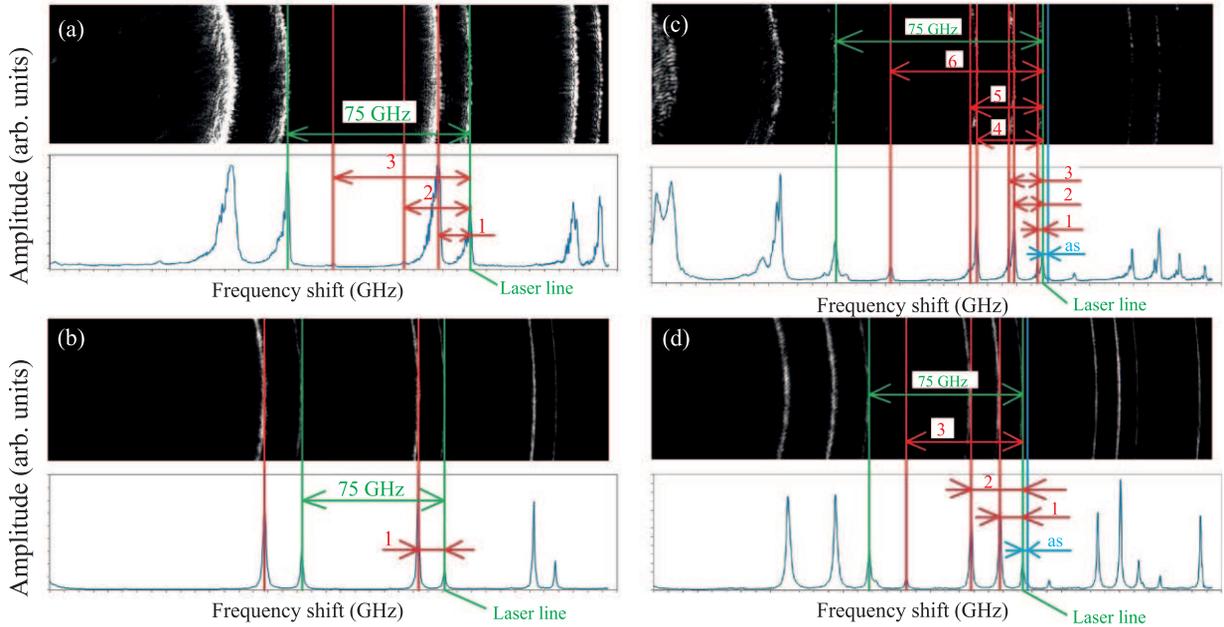


Рис. 3. (Цветной онлайн) (а) – Интерферограмма сигнала рассеяния “вперед”. 1 – линия со стоксовым сдвигом $\sim 0.53 \text{ см}^{-1}$; 2 – линия со стоксовым сдвигом $\sim 1.034 \text{ см}^{-1}$; 3 – линия со стоксовым сдвигом $\sim 1.97 \text{ см}^{-1}$ (или с антистоксовым $\sim 0.53 \text{ см}^{-1}$). Здесь и далее: Laser line – линия излучения лазера, $75 \text{ ГГц} = 2.5 \text{ см}^{-1}$ – область дисперсии интерферометра. (б) – Интерферограмма сигнала рассеяния “назад”. 1 – линия со стоксовым сдвигом $\sim 0.52 \text{ см}^{-1}$. (с) – Интерферограмма сигнала рассеяния “вперед”. as – линия с антистоксовым сдвигом $\sim 0.08\text{--}0.09 \text{ см}^{-1}$; 1 – линия со стоксовым сдвигом $\sim 0.08\text{--}0.09 \text{ см}^{-1}$; 2 – линия со стоксовым сдвигом $\sim 0.44 \text{ см}^{-1}$; 3 – линия со стоксовым сдвигом $\sim 0.52 \text{ см}^{-1}$; 4 – линия со стоксовым сдвигом $\sim 0.98 \text{ см}^{-1}$; 5 – линия со стоксовым сдвигом $\sim 1.06 \text{ см}^{-1}$; 6 – линия со стоксовым сдвигом $\sim 1.97 \text{ см}^{-1}$ (или с антистоксовым $\sim 0.53 \text{ см}^{-1}$). (д) – Интерферограмма сигнала рассеяния “назад”. as – линия с антистоксовым сдвигом $\sim 0.08\text{--}0.09 \text{ см}^{-1}$; 1 – линия со стоксовым сдвигом $\sim 0.44 \text{ см}^{-1}$; 2 – линия со стоксовым сдвигом $\sim 0.977 \text{ см}^{-1}$; 3 – линия со стоксовым сдвигом $\sim 1.97 \text{ см}^{-1}$ (или с антистоксовым $\sim 0.53 \text{ см}^{-1}$)

Таблица 1. Результаты измерений спектров вынужденного рассеяния

| Уровень в кювете (в соответствии с рис. 2) | Энергия лазерного импульса на входе в кювету, мДж | Сдвиги частоты “вперед”, см^{-1} (ГГц) | Сдвиги частоты “назад”, см^{-1} (ГГц) | Примечание |
|--|---|---|--|-------------------------------|
| Уровень 1 | 15 | s-0.53 (15.9) 1.034 (31.02) 1.97 (59.1) | s-0.52 (15.6) | рис. 3а |
| Уровень 1 | 25 | as-0.08–0.09 (2.4–2.7) s-0.44 (13.2) 0.52 (15.6) 0.98 (29.4) 1.06 (31.8) 1.97 (59.1) | as-0.08–0.09 (2.4–2.7) s-0.44 (13.2) 0.977 (29.4) 1.97 (59.1) | рис. 3б |
| Уровень 2 | 15 | s-0.08 (2.4) | – | “назад” – только линия лазера |
| Уровень 2 | 25 | s-0.44 (13.2) | s-0.43 (12.9) | – |

as – антистоксова линия; s – стоксова линия.

системах рост добротности будет ограничен шероховатостью поверхности сферы, а также дефектами и неоднородностями среды, в которой распространяется акустическая волна. Типичное значение доброт-

ности МШГ, наблюдаемое в экспериментах [1, 8], порядка $Q \cong 1 \cdot 10^3$. В наблюдаемых спектрах наиболее вероятно появление мод с высоким значением добротности Q , т.е. из области существования МШГ, а

следовательно, и с большим азимутальным числом k . По экспериментальным данным можно определить значения азимутального квантового числа для каждой зарегистрированной частоты. Оценим для одной из зарегистрированных мод – 2.4 ГГц. Положим, что ей соответствует минимальный радиус исследуемых сфер – 15 мкм. Тогда:

$$k = \frac{2\pi r}{c} \nu \approx 90.$$

Откуда добротность данной колебательной моды:

$$Q \cong \pi k \approx 300,$$

что по порядку величины соответствует значению добротности микрорезонаторов [2–5].

Таким образом, впервые получены спектры вынужденного рассеяния в жидкой микродисперсной среде, моделирующей реальный биологический объект. Обнаружено, что вид спектра вынужденного рассеяния существенно зависит от концентрации полых микросфер, при этом добротность наблюдаемых акустических мод достигает величины $Q \sim 300$. Решение обратной спектральной задачи, т.е. определение механических параметров микродисперсных сфер из наблюдаемых спектров, что представляется актуальным для практических приложений, пока осуществить не удалось. Это является предметом дальнейших исследований.

Авторы считают своим долгом поблагодарить А. М. Юркина, директора ООО “Кристаллы Сибири”, за помощь в создании экспериментальной установки.

Работа была поддержана грантом Российского научного фонда # 22-22-00153.

1. М. Л. Городецкий, *Оптические микрорезонаторы с гигантской добротностью*, Физматлит, М. (2011), 416 с.
2. Y. Zhang, L. Wang, Zh. Cheng, and H.K. Tsang, *Appl. Phys. Lett.* **111**, 041104 (2017); doi.org/10.1063/1.4996367.
3. J. Shi, H. Wu, J. Liu, Sh. Li, and X. He, www.nature.com/scientific-reports; published: 15 July 2015, DOI: 10.1038/srep11964.
4. М. В. Архипенко, А. Ф. Бункин, М. А. Давыдов, О. А. Карпова, В. Б. Ошурко, С. М. Першин, А. Н. Федоров, *Краткие сообщения по физике* **11**, 8 (2018); DOI:10.3103/S1068335618110027.
5. N. V. Tcherniega, S. M. Pershin, A. F. Bunkin, E. K. Donchenko, O. V. Karpova, A. D. Kudryavtseva, V. N. Lednev, T. V. Mironova, M. A. Shevchenko, M. A. Stokov, and K. I. Zemskov, *Laser Phys. Lett.* **15**, 095603 (2018); doi.org/10.1088/1612-202X/aad28d.
6. А. Н. Трофимов, Л. В. Плешков, А. В. Байков, И. В. Стогова, *Пластические массы* **11–12**, 15 (2020); DOI: 10.35164/0554-2901-2020-11-12-15-19.
7. А. Ф. Бункин, М. А. Давыдов, В. Н. Леднев, С. М. Першин, Е. А. Трифонова, А. Н. Федоров, *Краткие сообщения по физике* **6**, 37 (2018); DOI:10.3103/S1068335618060052.
8. G. Bahl, X. Fan, and T. Carmon, *New J. Phys.* **14**, 115026 (2012); doi:10.1088/1367-2630/14/11/115026.