

С.Е. Скипетров, М.А. Казарян

## Диффузионно-волновая спектроскопия светоиндуцированных потоков

Физический институт им. П.Н. Лебедева РАН, г. Москва  
Московский государственный университет им. М.В. Ломоносова

Поступила в редакцию 11.03.2001 г.

Рассмотрено динамическое многократное рассеяние лазерного излучения в концентрированной суспензии частиц микронного или субмикронного размера с учетом ускорения последних в поле другого (ускоряющего) лазерного пучка или зондирующего излучения. Показано, что в обоих случаях методы оптической корреляционной спектроскопии позволяют оценить скорость светоиндуцированного движения частиц путем анализа временной автокорреляционной функции многократно рассеянного излучения. Предложен метод измерения характерных скоростей светоиндуцированных потоков микро-частиц, основанный на принципах диффузионно-волновой спектроскопии.

### Введение

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 (см., например, работы [1–6]).

В данной статье показано, что изучение светоиндуцированных потоков частиц в концентрированных суспензиях может проводиться с использованием методов так называемой диффузионно-волновой спектроскопии (ДВС), которая является широко используемой в настоящее время методикой изучения динамики мутных многократно рассеивающих свет сред (таких как коллоидные суспензии, гели, пены, эмульсии, биологические среды и т.п.; см. работы [7–14] и обзоры [15–17]). Здесь приведены только основные этапы вычислений и обсуждаются наиболее важные результаты. Читатель может найти интересующие его детали в диссертации [18], а также в других наших работах [19–29].

### 1. Эффекты лазерного ускорения микрочастиц

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

- силы светового давления  $F_p$ ,
- градиентной силы  $F_\nabla$ ,
- конвекционного увлечения,
- радиометрического давления,
- светореактивного давления.

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

$$F_p \approx \frac{2}{3} \alpha^2 k^4 E^2 \hat{n}, \quad (1)$$

$$F_\nabla \approx \alpha \nabla \langle E^2 \rangle, \quad (2)$$

где  $\alpha$  – поляризуемость частицы;  $E$  – напряженность электрического поля в световой волне;  $k = 2\pi/\lambda$ ;  $\hat{n}$  – единич-

ный вектор, параллельный направлению распространения световой волны. Для диэлектрической частицы с проницаемостью  $\epsilon$ , взвешенной в среде с проницаемостью  $\epsilon_0$ ,  $\alpha \approx a^3 (\epsilon - \epsilon_0)/(\epsilon + 2\epsilon_0)$ .

В отличие от сил, определяемых выражениями (1), (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 нагрева 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 обычно падает на среду с определенной стороны, 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.

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 [3]). Далее мы ограничимся случаем, когда оптические характеристики среды и параметры рассеивающих свет частиц не меняются существенным образом под действием лазерного излучения.

### 2. Диагностика светоиндуцированного движения частиц в концентрированных суспензиях методами ДВС

Рассмотрим кювету, заполненную концентрированной суспензией частиц микронного или субмикронного размера в жидкости (рис. 1).

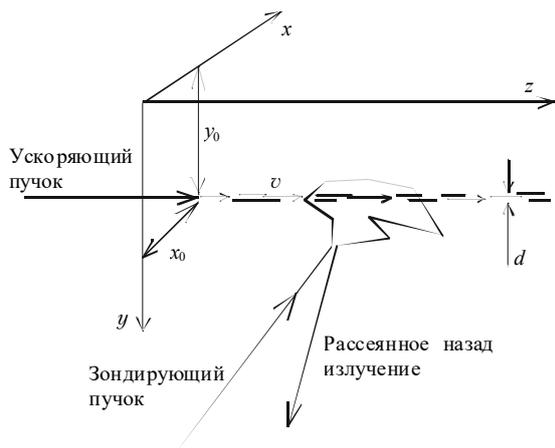


Рис. 1. Схема предлагаемого эксперимента

Под действием достаточно мощного лазерного пучка (длина волны  $\lambda_0$ , излучение может быть как непрерывным, так и импульсно-периодическим), сфокусированного на левую стенку кюветы, частицы ускоряются слева направо вдоль оси  $z$ , как показано на рис. 1. Зондирующий пучок фокусируется на переднюю стенку кюветы. Многократно рассеянное излучение, покидающее кювету, регистрируется детектором. Пусть размер кюветы в любом направлении много больше транспортной длины свободного пробега фотона в среде  $\lambda^*$ .

Будем считать, что ускоренные лазерным излучением частицы движутся в пределах достаточно узкой цилиндрической области диаметра  $d < \lambda^*$ , положение которой задается координатами  $x_0$  и  $y_0$ . Такой режим ускорения микрочастиц наблюдался экспериментально в работе [2]. Для упрощения анализа мы предположим, что скорость частиц  $v$  не зависит от их положения внутри области светондуцированного движения.

Диагностику светондуцированного потока частиц мы предлагаем проводить с помощью второго лазерного пучка (длина волны  $\lambda$ , излучение непрерывное или импульсное с длительностью импульса  $\tau_p$ , много большей времени жизни фотона в среде  $(\mu_a c)^{-1}$ , где  $\mu_a$  – коэффициент поглощения света в среде, а  $c$  – скорость света), 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 зондирующим. 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  $G_1(\tau) = \langle E(t) E^*(t + \tau) \rangle$  поля многократно рассеянного зондирующего излучения, которое мы описываем в скалярном приближении, считая существенно деполаризованным. Без потери общности рассмотрим сначала частицы, размер которых много меньше, чем длина волны зондирующего излучения  $\lambda$ . В этом случае частицы можно приближенно считать точечными рассеивателями. Кроме того, мы предположим, что коэффициент поглощения света в суспензии на длине волны  $\lambda$  зондирующего излучения пренебрежимо мал. Тогда для описания многократного рассеяния света в суспензии необходимо знать только величину длины свободного пробега фотона  $\lambda$ , которую мы будем считать не только много больше, чем  $d$  (что соответ-

ствует модели узкого потока частиц в суспензии), но также превышающей линейный размер пятна фокусировки зондирующего пучка на стенке кюветы (это соответствует сильной фокусировке пучка).

При «выключенном» ускоряющем пучке взвешенные частицы находятся в неупорядоченном броуновском движении с коэффициентом диффузии  $D_B$ , определяемым их размером, вязкостью и температурой суспензии [30]. Включение ускоряющего пучка приводит к возникновению направленного потока частиц, наложенного на их броуновское блуждание. При этом для расчета временной автокорреляционной функции рассеянного излучения можно использовать выражение [18]:

$$G_1(\tau) = \sum_{n=1}^{\infty} I(\mathbf{r}_s, \mathbf{r}, n) \exp \left\{ -\frac{1}{2} \langle \Delta \varphi_n^2(\tau) \rangle \right\}, \quad (3)$$

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

$$\langle \Delta \varphi_n^2(\tau) \rangle = \langle \Delta \varphi_n^{(B)2}(\tau) \rangle + \langle \Delta \varphi_n^{(F)2}(\tau) \rangle, \quad (4)$$

где первое слагаемое описывает эффекты декорреляции, обусловленные броуновским движением рассеивателей, а второе – эффекты декорреляции, связанные с их светондуцированным движением. Как показано в работах [7–10]:

$$\langle \Delta \varphi_n^{(B)2}(\tau) \rangle = \frac{\tau}{\tau_0} n, \quad (5)$$

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

Выражение для второго слагаемого в формуле (4) можно найти, используя метод интегралов по траекториям [18]. Поскольку поперечный размер области потока  $d$  предполагается малым ( $d < \lambda$ ), то можно 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  $m$ -й 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  $\tau$ , будет обусловлена смещением движущегося рассеивателя за этот промежуток времени и, как нетрудно заметить, равна

$$\langle \Delta \varphi_{mn}^{(F)}(\tau) \rangle = k \tau (\hat{\mathbf{e}}_m \cdot \mathbf{v}) \delta(x_m - x_0) \delta(y_m - y_0), \quad (6)$$

где  $\hat{\mathbf{e}}_m$  – 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 рассея-

ния, и мы предположили, что поток частиц параллелен оси  $z$ , а его положение задается координатами  $x_0, y_0$ .

Для нахождения  $\langle \Delta\varphi_n^{(F)}(\tau) \rangle$  необходимо было просуммировать (6) по всем  $m = 1, \dots, n$ , возвести эту сумму в квадрат и усреднить результат по всем возможным траекториям фотонов в среде. Поскольку векторы  $\hat{\mathbf{e}}_m$  и  $\mathbf{v}$  независимы, то  $\langle (\hat{\mathbf{e}}_m \cdot \mathbf{v})^2 \rangle = v^2/2$  и окончательно получаем

$$\langle \Delta\varphi_n^{(F)}(\tau) \rangle = \frac{1}{2} (k\nu\tau)^2 \sum_{m=1}^n \langle \delta(x_m - x_0) \delta(y_m - y_0) \rangle. \quad (7)$$

Нетрудно понять, что стоящая в правой части сумма есть ненормированная вероятность  $P_n(x_0, y_0)$  того, что  $n$ -кратно рассеянный фотон испытает один из актов рассеяния внутри области светоиндуцированного потока, а  $m$ -й 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:

$$P_n(x_0, y_0) = \sum_{m=1}^n P_{mn}(x_0, y_0). \quad (8)$$

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

$$P_{mn}(x_0, y_0) = \int_{-\infty}^{\infty} P_{mn}(x_0, y_0, z) dz, \quad (9)$$

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 (7) можно переписать в виде

$$\langle \Delta\varphi_n^{(F)2}(\tau) \rangle = 2 \left[ \frac{\tau}{\tau_F} \right]^2 P_n(x_0, y_0), \quad (10)$$

где  $\tau_F = 2(k\nu)^{-1}$  – 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  $P_{mn}(x_0, y_0, z)$  дает [18]:

$$P_{mn}(x_0, y_0, z) = \frac{I(\mathbf{r}_s, \{x_0, y_0, z\}, m) I(\{x_0, y_0, z\}, \mathbf{r}, n - m)}{I(\mathbf{r}_s, \mathbf{r}, n)}, \quad (11)$$

где для нахождения  $I(\mathbf{r}_s, \mathbf{r}, n)$  мы воспользуемся диффузионным приближением, считая среду полубесконечной [18]:

$$I(\mathbf{r}_s, \mathbf{r}, n) = \left( \frac{3}{4\pi\ell^2 n} \right) \times \left[ \exp \left\{ -\frac{3(x - x_s)^2}{4\ell^2 n} \right\} - \exp \left\{ -\frac{3(x + x_s)^2}{4\ell^2 n} \right\} \right] \times$$

$$\times \exp \left\{ -\frac{3[(y - y_s)^2 + (z - z_s)^2]}{4\ell^2 n} \right\}. \quad (12)$$

Далее, подставив (12) в (11) и выполнив интегрирование в (9), получаем следующий результат:

$$P_{mn}(x_0, y_0) = \frac{9x_0^2 n^2}{4\pi\ell^2 m^2 (n - m)^2} \exp \left\{ -\frac{3x_0^2 n}{4\ell^2 m(n - m)} \right\} \times \exp \left\{ -\frac{3(y_0 - y_s)^2}{4\ell^2 m} - \frac{3(y_0 - y)^2}{4\ell^2 (n - m)} + \frac{3(y - y_s)^2}{4\ell^2 n} \right\}. \quad (13)$$

Заметим, что переход к случаю рассеивающих свет частиц конечного размера (порядка длины волны  $\lambda$  зондирующего излучения) может быть проделан путем замены длины свободного пробега фотона  $\lambda$  транспортной длиной свободного пробега  $\lambda^*$  во всех выписанных выше формулах. Но теперь 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,  $\lambda^*/\lambda$ ). При этом рассматриваемая теоретическая модель будет верна только в случае  $\lambda^* > d$ .

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, положим  $x_s = \lambda^*$ , считая, что падающий на среду лазерный пучок приводит к формированию изотропного источника излучения на расстоянии  $\lambda^*$  от границы среды.

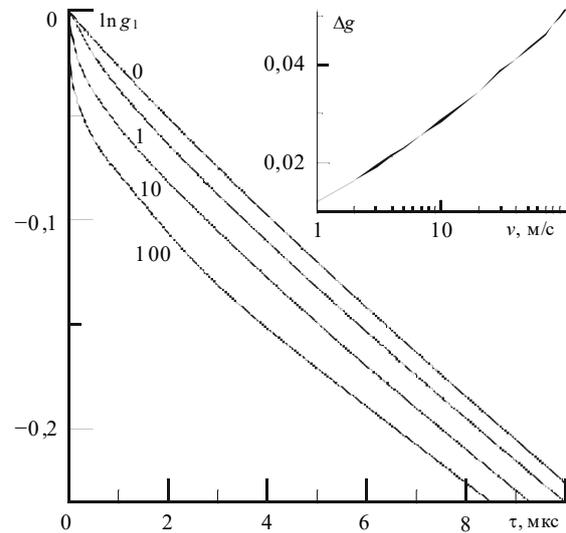


Рис. 2. Нормированная временная автокорреляционная функция диффузно отраженного излучения ( $x_0 = 5\lambda^*$ ,  $y_0 = 0$ ,  $\tau_0 = 10^{-4}$  с)

Рассмотрим теперь зависимость  $G_1(\tau)$  от  $\tau$  при различных скоростях  $v$  светоиндуцированного потока. На рис. 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 их получения использовался

лись формулы (3)–(5), (8), (10), (12), (13) при  $\tau_0 = 10^{-4}$  с, что типично для водных суспензий полистироловых сфер субмикронного размера при нормальных условиях. Чтобы получить представление о порядке величины характерного времени  $\tau_F$ , связанного с направленным потоком рассеивателей, положим  $\lambda = 0,5$  мкм. Тогда  $\tau_F$  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  $\tau$  исключительно из-за броуновского движения взвешенных частиц. При наличии потока ( $v > 0$ ) убывание  $g_1(\tau)$  становится более быстрым. Как видно из рис. 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. 2. Причина этого состоит в том, что в 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 скорости  $v$  потока при  $\tau < \tau_F$  и даже при  $\tau \sim \tau_F$ . При больших  $\tau$ , как видно из рис. 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  $\tau$ , как видно из рис. 2, производная  $dg_1/d\tau$  возрастает с ростом  $v$ . Поэтому, анализируя поведение  $g_1(\tau)$  при малых  $\tau$ , можно определять скорость потока. Однако такой способ измерения  $v$  может оказаться трудно реализуемым при больших  $v$ . Другой путь определения  $v$  состоит в измерении максимального отклонения  $\Delta g$  автокорреляционной функции  $g_1(\tau)$  в присутствии потока от ее значения в его отсутствие. Эта величина представлена на вставке рис. 2 как функция  $v$ . Видно, что  $\Delta g$  является почти линейной функцией  $\ln v$ .

### 3. Пондеромоторное действие света в задачах ДВС

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  $\lambda$ , транспортной длиной свободного пробега фотона  $\lambda^*$ , коэффициентом поглощения  $\mu_a$  и динамической вязкостью [30]:

$$\eta = \eta_0 \left( 1 + \frac{5}{2} \Phi \right), \quad (14)$$

где  $\eta_0$  – вязкость жидкости. В отсутствие внешних воздействий будем считать частицы среды покоящимися, т.е. пренебрежем их броуновским движением. Пусть в точке  $\mathbf{r}_0 = \{0, 0, 0\}$  на среду падает лазерный импульс  $I$ , сфокусированный в область с поперечными размерами  $d$  (длина волны в жидкости  $\lambda$ , длительность  $\tau_p$ , пиковая интенсивность  $I_0$ ,  $\lambda < d < \lambda^*$ ), направленный вдоль оси  $z$  (рис. 3).

Этот импульс вызывает формирование светоиндуцированной струи. Как и раньше, будем считать, что  $\tau_p$  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 (мы пренебрегаем здесь тепловым движением частиц).

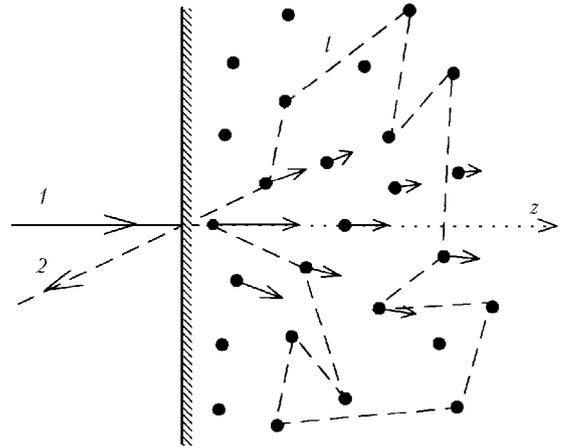


Рис. 3. Схема рассматриваемой экспериментальной ситуации

Если  $I_0$  становится достаточной для того, чтобы вызвать движение частиц среды, то 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 (см. раздел 1); 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 ( $\lambda < d < \lambda^*$ ), то точку падения пучка на среду можно приближенно рассматривать как точечный 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 от границы (при  $z > \lambda^*$ ). Чтобы найти  $\mathbf{v}(\mathbf{r})$ , рассмотрим уравнение движения вязкой суспензии, заполняющей все пространство, записанное в предположении ее несжимаемости [30]:

$$\frac{\partial}{\partial t} \text{rot } \mathbf{v} + (\mathbf{v} \cdot \nabla) \text{rot } \mathbf{v} - (\text{rot } \mathbf{v} \cdot \nabla) \mathbf{v} = \nu \Delta \text{rot } \mathbf{v}. \quad (15)$$

Здесь  $\nu = \eta/\rho$  – кинематическая вязкость суспензии;  $\rho$  – 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. [30]), решение может быть найдено. В сфе-

рической системе координат для не слишком больших скоростей струи оно имеет вид [30]:

$$v_r = \frac{P \cos \theta}{4\pi l r}, \quad v_\theta = -\frac{P \sin \theta}{8\pi l r}, \quad v_\phi = 0, \quad (16)$$

где  $P$  – полный поток импульса в струе, равный в наших условиях импульсу, передаваемому лазерным излучением частицам среды в единицу времени. Линии тока, соответствующие выражениям (16), приведены на рис. 4.

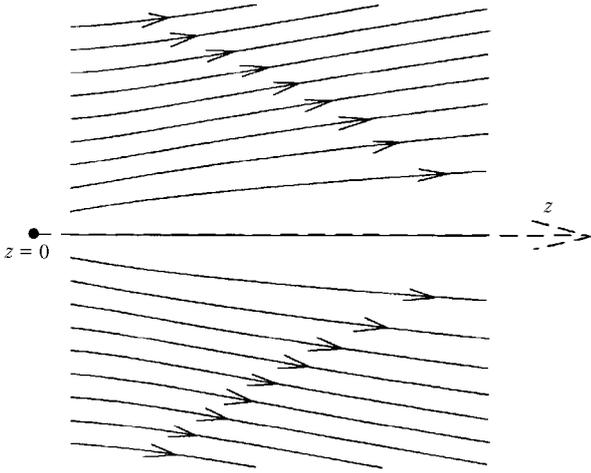


Рис. 4. Картина линий тока, соответствующая задаче о затопленной струе [30]

Для расчета временной корреляции излучения, многократно рассеянного в полубесконечной случайно-неоднородной среде, где поле скоростей рассеивающих центров имеет вид (16), воспользуемся методом интегрирования по траекториям [18]. Сначала рассмотрим случай точечных рассеивателей (размер рассеивателя  $a \ll \lambda$ ).

Для поля скоростей (16) расчет тензора напряжений [30] дает

$$\sigma_{rr} = -\frac{P \cos \theta}{2\pi r^2}, \quad \sigma_{\phi\phi} = \sigma_{\theta\theta} = \frac{P \cos \theta}{4\pi r^2}, \quad \sigma_{r\theta} = \sigma_{r\phi} = \sigma_{\theta\phi} = 0. \quad (17)$$

Чтобы найти  $G_1(\tau)$ , теперь необходимо вычислить интеграл [12, 13]:

$$\xi(n) = \frac{1}{\eta^2} \int \left( \sum_{i \neq k} \sigma_{ik}^2(\mathbf{r}_i) \right) \rho_n(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_1, \mathbf{r}) d^3 \mathbf{r}_1, \quad (18)$$

подставить его в выражение [12, 13]:

$$\langle \Delta\varphi_n^2(\tau) \rangle = \frac{2}{15} k^2 \lambda^2 \tau^2 n \xi(n), \quad (19)$$

а затем рассчитать корреляционную функцию по формуле [12, 13]:

$$G_1(\tau) = \sum_{n=1}^{\infty} I(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}, n) \exp \left\{ -\frac{1}{2} \langle \Delta\varphi_n^2(\tau) \rangle \right\}, \quad (20)$$

где  $I(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}, n)$  – средняя интенсивность излучения в точке  $\mathbf{r}$ , создаваемая точечным источником когерентного излуче-

ния, расположенным в точке  $\mathbf{r}_0$ , соответствующая  $n$ -кратно рассеянному излучению.

В формуле (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  $\mathbf{r} \approx \mathbf{r}_1 = \{0, 0, 0\}$  и воспользоваться выражением для  $\rho_n(\mathbf{r}_1) = \rho_n(0, \mathbf{r}_1, 0)$ , полученным в работе [14] в диффузионном приближении:

$$\rho_n(\mathbf{r}_1) = \frac{3}{2\pi l^2 n r_1} \exp \left\{ -\frac{3r_1^2}{l^2 n} \right\}. \quad (21)$$

Подставляя (17) и (21) в (18) и распространяя интегрирование в (18) на область  $r_1 > \lambda$ , где рассеяние света хорошо описывается в диффузионном приближении, из выражения (19) находим

$$\langle \Delta\varphi_n^2(\tau) \rangle = (\tau/\tau_c)^2 f(n), \quad (22)$$

где

$$\tau_c = \sqrt{10} \eta \lambda \lambda / P \quad (23)$$

– характерное время когерентности, связанное с возникновением светоиндуцированной струи;

$$f(n) = \exp \left\{ -\frac{3}{n} \right\} + \frac{3}{n} Ei \left\{ -\frac{3}{n} \right\}, \quad (24)$$

$Ei(x)$  – интегральная показательная функция [31]. Функция  $f(n)$ , определяющая относительную роль процессов рассеяния разных порядков, оказалась независимой от параметров задачи и определяется только порядком рассеяния  $n$ . Функция  $f(n)$  обращается в нуль при  $n = 0$  и стремится к единице при  $n \rightarrow \infty$  (рис. 5). Поэтому  $\tau_c$  является характерным временем когерентности излучения, соответствующим, строго говоря, рассеянию бесконечно высокой кратности. Процессам рассеяния конечной кратности соответствуют времена когерентности, большие чем  $\tau_c$ .

Используя выражение для функции Грина  $I(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}, n)$ , полученное в диффузионном приближении [13] [см. также (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 на расстоянии порядка  $\lambda$ , получаем окончательное выражение для  $G_1(\tau)$ :

$$G_1(\tau) \propto \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{n^{5/2}} \exp \left\{ -\frac{1}{2} \langle \Delta\varphi_n^2(\tau) \rangle - \mu_a l n \right\}, \quad (25)$$

где  $\langle \Delta\varphi_n^2(\tau) \rangle$  дается формулой (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 соответствующие этому случаю приближенные результаты могут быть получены путем замены  $\lambda$  на  $\lambda^*$  во всех формулах.

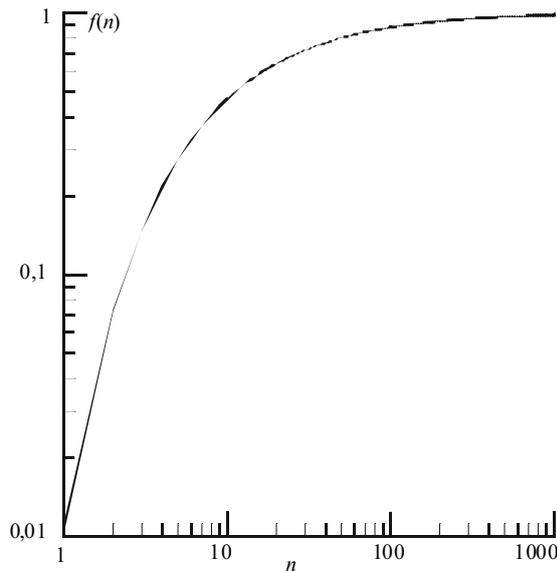


Рис. 5. Фактор  $f(n)$ , определяющий дисперсию разности фаз фотонов, рассеявшихся на одних и тех же частицах среды в моменты времени, разделенные промежутком  $\tau$  [см. (24)]

#### 4. Обсуждение результатов

На рис. 6 представлены нормированные временные автокорреляционные функции рассеянного назад света  $G_1(\tau)/G_1(0)$  для различных значений произведения  $\mu_a \lambda$  (для определенности будем считать, что  $\lambda$  одинакова для всех трех кривых, а коэффициент поглощения  $\mu_a$  различен). Отметим, что коэффициент поглощения  $\mu_a$  оказывает относительно малое влияние на нормированную корреляционную функцию рассеянного света. Влияние поглощения будет проявляться в основном через увеличение  $P$  [а значит, уменьшение  $\tau_c$ , см. (23)] с ростом  $\mu_a$ . Различие между кривыми, соответствующими различным значениям коэффициента поглощения, обусловлено тем, что при малых  $\mu_a$  ( $\mu_a \ll \lambda^{-1}$ ) достаточно большая часть рассеянного назад света возникает в результате процессов рассеяния высоких порядков, которые вносят существенный вклад в декорреляцию излучения. При относительно больших  $\mu_a$  ( $\mu_a \sim \lambda^{-1}$ ), как видно из (25), большим  $n$  соответствуют пренебрежимо малые интенсивности (из-за наличия слагаемого  $-\mu_a \lambda l$  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 диффузионном приближении, формула (25) по-прежнему дает физически понятный результат: корреляционная функция теперь спадает не так быстро, как при малых  $\mu_a$ , поскольку фотоны, претерпевшие меньшее число актов рассеяния, декоррелированы слабее. Отметим, что при  $\tau/\tau_c \gg 1$  кривые, соответствующие различным  $\mu_a$ , становятся параллельными. Это связано с тем, что при больших  $\tau$  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.

Необходимо отметить различный вид зависимости  $\langle \Delta\varphi_n^2(\tau) \rangle$  от  $\tau$  для броуновского движения рассеивателей [ $\langle \Delta\varphi_n^{(B)2}(\tau) \rangle \propto \tau^2$ ] и светоиндуцированной струи

[ $\langle \Delta\varphi_n^{(F)2}(\tau) \rangle \propto \tau$ ]. Эффекты лазерного ускорения, таким образом, качественно меняют вид временной корреляционной функции диффузно отраженного излучения. При достаточно 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 (4).

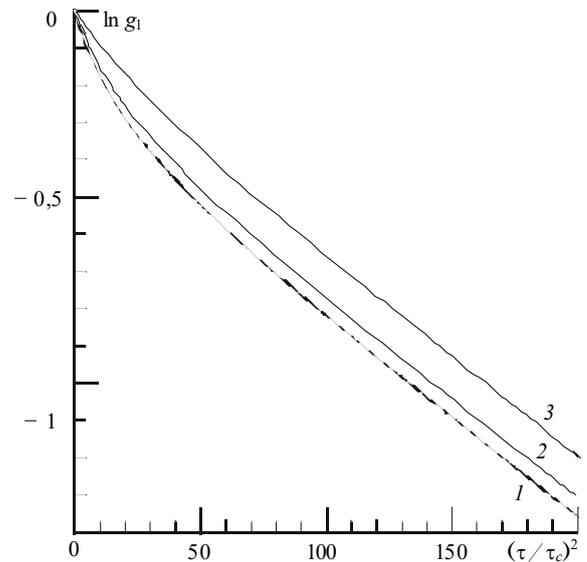


Рис. 6. Логарифм нормированной временной автокорреляционной функции  $g_1(\tau) = G_1(\tau)/G_1(0)$  как функция квадрата отношения  $\tau/\tau_c$  для трех различных значений коэффициента поглощения  $\mu_a$  при фиксированном импульсе  $P$ , передаваемом от электромагнитного поля к частицам среды в единицу времени:  $\mu_a = 0$  (1);  $0,1 \lambda^{-1}$  (2);  $0,5 \lambda^{-1}$  (3)

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, так как поглощение света в полистироле мало, а все другие механизмы ускорения как раз связаны с поглощением света. Поэтому  $P \approx W/c$ , где  $W$  – мощность излучения,  $c$  – скорость света в среде. Второе слагаемое в формуле (4) превысит первое, если мощность излучения будет больше некоторого критического значения  $W_c(\tau, n)$ :

$$W > W_c(\tau, n) \approx 4c\lambda \sqrt{\frac{5\pi\eta k_B T}{3a} \times \frac{n}{\tau f(n)}}, \quad (26)$$

где  $k_B$  – постоянная Больцмана;  $T$  – температура суспензии. При выводе формулы (26) было использовано выражение для коэффициента диффузии сферических частиц в суспензии:  $D_B = k_B T/(6\pi\eta a)$  [30].

Как видно из выражения (26), критическая мощность зависит и от порядка рассеяния  $n$ , и от временной задержки  $\tau$ . Анализ показывает, что отношение  $n/f(n)$  минимально при  $n = 5$ , поэтому максимальное влияние эффекты лазерного ускорения будут оказывать на фотоны, рассеявшиеся не-

большое число раз (порядка пяти). Чтобы провести оценку, положим  $a \sim 0,1$  мкм и зададим объемную концентрацию частиц равной 1%; тогда  $\lambda^* \sim 200$  мкм. Для воды  $\eta \sim 10^{-3}$  Па · с; длину волны излучения  $\lambda$  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. Эти критические значения мощности излучения достаточно малы для того, чтобы описанный в настоящей работе эффект можно было наблюдать экспериментально.

### Заключение

Представленные в настоящей статье результаты убедительно свидетельствуют о том, что методика диффузионно-волновой спектроскопии (ДВС) может быть применена для изучения индуцированных мощным лазерным излучением потоков микрочастиц в концентрированных суспензиях. Кроме того, 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. Мы надеемся, что проведенный в настоящей статье теоретический анализ стимулирует экспериментальные исследования в данной области.

1. Эшкин А. Давление лазерного излучения // Успехи физ. наук. 1973. Т. 110. № 1. С. 101–114.
2. Захаров С.Д., Земсков К.И., Казарян М.А., Коротков Н.П. Применение светоиндуцированного движения частиц в пучке лазера на парах меди // Изв. РАН. Сер. физ. 1992. Т. 56. № 4. С. 182–187.
3. Захаров С.Д., Казарян М.А., Коротков Н.П. Ударный разгон частиц в поле лазерного излучения // Письма в ЖЭТФ. 1994. Т. 60. № 5. С. 317–319.
4. Kazaryan M.A., Korotkov N.P., Zakharov S.D. Hydrodynamic flows in suspensions caused by powerful pulse-periodic light beams // Phys. Scripta. 1995. V. 52. № 5. P. 678.
5. Лебедев П.Н. Опытное исследование светового давления. Собр. соч. М.: Наука, 1963.
6. Аскарьян Г.А. Движение частиц в луче лазера // Успехи физ. наук. 1973. Т. 110. № 1. С. 115–116.
7. Maret G., Wolf P.E. Multiple light scattering from disordered media. The effect of Brownian motion of scatterers // Z. Phys. B. 1987. V. 65. N 2–3. P. 409–413.
8. Pine D.J., Weitz D.A., Chaikin P.M., Herbolzheimer E. Diffusing-wave spectroscopy // Phys. Rev. Lett. 1988. V. 60. № 12. P. 1134–1137.
9. Pine D.J., Weitz D.A., Maret G., Wolf P.E., Herbolzheimer E., Chaikin P.M. Dynamical correlations of multiply scattered light // Scattering and localization of classical waves in random media / Ed. Ping Sheng. World Scientific, Singapore, 1989. P. 312–372.
10. Pine D.J., Weitz D.A., Zhu J.X., Herbolzheimer E. Diffusing-wave spectroscopy: dynamic light scattering in the multiple scattering limit // J. Phys. (France). 1990. V. 51. № 18. P. 2101–2127.
11. Wu X.-L., Pine D.J., Chaikin P.M., Huang J.S., Weitz D.A. Diffusing-wave spectroscopy in a shear flow // J. Opt. Soc. Amer. B. 1990. V. 7. № 1. P. 15–20.
12. Bicoût D., Akkermans E., Maynard R. Dynamical correlations for multiple light scattering in laminar flow // J. Phys. I. (France). 1990. V. 1. N 4. P. 471–491.
13. Bicoût D., Maynard R. Diffusing wave spectroscopy in inhomogeneous flow // Physica A. 1993. V. 199. № 3–4. P. 387–411.
14. Bicoût D., Maret G. Multiple light scattering in Taylor-Couette flow // Physica A. 1994. V. 210. № 1. P. 87–112.
15. Кузьмин В.Л., Романов В.П. Когерентные эффекты при рассеивании света в неупорядоченных системах // Успехи физ. наук. 1996. Т. 166. № 3. С. 247–278.
16. Тучин В.В. Исследование биотканей методами светорассеяния // Успехи физ. наук. 1997. Т. 167. № 5. С. 517–539.
17. Maret G. Recent experiments on multiple scattering and localization of light // Curr. Opin. Coll. Int. Sci. 1997. V. 2. № 2. P. 251–263.
18. Скипетров С.Е. Диффузно-волновая спектроскопия в средах с пространственно неоднородной динамикой рассеивателей: Дис. ... к. ф. -м. н. М., 1998 (<http://www.ilc.msu.ru/skipetr/>).
19. Skipetrov S.E., Kazaryan M.A., Korotkov N.P., Zakharov S.D. Diagnostics of laser-induced particle motion in dense random media using temporal field correlation // J. Moscow Phys. Soc. 1997. V. 7. № 4. P. 411.
20. Skipetrov S.E., Kazaryan M.A., Korotkov N.P., Zakharov S.D. Multiple light-scattering probes of laser-induced particle flows in random media: theoretical consideration // Phys. Scripta. 1998. V. 57. № 3. P. 416–419.
21. Kazaryan M.A., Korotkov N.P., Skipetrov S.E., Zakharov S.D. Light-induced dynamic backscattering of laser pulses in a randomly inhomogeneous media // J. Russian Laser Research. 1998. V. 19. № 2. P. 186–189.
22. Скипетров С.Е., Чесноков С.С., Захаров С.Д., Казарян М.А., Коротков Н.П., Щеглов В.А. Многократное динамическое рассеивание лазерного излучения на светоиндуцированной струе микрочастиц суспензии // Квант. электрон. 1998. Т. 25. № 5. С. 447–451.
23. Скипетров С.Е., Чесноков С.С., Захаров С.Д., Казарян М.А., Коротков Н.П., Щеглов В.А. Пондеромоторное действие света в задаче о многократном рассеянии света в случайно-неоднородной среде // Письма ЖЭТФ. 1998. Т. 67. № 9. С. 611–615.
24. Скипетров С.Е. Диффузионно-волновая спектроскопия в средах с пространственно неоднородной динамикой рассеивателей // Физическое образование в вузах. 1999. Т. 5. № 1. С. 98–112.
25. Григорян Г.В., Захаров С.Д., Казарян М.А., Коротков Н.П., Скипетров С.Е., Таманян А.П. Светоиндуцированное движение микрочастиц в суспензии // Оптика атмосф. и океана. 2000. Т. 13. № 5. С. 492–494.
26. Skipetrov S.E., Chesnokov S.S., Zakharov S.D., Kazaryan M.A., Korotkov N.P., Shcheglov V.A. Dynamic multiple scattering of laser radiation on light-induced flows of microparticles in suspension // Proc. SPIE. 1999. V. 3734. P. 217–224.
27. Skipetrov S.E., Kazaryan M.A., Zakharov S.D., Shcheglov V.A. Hydrodynamic flows induced by copper-vapor laser diagnostics using optical correlation spectroscopy // Proc. Int. Conf. LASERS-98. Soc. Opt. Quantum Electron. McLean, VA, USA, 1999. P. 367–374.
28. Skipetrov S.E., Kazaryan M.A., Zakharov S.D. Correlation spectroscopy for diagnosis of light-induced particle motion in concentrated suspensions // Proc. SPIE. 1999. V. 3904. P. 423–428.
29. Skipetrov S.E., Kazaryan M.A., Korotkov N.P., Zakharov S.D., Grigoryan G.V., Tamanyan A.G. Multiple scattering of high-power laser radiation // Proc. Int. Conf. LASERS-99. STS Press, McLean, VA, USA, 2000. P. 681–684.
30. Ландау Л.Д., Лифшиц Е.М. Гидродинамика. М.: Наука, 1986. 735 с.
31. Градштейн И.С., Рыжик И.М. Таблицы интегралов, сумм, рядов и произведений. М.: Физматгиз, 1962. 1100 с.

S.E. Skipetrov, M.A. Kazaryan. **Diffusing-wave spectroscopy of light-induced flows.**

Dynamic multiple scattering of laser radiation in a concentrated suspension of micron- or sub-micron-sized particles is considered with accounting for the particle acceleration in the field of (a) another (accelerating) laser beam and (b) probing radiation. We show that in both cases the methods of optical correlation spectroscopy allow one to estimate the velocity of light-induced particle motion by analyzing the time autocorrelation function of the multiple-scattered radiation. The method is proposed to measure the characteristic velocities of light-induced particle flows based on the principles of diffusing-wave spectroscopy.