

УДК 535.34

## НАБЛЮДЕНИЕ САТЕЛЛИТА ЛИНИИ ВЫНУЖДЕННОГО РАССЕЯНИЯ МАНДЕЛЬШТАМА–БРИЛЛЮЭНА В ЖИДКОМ РАСТВОРЕ

А. И. Ерохин, В. С. Старунов, И. Л. Фабелинский

*В расслаивающемся растворе с двойной критической точкой по спектрам вынужденного рассеяния Мандельштама–Бриллюэна (SMBS) измерена температурная зависимость скорости гиперзвука  $V$ . Температурный коэффициент  $V$  выше верхней критической точки существенно меньше его значения ниже нижней критической точки, что согласуется с результатами измерений по спектрам теплового рассеяния. Впервые наряду с линией стоксового SMBS наблюдалась еще одна линия либо со стоксовой, либо (существенно реже) с антистоксовой стороны со смещением относительно линии SMBS порядка или менее полуширины линии теплового рассеяния, а также в некоторых случаях слабая антистоксовая линия SMBS.*

Раствор гваякол-глицерин с малым содержанием воды характеризуется на фазовой диаграмме концентрация-температура замкнутой кривой, внутри которой он расслоен на две компоненты, а вне ее – гомогенен. В [1, 2] изучались скорость  $V$  и коэффициент поглощения гиперзвука по спектрам теплового рассеяния Мандельштама–Бриллюэна (MBS). Ниже нижней критической температуры  $T^L$  в области ( $45 - 50^\circ\text{C}$ ) был обнаружен максимум коэффициента поглощения гиперзвука, а температурный коэффициент скорости гиперзвука  $dV/dT$  выше верхней критической температуры  $T^U$  оказался в два раза меньше, чем  $dV/dT$  ниже  $T^L$ . Этот результат, возможно, указывает на перестройку структуры раствора при переходе от температур выше  $T^U$  к температурам ниже  $T^L$ . С целью изучения этих особенностей в других условиях опыта были выполнены измерения скорости гиперзвука в таком же растворе по спектрам вынужденного

рассеяния Мандельштама–Бриллюэна (SMBS) [3]. На рис. 1 приведены температурные зависимости смещения  $\nu$  компонент Мандельштама–Бриллюэна, полученных из теплового рассеяния (кружки) и наши результаты по спектрам SMBS (квадраты). Видно, что величина  $d\nu/dT$ , а следовательно и  $dV/dT$  ниже  $T^L$  заметно больше, чем значения при  $T > T^U$ , как и при MBS. Таким образом, довольно экстремальные условия опыта (значительное энерговыделение, высокое стрикционное давление  $p \sim 0.5 \text{ кГ/см}^2$  и напряженность электрического поля  $E \sim 7 \cdot 10^5 \text{ В/см}$ ) не влияют на различие  $dV/dT$  ниже  $T^L$  и выше  $T^U$  и, следовательно, на те физические причины, которые приводят к этому различию.

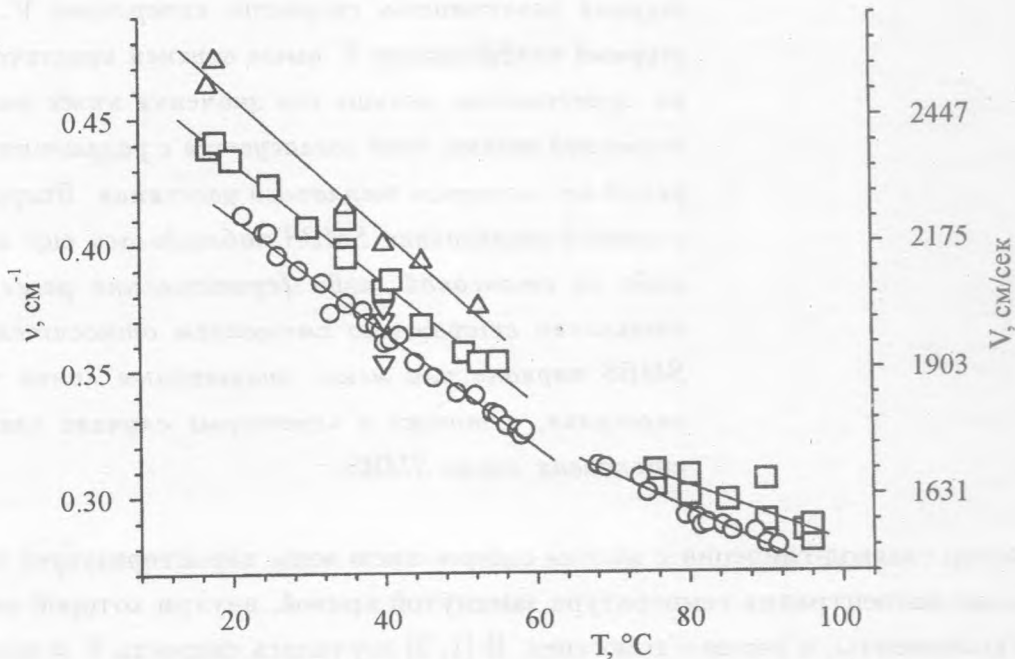


Рис. 1. Зависимость смещения компонент Мандельштама–Бриллюэна  $\nu$  и скорости гиперзвука по данным теплового MB рассеяния (o) и вынужденного SMBS рассеяния (□);  $\Delta$ ,  $\nabla$  – спектральное смещение сателлита, смещенного относительно линии SMBS в стоксовую ( $\Delta$ ) или в антистоксовую ( $\nabla$ ) стороны.

На интерферограммах спектра вынужденного рассеяния (SS) назад ( $\theta = 180^\circ$ ) наряду со стоксовой линией SMBS, была обнаружена еще одна линия, смещенная в стоксовую, либо в антистоксовую сторону (что случалось реже) относительно нее на рас-

стояние порядка или несколько меньше половины полуширины линии MBS (рис. 2). В некоторых случаях наряду со стоксовой линией SMBS проявлялась также более слабая антистоксовая линия SMBS. Эти особенности в спектре мы объясняем, главным образом, взаимодействием накачки с излучением, отраженным от заднего окна кюветы с жидкостью. В результате четырехволнового взаимодействия возникает временная неустойчивость SMBS [4 – 7] и самовозбуждение на частоте, близкой (в пределах полуширины) к частоте SMBS.

Вынужденное рассеяние (SS) возбуждалось второй гармоникой одномодового неодимового лазера ( $\lambda = 528 \text{ нм}$ ) с максимальной энергией  $\sim 20 \text{ мДж}$  и длительностью  $\sim 30 \text{ нсек}$  и фокусировалось в сосуд с раствором (длина  $\simeq 10 \text{ см}$ ) линзой с фокусным расстоянием  $F = 1 \text{ м}$ . Излучение SS, рассеянное назад и отраженное от делительной пластинки вместе с излучением лазера направлялось через расфокусирующую линзу или матовую пластинку в интерферометр Фабри–Перо с областью дисперсии  $0.167 \text{ см}^{-1}$ , существенно меньшей смещения линии SMBS, но позволяющей улучшить спектральное разрешение до  $\pm 3 \cdot 10^{-3} \text{ см}^{-1}$ . Спектры SS и накачки одновременно фотографировались и затем измерялись спектральные смещения наблюдаемых компонент.

При энергии накачки несколько выше порога наблюдения стоксовой линии SMBS часто наблюдалась еще одна линия, смещенная в стоксовую или (что наблюдалось реже) в антистоксовую сторону относительно нее на величину  $\sim (0.5 - 0.8)\delta\nu_{\text{MBS}}$ , где  $\delta\nu_{\text{MBS}}$  – половина полуширины линии MBS. Образец такого спектра представлен на рис. 2. Распределение интенсивности в плоскости интерферограммы указывает, что излучение, дающее в спектре сателлит, имеет заметно меньшую расходимость, чем основная более интенсивная часть излучения SMBS, что может указывать на влияние обратной связи на наблюдаемое рассеяние. В некоторых случаях наряду со стоксовой линией SMBS и сателлитом одновременно наблюдалась слабая антистоксовая линия SMBS. Окошки кюветы были перпендикулярны направлению излучения накачки с точностью  $\sim 0.1^\circ$ . При отклонении от перпендикулярности более чем на  $0.5^\circ$  особенности в спектре SS не возникали.

В дополнение к описанному выше наблюдались еще два связанных между собой явления. При энергии накачки несколько меньше порога наблюдения SMBS, вдоль направления луча накачки возникали микропузыри (размером менее  $10 \text{ мкм}$ ), а в области энергий, когда появляется сателлит линии SMBS, наблюдались крупные пузыри размером более  $100 \text{ мкм}$ . При этом в прошедшем свете на фоне сплошной засветки возникали размытые дифракционные кольца.

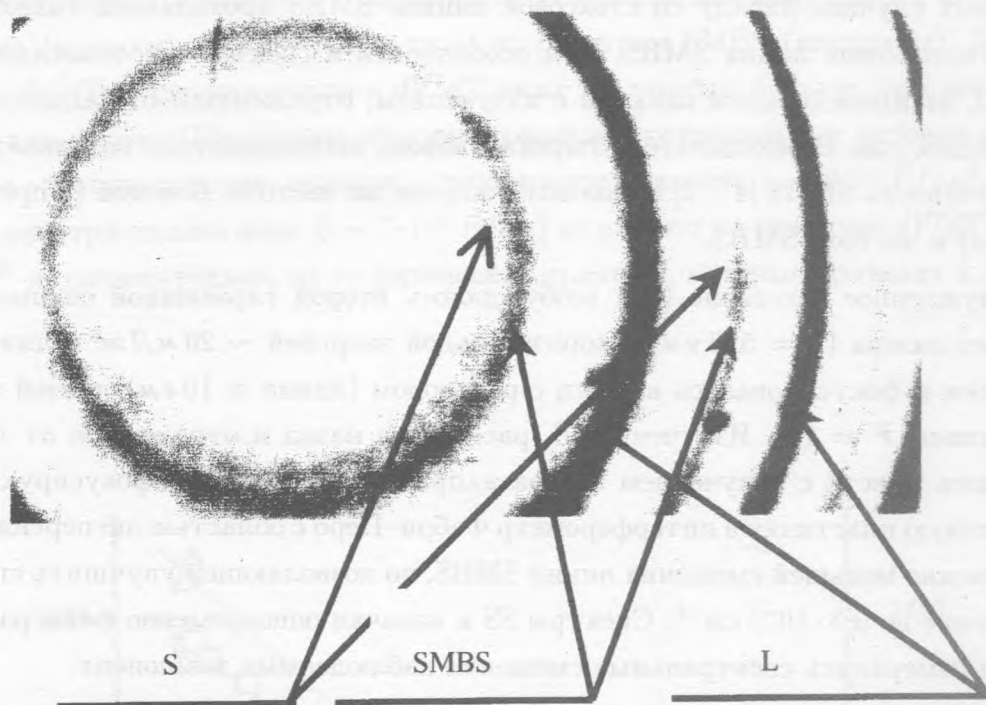


Рис. 2. Интерферограмма спектра накачки ( $L$ ), линии стоксового SMBS и ее стоксового сателлита ( $S$ ).

Наконец, отметим, что во всем изученном температурном интервале при изменении смещения линии SMBS от  $\nu_s = 0.44 \text{ см}^{-1}$  ( $T = 17^\circ\text{C}$ ) до  $\nu_s = 0.29 \text{ см}^{-1}$  ( $T = 96^\circ\text{C}$ ) смещение линии SMBS на 4 – 5% больше смещения, ожидаемого из данных по MBS при пересчете к нашим условиям опыта.

Появление при SS наряду со стоксовой линией SMBS сателлита, смещенного относительно нее в стоксовую или антистоксовую сторону в пределах половины полуширины линии MBS, а также наблюдение наряду со стоксовой более слабой линией антистоксового SMBS может быть объяснено, если принять, что наряду с обычным SMBS назад конвективного характера развивается процесс четырехволнового рассеяния. В этом процессе наряду с накачкой (попутная волна) участвуют встречная волна стоксова SMBS, слабая встречная волна накачки, отраженной от заднего окна кюветы, и антистоксовая попутная волна, распространяющаяся навстречу слабой встречной волне накачки [4 – 7]. Возникающая при этом временная неустойчивость может приводить к генерации излучения SMBS на частоте, близкой и в общем случае не равной частоте

те обычного SMBS, соответствующей максимуму его инкремента. Для возникновения такой абсолютной неустойчивости необходимо наличие либо частотной ( $\delta\nu$ ) либо волновой ( $\delta k = k_0^+ + k_1^- - k_0^- - k_1^+$ ) отстройки от точного резонанса ( $\delta\nu = 0, \delta k = 0$ ), где  $k_0^+, k_0^-, k_1^-$  и  $k_1^+$  – волновые числа встречных волн накачки, стоксовой и антистоксовой рассеянных волн. Поскольку в нашем случае  $k_0^+ = k_0^-$ , то  $\delta k = -4\pi n\nu_{MBS}$ . С помощью графиков из работы [6] можно для известных  $\delta k$  и отношения интенсивностей слабой  $I_0^-$  и сильной  $I_0^+$  волн накачки определить пороговое значение ( $M^{cr}$ ) полного инкремента  $M = g(I_0^+ + I_0^-)L$  ( $g$  – коэффициент усиления,  $L$  – длина нелинейного взаимодействия), при котором возникает абсолютная неустойчивость, временной инкремент роста вынужденного рассеяния  $Re s = (\frac{M}{M^{cr}} - 1)\delta\nu_{MBS}$  и коэффициент  $f$ , определяющий отстройку частоты генерации  $Im s = \frac{M}{M^{cr}} f \delta\nu_{MBS}$  от максимума  $\nu_{MBS}$ . В условиях нашего опыта  $\delta kL$  изменяется от  $-84$  (при  $t = 17^\circ$ ) до  $-53$  (при  $t = 95^\circ$ ). Поэтому, вследствие периодической зависимости изменения  $M^{cr}$  и  $f$  от  $\delta kL$  с периодом  $\simeq 2\pi$ , смещение частоты генерации  $\nu = \nu_{MBS} + Re s$  может значительно меняться в пределах ширины  $\delta\nu_{MBS}$ , в том числе может менять знак  $f$ , и эти изменения, как и изменения  $Re s$ , оказываются практически неконтролируемыми. Расстояния между модами [7] такого генератора  $\simeq (4Ln)^{-1}$  в нашем случае  $\sim 0.5$  ГГц. Наблюдаемая в опыте отстройка от точного резонанса  $\simeq 0.6 - 0.7$  ГГц (рис. 1) находится в пределах половины полуширины  $\delta\nu_{MBS}$  (как показано в [1], в исследуемой области температур  $\delta\nu_{MBS} = 1.2 - 1.7$  ГГц).

Согласно представлению теории [4 – 7], интенсивность антистоксовой компоненты, распространяющейся навстречу слабой волне накачки, заметно меньше участвующего в этом процессе стоксового SMBS. Поэтому антистоксовую компоненту не всегда удастся зафиксировать. В то же время наряду с участвующей в четырехволновом процессе стоксовой волной SMBS может развиваться и обычное SMBS назад с конвективной неустойчивостью. Спектральное разделение их, определяемое  $Im s$ , в зависимости от конкретных значений  $\delta kL$  лежит в области  $0 < |Im s| < \delta\nu_{MBS}$ , что согласуется с опытом. Не совсем ясно, почему частотная отстройка максимума абсолютной неустойчивости от максимума инкремента дает сдвиг частоты генерации преимущественно в одну, стоксовую сторону.

Одним из механизмов, объясняющих такую асимметрию, может быть вынужденное термо-Мандельштам-Бриллюэновское рассеяние (TSMBS), возникающее в поглощающих свет жидкостях наряду с вынужденным температурным рассеянием (STS-II) [8 – 10]. Из совместного решения нелинейных уравнений Максвелла, Навье-Стокса и температуропроводности следует, что коэффициент усиления  $g$  в таких средах равен

$$g = g_1 + g_2 = g_{SMBS}^{max} \left\{ \frac{1}{1 + \left( \frac{\nu - \nu_{MBS}}{\delta\nu_{MBS}} \right)^2} + 2\beta \frac{\nu - \nu_{MBS}}{\delta\nu_{MBS} \left[ 1 + \left( \frac{\nu - \nu_{MBS}}{\delta\nu_{MBS}} \right)^2 \right]} \right\}, \quad (1)$$

где  $\nu$ ,  $\nu_{MBS}$  – текущая частота и частотное смещение линии SMBS относительно частоты накачки,  $g_{SMBS}^{max}$  – коэффициент усиления в максимуме SMBS,  $\beta$  – отношение максимумов коэффициента усиления второго и первого слагаемых в (1), пропорциональное коэффициенту поглощения света  $2k_\omega$  и зависящее от термодинамических постоянных веществ [8 – 10]. Для большинства жидкостей максимумы обоих слагаемых в (1) равны ( $\beta = 1$ ) при коэффициенте поглощения света  $0.4 - 0.8 \text{ см}^{-1}$ . При этом максимум коэффициента усиления лежит со стоксовой стороны относительно максимума инкремента чистого ( $2k_\omega = 0$ ) SMBS со смещением  $\sim 0.6\delta\nu_{MBS} \simeq 0.7 - 1 \text{ ГГц}$  для изучаемого раствора, что и наблюдается в эксперименте. Этот механизм мог бы полностью объяснить появление линии SS, смещенной в стоксовую сторону относительно чистого SMBS. Однако нет оснований предполагать, что какой-либо механизм (микропузыри, затравочные центры поглощения, двухфотонное поглощение и др.) могут дать в прозрачном растворе такое сильное поглощение лазерного света, чтобы получить  $\beta \sim 1$ . Но при меньших значениях  $\beta$  этот механизм мог быть дополнительным, дающим увеличение вероятности генерации со стоксовой стороны относительно максимума инкремента SMBS.

Как уже упоминалось выше, смещение линии SMBS в наших опытах систематически больше смещения, вычисленного из данных о тепловом MBS [1], на 4 – 5%. Систематическая ошибка из-за неточности измерения угла рассеяния не более 1 – 2 %. Поскольку в наших экспериментах при угле рассеяния  $\theta = 180^\circ$  частота гиперзвука в 1.4 раза больше частоты гиперзвука в [1] ( $\theta = 90^\circ$ ), дисперсия скорости гиперзвука в этом растворе, обнаруженная в [11], может быть в наших измерениях больше, хотя величину ее сейчас определить трудно.

Если возникает описанное выше TSMBS, то должно возникать и явление STS-II, коэффициент усиления которого пропорционален  $2k_\omega$  и имеет максимум с антистоксовой стороны относительно линии накачки со смещением  $\delta\nu_T \simeq \delta\nu_0 + \delta\nu_c$ , где  $\delta\nu_0$ ,  $\delta\nu_c$  – половины полуширин линии накачки и центральной компоненты теплового энтропийного рассеяния. Поскольку  $\delta\nu_c \ll \delta\nu_0$  и  $\delta\nu_0 \sim 0.4 - 0.5 \text{ ГГц}$ , а измерение проводится от максимума суммарного контура линии накачки и STS-II, то в этом случае измеренное значение смещения линии SMBS будет больше ожидаемого. В какой мере вклады указанных или других механизмов объясняют разницу смещений SMBS и MBS, пока остается до конца не выясненным.

В заключение авторы выражают благодарность С. В. Кривохижа и Л. Л. Чайкову за обсуждение результатов и помощь в работе.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проект N 98-02-16796).

#### ЛИТЕРАТУРА

- [1] Коваленко К. В., Кривохижа С. В., Фабелинский И. Л. и др. Письма в ЖЭТФ, **58**, 395 (1993).
- [2] Фабелинский И. Л. УФН, **164**, 897 (1994).
- [3] Ерохин А. И., Кривохижа С. В., Старунов В. С. и др. Краткие сообщения по физике ФИАН, N 3, 28 (1998).
- [4] Андреев Н. Ф., Беспалов В. И., Киселев А. М. и др. ЖЭТФ, **82**, 1047 (1982).
- [5] Зельдович Б. Я., Шкунов В. В. Квантовая электроника, **9**, 393 (1982).
- [6] Беспалов В. И., Бубис Е. Л., Кулагин О. Н. и др. Квантовая электроника, **9**, 2267 (1982).
- [7] Зельдович Б. Я., Пилипецкий Н. Ф., Шкунов В. В. Обращение волнового фронта. М., Наука, 1985.
- [8] Негман Р. М. and Гау М. А. Phys. Rev. Lett., **19**, 824 (1967).
- [9] Старунов В. С., Фабелинский И. Л. УФН, **98**, 441 (1969).
- [10] Pohl D., Reinhold I., and Kaiser W. Phys. Rev. Lett., **20**, 1141 (1968).
- [11] Кривохижа С. В., Фабелинский И. Л., Чайков Л. Л. и др. Письма в ЖЭТФ, **64**, 166 (1996).

Поступила в редакцию 25 декабря 1998 г.