

## О КОНЦЕНТРАЦИОННОМ МЕХАНИЗМЕ САМОВОЗДЕЙСТВИЯ СВЕТА В РАССЛАИВАЮЩИХСЯ ЖИДКИХ РАСТВОРАХ

*Ф.В.Бункин, Г.А.Ляхов, К.Ф.Шупилов, Т.А.Шмаонов*

Показано, что вблизи точки расслаивания жидких растворов преобладающим механизмом самофокусировки света является концентрационный. Порог нестационарного эффекта обратно пропорционален кинетической подвижности и достижим при умеренных уровнях плотности энергии. Рассчитан светоиндуцированный сдвиг критической температуры (концентрационный эффект самопросветления).

1. При распространении мощных световых пучков в многокомпонентных жидкостях наряду с тепловым, стрикционным и ориентационным механизмами нелинейности должны действовать присущие именно смесям механизмы, связанные (а) со светоиндуцированными химическими реакциями<sup>1</sup> и (б) со светоиндуцированным перераспределением концентрации поляризующихся молекул<sup>2, 3</sup>. В нашей работе предлагается нестационарный концентрационный механизм (КМ) самофокусировки (СФ) света и обсуждается новая физическая информация, которую может дать здесь эксперимент.

Природа эффекта здесь та же, что и у аналога в постоянном поле: молекулы с большей поляризуемостью скапливаются в областях высокой напряженности  $E^4$ , следовательно,

КМ ведет именно к СФ. Предельное изменение показателя преломления составляет  $n_1 - n_2$  ( $n_i$  — показатели преломления компонентов) и ограничивается лишь значениями  $\sim 1$ .

Из термодинамического анализа следует, что  $\Delta n \sim (\partial n / \partial X) \Delta X$ ,  $\Delta X \sim (\partial X / \partial Y) < E^2 >$ , где  $X$ ,  $Y$  — сопряженные координата и сила. Пороговый параметр СФ,  $\sim (\Delta n)^{-1}$ , снижается поэтому вблизи точки фазового перехода, для которого  $X$  является параметром порядка — в ней  $\partial Y / \partial X \rightarrow 0$ . Для КМ  $X$  и  $Y$  — это концентрация  $c$  (в бинарной смеси  $c_1 = c$ ,  $c_2 = 1 - c$ ) и удельный химический потенциал  $\mu = N_A (\mu_1 / M_1 - \mu_2 / M_2)$  ( $\mu_i M_i$  — химические потенциалы и молекулярные массы компонентов,  $N_A$  — число Авогадро), и наиболее благоприятна для наблюдения СФ окрестность точки расслаивания, в которой  $\partial \mu / \partial c \rightarrow 0$  и КМ преобладает. В этой области измерение температурной или концентрационной зависимости порога или длины СФ позволяет найти критические индексы и оценить кинетическую подвижность  $L$ , прямых измерений которой нет.

2. КМ описывается зависимостью  $\mu$  от интенсивности  $|E|^2$ :

$$\mu = \mu_0 - \mu_E, \quad \mu_E = (n_0 / 8\pi\rho_0) (\partial n / \partial c)_{p,T} |E|^2, \quad (1)$$

индекс "0" отмечает параметры в слабом поле. Диффузионный поток  $\mathbf{j} = -L \text{grad} \mu$ , и уравнение неразрывности имеет вид

$$\rho_0 (\partial c / \partial t) = L \nabla^2 [(\partial \mu / \partial c) c - \mu_E |E|^2]. \quad (2)$$

Изменения амплитуды  $E$  описывает квазиоптическое уравнение

$$[2ik_0 (\partial / \partial z + v_T^{-1} \partial / \partial t) - \nabla^2] E = (2k_0^2 / n_0) (\partial n / \partial c)_{p,T} c E \quad (3)$$

$k_0$  — волновое число,  $\nabla^2$  — поперечный лапласиан,  $v_T$  — групповая скорость. Вблизи точки расслаивания коэффициент диффузии  $D = (L / \rho_0) (\partial \mu / \partial c) \sim \Theta^v$ ,  $\Theta = |\tilde{T} - \tilde{T}| / \tilde{T}$ ,  $\tilde{T}$  — критическая температура,  $v$  — показатель расходимости радиуса корреляции флуктуаций<sup>5</sup>. В соответствии с этим, время установления  $\tau_c$  распределения концентрации расходится ( $\tau_c \sim a^2 / D$ ,  $a$  — ширина пучка), причем, оно велико и в некритических условиях:  $\tau_c \gg (1-10) \Theta^{-v}$ , даже если  $a = 10^{-2}$  см. При  $\Theta \lesssim 10^{-2} - 10^{-4}$  реализуется поэтому существенно нестационарный режим СФ — длительность импульса  $\tau < \tau_c$ .

3. Для этого режима оценка с помощью (2) дает

$$\Delta n_c \simeq L n_0 (\partial n / \partial c)^2 |E|^2 \tau / 8\pi (\rho_0 a)^2 \quad (4)$$

и пороговое условие,  $\Delta n_c / n_0 > (ka)^{-2}$ <sup>6</sup>, ограничивает снизу плотность энергии светового пучка:

$$U_t = (P\tau / \pi a^2)_t = v (\rho_0 \lambda)^2 / L (2\pi \partial n / \partial c)^2, \quad (5)$$

$P = v |E|^2 a^2 / 8$  — мощность пучка на входе в среду. При  $\Theta \rightarrow 0$   $(\partial \mu / \partial c) \sim \Theta^\gamma$ ,  $\gamma$  — показатель расходимости термодинамической восприимчивости; экспериментальные значения:  $v = 0,62 - 0,68$ ,  $\gamma = 1,22 - 1,24$ <sup>5</sup>, поэтому  $L \sim \Theta^{v-\gamma} \rightarrow \infty$ , и при подходе к  $\tilde{T}$   $U_t \rightarrow 0$ .

Вдали от критической точки  $D \sim (10^{-4} - 10^{-5}) \text{ см}^2 \cdot \text{с}^{-1}$ ;  $(\partial n / \partial c)$  для большого числа растворов  $\sim 0,1 - 1$ . Значения  $\partial \mu / \partial c$  и  $L$  известны хуже — для измерения  $L$  необходимо как видно из (2), включение внешней силы (в нашем предложении — электромагнитной). В идеальном растворе  $\partial \mu / \partial c = RT / Mc$ <sup>4</sup> и может доходить до  $10^8 \text{ см}^2 \cdot \text{с}^{-2}$  ( $R$  — газовая постоянная), т. е.  $L / \Theta \simeq 1) \sim 10^{-12} - 10^{-13} \text{ Гс} \cdot \text{см}^{-3}$ . При  $\lambda_0 \sim 10^{-5} \text{ см}$ ,  $a \sim 10^{-2} \text{ см}$  требу-

емые в (5) значения энергии составляют  $(10 - 10^2) \Theta \gamma^{-\nu}$  Дж. Приближение идеального раствора занижает  $L$  и, кроме того, в эксперименте достижимы  $\Theta \sim 10^{-4} - 10^{-5}$ , поэтому можно сделать вывод о реализуемости КМ самофокусировки.

4. Стрикционная и ориентационная нелинейности устанавливаются при  $\tau \lesssim 10^{-8}$  с. В керровских жидкостях  $\Delta n_{ор} \lesssim (10^{-11} - 10^{-12}) |E|^2$  ед. СТСЭ); стрикция дает близкие или меньшие значения  $\Delta n_{стр} \sim (\rho_0 / u^2) (\partial n / \partial \rho) |E|^2$ , где  $u$  – скорость звука. При значениях параметров из п.3  $\Delta n_c / \Delta n_{ор} \gtrsim 10^6 - 10^7 \tau$  с, т. е. в экспериментально достижимой окрестности точки расщепления КМ преобладает при  $\tau \gtrsim 0,1$  мкс.

Тепловой механизм в жидкостях, как правило, дефокусирующий; из уравнения теплопроводности следует, что

$$\Delta n_T \approx \delta n_0 v (\partial n / \partial T) |E|^2 \tau / 8\pi \rho_0 c_p, \quad (6)$$

при  $\tau < \tau_T = a^2 \rho_0 c_p / k$  – время установления температурного распределения,  $\delta$  и  $k$  – коэффициенты поглощения и теплопроводности,  $c_p$  – теплоемкость,  $v$  – фазовая скорость. Вблизи точки расщепления от  $\Theta$  в (6) зависит только  $c_p \sim \Theta^{-a}$ ,  $a \approx 0, 1$ , поэтому  $\tau_T \sim 10^{-4}$  с. Растворов, в которых  $\Delta n_c > |\Delta n_T|$ , немного: при лучших значениях параметров из п. 3 требуется  $\delta (\partial n / \partial T) \lesssim 10^{-8} - 10^{-9} \text{ см}^{-1} \cdot \text{К}^{-1}$ .

5. Дальнейшее исследование должно включать детализацию волновой картины СФ. Пороговый параметр здесь – плотность энергии, поэтому неоднородности исходного профиля будут расти быстрее, чем в известных механизмах; это может снижать реальный порог. Само понятие порога нуждается здесь в уточнении – уже на полуширине пучка концентрационная линза меняет знак.

При плотностях мощности, соответствующих (5), должны проявляться и более тонкие светоиндуцированные эффекты. Один из них – сдвиг критической точки. Его величину оценим из (1) в модели регулярного раствора<sup>7</sup>, используя формулу Клаузиуса – Мосотти:

$$\Delta \tilde{T} = \pi M N^2 (a_1 - a_2)^2 (n_0^2 + 2)^3 |E|^2 / 81 R \rho_0, \quad (7)$$

$a_i$  – молекулярные поляризуемости. Расчет по (7) дает при  $a = 10^{-2}$  см,  $\Delta T \sim (10^{-8} - 10^{-6}) P$  (Вт). Отметим, что  $\Delta T$  максимально на оси пучка; одно из следствий этого – своеобразное просветление опалесцирующего раствора в сильном поле.

#### Литература

1. Бункин Ф.В., Кириченко Н.А., Лукьянчук Б.С. Квантовая электроника, 1982, 9,
2. Bloembergen N., Lowdermilk W.H., Matijevic M., Wang C.S. Phys. Rev., 1971, A3, 404.
3. Бетин А.А., Пасманик Г.А., Известия ВУЗ, радиофизика, 1977, 20, 1534.
4. С. де Гроот, Мазур П. Неравновесная термодинамика. М.: изд. Мир+ 1964.
5. Анисимов М.А. УФН, 1974, 114, 249.
6. Ахманов С.А., Сухоруков А.П., Хохлов Р.В. УФН, 1967, 93, 19.
7. Пригодин И., Дефей Р. Химическая термодинамика. Новосибирск, 1966.