

# 激光溶胶的光散射特性

李 密 许 正

(中国工程物理研究院应用电子学研究所, 四川 绵阳 621900)

**摘要** 介绍了一种掺  $\text{Nd}_2\text{O}_3$  纳米颗粒的溶胶体系, 对其光散射特性和消光系数进行了理论分析和数值模拟。结果表明, 当溶胶体系中 Nd 原子的浓度为  $1.386 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ 、 $\text{Nd}_2\text{O}_3$  纳米颗粒的半径为 5 nm、相对折射率小于 1.25 时, 对 1064 nm 波长激光的散射损耗不超过  $0.002 \text{ cm}^{-1}$ 。因此, 掺  $\text{Nd}_2\text{O}_3$  纳米颗粒的溶胶体系可能是一种理想的激光介质。

**关键词** 散射; 热光畸变; 溶胶; 纳米颗粒; 米氏散射; 消光系数

**中图分类号** O436.2 **文献标识码** A **doi**: 10.3788/AOS20092909.2499

## Light Scattering Characteristics of Laser Colloid

Li Mi Xu Zheng

(Institute of Applied Electronics, China Academy of Engineering Physics, Mianyang, Sichuan 621900)

**Abstract** A kind of colloid mixed with  $\text{Nd}_2\text{O}_3$  nano-particles is introduced. The light scattering characteristics and the extinction coefficient are analyzed and simulated. When the Nd atom concentration is  $1.386 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ , the radius of  $\text{Nd}_2\text{O}_3$  nano-particles is about 5 nm and the relative refractive index is less than 1.25, the results show that the scattering loss of the laser colloid at 1064 nm wavelength is less than  $0.002 \text{ cm}^{-1}$ . Therefore, the laser colloid with  $\text{Nd}_2\text{O}_3$  nano-particles may be is a kind of excellent laser medium.

**Key words** scattering; thermo-optic distortions; colloid; nano-particles; Mie scattering; extinction coefficient

## 1 引 言

在高功率固体激光系统中, 热光畸变会导致激光光束质量和输出功率降低, 无法获得连续稳定的高光束质量、高平均功率输出, 因此减小甚至消除激光系统的热光畸变是一个重要的研究课题。目前, 热光畸变的抑制措施主要有自适应热补偿、热致退偏效应补偿以及热容工作方式等<sup>[1]</sup>。若采用流体作为激光工作介质, 则可能从根本上消除热累积效应, 从而获得连续稳定、高光束质量和高平均功率的激光输出<sup>[2]</sup>。流体状的激光介质可以采用掺  $\text{Nd}^{3+}$  的无机溶液<sup>[3~5]</sup> 或者掺钕的化合物(如  $\text{Nd}_2\text{O}_3$ 、 $\text{NdF}_3$  等)纳米颗粒的溶胶体系<sup>[6~8]</sup>。掺  $\text{Nd}^{3+}$  的无机溶液通常有较强的毒性和腐蚀性, 安全性要求很高; 而在溶胶中掺入  $\text{Nd}_2\text{O}_3$  等纳米颗粒, 其毒性和腐蚀性会大幅降低。此外, 在溶胶体系中掺入不同激光材料

(如钕、钇的化合物)的纳米颗粒, 还有可能获得多个感兴趣波长的激光输出。

本文要分析和研究的是掺  $\text{Nd}_2\text{O}_3$  纳米颗粒溶胶体系的光散射特性, 根据其散射特征计算激光在溶胶中的散射损耗, 从而判断该溶胶体系能否成为低损耗的激光工作介质。

## 2 激光溶胶的散射模型

溶胶是一相或多相颗粒分散于另一连续介质之中, 分散相(纳米微粒)与分散介质(液体或气体溶剂)之间存在物理界面。目前溶胶体系已经可应用于烟幕干扰等领域<sup>[9,10]</sup>。溶胶颗粒直径在 1~100 nm, 添加表面活性剂可防止胶粒凝聚, 激光溶胶体系同时具有激光工作物质和冷却介质的作用。光在溶胶中传输时, 由于固体颗粒与周围介质

收稿日期: 2008-10-31; 收到修改稿日期: 2009-01-02

作者简介: 李 密 (1981—), 男, 硕士, 研究实习员, 主要从事激光技术及应用方面的研究。

E-mail: limi@tsinghua.org.cn

的折射率无法达到完全匹配,因而不可避免地存在光散射<sup>[11]</sup>。光散射通常包括弹性散射和非弹性散射,其中弹性散射包括瑞利散射和米氏散射。已知 Nd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 纳米颗粒半径为  $a$ ,绝对折射率为  $n$ ,液体介质的绝对折射率为  $n_0$ ,则固体颗粒对液体介质的相对折射率  $m = n/n_0$ 。如果激光在真空中的波长为  $\lambda_0$ ,则激光在液体介质中的波长  $\lambda = \lambda_0/n_0$ ,尺度参数  $\alpha = 2\pi a/\lambda$ 。

根据 Nd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 纳米颗粒的半径与激光波长的比值  $a/\lambda$  以及相对折射率  $m$ ,可以选择瑞利散射模型、RGD 理论或者米氏散射模型来计算单个颗粒散射光强的角分布函数。

若 Nd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 纳米颗粒半径  $a < \lambda/20$ ,则可采用形式相对简单的瑞利散射模型<sup>[12]</sup>:

$$I(\theta) = \frac{16\pi^4 a^6 I_0}{\lambda^4 r^2} \frac{1 + \cos^2 \theta}{2} \left( \frac{n^2 - n_0^2}{n^2 + 2n_0^2} \right)^2. \quad (1)$$

若 Nd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 颗粒半径  $a > \lambda/20$ ,同一颗粒不同部位的散射光相互干涉(内干涉),其散射光强的角分布偏离瑞利散射模型,前向散射超过后向散射。若  $4\pi a(m-1)/\lambda \ll 1$ ,则可根据 RGD 理论在瑞利散射模型的基础上增加一个形状因子  $F(\theta)$  进行修正<sup>[13]</sup>:

$$I(\theta) = \frac{16\pi^4 a^6 I_0}{\lambda^4 r^2} \frac{1 + \cos^2 \theta}{2} \left( \frac{n^2 - n_0^2}{n^2 + 2n_0^2} \right)^2 F(\theta). \quad (2)$$

定义参数  $x = 4\pi a \sin(\theta/2)/\lambda$ ,则球形颗粒的形状因子如下:

$$F(\theta) = [3(\sin x - x \cos x)/x^3]^2. \quad (3)$$

若 Nd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 纳米颗粒半径  $a > \lambda/20$  且  $4\pi a(m-1)/\lambda \ll 1$  不成立,则需要采用形式更加复杂的米氏散射模型<sup>[14~16]</sup>,对于非偏振的入射光,其散射光强度角分布函数如下:

$$I(\theta) = I_0 \frac{\lambda^2}{8\pi^2 r^2} (A + B), \quad (4)$$

$$\begin{cases} A = \left| \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2n+1}{n(n+1)} \left[ a_n \frac{P_n^1(\cos \theta)}{\sin \theta} + b_n \frac{\partial P_n^1(\cos \theta)}{\partial \theta} \right] \right|^2, \\ B = \left| \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2n+1}{n(n+1)} \left[ b_n \frac{P_n^1(\cos \theta)}{\sin \theta} + a_n \frac{\partial P_n^1(\cos \theta)}{\partial \theta} \right] \right|^2, \end{cases} \quad (5)$$

$$\begin{cases} a_n = \frac{\psi_n(\alpha) \psi_n'(\alpha) - m \psi_n(m\alpha) \psi_n'(m\alpha)}{\chi_n(\alpha) \psi_n'(m\alpha) - m \psi_n(m\alpha) \chi_n'(\alpha)} \\ b_n = \frac{m \psi_n(\alpha) \psi_n'(m\alpha) - \psi_n(m\alpha) \psi_n'(m\alpha)}{m \chi_n(\alpha) \psi_n'(m\alpha) - \psi_n(m\alpha) \chi_n'(\alpha)} \\ \psi_n(z) = \sqrt{\pi z/2} J_{n+1/2}(z) \\ \chi_n(z) = \sqrt{\pi z/2} [J_{n+1/2}(z) - i Y_{n+1/2}(z)] \end{cases}, \quad (6)$$

其中  $P_n^1(\cos \theta)$  是以  $\cos \theta$  为变量的  $n$  阶 1 次关联的勒让德多项式,  $J_{n+1/2}(z)$  为半整数阶的第一类贝塞尔函数,  $Y_{n+1/2}(z)$  为半整数阶的第二类贝塞尔函数,  $z = \alpha$  或者  $m\alpha$ 。

理论分析表明,在颗粒半径远小于入射光波长时,根据米氏散射模型计算的结果与根据瑞利散射、RGD 理论计算结果一致,因而可以认为瑞利散射和 RGD 理论是米氏散射在小颗粒情形下的特例,故本文采用适用范围更宽的米氏散射模型进行理论分析和数值计算。

根据非偏振散射光强度分布函数,对散射光进行积分得到单个颗粒散射光功率

$$P = I_0 \frac{\lambda^2}{8\pi^2 r^2} \int_0^\pi (A + B) 2\pi r^2 \sin \theta d\theta. \quad (7)$$

若固体颗粒体积分数为  $\eta$ ,则固体颗粒的数密度  $N = 3\eta/(4\pi a^3)$ 。一般而言,当固体颗粒之间的距离 3 倍于其直径时,可忽略不同颗粒间散射光的相互干涉(外干涉),因而单位体积溶胶散射的光功率可用单个颗粒散射光功率乘以颗粒数密度表示

$$P_V = \frac{3\eta}{4\pi a^3} \frac{\lambda^2 I_0}{8\pi^2 r^2} \int_0^\pi (A + B) 2\pi r^2 \sin \theta d\theta. \quad (8)$$

从而溶胶体系的消光系数可表示为

$$\beta = \frac{3\eta \lambda^2}{16\pi^2 a^3} \int_0^\pi (A + B) \sin \theta d\theta. \quad (9)$$

### 3 激光溶胶的散射损耗

已知 Nd:YAG 中 Nd<sup>3+</sup> 的掺杂浓度为  $1.386 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ ,本文选取溶胶体系中的 Nd 原子的浓度与 Nd:YAG 一致。根据 Nd 原子的浓度和 Nd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 的密度得到 Nd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 纳米颗粒的平均间距与颗粒直径之比为 4.6,因此可按照(9)式来计算溶胶体系的消光系数。

表 1 计算参数

Table 1 The parameters of calculation

Refractive index of Nd <sub>2</sub> O <sub>3</sub> crystal	Refractive index of liquid medium	Wavelength of light in vacuum / nm	The concentration of Nd atom / cm <sup>3</sup>	Density of Nd <sub>2</sub> O <sub>3</sub> crystal g / cm <sup>3</sup>
1.80	1.33~1.60	1064	$1.386 \times 10^{20}$	7.24

根据米氏散射模型,选取的计算参数如表 1 所示,同时取  $m = 1.25$  并改变  $a/\lambda$ ,以 0 方向的散射光强为 1 得到归一化散射光强角分布,如图 1 所示;根据表 1 和(9)式计算溶胶的消光系数,如图 2 所示。

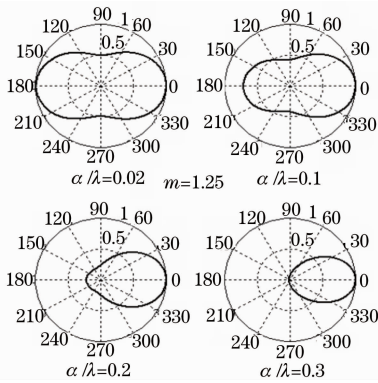


图 1 散射光强度角分布图

Fig. 1 The angle distribution of scattering light intensity

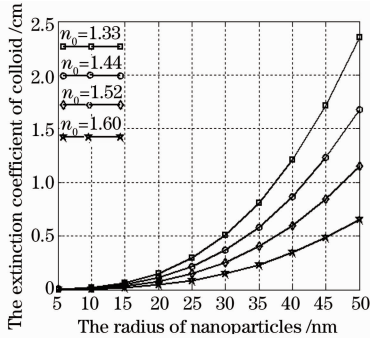


图 2 溶胶体系的消光系数

Fig. 2 The extinction coefficient of colloid

由图 1 可知,在固体颗粒的尺寸远远小于入射光波长时,前向散射光强度与后向散射光强度基本一致,与瑞利散射的计算结果完全一致;随着固体颗粒尺寸的增加,前向散射光强度逐渐超过后向散射光强度,当  $a/\lambda > 0.2$  几乎可以忽略后向散射光。

由图 2 可知,在溶胶体系中固体颗粒的体积分数恒定时,颗粒的尺寸越大,则消光系数越大。在颗粒尺寸超过 20 nm 后,消光系数几乎随着颗粒尺寸呈指数上升。另外,液体与固体颗粒折射率匹配程度越高(即相对折射率越小),消光系数越小。由于图 2 不能清楚地反映出 5~20 nm 半径范围内纳米颗粒的消光系数,故将 5~20 nm 半径范围内固体颗粒的消光系数用图 3 表示(图 3 中纵坐标为对数坐标)。已知 Nd:YAG 的散射损耗系数约为  $0.002 \text{ cm}^{-1}$ ,故当  $\text{Nd}_2\text{O}_3$  纳米颗粒的半径为 5 nm,  $m \leq 1.25$  时,溶胶体系的散射损耗不会超过 Nd:YAG 的散射损耗。如果固体颗粒与液体介质的折射率匹配程度提高,适当增大固体颗粒的尺寸可

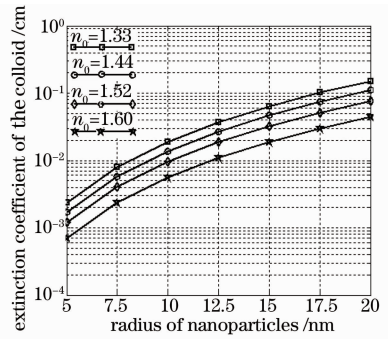


图 3 纳米颗粒溶胶体系的消光系数

维持溶胶的散射损耗不变。例如当固体与液体相对折射率  $m = 1.125$ ,其他参数不变时,纳米颗粒的半径增大为 7 nm 时的散射损耗与 Nd:YAG 的散射损耗相当。

实际上,颗粒的尺寸不可能完全一致,而是存在一定的分布。不妨认为单位体积溶胶内半径为  $a$  的颗粒数密度为  $f(a)$ ,则此时溶胶体系的消光系数可表述为

$$\bar{\beta} = \frac{\lambda^2}{4\pi} \int_{a_{\min}}^{a_{\max}} \left[ \int_0^\pi (A + B) \sin \theta d\theta \right] f(a) da. \quad (10)$$

若能够得到纳米颗粒随半径的数密度分布函数,则可根据(10)式计算出非均匀颗粒溶胶体系的消光系数。现在保持颗粒体积分数恒定,认为颗粒数密度函数为类高斯分布,中心半径  $\bar{r}$  为参变量(5 nm 和 10 nm),均方根偏差  $\sigma$  为变量。根据(7)和(10)式计算得到不同偏差对应的消光系数,并与半径为  $\bar{r}$  的均匀颗粒溶胶体系的消光系数进行比较,得到消光系数的放大倍数与相对均方根偏差  $\sigma/\bar{r}$  的曲线关系,如图 4 所示。由图 4 可知,固体颗粒分布越分散,消光系数的放大倍数越高,并且颗粒中心半径  $\bar{r}$  越小,放大效应越明显。

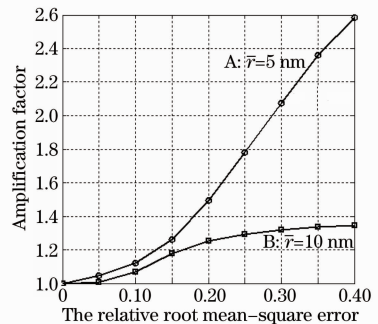


图 4 非均匀颗粒消光系数的放大倍数

Fig. 4 The amplification factor of extinction coefficient

因此,纳米颗粒的均匀性必须得到保证,如果颗

粒尺寸分布范围过宽(即颗粒的等效尺寸变大),则会导致激光在溶胶体系的传输损耗迅速上升,进而引起激光阈值大幅度提高。

## 4 结 论

介绍了一种掺杂  $\text{Nd}_2\text{O}_3$  纳米颗粒的溶胶体系,对其散射特性和消光系数进行了分析和数值模拟。数值模拟结果表明,在本文选取的参数下,当溶胶体系中  $\text{Nd}_2\text{O}_3$  纳米颗粒的半径不超过 5 nm、固体与液体的相对折射率  $m \leq 1.25$ ,其散射损耗与 Nd:YAG晶体的散射损耗相当。纳米颗粒分布的集中性越差,消光系数的放大效应越明显,激光在溶胶中的传输损耗越大。因此,当  $\text{Nd}_2\text{O}_3$  纳米颗粒的尺寸控制在一定范围内时,该溶胶体系对激光的传输损耗很低,故有可能用作高能激光体系的工作介质,可进一步深入开展相关的实验研究。

## 参 考 文 献

- 1 Su Y, Wan M. *High Energy Laser System* [M]. Beijing: National Defense Press, 2004: 101~105  
苏毅,万敏. 高能激光系统[M]. 北京:国防出版社, 2004: 101~105
- 2 Li M, Su Y, Song Y S *et al.*. Research of multi-segments liquid laser system connected in series [J]. *Acta Optica Sinica*, 2008, **28**(12): 2349~2353  
李密,苏毅,宋影松等. 多增益段串接的液体激光系统特性研究[J]. 光学学报, 2008, **28**(12): 2349~2353
- 3 Brian J, Earl R, Thomas C. High average power laser gain medium with low optical distortion using a transverse flowing liquid host [P]. US006914926B2
- 4 Ye Y X, Fan D Y. Progress of rare-earth-doped liquid laser [J]. *Laser and Optoelectronics Progress*, 2007, **44**(1): 45~50  
叶云霞,范滇元. 掺稀土离子液体激光器的研究进展[J]. 激光与光电子学进展, 2007, **44**(1): 45~50
- 5 Ye Y X, Yu K H, Qian L J *et al.*. Spectral properties of hydrogen-containing organic solution of neodymium chelate [J]. *Acta Physical Sinica*, 2006, **55**(12): 6424~6429  
叶云霞,余柯涵,钱列加等.  $\text{Nd}^{3+}$ 螯合物的含氢有机溶液光谱性能研究[J]. 物理学报, 2006, **55**(12): 6424~6429
- 6 Rice, Robert. R. *Liquid Laser with Colloidal Suspension of Lasant Nano-Particles* [P]. World Intellectual Property Organization, WO 2007/095246 A1
- 7 Yu R B, Yu K H, Wei W *et al.*.  $\text{Nd}_2\text{O}_3$  Nano-particles modified with a silane coupling agent as a liquid laser medium [J]. *Advanced Materials*, 2007, **19**: 838~842
- 8 Xu C H, Jia R P, Ouyang C F. Preparation and optical property of ploy (vinylidene difluoride)/ $(\text{Y}_{0.97}\text{Eu}_{0.03})_2\text{O}_3$  rare-earth nanocomposite [J]. *Chin. Opt. Lett.*, 2008, **6**(10): 763~766
- 9 Wang Y L, Liu X D, Dai J M. Analysis of smog obscure power on visible light based on laser transmission model [J]. *Chinese J. Lasers*, 2008, **35**(9): 1415~1418  
王英立,刘晓东,戴景民. 基于激光透射模型烟雾对可见光遮蔽能力分析[J]. 中国激光, 2008, **35**(9): 1415~1418
- 10 Wang H X, Liu D Z, Song Z B. Study on extinction characteristic of nano-graphite smoke screen to infrared laser[J]. *Laser and Infrared*, 2007, **37**(3): 262~265  
王红霞,刘代志,宋子彪. 纳米石墨烟幕对红外激光的消光特性研究[J]. 激光与红外, 2007, **37**(3): 262~265
- 11 Ye Y X, Fan D Y. Theoretical analysis and numerical calculation of transmitted light intensity of light scattering from nano-particle random scatterers [J]. *Acta Optica Sinica*, 2007, **27**(5): 951~956  
叶云霞,范滇元. 光通过纳米颗粒随机散射体透射光强的计算及分析[J]. 光学学报, 2007, **27**(5): 951~956
- 12 Zhao Z G. *Applied Colloid and Surface Chemistry* [M]. Beijing: Chemistry Industry Press, 2008: 64~68  
赵振国. 应用胶体与界面化学[M]. 北京:化学工业出版社, 2008: 64~68
- 13 Zhang L J, Zheng Z. *Colloid and Interface Chemistry* [M]. Guangzhou: South China University of Technology Press, 2006: 49~58  
章莉娟,郑忠. 胶体与界面化学[M]. 广州:华南理工大学出版社, 2006: 49~58
- 14 Zhang M S. *Laser Scattering Spectrums* [M]. Beijing: Science Press, 2008: 134~137  
张明生. 激光光散射谱学[M]. 北京:科学出版社, 2008: 134~137
- 15 Shen J Q, Liu L. An improved algorithm of classical mie scattering calculation [J]. *China Powder Technology*, 2005, **12**(4): 1~5  
沈建琪,刘蕾. 经典 Mie 散射的数值计算方法改进[J]. 中国粉体技术, 2005, **12**(4): 1~5
- 16 Wang X D, Wu J, Qiu R. Improved algorithm for Mie scattering coefficient [J]. *Opto-Electronic Engineering*, 2006, **33**(3): 24~27  
王小东,吴健,邱荣等. Mie 散射系数的改进算法[J]. 光电工程, 2006, **33**(3): 24~27