

УДК 537.632,535.4 + 538.9

© Я. А. Фофанов, И. М. Соколов, И. В. Плешаков, В. В. Манойлов,
И. В. Заруцкий, А. С. Курапцев, Б. В. Бардин, 2019

РАЗВИТИЕ ПРЕЦИЗИОННЫХ ЛАЗЕРНЫХ МЕТОДОВ КОЛИЧЕСТВЕННОГО ПОЛЯРИЗАЦИОННО-ОПТИЧЕСКОГО АНАЛИЗА КОНДЕНСИРОВАННЫХ СРЕД (ОБЗОР)

В настоящем обзоре представлены результаты выполненных в ИАП РАН исследований, направленных на дальнейшее развитие лазерных методов количественного поляризационно-оптического анализа конденсированных сред. Основное внимание уделено исследованиям поляризационно-оптических характеристик магнитных наножидкостей в широком диапазоне концентраций. Экспериментальные данные, полученные для наножидкостей на основе магнетита в керосине, показывают, что развиваемые подходы и их экспериментальная реализация способны обеспечить очень высокую чувствительность, позволяющую выполнять эксперименты с магнитными наножидкостями при весьма значительном их разбавлении. Самое сильное разбавление, при котором поляризационные отклики были надежно зарегистрированы, соответствует концентрации твердой (магнитной) фазы 10^{-6} . Полученные данные указывают также на единый процесс образования магнитооптических откликов в исследованном диапазоне концентраций.

В теоретической части обзора описаны сравнительные исследования поляризационных характеристик разбавленных магнитных наножидкостей и ансамблей точечных рассеивателей. Для описания взаимодействия лазерного излучения с резонансными ансамблями развит микроскопический подход, основанный на решении уравнения Шредингера для объединенной системы, состоящей из атомов ансамбля и электромагнитного излучения. Этот подход применен для анализа характера рассеяния света ансамблями примесных центров, имплантированных в тонкие пленки диэлектрика. Установлено, что по статистическому критерию Стьюдента подтверждается гипотеза о подобии поляризационных откликов магнитных наножидкостей при уменьшении концентрации магнитной фазы на несколько порядков. По критерию Фишера, вычисленные коэффициенты регрессии статистически значимы, а ошибки регрессии минимальны для полиномов 4-й степени. Описана аппроксимация магнитооптических откликов аналитическими зависимостями, полученными на основе модели ориентационной упорядоченности магнитных частиц во внешнем магнитном поле. Аналитическая аппроксимация выполнена методом наименьших квадратов путем вариации двух безразмерных параметров, один из которых пропорционален объемной концентрации магнитных наночастиц и не зависит от поля, а второй пропорционален энергии взаимодействия частиц с внешним магнитным полем и не зависит от концентрации. Полученные в процессе аппроксимации данные указывают на правильный выбор физической модели и следующей из нее аппроксимирующей (аналитической) зависимости. При этом найденные значения безразмерных параметров дают численные значения соотношений между физическими параметрами исследуемой магнитной системы и их взаимосвязи с наблюдаемыми поляризационными откликами.

Развиваемые в рассмотренных работах прецизионные методы лазерного поляризационно-оптического анализа совместно с выполненным статистическим анализом полученных данных составляют основу поляризационно-оптической нанодиагностики (количественной характеристики) магнитных наножидкостей. Предлагаемые подходы позволяют также сравнивать поляризационные магнитооптические характеристики систем различной природы и состава. Это открывает перспективы более широкого, информационного подхода к дальнейшему развитию и применению высокочувствительных лазерных методов поляризационно-оптического анализа для сравнительных исследований магнитных наножидкостей и других упорядоченных веществ, материалов и систем.

Кл. сл.: лазер, поляризационно-оптический анализ, магнитные наножидкости, оптоэлектроника, магнитооптика, проверка статистических гипотез, лазерная поляризационно-оптическая нанодиагностика

ВВЕДЕНИЕ

Обзор представляет результаты работ в ИАП РАН по развитию лазерных методов поляризационно-оптического анализа конденсированных сред. В центре внимания исследований — изучение возможностей применения развиваемых

методов для исследований магнитооптических характеристик магнитных наножидкостей преимущественно при малых концентрациях, обычно используемых в оптических системах. Теоретическая часть включает в себя сравнительный анализ формирования поляризационных

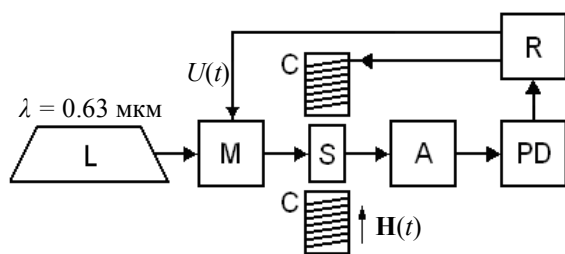


Рис. 1. Блок-схема измерительной установки. L — лазер; M — модулятор; S — образец; C — двухсекционный соленоид; A — анализатор; PD — фотоприемное устройство; R — управление и регистрация

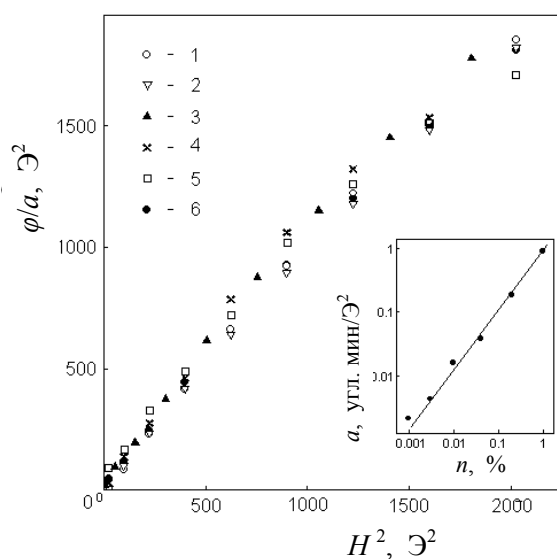


Рис. 2. Нормированная величина отклика в зависимости от квадрата магнитного поля для разных концентраций n .

1 — $n = 1\%$, 2 — $n = 0.2\%$, 3 — $n = 0.04\%$, 4 — $n = 0.01\%$, 5 — $n = 0.003\%$, 6 — $n = 0.001\%$.
На вставке: зависимость коэффициента a от концентрации

откликов магнитных наножидкостей и ансамблей точечных рассеивателей, а также статистический анализ полученных экспериментальных результатов. Даны рекомендации по применению скалярной и векторной моделей для описания флуктуаций анизотропии конденсированных сред и кооперативных эффектов в плотных атомных ансамблях.

Результаты исследований важны для дальнейшего изучения возможностей применений магнитных наножидкостей и плотных атомных ансамблей для обработки информации, в оптоэлектронике, биомедицине и т. д.

1. ПОЛЯРИЗАЦИОННАЯ РЕГИСТРАЦИЯ ЗОНДИРУЮЩЕГО ИССЛЕДУЕМЫЕ ОБЪЕКТЫ ЛАЗЕРНОГО ИЗЛУЧЕНИЯ

На рис. 1 показана упрощенная блок-схема, иллюстрирующая принцип поляризационно-оптических измерений, адаптированных применительно к исследованиям поляризационных откликов магнитных наножидкостей [1–5]. Излучение лазера L ($\lambda = 0.63$ мкм) проходило через управляемый внешним сигналом $U(t)$ модулятор M, помещенный в магнитное поле образец S и анализатор A. Падающий на S свет был модулирован по состоянию поляризации. Прошедшее через образец излучение детектировалось фотоприемным устройством PD, и далее переменный электрический сигнал обрабатывался и отображался в системе управления и регистрации R. Линейно развертываемое во времени поперечное магнитное поле $H(t)$ создавалось двухсекционным соленоидом C, через который из блока R пропускался медленно изменяющийся ток. Кювета с исследуемой жидкостью размещалась в разрыве между секциями C. В процессе измерений магнитное поле линейно сканировалось от -45 до $+45$ Э.

В предположении о малости вносимой исследуемым объектом разности фаз $\Delta \ll 1$ рад регистрируемый сигнал φ ("поляризационный отклик") пропорционален Δ , т.е. установка обеспечивала возможность измерения величины эффекта двулучепреломления (поляризационного отклика) [2–5]. Исследуемый объект представлял собой коллоидный раствор магнетита (Fe_3O_4) в керосине, полученный по технологии, широко используемой для создания подобных композитов [6]. Из исходного раствора с концентрацией твердой фазы 1 об.% был подготовлен набор проб с концентрациями вплоть до 10^{-4} об.%.

2. ИССЛЕДОВАНИЯ ОСОБЕННОСТЕЙ ПОЛЯРИЗАЦИОННЫХ ХАРАКТЕРИСТИК МАГНИТНЫХ НАНОЖИДКОСТЕЙ В ШИРОКОМ ДИАПАЗОНЕ КОНЦЕНТРАЦИЙ

Результаты экспериментальных исследований, представляющие собой зависимости наблюдаемых поляризационных откликов от напряженности магнитного поля, показаны на рис. 2. Из рисунка видно, что при разных концентрациях магнитной фазы качественный ход кривых $\varphi(H)$ одинаков. Они похожи на параболы, что не противоречит результатам работ [7, 8], продемонстрировавших квадратичную зависимость отклика феррожидкости φ от H в малых полях: $\varphi(H) = a(n)H^2$, где $a(n)$ — коэффициент, зависящий от концентрации n .

Приведенные данные показывают, что отклики регистрируются до $n = 10^{-5}$, что является демонстрацией высокой чувствительности усовершенствованной экспериментальной установки.

Важный результат выполненных опытов заключается также в обнаруженном сохранении качественного подобия поведения магнитооптических откликов при значительном уменьшении концентрации исследуемой магнитной наножидкости. Исходя из этого, можно говорить о поляризационной корреляции откликов для разных концентраций. Из полученных данных следует, что развиваемый нами подход и его экспериментальная реализация способны обеспечить очень высокую чувствительность, позволяющую выполнять эксперименты с магнитными наножидкостями при весьма значительном их разбавлении. Самое сильное разбавление, при котором поляризационные отклики были надежно зарегистрированы, соответствовало концентрации твердой (магнитной) фазы 10^{-6} .

3. ТЕОРЕТИЧЕСКИЙ АНАЛИЗ ПРОЦЕССОВ ФОРМИРОВАНИЯ И РЕГИСТРАЦИИ ПОЛЯРИЗАЦИОННЫХ ОТКЛИКОВ АНСАМБЛЕЙ ТОЧЕЧНЫХ РАССЕИВАТЕЛЕЙ

3.1. Плотные ансамбли неподвижных точечных рассеивателей

В этом разделе представлен анализ формирования поляризационных откликов резонансных и нерезонансных ансамблей точечных рассеивателей. Рассмотрены также основы количественного анализа магнитооптических откликов феррожидкостей.

Ряд методов оптического детектирования основан на анализе селективного отражения резонансного или квазирезонансного света от исследуемой среды. Среди различных исследуемых объектов в последнее время особое место занимают неупорядоченные атомные ансамбли, движением частиц которых можно пренебречь. Это позволяет при теоретическом анализе моделировать исследуемую среду набором неподвижных точечных рассеивателей. Подобная модель может быть использована, в частности, для описания примесных центров в твердых телах и холодных, но не вырожденных атомных ансамблях, подготовленных в специальных атомных ловушках.

3.1.1. Когерентное зеркальное отражение резонансного света от плотного и плоского слоев неподвижных точечных рассеивателей

Одним из основных параметров, определяющих свойства исследуемых сред, является плот-

ность атомов. Для разреженных ансамблей, в которых среднее межатомное расстояние много больше длины волны квазирезонансного излучения, отдельные атомы можно рассматривать как независимые рассеиватели электромагнитного излучения. Наиболее ярко когерентные кооперативные эффекты наблюдаются в таких ансамблях при рассеянии вперед [9].

Взаимодействие резонансного света с плотным ансамблем, имеющим высокую концентрацию атомов, имеет ряд важных особенностей. Межатомное диполь-дипольное взаимодействие, характерное для таких сред, существенно влияет на их оптические характеристики [10]. Коллективные эффекты вызывают зависящие от плотности сдвиги атомного перехода, а также искажения формы спектральной линии [11–13]. Реальная часть диэлектрической проницаемости плотного атомного ансамбля может быть отрицательной в некоторых спектральных областях [14, 15].

Диполь-дипольное взаимодействие усиливает когерентное рассеяние света от плотного атомного ансамбля как в обратном, так и в зеркальном направлениях. При этом очень важно, что диполь-дипольное взаимодействие проявляется по-разному для пространственных областей внутри среды и вблизи ее поверхности [16]. В основном за формирование отраженного пучка отвечают атомы, располагающиеся в приграничной области. В работе [17] мы доказали, что резонансное зеркальное отражение от плотного полубесконечного атомного ансамбля когерентно, но отражательная способность не может быть описана стандартными уравнениями Френеля.

В современных исследованиях большое внимание уделяется плотным, но тонким средам, в частности тонким пленкам. Это внимание связано с некоторыми интересными особенностями кооперативных эффектов в таких средах (см., например, [18]). Здесь мы исследуем резонансное зеркальное отражение от плоского слоя атомной среды в зависимости от ее оптической толщины. Это позволит нам, в частности, проанализировать характер формирования отраженного сигнала в тонких пленках, все атомы которых, по существу, находятся в пограничных областях.

3.1.2. Основы теоретического подхода

Рассмотрим систему, состоящую из рассеивателей (атомов) и света. Ее эволюцию будем описывать на основе разработанного ранее общего квантового микроскопического подхода [19, 20]. Этот подход основан на решении нестационарного уравнения Шредингера для волновой функции объединенной системы, которая состоит из атомов и электромагнитного поля, включая вакуумный термостат.

Рассмотрим V-схему атомных уровней, в которой основное состояние характеризуется угловым моментом $J=0$, а возбужденное — $J=1$. При этом возбужденное состояние содержит три зеемановских подуровня, различающихся проекцией углового момента на ось квантования $z - m = -1; 0; 1$. Обратим внимание, что очень важно учитывать зеемановскую структуру возбужденного состояния, поскольку обычно применяемая стандартная двухуровневая скалярная модель не позволяет корректно описать эффекты, связанные с векторным характером электромагнитного поля. Эти эффекты сильно влияют на рассеяние света в случае плотных атомных ансамблей.

Гамильтониан \hat{H} объединенной системы представим в виде суммы $\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{V}$, где \hat{H}_0 — сумма гамильтонианов свободных атомов \hat{H}_a , гамильтониана свободного поля \hat{H}_f , а оператор \hat{V} описывает взаимодействия атомов. Оператор взаимодействия \hat{V} может быть записан в дипольном приближении

$$\hat{V} = -\sum_a \mathbf{d}^a \mathbf{E}(\mathbf{r}_a). \quad (1)$$

В этом выражении \mathbf{d}^a — оператор дипольного момента перехода атома a ; $\mathbf{E}(\mathbf{r}_a)$ — полевой оператор; \mathbf{r}_a — радиус-вектор, описывающий пространственное положение атома a . Волновую функцию объединенной атомно-полевой системы будем искать в виде разложения по набору собственных функций оператора \hat{H}_0 : $\{|l\rangle\}$.

Предположим, что пробное излучение является слабым и когерентным. В квантовой оптике доказано, что слабое и когерентное состояние можно аппроксимировать как суперпозицию вакуума и однофотонных состояний [21]. Это позволяет ограничить общее число квантовых состояний, учитываемых следующим набором:

1) $\psi_g = |g, g, \dots, g \otimes |vac\rangle$ — вакуумное состояние (все атомы находятся в основном состоянии, и электромагнитное поле находится в вакуумном состоянии);

2) однократно возбужденные атомные состояния

$$\psi_{e_a} = |g, \dots, g, e, g, \dots, g\rangle \otimes |vac\rangle;$$

3) резонансные полевые состояния

$$\psi_g = |g, \dots, g\rangle \otimes |\vec{k}, \alpha\rangle;$$

4) нерезонансные полевые состояния с одним фотоном и двумя возбужденными атомами

$$\psi_{e_a e_b} = |g, \dots, g, e, g, \dots, g, e, g, \dots, g\rangle \otimes |\vec{k}, \alpha\rangle.$$

Амплитуда состояния ψ_g не изменяется при эволюции системы, потому что переходы в это состояние из других состояний, которые принимаются во внимание, невозможны. Переход из ψ_g в любое другое состояние также невозможен. Нерезонансные состояния связаны с отношением неопределенности Гейзенберга к времени и энергии. Эти состояния важны в случае плотных атомных ансамблей для правильного описания диполь-дипольного взаимодействия на коротких меж-атомных расстояниях.

Полный набор уравнений для амплитуд состояний является бесконечным из-за бесконечного числа состояний поля. Однако можно выделить конечное подмножество уравнений $3N$ для амплитуд однократно возбужденных атомных состояний. В представлении Фурье — это система линейных алгебраических уравнений. Ее формальное решение может быть записано следующим образом:

$$b_{e_a}^m(\omega) = \sum_{b, m'} R_{e_a^m, e_b^{m'}}(\omega) b_{e_b^{m'}}^0(\omega). \quad (2)$$

Амплитуды однократно возбужденных атомных состояний, заданные уравнением (2), позволяют найти явные выражения для амплитуд остальных учитываемых в расчете квантовых состояний, а знание всех амплитуд означает знание волновой функции и всех наблюдаемых. Здесь основной интерес представляют характеристики рассеянного излучения, прежде всего его угловое распределение. Интенсивность рассеянного света рассчитывается как сумма индивидуальных вкладов всех случайно распределенных атомов, поэтому для любого фиксированного распределения она содержит спекловую структуру. В экспериментах измеряется излучение, усредненное по площади фотоприемника и интегрированное по определенному временному интервалу. Поэтому в расчетах выполнено усреднение наблюдаемых по случайным пространственным конфигурациям атомов методом Монте-Карло.

3.1.3. Результаты расчета

Вначале рассчитано угловое распределение рассеянного излучения от плотного, но оптически тонкого атомного ансамбля в геометрии плоского слоя. Плоскость падения обозначена XZ, угол падения обозначим θ . Концентрацию атомов выберем равной $n = 0.05$. Это соответствует среднему межатомному расстоянию $r = 2.71$ (далее в этой работе использовано обратное волновое число резонансного излучения в качестве единицы длины). Зондирующее излучение считается точно резонансным со свободным атомом (т.е. его отстройка

$\Delta = 0$), а оптическая толщина слоя считается $b = 0.2$. Оптическая толщина b , как обычно, определяется как отношение толщины слоя L_z к длине свободного пробега фотона L_{ph} . Последняя связана с мнимой частью комплексного волнового числа волны, распространяющейся через среду, простым уравнением $L_{ph} = 1 / [2 \text{Im}(k)]$. Комплексное волновое число k было рассчитано ранее [15].

В результате расчета показано, что мощность света, рассеянного в единичном сферическом угле, зависит от полярного угла как для s-поляризации, так и для p-поляризации зондирующего излучения. При этом максимум излучения соответствует хорошо известному закону отражения, когда угол падения равен углу отражения.

Заметим, что в процессе расчета нами определялась как когерентная, так и некогерентная составляющие рассеянного излучения. Первая получалась по усредненным значениям напряженности рассеянной волны, а вторая — вычитанием когерентного вклада из полной интенсивности. Наш анализ показывает, что соотношение между когерентной составляющей и полной мощностью излучения в отраженном сигнале близко к 1 для рассматриваемых здесь параметров.

Зависимость мощности рассеянного излучения от азимутального угла может быть рассчитана аналогичным образом. Полная мощность отраженного света может быть получена как интеграл от углового распределения рассеянного света по всему сферическому углу. Эта мощность зависит от частоты зондирующего излучения, его поляризации и угла падения, а также размеров образца. Наиболее интересным и практически важным, на наш взгляд, является зависимость полной мощности отраженного света от оптической толщины слоя. В широком диапазоне она оказалась немонотонной с характерными осцилляциями. При этом при малой оптической толщине мощность нарастает, как квадрат оптической толщины. Это может быть объяснено тем, что отраженный свет является когерентным, поэтому его мощность пропорциональна квадрату числа атомов.

При дальнейшем увеличении оптической толщины наблюдаются колебания, связанные с интерференцией волн, рассеянных различными атомами. Эта интерференция может быть как конструктивной, так и деструктивной — в зависимости от толщины слоя. Заметим, что значение мощности при первом минимуме приблизительно равно его асимптотическому значению, при втором минимуме — даже больше, чем асимптотическое значение. Казалось бы, этот результат находится в противоречии с данными из [17], где мы проана-

лизировали частичный вклад тонких слоев, расположенных на разных расстояниях от поверхности, в полную мощность излучения, отраженного от оптически толстой среды. Но это не является реальным противоречием, поскольку в настоящей работе мы изучаем рассеяние света на целом атомном ансамбле и не анализируем вклады частей образца, как в работе [17].

Анализ затухания колебаний полной мощности в зависимости от оптической толщины показал, что амплитуда максимумов уменьшается приблизительно экспоненциально. Для s-поляризации показатель экспоненты приблизительно равен $\alpha = 0.65$ и для p-поляризации $\alpha = 0.69$. Заметим, что $\alpha < 1$ для обеих поляризаций. По нашему мнению, это можно объяснить тем, что коллективные эффекты проявляются по-разному для пространственных областей внутри среды и вблизи ее поверхности. В рамках используемого здесь подхода рассчитана атомная поляризация с учетом вторичных волн, испускаемых всеми атомами, включая волны, распространяющиеся в обратном направлении.

Отражательная способность R определяется как отношение полной мощности отраженного света P к P_0 — полной мощности света, рассеянного во всех направлениях. P_0 можно получить, используя оптическую теорему. На рис. 3 показана отражательная способность в зависимости от оптической толщины. В случае малой оптической толщины зависимость $R(b)$ близка к линейной. При дальнейшем увеличении оптической толщины наблюдаем колебания, которые объясняются интерференцией волн, рассеянных различными атомами. Штрихпунктирные горизонтальные линии указывают на асимптоту. Коэффициент затухания колебаний зависимости $R(b)$ составляет $\alpha = 1.22$ для s-поляризации и $\alpha = 1.26$ для поляризации p. Это превышает затухание зависимости $P(bz)$, показанной на рис. 3, почти в два раза. Заметим, что отражательная способность не зависит от размеров передней поверхности l_x и l_y (за исключением случая, когда эти размеры меньше или сопоставимы с длиной волны). Таким образом, результат, показанный на рис. 3, справедлив и в предельном случае для отражения от среды, бесконечной вдоль направлений X и Y .

Таким образом, проанализирован характер отражения резонансного света от неупорядоченного ансамбля неподвижных атомов, имеющего форму плоского слоя. Плотность атомов рассматривалась большой, так что среднее межатомное расстояние сравнимо с резонансной длиной волны и длиной свободного пробега фотона. Теоретический подход основан на нестационарном уравнении

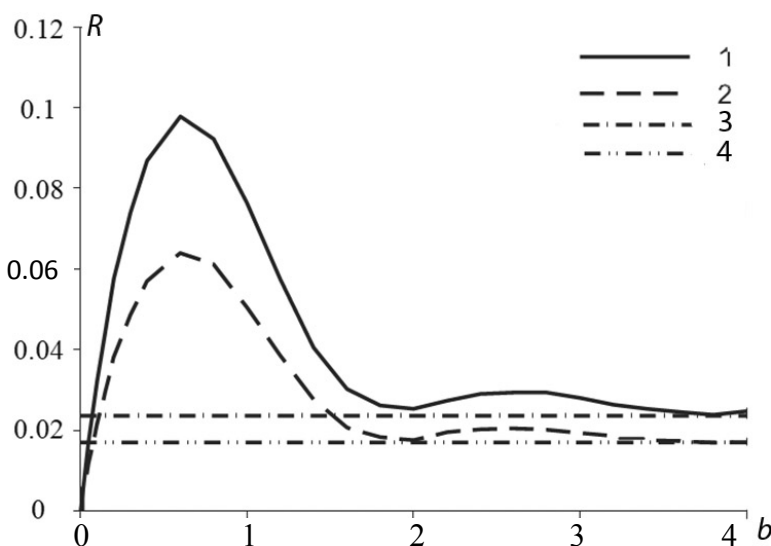


Рис. 3. Зависимость коэффициента отражения от оптической толщины плоского слоя. 1 — s-поляризация, 2 — p-поляризация, 3, 4 — асимптоты. $n = 0.05$, $\Delta = 0$, $\theta = 17.5^\circ$

Шредингера для системы, состоящей из атомов и электромагнитного поля. Изучено угловое распределение рассеянного излучения. Выполненный анализ показывает, что зеркально отраженный свет почти когерентен. Основное внимание уделено зависимости мощности отраженного света P и коэффициента отражения R от оптической толщины слоя b . Показано также, что в случае оптически тонкой плиты ($b < 1$) $P \sim b^2$ и $R \sim b$. При дальнейшем увеличении b наблюдаются колебания этих величин, обусловленные интерференцией электромагнитных волн, рассеянных на различных атомах (эта интерференция может быть как конструктивной, так и деструктивной).

Выполненный здесь микроскопический анализ резонансного отражения может быть полезен для дальнейшего совершенствования методов оптического детектирования, основанных на анализе когерентного рассеяния резонансного света. Полученные результаты могут быть полезны также для случая отражения света от тонких пленок. Используемый здесь подход может быть изменен применительно к описанию нерезонансного рассеяния света от ансамбля точечных рассеивателей. В частности, плотные ансамбли магнитных наночастиц в присутствии магнитного поля представляют особый интерес, т. к. внешнее магнитное поле дает возможность управления анизотропией среды [5, 6, 22, 23].

3.2. Развитие основ количественного анализа магнитооптических откликов магнитных наножидкостей

В этом подразделе представлен анализ слабых поляризационных откликов ансамблей точечных нерезонансных рассеивателей. Даны рекоменда-

ции по применению скалярной и векторной моделей для описания анизотропии ансамблей магнитных частиц. Выполненный далее анализ этой проблемы становится в настоящее время особенно актуальным, т. к. благодаря развитию высокочувствительных методов лазерного поляризационно-оптического анализа появляется возможность изучения поляризационных откликов магнитных наножидкостей при их весьма значительном разбавлении в диапазоне, достигающем четырех и более порядков по концентрации (от $1 \cdot 10^{-2}$ до $1 \cdot 10^{-6}$) [5, 23].

3.2.1. Магнитные наножидкости малых концентраций

Двулучепреломление в магнитных наножидкостях может быть обусловлено различными процессами [6–8, 24]. Одним из главных принято считать агрегирование с образованием вытянутых вдоль направления магнитного поля структур (кластеров). При этом при малой величине концентрации магнитной фазы влияние агрегирования должно уменьшаться. Однако, согласно данным выполненным нами экспериментов, поляризационные магнитооптические отклики сохраняют подобие при очень существенном изменении концентрации. Наблюдаемое совпадение характера зависимостей показывает, что при изменении концентрации природа эффекта остается одной и той же.

Другой причиной появления оптической анизотропии при намагничивании является ориентационная упорядоченность магнитных наночастиц [7, 8]. Для магнитных наножидкостей слабой концентрации такой механизм мог бы быть, по видимому, основным, но в то же время и обуслов-

ленное поле агрегирование полностью исключить нельзя. В исследуемых образцах могли присутствовать первичные образования, служащие далее центрами зарождения агломератов.

В целом ряде практически важных случаев представляют большой интерес исследования образцов, обладающих малой оптической анизотропией [2, 3, 25–28]. Естественной мерой малости при этом может быть соотношение

$$\Delta \ll 1 \text{ рад.} \quad (3)$$

Здесь Δ — разность набегов фаз зондирующего излучения, линейно поляризованного по главным осям исследуемого объекта. Исследуемые образцы, удовлетворяющие критерию (3), можно называть "слабыми образцами" или образцами, обладающими "слабой анизотропией".

Слабые отклики, т.е. отклики, регистрируемые от образцов со слабой анизотропией, обладают помимо линейности еще одним очень важным свойством — аддитивностью: суммарный отклик φ_{Σ} системы образцов равен сумме их отдельных откликов φ_i , измеренных независимо [3, 29]:

$$\varphi_{\Sigma} = \sum_i \varphi_i. \quad (4)$$

Здесь следует пояснить, что в известной степени соотношение (4) соответствует скалярной, или квазивекторной модели, в которой отклик ансамбля частиц находится сложением всех откликов отдельных частиц данного ансамбля. Необходимо отметить, что скалярная модель широко используется и часто, по-видимому, без достаточных оснований.

Аддитивность и линейность откликов существенно упрощают теоретический анализ результа-

тов высокочувствительных поляризационно-оптических исследований. Например, это дает возможность выполнить полный анализ переноса поляризованного света в объектах с неоднородной оптической анизотропией, зондируемых лазерным излучением с глубокой модуляцией поляризации [26]. Однако пользоваться скалярной моделью можно не всегда. В общем случае необходимо использовать векторную модель, учитывающую поляризацию света. Как известно, в таких случаях необходимо перемножать матрицы Джонса отдельных случайно ориентированных частиц, входящих в рассматриваемый ансамбль [3].

3.2.2. Аппроксимация для слабых полей

Учитывая, что зарегистрированные нами поляризационные отклики являются слабыми, будем аппроксимировать экспериментальные зависимости величины отклика магнитных наножидкостей от магнитного поля полиномом второй степени [5, 23, 24, 28, 29]. Предположим, что отклик измерен в N точках от $i = 1$ до $i = N$, причем каждое измеренное значение отклика $y(i)$ соответствует определенному значению магнитного поля $H(i)$:

$$y(i) = k_2 \cdot H(i)^2 + k_1 \cdot H(i) + k_0. \quad (5)$$

Индексы коэффициентов k соответствуют степени полинома. Проведем теперь количественное сравнение отклонений аппроксимирующих полиномов для результатов экспериментов с магнитными наножидкостями различных концентраций [5, 30]. Номера экспериментов (опытов), соответствующие значения концентрации исследуемых наножидкостей и полученные по формуле (5) значения коэффициентов k представлены в табл. 1.

Табл. 1. Значения концентрации и коэффициентов квадратичной зависимости для каждого эксперимента

Номер эксперимента	Концентрация магнитной НЖ, %	Коэффициент k_2	Коэффициент k_1	Коэффициент k_0
1	1	0.000332	0.009830	-0.014274
2	1	0.000323	0.010286	-0.016859
3	0.2	0.000356	0.009086	-0.029623
4	0.04	0.000269	0.014139	-0.044834
5	0.01	0.000344	0.009158	-0.012889
6	0.003	0.000322	0.009964	-0.010816
7	0.001	0.000342	0.008901	0.021204
8	0.0001	-0.000151	0.032268	-0.070467
9	0.0001	-0.000124	0.028847	-0.070467

Для сравнения отклонений аппроксимирующих полиномов от экспериментальных данных были вычислены евклидовы расстояния между аппроксимирующими полиномами и экспериментальными данными. Вычисленные значения отклонений экспериментальных данных от усредненного полинома были проверены по критерию Колмогорова на принадлежность к распределению Гаусса. Проверка показала, что гипотеза о принадлежности этих отклонений к распределению Гаусса подтвердилась для всех экспериментов кроме эксперимента 9. Статистическая гипотеза о подобию отклонений экспериментальных данных от усредненного квадратичного полинома для экспериментов 1–6 проверялась по критерию Стьюдента [31, 32].

На рис. 4 представлены графики функций плотностей вероятностей отклонений экспериментальных данных от усредненного полинома для экспериментов 1–6. Перед вычислением отклонений от усредненного полинома из всех экспериментальных данных была вычтена постоянная составляющая. В качестве постоянной составляющей использовалось среднее значение коэффициента k_0 , представленного в табл. 1.

Статистическая гипотеза о равенстве математических ожиданий экспериментальных данных от усредненного полинома второй степени подтверждается для всех экспериментов, кроме 9-го, со стандартным уровнем значимости (significance level) 5 %. Данная гипотеза подтверждается для указанных экспериментов только для данных, из которых вычтена постоянная составляющая.

4. ОЦЕНКА СТАТИСТИЧЕСКОЙ ЗНАЧИМОСТИ КОЭФФИЦИЕНТОВ РЕГРЕССИИ

4.1. Реализованные принципы

В данном разделе обзора освещены основные результаты выполненного нами количественного анализа статистической значимости коэффициентов регрессии, полученных при полиномиальной аппроксимации рассмотренных ранее экспериментальных данных о магнитном поведении магнитных наножидкостей [5, 33].

Отметим, что здесь мы осознанно не делаем каких-либо физических (модельных) предположений о характере анализируемых нами зависимостей,

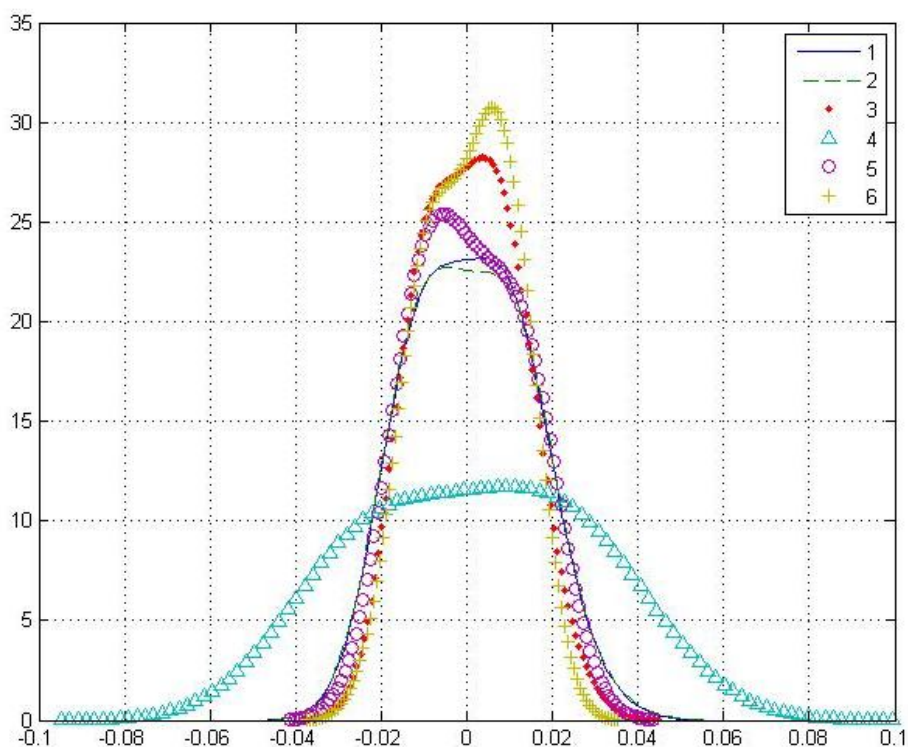


Рис. 4. Графики функций плотностей вероятностей отклонений экспериментальных данных от усредненного полинома для измерений в экспериментах 1–6

Табл. 2. Коэффициенты корреляции между откликами y и значениями магнитного поля H для опытов 1–9

Номер опыта	1	2	3	4	5	6	7	8	9
Значение коэффициента корреляции	0.987	0.988	0.986	0.990	0.986	0.988	0.983	0.977	0.974

т.к. вопрос о процессах формирования поляризационно-оптических откликов магнитных наножидкостей не следует, по-видимому, считать окончательно решенным. Единственное априорное предположение, сделанное в данной работе, заключается в выборе полиномов в качестве аппроксимирующих функций. Это предположение представляется достаточно естественным и обосновано в работе [5].

Далее нами использованы термины "объясняемая" и "объясняющая" переменные, поскольку подобная терминология принята в большинстве литературных источников по регрессионному анализу [34–38]. Величина поляризационного магнито-оптического отклика исследуемой наножидкости является в нашем случае объясняемой (зависимой) переменной, а внешнее магнитное поле — объясняющей (независимой) переменной. Данный подход и терминология достаточно оправданы еще и по той причине, что для анализа откликов многих уникальных объектов часто вообще отсутствуют какие-либо надежные модели, позволяющие количественно описывать наблюдаемые зависимости [39–41].

4.2. Оценка коэффициентов корреляции и детерминации

Первым этапом оценки значимости коэффициентов регрессии является определение статистической связи между зависимой переменной y (отклик) и независимой переменной H (магнитное поле). Статистическая связь определяется путем вычисления коэффициентов корреляции и детерминации. Коэффициент корреляции ρ — это статистический показатель зависимости двух случайных величин. Коэффициент корреляции ρ может принимать значения от -1 до $+1$. При этом значение 0 говорит о нулевой корреляции, а $+1$ — о полной корреляции. Т.е. чем ближе значение коэффициента корреляции к $+1$, тем сильнее связь между двумя случайными величинами. При значении коэффициента корреляции -1 связь между величинами существует, но ее действие противоположное по сравнению с действием для величин, у которых корреляция положительна.

В табл. 2 приведены значения коэффициентов корреляции между зависимой переменной y (отклик) и независимой переменной H (магнитное поле) для опытов 1–9 с магнитными жидкостями разных концентраций [5, 33].

Приведенные в табл. 2 коэффициенты корреляции близки к единице, что дает основание утверждать о наличии сильной функциональной связи (практически неслучайной) между значениями магнитного поля H и откликами y . Кроме того, указанное утверждение позволяет производить дальнейшие исследования значимости коэффициентов регрессии в полиномах, аппроксимирующих экспериментальные данные.

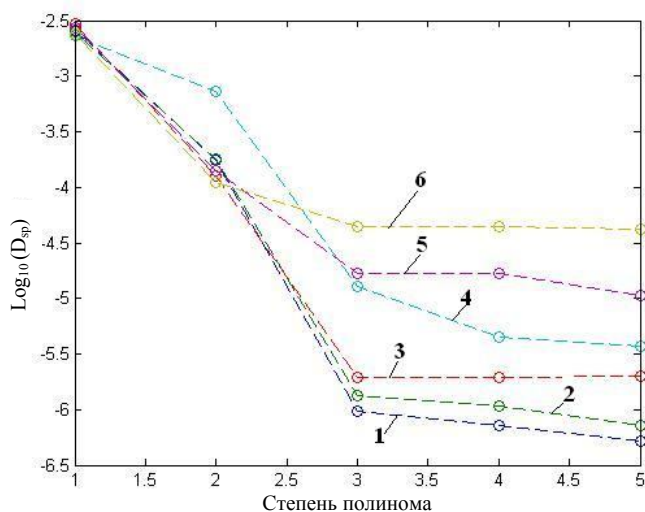
В экспериментальной работе [5] и в работе [33], описывающих статистическую методику количественной оценки подобию откликов магнитных наножидкостей различных концентраций на воздействие магнитного поля, а также в теоретической работе [24] показано, что функциональная зависимость величины поляризационного отклика (объясняемой переменной) от магнитного поля (объясняющей переменной) является нелинейной. В связи с нелинейностью рассматриваемой функциональной зависимости сначала, следуя работе [36], вычислен коэффициент детерминации. В результате было получено, что этот коэффициент для всех опытов близок или равен 1. Согласно [34, 36], это дает основание заключить, что зависимость y от H — сильная, а точность подбора параметров в уравнении регрессии — высокая.

4.3. Оценка значимости коэффициентов корреляции

Поскольку мы имеем дело со случайными величинами, то всегда существует вероятность, что замеченная нами связь — случайное обстоятельство. Величина выборочного коэффициента корреляции r является случайной, и ее близость к истинному значению коэффициента корреляции ρ зависит от законов распределения случайных величин и от объема выборки. Чем ближе величина r к истинному значению коэффициента корреляции ρ , тем более значимой является его оценка.

Табл. 3. Значения статистики t для коэффициентов корреляции опытов 1–9 для аппроксимирующих полиномов различных степеней

Номер опыта	1	2	3	4	5	6	7	8	9
Значение статистики t	39.03	40.10	37.29	44.25	37.73	40.21	33.55	29.12	27.15

**Рис. 5.** Результаты расчета оценок дисперсии отклонений от полиномов различных степеней для опытов 1–6

Для доказательства того, что влияние магнитного поля на исследуемые феррожидкости является неслучайным, нами были проверены соответствующие статистические гипотезы. Для того чтобы проверить гипотезы, необходимо было знать распределение величины r . Но собственное распределение величины r довольно сложное, поэтому для проверки гипотез мы применили статистику t , выборочное распределение которой есть распределение Стьюдента с $n-2$ степенями свободы [37]. В табл. 3 приведены значения статистики t для коэффициентов корреляции изученных нами экспериментальных данных.

По значениям распределения Стьюдента для $n-2$ степеней свободы для объема выборки $n=42$ и уровня значимости 0.05 находим $t_{кр}(40; 0.05) = 1.68$. Поскольку $t > t_{кр}$ для всех опытов, то отклоняем гипотезу о равенстве 0 коэффициентов корреляции. Другими словами, коэффициенты корреляции являются статистически значимыми для всех анализируемых нами опытов.

4.4. Анализ точности определения оценок коэффициентов регрессии

Далее нами были выполнены оценки дисперсии отклонений полученных нами экспериментальных

данных от полиномов различных степеней. При этом была использована методика оценок, описанная в работе [38]. В результате установлено, что значения оценки дисперсии отклонений данных находятся в интервале от $2.7e-3$ (линейная функция) до $7.1e-7$ (полином 4-й степени).

На рис. 5 приведены результаты расчета оценок дисперсии отклонений от полиномов различных степеней для опытов 1–6. По вертикальной оси показаны десятичные логарифмы дисперсий отклонений от полиномов, по горизонтальной оси показаны степени аппроксимирующих полиномов. Цифрами на рисунках обозначены номера экспериментов.

Полученные данные показывают, что с увеличением степени полинома оценки ошибок регрессии уменьшаются вплоть до 4-й степени. Дальнейшее увеличение степени нецелесообразно, т.к. оно не влечет за собой заметного уменьшения ошибок регрессии.

4.5. Оценка значимости коэффициентов полиномов по критерию Фишера

Критерий Фишера предназначен для оценки того, является ли статистически значимой полученная методом наименьших квадратов зависимость.

Табл. 4. Значения критических уровней распределения Фишера для уровня значимости 0.05 для полиномов различных степеней

Степень полинома	1	2	3	4
Значение критического уровня	4.08	3.24	2.86	2.63

Исходными данными служат коэффициент детерминации R^2 , число параметров k (для линейной зависимости $y = ax + b$, $k = 2$) и n — число экспериментальных точек. На их основе рассчитываем статистику, или критерий Фишера F_{emp} , являющийся отношением объясненной дисперсии величины y к необъясненной.

Результаты расчета статистики Фишера (F -statistics) показывают, что величина F -statistics варьируется в пределах от $3.0e+2$ (опыт 9) до $1.4e+6$ (опыт 1). В табл. 4 приведены критические уровни распределения Фишера для уровня значимости 0.05 полиномов различных степеней.

Все приведенные значения статистики Фишера превышают критические уровни, что позволяет утверждать, что вычисленные коэффициенты регрессии статистически значимы.

Предварительный анализ показывает, что развиваемые здесь подходы оказываются полезными и для анализа откликов многих других, часто уникальных объектов и систем [39–43].

5. АНАЛИТИЧЕСКАЯ АППРОКСИМАЦИЯ ПОЛЯРИЗАЦИОННЫХ ОТКЛИКОВ МАГНИТНЫХ НАНОЖИДКОСТЕЙ

В разделах 3.2 и 4 показано, что выбор полиномов в качестве аппроксимирующих функций позволяет описать многие особенности поляризационных откликов магнитных наножидкостей. Однако при таком подходе остается открытым вопрос о степени применимости известных модельных представлений для количественного описания экспериментально наблюдаемых магнитооптических откликов. Авторами выполнена аппроксимация экспериментальных значений откликов из статьи [5] аналитическими зависимостями, полученными на основе модели ориентационной упорядоченности магнитных частиц во внешнем магнитном поле [7, 8].

Аналитическая аппроксимация выполнена методом наименьших квадратов путем вариации двух безразмерных параметров, один из которых пропорционален объемной концентрации магнитных наночастиц и не зависит от поля, а второй

пропорционален энергии взаимодействия частиц с внешним магнитным полем и не зависит от концентрации. Полученные в процессе аппроксимации данные указывают на правильный выбор физической модели и следующей из нее аппроксимирующей (аналитической) зависимости, описывающей изучаемые магнитооптические отклики. При этом найденные методом аналитической аппроксимации значения безразмерных параметров дают численные значения соотношений между физическими параметрами исследуемой магнитной системы в их взаимосвязи с наблюдаемыми поляризационными откликами. В результате появляется возможность определения одних (неизвестных) физических параметров по зарегистрированным поляризационным откликам и значениям других (известных) параметров. В этом заключается значительное преимущество аналитической (модельной) аппроксимации по сравнению с полиномиальной.

Таким образом, развиваемые в работах [2, 3, 5, 14–16, 22, 23, 26–29, 41, 42] прецизионные методы лазерного поляризационно-оптического анализа совместно с выполненным в [30, 33] статистическим анализом полученных данных являются по существу основой поляризационно-оптической нанодиагностики (количественной характеристики) магнитных наножидкостей.

Знание численных значений безразмерных параметров позволяет также сравнивать поляризационные магнитооптические характеристики систем различной природы и состава. Это в свою очередь открывает перспективы более широкого, информационного подхода к дальнейшему развитию и применению высокочувствительных лазерных методов сравнительных исследований магнитных наножидкостей и других упорядоченных веществ, материалов и систем [3, 23, 39–43].

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В заключение целесообразно представить основные результаты, полученные в данной работе.

1. Обнаружено сохранение характера магнитооптических откликов при значительном, составляющим несколько порядков уменьшении концентрации магнитных наножидкостей вплоть до 10^{-6} . Это указывает на единый процесс образования наблюдаемых поляризационных откликов.

2. Показано, что в ряде случаев при теоретическом анализе можно моделировать исследуемую среду набором неподвижных точечных рассеивателей. Подобная модель может быть использована, в частности, для описания примесных центров в твердых телах и холодных атомных ансамблей.

3. Выполненный микроскопический анализ резонансного отражения может быть полезен для

дальнейшего совершенствования методов оптического детектирования, основанных на анализе когерентного рассеяния резонансного света. Полученные результаты могут быть использованы также для случая отражения света от тонких пленок.

4. Согласно статистическому критерию Стьюдента, гипотеза о коррелированности (подобии) поляризационных откликов исследованных магнитных наножидкостей подтверждается при изменении их концентрации на несколько порядков.

5. По критерию Фишера установлено, что вычисленные коэффициенты регрессии статистически значимы. Сравнение ошибок регрессии для аппроксимирующих полиномов показывает, что эти ошибки уменьшаются при увеличении степени полинома. Минимальная величина этих ошибок достигается для полинома 4-й степени.

6. Высокочувствительные лазерные методы количественного поляризационно-оптического анализа, развиваемые в работах [2–5, 14–16, 22, 23, 25–29, 41, 42], совместно с выполненным в [30, 33] статистическим анализом полученных данных составляют по существу основу лазерной поляризационно-оптической нанодиагностики (количественной характеристики) магнитных наножидкостей.

7. Описанные в настоящем обзоре результаты в целом показывают состоятельность и перспективы дальнейшего развития и применения прецизионных лазерных методов высокочувствительного поляризационно-оптического анализа для количественных исследований слабых поляризационных откликов конденсированных сред и других объектов и систем.

Работа выполнена в рамках Государственного задания № 075–00780–19–02 (тема № 0074–2019–0007) Министерства образования и науки РФ.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Badoz J., Billardon B.M., Canit J.C., Russel M.F.J.* Sensitive devices to determine the state and degree of polarization of a light beam using a birefringence modulator // *J. Optics*. 1977. Vol. 8, no. 6. P. 373–384. DOI: 10.1088/0150-536X/8/6/003
2. *Fofanov Ya.A.* Threshold sensitivity in optical measurements with phase modulation // *Proc. SPIE. The Report of tenth Union Symposium and School on High-Resolution Molecular Spectroscopy*. 1992. Vol. 1811. P. 413–414. DOI: 10.1117/12.131190
3. *Sokolov I.M., Fofanov Ya.A.* Investigations of the small birefringence of transparent objects by strong phase modulation of probing laser radiation // *J. Opt. Soc. Am. A*. 1995. Vol. 12, no. 7. P. 1579–1588. DOI: 10.1364/JOSAA.12.001579
4. *Фофанов Я.А., Плешаков И.В., Кузьмин Ю.И.* Лазерное поляризационно-оптическое детектирование процесса намагничивания магнитоупорядоченного кристалла // *Оптический журнал*. 2013. Т. 80, № 1. С. 88–93. DOI: 10.1364/JOT.80.000064
5. *Фофанов Я.А., Плешаков И.В., Прокофьев А.В.* Исследование поляризационных магнитооптических откликов слабоконцентрированной феррожидкости // *Письма в ЖТФ*. 2016. Т. 42, вып. 20. С. 66–72. DOI: 10.1134/S1063785016100205
6. *Scherer C., Figueiredo Neto A.M.* Ferrofluids: properties and applications // *Braz. J. Phys.* 2005. Vol. 35, no. 3A. P. 718–727. DOI: 10.1590/S0103-97332005000400018
7. *Скибин Ю.Н., Чеканов В.В., Райхер Ю.Л.* Двойное лучепреломление в магнитной жидкости // *ЖЭТФ*. 1977. Т. 72, вып. 3. С. 949–955.
8. *Scholten P.C.* The origin of magnetic birefringence and dichroism in magnetic fluids // *IEEE Trans. Magnetics*. 1980. Vol. 16, no 2. P. 221–225. DOI: 10.1109/TMAG.1980.1060595
9. *Kwong C.C., Yang T., Pandey K., Delande D., Pierrat R., Wilkowski D.* Cooperative emission of a pulse train in an optically thick scattering medium // *Phys. Rev. Lett.* 2015. Vol. 115, no. 22. 223601. DOI: 10.1103/PhysRevLett.115.223601
10. *Pellegrino J., Bourgain R., Jennewein S., Sortais Y.R.P., Browaeys A., Jenkins S.D., Ruostekoski J.* Observation of suppression of light scattering induced by dipole-dipole interactions in a cold-atom ensemble // *Phys. Rev. Lett.* 2014. Vol. 113, no. 13. 133602. DOI: 10.1103/PhysRevLett.113.133602
11. *Ido T., Loftus T.H., Boyd M.M., Ludlow A.D., Holman K.W., Ye J.* Precision spectroscopy and density-dependent frequency shifts in ultracold Sr // *Phys. Rev. Lett.* 2005. Vol. 94, no. 15. 153001. DOI: 10.1103/PhysRevLett.94.153001
12. *Kuraptsev A.S., Sokolov I.M.* Spontaneous decay of an atom excited in a dense and disordered atomic ensemble: Quantum microscopic approach // *Phys. Rev. A*. 2014. Vol. 90. 012511. DOI: 10.1103/PhysRevA.90.012511
13. *Javanainen J., Ruostekoski J., Li Yi, Yoo S.-M.* Shifts of a resonance line in a dense atomic sample // *Phys. Rev. Lett.* 2014. Vol. 112. 113603. DOI: 10.1103/PhysRevLett.112.113603
14. *Фофанов Я.А., Курапцев А.С., Соколов И.М.* Влияние коллективных эффектов на процесс распространения электромагнитного излучения в плотных ультрахолодных атомных ансамблях // *Опт. и спектр*. 2012. Т. 112. С. 444–453. DOI: 10.1134/S0030400X12030125
15. *Fofanov Ya.A., Kuraptsev A.S., Sokolov I.M., Havey M.D.* Dispersion of the dielectric permittivity of dense and cold atomic gases // *Phys. Rev. A*. 2011. Vol. 84, no. 5. 053811. DOI: 10.1103/PhysRevA.84.053811
16. *Fofanov Ya.A., Kuraptsev A.S., Sokolov I.M., Havey M.D.* Spatial distribution of optically induced atomic excitation in a dense and cold atomic ensemble // *Phys. Rev. A*. 2013. Vol. 87, no. 6. 063839. DOI: 10.1103/PhysRevA.87.063839
17. *Kuraptsev A.S., Sokolov I.M.* Reflection of resonant light from a plane surface of an ensemble of motionless point scatters // *Phys. Rev. A*. 2015. Vol. 91, no. 5. 053822. DOI: 10.1103/PhysRevA.91.053822

18. Keaveney J., Sargsyan F., Krohn U., Hughes I.G., Sarkisyan D., Adams C.S. Cooperative Lamb shift in an atomic vapor layer of nanometer thickness // *Phys. Rev. Lett.* 2012. Vol. 108, no. 17. 173601. DOI: 10.1103/PhysRevLett.108.173601
19. Соколов И.М., Курпьянов Д.В., Хэви М.Д. Микроскопическая теория рассеяния слабого электромагнитного излучения плотным ансамблем ультрахолодных атомов // *ЖЭТФ*. 2011. Т. 139. С. 288–304.
20. Sokolov I.M., Kupriyanov D.V., Olave R.G., Havey M.D. Light trapping in high-density ultracold atomic gases for quantum memory applications // *J. Mod. Opt.* 2010. Vol. 57. P. 1833–1841. DOI: 10.1080/09500340.2010.493977
21. Mandel L., Wolf E. *Optical coherence and quantum optics*. Cambridge, Cambridge University Press, 1995. 1190 p.
22. Kuraptsev A.S., Sokolov I.M., Fofanov Ya.A. Coherent specular reflection of resonant light from a dense ensemble of motionless point-like scatters in a slab geometry // *Int. J. Mod. Phys. Conf. Ser.* 2016. Vol. 41. 1660141. DOI: 10.1142/S2010194516601411
23. Фофанов Я.А., Плеваков И.В., Прокофьев А.В., Курапцев А.С., Бибик Е.Е. Лазерный поляризационно-оптический анализ процессов агломерации в магнитных наножидкостях // Сб. тр. X Международной конференции "Фундаментальные проблемы оптики – 2018" / Под ред. Беспалова В.Г., Козлова С.А. СПб.: Университет ИТМО, 2018. С. 40–42.
24. Davis H.W., Llewellyn J.P. Magnetic birefringence of ferrofluids // *J. Phys. D: Appl. Phys.* 1979. Vol. 12, no. 2. P. 311–319. DOI: 10.1088/0022-3727/12/2/018
25. Фофанов Я.А., Афанасьев И.И., Бороздин С.Н. Структурное двупреломление в кристаллах оптического флюорита // *Оптический журнал*. 1998. Т. 65, № 9. С. 22–25.
26. Фофанов Я.А. Методы и приборы для количественного анализа структурного двулучепреломления материалов и веществ // *Научное приборостроение*. 1999. Т. 9, № 3. С. 104–110. URL: <http://iairas.ru/mag/1999/full3/Art10.pdf>
27. Прокофьев А.В., Фофанов Я.А., Плеваков И.В., Бибик Е.Е. Лазерное поляризационно-оптическое наблюдение агломерации магнитных наночастиц в жидкой среде // *Научное приборостроение*. 2017. Т. 27, № 4. С. 3–7. URL: <http://iairas.ru/mag/2017/full4/Art1.pdf>
28. Fofanov Ya.A., Sokolov I.M., Pleshakov I.V., Vetrov V.N., Prokofiev A.V., Kuraptsev A.S., Bibik E.E. On the criteria for strong and weak polarization responses of ordered objects and systems // *EPJ Web of Conferences*. 2017. Vol. 161. 01003. DOI: 10.1051/epjconf/201716101003
29. Фофанов Я.А., Бардин Б.В. О поляризационных откликах объектов с малой оптической анизотропией // *Научное приборостроение*. 2016. Т. 26, № 1. С. 58–61. URL: <http://iairas.ru/mag/2016/abst1.php#abst8>
30. Фофанов Я.А., Манойлов В.В., Заруцкий И.В., Бардин Б.В. О подобии поляризационно-оптических откликов магнитных наножидкостей. Ч. I. Аппроксимация для слабых полей // *Научное приборостроение*. 2018. Т. 28, № 1. С. 45–52. URL: <http://iairas.ru/mag/2018/full1/Art6.pdf>
31. Румицкий Л.З. *Математическая обработка результатов эксперимента*. М.: Наука, 1971. 192 с.
32. Манойлов В.В., Костянов А.И., Иванов Д.Ю. Полицикличность образования минералов платиновой группы из россыпных проявлений Урала и Тиммана // *Геохимия*. 2003. № 6. С. 595–607.
33. Фофанов Я.А., Манойлов В.В., Заруцкий И.В., Бардин Б.В. О подобии поляризационно-оптических откликов магнитных наножидкостей. Ч. II. Оценка статистической значимости коэффициентов регрессии // *Научное приборостроение*. 2018. Т. 28, № 2. С. 54–61. URL: <http://iairas.ru/mag/2018/full2/Art8.pdf>
34. Дрейнер Н., Смит Г. *Прикладной регрессионный анализ* (кн. 1). М.: Финансы и статистика, 1986. 366 с.
35. Krzanowski W.J. *Principles of multivariate analysis: a user's perspective*. N.Y.: Oxford University Press, 1988. 563 p.
36. Восков А.Л. *Статистическая обработка эксперимента*. URL: http://td.chem.msu.ru/uploads/files/courses/general/statexp/lsq_descr.pdf
37. Кобзарь А.И. *Прикладная математическая статистика*. М.: Физматлит, 2006. 816 с.
38. Vox G.E.P., Hunter J.S., Hunter W.G. *Statistics for experimenters: design, discovery and innovation*. A. John Wiley & Sons, Inc., 2005. 655 p.
39. Карпунин А.Е., Мазур А.С., Проскурина О.В., Герасимов В.И., Плеваков И.В., Фофанов Я.А., Кузьмин Ю.И. Наблюдение особенностей температурного поведения спектральных линий ЯМР ¹³C как метод изучения полигидроксилированного фуллерена C₆₀(OH)_n // *Научное приборостроение*. 2018. Т. 28, № 2. С. 49–53. URL: <http://iairas.ru/mag/2018/full2/Art7.pdf>
40. Karpunin A.E., Gerasimov V.I., Mazur A.S., Pleshakov I.V., Fofanov Ya.A., Proskurina O.V. NMR investigation of composite material, formed by fullerene in polymer matrix of polyvinyl alcohol // 2018 IEEE International conference on electrical engineering and photonics (EExPolytech). Saint Petersburg (Russia). IEEE, 2018. P. 168–171. DOI: 10.1109/EExPolytech.2018.8564390 URL: <http://toc.proceedings.com/42129webtoc.pdf>
41. Fofanov Ya., Vetrov V., Ignatenkov B. Laser polarization-optical sounding of optical crystals and ceramics // 2018 International Conference Laser Optics (ICLO). IEEE, 2018. P. 406. DOI: 10.1109/LO.2018.8435268.

42. Fofanov Ya.A. Nonlinear and fluctuation phenomena under conditions of strong selective reflection in inclined geometry // *Advances in Optoelectronics Research* / Ed. by Oswald M.R. USA, 2014. P. 75–114.
43. Ларионов, Н.В., Соколов И.М., Фофанов Я.А. Особенности углового распределения света, рассеянного холодным атомным ансамблем в присутствии постоянного электрического поля // *Известия РАН. Серия физическая*. 2019. Т. 83, № 3. С. 306–310. DOI: 10.1134/S0367676519030116

Институт аналитического приборостроения РАН, Санкт-Петербург (Фофанов Я.А., Соколов И.М., Манойлов В.В., Заруцкий И.В., Бардин Б.В.)

Санкт-Петербургский политехнический университет Петра Великого, Санкт-Петербург (Соколов И.М., Пешаков И.В., Курапцев А.С.)

Физико-технический институт им. А.Ф.Иоффе РАН, Санкт-Петербург (Пешаков И.В.)

Контакты: Фофанов Яков Андреевич,
yakinvest@yandex.ru

Материал поступил в редакцию 30.04.2019

THE PRECISION LASER METHODS DEVELOPMENT FOR QUANTITATIVE POLARIZATION-OPTICAL ANALYSIS OF CONDENSED MATTER (OVERVIEW)

**Ya. A. Fofanov¹, I. M. Sokolov^{1,2}, I. V. Pleshakov^{2,3}, V. V. Manoilov¹,
I. V. Zarutskiy¹, A. S. Kuraptsev², B. V. Bardin¹**

¹ *Institute for Analytical Instrumentation of RAS, Saint Petersburg, Russia*

² *Peter the Great St. Petersburg Polytechnic University, Saint Petersburg, Russia*

³ *The Ioffe Institute, Saint Petersburg, Russia*

This overview presents the results of studies carried out in the IAP RAS aimed at further development of laser methods of quantitative polarization-optical analysis of condensed matter [1–4]. The main attention is paid to the research of the polarization-optical characteristics of magnetic nanofluids in a wide range of concentrations. Experimental data obtained for nanofluids based on magnetite in kerosene show that the developed approaches and their experimental implementation are able to provide a very high sensitivity, which allows to perform experiments with magnetic nanofluids in terms of very significant dilution. The highest dilution in which polarization responses were reliably recorded corresponds to the concentration of the solid (magnetic) phase 10^{-6} . The obtained data also indicate a common generation process for magneto-optical responses in the studied concentration range [5].

In the theoretical part of the overview, comparative studies of the polarization properties of diluted magnetic nanofluids and ensembles of point-like scatters are described. To describe the interaction of laser radiation with resonant ensembles, a microscopic approach has been developed. This approach is based on solution of the Schrödinger equation for a joined system consisting of atomic ensemble and electromagnetic field. The developed approach is used to analyze the nature of the scattering of light by ensembles of impurity centers implanted into thin films of a dielectric [6–29].

It is established that the hypothesis of similarity of polarization responses of magnetic nanofluids in terms of decrease of the magnetic phase concentration by several orders is confirmed by the statistical criterion of the Student t-test. By the F-test criterion the calculated regression coefficients at polynomial approximation are statistically significant, and the regression errors are minimal for the 4th degree polynomials [30–41].

An approximation of the polarization responses by analytical dependences obtained on the model of orientation ordering of magnetic particles in an external magnetic field is described. The analytical approximation was performed by the least squares method by varying two dimensionless parameters, one of which is proportional to the volume concentration of magnetic nanoparticles and does not depend on the field, and the second is proportional to the interaction energy of particles with an external magnetic field and does not depend on concentration. The data obtained in the process of approximation indicate the correct choice of the physical model and the following approximating (analytical) dependence. In this case, the values of dimensionless parameters set by

the method of analytical approximation give the numerical values of the relationships between the physical parameters of the studied magnetic system and their interaction with the observed polarization responses.

The precision methods of laser polarization-optical analysis developed in the considered works together with the performed statistical analysis of the obtained data form the basis of polarization-optical nanodiagnosis (quantitative characterization) of magnetic nanofluids.

The developed approaches make it also possible to compare the polarization magneto-optical characteristics of systems of different nature and composition. This, in turn, opens up prospects for a broader, informational approach to the further development and application of highly sensitive laser polarization-optical analysis methods for comparative studies of magnetic nanofluids and other ordered substances, materials and systems [42–43].

Keywords: laser, polarization-optical analysis, magnetic nanofluids, optoelectronics, magneto-optics, testing of statistical hypotheses, laser polarization-optical nanodiagnosics

The work was performed in accordance with State Assignment No. 075-00780-19-02 (theme No. 0074-2019-0007) of the Ministry of Education and Science of the Russian Federation.

Fig. 1. Block diagram of the measuring unit.

L — laser; M — modulator; S — sample; C — two-section solenoid; A — analyzer; PD — photodetector; R — control and registration unit

Fig. 2. The normalized response value depending on the square of the magnetic field for different concentrations of n .

1 — $n = 1\%$, 2 — $n = 0.2\%$, 3 — $n = 0.04\%$, 4 — $n = 0.01\%$, 5 — $n = 0.003\%$, 6 — $n = 0.001\%$.

On the insert: dependence of the coefficient a on the concentration

Fig. 3. The dependence of the reflection coefficient on the optical thickness of the flat layer.

1 — s-polarization; 2 — p-polarization; 3, 4 — asymptotes. $n = 0.05$, $\Delta = 0$, $\theta = 17.5^\circ$

Fig. 4. Graphs of probability density functions of deviations of experimental data from the average polynomial for measurements in experiments 1–6

Fig. 5. The results of calculating the estimates of the variance of deviations from polynomials of various degrees for experiments 1–6

Table 1. Values of concentration and coefficients of quadratic dependence for each experiment

Table 2. Correlation coefficients between the responses y and the values of the magnetic field H for experiments 1–9

Table 3. The values of the statistics t for the coefficients of correlation of experiments 1–9 for approximating polynomials of various degrees

Table 4. The values of critical levels of Fisher distribution for 0.05 significance level for polynomials of various degrees

REFERENCES

1. Badoz J., Billardon B.M., Canit J.C., Russel M.F.J. Sensitive devices to determine the state and degree of polarization of a light beam using a birefringence modulator. *J. Optics.*, 1977, vol. 8, no. 6, pp. 373–384. DOI: 10.1088/0150-536X/8/6/003
2. Fofanov Ya.A. Threshold sensitivity in optical measurements with phase modulation. *Proc. SPIE. The Report of tenth Union Symposium and School on High-Resolution Molecular Spectroscopy*, 1992, vol. 1811, pp. 413–414. DOI: 10.1117/12.131190
3. Sokolov I.M., Fofanov Ya.A. Investigations of the small birefringence of transparent objects by strong phase modulation of probing laser radiation. *J. Opt. Soc. Am. A*, 1995, vol. 12, no. 7, pp. 1579–1588. DOI: 10.1364/JOSAA.12.001579
4. Fofanov Ya.A., Pleshakov I.V., Kuzmin Yu.I. [Laser polarizing and optical detecting of process of magnetization of a magnetoordered crystal]. *Opticheskii zhurnal* [Journal of Optical Technology], 2013, vol. 80, no. 1, pp. 88–93. DOI: 10.1364/JOT.80.000064 (In Russ.).
5. Fofanov Ya.A., Pleshakov I.V., Prokofiev A.V. [Research of polarizing magneto-optical responses of low-concentrated ferrofluid]. *Pisma v ZhTF* [Technical physics letters], 2016, vol. 42, iss. 20, pp. 66–72. DOI: 10.1134/S1063785016100205 (In Russ.).
6. Scherer C., Figueiredo Neto A.M. Ferrofluids: properties and applications. *Braz. J. Phys.*, 2005, vol. 35, no. 3A, pp. 718–727. DOI: 10.1590/S0103-97332005000400018
7. Skibin Yu.N., Chekanov V.V., Rajher Yu.L. [Double refraction in magnetic liquid]. *ZhETF* [Journal of Experimental and Theoretical Physics], 1977, vol. 72, iss. 3, pp. 949–955. (In Russ.).

8. Scholten P.C. The origin of magnetic birefringence and dichroism in magnetic fluids. *IEEE Trans. Magnetics*, 1980, vol. 16, no 2, pp. 221–225.
DOI: 10.1109/TMAG.1980.1060595
9. Kwong C.C., Yang T., Pandey K., Delande D., Pierrat R., Wilkowski D. Cooperative emission of a pulse train in an optically thick scattering medium. *Phys. Rev. Lett.*, 2015, vol. 115, no. 22, 223601.
DOI: 10.1103/PhysRevLett.115.223601
10. Pellegrino J., Bourgain R., Jennewein S., Sortais Y.R.P., Browaeys A., Jenkins S.D., Ruostekoski J. Observation of suppression of light scattering induced by dipole-dipole interactions in a cold-atom ensemble. *Phys. Rev. Lett.*, 2014, vol. 113, 133602.
DOI: 10.1103/PhysRevLett.113.133602
11. Ido T., Loftus T.H., Boyd M.M., Ludlow A.D., Holman K.W., Ye J. Precision spectroscopy and density-dependent frequency shifts in ultracold Sr. *Phys. Rev. Lett.*, 2005, vol. 94, no. 15, 153001.
DOI: 10.1103/PhysRevLett.94.153001
12. Kuraptsev A.S., Sokolov I.M. Spontaneous decay of an atom excited in a dense and disordered atomic ensemble: Quantum microscopic approach. *Phys. Rev. A*, 2014, vol. 90, 012511. DOI: 10.1103/PhysRevA.90.012511
13. Javanainen J., Ruostekoski J., Li Yi, Yoo S.-M. Shifts of a resonance line in a dense atomic sample. *Phys. Rev. Lett.*, 2014, vol. 112, 113603.
DOI: 10.1103/PhysRevLett.112.113603
14. Fofanov Ya.A., Kuraptsev A.S., Sokolov I.M. [Influence of collective effects on process of distribution of electromagnetic radiation in dense ultracold atomic ensembles]. *Optika i spektroskopiya* [Optics and spectroscopy], 2012, vol. 112, pp. 444–453.
DOI: 10.1134/S0030400X12030125 (In Russ.).
15. Fofanov Ya.A., Kuraptsev A.S., Sokolov I.M., Havey M.D. Dispersion of the dielectric permittivity of dense and cold atomic gases. *Phys. Rev. A*, 2011, vol. 84, no. 5, 053811. DOI: 10.1103/PhysRevA.84.053811
16. Fofanov Ya.A., Kuraptsev A.S., Sokolov I.M., Havey M.D. Spatial distribution of optically induced atomic excitation in a dense and cold atomic ensemble. *Phys. Rev. A*, 2013, vol. 87, no. 6, 063839.
DOI: 10.1103/PhysRevA.87.063839
17. Kuraptsev A.S., Sokolov I.M. Reflection of resonant light from a plane surface of an ensemble of motionless point scatters. *Phys. Rev. A*, 2015, vol. 91, no. 5, 053822.
DOI: 10.1103/PhysRevA.91.053822
18. Keaveney J., Sargsyan F., Krohn U., Hughes I.G., Sarkisyan D., Adams C.S. Cooperative lamb shift in an atomic vapor layer of nanometer thickness. *Phys. Rev. Lett.*, 2012, vol. 108, no. 17, 173601.
DOI: 10.1103/PhysRevLett.108.173601
19. Sokolov I.M., Kupriyanov D.V., Havey M.D. [Microscopic theory of dispersion of weak electromagnetic radiation by dense ensemble of ultracold atoms]. *ZhETF* [Journal of Experimental and Theoretical Physics], 2011, vol. 139, pp. 288–304. (In Russ.).
20. Sokolov I.M., Kupriyanov D.V., Olave R.G., Havey M.D. Light trapping in high-density ultracold atomic gases for quantum memory applications. *J. Mod. Opt.*, 2010, vol. 57, pp. 1833–1841.
DOI: 10.1080/09500340.2010.493977
21. Mandel L., Wolf E. *Optical Coherence and Quantum Optics*. Cambridge, Cambridge University Press, 1995. 1190 p. DOI: 10.1017/CBO9781139644105
22. Kuraptsev A.S., Sokolov I.M., Fofanov Ya.A. Coherent specular reflection of resonant light from a dense ensemble of motionless point-like scatters in a slab geometry. *Int. J. Mod. Phys. Conf. Ser.*, 2016, vol. 41, 1660141. DOI: 10.1142/S2010194516601411
23. Fofanov Ya.A., Pleshakov I.V., Prokofiev A.V., Kuraptsev A.S., Bibik E.E. V.G. Bespalov, S.A. Kozlov ed. [The laser polarizing and optical analysis of processes of agglomeration in magnetic nanoliquids]. *Sb. tr. X Mezhdunarodnoj konferencii "Fundamental'nye problemy optiki – 2018"* [Proc. of the X of the International conference "Fundamental Problems of Optics — 2018"]. Saint-Petersburg, Universitet ITMO, 2018. 40–42 pp. (In Russ.).
24. Davis H.W., Llewellyn J.P. Magnetic birefringence of ferrofluids. *J. Phys. D: Appl. Phys.*, 1979, vol. 12, no. 2, pp. 311–319. DOI: 10.1088/0022-3727/12/2/018
25. Fofanov Ya.A., Afanasyev I.I., Borozdin S.N. [Structural double refraction in crystals of optical fluorite]. *Opticheskiy zhurnal* [Journal of Optical Technology], 1998, vol. 65, no. 9, pp. 22–25. (In Russ.).
26. Fofanov Ya.A. [Methods and devices for quantitative analyses of structural birefringence of materials and substance (overview)]. *Nauchnoe Priborostroenie* [Scientific Instrumentation], 1999, vol. 9, no. 3, pp. 104–110. URL: <http://iairas.ru/en/mag/1999/full3/Art10.pdf> (In Russ.).
27. Prokofiev A.V., Fofanov Ya.A., Pleshakov I.V., Bibik E.E. [Laser polarization-optical observation of magnetic nanoparticles agglomeration in a liquid medium]. *Nauchnoe Priborostroenie* [Scientific Instrumentation], 2017, vol. 27, no. 4, pp. 3–7. DOI: 10.18358/np-27-4-i37 (In Russ.).
28. Fofanov Ya.A., Sokolov I.M., Pleshakov I.V., Vetrov V.N., Prokofiev A.V., Kuraptsev A.C., Bibik E.E. On the criteria for strong and weak polarization responses of ordered objects and systems. *EPJ Web of Conferences*, 2017, vol. 161, 01003. DOI: 10.1051/epjconf/201716101003
29. Fofanov Ya.A., Bardin B.V. [On the polarization responses of the objects with a small optical anisotropy]. *Nauchnoe Priborostroenie* [Scientific Instrumentation], 2016, vol. 26, no. 1, pp. 58–61. DOI: 10.18358/np-26-1-i5861 (In Russ.).
30. Fofanov Ya.A., Manoilov V.V., Zarutskiy I.V., Bardin B.V. [On the similarity of the polarization-optical responses of magnetic nanofluids. Part I. Approximation for weak fields]. *Nauchnoe Priborostroenie* [Scientific Instrumentation], 2018, vol. 28, no. 1, pp. 45–52. DOI: 10.18358/np-28-1-i4552 (In Russ.).
31. Rumshiskiy L.Z. *Matematicheskaya obrabotka rezul'tatov eksperimenta* [Mathematical processing of results of an experiment]. Moscow, Nauka Publ., 1971. 192 p. (In Russ.).
32. Manoilov V.V., Kostoyanov A.I., Ivanov D.Yu. [Polyrecurrence of formation of minerals of platinum group of loose manifestations of the Urals and Timman]. *Geohimiya* [Geochemistry], 2003, no. 6, pp. 595–607. (In Russ.).

33. Fofanov Ya.A., Manoilov V.V., Zarutskiy I.V., Bardin B.V. [On the similarity of the polarization-optical responses of magnetic nanofluids. Part II. Assessment of the statistical significance of regression coefficients]. *Nauchnoe Pribo-rostroenie* [Scientific Instrumentation], 2018, vol. 28, no. 2, pp. 54–61. DOI: 10.18358/np-28-2-i5461 (In Russ.).
34. Draper N.R., Smith H. *Applied Regression Analysis, 3rd ed.* USA, New Jersey. John Wiley & sons, 1998. 736 p. (Russ ed.: Dreyper N., Smit G. *Prikladnoj regressiomyj analiz (kn. 1)*. Moscow, Finansy i statistika Publ., 1986. 366 p.). (In Russ.).
35. Krzanowski W.J. *Principles of multivariate analysis: a user's perspective.* N.Y., Oxford University Press, 1988. 563 p.
36. Voskov A.L. *Statisticheskaya obrabotka eksperimenta* [Statistical processing of an experiment]. URL: http://td.chem.msu.ru/uploads/files/courses/general/statexp/lsq_descr.pdf (In Russ.).
37. Kobzar A.I. *Prikladnaya matematicheskaya statistika* [Applied mathematical statistics]. Moscow, Fizmatlit Publ., 2006. 816 p. (In Russ.).
38. Box G.E.P., Hunter J.S., Hunter W.G. *Statistics for experimenters: design, discovery and innovation.* A. John Wiley & Sons, Inc., 2005. 655 p.
39. Karpunin A.E., Mazur A.S., Proskurina O.V., Gerasimov V.I., Pleshakov I.V., Fofanov Ya.A., Kuzmin Yu.I. [Observation of temperature behavior of peculiarities of ^{13}C NMR spectrum lines as a method for the investigation of polyhydroxylated fullerene $\text{C}_{60}(\text{OH})_n$]. *Nauchnoe Pribo-rostroenie* [Scientific Instrumentation], 2018, vol. 28, no. 2, pp. 49–53. DOI: 10.18358/np-28-2-i4953 (In Russ.).
40. Karpunin A.E., Gerasimov V.I., Mazur A.S., Pleshakov I.V., Fofanov Ya.A., Proskurina O.V. NMR investigation of composite material, formed by fullerenol in polymer matrix of polyvinyl alcohol. *2018 IEEE International conference on electrical engineering and photonics (EExPolytech)*. Saint Petersburg (Russia). IEEE, 2018. 168–171 pp. DOI: 10.1109/EExPolytech.2018.8564390
41. Fofanov Ya., Vetrov V., Ignatenkov B. Laser polarization-optical sounding of optical crystals and ceramics. *2018 International Conference Laser Optics (ICLO)*. IEEE, 2018. 406 p. DOI: 10.1109/LO.2018.8435268.
42. Fofanov Ya.A. Oswald M.R., ed. Nonlinear and fluctuation phenomena under conditions of strong selective reflection in inclined geometry. *Advances in Optoelectronics Research*. USA, 2014. 75–114 p.
43. Larionov, N.V., Sokolov I.M., Fofanov Ya.A. [Features of angular distribution of light scattered by cold atomic ensemble in the presence of constant electric field]. *Izvestiya RAN. Seriya fizicheskaya* [Bulletin of the Russian Academy of Sciences. Physics], 2019, vol. 83, no. 3, pp. 306–310. DOI: 10.1134/S0367676519030116 (In Russ.).

Contacts: *Fofanov Yakov Andreevich*,
yakinvest@yandex.ru

Article received by the editorial office on 30.04.2019