УДК 535.36

ОБ ОЦЕНКЕ РАДИУСА КОРРЕЛЯЦИИ В ДИСПЕРСНОЙ СРЕДЕ С ПЛОТНОЙ УПАКОВКОЙ ЧАСТИЦ

Лойко В. А., Иванов А. П., Дик В. П.

Проведен анализ изменения величины радиуса корреляции светорассеивающей среды, состоящей из монодисперсных твердых сферических частиц, в зависимости от их плотности упаковки, позволяющий проводить учет влияния кооперативных эффектов, обусловленных корреляцией в расположении частиц, на распределение интенсивности вышедшего из среды излучения. Введено понятие интерференционного объема рассеивающей среды.

Угловое распределение интенсивности света, рассеянного разреженной дисперсной средой, когда среднее расстояние между частицами l много больше их диаметра d, определяется суммой интенсивностей света, рассеянного на отдельных частицах (в рамках однократного рассеяния). В плотноупакованных системах возникают кооперативные эффекты [1], способные изменять распределение света по сравнению с тем, которое имеет место в разреженной среде.

В рамках данной работы проведен анализ расстояний между частицами, в пределах которых необходимо учитывать интерференционные эффекты, возникающие вследствие корреляции в расположении частиц [2-8]. Пусть ансамбль из N частиц, диаметром d, распределенных в сферическом объеме V' радиуса R', освещается параллельным пучком излучения, ослаблением которого при прохождении среды можно пренебречь. Тогда зависимость интенсивности рассеянного света I от угла рассеяния γ описывается следующей формулой [2, 3]:

$$I(\gamma)=\frac{\sigma x(\gamma)}{4\pi}NE\left\{1+(N-1)\,\Phi^2(\mu R)-(N-1)\frac{4\pi}{V}\int_0^R[1-W(r)]\,r^2\frac{\sin\mu r}{\mu r}\,dr\right\}. \quad (1)$$

Здесь σ и $x(\gamma)$ — соответственно сечение рассеяния и индикатриса рассеяния изолированной частицы; E — освещенность площадки, ориентированной перпендикулярно к направлению падающего света; $V=V'/d^3$, $R=R'/d$, r — безразмерная текущая координата, выраженная в диаметрах d; $W(r)$ — радиальная (двухчастичная) функция распределения [2-8];

$$\Phi(\mu R)=3\,(\sin\mu R-\mu R\cos\mu R)/(\mu R)^3, \quad (2)$$

$\mu=(4\pi d/\lambda)\sin(\gamma/2)$, λ — длина волны света. Из (1) видно, что интенсивность рассеянного света зависит не от размерных, а от безразмерных расстояний между частицами.

Первый член суммы (1) определяет интенсивность излучения, рассеянного ансамблем частиц, в предположении их хаотического распределения в объеме V'; второй — интенсивность света, дифрагированного на объеме V'. Величина этого слагаемого существенна лишь при углах, для которых $\sin\gamma\leqslant 0.36\,\lambda/R'$ [3]. Третий член учитывает интерференцию рассеянных волн на коррелированных частицах и зависит от вида распределения частиц в пространстве, характеризуемого функцией $W(r)$. В случае твердых шаров, распределенных в трехмерном пространстве, удается получить аналитические выражения для $W(r)$ [5, 6]. Эти формулы использованы в данной работе. Не останавливаясь на виде полученных в [5, 6] решений, приведем основные сведения о $W(r)$

При хаотическом распределении «точечных» частиц $W(r) \equiv 1$ и третий член в формуле (1) исчезает. Интенсивность рассеянного излучения определяется аддитивным сложением интенсивностей света, рассеянного отдельными частицами (исключение составляют направления, для которых $\sin\gamma \leqslant 0.36\ \lambda/R'$). При наличии корреляции расположения частиц (она имеет место всегда, поскольку размер частиц не может быть нулевым), когда коэффициент заполнения пространства (отношение объема частиц к объему, в котором они распределены) η мал, функция

$$W(r) = \begin{cases} 0 \text{ для } r < 1, \\ 1 \text{ для } r > 1. \end{cases} \tag{3}$$

В этом случае влиянием третьего члена формулы (1) можно пренебречь. С ростом степени упаковки частиц его вклад увеличивается. Особенно существенна роль третьего члена в области больших значений η. Здесь функция $W(r)$ уже не описывается формулой (3). Она имеет максимальное значение, когда $r=1$ (величина $W(r=1)$ растет при $\eta \to 1$), и, осциллируя около значения $W=1$, стремится к нему с ростом r тем медленнее, чем больше η [2-5]. Такой характер изменения $W(r)$ приводит к тому, что значение интеграла в формуле (1), который будем обозначать $F(R)$, с ростом R вначале быстро увеличивается, затем рост замедляется и в пределе $F(R) \to F(\infty)$.[1]

Введем в качестве характеристики отличия $F(R)$ и $F(\infty)$ величину $\delta(R) = [F(R) - F(\infty)]/F(\infty)$. Она осциллирует около нуля и стремится к нему при $R \to \infty$. Очевидно начиная с некоторых $R = R_k$, когда $\delta(R_k)$ мало, можно считать, что дальнейшее увеличение R практически не изменяет интеграла в формуле (1). Назовем этот радиус — радиусом корреляции. В его пределах интерференция света на центрах рассеяния влияет на интенсивность излучения, вне его — не влияет. Естественно, что чем точнее мы хотим учесть интерференционные эффекты (т. е. чем меньшим выбираем значение δ), тем большим будет R_k. Поскольку функция $\delta(R)$ осциллирующая, то практически удобнее использовать огибающую $\Delta(R)$ функции $|\delta(R)|$. На рис. 1 изображены зависимости R_k от величины Δ при разных μ и $\eta=0.5$. Чтобы нагляднее представить, какие углы рассеяния и диаметры частиц можно реализовать при задаваемых значениях μ, на рис. 2 построены графики в системе координат d/λ, γ.

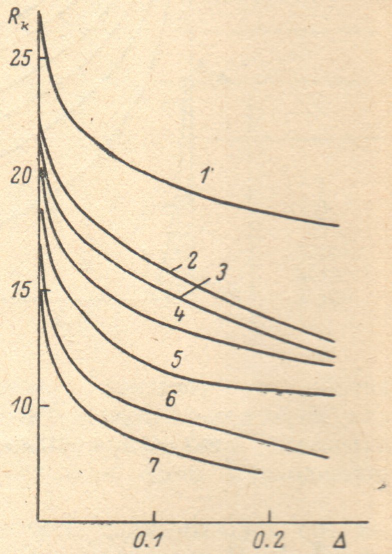

Рис. 1. Зависимость R_k от Δ.

μ: 1 — 0, 2 — 0.25, 3 — 0.5, 4 — 1, 5 — 2, 6 — 4, 7 — 5.

Из рис. 1 видно, что наибольшие значения R_k имеет для $\mu=0$. Физически это обусловлено тем, что в направлении $\gamma=0$ разность фаз между волнами, рассеянными отдельными частицами, минимальна. Увеличение параметра μ сопровождается уменьшением значения R_k. Вначале с ростом Δ радиус корреляции быстро падает независимо от величины μ, а затем это падение уменьшается.

Влияние η и μ на R_k графически иллюстрирует рис. 3. Поскольку в ряде случаев вместо η удобнее использовать средние расстояния между частицами l, то в подписи к рис. 3 приведены также эти величины, выраженные в долях . Они рассчитаны по формуле: $l = 0.81/\sqrt[3]{\eta}$.

Из рис. 3 видно, что при больших упаковках $\eta \leqslant 0.5$ корреляция световых полей наблюдается на расстояниях, в 10—20 раз превышающих размер частиц

[1] Строго говоря, функция $W(r)$ зависит от R, если R невелико. В данной работе мы ограничились первым приближением, полагая что $W(r, R) = W(r, R=\infty) = W(r)$.

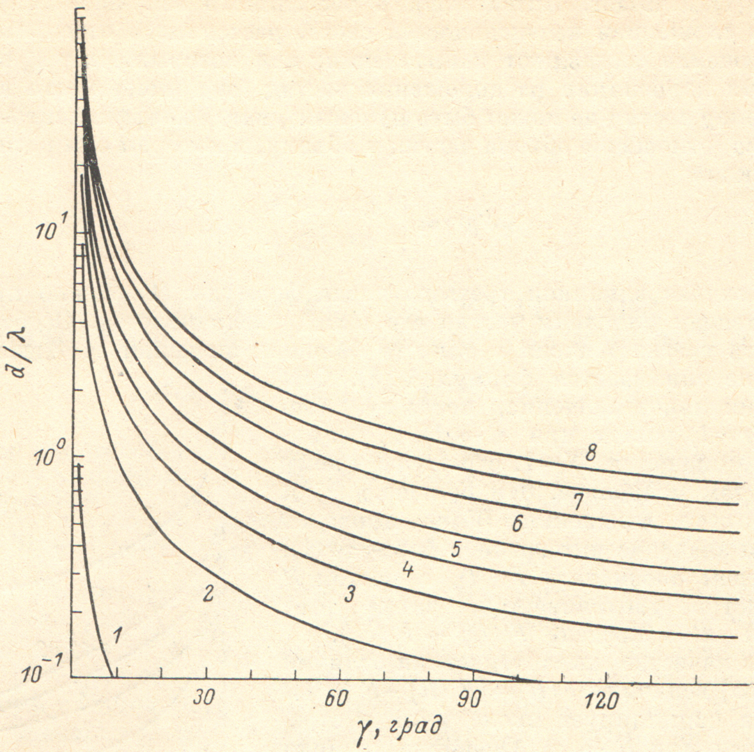

Рис. 2. Зависимость d/λ от γ.

μ: *1* — 0.1, *2* — 1, *3* — 2, *4* — 3, *5* — 4, *6* — 6, *7* — 8, *8* — 10.

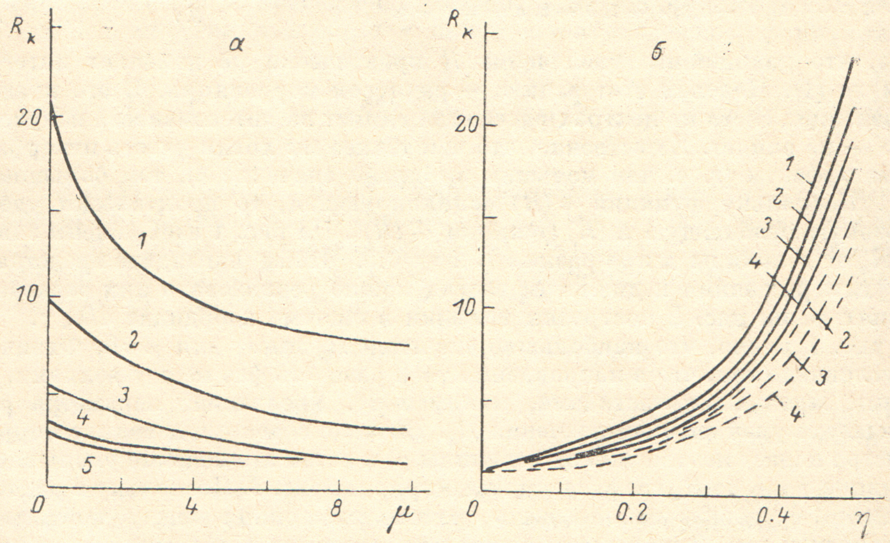

Рис. 3. Зависимость R_k от μ (*а*) и η (*б*).

а — Δ=0.05, η: *1* — 0.5 (l=1.03), *2* — 0.4 (1.1), *3* — 0.3 (1.2), *4* — 0.2 (1.4), *5* — 0.1 (1.8); *б* — μ=0 (сплошные линии), μ=1 (штриховые линии) Δ: *1* — 0.01, *2* — 0.05, *3* — 0.1, *4* — 0.2.

для любых μ (т. е. d/λ и γ). По мере уменьшения η радиус корреляции падает, и при $\eta \sim 0.1$ он почти совпадает со средним расстоянием между частицами, равным 1.8. Чем меньше параметр μ, т. е. чем меньше угол наблюдения γ и (или) параметр дифракции частиц $\rho = \pi d/\lambda$, тем больше радиус корреляции. Если $d/\lambda \ll 1$, то R_k не зависит от угла наблюдения. С ростом d/λ радиус корреляции изменяется при разных γ. Например, если взять $d/\lambda \approx 0.8$, то при переходе γ от 0 к 2π радиус корреляции для $\eta = 0.5$ уменьшается в 2.6, а для $\eta = 0.4$ — в 3 раза. В пределе при $d \to \infty$ и $\eta \leqslant 0.5$ эти изменения не превышают 20 раз.

Полученные результаты исследования радиуса корреляции можно использовать для оценки размеров объема среды, в пределах которого рассеяние на частицах нужно рассчитывать с учетом интерференции света. Линейные размеры такого объема, который назовем интерференционным, в зависимости от точности расчета следует полагать равным одному-двум радиусам корреляции. В теории переноса излучения, описывающей распространение излучения в разреженных средах, используется понятие элементарного объема и его оптических характеристик: показателей рассеяния и поглощения, индикатрисы рассеяния. При введении аналогичных характеристик в плотноупакованной среде необходимо, чтобы минимальные размеры элементарного объема были не менее интерференционного, а максимальные — ограничивались условием пропорционального возрастания поглощенности рассеянной световой энергии с ростом числа интерференционных объемов в элементарном. Эта пропорциональность соблюдается тем дольше, чем меньше рассеивают и поглощают свет отдельные частицы среды.

η	μ	
	0	5
0.05	1.4	1
0.1	$2 \cdot 10^{1}$	3
0.2	$6 \cdot 10^{1}$	9
0.3	$5 \cdot 10^{2}$	$3 \cdot 10^{1}$
0.4	$4 \cdot 10^{3}$	$3 \cdot 10^{2}$
0.5	$4 \cdot 10^{4}$	$3 \cdot 10^{3}$

Очевидно индикатриса и показатель рассеяния элементарного объема должны рассчитываться с помощью формулы (1), где верхний предел интеграла равен радиусу корреляции. Показатель ослабления может быть определен по формулам, описывающим когерентную составляющую света, проходящего через плотноупакованную среду [9–14].

Часто необходимо знать количество частиц в интерференционном объеме. Если полагать интерференционный объем сферическим с радиусом R_k и считать, что среднее число частиц в единице объема n связано с η соотношением $\eta = n\pi d^3/6$, то число коррелируемых частиц

$$N = 8\eta R_k^3(\eta). \tag{4}$$

В таблице приведены ориентировочные значения числа N для разных η и μ, когда $\Delta = 0.05$. Из нее видно, что лишь при $\eta = 0.05$ лучи, рассеянные разными частицами, практически не интерферируют между собой. Небольшое увеличение степени упаковки частиц приводит к резкому возрастанию количества когерентно-рассеивающих центров. Увеличение μ уменьшает n.

До сих пор речь шла об интерференционном объеме в среде достаточно больших размеров, где, как говорилось выше, $W(r, R) = W(r, R = \infty)$. Однако качественно это условие можно распространить и на небольшие объемы. Тогда рассчитанные выше значения радиусов корреляции следует рассматривать как максимальные радиусы конечных рассеивающих объемов, внутри которых необходимо учитывать волновые свойства света. При дальнейшем увеличении размеров среды (в условиях однократного рассеяния) интенсивность рассеянного излучения равна сумме интенсивностей света, рассеянного на отдельных интерференционных объемах, входящих в рассматриваемый объем. Очевидно, что в таких условиях рассеяние не зависит от формы объема среды.

Литература

[1] Розенберг Г. В. — В кн.: Физический энциклопедический словарь. М., 1965, т. 4.
[2] Лойко В. А., Иванов А. П., Дик В. П. — ЖПС, 1985, т. 42, с. 828.
[3] Джеймс Р. Оптические принципы дифракции рентгеновских лучей. М., 1950, гл. IV.

[4] Займан Дж. Модели беспорядка. М., 1982.
[5] Wertheim M. S. — Phys. Rev. Lett., 1963, v. 10, p. 321.
[6] Thiele E. — J. Chem. Phys., 1963, v. 39, p. 474.
[7] Lado F. — J. Chem. Phys., 1967, v. 47, p. 4828.
[8] Методы Монте-Карло в статистической физике / Под ред. К. Биндера. М., 1982.
[9] Twersky V. — JOSA, 1983, v. 73, p. 313.
[10] Боровой А. Г. — Опт. и спектр., 1983, т. 54, в. 5, с. 787.
[11] Понявина А. Н., Верещагин В. Г. — ЖПС, 1984, т. 40, с. 301.
[12] Дик В. П., Лойко В. А., Иванов А. П. — ДАН БССР, 1984, т. 28, с. 876.
[13] Ishimary A., Kuga Y. — J. Opt. Soc. Amer., 1982, v. 72, p. 1317.
[14] Twersky V. — J. Acoust. Soc. Amer., 1978, v. 64, p. 1710.

Поступило в Редакцию 23 октября 1984 г.