

## РАССЕЯНИЕ ОПТИЧЕСКОГО ИЗЛУЧЕНИЯ СИСТЕМОЙ БЛИЗКО РАСПОЛОЖЕННЫХ РАССЕИВАТЕЛЕЙ

Е. А. Ведерникова и М. В. Кабанов

Обсуждаются результаты экспериментальных исследований зависимости коэффициентов рассеяния и интенсивности рассеянного вперед света от концентрации малых и больших рассеивателей. Для пространственной системы рассеивателей определены области концентраций, при которых наблюдаются изменения исследованных оптических характеристик, и диапазон изменения последних. Полученные различия оптических характеристик для системы зависимых и независимых рассеивателей объяснены их оптическим взаимодействием.

В практике широкого использования методов спектроскопии рассеивающих сред [1, 2] существенным ограничением является предположение о независимом рассеянии, т. е. предположение о достаточно больших расстояниях между рассеивателями, когда интенсивность рассеянного света и оптическое сечение системы рассеивателей аддитивны. Теоретические оценки [3-5] минимальных расстояний между рассеивателями, при которых предположение о независимом рассеянии оправдано, из-за больших математических трудностей имеются лишь для системы из двух малых частиц ( $\rho = \pi d/\lambda < 4$ ,  $d$  — диаметр частиц,  $\lambda$  — длина волны). Экспериментальные исследования [6-11] выполнены в более широком интервале значений  $\rho$ , однако также ограничены либо случаем двух сфер [7], либо монослойной системой рассеивателей [6, 9-11], либо проведены [8] при очень больших оптических глубинах (для затухания интенсивности только многократно рассеянного излучения).

Задача настоящей работы состояла в прямых измерениях сечения ослабления и характера затухания светового сигнала пространственной (а не монослойной) системой близко расположенных рассеивателей. Решение такой задачи представляет не только физический интерес для оптики слабо исследованных систем рассеивателей с большой концентрацией, но и для ряда непосредственных приложений (при разработке методов спектроскопии сильно рассеивающих сред, при разработке дисперсионных фильтров, фотоэмульсий и др.)

### Ослабление света системой малых рассеивателей

Согласно теоретическому расчету Тринкса [4], для двух близкорасположенных малых сфер ( $\rho < 1$ ) интенсивность рассеянного света отличается от интенсивности света, рассеянного независимыми сферами, поправочным коэффициентом

$$\frac{1}{|D|^2} = 1 + 2 \left( \frac{a}{R} \right)^3 [x^3 f_1(x) \alpha'' - x^3 f_2(x) \alpha'] + \left( \frac{a}{R} \right)^6 x^6 [f_1^2(x) + f_2^2(x)] |\alpha|^2, \quad (1)$$

где  $x = kR$ ,  $R$  — расстояние между центрами частиц,  $k$  — волновое число;  $a$  — радиус частицы;  $\alpha = \alpha' + i\alpha''$  — комплексный показатель преломления сфер; функции  $f_1(x)$  и  $f_2(x)$  определяются соотношениями



$$f_1(x) = \frac{\sin x}{x} + \frac{\cos x}{x^2} - \frac{\sin x}{x^3},$$

$$f_2(x) = -\frac{\cos x}{x} + \frac{\sin x}{x^2} + \frac{\cos x}{x^3}.$$

Из (1) видно, что поправочный коэффициент не зависит от направления рассеянного света и, следовательно, определяет также изменение общей интенсивности рассеянного света, т. е. сечение ослабления двумя близкими сферами. Физически такой вывод в предельном случае малых рассеивателей понятен: при плотной упаковке двух рассеивателей (при их «слипании») индикатриса рассеяния остается рэлеевской, а коэффициент рассеяния увеличится пропорционально квадрату объема. Расчеты по формуле (1) показывают, что поправочный коэффициент, обратная величина которого определяет отношение коэффициентов рассеяния при различных расстояниях между рассеивателями, сложным образом зависит от размеров сфер, их показателей преломления, от расстояния между сферами и принимает значения больше и меньше единицы. Интерференция рассеянных полей в ближней зоне (при малом  $R$ ) приводит, как видно из (1), к осциллирующей зависимости коэффициента рассеяния от расстояния между рассеивателями. Амплитуда осцилляций коэффициента рассеяния для двух малых частиц существенно зависит от расстояния между ними. При плотном расположении сфер поправочный коэффициент может отличаться от единицы в несколько раз, при расстоянии между сферами более двух их диаметров отличие не превышает десятков процентов. Необходимо подчеркнуть, что количественные данные теоретически удастся получить только для двух малых частиц.

Для двух сфер с  $\rho > 1$  (до 8.5) осциллирующий характер зависимости коэффициента рассеяния от расстояния между рассеивателями отчетливо наблюдался экспериментально в [7].

Теория Тринкса рассматривает оптическое взаимодействие в приближении только парного взаимодействия. Случай системы многих рассеивателей с  $\rho > 1$  является очень сложным для теоретического анализа. Безусловный интерес поэтому представляет сопоставление экспериментальных данных, полученных для системы частиц с результатами Тринкса, поскольку речь идет о сравнении количественных данных для одного и того же физического явления — оптического взаимодействия близко расположенных рассеивателей.

Для монослойной системы рассеивателей, как показали измерения [9, 10], осцилляции интенсивности рассеянного света выражены менее четко, а изменения коэффициента рассеяния достигают 40—50%. Из-за неопределенности оптических свойств отдельных рассеивателей в последнем случае невозможно провести более подробное сравнение данных со случаем двух сфер.

Количественные данные для коэффициентов рассеяния в случае пространственной системы многих близко расположенных частиц были экспериментально получены нами. Оптическая схема эксперимента включала в себя лазер с длиной волны излучения 0.63 мкм и угловой расходимостью 8', кювету с рассеивающей средой (из набора к спектрофотометрам) и приемную систему с апертурным углом в 10'. При толщине кюветы в 25—30 мкм даже при высоких концентрациях рассеивателей обеспечивались небольшие оптические толщии, при которых влиянием рассеянного излучения на затухание светового сигнала можно было пренебречь [12]. Регистрация сигналов осуществлялась с помощью ФЭУ-28 и усилителя постоянного тока с выходом на показывающий микроамперметр. В качестве рассеивателей использовались частицы полистиролового латекса с относительным показателем преломления в воде 1.2 и монодисперсностью 98%.<sup>1</sup>

<sup>1</sup> Использованные нами при измерениях взвеси полистиролового латекса были приготовлены химиками с применением специальных составов, предотвращающих коагуляцию частиц при больших концентрациях.



| Диаметры, мкм | $\rho$ | Максимальная концентрация, см <sup>-3</sup> | Минимальные расстояния между частицами (в диаметрах) | $\tau_{\max}$ |
|---------------|--------|---------------------------------------------|------------------------------------------------------|---------------|
| 1.44          | 9.6    | $1.1 \cdot 10^{11}$                         | 1.4                                                  | 6             |
| 1.08          | 7.2    | $1.3 \cdot 10^{11}$                         | 1.8                                                  | 6             |
| 0.95          | 6.3    | $1.7 \cdot 10^{11}$                         | 1.9                                                  | 5             |
| 0.57          | 3.8    | $1.3 \cdot 10^{12}$                         | 1.6                                                  | 5             |
| 0.49          | 3.3    | $4.3 \cdot 10^{12}$                         | 1.3                                                  | 6             |
| 0.28          | 1.86   | $6.3 \cdot 10^{12}$                         | 2.0                                                  | 7             |

Диаметры частиц и соответствующие им значения параметра  $\rho$  при длине волны 0.63 мкм, диапазон концентрации, расстояний между частицами и максимальные оптические толщ, при которых проведены измерения, указаны в таблице.

Методика измерений состояла в последовательном определении сигналов  $I_0$ , регистрируемых приемной системой на выходе из кюветы без рассеивателей, и сигналов  $I$  на выходе из кюветы при различных концентрациях рассеивателей в ней. Основная ошибка измерений при этом обуславливалась различной толщиной кюветы, определяемой толщиной прокладки из фольги и зависящей от степени сжатия стенок в каждом опыте, и составляла около 20%. Каждый опыт повторялся 3—4 раза. Определение концентрации латексов проводилось по такой же методике, но при достаточно малых концентрациях и с кюветой толщиной в 0.5 см (оптические толщ не превышали 2). В этом случае ослабление оптического излучения подчиняется закону Бугера—Беера и для отношения измеренных сигналов можно записать

$$I/I_0 = e^{-K(\rho)\pi a^2 l N}, \quad (2)$$

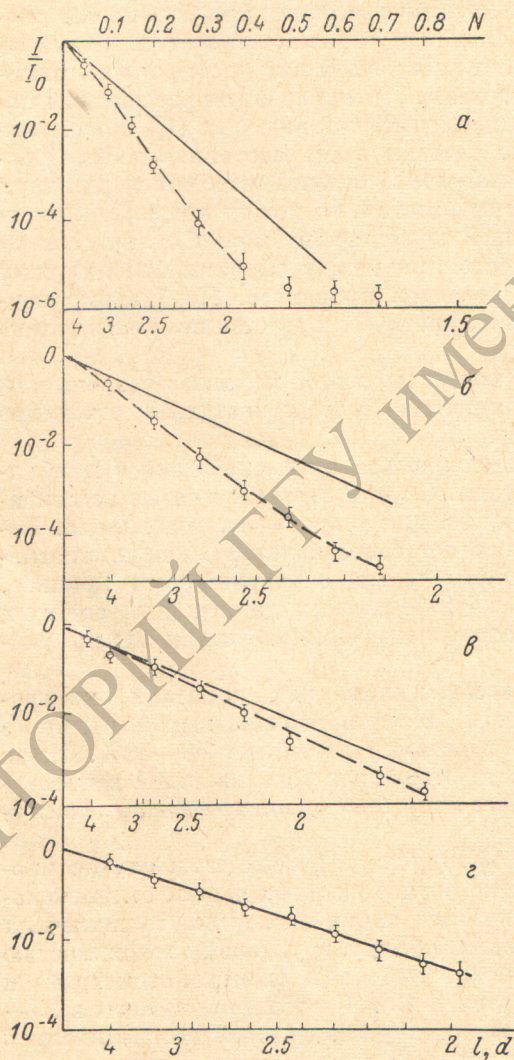
где  $l$  — толщина кюветы,  $N$  — концентрация рассеивателей в единице объема,  $K(\rho)$  — фактор эффективности. Последний определялся для исследуемых сферических латексов из таблиц по светорассеянию [13]. Критерием изменения оптического сечения системы рассеивателей при высоких концен-

Рис. 1. Зависимость ослабления прямого излучения от концентрации при различных диаметрах рассеивателей.

$a - 2a = 1.44$  мкм,  $b - 2a = 1.08$  мкм,  $c - 2a = 0.57$  мкм,  $z - 2a = 0.28$  мкм.

трациях являлось отклонение  $\ln(I/I_0)$  с изменением  $N$  от прямолинейного хода, соответствующего закону Бугера—Беера.

Результаты измерений затухания светового пучка системой рассеивателей с различной концентрацией и некоторых  $\rho$  приведены на рис. 1.





По оси ординат на этом рисунке отложены отношения сигналов  $I/I_0$  в логарифмическом масштабе, по оси абсцисс — концентрация рассеивателей в относительных единицах и расстояния между рассеивателями (в единицах их диаметров).<sup>2</sup> Сплошные прямые на рисунках соответствуют затуханию светового пучка при этих концентрациях в предположении независимого рассеяния. Ломаные штриховые кривые соединяют экспериментальные точки, полученные осреднением по нескольким измерениям. Среднеквадратичный разброс результатов измерений указан отрезками при средней точке. Как следует из приведенного рис. 1, в первых трех случаях наблюдается заметное отклонение затухания светового пучка от закона Бугера—Беера. При этом в пределах ошибок измерений отсутствует осциллирующий характер затухания, которое остается близким к экспоненциальному. Более медленное затухание светового сигнала при наибольших концентрациях рассеивателей (при оптических толщах более 10) обусловлено, на наш взгляд, появлением фона многократно рассеянного излучения. Как показали визуальные наблюдения, при этих оптических толщах исчезает центральное пятно, образуемое прямым ослабленным излучением. Для малых рассеивателей ( $\rho=1.86$ ) при всех измерениях концентрациях затухание светового пучка описывается в пределах ошибок измерений законом Бугера—Беера.

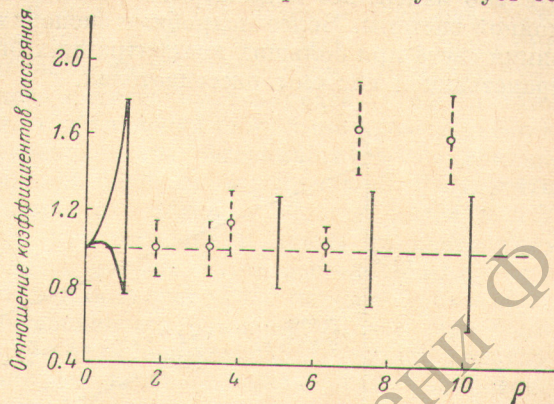


Рис. 2. Отношение коэффициентов рассеяния для близко расположенных и независимых рассеивателей.

На рис. 2 сделана сводка данных для отношения коэффициентов рассеяния близко расположенными и независимыми рассеивателями. Кружки на рисунке — результаты выполненных нами измерений. Штриховыми отрезками указаны максимально возможные ошибки измерений. Двойной кружок для  $\rho=1.8$  получен при двух длинах волн (0.63 и 1.15 мкм) и соответственно двух размерах латексов (0.28 и 0.57 мкм). Сплошные кривые и отрезок в области  $\rho \leq 1$  ограничивают область возможных изменений отношения коэффициентов рассеяния при различных расстояниях между рассеивателями. Эти кривые — результат расчета  $|D|^2$  по формуле (1) для показателя преломления сфер, как и в эксперименте равного 1.2. Для сравнения на рис. 2 сплошными отрезками при  $\rho=4.2, 6.4$  и  $8.5$  приведены амплитуды осцилляций интенсивности рассеянных назад радиоволн ( $\lambda=1.25$  см) при различных расстояниях между сферами по результатам измерений [7]. Из сравнения приведенных на рис. 2 данных следует, что в случае пространственной системы рассеивателей коэффициенты рассеяния при больших и малых концентрациях могут отличаться не меньше, чем в случае двух рассеивателей. Область больших концентраций, как видно из рис. 1, начинается с расстояний между рассеивателями при  $\rho > 5$  в 3—4 их диаметра. При меньших  $\rho$  эта область либо не наблюдается совсем, либо начинается с расстояний между рассеивателями в 2—2.5 их диаметра (при  $\rho=3.8$ ).

#### Рассеяние света системой больших рассеивателей

Для двух больших рассеивателей ( $\rho \gg 1$ ) в отличие от малых коэффициент рассеяния при плотной упаковке (при их «слипании») не будет

<sup>2</sup> Масштаб шкалы абсцисс по расстоянию между рассеивателями рассчитывался в каждом конкретном случае с учетом того, что  $N=l^{-3}$ .



изменяться, так как он пропорционален общему геометрическому сечению пары рассеивателей  $2\pi a^2$ , как и при независимом рассеянии. Пара «слипшихся» рассеивателей представляет собой новый с большими размерами. Индикатриса рассеяния в области малых углов для такого рассеивателя в соответствии с формулами для дифракции существенно вытянется. Поскольку коэффициент рассеяния при этом не изменяется, интенсивность рассеянного света для других углов уменьшится, т. е. при плотной упаковке произойдет перераспределение рассеянной световой энергии по углам [2, 3]. Экспериментальные наблюдения в [10] показывают, что высказанные общие физические соображения для двух рассеивателей относительно изменений индикатрисы рассеяния оправдываются и для монослойной системы. Более подробные экспериментальные исследования рассеяния света при больших концентрациях были выполнены нами для пространственной системы рассеивателей.

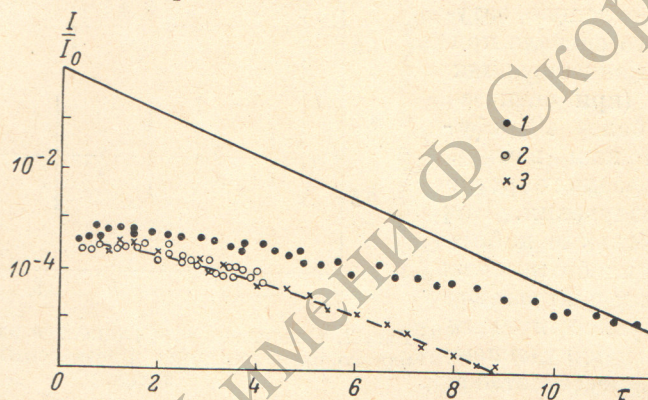


Рис. 3. Затухание интенсивностей прямого и рассеянного излучения при различных концентрациях рассеивателей.

1 — полистироловые латексы,  $R_{ср.} = 5a$ ; 2 — то же,  $R_{ср.} = 16a$ ; 3 — споры ликоподия,  $R_{ср.} = 20a$ .

Оптическая схема проведенных экспериментов была подобна описанной выше для малых частиц. С целью уменьшения влияния рассеянного света с помощью дополнительной коллимации угол расходимости лазерного пучка ( $\lambda = 0.63$  мкм) был уменьшен до  $20''$ . При измерениях затухания прямого излучения апертурный угол приемной системы составлял  $25''$ . Измерения затухания рассеянного фона проводились в углах от  $2'$  до  $6'$ , вырезаемых кольцевой диафрагмой в фокальной плоскости приемной системы. Для уменьшения флуктуаций регистрируемых сигналов диаметр светового пучка полностью перехватывался приемной системой и был равен 5 см. В качестве рассеивателей использовались полистироловые латексы с диаметром 0.36 мкм и споры ликоподия с диаметром 30 мкм. Измерения проводились с использованием кюветы переменной толщины с максимальной толщиной в 50 см. При выборе условий эксперимента было предусмотрено, чтобы зависимостью измеренного коэффициента рассеяния от толщины рассеивающего слоя можно было пренебречь.

Результаты измерений зависимости интенсивности прямого и рассеянного излучения (в логарифмическом масштабе) от оптической толщи приведены на рис. 3. Отложенная по оси абсцисс оптическая толщина рассчитывалась по формуле  $\tau = 2\pi a^2 N l$ , где  $l$  — толщина рассеивающего слоя,  $N$  — концентрация рассеивателей, определяемая для полистироловых латексов путем их взвешивания до приготовления взвеси и последующих вычислений. Для спор ликоподия  $\tau$  определялось из формулы экспоненциального затухания прямого излучения. Измерения показали, что затухание прямого излучения подчиняется экспоненциальному закону с коэффициентом рассеяния  $2\pi a^2$  при всех измеренных концентрациях рассеивателей. Поэтому на рис. 3 для всех случаев удалось провести общую сплошную прямую, описывающую это затухание. Затухание интенсивности



рассеянного света при концентрациях латексов, при которых среднее расстояние между рассеивателями равнялось примерно 16 их радиусам  $R_{\text{ср}}$  («кружки») и для взвеси спор ликоподия с  $R_{\text{ср}} = 20a$  (крестики), как видно из рис. 3, хорошо описывается формулами теории однократного рассеяния [14, 15], результаты расчета по которым изображены штриховой кривой. Экспериментальные точки на рисунке — результаты измерений интенсивности рассеянного света для взвеси латексов с  $R_{\text{ср}} = 5a$ .

Обсудим приведенные на рис. 3 результаты измерений. Как показывают эти результаты, коэффициент рассеяния в соответствии с высказанными в начале раздела соображениями для двух рассеивателей остается неизменным и для пространственной системы близко расположенных рассеивателей вплоть до расстояний между последними в 5 их радиусов. Увеличение интенсивности рассеянного в области малых углов света при высоких концентрациях можно объяснить увеличением вытянутости индикатрисы рассеяния, вызванного оптическим взаимодействием близких рассеивателей. Для проверки этого объяснения нами было проведено фотографирование распределения интенсивности рассеянного света в фокальной плоскости приемной системы при оптической толще  $\tau = 3$ . Результаты микрофотометрирования показали, что только в области углов в  $6.5'$  интенсивности рассеянного света при больших и малых концентрациях рассеивателей одинаковы. В области меньших углов рассеяния их отношение становится больше единицы, для больших углов меньше. Таким образом, более высокие значения интенсивности рассеянного света при больших концентрациях рассеивателей по сравнению с малыми являются результатом оптического взаимодействия рассеивателей и не могут быть объяснены многократным рассеянием. Отметим, что термином «оптическое взаимодействие рассеивателей» мы подчеркиваем концентрационное происхождение в конечном счете интерференционной природы деформации индикатрисы рассеяния системой больших рассеивателей и изменения коэффициентов рассеяния системой малых рассеивателей. Следует ожидать, что для промежуточных размеров рассеивателей их оптическое взаимодействие проявляется в изменениях как индикатрисы, так и коэффициента рассеяния.

### Литература

- [1] Г. ван де Хюлст. Рассеяние света малыми частицами. ИЛ, М., 1961.
- [2] Г. В. Розенберг. Усп. физ. наук, 69, вып. 1, 1959.
- [3] К. С. Шифрин. Рассеяние света в мутных средах. ГИТГЛ, М.—Л., 1951.
- [4] W. Trinks. Ann. d. Physik, 22, 561, 1935.
- [5] О. А. Фермогорова. Изв. АН СССР, сер. геофиз., № 4, 648, 1963.
- [6] R. H. Harding, B. Colding. J. Opt. Soc. Am., 50, 446, 1960.
- [7] J. Mevel. Ann. de Phys., 5, 265, 1960.
- [8] S. W. Churchill, I. S. Clark. C. M. Sliepcevic. Dis. of Farad. Soc., № 30, 192, 1960 (Прилож. к № 12).
- [9] C. R. Berry. J. Opt. Soc. Am., 52, 888, 1962.
- [10] W. R. Blevin, W. I. Brown. J. Opt. Soc. Am., 51, 129, 1961.
- [11] А. П. Иванов, А. Я. Хайрулина. Опт. и спектр., 28, 513, 1970.
- [12] В. Е. Зуев, М. В. Кабанов, В. А. Савельев. ФА и О, 3, 724, 1967.
- [13] И. Л. Зельманович, К. С. Шифрин. Таблицы по светорассеянию, т. 3. Гидрометеиздат, Л., 1968.
- [14] М. В. Кабанов. Сб. «Актинометрия и оптика атмосферы». Изд. «Наука», 85, 1964.
- [15] В. Е. Зуев. Прозрачность атмосферы для видимых и инфракрасных волн. Изд. «Советское радио», М., 1966.

Поступило в Редакцию 27 июля 1971 г.