

ФЛУКТУАЦИИ ИНТЕНСИВНОСТИ ПРИ РАССЕЯНИИ СВЕТА ВБЛИЗИ ФОКУСА ОПТИЧЕСКОЙ СИСТЕМЫ

Г. М. Свищев

Рассмотрен случай, когда свет, рассеянный статистически независимыми частицами, свободно диффундирующими в бесконечно большом объеме, поступает на фотоприемник только из малой области пространства вблизи фокуса оптической системы. Получены выражения для функции корреляции и спектра флуктуаций регистрируемого потока излучения при условии, что радиус исследуемого микрообъема $\rho \gg \lambda$. Показано, что при этом условии уменьшение ρ ниже некоторого значения (зависящего от концентрации частиц) приводит к появлению в спектре флуктуаций дополнительной, низкочастотной нелорентцевской компоненты, обусловленной флуктуациями числа частиц в исследуемом микрообъеме. Отношение сигнала к шуму для основной, лорентцевской компоненты спектра флуктуаций фототока изменяется обратно пропорционально ρ .

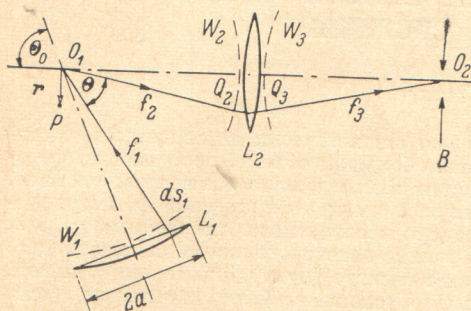
Исследование флуктуаций потока излучения, квазиупругого (релеевски) рассеянного системой микроскопических или субмикроскопических частиц (вирусов, макромолекул и т. п.), позволяет определять целый ряд динамических характеристик этих частиц: коэффициенты поступательной и вращательной диффузии, скорости химических реакций и конформационных переходов в равновесных системах, времена релаксации гибких частиц и другие (см., например, обзоры [1-3]). Применяются два метода исследования упомянутых флуктуаций: метод гомодинного детектирования, при котором на фотоприемник поступает только рассеянное излучение, и метод гетеродинного детектирования, при котором рассеянное излучение интерферирует на поверхности фотоприемника с излучением, падающим на исследуемую систему частиц. Теория этих методов достаточно полно разработана только для тех случаев, когда и падающее, и собираемое излучение можно аппроксимировать плоскими волнами, а светорассеивающий объем и число частиц в нем можно считать бесконечно большими.

Представляет интерес распространение этих методов на изучение микрообъемов вещества, например, отдельных участков живой клетки [4]. Такое локальное исследование объекта возможно, когда освещающий и собираемый световые пучки пересекаются внутри исследуемого микрообъема под достаточно большим углом, и в области пересечения диаметры этих пучков соответствуют размерам выделяемого микрообъема. При таких локальных исследованиях вычисления спектра (или корреляционной функции) флуктуаций, а также отношения сигнала к шуму, должны проводиться, следовательно, с учетом размеров светорассеивающего объема, конечного числа частиц в нем и существенного отличия от нуля апертурных углов падающего и собираемого пучков.

Для метода гетеродинного детектирования решение этих проблем (кроме вычисления отношения сигнала к шуму и учета конечного числа частиц) получено в работе [5], посвященной определению локальных скоростей в потоке. При вычислении отношения сигнала к шуму размеры светорассеивающего объема учитывают всегда, однако при этом рассматриваются только те случаи, когда волны, рассеянные объектом в разных направле-

ниях, попадают на разные участки фотоприемника и не интерферируют друг с другом [6], а при освещении объекта совокупностью плоских волн, падающих под разными углами, эти волны считаются некогерентными [7]. Что же касается проблемы учета конечного числа частиц в светорассеивающем объеме, то она исследована только в приближении бесконечно больших размеров этого объема [8].

В данной работе перечисленные выше проблемы локального исследования объектов изучаются для случая гомодинного детектирования: основные статистические характеристики флуктуаций потока рассеянного излучения (корреляционная функция, спектр и отношение сигнала к шуму) вычислены в предположении, что падающее излучение когерентно, апертурные углы световых пучков малы, а объект в целом можно аппроксимировать бесконечно большой системой



К расчету флуктуаций потока излучения, рассеянного вблизи фокуса оптической системы.

одинаковых оптически изотропных свободно диффундирующих и не взаимодействующих друг с другом (статистически независимых) частиц.

Пусть в точке O_1 внутри объема V , содержащего N таких частиц, пересекаются под углом Θ_0 оптические оси двух безаберрационных объективов L_1 и L_2 (радиусы и площади их отверстий обозначим соответственно через a_1 и a_2 , s_1 и s_2). Объектив L_1 фокусирует в точку O_1 падающую на него плоскую линейно поляризованную монохроматическую волну, а объектив L_2 проецирует точку O_1 в центр O_2

отверстия в полевой диафрагме B фотоприемника (см. рисунок). Обозначим через f_1 радиус волнового фронта W_1 , заполняющего отверстие объектива L_1 , а через f_2 и f_3 — радиусы сферических поверхностей W_2 и W_3 (с центрами в точках O_1 и O_2 соответственно), заполняющих отверстие объектива L_2 . Предполагается, что $f_1 \gg a_1$ и $f_2, f_3 \gg a_2$.

Пусть отверстие в диафрагме B меньше центрального пятна в дифракционном изображении точки O_1 и $|\Theta_0 - \pi/2| \leq \pi/4$. Тогда поток рассеянного излучения, попадающий на фотоприемник через отверстие в диафрагме B от одной, j -й частицы (обозначим его через F_j) заметно отличен от нуля только тогда, когда эта частица находится вблизи точки O_1 . Аппроксимируем зависимость F_j от радиуса-вектора $\mathbf{r}_j$ частицы относительно точки O_1 функцией [5]

$$F_j(\mathbf{r}_j) = F_0 \exp\left(-\frac{r_j^2}{\rho^2}\right), \quad (1)$$

где ρ полагаем равным радиусу центрального дифракционного пятна объектива L_1 и минимальному интервалу, разрешаемому объективом L_2 (считаем, что радиусы a_1 и a_2 подобраны так, что последние две величины равны)

$$\rho \simeq \frac{\lambda f_1}{2a_1} \simeq \frac{\lambda f_2}{2a_2}. \quad (2)$$

Найдем сначала корреляционную функцию полного потока $F(t)$ излучения, достигающего фотоприемника. Для этого опишем поле падающего излучения вблизи его фокальной точки O_1 с помощью интеграла Дебая (см., например, [9]) в виде суперпозиции плоских волн

$$u(\mathbf{r}) = -\frac{iA}{\lambda f_1} \exp(-i\omega t) \int_{W_1} \exp(i\mathbf{k}_1 \mathbf{r}) ds_1, \quad (3)$$

где A/f_1 — амплитуда поля на W_1 , а $\mathbf{k}_1$ — вектор, по абсолютной величине равный $k=2\pi/\lambda$ и направленный из центра элемента ds_1 в точку O_1 . Этот

результат, полученный для скалярной волны, справедлив и для каждой декартовой компоненты векторной волны.

Каждая элементарная плоская волна, входящая в интеграл (3), взаимодействуя с j -й частицей, дает рассеянное излучение, поле которого в точке Q_2 поверхности W_2

$$du_j = -\frac{AS(\Theta, \psi)}{2\pi f_1^2 f_2} \exp\{i[kf_2 + (\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2)\mathbf{r}_j - \omega t]\} ds_1, \quad (4)$$

где $\mathbf{k}_2$ — вектор, равный по абсолютной величине k и направленный из O_1 в Q_2 , а $S(\Theta, \psi)$ — амплитудная функция рассеяния [10], зависящая от угла Θ между $\mathbf{k}_1$ и $\mathbf{k}_2$ и угла ψ между плоскостью поляризации падающего излучения и плоскостью рассеяния. Суммарное поле излучения, рассеянного j -й частицей,

$$u_j(Q_2) = \int_{W_1} du_j, \quad (5)$$

Пусть Q_3 — точка пересечения W_3 лучом, проходящим через O_1 и произвольную точку Q_2 поверхности W_2 . Тогда

$$u_j(Q_3) \simeq u_j(Q_2) \exp(ik\delta), \quad (6)$$

где разность хода δ не зависит от выбора точки Q_2 . Применяя к W_3 принцип Гюйгенса—Френеля (в формулировке Киргоффа) и пренебрегая зависимостью $S(\Theta, \psi)$ от $\mathbf{k}_1$ и $\mathbf{k}_2$, находим поле в точке O_2

$$U_j(t) = G \int_{W_2} \int_{W_1} \exp[i(\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2)\mathbf{r}_j(t)] ds_1 ds_2, \quad (7)$$

где

$$G = \frac{iAS(\Theta, \psi)}{2\pi\lambda f_1^2 f_2 f_3} \exp[ik(f_2 + f_3 + \delta) - i\omega t]. \quad (8)$$

Поскольку отверстие в диафрагме B меньше центрального дифракционного пятна объектива L_2 , то поле от j -й частицы во всех точках этого отверстия приблизительно одинаково, и, следовательно, одинаково и суммарное поле рассеянного излучения

$$U(t) = \sum_{j=1}^N U_j(t). \quad (9)$$

Тогда поток излучения, попадающего на фотоприемник,

$$F(t) = \sigma U(t) U^*(t), \quad (10)$$

а его временная функция корреляции

$$R(V, \tau) = \langle F(t) F(t + \tau) \rangle = \sum_j \sum_k \sum_l \sum_m M_{jklm}, \quad (11)$$

где σ — площадь отверстия в диафрагме B , угловые скобки означают усреднение по времени и

$$M_{jklm} = \sigma^2 \langle U_j(t) U_k^*(t) U_l(t + \tau) U_m^*(t + \tau) \rangle. \quad (12)$$

Так как все положения частиц внутри V равновероятны, усреднение по времени можно заменить усреднением по объему. Если хотя бы один из индексов отличен от всех остальных, то (вследствие независимости частиц) M_{jklm} пропорционально величине $\int_V U_j(\mathbf{r}) d^3\mathbf{r}$, которая равна нулю,

так как представляет собой амплитуду поля в точке O_2 при заполнении объема V абсолютно однородной средой.

Обозначим

$$M_{jklm} = \begin{cases} M_1 & \text{при } j = k \neq l = m, \\ M_2 & \text{при } j = m \neq k = l, \\ M_3 & \text{при } j = k = l = m, \\ M_4 & \text{при } j = l \neq k = m. \end{cases} \quad (13)$$

Каждое из слагаемых M_1 , M_2 и M_4 встречается $N(N-1)$ раз, а слагаемое M_3 — N раз.

Из (12) и (13) находим

$$M_1 = \sigma^2 \langle U_j(t) U_j^*(t) \rangle^2 = \langle F_j \rangle^2, \quad (14)$$

где F_j дается соотношением (1), а поток излучения $F_j(0)$ (при $r=0$) находим из (6)

$$F_j(0) = F_0 = \sigma s_1^2 s_2^2 |G|^2. \quad (15)$$

Отсюда

$$R_1(\tau) = \lim_{V \rightarrow \infty} [M_1 N(N-1)] = \pi^3 n^2 \rho^6 F_0^2, \quad (16)$$

где n — среднее число частиц в единице объема.

Аналогично

$$M_3 = \langle F_j(t) F_j(t+\tau) \rangle = \frac{1}{V} \int_V \int_V \exp\left(-\frac{r_1^2 + r_2^2}{\rho^2}\right) P(\mathbf{r}_2 - \mathbf{r}_1, \tau) d^3 \mathbf{r}_1 d^3 \mathbf{r}_2, \quad (17)$$

где

$$P(\mathbf{r}_2 - \mathbf{r}_1, \tau) d^3 \mathbf{r}_2 = (4\pi D |\tau|)^{-1.5} \exp\left[-\frac{(\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2)^2}{4D |\tau|}\right] d^3 \mathbf{r}_2 \quad (18)$$

это вероятность того, что частица за время τ переместится из точки $\mathbf{r}_1$ в элемент объема $d^3 \mathbf{r}_2$ с центром в $\mathbf{r}_2$, а D — коэффициент поступательной диффузии [11].

Отсюда

$$R_3(\tau) = \lim_{V \rightarrow \infty} (NM_3) = 2\sqrt{2} n \rho^3 F_0^2 \left(1 + \frac{2D |\tau|}{\rho^2}\right)^{-1.5}. \quad (19)$$

При резком ограничении исследуемого объема сферой радиуса ρ (когда $F_j = F_0$ при $r_j \leq \rho$ и $F_j = 0$ при $r_j > \rho$) произведение NM_3 было бы пропорционально функции корреляции для числа частиц внутри исследуемого объема. Таким образом, компонента M_3 обусловлена флуктуациями числа частиц внутри исследуемого микрообъема.

Далее,

$$M_2 = \sigma^2 \langle U_j(t) U_j^*(t+\tau) \rangle^2. \quad (20)$$

Введем временно в функцию $S(\Theta, \psi)$ дополнительный множитель, зависящий от положения частицы

$$S(\mathbf{r}) = \exp\left(-\frac{r^2}{R^2}\right), \quad (21)$$

где $R \gg \rho$. Тогда

$$\lim_{V \rightarrow \infty} (N \sqrt{M_2}) = \sigma |G|^2 \int_{W_2} \int_{W_1} \int_{W_1} \lim_{V \rightarrow \infty} (NI) ds_1 ds_2 ds'_1 ds'_2, \quad (22)$$

где

$$I = \langle \exp\left[i(\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2) \mathbf{r}(t) - i(\mathbf{k}'_1 - \mathbf{k}'_2) \mathbf{r}(t+\tau) - \frac{r^2(t) + r^2(t+\tau)}{R^2}\right] \rangle \quad (23)$$

представляет собой интеграл, аналогичный (17). Выполнив интегрирование, находим

$$\lim_{V \rightarrow \infty} (NI) = \frac{\pi^{1.5} n R^3}{\left(1 + \frac{D |\tau|}{R^2}\right)^{1.5}} \exp\left[-\frac{R^2}{4} (\mathbf{K} - \mathbf{K}')^2 - \frac{D |\tau| (\mathbf{K} + \mathbf{K}')^2}{4 \left(1 + \frac{D |\tau|}{R^2}\right)}\right], \quad (24)$$

где $\mathbf{K} = \mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2$ и $\mathbf{K}' = \mathbf{k}'_1 - \mathbf{k}'_2$ — векторы рассеяния для элементарных световых пучков. При рассматриваемых нами условиях (малые апертуры объективов и достаточно большой угол Θ_0 между их осями) можно считать $(\mathbf{K} + \mathbf{K}')^2 \simeq 4\mathbf{K}_0^2$, где $\mathbf{K}_0$ — вектор рассеяния для осевых пучков. Тогда

$$\beta = \lim_{V \rightarrow \infty} [M_2 N (N - 1)] = \frac{\pi^3 (n\sigma |G|^2 R^3 J)^2}{\left(1 + \frac{D|\tau|}{R^2}\right)^3} \exp \left[-\frac{2DK_0^2 |\tau|}{1 + \frac{D|\tau|}{R^2}} \right], \quad (25)$$

где

$$J = \int_{W_2} \int_{W_1} \int_{W_2} \int_{W_1} \exp \left[-\frac{R^2}{4} (\mathbf{K} - \mathbf{K}')^2 \right] ds_1 ds_2 ds'_1 ds'_2. \quad (26)$$

Подставив в (25) приближенное значение J , получающееся для объективов с отверстиями квадратной формы,

$$J = \frac{16s_1^2 s_2^2}{3\pi^{1.5} \sin \Theta_0} \left(\frac{\rho}{R} \right)^3, \quad (27)$$

окончательно находим

$$R_2(\tau) = \lim_{R \rightarrow \infty} \beta \simeq \left(\frac{16n\rho^3 s_1^2 s_2^2 |G|^2}{3 \sin \Theta_0} \right)^2 \exp(-2DK_0^2 |\tau|). \quad (28)$$

Аналогичные вычисления показывают, что

$$R_4 = \lim_{V \rightarrow \infty} [M_4 N (N - 1)] \simeq 0. \quad (29)$$

Итак, функция корреляции для $F(t)$ при $V = \infty$

$$\begin{aligned} R(\tau) &= \lim_{V \rightarrow \infty} R(V, \tau) = R_1(\tau) + R_2(\tau) + R_3(\tau) = \\ &= \langle F(t) \rangle^2 \left[1 + \frac{1}{\pi} \left(\frac{16}{3\pi \sin \Theta_0} \right)^2 \exp(-2DK_0^2 |\tau|) + \frac{8\sqrt{2}}{3\pi^{2.5}} \left(1 + \frac{2D|\tau|}{\rho^2} \right)^{-1.5} \right], \end{aligned} \quad (30)$$

где

$$\langle F(t) \rangle = \frac{3}{4} \sqrt{\pi} \nu F_0, \quad (31)$$

а ν — среднее число частиц в оптически выделенном объеме, который мы условно полагаем ограниченным сферой с радиусом ρ .

Первое слагаемое в (30) соответствует постоянной составляющей регистрируемого потока излучения, второе определяется скоростью изменения пространственной Фурье-компоненты флуктуаций диэлектрической постоянной с волновым вектором $\mathbf{K}_0$ [12], а третье обусловлено флуктуациями числа частиц в исследуемом объеме.

При $\rho \rightarrow \infty$ последнее слагаемое перестает зависеть от τ , что совпадает с результатами, полученными в [8].

Зная функцию корреляции $R(\tau)$ потока излучения, падающего на фотокатод приемника, легко найти и функцию корреляции фототока $i(t)$ [13]

$$R_i(\tau) = \langle i(t) i(t + \tau) \rangle = \frac{\langle i(t) \rangle}{\langle F(t) \rangle} R(\tau) + e \langle i(t) \rangle \delta(\tau), \quad (32)$$

где

$$\langle i(t) \rangle = \frac{e\zeta}{\hbar\omega} \langle F(t) \rangle, \quad (33)$$

e — заряд электрона, ζ — квантовый выход фотокатода, $\hbar$ — постоянная Планка, а $\delta(\tau)$ — дельта-функция Дирака.

Во многих случаях флуктуации интенсивности рассеянного излучения исследуются не по функциям корреляции (как, например, в [14, 15]), а по спектрам мощности фототока. Для случая локальных исследований

этот спектр $S(\Omega)$ может быть получен из (32) по формуле Винера—Хинчина (см., например, [1])

$$S(\Omega) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} R_i(\tau) \exp(i\Omega\tau) d\tau = \langle i(t) \rangle^2 \left\{ \delta(\Omega) + \left(\frac{16}{3\pi^2 \sin \Theta_0} \right)^2 \frac{\Gamma}{\Omega^2 + \Gamma^2} + \right. \\ \left. + \frac{8\sqrt{2}\rho^2}{3\pi^3 \nu D} \left[1 - \pi\rho \sqrt{\frac{\Omega}{\pi D}} \Phi\left(\rho \sqrt{\frac{\Omega}{\pi D}}\right) \right] \right\} + \frac{e}{2\pi} \langle i(t) \rangle, \quad (34)$$

где

$$\Phi(x) = \frac{1}{2} \cos\left(\frac{\pi}{2} x^2\right) - \frac{1}{2} \sin\left(\frac{\pi}{2} x^2\right) + C(x) \sin\left(\frac{\pi}{2} x^2\right) - S(x) \cos\left(\frac{\pi}{2} x^2\right),$$

$\Gamma = 2DK_0^2$, а $S(x)$ и $C(x)$ — интегралы Френеля. Таблица функции $\Phi(x)$ приведена в [16].

Первые два слагаемых в (34) — обычные для спектров самобиений, третье обусловлено флуктуациями числа светорассеивающих частиц в исследуемом объеме, а четвертое — спектр дробового шума (остальными шумами мы пренебрегли). Интегральная интенсивность третьего слагаемого $S_3(\Omega)$ не зависит от размеров области, а его полуширина (значение Ω , соответствующее половине полной высоты этой составляющей спектра)

$$(\Delta\Omega)_3 \simeq 1.15 \frac{D}{\rho^2}. \quad (35)$$

Эта ширина приблизительно в $K_0^2 \rho^2$ раз меньше, чем ширина второй составляющей, $S_2(\Omega)$. Отношение вкладов третьей и второй составляющих спектра в точке $\Omega=0$

$$\frac{S_3(0)}{S_2(0)} = \frac{9\sqrt{2} K_0^2 \sin^2 \Theta_0}{64n\rho}, \quad (36)$$

поэтому низкочастотная составляющая $S_3(\Omega)$ может быть выделена на фоне $S_2(\Omega)$ только в тех случаях, когда ρn порядка K_0^2 или меньше.

Вблизи точки $\Omega=0$ отношение w_1 мощности второй, лорентцевской составляющей спектра флуктуаций фототока $S_2(\Omega)$ к мощности дробового шума можно найти из (34). Используя соотношения (2), (8), (15), (31) и (33) и полагая s в n раз меньше площади центрального пятна в дифракционном изображении точки O_1 , получаем

$$w_1 = \frac{2\sqrt{\pi} \lambda^4 \zeta \Phi_n S^2(\Theta, \psi)}{9\hbar\omega\mu\rho\Gamma \sin^2 \Theta_0}, \quad (37)$$

где Φ — поток излучения, падающего на объект.

В рассмотренном нами случае апертурные углы световых пучков однозначно определяют ρ . Как показано выше, при малых апертурных углах (когда $\rho \gg \lambda$) изменение спектра флуктуаций фототока при уменьшении ρ или n сводится к появлению при ρn порядка K_0^2 низкочастотной, нелорентцевской компоненты, ширина которой является функцией ρ . Отношение сигнала к шуму для лорентцевской компоненты обратно пропорционально ρ , следовательно, изучение микрообъемов вещества методами гомодинного детектирования рассеянного излучения должно быть проще, чем исследование этим же методом больших объемов.

Литература

- [1] Дж. Бенедек. Усп. физ. наук, 106, 481, 1972.
- [2] H. Z. Cummins, H. L. Swinney. Progress in Opt. 8, 133, 1970.
- [3] J. Jeh, R. N. Keeler. Quart. Rev. Biophys., 2, 315, 1969.
- [4] T. Moeda, S. Fujime. Rev. Sci. Instr. 43, 566, 1972.
- [5] R. V. Edwards, J. C. Angus. J. Appl. Phys., 42, 873, 1971.
- [6] R. H. Brown, R. Q. Twiss. Proc. Roy. Soc., A243, 291, 1958.

- [7] Г. М. Свищев. *Опт. и спектр.*, 33, 362, 1972.
[8] D. M. Schaefer, B. J. Verne. *Phys. Rev. Lett.*, 28, 475, 1972.
[9] М. Борн, Э. Вольф. *Основы оптики*. Изд. «Наука», М., 1970.
[10] Г. ван де Хюлст. *Рассеяние света малыми частицами*. ИЛ, М., 1961.
[11] С. Чандрасекар. *Стохастические проблемы в физике и астрономии*. ИЛ, М., 1947.
[12] M. J. French, J. C. Angus, A. G. Wallon. *Science*, 163, 345, 1969.
[13] N. E. Clark, J. H. Lunasek, G. B. Benedek. *Am. J. Phys.*, 38, 575, 1970.
[14] R. Foord, E. Jakeman, C. J. Oliver, E. R. Pice, R. J. Blagrove, E. Wood, A. R. Peacocke. *Nature*, 227, 242, 1970.
[15] H. Z. Cummins. *Intern. School of Phys. «Enrico Fermi»*, Varenna 1967, ed. R. Glauber, N. Y. 1968.
[16] J. Rosser. *Theory and application of ...*, N. Y., 1948.

Поступило в Редакцию 4 октября 1972 г.