УДК 535.375.5+537.29+538.6

РАСЩЕПЛЕНИЕ В ЭЛЕКТРОМАГНИТНОМ ПОЛЕ СПЕКТРАЛЬНЫХ ЛИНИЙ КОМБИНАЦИОННОГО РАССЕЯНИЯ СВЕТА ОТ ЖИДКОЙ КАПЛИ

Ю. А. Быковский, Э. А. Маныкин, И. Е. Нахутин, П. П. Полуэктов и Ю. Г. Рубежный

Рассмотрены сдвиги частот поверхностных колебаний жидкой капли в присутствии электромагнитного поля. Показано, что в этом случае частично снимается вырождение частот. Проведены численные оценки для капель воды радиусом 0.5 мкм.

В настоящее время ведется интенсивная разработка методов непрерывного и дистанционного определения размеров и концентрации частиц с помощью лазеров [1-5]. Один из этих методов [4, 5] основан на открытом авторами явлении — сдвиге частоты при рассеянии света на тепловых колебаниях формы частицы — и предназначен для определения спектра размеров жидких капель.

В связи с этим представляет интерес исследование влияния электромагнитного поля на спектр собственных колебаний капли, который и определяет величину сдвига частоты рассеянного света.

При нахождении спектра малых колебаний капли [6] было показано, что энергия поверхностных колебаний жидкой несжимаемой капли при условии малости амплитуды колебаний по сравнению с радиусом сферической частицы может быть представлена в виде суммы энергий независимых осцилляторов

$$E = \sum_l \sum_m \frac{(l-1)(l+2)}{2} \gamma \left\{ |\alpha_{lm}|^2 + \frac{1}{\omega_l^2} |\dot{\alpha}_{lm}|^2 \right\}, \tag{1}$$

где $\alpha_{lm}(t)$ — амплитуда парциального колебания;

$$\omega_l = \sqrt{\frac{\gamma}{\rho R_0^3} l(l-1)(l+2)} \tag{2}$$

парциальная частота; γ — коэффициент поверхностного натяжения (для воды, например, при комнатной температуре $\gamma \simeq 72$ эрг/см² [7]; R_0 — радиус сферической невозмущенной капли.

При этом предполагалось, что форма капли изменяется по следующему закону:

$$R = R_0 + \sum_{l=2}^{\infty} \sum_{m=-l}^{l} \alpha_{lm}(t) Y_{lm}(\Theta, \varphi), \tag{3}$$

где (R, Θ, φ) — координаты точки на поверхности капли, $Y_{lm}(\Theta, \varphi)$ — сферическая функция, нормированная на единицу.

Если каплю поместить в постоянное электрическое или магнитное поле или поле электромагнитной волны, произойдет перенормировка парциальных частот поверхностных колебаний.[1] При описании последних к энергии осцилляторов [см. (1)] следует добавить энергию поля.

[1] В данной статье ограничимся случаем квазиоднородных полей, когда длина волны удовлетворяет соотношению $\lambda \gg R_0$. В этом случае перенормировка приобретает

Колебания формы капли приводят к появлению поля комбинационного рассеяния, которое можно разложить по степеням парциальных амплитуд. Линейный член в этом разложении описывает резонансную раскачку поверхностного колебания, а квадратичный — перенормировку парциальных колебаний и их взаимодействие через поле.

Колебания формы капли приводят к появлению поля комбинационного рассеяния, которое можно разложить по степеням парциальных амплитуд. Линейный член в этом разложении описывает резонансную раскачку поверхностного колебания, а квадратичный — перенормировку парциальных колебаний и их взаимодействие через поле.

Для нахождения поля рассеяния воспользуемся уравнениями Максвелла в интегральной форме [9]

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{E}_0(\mathbf{r}, t) + \operatorname{rot}\left(-\frac{1}{c}\dot{\Pi}_m + \operatorname{rot}\Pi_e\right) - 4\pi\mathbf{P}, \tag{4}$$

$$\mathbf{B}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{H}_0(\mathbf{r}, t) + \operatorname{rot}\left(\frac{1}{c}\dot{\Pi}_e + \operatorname{rot}\Pi_m\right),$$

где

$$\Pi_e = \int \frac{\mathbf{P}\left(\mathbf{r}', t - \frac{R}{c}\right)}{R} dv', \quad \Pi_m = \int \frac{\mathbf{M}\left(\mathbf{r}', t - \frac{R}{c}\right)}{R} dv' \tag{5}$$

векторы Герца; $\mathbf{P}(\mathbf{r}, t)$ и $\mathbf{M}(\mathbf{r}, t)$ — поляризация и намагничивание, $R = |\mathbf{r} - \mathbf{r}'|$; $\mathbf{E}_0(\mathbf{r}, t)$ и $\mathbf{H}_0(\mathbf{r}, t)$ — напряженности внешних электрического и магнитного полей.

Сначала рассмотрим перенормировку частот для капель, магнитная проницаемость которых мало отличается от единицы. Тогда поле рассеяния будет описываться первым из уравнений (4), причем $\Pi_m = 0$. Будем считать, что поляризация линейно связана с полем: $\mathbf{P} = \mu\mathbf{E}$, $\mu = \frac{\varepsilon - 1}{4\pi}$, ε — диэлектрическая проницаемость вещества капли. Уравнение для поля удобно переписать в виде [9]

$$\mathbf{E}_{\text{эфф.}}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{E}_0(\mathbf{r}, t) + \alpha \operatorname{rot}\operatorname{rot} \int\limits_{v\left(t - \frac{R}{c}\right)} dv' \frac{\mathbf{E}_{\text{эфф.}}\left(\mathbf{r}', t - \frac{R}{c}\right)}{R} - \frac{8\pi}{3}\alpha(\mathbf{r})\mathbf{E}_{\text{эфф.}}(\mathbf{r}, t), \tag{6}$$

$$\mathbf{E}_{\text{эфф.}}(\mathbf{r}, t) = \left(1 + \frac{\varepsilon(\mathbf{r}) - 1}{3}\right)\mathbf{E}(\mathbf{r}, t), \quad \alpha = \frac{3}{4\pi}\frac{\varepsilon - 1}{\varepsilon + z} \tag{7}$$

(в отличие от μ параметр α всегда много меньше единицы; например, для воды при комнатной температуре в постоянном поле [7] $\varepsilon = 81$, $\mu = 6.40$, $\alpha = 0.23$; в оптическом диапазоне [9] $\varepsilon = 1.77$, $\mu = 0.061$, $\alpha = 0.048$). Интегрирование в уравнении (6) осуществляется по объему капли $v(t)$.

Поскольку отклонения от сферичности малы (по сравнению с радиусом капли), при нахождении $\mathbf{E}_{\text{эфф.}}$ можно считать каплю сферической. Это эквивалентно разбиению объема интегрирования на две части: сферу, представляющую невозмущенную каплю, и малые отклонения от сферичности. В нулевом приближении по α для невозмущенной капли $\mathbf{E}_{\text{эфф.}} = E_0$ (заметим, что точное значение поля внутри капли совпадает с нулевым приближением по α для $\mathbf{E}_{\text{эфф.}}^{(\text{сф.})}$ [9]). Тогда с помощью (6) поле рассеяния на колебаниях формы можно записать в виде

$$\mathbf{E}_{\text{эфф. расс.}}(\mathbf{r}, t) = \alpha \operatorname{rot}\operatorname{rot}\left(\mathbf{E}_0\left(t - \frac{r}{c}\right) N(\mathbf{r}, t)\right), \tag{8}$$

$$N(\mathbf{r}, t) = \int\limits_{v\left(t - \frac{r}{c}\right) - v_{\text{сф.}}} vd' \frac{1}{R} = \begin{cases} N_i(\mathbf{r}, t), & r < R_0, \\ N_e(\mathbf{r}, t), & r > R_0. \end{cases} \tag{9}$$

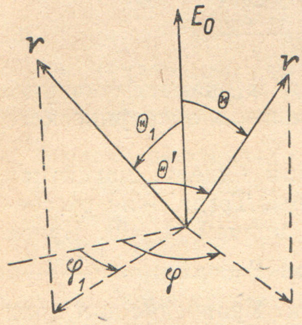
наглядный смысл, поскольку равновесная форма капли, помещенной в однородное поле, отлична от сферической.

Здесь интегрирование происходит по отклонениям формы от сферичности.

Подставляя выражение $\mathbf{E}_{\text{эфф.}} = \mathbf{E}^{(\text{сф.})}_{\text{эфф.}} + \mathbf{E}_{\text{эфф. расс.}}$ в формулу для энергии поля $E_e = \int dv \frac{\varepsilon(r)\,\mathbf{E}^2}{8\pi}$, с помощью (7) найдем, что линейный член в разложении E_e по α, описывающий интересующие явления,[2] имеет вид

$$\int dv \frac{\varepsilon(r)\,\mathbf{E}_0(\mathbf{r},\ t)\,\mathbf{E}_{\text{эфф. расс.}}(\mathbf{r},\ t)}{4\pi\left[1+\frac{1}{3}(\varepsilon(r)-1)\right]^2}. \tag{10}$$

Очевидно, что в последнем интеграле существенна область интегрирования, представляющая собой сферу радиуса порядка длины волны, где поля $\mathbf{E}_0$ и $\mathbf{E}_{\text{эфф. расс.}}$ находятся в фазе. На больших расстояниях из-за интерференции полей вклад в интеграл мал. Таким образом, будем считать, что область интегрирования представляет собою сферу радиусом порядка $\lambda = c/\omega$ (или, если $\lambda_l < \lambda$, порядка $\lambda_l \sim c/\omega_l$, где ω_l определено выражением (2), а l малы). Применяя теорему о роторе [10], можем записать энергию поля следующим образом:



$$E_l = \frac{\alpha \mathbf{E}_0}{4\pi}\int d\mathbf{S} \times \operatorname{rot}(\mathbf{E}_0 T(\mathbf{r},\ t)), \tag{11}$$

$$T(\mathbf{r},\ t) = \frac{\varepsilon}{\left(1+\frac{\varepsilon-1}{3}\right)^2} N_i(\mathbf{r},\ t) - N_l(\mathbf{r},\ t), \tag{12}$$

а интеграл берется по поверхности сферы радиуса R_0.

Квадратичный по амплитудам член в разложении $N(\mathbf{r},\ t)$ представляется в виде

$$N_{(r)}(\mathbf{r},\ t) = \frac{1}{2}\sum_{lm,\ l'm'} \alpha_{lm}\alpha_{l'm'} \frac{\partial}{\partial R_0} R_0^2 \int dO \frac{Y_{lm}(\Theta,\ \varphi)\, Y_{l'm'}(\Theta,\ \varphi)}{\sqrt{R_0^2 + r^2 - 2rR_0\cos\Theta'}}, \tag{13}$$

где обозначения углов даны на рисунке.

С помощью производящей функции для полиномов Лежандра и теоремы сложения сферических функций [11], $N_{(r)}(\mathbf{r},\ t)$ можно преобразовать к следующему виду:

$$N_{(2)}(\mathbf{r},\ t) = \frac{1}{2}\sum_{lm,\ l'm'} \alpha_{lm}\alpha_{l'm'} \sum_{n=0}^{\infty} F_n\left(\frac{r}{R_0}\right) P_n(\cos\Theta_1)\, \varkappa^{(n)}_{lm,\ l'm'}, \tag{14}$$

$$F_l\left(\frac{r}{R_0}\right) = \begin{cases} (l+2)\left(\dfrac{R_0}{r}\right)^{l+1}, & r > R_0, \\ -(l-1)\left(\dfrac{r}{R_0}\right)^{l'}, & r < R_0, \end{cases} \tag{15}$$

$$\varkappa^{(n)}_{lm,\ l'm'} = \int dO\, Y_{lm}(\Theta,\ \varphi)\, Y_{l'm'}(\Theta,\ \varphi)\, P_n(\cos\Theta). \tag{16}$$

Из (16) видно, что удобно пользоваться сферическими функциями, у которых зависимость от φ выражается с помощью $\sin m\varphi$ и $\cos m\varphi$. В этом случае будут взаимодействовать колебания лишь с одинаковой зависимостью от φ.

---

[2] Отметим, что, согласно [9], при нахождении решения уравнения (6) нельзя ограничиваться первым членом разложения по α, нужно также, чтобы частицы были достаточно малы. В нашем рассмотрении $R \ll \lambda$, что обеспечивает правильность результата при всех α.

Таким образом, сохраняя обычные обозначения, будем использовать следующие нормированные сферические функции:

$$Y_{lm}(\Theta, \varphi) = n_{l|m|} P_l^{|m|}(\cos\Theta) \begin{cases} \cos m\varphi, & l \geqslant m \geqslant 0, \\ \sin m\varphi, & -l \leqslant m \leqslant 0, \end{cases} \tag{17}$$

$$n_{l|m|} = \begin{cases} \sqrt{\dfrac{2l+1}{2\pi} \dfrac{(l-|m|)!}{(l+|m|)!}}, & m \neq 0, \\ \sqrt{\dfrac{2l+1}{4\pi}}, & m = 0. \end{cases} \tag{18}$$

Подставляя (14)—(16) в (12) и используя выражение

$$\mathbf{E}_0 [\mathbf{n} \operatorname{rot} (\mathbf{E}_0 T)] = -E_0^2 \sin^2\Theta \left(\frac{\partial T}{\partial r} - \frac{1}{r} \frac{\partial T}{\partial \cos\Theta} \right),$$

а также рекуррентные соотношения для полиномов Лежандра [11], получим из (11)

$$E_l = \frac{\alpha E_0^2}{4} R_0 \sum_{l'm} a_{lm} a_{l'm} \times$$

$$\times \left[\frac{28}{15} \left(6 - \frac{\varepsilon}{\left(1 + \frac{\varepsilon - 1}{3}\right)^2} \right) \varkappa_{lm,\, l'm}^{(2)} - 4\varkappa_{lm,\, l'm}^{(1)} - \frac{4}{3} \varkappa_{lm,\, l'm}^{(0)} \right]. \tag{19}$$

Подставляя (17) и (18) в соотношение (16), найдем

$$\varkappa_{lm,\, l'm}^{(n)} = \sqrt{\frac{(2l+1)(2l'+1)}{4} \frac{(l-|m|)!}{(l+|m|)!} \frac{(l'-|m|)!}{(l'+|m|)!}}\, \beta_{ll'm}^{(n)}, \tag{20}$$

где

$$\beta_{ll'm}^{(n)} = \int_{-1}^{1} dx P_l^m(x) P_{l'}^m(x) P_n(x).$$

Конечный результат (19) выражается через коэффициенты $n = 0, 1, 2$ следующим образом:

$$\beta_{ll'm}^{(0)} = \frac{2}{2l+1} \frac{(l+|m|)!}{(l-|m|)!} \delta_{ll'},$$

$$\beta_{ll'm}^{(1)} = \frac{l-|m|+1}{2l+1} \frac{2}{2l+3} \frac{(l+1+|m|)!}{(l+1-|m|)!} \delta_{l+1,\, l'} + $$

$$+ \frac{l+|m|}{2l-1} \frac{(l-1+|m|)!}{(l-1-|m|)!} \delta_{l-1,\, l'}, \tag{21}$$

$$\beta_{ll'm}^{(2)} = \frac{3(l-|m|+1)(l-|m|+2)}{(2l+1)(2l+3)(2l+5)} \frac{(l+2+|m|)!}{(l+2-|m|)!} \delta_{l+2,\, l'} + $$

$$+ \frac{3(l+|m|)(l+|m|-1)}{(4l^2-1)(2l-3)} \frac{(l-2+|m|)!}{(l-2-|m|)!} \delta_{l-2,\, l'} + $$

$$+ \left[\frac{3(l-|m|+1)(l+|m|+1)}{(2l+1)(2l+3)} + \frac{3(l^2-m^2)}{4l^2-1} - 2 \right] \frac{\delta_{ll'}}{2l+1}.$$

Эти формулы были получены с помощью следующего рекуррентного соотношения [11]:

$$(2l+1)\, x P_l^m(x) = (l-m+1) P_{l+1}^m(x) + (l+m) P_{l-1}^m(x).$$

Используем полученные результаты для вычисления перенормировки частот колебаний с $l = 2$.

Выделяя из формул (21) члены, содержащие множитель $\delta_{ll'}$, которые описывают перенормировку (недиагональные члены определяют взаимодействие колебаний через поле), получим следующие выражения для энергии:

$$E_l = -\frac{\alpha E_0^2}{4} R_0 a_{2m}^2 k_m(\varepsilon), \tag{22}$$

$$k_m(\varepsilon) = \begin{cases} \frac{2}{15}\left(28 - \frac{3\varepsilon}{\left(1+\frac{\varepsilon-1}{3}\right)^2}\right), & m=0, \\ \frac{1}{9}\left(18 - \frac{\varepsilon}{\left(1+\frac{\varepsilon-1}{3}\right)^2}\right), & m=1, \\ \frac{1}{6}\left(19 - \frac{11}{6}\frac{\varepsilon}{\left(1+\frac{\varepsilon-1}{3}\right)^2}\right), & m=2. \end{cases} \tag{23}$$

Складывая (1) и (22), найдем, что в присутствии поля для парциальных частот получаются следующие значения:

$$\omega_{2m} = \omega_2 \sqrt{1 - \frac{\alpha E_0^2 R_0}{8\gamma} k_m(\varepsilon)}. \tag{24}$$

Из двух последних соотношений следует, что в присутствии поля снимается вырождение частот по числу m. Здесь рассматривается расщепление первой линии спектра с $l=2$. Очевидно, что в следующих линиях с $l>2$ расщепление также будет иметь место.

Обсудим возможность экспериментального наблюдения явления. Рассмотрим водяные капли размером $R_0 \sim 0.5$ мкм ($\omega_2 \simeq 7\cdot 10^8$ с$^{-1}$, $\nu_2 \simeq \omega_2/2\pi \simeq \simeq 10^8$ с$^{-1}$), предельно согласующимся с неравенством $R \ll \lambda$ при оптическом облучении. Разрушение частиц в этом случае происходит при интенсивности $I \simeq 10^9$ Вт/см^2 [13]. В более слабых полях $I \simeq 10^8$ Вт/см^2 перенормировка частоты, согласно (24), составляет $\Delta\omega/\omega_2 \sim 0.3\%$, т. е. $\Delta\nu \sim 30$ кГц. Поскольку такие большие поля можно достичь лишь при работе лазера в импульсном режиме, то наблюдение сдвига возможно, если ширина линии облучения (порядка $\tau_{имп.}^{-1}$, где $\tau_{имп.}$ — длительность импульса) много меньше $\Delta\nu$, т. е. $\Delta\nu\tau_{имп.} \gg 1$. Требуемые условия выполняются, например, при использовании лазера на неодимовом стекле в режиме миллисекундного импульса, когда можно получить $\tau_{имп.} \sim 10^{-2}$ с при пиковой мощности $W \sim 10^6$ Вт [14]. Для больших частиц и в больших полях сдвиг может быть существеннее. При колебаниях капли вязкой жидкости произойдет уширение спектральных линий, которое может перекрыть интервал между расщепленными линиями. Оценка этого уширения будет произведена нами в дальнейшем.

В заключение рассмотрим вопрос о перенормировке парциальных частот в постоянном магнитном поле. Эта задача представляет интерес для магнитных жидкостей [12].

Будем предполагать, что магнитная индукция **B** и напряженность **H** связаны линейно: $\mathbf{B} = m_M \mathbf{H}$, m_M — магнитная проницаемость.

В области капли с помощью уравнений (4) и (5) имеем

$$E \sim \frac{1}{R_0} k\Pi_m \text{ и } \Pi_e \sim \mu R_0^2 E \sim \mu (kR_0)\,\Pi_m,$$

где $k=\omega/c$, ω — частота поверхностных колебаний. Подставляя полученную для Π_e оценку в (4), видим, что в выражении для магнитной индукции, стоящей под знаком ротора, можно с точностью до $\mu(kR_0)^2$ (так как $kR_0 \ll 1$) пренебречь первым членом по сравнению со вторым. Полученное интегральное уравнение в точности совпадает с уравнением (6), если ввести

$$\mathbf{H}_{\text{эфф}}(\mathbf{r},\ t)=\left(1+\frac{m_M(\mathbf{r})-1}{3}\right)\mathbf{H}(\mathbf{r},\ t),$$

$$\alpha_M(\mathbf{r})=\frac{3}{4\pi}\,\frac{m_M(\mathbf{r})-1}{m_M(\mathbf{r})+2}.$$

Таким образом, перенормировка частот в постоянном магнитном поле описывается формулами (23), (24), если в них осуществить замену $\mathbf{E}_0\to\mathbf{H}_0$, $\alpha\to\alpha_M$, $k_m(\varepsilon)\to k_m(m_м)$. Полагая $\gamma\sim10^2$ эрг/см², $\rho\sim1$ г/см², $m_M\sim1.5$, $R_0\sim0.5$ мкм, $B\sim10^4$ Гс (сравнительно слабые поля), найдем, что относительное изменение частоты составляет 50% от ω_2. Таким образом, наложение электрического поля снимает вырождение частот поверхностных колебаний капли. Происходит расщепление линий спектра. Соответственно при наложении магнитного поля на каплю магнитной жидкости также происходит расщепление линий в спектре комбинационного рассеяния.

Литература

[1] W. Hinds, P. C. Reist. J. Aerosol Sci., *3*, № 6, 501, 1972.
[2] J. Heider, C. Roth, W. Stanlhofen. J. Aerosol Sci., *2*, 341, 1971.
[3] B. G. Shuster, R. Knollenberg. Appl. Opt., *11*, 1515, 1972.
[4] Ю. А. Быковский, Э. А. Маныкин, И. Е. Нахутин, Ю. Г. Рубежный. Квантовая электроника, *2*, 1803, 1975.
[5] Ю. А. Быковский Э. А. Маныкин, И. Е. Нахутин, П. П. Полуэктов, Ю. Г. Рубежный. Ж. прикл. спектр., *23*, 866, 1975.
[6] S. Flügge. Ann. Physik, *39*, 373, 1941.
[7] У. Чайлдс. Физические постоянные. Справочное пособие. ГИФМЛ, М., 1962.
[8] М. Борн, Э. Вольф. Основы оптики. «Наука», М., 1972.
[9] К. С. Шифрин. Рассеяние света в мутной среде. ГИТТЛ, М.—Л., 1951.
[10] Г. Корн, Т. Корн. Справочник по математике. «Наука», М., 1973.
[11] Ж. Кампе де Ферье, Р. Кемпбелл, Г. Петьо, Т. Фогель. Функции математической физики. Справочное руководство. ГИФМЛ, М., 1963.
[12] М. И. Шлиомнис. Усп. физ. наук, *112*, 427, 1974.
[13] Ю. А. Вдовин, В. М. Ермаченко, Ю. Г. Рубежный. ЖТФ, *45*, 1975.
[14] Дж. Рэди. Действие мощного лазерного излучения. 43. «Мир», М., 1974.

Поступило в Редакцию 9 апреля 1975 г.