УДК 535.375.01

КОМБИНАЦИОННОЕ РАССЕЯНИЕ СВЕТА НА ПРОИЗВОЛЬНЫХ ТЕПЛОВЫХ КОЛЕБАНИЯХ ФОРМЫ ЖИДКОЙ СФЕРИЧЕСКОЙ ЧАСТИЦЫ

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

Рассмотрено рассеяние света на произвольных тепловых колебаниях формы (РИКФ) жидкой капли при любых значениях kR_0, где k — волновой вектор излучения, R_0 — радиус частицы. Показано, что для малых частиц ($kR_0 < 1$) РИКФ происходит назад, причем сечение $\sim(kR_0)^8$. Для больших капель ($kR_0 \gg 1$) РИКФ осуществляется в область углов $(kR_0)^{-1} < \theta_н < 2\pi(kR_0)^{-1}$ с сечением $\sim(kR_0)^2$, где угол $\theta_н$ отсчитывается от направления падающего излучения.

В работе [1] было установлено, что тепловые колебания формы жидкой сферической частицы приводят к сдвигу частоты падающего электромагнитного излучения (эффект РИКФ).

Спектр колебаний формы жидкой сферической частицы имеет следующий вид [2, 3]:

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

где ω_l — собственная частота парциального колебания капли; γ, ρ, R_0 — соответственно коэффициент поверхностного натяжения, плотность и радиус капли в отсутствие колебаний. При этом общее выражение для произвольного малого отклонения ($\Delta R \ll R_0$) несжимаемой капли от положения равновесия представляется следующим образом:

$$R = R_0 + \sum_{l=2}^{\infty} \sum_{m=-l}^{l} (a_{lm} \cos \omega_l t)\, Y_{lm}(\theta, \varphi), \tag{2}$$

где $Y_{lm}(\theta, \varphi)$ — сферическая функция, нормированная на произведение дельта-функций $\delta_{ll'}\delta_{mm'}$, (R, θ, φ) — точка на поверхности капли, a_{lm} — амплитуда парциального колебания.

В [1] рассматривались эллипсоидальные колебания как наиболее простой тип изменения формы сферической частицы. Однако кроме указанного типа колебаний, существует ряд других более сложных, но обладающих одинаковыми с эллипсоидальными частотами. Колебанию жидкой сферической частицы с частотой ω_l соответствует $(2l+1)$ различных видов формы поверхностей.

Настоящая работа посвящена учету этого вырождения в эффекте РИКФ.

Энергия колебания частицы является суммой энергий парциальных колебаний, определенных следующим соотношением [2]:

$$E_{lm} = \varkappa_l \gamma a_{lm}^2, \quad \varkappa_l = \frac{(l-1)(l+2)}{2}. \tag{3}$$

Поскольку капля находится в тепловом равновесии с окружающей средой, справедливо гиббсовское распределение по энергиям для отдельного парциального колебания

$$dW_{lm} = B_l \exp\left(-\frac{E_{lm}}{k_Б T}\right) da_{lm}, \tag{4}$$

где T — температура капли, $k_Б$ — постоянная Больцмана, $B_l = (\varkappa_l \gamma / \pi k_Б T)^{1/2}$ — нормировочный коэффициент.

С помощью (4) нетрудно убедиться, что для среднеквадратичной амплитуды парциального колебания имеет место соотношение

$$\sqrt{\overline{a_{lm}^2}} = \sqrt{\frac{k_Б T}{2\varkappa_l \gamma}} \sim \frac{2 \cdot 10^{-8}}{\sqrt{(l-1)(l+2)}} \text{ (см)}, \tag{5}$$

из которого вытекает, что она максимальна для $l = 2$: $\sqrt{\overline{a_2^2}} \sim 10^{-8}$ см. Поэтому в дальнейшем будем использовать следующие неравенства: $\sqrt{\overline{a_l^2}} \ll R_0$, $2\pi \sqrt{\overline{a_l^2}}/\lambda \ll 1$, где λ — длина волны рассеиваемого света.

Для определения поля комбинационного рассеяния используем метод интегрального уравнения, развитый в [4],

$$\mathbf{E}_{эфф.}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{E}_0 \exp(-i\mathbf{kr} + i\omega t) + \operatorname{rot}\operatorname{rot}\int \alpha(\mathbf{r}') \mathbf{E}_{эфф.}(\mathbf{r}', t) \frac{e^{-ikR}}{R} vd' -$$

$$-\frac{8\pi}{3}\alpha(\mathbf{r}) \mathbf{E}_{эфф.}(\mathbf{r}, t),$$

$$\mathbf{E}_{эфф.}(\mathbf{r}, t) = \left(1 + \frac{4\pi}{3}\mu(\mathbf{r})\right)\mathbf{E}(\mathbf{r}, t), \quad \mu(\mathbf{r}) = \frac{\varepsilon(\mathbf{r}) - 1}{4\pi} - i\frac{\sigma(\mathbf{r})}{\omega} = \frac{m^2(\mathbf{r}) - 1}{4\pi},$$

$$\alpha(\mathbf{r}) = \mu(\mathbf{r})\left[1 + \frac{4\pi}{3}\mu(\mathbf{r})\right]^{-1} = \frac{3}{4\pi}\frac{m^2(\mathbf{r}) - 1}{m^2(\mathbf{r}) + 2}, \quad R = |\mathbf{r} - \mathbf{r}'|,$$

где ε, σ, m — диэлектрическая проницаемость, электропроводность и комплексный показатель преломления вещества.

Интегрирование в уравнении (5) производится по объему частицы. Входящий в интегральное уравнение параметр α является для всех имеющих практический интерес случаев величиной малой (например, для воды в оптическом диапазоне $\mu = 0.061$, $\alpha = 0.048$ [4]). В этом случае $\mathbf{E}_{эфф.}(\mathbf{r}, t)$ можно выразить в виде ряда по степеням α.[1]

В нулевом приближении эффективное поле равно внешнему $\mathbf{E}^{(0)}_{эфф.}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{E}_0 \exp(-i\mathbf{kr} + i\omega t)$.

В волновой зоне ($r \gg \lambda$ и $r \gg R_0$) поле рассеяния в первом приближении по α имеет вид

$$\mathbf{E}_{расс.}(\mathbf{r}, t) = \alpha k^2 [[\mathbf{V}_1(\mathbf{r}, t)\mathbf{n}]\mathbf{n}] \frac{\exp(-ikr + i\omega t)}{r}, \quad \mathbf{n} = \frac{\mathbf{r}}{r}; \tag{6}$$

$$\mathbf{V}_1(\mathbf{r}, t) = \int_{v'} \mathbf{E}^{(0)}_{эфф.}(\mathbf{r}') \exp(ik\mathbf{nr}')\, dv', \tag{7}$$

где v' — «колеблющийся» объем.

$\mathbf{V}_1(\mathbf{r}, t)$ можно представить в виде суммы интеграла по объему сферической частицы радиуса R_0 и интеграла по области, представляющей отклонение от сферичности. Первый член определит рассеяние без сдвига частоты, а второй $\mathbf{V}$ — комбинационное рассеяние

$$\mathbf{V} = \mathbf{E}_0 R_0^2 \sum_{l, m} a_{lm} \cos\omega_l t K_{lm}(kR_0, \theta_н, \varphi_н), \tag{8}$$

---

[1] Известно [4], что первым приближением по α при вычислении $E_{эфф.}$ можно ограничиться лишь в случае достаточно малых частиц, когда параметр $2\pi\alpha kR$ не превосходит значений порядка единицы; для больших частиц излагаемая теория носит качественный характер.

$$K_{lm}(\beta,\ \theta_н,\ \varphi_н) = \int_0^\pi d\cos\theta \int_0^{2\pi} d\varphi \exp[i\beta(\cos\theta\cos\theta_н - \cos\theta + \sin\theta\sin\theta_н\cos(\varphi_н - \varphi)]\, Y_{lm}(\theta,\ \varphi), \tag{9}$$

где $\theta_н$, $\varphi_н$ — углы в сферической системе координат, определяющие направление в точку наблюдения, причем $\theta_н$ (и θ) отсчитываются от волнового вектора $\mathbf{k}$.

Ограничимся рассмотрением РИКФ с минимальным сдвигом частоты, которому, согласно (1), соответствуют парциальные колебания с $l=2$ (для воды $\gamma \simeq 72$ дин/см при комнатной температуре [5], $\omega_2 \sim 10^9$ с$^{-1}$ при $R_0 \sim \sim 10^{-5}$ см). В этом случае вектор «поляризации», описывающий стоксово и антистоксово рассеяние, можно записать в виде

$$\mathbf{V} = \mathbf{E}_0 \frac{1}{2} R_0 \sum_{m=0,\ \pm 1,\ \pm 2} a_{2m}(\operatorname{sign} m)^m e^{im\varphi_н} J_{2|m|}(kR_0,\ \theta_н), \tag{10}$$

где учтено, что функции $K_{lm}(\beta,\ \theta_н,\ \varphi_н)$ представляются следующим образом:

$$\left.\begin{aligned} &K_{lm}(\beta,\ \theta_н,\ \varphi_н) = e^{im\varphi_н} J_{lm}(\beta,\ \theta_н), \quad K_{l,\,-m}(\beta,\ \theta_н,\ \varphi_н) = e^{-im\varphi_н}(-1)^m J_{lm}(\beta,\ \theta_н), \\ &J_{lm}(\beta,\ \theta_н) = \int_0^\pi d\cos\theta \int_0^{2\pi} d\varphi \exp[i\beta(\cos\theta\cos\theta_н - \cos\theta + \sin\theta\sin\theta_н\cos\varphi)]\, Y_{lm}(\theta,\ \varphi). \end{aligned}\right\} \tag{11}$$

Сечение комбинационного рассеяния может быть записано обычным образом [6]

$$d\sigma = \frac{|\mathbf{E}_{РИКФ}|^2 r^2 do}{|\mathbf{E}_0|^2} = \frac{[\mathbf{n}[\mathbf{n}\mathbf{V}]]^2 \alpha^2 k^4}{|\mathbf{E}_0|^2} do. \tag{12}$$

На основании известных соотношений векторного анализа имеем $[[\mathbf{nV}]\mathbf{n}]^2 = \mathbf{V}^2(1 - \sin^2\theta_н\cos^2\varphi_н)$. Подставляя это выражение в (12), усредним последнее с помощью распределения Гиббса (4). При этом учитывается, что $\overline{a_{2m}} = 0$, $\overline{a_{2m}^2} = k_Б T/4\gamma$ [см. (5)]. В результате интегрирования по углу $\varphi_н$ получим следующее дифференциальное сечение РИКФ на угол $\theta_н$:

$$d\sigma(\theta_н) = \alpha^2(kR_0)^4 \frac{k_Б T}{\gamma} \frac{\pi}{8}\left(1 - \frac{1}{2}\sin^2\theta_н\right) G(kR_0,\ \theta_н)\, d\cos\theta_н, \tag{13}$$

$$G(\beta,\ \theta_н) = |J_{20}(\beta,\ \theta_н)|^2 + 2|J_{21}(\beta,\ \theta_н)|^2 + 2|J_{22}(\beta,\ \theta_н)|^2. \tag{14}$$

В дальнейшем потребуется [см. (18), (19)] явный вид сферических функций $l=2$ [7]

$$\left.\begin{aligned} &Y_{2m}(\theta,\ \varphi) = n_{2m} P_2^m(\cos\theta)\, e^{im\varphi}, \quad n_{2m} = \sqrt{\frac{5}{4\pi}\frac{(2-m)!}{(2+m)!}}, \\ &P_2^0(x) = \frac{1}{2}(3x^2 - 1), \quad P_2^1(x) = -3x\sqrt{1-x^2}, \quad P_2^2(x) = 3(1-x^2). \end{aligned}\right\} \tag{15}$$

Вводя новые параметры

$$\beta_1 = -\beta(1 - \cos\theta_н), \quad \beta_2 = \beta\sin\theta_н, \tag{16}$$

перепишем функцию $J_{2m}(\beta,\ \theta_н)$

$$J_{2m}(\beta,\ \theta_н) = J_{2m}(\beta_1,\ \beta_2) = \int_0^\pi d\cos\theta \int_0^{2\pi} d\varphi \exp[i\beta_1\cos\theta + i\beta_2\sin\theta\cos\varphi]\, Y_{2m}(\theta,\ \varphi). \tag{17}$$

С учетом (15) и (17) очевидно, что

$$\left.\begin{aligned} &J_{20}(\beta_1,\ \beta_2) = -\frac{n_{20}}{2}\left(3\frac{\partial^2 X(\beta_1,\ \beta_2)}{\partial\beta_1^2} + X\right); \quad J_{21} = n_{21} 3 \frac{\partial^2 X}{\partial\beta_1 \partial\beta_2}; \\ &J_{22} = -n_{22} 3\left(2\frac{\partial^2 X}{\partial\beta_2^2} + X + \frac{\partial^2 X}{\partial\beta_1^2}\right), \end{aligned}\right\} \tag{18}$$

где

$$X(\beta_1,\ \beta_2) = \int do \exp\left[i\beta_1 \cos\theta + i\beta_2 \sin\theta \cos\varphi\right]. \tag{19}$$

Используя производящую функцию для бесселевых функций и табличный интеграл [8], найдем

$$X(\beta_1,\ \beta_2) = 4\pi \int\limits_0^1 dx \cos(\beta_1 x)\, J_0\left(\beta_2 \sqrt{1-x^2}\right) = 4\pi \frac{\sin B}{B},\quad B = \sqrt{\beta_1^2 + \beta_2^2} = 2\beta \sin\frac{\theta_н}{2}. \tag{20}$$

Таким образом, функция $X(\beta_1,\ \beta_2)$ зависит только от комбинации параметров β_1, β_2, определяемой с помощью B. Оказывается, функция $G(\beta,\ \theta_н) = G(\beta_1,\ \beta_2)$ также обладает этим же свойством. Подставляя (18) в (14) и используя (15), (20), с учетом очевидного уравнения $X'' + 2B^{-1}X' + X = 0$ получим

$$G(\beta,\ \theta_н) = \frac{5}{4\pi}\left(3\frac{X'}{B} + X\right)^2 \tag{21}$$

(штрихи при X означают дифференцирование по B).

В явном виде имеется следующая зависимость:

$$\Phi(B) = 3\frac{X'}{B} + X = 4\pi B^{-3}\left[3B\cos B + (B^2 - 3)\sin B\right]. \tag{22}$$

В области малых $B < 1$ (что соответствует малым частицам $kR_0 < 1$, а в случае больших частиц — $\beta = kR_0 \gg 1$ — малым углам рассеяния $\theta_н < \beta^{-1}$) с учетом первых трех членов разложения $\sin B$ и $\cos B$ имеем

$$\Phi(B) = -\frac{4\pi}{15}B^2,\quad G(\beta,\ \theta_н) = G(B) = \frac{4\pi}{45}B^4, \tag{23}$$

$$d\sigma(\theta_н) = \alpha^2 (kR_0)^8 \frac{k_Б T}{\gamma}\frac{8\pi^2}{45}\left(1 - \frac{1}{2}\sin^2\theta_н\right)\sin^4\frac{\theta_н}{2}\, d\cos\theta_н. \tag{24}$$

Формула (24) показывает, что в случае малых частиц РИКФ происходит в основном назад, причем рассеяние со сдвигом частоты сильно убывает (как R_0^8) с уменьшением размера частицы (в то время как рэлеевское рассеяние убывает пропорционально R_0^6 [6]). Полное сечение РИКФ в случае малых частиц равно [9]

$$\sigma = \alpha^2 (kR_0)^8 \frac{k_Б T}{\gamma} n_1,\quad n_1 = 0.161. \tag{25}$$

Для капель воды $R_0 \sim 0.1$ мкм ($kR_0 \sim 1$) $\sigma \sim 0.25 \cdot 10^{-18}$ см^2.

Из формулы (23) следует, что в случае больших частиц $kR_0 \gg 1$ интенсивность комбинационного рассеяния в область малых углов ($\theta_н < \beta^{-1}$) мала. Максимумы РИКФ соответствуют экстремумам функции Φ (B), а минимумы — ее нулям. Приравнивая первую производную функции (22) нулю, получим, что ближайший к нулю максимум соответствует $B_{m_1} = 3.2$, причем $|\Phi(B_{m_1})| \simeq 4\pi \cdot 0.315$. Следующему экстремуму функции (22) отвечает значение $B_{m_2} \simeq \frac{5}{2}\pi$, $|\Phi(B_{m_2})| \simeq 4\pi \cdot 0.13$. Нули же функции $\Phi(B)$ почти в точности соответствуют $B \simeq 2\pi b$, где $b = 0,\ 1,\ 2\ \ldots$ Таким образом, в случае больших частиц РИКФ происходит в основном в область углов (назовем ее главной), соответствующую следующим значениям B и $\theta_н$:

$$1 < B < 2\pi,\quad (kR_0)^{-1} < \theta_н < 2\pi (kR_0)^{-1}, \tag{26}$$

причем сечение рассеяния в главную область определяется в следующем виде:

$$\sigma_{гл.} \simeq \alpha^2 \frac{k_Б T}{\gamma}(kR_0)^2 n_2,\quad n_2 \simeq 30. \tag{27}$$

Для капелек воды размером $R_0 \sim 10$ мкм (что соответствует $kR_0 \sim \sim 100$) $\sigma_{\text{гл.}} = 0.3 \cdot 10^{-12}$ см^2.

Интенсивность рассеяния в соседнюю область экстремальности ($2\pi < B < 4\pi$) составляет менее 20% интенсивности рассеяния в главную область. При дальнейшем росте B интенсивность падает как B^{-2}, как видно из (21), (22).

Отметим, что результаты работы [1] относятся только к случаю малых частиц и получаются во втором порядке малости по α, поскольку в выражение для полного дипольного момента эллипсоида коэффициент размагничивания, учитывающий отклонение от сферичности, входит в произведение с $(\varepsilon - 1) \sim \alpha$ [см. (5)] [6]. Если сечение РИКФ, найденное в [1], пропорционально $\alpha^4 (kR_0)^4$, то в первом порядке по α $\sigma \sim \alpha^2 (kR_0)^8$ [см. (25)]. Очевидно, что результат [1] применим до $kR_0 \sim \sqrt{\alpha}$ (~ 0.2 для воды). При больших размерах частиц вкладом, связанным со вторым порядком по α, можно пренебречь.

Литература

[1] Ю. А. Быковский, Э. А. Маныкин, И. Е. Нахутин, Ю. Г. Рубежный. Квантовая электроника, № 8, 1975.

[2] S. Flügge. Ann. Phys., *5*, 373, 1941.

[3] Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц. Механика сплошных сред. ГИТТЛ, М., 1954.

[4] К. С. Шифрин. Рассеяние света в мутной среде. ГИТТЛ, М.—Л., 1951.

[5] У. Чайлдс. Физические постоянные. Справочное пособие. ГИФМЛ, М., 1962.

[6] Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц. Электродинамика сплошных сред. ГИТТЛ, М., 1957.

[7] Ж. Кампе де Ферье, Р. Кемпбелл, Г. Петео, Т. Фогель. Функции математической физики. Справочное руководство. ГИФМЛ, М., 1963.

[8] И. С. Градштейн, И. М. Рыжик. Таблицы интегралов, сумм, рядов и произведений. «Наука», М., 1971.

[9] Ю. А. Быковский, Э. А. Маныкин, И. Е. Нахутин, П. П. Полуэктов, Ю. Г. Рубежный. Ж. прикл. спектр., *23*, 866, 1975.

Поступило в Редакцию 27 февраля 1976 г.