

Н.Н. Белов¹, Н.Г. Белова²

Пульсации интенсивности в центре и в главном максимуме оптического поля аэрозольной частицы

¹ АТЕСН КФТ, г. Будапешт, Венгрия

² АЭРОЗОЛЬ ТЕХНОЛОГИЯ, г. Москва, Россия

Поступила в редакцию 2.10.2001 г.

Выполнены исследования распределения интенсивности оптического поля в частицах для многих неорганических и органических материалов, важных для оптики аэрозолей с показателем преломления 1,4. Показано, что интенсивность оптического поля в центре капли изменяется квазипериодически с изменением параметра дифракции. Период модуляции зависимости оптического поля от параметра дифракции капли равен примерно единице. Показана возможность нахождения интенсивности в центре капли из стандартной зависимости, найденной для прозрачной частицы. Интенсивность оптического поля в главном максимуме капли существенно сложнее зависит от параметра дифракции капли. Показано, что для высокопрозрачных частиц с ростом размера частиц квазипериодическая зависимость интенсивности в главном максимуме от параметра дифракции сменяется все более сложной картиной интерференционных биений. Для веществ с высоким поглощением можно различить две пульсационные зависимости – модуляционную (период около 20) и высокочастотную (период около 1).

Полученные результаты могут быть использованы для прямого расчета испарения вещества частиц с показателем преломления около 1,4 и разными значениями мнимой части показателя преломления.

Введение

Знание распределения оптических полей в объеме аэрозольных частиц имеет определяющее значение при исследовании поведения аэрозольных частиц в лазерном пучке (фотофорез частиц, взрыв частиц в лазерных пучках одночастичного лазерного масс-спектрометра [1] и т.д.).

До сих пор данные об оптических полях в аэрозольных частицах весьма скудны. В результате многие исследования различных процессов, важных для аэрозольной науки, опираются на упрощенные и часто неверные представления о распределении оптического поля в аэрозольных частицах и механизмах взаимодействия лазерного излучения с веществом частицы.

Например, в работах [2 и 3], моделирующих процессы в одночастичном лазерном масс-спектрометре, для описания распределения оптического поля в частицах использован закон Бугера. В соответствии с этим предположением наибольшее значение интенсивности лазерного излучения, воздействующего на вещество частицы, имеет место на освещенной поверхности частицы. Более того, предполагается, что интенсивность излучения в главном максимуме не превышает интенсивности излучения, падающего на частицу. В то же время расчеты оптических полей в аэрозольных частицах с высоким значением показателя преломления показывают наличие максимума оптического поля, который, как правило, лежит в теневой полусфере частицы и существенно превышает интенсивность невозмущенного излучения [4].

Аналогичные результаты получены для широкого спектра слабопоглощающих частиц [4]. Впрочем и для частиц из сильнопоглощающих материалов могут быть условия, при которых главный максимум оптического поля размещен в теневой полусфере. К тому же интенсивность излучения в главном максимуме таких частиц может существенно превышать интенсивность излучения вне частицы [5]. Разумеется, что выводы [2 и 3], построенные на таких произвольных предположениях о распределении оптического поля в аэрозольных частицах, нельзя признать обоснованными.

В настоящей статье проведено исследование оптических полей в аэрозольных частицах с показателем преломления 1,4. Это значение показателя преломления часто встречается у многих органических жидкостей, растворов серной кислоты, различных минералов, характерных для атмосферной пыли.

1. Расчеты оптических полей в частицах

Для расчетов внутренних оптических полей в частице использовано суммирование рядов Ми по алгоритмам, описанным в [6]. Помимо моделирования оптического поля суммированием рядов Ми расчеты в центре частицы радиуса a выполнены с использованием соотношений, опубликованных в [7]. Главный максимум найден путем сопоставления интенсивностей в узлах сетки, которые отстоят друг от друга по радиусу на величину $\Delta r = \lambda / (40\pi |m|^2)$, где λ – длина волны падающего излучения; $\pi = 3,14\dots$;

$m = n - ik$ – комплексный показатель преломления вещества частицы. По углу узлы сетки отстоят на величину $\Delta\theta = \lambda / (40a |m|^2)$.

Ниже приведены результаты сопоставления зависимостей от параметра дифракции величины интенсивности оптического поля в центре аэрозольных частиц и в точке расположения главного максимума внутреннего оптического поля. В [4] показано, что в теневой полусфере слабопоглощающих сферических частиц, таких как, например, капли нитрометана, формируется гигантский максимум оптического поля. Из работы [8] видно, что результаты исследования оптических полей, полученные для одной длины волны, могут быть перенесены на другие длины волн, если выполняются следующие критерии подобия:

$$n(\lambda_1) \approx n(\lambda_2); \quad (1)$$

$$\rho_1 \approx \rho_2; \quad (2)$$

$$k_1 a_1 \approx k_2 a_2, \quad (3)$$

где

$$\rho_i = 2\pi a_i / \lambda_i.$$

В работе [9] сделан важный шаг расширения условий подобия оптических полей в аэрозольных частицах. Показано, что оптические поля в частицах совпадают между собой, если в дополнение к (1), (2) выполняется следующее условие:

$$k\rho \ll 0,005. \quad (4)$$

В настоящей статье рассмотрена возможность дальнейшего расширения условий критерия подобия оптических полей в частицах с различными значениями коэффициента поглощения излучения веществом частицы.

Критерий (1) требует близости показателей преломления у сравниваемых веществ. Поэтому была выбрана серия самых различных наборов веществ и длин волн (таблица), для которых характерна близость значений действительных частей комплексных показателей преломления одному и тому же значению, равному 1,4 [10 – 12]. Необходимо отметить, что в важном для атмосферной оптики диапазоне длин волн 10,6 мкм действительная часть комплексного показателя преломления воды равна 1,264 (см. работу В.Е. Зуева [13]). Эта величина возрастает по мере приближения к видимой области спектра. Как правило, материалы в таблице приведены в порядке нарастания значения мнимой части показателя преломления.

На рис. 1 представлены зависимости B_c относительной интенсивности оптического поля в центре частиц с разными показателями поглощения от параметра дифракции. Важно отметить, что на кривую 1 ложатся результаты расчетов, проведенных для всех веществ из таблицы с номерами меньше 13. Таким образом, эта кривая описывает зависимости относительной интенсивности оптического поля от радиуса частиц самых разных материалов на разных длинах волн для веществ, мнимые части комплексных пока-

зателей преломления которых различаются на многие порядки величины. Практически кривая 1 рис. 1 может быть использована для характеристики оптического поля в центре любой слабопоглощающей сферы. Эта кривая дает точное значение внутреннего оптического поля для самых различных наборов оптических параметров ρ и m , относящихся к разряду слабопоглощающих частиц.

N п/п	Вещество частицы	Длина волны, мкм	Комплексный по- казатель прелом- ления		Лите- ратура
			n	k	
1	H ₂ O	2,5	1,395	9,307e-9	[11]
2	CaF ₂	4,8	1,401	3,5e-8	»
3	CaF ₂	5,5	1,392	3,5e-8	»
4	MgO	8,929	1,404	5,76e-4	»
5	KCl	20,0	1,395	7,64e-5	»
6	KBr	32,0	1,406	8,5e-4	»
7	ThF ₄	7,0	1,41	1,3e-3	»
8	ThF ₄	7,5	1,39	1,3e-3	»
9	MgAl ₂ O ₄	7,6923	1,398	4,4e-3	»
10	Шпинель (окси- нитрид алюминия)	7,6923	1,39	7,5e-3	»
11	H ₂ O	4,4722	1,396	0,01064	»
12	H ₂ O	3,4483	1,401	0,01243	»
13	SiO ₂	17,50	1,4	0,01361	[10]
14	SrTiO ₃	10,2	1,402	0,019	[11]
15	CsI	83,3	1,4	0,028	»
16	Y ₂ O ₃	12,195	1,41	0,035	»
17	BaTiO ₃	11,36	1,4	0,0434	[10]
18	Гексафторбензол	10,05	1,4	1,22	[12]
19	Монобромтри- хлорметан	10,6	1,4	3,2300e-3	»

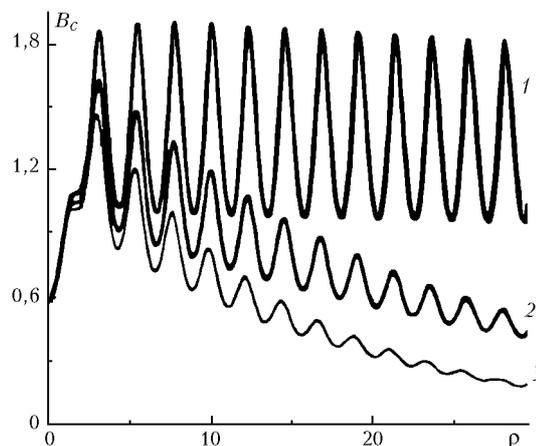


Рис. 1. Зависимость интенсивности оптического поля в центре микросферы от параметра дифракции микросферы из различных материалов, для которых действительная часть комплексного показателя преломления близка к 1,4. Кривая 1 построена для капель воды, облучаемых на длине волны 3,4483 мкм, $m = 1,401 - i0,01243$, кривая 2 – для микросфер цезистого иода на длине волны 83,3 мкм, $m = 1,4 - i0,028$, кривая 3 – для микросфер BaTiO₃ на длине волны 11,36 мкм, $m = 1,4 - i0,0434$

Результаты проведенных расчетов показывают, что интенсивности оптического поля в центре разных частиц для одинаковых параметров дифракции и для

веществ с одинаковыми значениями действительной части комплексного показателя преломления совпадают до тех пор, пока мнимые части не будут различаться так сильно, что нарушится условие

$$|\kappa_1 \rho_1 - \kappa_2 \rho_2| \ll 1. \quad (5)$$

По мере увеличения мнимой части комплексного показателя преломления вещества частицы зависимости интенсивности оптического поля в центре частицы все более отклоняется от зависимости, найденной для прозрачных частиц.

Расчет интенсивности оптического поля в центре капель всех других материалов, приведенных в таблице, дает значения, промежуточные между теми, которые приведены на рис. 1.

Из рис. 1 видно, что влияние показателя поглощения вещества частицы на интенсивность поля в центре капли усиливается с ростом ρ , т.е. при увеличении радиуса частицы или уменьшении длины волны падающего излучения.

Рассмотрим две слабопоглощающие частицы. Как было показано выше, интенсивности оптических полей в центре частиц совпадают между собой, если выполняются условия (1), (2), (5). Воспользуемся условием малости поглощения излучения веществом частиц. Математически это условие малости поглощения света в частицах имеет вид

$$\begin{cases} 4\pi \frac{\kappa_1 a_1}{\lambda_1} \ll 1, \\ 4\pi \frac{\kappa_2 a_2}{\lambda_2} \ll 1. \end{cases} \quad (6)$$

Из (6) видно, условие (5) автоматически выполняется для всех слабопоглощающих частиц.

Отсюда следует, что все слабопоглощающие частицы с одинаковыми значениями параметра дифракции и действительной части комплексного показателя преломления имеют близкие значения интенсивности оптических полей в центрах частиц до тех пор, пока величина произведения показателя поглощения вещества частицы на радиус частицы остается малой по сравнению с единицей. Этот вывод хорошо согласуется с результатами широкой серии расчетов по теории Ми (см. рис. 1).

Это позволяет построить стандартные зависимости интенсивности в центре частицы от параметров задачи аэрозольной оптики слабопоглощающих частиц.

Если одно из веществ является прозрачным, то второе условие из (6) тождественно равно нулю. В этом случае зависимость интенсивности оптического поля в центре частицы, найденная для прозрачного вещества, может быть распространена на любые частицы, если выполнены условия (1), (2), а также условие малости поглощения света в веществе частицы:

$$4\pi \frac{\kappa a}{\lambda} \ll 1. \quad (7)$$

Важно отметить, что условие (7) выполняется не только для слабопоглощающих частиц, но с высокой

степенью точности для любого типа вещества частицы, если радиус частицы достаточно мал.

Таким образом, зависимость интенсивности оптического поля в центре прозрачной частицы от параметра дифракции можно назвать стандартной, т.е. интенсивность любой другой частицы, имеющей действительную часть комплексного показателя преломления, близкую той, которую имеет стандартная кривая, совпадает с зависимостью, представленной стандартной кривой, если выполняется условие (7).

Полученные результаты существенно упрощают задачу поиска характерной зависимости интенсивности оптического поля в центре капли от оптических параметров задачи. Полученные данные позволяют найти многие характеристики внутреннего оптического поля из простых соотношений подобия и стандартных кривых.

Расчеты показывают, что любая стандартная зависимость интенсивности оптического поля в центре капли от параметра дифракции, найденная для некоторого значения действительной части комплексного показателя преломления, описывает некоторый (не нулевой!) диапазон радиусов частиц с тем же значением действительной части и различными значениями мнимой части комплексного показателя преломления.

Чем меньше значение параметра дифракции, тем лучше выполняется условие (5) и тем меньше ошибка описания оптической характеристики данного вещества с помощью стандартной зависимости.

2. Оптические поля в главном максимуме частицы

Рис. 2 иллюстрирует изменение вида зависимости интенсивности в главном максимуме внутреннего оптического поля от параметра дифракции в частицах

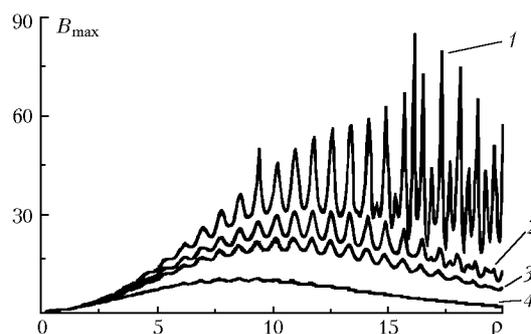


Рис. 2. Зависимости интенсивностей в главном максимуме от параметра дифракции ρ в частицах с показателем преломления $n \approx 1,4$. С возрастанием номера кривой нарастает показатель поглощения к материала частицы. Кривая 1 – $\kappa = 9,307 \cdot 10^{-9}$ для капель воды на длине волны 2,5 мкм, кривая 2 – $\kappa = 0,01243$ для воды на длине волны 3,4483 мкм, кривая 3 – $\kappa = 0,019$ для SrTiO_3 на длине волны 10,2 мкм, кривая 4 – $\kappa = 0,0434$ для BaTiO_3 на длине волны 11,36 мкм

с близкими значениями действительной части комплексного показателя преломления ($n \approx 1,4$) при увеличении показателя поглощения материала частицы κ .

Каждая кривая рассчитана для своего набора оптических параметров веществ (длина волны, действительная и мнимая части комплексного показателя преломления) из соответствующих строк таблицы.

Расчеты показывают, что зависимости интенсивности излучения в главном максимуме испытывают модуляции, по крайней мере, двух типов. Период низкочастотной модуляции составляет около 24ρ для прозрачных частиц и уменьшается до 18ρ при увеличении мнимой части комплексного показателя преломления. Высокочастотная модуляция имеет период осцилляций около 1ρ , который уменьшается до $0,8\rho$ при увеличении мнимой части комплексного показателя преломления (рис. 2).

Таким образом, изменение мнимой части комплексного показателя преломления более чем на шесть порядков величины изменяет период осцилляций не более чем на 20%.

Интенсивность главного минимума значительно больше зависит от мнимой части показателя преломления вещества частицы. Как это ни удивительно, имеется некоторый диапазон значений параметра дифракции, в котором с увеличением поглощения излучения веществом частицы интенсивность излучения в главном максимуме увеличивается. Как правило, это связано с резонансами оптических полей.

С увеличением параметра дифракции интенсивность в главном максимуме, как правило, нарастает. Для всех веществ, упомянутых в таблице, такая ситуация наблюдается, по крайней мере, вплоть до значений параметров дифракции, близких к $6,8$ (рис. 2). Для больших значений ρ ситуация усложняется новым уровнем интерференционных эффектов.

Интересные результаты показывают расчеты для высокопрозрачных веществ. Например, кривая 1 (рис. 2) дает представление об изменении интенсивности в главном максимуме в каплях воды на длине волны $2,5$ мкм ($m = 1,395 - i9,307 \cdot 10^{-9}$). В этом диапазоне длин волн капли воды высокопрозрачны. С увеличением параметра дифракции увеличивается изрезанность кривой зависимости главного максимума от параметра дифракции. Для высоких значений ρ интенсивность излучения в главном максимуме частицы падает с увеличением мнимой части комплексного показателя преломления.

Численное исследование влияния изменения показателя поглощения высокопрозрачных веществ (значение произведения kr не превосходит $0,01$) на интенсивность в главном максимуме показывает, что это влияние немонотонно. С увеличением мнимой части комплексного показателя преломления интенсивность излучения в главном максимуме с равной вероятностью может уменьшаться или увеличиваться. Это связано с тем, что главный максимум является результатом сложной интерференции внутренних переотраженных волн. И небольшая расстройка в виде увеличения мнимой части комплексного показателя преломления может сдвигать условия в сторону появления резонанса с соответствующим ростом интенсивности в главном максимуме.

Особенно яркий пример – это резонанс около параметра дифракции $16,2$. Для этого случая увеличение k от $9,307 \cdot 10^{-9}$ до $3,5 \cdot 10^{-8}$ приводит к появлению гигантского максимума оптического поля с интенсивностью, в 6300 раз превосходящей интенсивность падающего излучения. Отметим, что эта интенсивность в сотни раз превосходит интенсивность любого из обнаруженных к настоящему времени максимумов оптического поля в этом диапазоне оптических характеристик.

Расчеты показывают, что зависимость интенсивности оптического поля в главном максимуме от параметра дифракции и мнимой части комплексного показателя преломления частицы значительно сложнее, чем аналогичная зависимость для центра частицы. Таким образом, для поиска зависимости интенсивности в главном максимуме от оптического поля не удастся построить критерии подобия на основе стандартных кривых, как это было найдено для интенсивности оптического поля в центре частицы.

Таким образом, проведенные исследования показывают, что для описания зависимости интенсивности оптического поля в центре частицы от параметров задачи можно использовать стандартные кривые. В то же время систематизация данных об интенсивностях в главном максимуме существенно более сложная и требует перебора всех зависимостей для разных действительных и мнимых частей комплексных показателей преломления и параметров дифракции.

Выводы

Зависимость интенсивности оптического поля в центре капли от параметра дифракции для сферической частицы с ненулевым значением мнимой части комплексного показателя преломления может быть найдена из стандартной кривой, построенной для сферических частиц с тем же значением действительной части комплексного показателя преломления.

Показано, что зависимость интенсивности в главном максимуме от параметра дифракции ρ имеет низкочастотную модуляцию с периодом около 20ρ и высокочастотные квазипериодические осцилляции с частотой около 1ρ . Интересно отметить, что оба периода модуляции уменьшаются весьма незначительно (не более чем на 20%) при переходе от высокопрозрачных веществ к сильнопоглощающим.

1. Zelenyuk A., Cabalo J., Baer T. Mass Spectrometry of Liquid Aniline Aerosol Particles by IR/UV Laser Irradiation // Anal. Chem. 1999. V. 71. P. 1802–1808.
2. Zhigilei L.V., Kodali P.B.S., and Garrison B.J. A Microscopic View of Laser Ablation // J. Phys. Chem. B. 1998. V. 102. № 16. P. 2845–2853.
3. Zhigilei L.V., Kodali P.B.S., and Garrison B.J. On the threshold behavior in laser ablation of organic solids // Chem. Phys. Lett. 1997. V. 276. P. 269–273.
4. Белов Н.Н. Неоднородность электромагнитного поля ($\lambda = 10,6$ мкм) внутри частиц атмосферного аэрозоля // Оптика и спектроскопия. 1986. Т. 61. Вып. 6. С. 1331–1336.

5. Белов Н.Н. Распределение электромагнитного излучения в металлических частицах // Изв. АН СССР. Сер. Металлы. 1988. № 4. С. 217–219.
6. Белов Н.Н. Расчеты по теории Ми без ограничений на радиус и комплексный показатель преломления вещества частицы // Проблемы физики атмосферы. СПб.: Изд-во СПб. ун-та, 1997. № 20. С. 209–215.
7. Белов Н.Н., Маслов В.А. Оптическое поле в центре сферической частицы // Оптика и спектроскопия. 1991. Т. 71. Вып. 2. С. 332–333.
8. Белов Н.Н. Подобие оптических полей в слабопоглощающих частицах // Оптика и спектроскопия. 1988. Т. 64. Вып. 6. С. 1370–1373.
9. Бабенко В.А., Пришивалко А.П. Критерий подобия оптических полей в слабопоглощающих сферических частицах // Оптика и спектроскопия. 1997. Т. 83. Вып. 3. С. 398–402.
10. Palik E.D. Handbook of Optical Constants of Solids. National Research Laboratory, Washington, D.C., Academic Press F1, Inc. 1985. V. 1. 804 p.
11. Palik E.D. Handbook of Optical Constants of Solids. Institute of Physical Sciences and Technology, University of Maryland. College Park, Maryland, Academic Press San Diego CA, Inc. 1991. V. 1. 109 p.
12. Золотарев В.М., Морозов В.Н., Смирнова Е.В. Оптические постоянные природных и технических сред: Справочник. Л.: Химия, 1984. 216 с.
13. Зуев В.Е. Распространение видимых и инфракрасных волн в атмосфере. М.: Сов. радио, 1970. 496 с.

N.N. Belov, N.G. Belova. Intensity pulsations at aerosol particle center and in the main maximum of internal optical field.

The calculation of the intensity inside of droplets with refractive index $1,4-ik$ (where κ changed from $1.e-9$ to 0.1) is presented in this paper. Intensity of optical field in the center of droplet changes quasi periodically. This dependence for transparent particles may be as standard curve for different material with the same real part of refractive index and any value of image part of refractive index.

Calculation of the intensity of the internal field in the main maximum of the optical field provides more complicated dependence for parameter diffraction of the particle. It is shown that intensity of the optical field in the main maximum of the optical field in the transparent particles is changed by parameter of diffraction of the particle by slow modulation (period ~ 20), fast pulsation (period ~ 1) and quasi stohastical law. It depends on the intereference of the internal field (and first of all – on surface waves).