УДК 535.2:551.501

## Вид матрицы Мюллера для случая молекулярного рассеяния света атмосферными газами

## Г.П. Коханенко\*

Институт оптики атмосферы им. В.Е. Зуева СО РАН 634021, г. Томск, пл. Академика Зуева, 1

Поступила в редакцию 24.09.2012 г.

Приводится вывод матрицы Мюллера для молекулярного рассеяния света, основанный на представлениях о независимости флуктуаций плотности и анизотропии в газах при небольших давлениях и усреднении по равновероятным ориентациям молекул. Проводится сравнение с некоторыми из опубликованных матриц.

Ключевые слова: молекулярное рассеяние, поляризация, матрица рассеяния; molecular scattering, polarization, scattering matrix.

> Хотя мы для краткости говорим о рассеянии на флуктуациях, следует подчеркнуть, что рассеивающими элементами являются именно молекулы. Однако можно отвлечься от молекул и представлять себе рассеяние как результат локальных флуктуаций плотности в однородной в остальном среде. Поэтому было бы точнее говорить о флуктуационной теории рассеяния на молекулах, чем о рассеянии на флуктуациях.

К. Борен, Д. Хафмен. Поглощение и рассеяние света малыми частицами

При описании рассеяния поляризованного излучения на атмосферных неоднородностях используется система координат, связанная с плоскостью рассеяния [1, 2], при этом компоненты рассеянного поля **Е**<sup>S</sup> могут выражаться с помощью амплитудной матрицы рассеяния S, а интенсивности (вектор Стокса  $\mathbf{J}^{S} = (I^{S}, Q^{S}, U^{S}, V^{S})^{\mathrm{T}}) - \mathrm{c}$  помощью матри-

цы Мюллера М:

$$\begin{pmatrix} E_{\parallel}^{S} \\ E_{\perp}^{S} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} S_{2}, & S_{3} \\ S_{4}, & S_{1} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_{\parallel}^{0} \\ E_{\perp}^{0} \end{pmatrix},$$
(1)

$$\mathbf{J}^{S} = \mathbf{M}\mathbf{J}^{0} = (m_{ij})\mathbf{J}^{0}, \quad i, j = 1...4.$$

Аппарат векторов Стокса используется и в лидарном зондировании, где интерес представляет матрица  $M_{\pi}$  обратного рассеяния. Матрицы S и M однозначно связаны друг с другом, соответствующие соотношения между элементами S<sub>i</sub> и m<sub>ii</sub> приведены в [1]. Для случая ансамбля рассеивателей имеются соотношения симметрии, определяемые как симметрией (вращательной, зеркальной) самих частиц, так и теоремой оптической взаимности для векторных волн. Соответствующие соотношения для матрицы S рассматривались в [1], в частности в случае обратного рассеяния  $S_3 + S_4 = 0$ . Соотношения для всех элементов матрицы Мюллера для рассеяния вперед и назад получены только в 1987 г. [3]. Теорема оптической взаимности приводит к соотношению для диагональных элементов в М<sub>π</sub>:

$$m_{11} - m_{44} = m_{22} - m_{33} , \qquad (2a)$$

кроме того, в случае азимутальной симметрии (в отсутствие выделенного направления в плоскости, перпендикулярной падающему лучу)

$$m_{22} + m_{33} = 0. (26)$$

Измерения и расчеты матриц рассеяния для несферических частиц аэрозоля в настоящее время актуальны и многочисленны. Рассмотрение рассеяния поляризованного света в чистых газах и жидкостях (молекулярное рассеяние) приведено во многих монографиях (мы далее будем ссылаться на книгу М.В. Волькенштейна «Молекулярная оптика» [4]). Появление деполяризации, как известно, связано в этом случае с рассеянием на флуктуациях анизотропии. Однако результаты этой и других работ не могут напрямую быть использованы при определении матрицы Мюллера, поскольку ведутся в лабораторной (xyz) системе координат, использующейся при наблюдениях однократного рассеяния. Единственная известная нам матрица молекулярного рассеяния света получена Г.В. Розенбергом и опубликована в [5]:

<sup>\*</sup> Григорий Павлович Коханенко (kokh@iao.ru).

$$\mathbf{M} = \frac{3(1-\Delta)}{4+11\Delta} \begin{pmatrix} 1+\cos^2\varphi + \frac{4\Delta}{1-\Delta} & -\sin^2\varphi & 0 & 0\\ -\sin^2\varphi & 1+\cos^2\varphi & 0 & 0\\ 0 & 0 & 2\cos\varphi & 0\\ 0 & 0 & 0 & 2\cos\varphi \end{pmatrix}.$$
(3)

К сожалению, она не удовлетворяет приведенным выше соотношениям (2) для случая обратного рассеяния. Подчеркнем, что соотношение (2а) получено из теоремы оптической взаимности, справедливой для любых рассеивающих объектов. Кроме того, флуктуации анизотропии в газах явно не имеют выделенного направления в пространстве, и для них должно выполняться и выражение (26). Для хаотически ориентированных рассеивателей матрица  $\mathbf{M}_{\pi}$  должна иметь вид, приведенный в [6]:

$$\mathbf{M}_{\pi} = a_{11} \operatorname{diag}(1, 1 - d, d - 1, 2d - 1). \tag{4}$$

Указанное обстоятельство оправдывает приводимый ниже вывод матрицы Мюллера для молекулярного рассеяния в газах. Вывод полностью повторяет выкладки, сделанные в [4] для рассеяния на флуктуациях анизотропии, но проводится в системе координат, связанной с плоскостью рассеяния.

Пусть световая волна с компонентами  $E_x^0 = E_{\perp}$ и  $E_y^0 = E_{\parallel}$  распространяется вдоль оси *Oz* (рис. 1), в точке *R* в произвольно ориентированной молекуле индуцируется диполь **P** с компонентами

$$\begin{cases} P_{x} = a_{xx}E_{x}^{0} + a_{xy}E_{y}^{0}, \\ P_{y} = a_{xy}E_{x}^{0} + a_{yy}E_{y}^{0}, \\ P_{z} = a_{xz}E_{x}^{0} + a_{yz}E_{y}^{0}. \end{cases}$$
(5)  
$$P_{z} = a_{xz}E_{x}^{0} + a_{yz}E_{y}^{0}.$$

Рис. 1. Система координат, используемая в работе

Рассеяние происходит в плоскости *Oyz* по направлению *RS*, составляющему угол  $\alpha$  с осью *z*. Поле диполя **P** = **P**<sub>0</sub> exp(*i* $\omega$ *t*) имеет единственную компоненту, лежащую в плоскости, содержащей диполь и направление на точку наблюдения [7]:

$$E_{\theta} = \frac{-P(t-r/c)}{r} \frac{\omega^2}{c^2} \sin \theta.$$

Схема, приведенная на рис. 2, позволяет определить поле от каждой компоненты диполя, угол  $\theta$  будет соответствовать углу между компонентой и направлением рассеяния. (Множитель  $\frac{1}{r}\frac{\omega^2}{c^2}$  будем опускать.) Рис. 2, a — компонента  $P_x$ , угол  $\theta = 90^\circ$  ( $E_x = E_{\theta}$ ,  $E_y = E_z = 0$ ), отсюда  $E_{\perp} = E_{\theta} = P_x$ . Рис. 2, 6 — компонента  $P_y$ , угол  $\theta = 90^\circ - \alpha$  ( $E_x = 0$ ,  $E_y = P_y \cos^2 \alpha$ ,  $E_z = -P_y \cos \alpha \sin \alpha$ ),  $E_{\parallel} = -E_{\theta} = P_y \cos \alpha$ . Рис. 2, 6 — компонента  $P_z$ , угол  $\theta = \alpha$  ( $E_x = 0$ ,  $E_y = -P_z \cos \alpha \sin \alpha$ ,  $E_z = P_z \sin^2 \alpha$ ),  $E_{\parallel} = E_{\theta} = -P_z \sin \alpha$ . В сумме имеем:  $E_{\perp} = P_x$ ,  $E_{\parallel} = P_y \cos \alpha - P_z \sin \alpha$ . Учитывая выражение диполя через компоненты падающего поля: при падающем поле ( $E_x^0 = E_{\perp}^0, 0$ )

$$E_{\perp} = a_{xx}E_{\perp}^{0}, \quad E_{\parallel} = (a_{xy}\cos\alpha - a_{xz}\sin\alpha)E_{\perp}^{0},$$

при падающем поле  $(0, E_y^0 = E_{\parallel}^0)$ 

$$E_{\perp} = a_{xy}E_{\parallel}^0, \ E_{\parallel} = (a_{yy}\cos\alpha - a_{yz}\sin\alpha)E_{\parallel}^0$$

Или окончательно

$$< \begin{pmatrix} a_{yy}\cos\alpha - a_{yz}\sin\alpha, & a_{xy}\cos\alpha - a_{xz}\sin\alpha \\ a_{xy}, & a_{xx} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_{\parallel}^{0} \\ E_{\perp}^{0} \end{pmatrix} .$$
 (6)

Для угла <br/>  $\alpha=\pi$ имеем амплитудную матрицу вида

$$\begin{vmatrix} -a_{yy}, & -a_{xy} \\ a_{xy}, & a_{xx} \end{vmatrix} \equiv \begin{vmatrix} S_2 & S_3 \\ S_4 & S_1 \end{vmatrix},$$

причем  $S_3 + S_4 = 0$  (выполняется следствие теоремы взаимности [1]).



Коханенко Г.П.

Все полученные элементы  $S_i$  вещественны, поскольку предполагается, что в отсутствие поглощения тензор поляризуемости *а*<sub>ij</sub> веществен и симметричен [4] (при рэлеевском рассеянии нет сдвига фаз). Теперь мы можем перейти к матрице Мюллера по правилам, изложенным в [1], выразив элементы матрицы через компоненты а<sub>ij</sub> тензора поляризуемости. При этом мы переходим от величин, описывающих световое поле, к квадратичным величинам, определяющим интенсивность, предполагая независимость отдельных рассеивателей. Это допустимо, поскольку «в силу независимости флуктуаций числа частиц (и флуктуаций Δε<sub>ik</sub>) в отдельных микроскопических объемах, в рассеянии складываются не амплитуды, а интенсивности света, рассеянного на флуктуациях в этих объемах... В результате строгая задача сводится к вычислению средних квадратичных флуктуаций анизотропной поляризуемости отдельных молекул» [4, с. 208, 219].

Здесь проявляется известный «парадокс молекулярного рассеяния»: «идеальный газ рассеивает свет так, что интенсивности вторичных волн, испускаемых отдельными молекулами, просто складываются, несмотря на когерентность этих вторичных волн» [8]. Известно, что строгая теория флуктуаций, разработанная Эйнштейном, дает формулу Рэлея для случая идеального газа [9]. «В случае, когда газ находится при не слишком большом давлении (подчиняется закону Бойля— Мариотта), положение и ориентировка отдельных молекул совершенно случайны и нет никакой корреляции между амплитудами и фазами индуцированных моментов отдельных молекул. Эта независимость распространяется и на флуктуаиии анизотропии» [9]. Понятно, что для более плотных сред, в которых возникают корреляции между дипольными моментами соседних молекул, теория Рэлея-Кабанна неприменима.

Получившиеся промежуточные выражения для элементов матрицы в обозначениях [1] имеют вид

$$\begin{cases} M_{1} = a_{xx}^{2}, \ M_{2} = a_{yy}^{2} \cos^{2} \alpha + a_{yz}^{2} \sin^{2} \alpha - 2a_{yy}a_{yz} \cos \alpha \sin \alpha, \\ M_{3} = a_{xy}^{2} \cos^{2} \alpha + a_{xz}^{2} \sin^{2} \alpha - 2a_{xy}a_{xz} \cos \alpha \sin \alpha, \ M_{4} = a_{xy}^{2}, \\ S_{21} = a_{xx}a_{yy} \cos \alpha - a_{xx}a_{yz} \sin \alpha, \ S_{34} = a_{xy}^{2} \cos \alpha - a_{xy}a_{xz} \sin \alpha, \\ \text{остальные } S_{ij} = 0, \\ D_{ij} = 0 \end{cases}$$

$$(7)$$

(правила построения матрицы Мюллера мы не приводим из-за экономии места, см. [1, с. 60]).

Далее необходимо усреднить все компоненты  $a_{ij}$ , учитывая хаотичность ориентации молекул в пространстве. Для этого необходимо перейти от лабораторной системы координат (*xyz*) к молекулярной ( $\xi\eta\zeta$ ) с использованием соотношения

$$\begin{cases} a_{xx} = a_{\xi}(\xi x)^{2} + a_{\eta}(\eta x)^{2} + a_{\zeta}(\zeta x)^{2}, \\ \dots \\ a_{xy} = a_{\xi}(\xi x)(\xi y) + a_{\eta}(\eta x)(\eta y) + a_{\zeta}(\zeta x)(\zeta y). \end{cases}$$
(8)

При этом после усреднения остаются не равные нулю только следующие компоненты [4]:

$$\begin{cases} a_{xx}^2 = a_{yy}^2 = a_{zz}^2 = \frac{1}{15}(3A + 2B), \\ a_{xy}^2 = \dots = \frac{1}{15}(A - B), \\ a_{xx}a_{yy} = \dots = \frac{1}{15}(A + 4B), \end{cases}$$
(9)

где  $A = \sum a_{\xi}^2; B = \sum a_{\xi}a_{\eta}.$ 

Используя полученные компоненты и обозначая (4A + B) = C,  $\Delta = \frac{2(A - B)}{4A + B}$ , получим окончательно следующую матрицу:

$$\mathbf{M} = \frac{C}{30} \times \left( (1 + \cos^2 \alpha) + \Delta \sin^2 \alpha - (1 - \Delta) \sin^2 \alpha & 0 & 0 \\ -(1 - \Delta) \sin^2 \alpha - (1 - \Delta) (1 + \cos^2 \alpha) & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 2(1 - \Delta) \cos \alpha & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 2(1 - 2\Delta) \cos \alpha \right).$$
(10)

Тестовым экспериментом при изучении молекулярного рассеяния является наблюдение рассеяния естественного света под углом α = 90°. В этом случае  $\mathbf{J}^0 = (1, 0, 0, 0)^T$ , и из (10) получаем отношение компонент  $E_{\parallel}/E_{\perp} = (a_{11} + a_{12})/(a_{11} - a_{12}) = \Delta$ , что и следует из определения этой величины [4]. Для случая рассеяния назад матрица (10) совпадает с матрицей (4) при  $d = \Delta$ ,  $a_{11} = C/15$ . Следует обратить внимание на основную черту матрицы М<sub>л</sub> для хаотически ориентированных рассеивателей, важную при лидарном зондировании: деполяризация обратно рассеянного излучения при круговой исходной поляризации в 2 раза больше, чем при линейной. Для сухого воздуха величина деполяризации  $\Delta = 0,0279$  [10], и мы имеем отношение компонент при наблюдении обратного рассеяния  $E_{\perp}/E_{\parallel} \approx 0,014$  при линейно поляризованном излучателе и отношение лево- и правосторонне поляризованных компонент  $E_L/E_R \approx 0,028$  при исходной круговой поляризации.

В заключение отметим, что полученная матрица (10) с точностью до обозначений полностью совпадает с известной [2] матрицей рассеяния на анизотропных частицах, малых по сравнению с длиной волны, которая широко используется в зарубежных работах по лидарному зондированию атмосферы, связанных с учетом молекулярного рассеяния.

Автор выражает благодарность А.Г. Боровому и Б.В. Каулю за ценные замечания при обсуждении статьи.

Работа выполнена при финансовой поддержке Минобрнауки РФ (госконтракты № 11.519.11.6033, 14.518.11.7063), гранта РФФИ № 10-08-00347.

Вид матрицы Мюллера для случая молекулярного рассеяния света атмосферными газами

- 1. Ван де Хюлст Г. Рассеяние света малыми частицами. М.: Изд.-во иностр. лит-ры, 1961. 536 с.
- 2. Борен К., Хафмен Д. Поглощение и рассеяние света малыми частицами. М.: Мир, 1986. 660 с.
- 3. *Hu Ch.R., Kattawar G.W., Parkin M.E., Herb P.* Symmetry theorems on the forward and backward scattering Mueller matrices for light scattering from a nonspherical dielectric scatterer // Appl. Opt. 1987. V. 26, N 19. P. 4159–4173.
- 4. Волькенштейн М.В. Молекулярная оптика. М.; Л.: Гостехиздат, 1951. 740 с.
- 5. *Прожекторный* луч в атмосфере / Под ред. Г.В. Розенберга. М.: Изд. АН СССР, 1960. 243 с.
- Mishchenko M.I., Hovenier J.W. Depolarization of light backscattered by randomly oriented nonspherical particles // Opt. Lett. 1995. V. 20, N 12. P. 1356– 1358.
- 7. Дитиберн Р. Физическая оптика. М.: Наука, 1965. 631 с.
- 8. Бутиков Е.И. Оптика. М.: Высш. школа, 1986. 512 с.
- 9. Хвостиков И.А. Теория рассеяния света и ее применение к вопросам прозрачности атмосферы и туманов // Успехи физ. наук. 1940. Т. 24, № 2. С. 165–227.
- Young A.T. Revised depolarization corrections for atmospheric extinction // Appl. Opt. 1980. V. 19, N 20. P. 3427–3428.

## G.P. Kokhanenko. The Mueller matrix for the case of molecular light scattering by atmospheric gases.

We derive the Mueller matrix for the molecular scattering of light. Conclusion is based on the concept of independence of the density and anisotropy fluctuations in gases at low pressures and averaging over equiprobable orientations of molecules. A comparison with some of the published matrices is made.