

CÁLCULO DE LA POLARIZABILIDAD ÓPTICA DE DOS ESFERAS DIELÉCTRICAS

Jorge A. Bertolotto*, Juan P. Umazano*, María E. Ascheri*

* Departamento de Física
Facultad de Ciencias Exactas y Naturales
Universidad Nacional de La Pampa
Uruguay 151(6300), Santa Rosa (LP), Argentina
e-mail: jbortolotto@exactas.unlpam.edu.ar, web page: <http://www.exactas.unlpam.edu.ar>

Palabras claves: Polarizabilidad Óptica, Esferas Dieléctricas, Dipolos Puntuales Acoplados.

Resumen. *El problema de dos esferas dieléctricas en un campo eléctrico externo ha sido estudiado por Goyette y Navon. Ellos obtienen explícitamente los potenciales y los momentos dipolares del sistema de esferas para dos situaciones diferentes: campo eléctrico externo paralelo y campo eléctrico externo perpendicular al eje que une los centros de las esferas. Básicamente, resuelven la ecuación de Laplace en coordenadas biesféricas cuya solución admite un desarrollo en serie de polinomios de Legendre. Los coeficientes de esta serie son los mismos que aparecen en el desarrollo de los momentos y permiten el cálculo de la polarizabilidad. Los coeficientes se vinculan a partir de la relación de recurrencia que surge de las condiciones de contorno. Goyette y Navon resuelven esta relación mediante un desarrollo en perturbaciones. En este trabajo se utiliza un método alternativo para la resolución de la relación de recurrencia. Básicamente, se determina el coeficiente inicial correcto, es decir, el que asegura la convergencia de las series y a partir de este coeficiente se determinan todos los demás. El problema también se resuelve mediante el método de los dipolos puntuales acoplados, el que consiste en considerar a las esferas como dipolos puntuales interactuantes en presencia de un campo eléctrico externo.*

1 INTRODUCCIÓN

Las medidas experimentales de birrefringencia eléctrica de soluciones de macromoléculas y coloides suministran la polarizabilidad óptica de las mismas¹. Para moléculas de forma compleja sería conveniente disponer de modelos y teorías adecuadas que expliquen los datos de polarizabilidades obtenidos experimentalmente. Un modelo empleado en el estudio de dispersión de la luz es el de clusters de esferas, que dispuestas de manera adecuada modelan a las moléculas en estudio^{2,3}. En este trabajo se considera el modelo más simple: el de dos esferas dieléctricas con dimensiones y distancias entre ellas mucho menores que la longitud de onda de la luz plano polarizada incidente.

Se considera que el dieléctrico que forman las esferas no absorbe a la frecuencia de la onda incidente, de manera que los dipolos inducidos en las esferas oscilan en fase con el campo eléctrico incidente. Esta suposición permite independizarse de la dependencia temporal del campo eléctrico y de los dipolos inducidos, y considerar al problema como uno de electrostática.

El problema de dos esferas en presencia de un campo eléctrico constante ha sido considerado por Goyette y Navon⁴. Ellos resuelven la ecuación de Laplace en coordenadas esféricas y obtienen un desarrollo en serie para el momento dipolar inducido en el sistema, y por lo tanto, la polarizabilidad del sistema. Lamentablemente no se puede resolver en forma analítica la ecuación de Laplace para sistemas de varias esferas. Sin embargo, se pueden aplicar métodos aproximados como el de los dipolos puntuales acoplados (DPA)⁵.

En este trabajo se busca establecer el grado de aproximación que se obtiene al reemplazar las esferas por dipolos puntuales interactuantes. Se calcula la polarizabilidad óptica de un sistema de dos esferas. Dicho cálculo se realiza de dos maneras: mediante el uso de la solución en serie presentada por Goyette y Navon⁴ y mediante la aproximación de los DPA. En el primer caso se propone un método numérico para calcular el primer coeficiente del desarrollo en serie del momento dipolar a fin de que la serie converja. En el segundo, se considera a las esferas como si fueran dipolos puntuales interactuantes. Se incluye un análisis comparativo entre los resultados obtenidos con ambos métodos para distintas separaciones entre las esferas. Los resultados son de interés en la utilización del método de los DPA para modelar moléculas de formas complejas mediante clusters de varias esferas con el fin de calcular la polarizabilidad óptica de las moléculas.

2 TEORÍA

2.1 Método de los dipolos puntuales acoplados

Aquí se va a considerar el problema de dos esferas dieléctricas en presencia de un campo eléctrico estático y homogéneo. La aproximación del método de los DPA supone que cada esfera se comporta como un dipolo eléctrico puntual cuyo campo influye en la polarización de la otra. El momento dipolar inducido sobre cada esfera se relaciona con el campo aplicado sobre la misma a través de las expresiones

$$\begin{aligned}\boldsymbol{\mu}_1 &= \alpha \mathbf{E}_1 \\ \boldsymbol{\mu}_2 &= \alpha \mathbf{E}_2\end{aligned}\quad (1)$$

donde

$$\begin{aligned}\mathbf{E}_1 &= \mathbf{E}_0 + \mathbf{E}_{21} \\ \mathbf{E}_2 &= \mathbf{E}_0 + \mathbf{E}_{12}\end{aligned}\quad (2)$$

Aquí, \mathbf{E}_0 es el campo eléctrico externo, α la polarizabilidad de la esfera y \mathbf{E}_{mn} es el campo sobre la esfera n debido al dipolo inducido en la esfera m , el cual viene dado por

$$\mathbf{E}_{mn} = \frac{3\hat{n}_{mn}(\boldsymbol{\mu}_m \cdot \hat{n}_{mn}) - \boldsymbol{\mu}_m}{(2d)^3}\quad (3)$$

donde $2d$ es la distancia entre las esferas y \hat{n}_{mn} es el versor dirigido desde la esfera m hacia la esfera n .

Las esferas se disponen como se ilustra en la Figura 1. Se van a considerar dos posibles orientaciones del campo eléctrico externo. Cuando el campo externo está dirigido según el eje z positivo se referirá a él como campo paralelo, mientras que cuando se encuentra dirigido según el eje x positivo se referirá al mismo como campo perpendicular. Para estudiar el efecto que tiene el campo debido a la polarización de la esfera 2 sobre la esfera 1 se escoge el origen del sistema de coordenadas en el centro de la esfera 2.

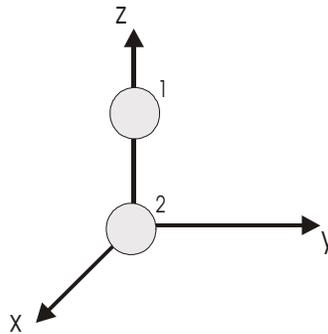


Figura 1. Disposición del sistema de esferas respecto del sistema de coordenadas

Teniendo en cuenta que

$$\hat{n}_{21} = \hat{k} \quad \text{y} \quad \boldsymbol{\mu}_2 = \mu_{2x}\hat{i} + \mu_{2y}\hat{j} + \mu_{2z}\hat{k}$$

la expresión (3) resulta

$$E_{21x}\hat{i} + E_{21y}\hat{j} + E_{21z}\hat{k} = \frac{1}{d^3}(-\mu_{2x}\hat{i} - \mu_{2y}\hat{j} + \mu_{21z}\hat{k})$$

Si en esta última expresión se reemplaza $\boldsymbol{\mu}_2$ por

$$\boldsymbol{\mu}_2 = \alpha\mathbf{E}_2 = \alpha(\mathbf{E}_0 + \mathbf{E}_{12})$$

se llega a:

Campo paralelo

$$E''_{21x}\hat{i} + E''_{21y}\hat{j} + E''_{21z}\hat{k} = \frac{\alpha}{(2d)^3} \left[-E''_{12x}\hat{i} - E''_{12y}\hat{j} + 2(E''_0 + E''_{12z})\hat{k} \right] \quad (4)$$

Campo perpendicular

$$E^\perp_{21x}\hat{i} + E^\perp_{21y}\hat{j} + E^\perp_{21z}\hat{k} = \frac{\alpha}{(2d)^3} \left[(E^\perp_0 + E^\perp_{12x})\hat{i} - E^\perp_{12y}\hat{j} + 2E^\perp_{12z}\hat{k} \right] \quad (5)$$

donde los superíndices // y \perp especifican la orientación del campo eléctrico externo en la dirección paralela o perpendicular, respectivamente.

Con el objeto de simplificar el cálculo del campo debido a la polarización de la esfera 1 sobre la esfera 2, situamos el origen de coordenadas sobre la esfera 1. En este caso se encuentra:

Campo paralelo

$$E''_{12x}\hat{i} + E''_{12y}\hat{j} + E''_{12z}\hat{k} = \frac{\alpha}{(2d)^3} \left[-E''_{21x}\hat{i} - E''_{21y}\hat{j} + 2(E''_0 + E''_{21z})\hat{k} \right] \quad (6)$$

Campo perpendicular

$$E^\perp_{12x}\hat{i} + E^\perp_{12y}\hat{j} + E^\perp_{12z}\hat{k} = \frac{\alpha}{(2d)^3} \left[(E^\perp_0 + E^\perp_{21x})\hat{i} - E^\perp_{21y}\hat{j} + 2E^\perp_{21z}\hat{k} \right] \quad (7)$$

La resolución de los dos sistemas de ecuaciones anteriores (dos ecuaciones para campo paralelo y dos para campo perpendicular) permiten determinar los campos \mathbf{E}_{mn} en función del campo externo \mathbf{E}_0 .

2.2 Resolución mediante la ecuación de Laplace

La ecuación de Laplace para el caso de dos esferas dieléctricas en presencia de un campo eléctrico externo ha sido resuelta por otros autores^{4,6}. Aquí se describirá brevemente el método empleado por Goyette y Navon⁴.

Las esferas se disponen con sus centros en $z = \pm d$. Se utilizan las coordenadas biesféricas α, η, ϕ , que se relacionan con las coordenadas cartesianas a través de

$$x = a \operatorname{sen} \alpha \cos \phi / (\cosh \eta - \cos \alpha)$$

$$y = a \operatorname{sen} \alpha \operatorname{sen} \phi / (\cosh \eta - \cos \alpha)$$

$$z = a \operatorname{senh} \eta / (\cosh \eta - \cos \alpha)$$

donde a es el polo de coordenadas biesféricas. En este sistema de coordenadas la ecuación de Laplace es

$$\nabla^2 \Phi = \frac{(\cosh \eta - \cos \alpha)^3}{a^2 \operatorname{sen} \alpha} \left[\operatorname{sen} \alpha \frac{\partial}{\partial \eta} \left(\frac{1}{\cosh \eta - \cos \alpha} \frac{\partial \Phi}{\partial \eta} \right) + \frac{\partial}{\partial \alpha} \left(\frac{\operatorname{sen} \alpha}{\cosh \eta - \cos \alpha} \frac{\partial \Phi}{\partial \alpha} \right) + \frac{1}{\operatorname{sen} \alpha (\cosh \eta - \cos \alpha)} \frac{\partial^2 \Phi}{\partial^2 \phi} \right] = 0$$

Las soluciones de esta ecuación en el exterior de las esferas (Φ_e) y en el interior de las esferas ubicadas en $z = d$ (Φ_1) y en $z = -d$ (Φ_2) son:

Campo paralelo

$$\Phi_e''(\eta, \alpha) = (\cosh \eta - \cos \alpha)^{1/2} \sum_{n=0}^{\infty} A_n \operatorname{senh}(\tilde{n}\eta) P_n(\cos \alpha) - \frac{E_0 a \operatorname{senh} \eta}{\cosh \eta - \cos \alpha}$$

$$\Phi_1''(\eta, \alpha) = (\cosh \eta - \cos \alpha)^{1/2} \sum_{n=0}^{\infty} B_n e^{-\tilde{n}\eta} P_n(\cos \alpha)$$

$$\Phi_2''(\eta, \alpha) = -(\cosh \eta - \cos \alpha)^{1/2} \sum_{n=0}^{\infty} B_n e^{\tilde{n}\eta} P_n(\cos \alpha)$$

Campo perpendicular

$$\Phi_e^\perp(\eta, \alpha) = (\cosh \eta - \cos \alpha)^{1/2} \sum_{n=1}^{\infty} C_n \cosh(\tilde{n}\eta) P_n^1(\cos \alpha) \operatorname{sen} \phi - \frac{a E_0 \operatorname{sen} \alpha \operatorname{sen} \phi}{\cosh \eta - \cos \alpha}$$

$$\Phi_1^\perp(\eta, \alpha) = (\cosh \eta - \cos \alpha)^{1/2} \sum_{n=1}^{\infty} D_n e^{-\tilde{n}\eta} P_n^1(\cos \alpha) \operatorname{sen} \phi$$

$$\Phi_2^\perp(\eta, \alpha) = (\cosh \eta - \cos \alpha)^{1/2} \sum_{n=1}^{\infty} D_n e^{\tilde{n}\eta} P_n^1(\cos \alpha) \operatorname{sen} \phi$$

donde $\tilde{n} = n + 1/2$ y $P_n(\cos \alpha)$, $P_n^1(\cos \alpha)$ son las funciones de Legendre.

Al aplicar las condiciones de contorno de continuidad del potencial y de la componente normal del desplazamiento eléctrico sobre la superficie de ambas esferas, se obtienen las siguientes relaciones de recurrencia:

Campo paralelo

$$f_{//}(n)A_{n-1} + g_{//}(n)A_n + h_{//}(n)A_{n+1} = l_{//}(n) \quad n = 0,1,2,\dots \quad (8)$$

Campo perpendicular

$$f_{\perp}(n)C_{n-1} + g_{\perp}(n)C_n + h_{\perp}(n)C_{n+1} = l_{\perp}(n) \quad n = 1,2,3,\dots \quad (9)$$

donde

$$f_{//}(n) = n \left[\varepsilon_e \cosh \left(n - \frac{1}{2} \right) \eta_0 + \varepsilon_i \sinh \left(n - \frac{1}{2} \right) \eta_0 \right]$$

$$g_{//}(n) = -\{(2n+1) \cosh \eta_0 [\varepsilon_i \sinh(\tilde{n} \eta_0) + \varepsilon_e \cosh(\tilde{n} \eta_0)] + (\varepsilon_e - \varepsilon_i) \sinh \eta_0 \sinh(\tilde{n} \eta_0)\}$$

$$h_{//}(n) = (n+1) \left[\varepsilon_e \cosh \left(n + \frac{3}{2} \right) \eta_0 + \varepsilon_i \sinh \left(n + \frac{3}{2} \right) \eta_0 \right]$$

$$l_{//}(n) = 2^{3/2} E_0 a (\varepsilon_e - \varepsilon_i) \exp(-\tilde{n} \eta_0) [n e^{\eta_0} - (n+1) e^{-\eta_0}]$$

$$f_{\perp}(n) = (n-1) \left[\varepsilon_e \sinh \left(n - \frac{1}{2} \right) \eta_0 + \varepsilon_i \cosh \left(n - \frac{1}{2} \right) \eta_0 \right]$$

$$g_{\perp}(n) = -\{(2n+1) \cosh \eta_0 [\varepsilon_i \sinh(\tilde{n} \eta_0) + \varepsilon_e \cosh(\tilde{n} \eta_0)] + (\varepsilon_e - \varepsilon_i) \sinh \eta_0 \cosh(\tilde{n} \eta_0)\}$$

$$h_{\perp}(n) = (n+2) \left[\varepsilon_e \sinh \left(n + \frac{3}{2} \right) \eta_0 + \varepsilon_i \cosh \left(n + \frac{3}{2} \right) \eta_0 \right]$$

$$l_{\perp}(n) = 2^{5/2} E_0 a (\varepsilon_e - \varepsilon_i) \sinh \eta_0 e^{-\tilde{n} \eta_0}$$

siendo ε_i y ε_e las constantes dieléctricas de la esfera y del medio respectivamente, R el radio de las esferas y $\eta_0 = \cosh^{-1}(d/R)$.

El momento dipolar del sistema se desarrolla en serie de la siguiente manera

$$\mu_{//} = 2^{3/2} a^3 \sum_{n=0}^{\infty} (n+1/2) A_n \quad (10)$$

$$\mu_{\perp} = 2^{1/2} a^2 \sum_{n=1}^{\infty} n(n+1) C_n \quad (11)$$

3 MÉTODO DE CÁLCULO

Método de los dipolos puntuales acoplados

Los dos sistemas de ecuaciones dados por las ecuaciones (4), (6) y (5), (7) permiten averiguar los campos \mathbf{E}_{mn} en el caso paralelo y perpendicular, respectivamente. La resolución de los mismos permite determinar los campos \mathbf{E}_{mn} en función del campo externo \mathbf{E}_0 . Por ejemplo, para $R = 12 \times 10^{-8} \text{ cm}$, $d = 10R$, $\epsilon_i = 1.55^2$, $\epsilon_e = 1.33^2$ se encuentra:

Campo paralelo

$$E_{21x}'' = E_{12x}'' = 0$$

$$E_{21y}'' = E_{12y}'' = 0$$

$$E_{21z}'' = E_{12z}'' = 2.66666 \times 10^{-5} E_0$$

Campo perpendicular

$$E_{21x}^\perp = E_{12x}^\perp = 1.33325 \times 10^{-5} E_0$$

$$E_{21y}^\perp = E_{12y}^\perp = 0$$

$$E_{21z}^\perp = E_{12z}^\perp = 0$$

El momento dipolar total es:

Campo paralelo

$$\boldsymbol{\mu}_{//} = \boldsymbol{\mu}_{1//} + \boldsymbol{\mu}_{2//} = \alpha(\mathbf{E}_{1//} + \mathbf{E}_{2//}) = 3.68631 \times 10^{-22} \text{ cm}^3 E_0 \hat{k}$$

Campo perpendicular

$$\boldsymbol{\mu}_\perp = \boldsymbol{\mu}_{1\perp} + \boldsymbol{\mu}_{2\perp} = \alpha(\mathbf{E}_{1\perp} + \mathbf{E}_{2\perp}) = 3.68616 \times 10^{-22} \text{ cm}^3 E_0 \hat{i}$$

Por lo tanto, los valores de la polarizabilidad paralela y perpendicular del sistema de dos esferas son, respectivamente

$$\alpha_{//}^o = 3.68631 \times 10^{-22} \text{ cm}^3 \quad \alpha_\perp^o = 3.68616 \times 10^{-22} \text{ cm}^3$$

Resolución mediante la ecuación de Laplace

Las relaciones de recurrencia (8) y (9) permiten averiguar todos los coeficientes A_n y C_n a partir de los coeficientes iniciales A_0 y C_1 . El problema de determinar los coeficientes iniciales correctos fue resuelto por Godet y Dumon⁶. El método consiste básicamente en variar A_0 y C_1 hasta encontrar los coeficientes iniciales que aseguren la convergencia de los momentos dipolares dados en las expresiones (10) y (11). Para ello se deben cumplir las siguientes condiciones

$$\lim_{n \rightarrow \infty} nA_n = 0 \tag{12}$$

$$\lim_{n \rightarrow \infty} n(n+1)C_n = 0 \tag{13}$$

La condición (12) asegura la convergencia de la serie (10) debido a que se cumple que $\sum_{n=0}^{\infty} A_n = 0$, expresión que surge de considerar que las esferas tienen carga neta nula.

A continuación se detalla el procedimiento utilizado en este trabajo con el fin de encontrar los coeficientes iniciales para el caso en que $d = 1.005R$.

- a. En los desarrollos en serie se consideran sólo los N primeros términos. El número N se elige suficientemente grande como para que los términos que se desprecian de la serie no contribuyan sobre el resultado final. Aquí se toma $N = 100$.
- b. Se calculan todos los coeficientes A_n y C_n a partir de distintos valores iniciales de A_0 y C_1 .
- c. Se trazan las gráficas de NA_N en función de A_0 y de $N(N+1)C_N$ en función de C_1 (ver figuras 2 y 3).

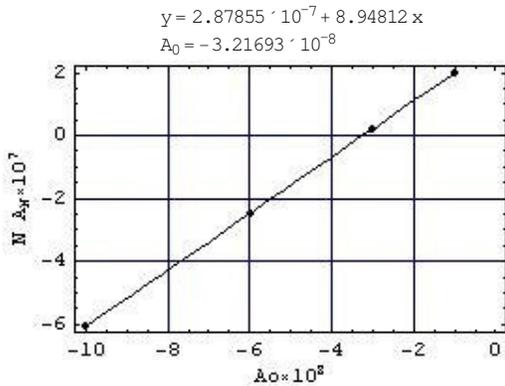


Figura 2. Variación del término NA_N para distintos coeficientes iniciales

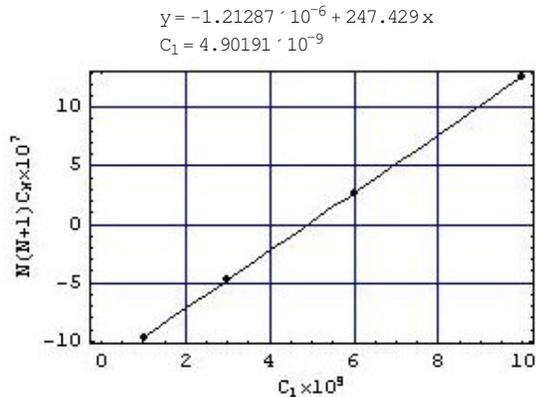


Figura 3. Variación del término $N(N+1)C_N$ para distintos coeficientes iniciales

Los valores iniciales apropiados son aquellos para los cuales NA_N y $N(N+1)C_N$ se anulan. Los mismos se obtienen a partir de los ajustes lineales representados en las figuras 2 y 3, y están dados por: $A_0 = -3.21693 \times 10^{-8}$ y $C_1 = 4.90191 \times 10^{-9}$.

La convergencia de las series (10) y (11) para los coeficientes iniciales encontrados se puede ver en las figuras 4 y 5, respectivamente

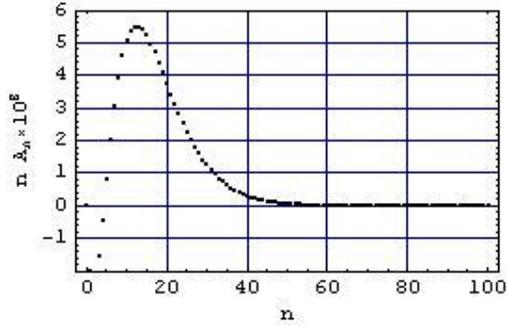


Figura 4. Representación de los términos $n A_n$ del desarrollo en serie del momento dipolar $\mu_{//}$

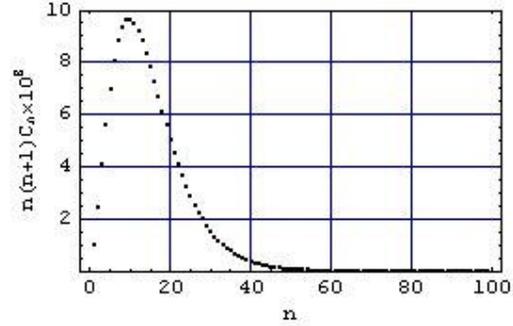


Figura 5. Representación de los términos $n(n+1) C_n$ del desarrollo en serie del momento dipolar μ_{\perp}

Las figuras anteriores muestran la cantidad de términos que se necesita considerar en el desarrollo en serie de los momentos dipolares. El número de coeficientes no nulos depende de la separación entre las esferas; a medida que la separación disminuye es necesario considerar más términos en el desarrollo en serie de los momentos dipolares. Esto es consecuencia de que la interacción entre las esferas es intensa cuando ellas se encuentran próximas entre sí.

Partiendo con los valores iniciales encontrados, se calculan todos los coeficientes con las relaciones de recurrencia (8) y (9), que al ser reemplazados en (10) y (11) conducen a

$$\mu_{//} = 3.78892 \times 10^{-22} \text{ cm}^3 E_0 \quad \mu_{\perp} = 3.63937 \times 10^{-22} \text{ cm}^3 E_0$$

Por lo tanto, las polarizabilidades son

$$\alpha_{//}^o = 3.78892 \times 10^{-22} \text{ cm}^3 \quad \alpha_{\perp}^o = 3.63937 \times 10^{-22} \text{ cm}^3$$

4 RESULTADOS

A continuación se presentan los valores de la polarizabilidad paralela y perpendicular para distintas separaciones entre las esferas. Los resultados fueron obtenidos utilizando el método de los DPA descrito anteriormente para $d = 1.005R$.

Tabla 1. Valores obtenidos mediante el método de los DPA

d/R	10	5	3	1.5	1.25	1.05	1.005	1.0005
$10^{22} \times \alpha_{//}^o \text{ cm}^3$	3.68631	3.68700	3.68986	3.71557	3.73724	3.77313	3.78566	3.78705
$10^{22} \times \alpha_{\perp}^o \text{ cm}^3$	3.68616	3.68582	3.68439	3.67171	3.66122	3.64424	3.63842	3.63779

Mediante el tratamiento de la ecuación de Laplace desarrollado en la sección anterior, se pueden obtener valores de polarizabilidad para distintas distancias entre los centros de las esferas. Los resultados se muestran en la siguiente tabla:

Tabla 2. Valores obtenidos mediante la resolución de la ecuación de Laplace

d/R	10	5	3	1.5	1.25	1.05	1.005	1.0005
$10^{22} \times \alpha_{//}^o \text{ cm}^3$	3.68631	3.68700	3.68986	3.71566	3.73766	3.77527	3.78892	3.79050
$10^{22} \times \alpha_{\perp}^o \text{ cm}^3$	3.68616	3.68582	3.68439	3.67174	3.66136	3.64489	3.63937	3.63879

En las figuras 6 y 7 se muestran los resultados obtenidos mediante los dos métodos desarrollados.

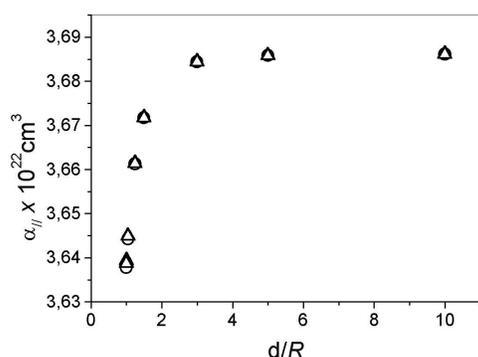


Figura 6. Variación de la polarizabilidad óptica paralela con la distancia

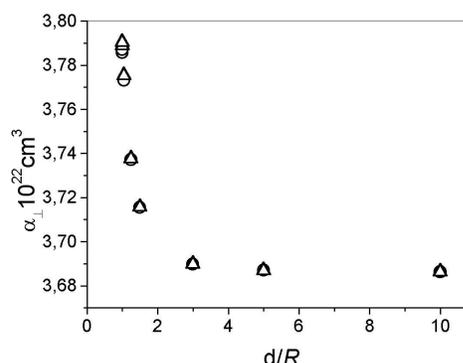


Figura 7. Variación de la polarizabilidad óptica perpendicular con la distancia

La diferencia relativa porcentual entre los resultados obtenidos mediante los dos métodos empleados en este trabajo es máxima cuando la separación es $d = 1.0005R$. Para esta separación entre esferas la diferencia relativa porcentual resulta inferior a 0.092 % y 0.028 % para polarizabilidad óptica paralela y perpendicular, respectivamente.

5 CONCLUSIÓN

La concordancia entre los dos métodos utilizados en este trabajo para el cálculo de la polarizabilidad óptica, justifica la validez de la aproximación de los DPA. Esta aproximación se considera aceptable, incluso cuando las esferas están prácticamente en contacto, y es en este límite donde la interacción entre las esferas se hace mas intensa y la aproximación dipolar menos precisa.

Consecuentemente, surge la factibilidad de modelar moléculas mediante arreglos de esferas que interactúan entre sí. Dicha interacción puede estudiarse haciendo uso del método de los dipolos puntuales acoplados. En base a este modelo se puede calcular la polarizabilidad óptica

de moléculas con geometría que hacen difíciles la resolución de la ecuación de Laplace del sistema.

6 REFERENCIAS

- [1] E. Fredericq and C. Houssier, *Electric dichroism and electric birefringence*, Clarendon Press, Oxford, (1973).
- [2] M.P. Ioannidou, N.C. Skaropoulos and D.P. Chrissoulidis, *J. Opt. Soc. Am. A*, **12**, 1782, (1995).
- [3] G. Gouesbet and G. Grehan, *J. Opt. A: Pure Appl. Opt.*, **1**, 706, (1999).
- [4] A. Goyette and A. Navon, *Phys. Rev. B*, **13**, 4320, (1976).
- [5] E.M. Purcell and C.R. Pennypacker, *Astrophys J.*, **186**, 705, (1973).
- [6] J.L. Godet and B. Dumon, *Phys. Rev. A*, **46**, 5680, (1992).