

НЕЛИНЕЙНЫЕ ОПТИЧЕСКИЕ ЯВЛЕНИЯ

УДК 535.345.6

Ю.Э. Гейнц, А.А. Землянов, Е.К. Чистякова

ВЛИЯНИЕ РЕЗОНАНСНЫХ СВОЙСТВ ПРОЗРАЧНЫХ ЧАСТИЦ НА ПОРОГ ВЫНУЖДЕННОГО РАССЕЯНИЯ МАНДЕЛЬШТАМА–БРИЛЛЮЭНА

Рассмотрен эффект вынужденного рассеяния Мандельштама–Бриллюэна (ВРМБ) в прозрачных сферических микро-частицах. Установлено, что существенное влияние на пороговые характеристики процесса ВРМБ оказывают резонансные свойства частиц, а именно добротность и ширина резонансного контура. Выполнены численные расчеты коэффициента перекрытия взаимодействующих оптических полей накачки и ВРМБ внутри частицы, определяющего величину пороговой интенсивности ВРМБ. Показано, что величина данного коэффициента зависит от того, насколько точно соответствие пространственных профилей взаимодействующих полей.

1. Введение

Процессы вынужденного рассеяния света в диэлектрических микрочастицах (вынужденное комбинационное рассеяние (ВКР), вынужденное рассеяние Мандельштама–Бриллюэна (ВРМБ), вынужденная флуоресценция) в последнее время являются объектом пристального изучения ученых различных стран [1–16, 19, 21, 22]. Подобный интерес к данным явлениям связан с тем, что сферическая частица, по сути дела, является оптическим микрорезонатором, добротность которого достаточно высока и может достигать величин $\sim 10^8$ [2]. Это делает частицу уникальным оптическим прибором, пригодным к решению многих задач, традиционных как для внутриврезонаторной спектроскопии [4], так и для физики аэрозолей [1].

Среди всей совокупности нелинейных эффектов вынужденного рассеяния света в частицах наибольший практический интерес вследствие достаточно существенного спектрального разделения линий генерации представляет эффект ВКР. Исследованию данного явления посвящено значительное число экспериментальных и теоретических работ (обзор их можно найти в [22]). Вместе с тем экспериментально было установлено, что ВКР в частицах нередко сопровождается другим нелинейным процессом – ВРМБ, который, как правило, возникает раньше, чем ВКР, и может привести к понижению энергетического порога комбинационного рассеяния [2, 9, 13, 14]. Пороговая интенсивность ВКР в случае такого «каскадного» возбуждения понижается примерно в 3–5 раз. Наблюдаемый эффект связан с тем, что порог ВРМБ ниже порога ВКР вследствие более высокого коэффициента усиления процесса, и поэтому в ряде случаев волна ВРМБ возникает раньше волны комбинационного рассеяния и затем уже служит более эффективной, чем падающее излучение, накачкой для процесса ВКР.

В связи с этим представляется важным исследовать влияние резонансных свойств прозрачных частиц, а именно их добротности и спектральной ширины резонансного контура, на эффективность пространственного перераспределения энергии взаимодействующих оптических полей, влияющей на пороговую интенсивность ВРМБ и ВКР, что и являлось целью настоящей работы. В работе, кроме того, проведено последовательное изложение основных моментов теории явления ВРМБ в сферических частицах, а также показана необходимость учета пространственной структуры взаимодействующих акустических и оптических полей при исследовании ВРМБ в микрорезонаторах.

2. Основные соотношения

Теоретические исследования, а также большое число экспериментальных работ указывают на то, что возникновение вынужденного рассеяния света в сферической частице обусловлено наличием в ней собственных высокодобротных резонансных электромагнитных мод, способных при выполнении условий фазового синхронизма существенно усиливать волну спонтанного рассеяния. К настоящему времени сложилась следующая теоретическая модель возникновения ВРМБ в сферической частице [14].

При взаимодействии излучения с веществом частицы в результате эффекта электрострикции во всем ее объеме возникает спонтанное неупругое рассеяние света, которое наиболее интенсивно в областях фокусировки внутреннего оптического поля (рис. 1).

Часть волн из спектра спонтанного рассеяния покидает каплю, а часть за счет внутреннего отражения распространяется вдоль ее поверхности. На своем пути эти волны как усиливаются, так и ослабляются за счет поглощения и выхода излучения через

поверхность. При совпадении частоты волны из спектра рассеяния с частотой какой-либо собственной высокодобротной электромагнитной моды частицы (это может быть также несколько рядом расположенных мод в случае многомодового процесса) усиление спонтанной стоксовой волны начинает превышать ее суммарные потери и в частице возникает вынужденное рассеяние.

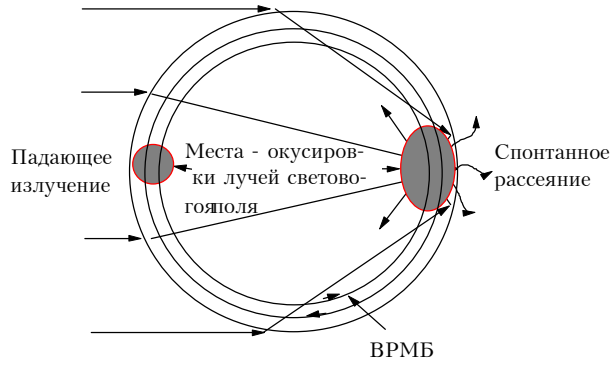


Рис. 1. Схема, иллюстрирующая модель процесса ВРМБ в сферической частице

С точки зрения формирования полей в резонаторе, поле вынужденного рассеяния можно трактовать как стоячую волну, образованную суперпозицией электромагнитных волн, распространяющихся навстречу друг другу вдоль сферической поверхности капли при выполнении условия фазового синхронизма:

$$\omega_s = \omega_L - \omega_{ac}; \quad \mathbf{k}_s = \mathbf{k}_L - \mathbf{k}_{ac},$$

где ω_L , \mathbf{k}_L , ω_s , \mathbf{k}_s – частоты и волновые векторы падающей на частицу и рассеянной электромагнитных волн соответственно; ω_{ac} , \mathbf{k}_{ac} – частота и волновой вектор стрикционных акустических колебаний.

Исходными уравнениями для теоретического анализа процесса ВРМБ в частице являются неоднородные уравнения Максвелла, в которых нелинейная часть $\mathbf{P}_N(\mathbf{r}, t)$ поляризации среды $\mathbf{P}(\mathbf{r}, t)$, наведенная полем накачки и связанная непосредственно с рассматриваемым процессом нелинейного рассеяния, служит источником поля комбинационно-рассеянной волны:

$$\begin{aligned} \text{rot}\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) &= -\frac{1}{c} \frac{\partial \mathbf{H}(\mathbf{r}, t)}{\partial t}; \quad \text{div}\mathbf{D}(\mathbf{r}, t) = 0; \\ \text{rot}\mathbf{H}(\mathbf{r}, t) &= \frac{1}{c} \frac{\partial}{\partial t} \mathbf{D}(\mathbf{r}, t) + \frac{4\pi\sigma}{c} \mathbf{J}(\mathbf{r}, t); \\ \text{div}\mathbf{H}(\mathbf{r}, t) &= 0; \\ \mathbf{D}(\mathbf{r}, t) &= \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) + 4\pi \mathbf{P}(\mathbf{r}, t); \quad \mathbf{J}(\mathbf{r}, t) = \sigma \mathbf{E}(\mathbf{r}, t). \end{aligned} \quad (1)$$

Здесь \mathbf{E} , \mathbf{H} – электрический и магнитный векторы поля внутри частицы соответственно; \mathbf{D} – вектор электрического смещения; \mathbf{J} – плотность токов поля-

ризации; c – скорость света в вакууме; σ – удельная проводимость вещества частицы. На границе сферы необходимо выполнение условия непрерывности тангенциальных составляющих поля.

Как известно, данная система уравнений преобразуется в волновое уравнение для вектора напряженности электрического поля в частице $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$:

$$\begin{aligned} \text{rot rot } \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) + \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{E}(\mathbf{r}, t)}{\partial t^2} + \frac{4\pi\sigma}{c^2} \frac{\partial \mathbf{E}(\mathbf{r}, t)}{\partial t} = \\ = -\frac{4\pi}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathbf{P}_N(\mathbf{r}, t). \end{aligned} \quad (2)$$

Подчеркнем, что в правой части данного уравнения стоит величина нелинейной поляризации среды, так как мы рассматриваем только процесс ВРМБ, связанный с конкретным дипольным переходом.

Поскольку электрическое поле в частице является суммой полей на основной частоте ω_L (частоте накачки) и на частоте рассеянной волны ω_s :

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{E}_L(\mathbf{r}, t) + \mathbf{E}_s(\mathbf{r}, t), \quad (3)$$

где

$$\mathbf{E}_L(\mathbf{r}, t) = \text{Re}\{\tilde{\mathbf{E}}_L e^{-i\omega_L t}\} = \frac{1}{2} \tilde{\mathbf{E}}_L e^{-i\omega_L t} + \text{к.с.},$$

$$\mathbf{E}_s(\mathbf{r}, t) = \text{Re}\{\tilde{\mathbf{E}}_s e^{-i\omega_s t}\} = \frac{1}{2} \tilde{\mathbf{E}}_s e^{-i\omega_s t} + \text{к.с.},$$

то волновое уравнение (2) фактически распадается на два связанных уравнения для основной и рассеянной волн:

$$\begin{aligned} \text{rot rot } \mathbf{E}_L(\mathbf{r}, t) + \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{E}_L(\mathbf{r}, t)}{\partial t^2} + \frac{4\pi\sigma}{c^2} \frac{\partial \mathbf{E}_L(\mathbf{r}, t)}{\partial t} = \\ = -\frac{4\pi}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathbf{P}_L(\mathbf{r}, t); \\ \text{rot rot } \mathbf{E}_s(\mathbf{r}, t) + \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{E}_s(\mathbf{r}, t)}{\partial t^2} + \frac{4\pi\sigma}{c^2} \frac{\partial \mathbf{E}_s(\mathbf{r}, t)}{\partial t} = \\ = -\frac{4\pi}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathbf{P}_s(\mathbf{r}, t). \end{aligned} \quad (4)$$

Здесь

$$\mathbf{P}_s = \frac{1}{2} \tilde{\mathbf{P}}_s e^{-i\omega_s t} + \text{к.с.} = \chi^{(3)}(\omega_s) (\tilde{\mathbf{E}}_L \tilde{\mathbf{E}}_L^*) \tilde{\mathbf{E}}_s e^{-i\omega_s t} + \text{к.с.},$$

$$\mathbf{P}_L = \frac{1}{2} \tilde{\mathbf{P}}_L e^{-i\omega_L t} + \text{к.с.} = \chi^{(3)}(\omega_L) (\tilde{\mathbf{E}}_s \tilde{\mathbf{E}}_s^*) \tilde{\mathbf{E}}_L e^{-i\omega_L t} + \text{к.с.};$$

$\chi^{(3)}$ – нелинейная диэлектрическая восприимчивость 3-го порядка; $\tilde{\mathbf{E}}_L$, $\tilde{\mathbf{E}}_s$ – амплитуды падающего поля и поля волны ВРМБ соответственно; $\mathbf{P}_N = \mathbf{P}_L + \mathbf{P}_s$.

Отметим, что формально рассеянных волн возникает бесконечное множество с частотами $\omega = \omega_L \pm n\omega_{ac}$, $n = 1 \dots \infty$. Однако мы ограничимся рассмотрением только первой стоксовой волны с $\omega_s = \omega_L - \omega_{ac}$ как наиболее интенсивной. В этом случае справедлива перестановочная симметрия $\chi^{(3)}(\omega_s) = \{\chi^{(3)}(\omega_L)\}^*$ [18].

Уравнения для поля (4) дополняются уравнением для приращения давления в среде $p(\mathbf{r}, t)$

$$\begin{aligned} \nabla^2 p(\mathbf{r}, t) - \frac{1}{c_s^2} \frac{\partial^2 p(\mathbf{r}, t)}{\partial t^2} + \frac{2\Gamma_B}{c_s^2} \frac{\partial p(\mathbf{r}, t)}{\partial t} = \\ = \frac{\gamma}{8\pi} \nabla^2 |\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)|^2, \end{aligned} \quad (5)$$

$$p(\mathbf{r}, t = 0) = 0$$

и выражением, связывающим давление и нелинейную поляризацию среды \mathbf{P}_N :

$$\mathbf{P}_N(\mathbf{r}, t) = \gamma/(4\pi c_s^2 \rho_a) p(\mathbf{r}, t) \mathbf{E}(\mathbf{r}, t).$$

Здесь c_s , Γ_B – скорость и коэффициент затухания гиперзвука (полуширина линии спонтанного рассеяния Мандельштама–Бриллюэна); γ – константа электрострикции; ρ_a – плотность вещества частицы.

Граничное условие к (5) является обобщенным видом формулы Лапласа [19]:

$$\begin{aligned} \left\{ p(\mathbf{r}, t) \Big|_a - \frac{\gamma}{8\pi} |\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) \Big|_a^2 - \beta_s \left(\frac{1}{R_1(\mathbf{r})} + \frac{1}{R_2(\mathbf{r})} - \frac{2}{a_0} \right) + f \right\} n_i = \\ = \eta \left(\frac{\partial v_i}{\partial x_k} + \frac{\partial v_k}{\partial x_i} \right) n_k, \end{aligned}$$

где $R_1(\mathbf{r})$ и $R_2(\mathbf{r})$ – главные радиусы кривизны поверхности частицы в точке с радиусом-вектором \mathbf{r} ; η , ν – динамическая вязкость и скорость жидкости; $x_{i,k}$ – координаты; $n_{i,k}$ – компоненты вектора внешней нормали к поверхности частицы \mathbf{n}_r ; β_s – коэффициент поверхностного натяжения жидкости; a_0 – радиус частицы;

$$f(\mathbf{r}, t) = (\varepsilon_a - 1)/(8\pi) [(\varepsilon_a - 1) (\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) \cdot \mathbf{n}_r)^2 + |\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)|^2]$$

– скачок нормальной компоненты натяжения электромагнитного поля на поверхности жидкости [20]; ε_a – линейная часть диэлектрической проницаемости вещества частицы. Значок « $\Big|_a$ » указывает на то, что значения величин берутся на границе частицы.

Поскольку мы рассматриваем формирование полей в объемном оптическом резонаторе, которым фактически является прозрачная сферическая частица, то дальнейшим шагом будет представление решения волновых уравнений для полей (4) в виде разложения по собственным электромагнитным колебательным модам частицы-резонатора $\mathbf{E}_{nl}(\mathbf{r})$ с собственными частотами ω_{nl} . Например, для стоксовой волны

$$\mathbf{E}_s(\mathbf{r}, t) = \sum_{n;l} A_{nl}(t) \mathbf{E}_{nl}(\mathbf{r}), \quad (6)$$

где коэффициенты $A_{nl}(t)$ удовлетворяют уравнениям:

$$\begin{aligned} \frac{d^2 A_{nl}(t)}{dt^2} + 4\pi\sigma \frac{d A_{nl}(t)}{dt} + \omega_{nl}^2 A_{nl}(t) = \\ = -4\pi \int_V \mathbf{E}_{nl}(\mathbf{r}') \frac{\partial^2 \mathbf{P}_s(\mathbf{r}', t)}{\partial t^2} d\mathbf{r}'. \end{aligned} \quad (7)$$

Интегрирование в (7) ведется по объему частицы.

Разложения по собственным функциям, подобные (6), проводятся также для нелинейной поляризации $\mathbf{P}_N(\mathbf{r}, t)$ и давления $p(\mathbf{r}, t)$. В последнем случае

$$p(\mathbf{r}, t) = \sum_{n;l;m} \varphi_{nlm}(t) \Pi_{nlm}(\mathbf{r}). \quad (8)$$

Решение системы уравнений (7) совместно с уравнениями (4) и соответствующими начальными и граничными условиями позволяет полностью описать исследуемый процесс вынужденного рассеяния в частице.

Отметим, что в качестве собственных функций в (6) обычно выбирается система парциальных ТЕ- и ТН-волн (или их линейной комбинации), вид которых следует из решения Ми для задачи дифракции плоской электромагнитной волны на сфере [23]:

$$\mathbf{E}_{nl}(\mathbf{r}) = \begin{cases} b_n(x_a) \mathbf{M}_{nl}(\mathbf{r}) \psi_n(k_a r) & \text{для ТЕ-волны;} \\ [1/k_a c_n(x_a) \nabla [\mathbf{M}_{nl}(\mathbf{r}) \psi_n(k_a r)]] & \text{для ТМ-волны,} \end{cases}$$

где k_a – волновое число внутри частицы; $b_n(x_a)$, $c_n(x_a)$ – амплитуды парциальных волн; $\mathbf{M}_{nl}(\mathbf{r})$ – сферические векторы-гармоники; $x_a = 2\pi a_0/\lambda$ – параметр дифракции частицы.

Функции $\Pi_{nlm}(\mathbf{r})$ при условии равенства нулю приращения давления на поверхности частицы, т.е. $p(\mathbf{r}, t) \Big|_a \approx 0$, что является достаточно хорошим приближением при исследовании ВРМБ [15], имеют вид

$$\Pi_{nlm}(\mathbf{r}) = C_{nm} \psi_n(\alpha_{nm} |\mathbf{r}|/a_0) Y_n(\theta, \varphi),$$

где $C_{nm} = 2/[a_0^3 \psi_{n+1}(\alpha_{nm})^2]$ – нормировочные константы; α_{nm} – m -й ноль сферической функции Бесселя ψ_n ; θ , φ – сферические координаты.

Для собственных функций выполняются условия ортогональности:

$$\begin{aligned} \int_V \mathbf{E}_{nl}(\mathbf{r}) \mathbf{E}_{km}^*(\mathbf{r}) d\mathbf{r}' = \delta_{nk} \delta_{lm}; \\ \int_V \Pi_{nlm}(\mathbf{r}) \Pi_{kij}^*(\mathbf{r}) d\mathbf{r}' = \delta_{nk} \delta_{li} \delta_{mj}. \end{aligned} \quad (9)$$

3. Порог ВРМБ в сферической частице

Запишем уравнение баланса энергии в частице на частоте рассеянной волны [10]:

$$\frac{dW_s}{dt} = P_g - (P_a + P_r). \quad (10)$$

В выражении (10) введены следующие обозначения: W_s – запасенная в объеме частицы средняя за период колебания энергия электромагнитного поля; P_r – средняя мощность радиационных потерь (выход излучения через поверхность частицы); P_a – средняя мощность тепловых потерь внутри частицы;

$$P_g = -\frac{1}{2} \int_V \operatorname{Re} \left\{ \tilde{\mathbf{E}}_s^* \frac{\partial \tilde{\mathbf{P}}_s}{\partial t} \right\} d\mathbf{r}' - \text{средняя мощность источников стоксовой волны; } V - \text{объем частицы.}$$

Далее введем понятие добротности капиллярного резонатора Q на частоте резонансной моды ω_{nl} , поддерживающей процесс ВРМБ ($\omega_{nl} = \omega_s$):

$$Q = \omega_s W_m / (P_a + P_r),$$

где W_m – усредненная за период колебания энергия электромагнитного поля в моде. Тогда закон сохранения энергии стоксовой волны в частице может быть записан в виде

$$\frac{dW_s}{dt} = P_g - \omega_s \frac{y_m W_s}{Q}, \quad (11)$$

где через y_m обозначено отношение W_m/W_s .

Следует отметить, что в открытых резонаторах, каким и является прозрачная сферическая частица, поля их собственных мод не ограничены строго поверхностью резонатора, а простираются за ее пределы. Поэтому всегда $y_m > 1$. Однако, как показали расчеты [21], в большинстве случаев для высокодобротных собственных мод сферических частиц значение коэффициента y_m близко к единице, причем это отличие составляет $\sim 2 \div 5\%$, и в дальнейших расчетах мы положим $y_m = 1$.

Рассмотрим слагаемое, определяющее мощность источников стоксовой волны. В рамках принятой теоретической модели процесса для нелинейной поляризации на частоте ω_s используем выражение

$$\tilde{\mathbf{P}}_s = \chi^{(3)} (\tilde{\mathbf{E}}_L \tilde{\mathbf{E}}_L^*) \tilde{\mathbf{E}}_s. \quad (12)$$

Считая изменение во времени комплексных амплитуд более медленным, чем экспоненциальный множитель, т.е. используя так называемое приближение медленно меняющихся амплитуд, преобразуем выражение для мощности источников волны неупругого рассеяния к следующему виду:

$$\begin{aligned} P_g &= -\frac{1}{2} \int_V \operatorname{Re} \left\{ \tilde{\mathbf{E}}_s^* \frac{\partial \tilde{\mathbf{P}}_s}{\partial t} \right\} d\mathbf{r}' = \\ &= -\frac{\omega_s}{2} \int_V \operatorname{Im} \left\{ \chi^{(3)} \right\} (\tilde{\mathbf{E}}_s \tilde{\mathbf{E}}_s^*) (\tilde{\mathbf{E}}_L \tilde{\mathbf{E}}_L^*) d\mathbf{r}'. \end{aligned} \quad (13)$$

Учитывая, что коэффициент усиления стоксовой волны g_s при вынужденном рассеянии связан с нелинейной восприимчивостью среды $\chi^{(3)}$ посредством соотношения

$$g_s = -32\pi^2 \omega_s / (c^2 \epsilon_a) \operatorname{Im} \left\{ \chi^{(3)} \right\},$$

выражение (13) преобразуем к виду

$$P_g = \frac{c^2 \epsilon_a}{64\pi^2} \int_V g_s (\tilde{\mathbf{E}}_s \tilde{\mathbf{E}}_s^*) (\tilde{\mathbf{E}}_L \tilde{\mathbf{E}}_L^*) d\mathbf{r}' = g_s \int_V I_s(\mathbf{r}) I_L(\mathbf{r}) d\mathbf{r}',$$

где интенсивность излучения $I(\mathbf{r}) = cn_d / (8\pi) (\tilde{\mathbf{E}}\tilde{\mathbf{E}}^*)$; $n_a = \sqrt{\epsilon_a}$ – показатель преломления.

Условие наступления ВРМБ определим как $dW_s/dt = 0$ и, следовательно, из (11) получим

$$\omega_s n_d / (cQ) \int_V I_s(\mathbf{r}) d\mathbf{r}' = g_s \int_V I_s(\mathbf{r}) I_L(\mathbf{r}) d\mathbf{r}'.$$

Интенсивность стоксовой волны I_s и волны накачки I_L внутри частицы представим в виде произведения, выделив не зависящую от пространственных координат амплитуду:

$$I_L = I_{L0} B_L(\mathbf{r}); I_s = I_{s0} B_s(\mathbf{r}),$$

где B_L, B_s – безразмерные факторы неоднородности внутренних оптических полей. Поскольку I_{L0} фактически есть интенсивность падающей на частицу волны, то искомая нами пороговая интенсивность излучения накачки, выше которой возникает вынужденное рассеяние, равна:

$$I_t = 2\pi n_d [g_s Q(\omega_s) \lambda_s B_c(\omega_L, \omega_s)], \quad (14)$$

где λ_s – длина волны рассеянного света; $B_c(\omega_L, \omega_s)$ – интегральный коэффициент, учитывающий пространственное перекрытие взаимодействующих оптических полей внутри частицы [22]:

$$B_c(\omega_L, \omega_s) = \left(\int_V B_s(\mathbf{r}) d\mathbf{r}' \right)^{-1} \int_V B_s(\mathbf{r}) B_L(\mathbf{r}) d\mathbf{r}'.$$

Как следует из данного выражения, величина коэффициента B_c , а фактически эффективность взаимодействия оптических полей в частице, прямо пропорциональна интенсивности поля накачки (через коэффициент B_L). Значения B_c тем выше, чем точнее соответствуют друг другу пространственные профили взаимодействующих полей. Очевидно, что максимальных значений B_c следует ожидать в случаях, когда оба поля (поле накачки и поле волны ВРМБ) одновременно находятся в резонансе с какой-либо из собственных электромагнитных мод частицы, т.е. в так называемом случае «двойного резонанса». Более того, поскольку величина частотного смещения рас-

янной волны при ВРМБ $\Delta\omega = \omega_L - \omega$, достаточно мала, то вполне вероятно, что обе спектральные линии будут находиться в пределах одного и того же резонансного контура. Эту ситуацию схематически иллюстрирует рис. 2,а, где через $\Gamma = x_a/Q$ обозначена полуширина резонансной кривой собственной моды частицы.

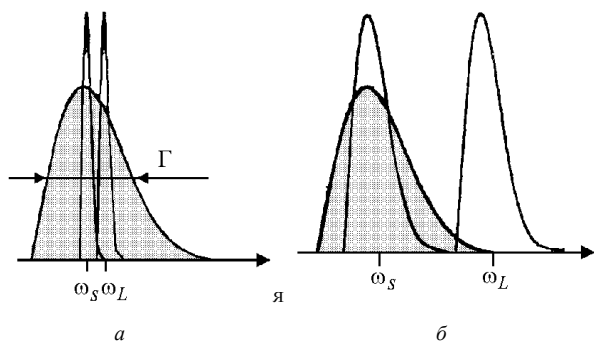


Рис. 2. Схема взаимного расположения контуров линий накачки и ВРМБ в случае двойного (а) и одинарного (б) резонансов. Заштрихованный контур – резонансная кривая одной из собственных колебательных мод частицы

Как известно, при увеличении размера частицы величина Γ для приповерхностных собственных мод падает [6], следовательно, при $\Delta\omega \geq \Gamma$ условие «двойного резонанса» будет нарушено (рис. 2,б), что приводит к уменьшению коэффициента B_c .

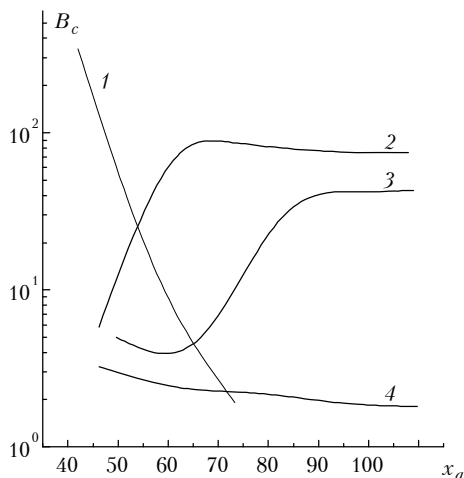


Рис. 3. Зависимость коэффициента пространственного перекрытия оптических полей в водных каплях B_c от их параметра дифракции x_a при ВРМБ (кривые 1 – 3) и ВКР (4). Для ВРМБ расчет проводился для TE_{1l} (1), TE_{2l} (2) и TE_{3l} (3) собственных мод частиц

Результаты численных расчетов зависимости $B_c(x_a)$ приведены на рис. 3. Различные кривые на рис. 3 соответствуют различным порядкам резонансных мод, поддерживающих ВРМБ. Такое разделение становится понятным, если учесть, что моды различного номера и порядка (т.е. с различным набором индексов n и l) могут иметь достаточно близкие значения резонансного параметра дифракции x_a , и при этом величина добротности таких мод и значение B_c совершенно различны. Вопрос же о том, какая из этих

мод будет основной для усиления стоксовой волны в рамках рассматриваемой теоретической модели, к настоящему времени остается открытым.

Из анализа рис. 3 видно, что с ростом параметра дифракции частиц в зависимости от порядка выбранного резонанса значения коэффициента B_c могут либо падать, либо увеличиваться. Это указывает на нарушение «двойного резонанса» в первом случае и на рост эффективности взаимодействия полей во втором. На рис. 3 для сравнения приведены также рассчитанные нами значения $B_c(x_a)$ для процесса ВКР в каплях воды. При расчетах выбиралась наиболее интенсивная полоса валентных колебаний воды $\Delta\omega = 3500 \text{ см}^{-1}$, что соответствовало одному резонансу только для поля ВКР. Значения B_c для процесса ВКР, как видно из рисунка, значительно ниже, чем при ВРМБ, и являются, по сути дела, нижним уровнем, к которому стремится величина B_c в пределе больших размеров частиц ($x_a \gg 1$).

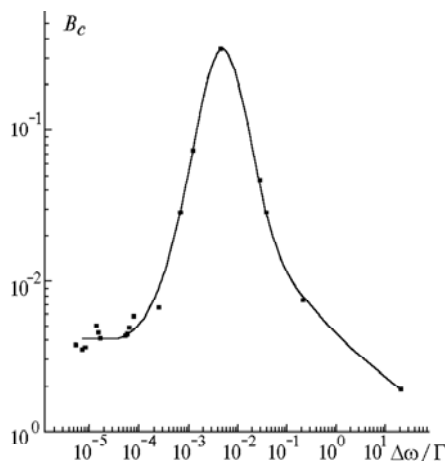


Рис. 4. Зависимость коэффициента пространственного перекрытия полей B_c от параметра $\Delta\omega/\Gamma$ в каплях воды

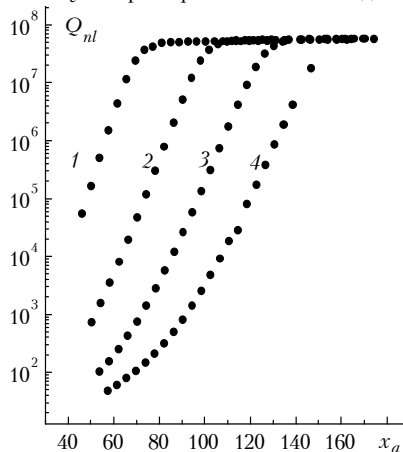


Рис. 5. Добротность Q_{nl} резонансов внутреннего оптического поля различных порядков (цифры у кривых) в зависимости от параметра дифракции капель воды x_a (показатель поглощения $\chi_a = 10^{-8}$)

Из предыдущего изложения следует, что эффективность взаимодействия оптических полей существ-

венным образом зависит от соотношения величин $\Delta\omega$ и Γ . Поэтому закономерно рассмотреть зависимость коэффициента B_c от параметра $\Delta\omega/\Gamma$. Эта зависимость, полученная путем усреднения результатов по более чем двадцати различным комбинациям модовых индексов n и l , представлена на рис. 4. Восходящая часть кривой на рис. 4 соответствует «двойному резонансу» ($\Delta\omega \ll \Gamma$) и отражает рост добротности собственных мод частицы с увеличением ее размера (рис. 5). При этом растут значения B_L и, как следствие, величина коэффициента перекрытия B_c . Сужение резонансного контура и последующее нарушение «двойного резонанса» обуславливают нисходящую ветвь зависимости $B_c(\Delta\omega/\Gamma)$.

4. Нелинейная восприимчивость $\chi^{(3)}$ при процессе ВРМБ в микрорезонаторах

Выражение (14) применимо для вычисления порога различных типов вынужденного рассеяния в частице (ВКР, ВРМБ, вынужденная флуоресценция), однако особенности каждого процесса определяются коэффициентом усиления рассеянной волны g_s , а точнее конкретным видом нелинейной восприимчивости среды $\chi^{(3)}$. Кроме того, на данный параметр накладывают отпечаток резонансные свойства частиц. Остановимся более подробно на рассмотрении параметра $\chi^{(3)}$ для процесса вынужденного рассеяния Мандельштама–Бриллюэна в прозрачных частицах.

Как отмечалось выше, воздействие светового излучения на среду приведет к появлению дополнительной нелинейной поляризации (12). Вводя комплексную амплитуду давления как $p(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{2} \tilde{p} e^{-i\omega_{ac}t} + \text{к.с.}$, нелинейную поляризацию на частоте рассеянной волны ω_s запишем в виде

$$P_s(\mathbf{r}, t) = \gamma / (8\pi c_s^2 \rho_a) \tilde{p}^*(\mathbf{r}, t) \tilde{\mathbf{E}}_L e^{-i\omega_s t} + \text{к.с.},$$

откуда получим выражение для нелинейной восприимчивости при рассеянии Мандельштама–Бриллюэна:

$$\chi^{(3)}(\omega_s) = \tilde{p}^* \gamma / (8\pi c_s^2 \rho_a) (\tilde{\mathbf{E}}_L^* \tilde{\mathbf{E}}_s)^{-1}. \quad (15)$$

Обратимся вновь к уравнению для давления (5), а его решение представим в виде разложения по собственным функциям капли-резонатора (8). Подставив (15) в (5) и проинтегрировав по объему капли с учетом условия ортогональности собственных функций (9), получим уравнение для коэффициентов разложения

$$\begin{aligned} \frac{\partial^2 \wp_{nlm}}{\partial t^2} - 2\Gamma_B \frac{\partial \wp_{nlm}}{\partial t} - \Omega_{nlm}^2 \wp_{nlm} = \\ = - e^{-i\omega_{ac}t} \frac{\gamma c_s^2}{8\pi} \int_V \nabla^2 (\tilde{\mathbf{E}}_s^* \tilde{\mathbf{E}}_L) \Pi_{nlm}^*(\mathbf{r}') d\mathbf{r}', \end{aligned} \quad (16)$$

где Ω_{nlm} есть собственные акустические частоты резонатора.

Поскольку при исследовании пороговых характеристик мы имеем дело с установившимися полями, амплитуды которых $\tilde{\mathbf{E}}$ и \tilde{p} не зависят от времени, то для каждого из полей $\tilde{\mathbf{E}}_L$ и $\tilde{\mathbf{E}}_s$ волновые уравнения (4) переходят в уравнение Гельмгольца и решение (16) принимает вид

$$\wp_{nlm} = \frac{\gamma c_s^2 k_L^2}{4\pi} \frac{e^{-i\omega_{ac}t}}{\omega_{ac}^2 - \Omega_{nlm}^2 + 2i\Gamma_B \omega_{ac}} \int_V (\tilde{\mathbf{E}}_s^* \tilde{\mathbf{E}}_L) \Pi_{nlm}^*(\mathbf{r}') d\mathbf{r}'. \quad (17)$$

Умножив (17) на Π_{nlm} и просуммировав по всем собственным акустическим модам резонатора, получим закон изменения давления в капле в случае установившегося процесса ВРМБ:

$$\begin{aligned} p(\mathbf{r}, t) = \frac{\gamma c_s^2 k_L^2}{4\pi} \sum_{n;l;m} \frac{e^{-i\omega_{ac}t}}{\omega_{ac}^2 - \Omega_{nlm}^2 + 2i\Gamma_B \omega_{ac}} \times \\ \times \Pi_{nlm}(\mathbf{r}) \int_V (\tilde{\mathbf{E}}_s^* \tilde{\mathbf{E}}_L) \Pi_{nlm}^*(\mathbf{r}') d\mathbf{r}'. \end{aligned} \quad (18)$$

Величину, характеризующую частотную расстройку генерируемой акустической волны от резонанса, представим как

$$\omega_{ac}^2 - \Omega_{nlm}^2 + 2i\Gamma_B \omega_{ac} = 2i\Gamma_B \omega_{ac} (1 - i d_{nlm}) \equiv D_{nlm},$$

где $d_{nlm} = [(\omega_{ac} - \Omega_{nlm})/\omega_{ac}][\Omega_{nlm}/\Gamma_B(\Omega_{nlm})]$. Обозначив $Q_{nlm}^{ac} = \Omega_{nlm}/\Gamma_B(\Omega_{nlm})$, что по смыслу есть добротность собственной акустической моды частицы, получим выражение для приведенной расстройки

$$d_{nlm} = Q_{nlm}^{ac} (\omega_{ac} - \Omega_{nlm})/\omega_{ac}.$$

Как и раньше, комплексную амплитуду поля $\tilde{\mathbf{E}}_L$ представим в виде произведения зависящей от времени амплитуды и пространственной функции:

$\tilde{\mathbf{E}}_L(\mathbf{r}, t) = \mathcal{E}_L(t) \mathbf{b}_L(\mathbf{r})$. Аналогичным образом расписывается и $\tilde{\mathbf{E}}_s$. Заметим, что введенная ранее функция неоднородности внутреннего поля $B_L(\mathbf{r})$ связана с $\mathbf{b}_L(\mathbf{r})$ посредством очевидного соотношения:

$$B_L(\mathbf{r}) = \frac{\tilde{\mathbf{E}}_L \tilde{\mathbf{E}}_L^*}{E_L E_L^*} = \mathbf{b}_L(\mathbf{r}) \mathbf{b}_L^*(\mathbf{r}).$$

Возвращаясь к (18), получим

$$\begin{aligned} p(\mathbf{r}, t) = e^{-i\omega_{ac}t} \frac{\gamma c_s^2 k_L^2}{4\pi} \mathcal{E}_L \mathcal{E}_s^* \times \\ \times \sum_{n;l;m} \frac{\Pi_{nlm}(\mathbf{r})}{D_{nlm}(\mathbf{r})} \int_V \mathbf{b}_L(\mathbf{r}') \mathbf{b}_s^*(\mathbf{r}') \Pi_{nlm}^*(\mathbf{r}') d\mathbf{r}'. \end{aligned}$$

Обозначив интеграл в правой части как

$$K_{nlm} = \int_V \mathbf{b}_s(\mathbf{r}') \mathbf{b}_L^*(\mathbf{r}') \Pi_{nlm}(\mathbf{r}') d\mathbf{r}', \quad (19)$$

запишем окончательное выражение для давления в частице

$$p(\mathbf{r}, t) = e^{-i\omega_{act} t} \frac{\gamma c_s^2 k_L^2}{4\pi} \mathcal{E}_L \mathcal{E}_s^* \sum_{n;l;m} \frac{\Pi_{nlm}(\mathbf{r}) K_{nlm}^*}{D_{nlm}(\mathbf{r})}. \quad (20)$$

С учетом этого из (15) следует выражение для нелинейной восприимчивости среды для процесса ВРМБ на частоте рассеянной волны:

$$\chi^{(3)}(\omega_s) = \frac{\gamma^2 \omega_L^2 n_a^2}{16\pi^2 c^2 \rho_a \mathbf{b}_s(\mathbf{r}) \mathbf{b}_L^*(\mathbf{r})} \sum_{n;l;m} \frac{\Pi_{nlm}(\mathbf{r}) K_{nlm}^*}{D_{nlm}(\mathbf{r})}. \quad (21)$$

При акустическом резонансе $\omega_{ac} = \Omega_{nlm}$, когда расстройка d_{nlm} равна нулю, суммирование в правой части (21) исчезает и

$$\begin{aligned} \chi^{(3)}(\omega_s) &= -\frac{i \gamma^2 \omega_L^2 n_a^2}{32\pi^2 c^2 \rho_a \omega_{ac} G(\omega_{ac})} \frac{\Pi(\mathbf{r}; \Omega_{nlm} = \omega_{ac}) K^*(\omega_{ac})}{\mathbf{b}_s(\mathbf{r}) \mathbf{b}_L^*(\mathbf{r})} = \\ &= \chi_\infty^{(3)} \frac{\Pi(\mathbf{r}; \Omega_{nlm} = \omega_{ac}) K^*(\omega_{ac})}{\mathbf{b}_s(\mathbf{r}) \mathbf{b}_L^*(\mathbf{r})}, \end{aligned}$$

где $\chi_\infty^{(3)}$ обозначает нелинейную восприимчивость для процесса ВРМБ в протяженной среде (оптической ячейке) [17].

Как видно из полученного выражения, специфика формирования вынужденного рассеяния на акустических волнах в сферической частице заключается во взаимовлиянии пространственных структур взаимодействующих полей накачки, акустической и рассеянной волн. Интегральный коэффициент K_{nlm} , введенный выражением (19), учитывает это взаимное влияние, и его значение существенно зависит от резонансных свойств частицы.

При вынужденном рассеянии в протяженной среде система собственных функций $\mathbf{E}_{nlm}(\mathbf{r})$ и $\Pi_{nlm}(\mathbf{r})$ заменяется плоскими волнами, причем суммирование по индексам исчезает [15]:

$$\mathbf{E}_{nlm}(\mathbf{r})|_L \sim e^{-i(\mathbf{k}_L \mathbf{r})}; \quad \mathbf{E}_{nlm}(\mathbf{r})|_s \sim e^{-i(\mathbf{k}_s \mathbf{r})}; \quad \Pi_{nlm}(\mathbf{r}) \sim e^{-i(\mathbf{k}_{ac} \mathbf{r})}.$$

При встречном ВРМБ: $K_{nlm} \sim e^{-i(\mathbf{k}_L - \mathbf{k}_s - \mathbf{k}_{ac}) \mathbf{r}} = 1$.

Конкретные численные расчеты коэффициента K_{nlm} выходят за рамки данной работы. Планируется представить их в последующих публикациях.

Пороговые значения I_t для процессов ВКР и ВРМБ в водных каплях различного радиуса (показатель поглощения $\kappa_a = 10^{-8}$), рассчитанные для наиболее высокодобротных резонансных мод по (14), приведены на рис. 6.

Здесь также показан порог оптического пробоя водных капель [9]. Для ВРМБ рассмотрены три ситуации: один резонанс (только для стоксовой волны

$\Delta\omega/\Gamma \geq 0,5$), «двойной резонанс» (одновременно для волны накачки и рассеянной волны $\Delta\omega/\Gamma \sim 10^{-2}$) и «тройной резонанс» (для накачки, рассеянной и акустической волн). В последнем случае величина пороговой интенсивности ВРМБ имеет аномально низкое значение вследствие того, что наводимая излучением накачки акустическая волна попадает в один из акустических резонансов частицы, приводя к резкому увеличению амплитуды возмущений диэлектрической проницаемости среды и соответственно нелинейной поляризации. Подобный «тройной резонанс» крайне редок и, видимо, может быть получен только при одновременном лазерном и акустическом возбуждении капли с соответствующими частотами [12].

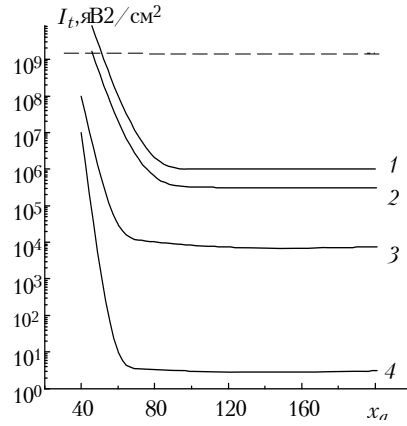


Рис. 6. Теоретическая зависимость пороговой интенсивности ВКР (1) и ВРМБ (2 – 4) в водных каплях различного размера [22]: «одинарный» (1, 2), «двойной» (3) и «тройной резонанс» ВРМБ (4) [12]. Штриховая прямая – порог оптического пробоя капель воды [9]

Из рис. 6 видно, что пороговая интенсивность ВРМБ ниже пороговой интенсивности ВКР. Это связано, как было отмечено выше, с более высоким значением коэффициента усиления ВРМБ ($g_s \approx 5 \cdot 10^{-3}$ см/МВт по сравнению с соответствующим коэффициентом для ВКР $g_s \approx 10^{-3}$ см/МВт [18]). Что касается зависимости I_t от радиуса капель, то из рисунка следует, что пороговая интенсивность резко возрастает при уменьшении размера капель вследствие аналогичного падения радиационной добротности для малых частиц. При $x_a \geq 100$ значение I_t практически перестает зависеть от радиуса жидких частиц из-за ограничения роста добротности резонансов потерями, связанными с поглощением в жидкости. Для частиц среднего размера ($x_a \leq 40$) оптический пробой, возникающий внутри частиц, может препятствовать возникновению эффектов вынужденного рассеяния света.

5. Заключение

Кратко сформулируем основные результаты исследований. Установлено, что существенное влияние на пороговые характеристики процессов вынужденного рассеяния света, возникающих в прозрачных

микрочастицах, оказывают их резонансные свойства, а именно добротность и ширина резонансного контура. Исследования показали, что величина коэффициента перекрытия взаимодействующих оптических полей накачки и ВРМБ внутри частицы V_c , определяющего величину пороговой интенсивности ВРМБ, зависит от того, насколько точно соответствуют друг другу их пространственные профили. При этом значения V_c существенно увеличиваются в случае, когда частотное смещение между волнами накачки и ВРМБ меньше полуширины линии собственного резонанса частицы, т.е. $\Delta\omega < \Gamma$ («двойной резонанс»). Увеличение размера частицы приводит к возбуждению более высокодобротных приповерхностных мод, а следовательно, к уменьшению Γ . Условие «двойного резонанса» нарушается ($\Delta\omega > \Gamma$), и значения коэффициента V_c падают.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований, грант РФФИ N 97-02-16302.

1. Serpenguzer A.S., Swindal J.C., Chang R.K., Acker W.P. // Appl. Opt. 1992. V. 31. N 18. P. 3543–3551.
2. Zhang J.-Z., Chen G., Chang R.K. // J. Opt. Soc. Am. B. 1990. V. 7. N 1. P. 108–115.
3. Qian S.-H., Snow J.B., Chang R.K. // Opt. Lett. 1985. V. 10. N 10. P. 499–501.
4. Chang R.K., Qian S.-H., Eickmans J. // Proceedings of the Methods of Laser Spectroscopy Symposium. Israel. 1985. P. 1–10.

5. Snow J.B., Qian S.-H., Chang R.K. // Opt. News. 1986. V. 12. N 5. P. 5–7.
6. Zhang J.-Z., Leach D.H., Chang R.K. // Opt. Lett. 1988. V. 13. N 4. P. 270–272.
7. Tzeng H.-M., Long M.B., Chang R.K., Barber P.W. // SPIE. 1985. V. 573. P. 80–83.
8. Qian S.-H., Chang R.K. // Phys. Rev. Lett. 1986. V. 56. N 9. P. 926–929.
9. Pinnick R.G., Biswas A., Pendleton J., Armstrong R.L. // Appl. Opt. 1992. V. 31. N 3. P. 311–317.
10. Гейнц Ю.Э., Землянов А.А., Чистякова Е.К. // Деп. в ВИНТИ. N 76-B97 от 10.01.97.
11. Белокопытов Г.В., Пушечкин Н.П. // Письма в ЖТФ. 1991. Т. 17. Вып. 22. С. 71–75.
12. Белокопытов Г.В., Пушечкин Н.П. // Известия вузов. Радиофизика. 1992. Т. 35. N 6,7. С. 498–509.
13. Zhang J.-Z., Chang R.K. // J. Opt. Soc. Am. B. 1989. V. 6. N 27. P. 151–153.
14. Serpenguzer A.S., Chen G., Chang R.K. // J. Opt. Soc. Am. B. 1992. V. 9. N 6. P. 871–883.
15. Cantrell C.D. // J. Opt. Soc. Am. B. 1991. V. 8. N 10. P. 2158–2180.
16. Khaled E.M., Hill S.C. // IEEE Transactions on antennas and propagation. 1993. V. 41. N 3. P. 295–303.
17. Кузьмин В.В. // Нелинейная оптика и молекулярное рассеяние света. Труды ФИАН. М.: Наука, 1991. 152 с.
18. Шен И.П. Принципы нелинейной оптики. М.: Наука, 1989. 557 с.
19. Гейнц Ю.Э., Землянов А.А. // Оптика атмосферы и океана. 1996. Т. 9. N 10. С. 1345–1352.
20. Ландау Л.Д., Лифишиц Е.М. Электродинамика сплошных сред. М.: Гостехиздат. 1957. 266 с.
21. Kaiser T., Lange S., Schweiger G. // Appl. Opt. 1994. V. 33. P. 7789–7797.
22. Гейнц Ю.Э., Землянов А.А. // Оптика атмосферы и океана. 1997. Т. 10. N 4–5. С. 500–515.
23. Борен К., Хафмен Д. Поглощение и рассеяние света малыми частицами. М.: Мир, 1986. 662 с.

Институт оптики атмосферы СО РАН,
Томск

Поступила в редакцию
26 августа 1997 г.

Yu.E. Geints, A.A. Zemlyanov, E.K. Chistyakova. **Influence of Resonance Properties of Transparent Particles on Threshold Magnitude of Stimulated Brillouin Scattering.**

Effect of Stimulated Brillouin Scattering (SBS) in transparent spherical microparticles is treated theoretically. The resonance properties of the particles (Q -factor and the width of the resonance contour) are found to influence significantly on the threshold characteristics of the SBS process. The overlapping coefficient of interacting optical pumping field and the SBS inside a particle, determining the magnitude of the SBS threshold intensity, is computed numerically. The magnitude of the coefficient is shown to depend on the accuracy of correspondence of the interacting fields spatial profiles.