

Асимптотические оценки пороговой мощности лазерного возбуждения температурной неустойчивости для высокодобротных резонансных мод в каплях водного аэрозоля

М.В. Журавлев*

Тель-Авивский университет, факультет точных наук, Израиль

Поступила в редакцию 10.07.2008 г.

Рассчитаны пороговые мощности для температурной колебательной неустойчивости как функции параметра дифракции и длины волны лазерной накачки для высокодобротных капель водного аэрозоля. Интегральные коэффициенты перекрытия температурных и электромагнитных мод оценивались асимптотическими методами. Найдено, что величина пороговой мощности температурной неустойчивости по порядку величины сравнима с пороговой мощностью вынужденного комбинационного рассеяния и тепловой неустойчивости в сферических резонаторах из плавленого кварца и составляет 0,1 мВт на длине волны накачки $\lambda_p = 0,532$ мкм для радиуса капли 5,3 мкм. Измерения и оценки пороговой мощности имеют прикладное значение как дополнительный способ дистанционного измерения температуры и контроля скорости испарения-конденсации капли, содержащей фотоактивные примеси — красители и полимерные наночастицы, по сдвигу собственных частот в спектре вынужденного комбинационного рассеяния и лазерной генерации.

Ключевые слова: пороговая мощность, нелинейные эффекты, водный аэрозоль.

Введение

Аэрозольные капли воды микронного размера, взвешенные в атмосфере, представляют собой высокодобротные резонаторы оптического диапазона, в которых наблюдалось большое количество вынужденных нелинейных эффектов, таких как вынужденное комбинационное (рамановское) рассеяние [1–3] (ВКР), вынужденное рассеяние Манделъштама — Бриллюэна [4] (ВРМБ) и лазерная генерация [5]. В условиях входного и выходного резонанса в аэрозольных каплях возбуждаются поверхностные моды, подобные акустическим поверхностным модам типа «Моды шепчущей галереи» (ШГ). Добротность мод ШГ весьма велика и составляет $Q = 10^6$, что обуславливает время жизни фотона $\tau \approx Q^{-1}$ и благодаря большому числу фотонов в эффективном объеме моды является достаточным для проявления нелинейных эффектов [1]. При этом пороговая мощность проявления нелинейных эффектов может значительно снижаться как в условиях входного резонанса, так и при проявлении существенного нелинейного эффекта — взаимодействия мод, при этом происходит увеличение интегрального коэффициента перекрытия взаимодействующих мод [6, 7]. В экспериментах по лазерной генерации в сферических каплях этанола радиуса 45 мкм на длине волны

накачки 0,532 мкм пороговая мощность составила 20,1 Вт [8].

Поглощенная мощность лазерной накачки в условиях входного резонанса изменяет собственные частоты сферы вследствие нагрева эффективного объема локализации моды ШГ. При этом происходит сдвиг собственных частот — температурная расстройка за счет линейной температурной зависимости коэффициента диэлектрической проницаемости вещества капли [9]. В условиях эффективного теплоотвода, которые реализуются в поверхностном слое капли (слой Кнудсена), при достижении накачкой специфической пороговой мощности и в оптимальных условиях настройки внутреннее электромагнитное поле может значительно увеличиваться и в объеме мод ШГ образуется эффективная тепловая обратная связь, которая ведет к периодическому сдвигу собственных частот капли, к неустойчивости или температурной модуляции спектра рассеянной мощности [10], к бистабильности [11], а также к прыжкам температуры капли [9]. Весьма низкая пороговая мощность тепловой бистабильности 0,51 мВт была зафиксирована в каплях водного аэрозоля в интервале радиусов 6,7–9 мкм на длине волны накачки 0,581 мкм [11].

Большая добротность мод ШГ обеспечивает понижение пороговой мощности возбуждения температурной неустойчивости (ТН) в аэрозольных каплях. ТН была экспериментально зафиксирована в линейном спектре рассеяния (рассеяние по теории Ми)

* Михаил Владиславович Журавлев (joravl@rambler.ru).

в сферических квацевых резонаторах из плавленного кварца, лежащего на поверхности призмы. В них возбуждение мод ШГ обеспечивала поверхностная волна полного внутреннего отражения призмы [12].

Цель настоящего исследования заключалась в оценке пороговой мощности для лазерного возбуждения ТН в аэрозольных каплях. Для этого была использована система уравнений колебаний для амплитуд электромагнитных парциальных волн TE_n^1 и температурного релаксатора $T_n^{0,1}$ [10]. В представленные в работах [10, 13] цепочки уравнений колебаний включены интегральные коэффициенты перекрытия мод, как это сделано в работе [1], при этом они могут описывать многочисленные режимы колебаний (апериодические колебания, бистабильность, модуляцию) в зависимости от величины интегральных коэффициентов перекрытия мод.

Цепочки уравнений колебаний были получены для двухмодового режима взаимодействия: одна мода накачки (с частотой ω_p) в условиях входного резонанса и другая – сигнальная – мода (с частотой ω_s) совпадают с одной из собственных частот капли и одна температурная мода T_n с частотой Ω_T . Частотной ширины моды температурного релаксатора достаточно, чтобы покрыть несколько резонансных пиков для выполнения частотного синхронизма $\omega_p = \omega_f \pm \Omega_T$. Таким образом, амплитуды парциальных мод капли оказываются промодулированы по частоте температурных осцилляций капли Ω_T . В случае двухмодового взаимодействия (температурная мода T_1^1 и мода ШГ TE_n^1), применяя метод медленноменяющихся амплитуд и условие устойчивости по Ляпунову к системе уравнений колебаний для пороговой мощности, имеем [10, 13]:

$$P_{th} = \frac{\omega_p \rho C_p V}{2a_\varepsilon Q_f^2} G(\tau, \gamma) F(\eta), \quad (1)$$

где функция перекрытия мод имеет вид

$$G(\tau, \gamma) = \frac{1 + \tau}{1 \pm \gamma}, \quad (2)$$

а функция настройки –

$$F(\eta) = \frac{1 + \eta^2}{2\eta}; \quad (3)$$

коэффициент перекрытия температурной и электромагнитной моды

$$\gamma = \frac{3\pi\chi^{(3)}\varepsilon^2\rho C_p}{\omega_p a_\varepsilon}; \quad (4)$$

отношение времен тепловой и электромагнитной релаксации

$$\tau = \frac{2KQ_f}{\rho C_p \omega_p} \left(\frac{\mu_i}{R} \right)^2. \quad (5)$$

Здесь ω_p – частота лазерной накачки; ρ – плотность вещества капли; C_p – удельная теплоемкость; K – коэффициент теплопроводности; a_ε – температурный

коэффициент диэлектрической проницаемости; Q_f – добротность моды с номером f ; $\chi^{(3)}$ – коэффициент кубической диэлектрической нелинейности; ε – диэлектрическая проницаемость; R – радиус капли; V – объем капли (для более точного приближения это V_{eff} – эффективный объем моды ШГ [13]:

$$V_{eff} = \frac{\lambda_p^3}{4} \left(\frac{e}{\pi} \right)^{1/2} \left(\frac{f}{\varepsilon} \right)^{3/2};$$

λ_p – длина волны лазерной накачки); μ_i – корень трансцендентного уравнения, получаемого из граничного условия третьего рода для уравнения теплопроводности на сфере [14].

В первом приближении, опуская зависимость интегрального коэффициента перекрытия мод γ и зависимость отношения времени температурной и электромагнитной релаксации τ от материальных параметров, для пороговой мощности имеем

$$P_{th} = \frac{\omega_p \rho C_p V}{2a_\varepsilon Q_f^2}. \quad (6)$$

Температурная комбинационная частота имеет вид [14]:

$$\Omega_T = \omega_p \left[\frac{\xi_f^2/4 + \xi_0^2/4}{1 - \gamma} - \tau_i^2 \right]^{1/2}, \quad (7)$$

где $\eta = \xi_f/\xi_0$, $\xi_f = 1 - \omega_f^2/\omega_p^2$, $\xi_0 = 2(\tau_i + \tau_e)$ – оптимальная расстройка, $\tau_i = K(\mu_i/R)^2\rho/C_p\omega_p$ и $\tau_e = 1/2Q_f$ – безразмерные времена тепловой и электрической релаксации. В формулу пороговой мощности входит также добротность мод капли, которая вычислялась для каждой моды капли с номером f :

$$Q_f^{-1} = (Q_{scat}^{-1} + Q_{abs}^{-1})_f, \quad (8)$$

где Q_{scat} и Q_{abs} – добротности рассеяния и поглощения в моде с номером f [1].

Наиболее оптимальные условия для наблюдения ТН реализуются в каплях раствора воды с этанолом сферической формы с добавлением красителей (родамин, crystal violet). Вычисленные пороговые мощности и тепловая комбинационная частота ТН представлены ниже на рис. 1, 2.

Вычисления производились с использованием следующих материальных констант: плотность $\rho = 1 \text{ г/см}^3$, $C_p = 4,18 \text{ Дж/(г} \cdot \text{К)}$, $K = 5,8 \cdot 10^{-3} \text{ Вт/(см} \cdot \text{К)}$, $a_\varepsilon = 1,2 \cdot 10^{-4} \text{ К}^{-1}$ [9], $\chi^{(3)} = 5 \cdot 10^{-15}$, $n = \varepsilon^{1/2}$, $n = 1,33$. Пороговая мощность была рассчитана с учетом следующих допущений:

1) эффективное поглощение теплоты в резонансе и полное геометрическое перекрытие температурной и электромагнитной моды. Коэффициент перекрытия мод γ оценен с помощью неравенства Коши – Буяковского;

2) условия на границе аэрозольной капли, обеспечивающие эффективный теплоотвод (граничное условие для уравнения теплопроводности третьего рода);

3) высокие добротности мод ШГ $Q_f = 10^6$ [1], обеспечивающие линейную зависимость диэлектрических потерь.

Формулы (1)–(5) имеют оценочный характер и могут быть использованы для расчетов пороговой мощности в интервале радиусов от 1 до 10 мкм в видимом диапазоне лазерной накачки. Мощность потерь на излучение и поглощение в диэлектрике зависит от мощности лазерной накачки в эффективном объеме моды, при этом происходит рост энтропии системы за счет температурной зависимости коэффициента показателя преломления капли. Эта зависимость исчезает, если капля теряет свои резонансные свойства.

На рис. 1 представлена пороговая мощность температурной неустойчивости, рассчитанная при оптимальной расстройке ξ_0 как функция длины волны лазерной накачки λ_p .

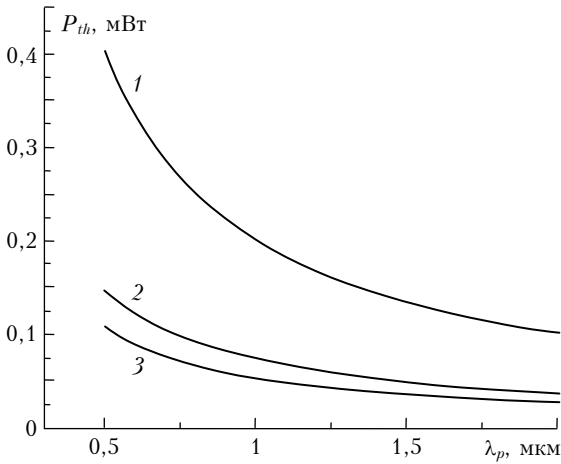


Рис. 1. Пороговая мощность ТН в зависимости от длины волны лазерной накачки. Радиус микрокапель $R = 9$ (1), 6 (2) и 5,3 мкм (3), $TE_n^1 - T_1^1$, $n \approx \rho$

Взаимодействующие электромагнитные моды E_n^1 соответствуют модам ШГ $n \approx \rho$, где $\rho = 2\pi R/\lambda_p$. Оптимальные условия настройки $\xi_0 \approx \xi_f$ обеспечивают минимум падающей мощности лазерной накачки для каждой возбужденной моды. Каждая линия — это минимум пороговой мощности, достигаемой при настройке соответствующей моды $E_n^1 - T_1^1$ в резонанс при определенном резонансном значении радиуса капли R . Так, например, минимум пороговой мощности на длине волны накачки $\lambda_p = 0,532$ мкм составляет 0,1 мВт и достигается для радиуса капли 5,3 мкм при возбуждении моды $TE_{60}^1 - T_1^1$, номер моды $n \approx \rho$. Данное значение по порядку величины совпадает с экспериментальными значениями из работы [11].

На рис. 2 показана комбинационная тепловая частота Ω_T в зависимости от частотной расстройки.

Оценки показывают, что тепловая комбинационная частота Ω_T составляет порядка 6,5 МГц для капель $2 \text{ мкм} \leq R \leq 10 \text{ мкм}$ (взвешенный в атмосфере аэрозоль) в режиме накачки $\tau_p \gg \tau_t \gg \tau_e$, где τ_p — длительность импульса накачки, а для капель $R = 9$ мкм лежит в интервале 6,1–6,2 МГц. Для

капель микронных размеров тепловой механизм неустойчивости становится важным при длительности импульса накачки τ_p от порядка τ_t до нескольких десятков микросекунд.

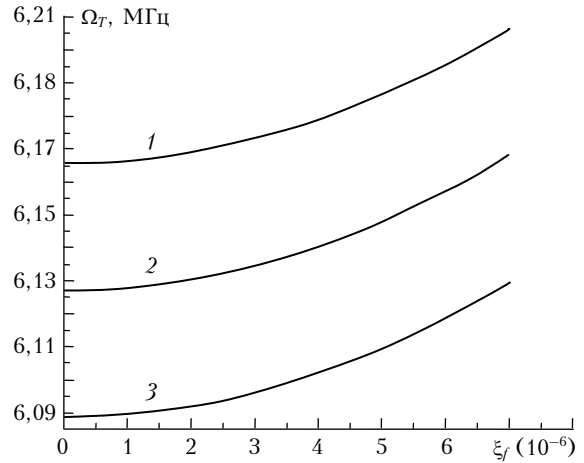


Рис. 2. Зависимость тепловой комбинационной частоты ТН от функции расстройки. Радиус капель $R = 9$ мкм; $\lambda_p = 0,532$ мкм, $TE_{120}^1 - T_1^0$ (1); $\lambda_p = 0,840$ мкм, $TE_{75}^1 - T_1^0$ (2); $\lambda_p = 1,55$ мкм, $TE_{39}^1 - T_1^0$ (3)

В данном случае температурная модуляция будет иметь место в спектрах ВРМБ и ВКР, а также при лазерной генерации. Тепловая комбинационная частота может варьироваться в широких пределах в зависимости от параметров расстройки, материальных параметров и условий теплоотвода. Варьирование тепловой комбинационной частоты в широких пределах обуславливается свойствами микрорезонатора, каким и является аэрозольная капля, поэтому тепловая комбинационная частота лежит в широком интервале частот от частоты температурного рассеяния Рэля до комбинационной частоты ВРМБ.

Для сравнения с известными данными была оценена пороговая мощность возбуждения ТН P_{th} для микрокапель с радиусом $R = 2,5$ мкм (аэрозольная взвесь) на длине волны накачки $\lambda_p = 1,55$ мкм при возбуждении следующих комбинаций мод: $P_{th} = 0,1$ ($TE_{39}^1 - T_1^0$), 0,3 ($TE_{23}^1 - T_1^0$) и 1,5 мВт ($TE_{17}^1 - T_1^0$). Рассчитанные величины пороговой мощности возбуждения ТН весьма малы и меньше, чем пороговая мощность возбуждения ВРМБ, которая составляет $0,1-10^2$ Вт [15].

При возбуждении ТН коэффициент усиления ВКР будет зависеть от температурной моды и промодулирован по частоте Ω_T , лежащей в интервале 2,5–10 МГц. Экспериментально коэффициент перекрытия температурной и электромагнитных мод γ может быть увеличен добавлением в каплю красителей и дополнительных примесей-поглотителей, таких как латексные или полистироловые (PS, PMMA) наночастицы, при этом пороговая мощность возбуждения ТН будет резко снижаться.

Собственные частоты капли в спектре ВКР и лазерной генерации будут зависеть от концентрации химических примесей и иметь сдвиг в зависимости

от изменения температуры капли, поэтому наблюдение сдвига собственных частот капли является весьма информативным инструментом для измерения концентрации примесей и температуры капли, а также скорости полимеризации и испарения/конденсации на поверхности капли. Рассчитанные пороговые мощности ТН являются привлекательными для экспериментального наблюдения, поскольку они меньше по порядку или сравнимы с пороговой мощностью ВКР [1–3] и лазерной генерации [5], а также бистабильности [9, 11].

Следовательно, необходимо принимать во внимание лазерное возбуждение ТН в экспериментах с каплями аэрозоля и дополнить систему уравнений для ВКР [1] уравнениями температурных колебаний [10, 12, 14] для получения полного теоретического описания конкуренции мод. Однако вопрос о совместном наблюдении и теоретическом описании ТН в эффектах ВКР, ВРМБ, лазерной генерации для капель аэрозоля еще остается открытым.

1. *Zemlyanov A.A., Geints Y.E.* Stimulated Raman scattering in a spherical microparticle // *J. Opt. Soc. Amer. B.* 2003. V. 20. P. 2492–2501.
2. *Judith S., Qian S.-X., Chang R.* Stimulated Raman scattering from individual water and ethanol droplets at morphology-dependent resonances // *Opt. Lett.* 1985. V. 10. P. 37–40.
3. *Chen G., Acker W.P., Chang R.K., Hill S.C.* Fine structures in the stimulated Raman scattering from single droplets // *Opt. Lett.* 1991. V. 16. P. 117–119.
4. *Zhang J.-Z., Chen G., Chang R.K.* Pumping of stimulated Raman scattering by stimulated Brillouin scattering within a single liquid droplet: input laser linewidth effects // *J. Opt. Soc. Amer. B.* 1990. V. 7. P. 108–115.

5. *Tzang H.-M., Wall K.F., Long M.B., Chang R.K.* Laser emission from individual droplets at wavelengths corresponding to morphology-dependent resonances // *Opt. Lett.* 1984. V. 9. P. 499–501.
6. *Kurizki G., Nitzan A.* Theory of stimulated emission processes in spherical microparticles // *Phys. Rev. A.* 1988. V. 38. P. 267–271.
7. *Braunstein D., Khazanov A.M., Koganov G.A., Shuker R.* Lowering of threshold conditions for nonlinear effects in a microsphere // *Phys. Rev. A.* 1996. V. 53. P. 3565–3572.
8. *Lin H.-B., Huston A.L., Justus B.J., Campillo A.J.* Some characteristics of a droplet whispering gallery mode laser // *Opt. Lett.* 1986. V. 11. P. 614–616.
9. *Popp J., Lankers M., Schaschek K., Kiefer W., Hodges J.T.* // *Appl. Opt.* 1995. V. 34. N 13. P. 2380–2386.
10. *Белокопытов Г.В.* Электротепловая неустойчивость колебаний в температурно-чувствительных резонансных системах // *Вестн. МГУ. Сер. 3.* 1997. № 3. С. 11–15.
11. *Arnold S., Leung K.M., Pluchino A.* Optical bistability of an aerosol particle // *Opt. Lett.* 1986. V. 11. P. 800–802.
12. *Fomin A.E., Gorodetsky M.L., Grudin I.S., Ilchenko V.S.* Nonstationary nonlinear effects in optical microspheres // *J. Opt. Soc. Amer. B.* 2005. V. 22. P. 459–465.
13. *Braginsky V.B., Gorodetsky M.L., Ilchenko V.S.* Quality-factor and nonlinear properties of optical whispering-gallery modes // *Phys. Lett. A.* 1989. V. 137. P. 393–397.
14. *Белокопытов Г.В., Журавлев М.В.* Электротепловая колебательная неустойчивость в сегнетоэлектрических резонаторах // *Изв. вузов. Радиофиз.* 2000. Т. XLIII. № 2. С. 162–173.
15. *Белокопытов Г.В., Пушечкин Н.П.* Резонансное стрикционное параметрическое возбуждение акустических колебаний в каплях // *Письма в ЖТФ.* 1991. Т. 17. Вып. 22. С. 71–75.

M.V. Zhuravlev. Asymptotic estimation of power threshold of laser induced temperature instability in high Q-factor resonance modes in water aerosol droplets.

Laser induced temperature instability power thresholds have been calculated as the function of size parameter and laser pump frequency for high Q-factor aerosol droplets. The thermal coupling coefficients of thermal and electromagnetic modes are estimated by asymptotic methods. The power threshold is comparable with the experiments of Raman lasing and the thermal instability in the spherical silica particles. The threshold power is an application for the remote measurement of the temperature of aerosol droplets and temperature deviations, as well as an additional tool for precisely measuring the thermal conductivity, the heat capacity and the rate of evaporation of aerosol droplet by calculating the thermal shifts of eigenfrequencies in the spectra of nonlinear Raman scattering or lasing.