

А.А. Землянов, Ю.Э. Гейнц

ВЫНУЖДЕННОЕ РАССЕЯНИЕ СВЕТА СФЕРИЧЕСКИМИ ЧАСТИЦАМИ

Рассмотрены эффекты вынужденного рассеяния света в прозрачных сферических частицах (вынужденное комбинационное рассеяние, вынужденное рассеяние Манделштама–Бриллюэна, вынужденная флюоресценция), связанных с усилением волны спонтанного рассеяния резонансными модами внутреннего оптического поля частицы. Данные явления рассмотрены с единых физических позиций, теоретически установлены их общие закономерности, обсуждаются пороговые и угловые характеристики вынужденного рассеяния.

Теоретически исследованы эффекты комбинационного рассеяния света на поверхностных волнах жидких частиц, вызванных пондеромоторными силами светового поля. Рассмотрена угловая структура поля рассеянной волны.

Введение

Нелинейно-оптические эффекты вынужденного рассеяния света (ВР) в слабо поглощающих сплошных средах (вынужденное комбинационное рассеяние (ВКР), вынужденное рассеяние Манделштама–Бриллюэна (ВРМБ)) известны в научной литературе достаточно давно. Однако только в последнее время было обнаружено, что для вещества, находящегося в дисперсном состоянии, проявление данных эффектов имеет свои характерные особенности [1–5]. Так, спектральная форма сигнала ВКР носит «пичковый» характер в пределах рамановского контура; происходит запаздывание сигнала ВКР относительно импульса накачки [1, 4]; наблюдается снижение энергетических порогов ВКР, ВРМБ по сравнению со сплошной средой [3]. Основной предпосылкой возникновения нелинейно-оптических эффектов ВКР, ВРМБ, а также вынужденной флюоресценции (ВФ) в микронных частицах является наличие в них резонансов внутреннего оптического поля [1]. Эти резонансы наблюдаются при определенных значениях параметра дифракции частицы $x_a = 2\pi a_0/\lambda$, $x_a \gg 1$ (где a_0 – радиус капли, λ – длина волны лазерного излучения) и характеризуются порядком и номером моды парциальной электромагнитной волны, собственно и давшей резонанс.

Немаловажную роль в возникновении эффектов ВР играет также способность прозрачных частиц фокусировать световое поле во внутренних областях. Вблизи теневой и освещенной поверхностей внутри частицы формируются два максимума электромагнитного поля, которые являются мощными источниками спонтанного стокового излучения (стокового шума).

За счет действия пондеромоторных сил светового поля возникают деформации и колебания жидких частиц [6, 17–19]. Эти колебания вызывают комбинационное рассеяние падающей на частицу световой волны [21].

Все эти нелинейные эффекты, имея различную физическую природу своего возникновения, проявляют общность в том, что они существенно определяются пространственной структурой внутреннего оптического поля вблизи поверхности частицы и, таким образом, являются эффектами поверхностного нелинейного рассеяния.

подавляющее большинство публикаций по рассматриваемой тематике носит экспериментальный характер. Существует ряд теоретических работ, где изложены модели отдельных эффектов ВР в частицах [1, 4, 11, 13, 21].

Целью настоящей работы является теоретическое исследование широкого класса нелинейных эффектов комбинационного рассеяния света прозрачными частицами. Мы делаем попытку заполнить пробел, имеющийся в теории нелинейно-оптических взаимодействий в дисперсных средах, связанный с важной для атмосферно-оптических исследований проблемой вынужденного рассеяния света малыми частицами.

1. Резонансы оптического поля в слабопоглощающих частицах

Из теории дифракции электромагнитной волны на диэлектрической сфере (теория Ми) известно, что при $x_a \gg 1$ внутреннее оптическое поле в ней характеризуется наличием множе-

ства пичков с перепадом интенсивности в $\sim 10-100$ раз [7]. При этом максимальные значения внутреннего оптического поля достигаются вблизи поверхности сферы. Однако, как показали исследования, при совершенно определенных, фиксированных значениях радиуса частицы внутреннее оптическое поле может многократно усиливаться, особенно в областях максимумов (в 10^4-10^6 раз) [1]. Подобный эффект получил название резонансов внутреннего оптического поля и рассматривается как собственные колебательные (резонансные) моды сферической частицы. Наличие резонансов внутреннего оптического поля, которое следует непосредственно из теории Ми, также было обнаружено экспериментально по наличию пичков в спектре рассеяния [8].

Решение задачи о дифракции плоской электромагнитной волны на сфере имеет вид, определяющий поле внутри нее в виде ряда по сферическим гармоникам [9]:

$$\mathbf{E}(r, \theta, \varphi) = \frac{E_0}{2kr} \sum_{n=1}^{\infty} \sum_{l=-n}^n (-i)^{n+1} [b_n(x_a) \mathbf{M}_n(\theta, \varphi) \psi_n(kr) + \frac{1}{k} c_n(x_a) \nabla [\mathbf{M}_n(\theta, \varphi) \psi_n(kr)]] + \text{к.с.} \quad (1)$$

Амплитуды парциальных гармоник (коэффициенты Ми) определяются выражениями

$$b_n = i^n \frac{2n+1}{n(n+1)} \frac{-m}{\xi'_n(x_a) \psi_n(mx_a) - m \xi_n(x_a) \psi'_n(mx_a)},$$

$$c_n = i^n \frac{2n+1}{n(n+1)} \frac{m}{\xi_n(x_a) \psi'_n(mx_a) - m \xi'_n(x_a) \psi_n(mx_a)},$$

где m – комплексный относительный показатель преломления; k – волновое число внутри частицы; r, θ, φ – сферические координаты; ψ_n, ξ_n – сферические функции Бесселя; $\mathbf{M}_n(\theta, \varphi) = -\frac{i}{[n(n+1)]^{-1/2}} \mathbf{L} Y_n(\theta, \varphi)$ – сферические вектор-гармоники; $Y_n(\theta, \varphi)$ – сферические функции; $\mathbf{L} = -i \mathbf{r} \times \nabla = -i \left[\boldsymbol{\theta} \frac{1}{\sin\theta} \frac{\partial}{\partial\theta} - \boldsymbol{\varphi} \frac{\partial}{\partial\varphi} \right]$ – оператор углового момента; $E_0 = |\mathbf{E}_0|$; \mathbf{E}_0 – амплитуда электрического поля падающей на частицу световой волны. Штрихи означают производные по аргументу, указанному под знаком функции.

Собственные резонансы электромагнитного поля в частице связаны с минимумами знаменателей в выражениях для c_n и b_n , а их местоположение определяется только величинами $m = m_a/m_0$ ($m_a = n_a + i \kappa_a$ – комплексный показатель преломления вещества частицы; m_0 – для непоглощающей окружающей среды) и x_a . Таким образом, для поиска резонансов необходимо определить положение минимумов по шкале x_a в знаменателях c_n и b_n [10]. Отклонение формы частицы от идеальной сферы приводит к расщеплению каждой резонансной моды на мультиплет, состоящий из $(2n+1)$ линий, и как следствие, к резкому ухудшению резонансных свойств [11].

В общем случае добротность n -й резонансной моды порядка l может быть записана как

$$Q_{nl} = 2\pi\omega_s/(c D_{nl}),$$

где c – скорость света; D_{nl} – суммарный коэффициент потерь энергии в резонаторе; ω_s – частота электромагнитного поля в частице. В свою очередь

$$D_{nl} = D_{nl}^r + D_a,$$

где D_{nl}^r – радиационные потери (за счет выхода излучения через поверхность капли); D_a – потери излучения на поглощение в веществе частицы. Заметим, что для сферических частиц D_{nl}^r минимально, при отклонении же формы частицы от идеальной сферы значение D_{nl}^r возрастает.

Тогда для добротности сферического резонатора следует выражение

$$(Q_{nl})^{-1} = (Q_{nl}^r)^{-1} + (Q_a)^{-1},$$

где $Q_a = n_a^2 \omega_s/(\alpha c)$ ($\alpha = 4\pi\sigma/c$ – объемный коэффициент поглощения; σ – удельная проводимость вещества частицы); Q_{nl}^r – радиационная добротность.

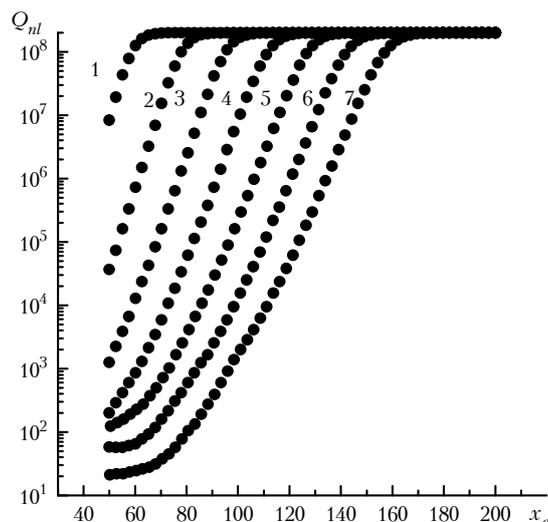


Рис. 1. Зависимость добротности Q_{nl} различных резонансов внутреннего оптического поля от параметра дифракции водных капель x_a . Цифры у кривых – номер порядка резонансов

На рис. 1 представлена зависимость суммарной добротности Q_{nl} от параметра дифракции частицы x_a для резонансных мод различных номеров и порядков (точки в пределах одной кривой – резонансы различных номеров). Как видно из рисунка, значения Q_{nl} сверху ограничены за счет поглощения световой волны в веществе частицы (при расчетах полагалось $\kappa_a = 10^{-8}$).

2. Теоретическая модель процессов вынужденного рассеяния света в сферических частицах

Рассмотрим коротко основные моменты теоретического описания процессов вынужденного рассеяния света в прозрачных частицах, вызванного либо спонтанным рассеянием на тепловых флуктуациях среды, либо эмиссией флюоресцирующих молекул, находящихся в частицах.

К настоящему времени в научной литературе сформировалась следующая физическая модель возникновения ВР в сферической частице [1].

При взаимодействии излучения с веществом прозрачной частицы в результате теплового движения молекул среды либо флюоресценции молекул возникает спонтанное неупругое рассеяние во всем ее объеме, однако в области фокусировки внутреннего оптического поля оно наиболее интенсивно. Часть волн из спектра спонтанного стокового излучения покидает каплю, а часть за счет полного внутреннего отражения распространяется вдоль ее поверхности. На своем пути эти волны ослабляются за счет поглощения и выхода излучения через поверхность, а также могут усиливаться за счет нелинейности среды. В случае, когда для какой-либо или каких-либо частот из стокового спектра выполняется условие резонанса, т.е. когда частота стоковой волны совпадает с частотой какой-либо из собственных резонансных мод капли, усиление спонтанной волны начинает превышать ее суммарные потери и в частице возникает вынужденное рассеяние. С точки зрения формирования полей в резонаторе поле ВР можно трактовать как стоячую волну, образованную суперпозицией электромагнитных волн, распространяющихся навстречу друг другу вдоль сферической поверхности капли при выполнении условия фазового синхронизма.

Анализ показывает, что, несмотря на различную физическую природу явлений, ответственных за возникновение того или иного процесса вынужденного рассеяния (ВКР, ВРМБ, ВФ), теория их, в целом, подобна. Это объясняется прежде всего тем, что все рассматриваемые здесь нелинейно-оптические эффекты являются по сути своей резонансными процессами в том смысле, что сам факт их возникновения в частице связан с ее резонансными свойствами. Поэтому пороговые, угловые, а также и спектральные характеристики всех типов вынужденных рассеяний в частице несут на себе «отпечаток» резонансной структуры внутренних полей.

Исходными уравнениями для теоретического анализа процессов нелинейного рассеяния в частице (магнитная проницаемость $\mu_a = 1$) являются неоднородные уравнения Максвелла, в

которых нелинейная часть поляризации среды $\mathbf{P}(\mathbf{r}, t)$, наведенная полем накачки, служит источником поля комбинационно рассеяной волны:

$$\text{rot } \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = -\frac{1}{c} \frac{\partial \mathbf{H}(\mathbf{r}, t)}{\partial t}; \quad \text{div } \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = 0;$$

$$\text{rot } \mathbf{H}(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{c} \frac{\partial}{\partial t} [\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) + 4\pi \mathbf{P}(\mathbf{r}, t)] + \frac{4\pi\sigma}{c} \mathbf{E}(\mathbf{r}, t); \quad \text{div } \mathbf{H}(\mathbf{r}, t) = 0.$$

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

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

Уравнение для поля (2) дополняется уравнениями, описывающими конкретный физический механизм возникновения нелинейно рассеянной волны. Так, для процесса ВКР – это волновое уравнение для нелинейной поляризации и кинетическое уравнение для разности населенностей уровней «рабочего» перехода молекулы вещества частицы:

$$\frac{\partial^2 \mathbf{P}(\mathbf{r}, t)}{\partial t^2} + \frac{2}{T_2} \frac{\partial \mathbf{P}(\mathbf{r}, t)}{\partial t} + \omega_{vib}^2 \mathbf{P}(\mathbf{r}, t) = \frac{2 N_0 \omega_{vib} |\mu_{12}|}{3 \hbar} \Delta N \mathbf{E}(\mathbf{r}, t);$$

$$\frac{\partial(\Delta N)}{\partial t} + \frac{\Delta N - \Delta N_e}{T_1} = -\frac{2}{N_0 \hbar \omega_{vib}} \frac{\partial \mathbf{P}(\mathbf{r}, t)}{\partial t} \mathbf{E}(\mathbf{r}, t). \quad (3)$$

Здесь N_0 – концентрация молекул в веществе; ω_{vib} – частота колебательного перехода молекулы вещества; $|\mu_{12}|$ – дипольный матричный элемент; T_1, T_2 – времена продольной и поперечной релаксации соответственно; ΔN_e – равновесное значение разности населенностей; \hbar – постоянная Планка.

Для процесса вынужденной флюоресценции соответствующие уравнения имеют вид [20]

$$\frac{\partial^2 \mathbf{P}(\mathbf{r}, t)}{\partial t^2} + \frac{2}{T_2} \frac{\partial \mathbf{P}(\mathbf{r}, t)}{\partial t} + \left(\frac{1}{T_2} + \omega_f^2 \right) \mathbf{P}(\mathbf{r}, t) = -\frac{2 N_M \omega_f |\mu_{12}|}{3 \hbar} \Delta N \mathbf{E}(\mathbf{r}, t);$$

$$\frac{\partial \Delta N}{\partial t} = \frac{2 \mathbf{E}(\mathbf{r}, t)}{\hbar \omega_{vib} N_M} \left(\frac{\partial \mathbf{P}(\mathbf{r}, t)}{\partial t} + \frac{1}{T_2} \mathbf{P}(\mathbf{r}, t) \right) - D (\Delta N - \Delta N_e), \quad (4)$$

где N_M – концентрация «активных» молекул в веществе частицы; ω_f – частота флюоресценции молекул; D – фактор, пропорциональный вероятности вынужденных переходов в молекуле.

Для описания процесса ВРМБ необходимо использовать волновое уравнение для светового поля (2) совместно с уравнением для давления в среде $p(\mathbf{r}, t)$:

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

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 в жидкости; γ – константа электрострикции; ρ_a – плотность вещества частицы.

Дальнейшим является представление решения волнового уравнения для поля (2) в виде разложения по собственным электромагнитным колебательным модам частицы-резонатора $\mathbf{E}_n(\mathbf{r})$ с собственными частотами ω_{nl} :

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

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

$$\frac{d^2 A_{nl}(t)}{dt^2} + 4\pi\sigma_{ef} \frac{d A_{nl}(t)}{dt} + \omega_{nl}^2 A_{nl}(t) = -4\pi \int_{V_a} \mathbf{E}_n(\mathbf{r}') \frac{\partial^2 \mathbf{P}(\mathbf{r}', t)}{\partial t^2} d\mathbf{r}'. \quad (7)$$

Интегрирование в (7) ведется по объему частицы. Здесь введен коэффициент σ_{ef} , который по смыслу является эффективным поглощением, учитывающим потери световой волны не только за счет поглощения в веществе, но также и потери за счет выхода излучения из частицы-резонатора.

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

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

Решение (7) совместно с (3)–(5) 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, вид которых следует из решения Ми для задачи дифракции плоской электромагнитной волны на сфере (1):

$$\mathbf{E}_n(\mathbf{r}) = \begin{cases} b_n(x_a) \mathbf{M}_n(\mathbf{r}) \psi_n(kr) & \text{для ТЕ-волны,} \\ 1/k c_n(x_a) \nabla [\mathbf{M}_n(\mathbf{r}) \psi_n(kr)] & \text{для ТМ-волны.} \end{cases}$$

Функции $\Pi_{nlm}(\mathbf{r})$ при условии равенства нулю приращения давления на поверхности частицы (что является достаточно хорошим приближением при исследовании ВРМБ [11]) имеют вид

$$\Pi_{nlm}(\mathbf{r}) = C_{nm} \psi_n(\alpha_{nm} r/r_0) Y_{nl}(\theta, \varphi),$$

где C_{nm} – нормировочные константы; α_{nm} – m -й нуль сферической функции Бесселя ψ_n .

3. Энергетический порог возникновения вынужденного рассеяния при резонансах внутреннего оптического поля частиц

Как в любом нелинейном процессе, для вынужденного рассеяния в частицах существует некая пороговая интенсивность воздействующего излучения, ниже которой эффект уже не наблюдается. Величину этой пороговой интенсивности определим, исходя из интегральной формы закона сохранения электромагнитной энергии в облученной частице (на частоте рассеянной волны ω_s), который следует из уравнений Максвелла:

$$dW_s/dt = P_g - (P_a + P_r). \quad (8)$$

Здесь введены следующие обозначения:

$$W_s = \frac{1}{16\pi} \int_{V_a} (\varepsilon_a \mathbf{E}_s(\mathbf{r}, t) \mathbf{E}_s^*(\mathbf{r}, t) + \mathbf{H}_s(\mathbf{r}, t) \mathbf{H}_s^*(\mathbf{r}, t)) d\mathbf{r}' - \text{запасенная в объеме капли энергия электромагнитного поля за период колебания } T = 2\pi/\omega_0; \omega_0 - \text{частота падающего на частицу света;}$$

$$P_r = \frac{c}{8\pi} \int_{S_a} [\mathbf{E}_s(\mathbf{r}, t) \mathbf{H}_s(\mathbf{r}, t)] \mathbf{n}_r d\mathbf{o}' - \text{средняя за период } T \text{ мощность излучательных потерь через поверхность капли;}$$

$$P_a = \frac{S}{2} \int_{V_a} \mathbf{E}_S(\mathbf{r}, t) \mathbf{E}_S^*(\mathbf{r}, t) d\mathbf{r}' - \text{средняя мощность тепловых потерь внутри частицы};$$

$$P_g = - \left(\int_{V_a} \mathbf{E}_S(\mathbf{r}, t) \frac{\partial \mathbf{P}}{\partial t} d\mathbf{r}' \right)_T - \text{средняя мощность источников стоковой волны};$$

\mathbf{n}_r – внешняя нормаль к поверхности частицы; ε_a – диэлектрическая проницаемость вещества частицы.

Электрическое поле внутри частицы представлено в виде суммы квазимонохроматических полей:

$$2\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{E}_L(\mathbf{r}, t) e^{i\omega_0 t} + \mathbf{E}_S(\mathbf{r}, t) e^{i\omega_s t} + \text{к.с.},$$

где \mathbf{E}_L , \mathbf{E}_S – комплексные медленно меняющиеся амплитуды полей на частоте накачки и стокового излучения соответственно.

Введем понятие добротности резонатора (на частоте рассеянной волны) из соотношения

$$Q = \omega_s W_S / (P_a + P_r).$$

Условие наступления ВР определим как

$$dW_S/dt = 0.$$

Для пороговой интенсивности излучения накачки, выше которой возникает вынужденное рассеяние, получим

$$I_S = 2\pi n_a / (g_S Q_{nl} \lambda_S B_C). \quad (9)$$

Здесь λ_S – длина волны рассеянного света; g_S – коэффициент усиления соответствующего процесса вынужденного рассеяния; B_C – интегральный коэффициент, учитывающий пространственное перекрытие взаимодействующих полей внутри частицы [12]. Чем лучше данное перекрытие, тем ниже пороговые значения I_S .

Величина B_C зависит также и от того, находится ли накачивающее поле в резонансе. В случае соответствия частоты падающего поля частоте какой-либо резонансной моды частицы возникает так называемый «двойной резонанс» [3]. Это означает, что существует резонанс как для стоковой волны λ_S , так и для длины волны накачки λ_L . Заметим, что данная ситуация достаточно трудно реализуема из-за небольшой ширины линии резонансов частиц (для водных капель эта ширина порядка 3 см^{-1}). В наиболее частом случае одного резонанса величина коэффициента B_C лишь незначительно отличается от единицы во всем исследуемом диапазоне размеров частиц. Однако при «двойном резонансе» значения B_C резко возрастают, достигая для высокодобротных резонансов величины $\sim 10^3$.

Пороговые значения I_S для процессов ВКР и ВРМБ в водных каплях различного радиуса (показатель поглощения $\kappa_a = 10^{-8}$) приведены на рис. 2. Здесь также показан порог оптического пробоя водных капель [3]. Для ВРМБ рассмотрено три случая: «одинарный» резонанс (резонанс только для стоковой волны), «двойной» резонанс (для волны накачки и рассеянной волны) и «тройной» резонанс (для накачки, рассеянной и акустической волн). Заметим, что 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 (согласно (5)). Однако подобный «тройной резонанс» еще более редок и, видимо, может быть получен только при одновременном лазерном и акустическом возбуждении капли с соответствующе подобранными частотами [13].

В целом из рис. 2 видно, что пороговая интенсивность ВРМБ всегда ниже пороговой интенсивности ВКР. Это связано с более высоким значением коэффициента усиления ВРМБ ($g_S \approx 5 \cdot 10^{-3} \text{ см/МВт}$ [2] по сравнению с соответствующим коэффициентом для ВКР $g_S \approx 10^{-}$

³ см/МВт [1]). Что касается зависимости I_S от радиуса каплей, то из рисунка следует, что пороговая интенсивность резко возрастает при уменьшении размера каплей вследствие аналогичного падения радиационной добротности для малых частиц (см. рис. 1). При $x_a \geq 100$ I_S практически перестает зависеть от радиуса жидких частиц вследствие ограничения добротности потерями, связанными с поглощением в жидкости. Для $x_a \leq 20-40$ эффекты ВКР и ВРМБ могут подавляться оптическим пробоем, возникающим внутри частицы [1].

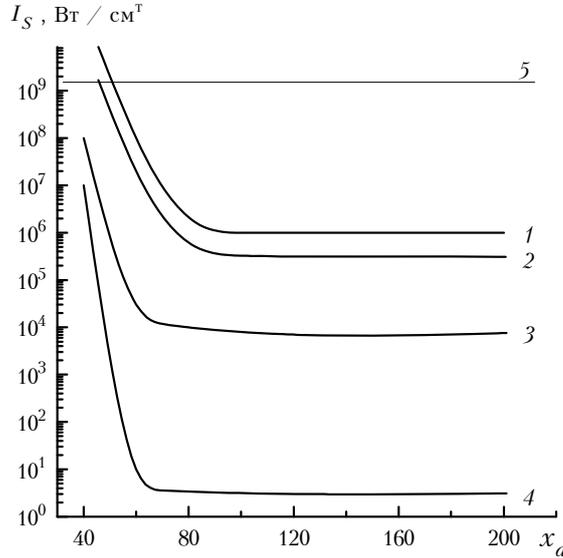


Рис. 2. Пороговая интенсивность ВКР (1) и ВРМБ (2–4) в водных каплях различного размера: «одинарный» (1, 2), «двойной» (3) и «тройной» резонанс (4); (5) – порог оптического пробоя частиц

4. Угловая структура вынужденного рассеяния света сферической частицей

В экспериментах ВР наблюдается в зависимости от интенсивности накачки, как правило, в виде светящихся дуг на поверхности сферической частицы в направлениях вперед и назад вдоль ее главного диаметра [14]. Эти светящиеся области являются источником сигнала ВР вне частицы и обуславливают угловую диаграмму рассеяния, которая, как показали эксперименты [15, 16], существенно отличается от диаграммы упругого рассеяния.

Рассмотрим угловую структуру поля ВР вдали от сферической частицы и проследим ее зависимость от пространственной структуры внутреннего стокового поля.

Анализируемая задача может быть сформулирована как задача об излучении сферического объема с заданным пространственным распределением электромагнитного поля в окружающее частицу пространство. Математическая постановка задачи базируется на уравнении Гельмгольца для векторного потенциала электромагнитного поля $\mathbf{A}(\mathbf{r}, t)$:

$$\nabla^2 \mathbf{A}(\mathbf{r}, t) + (\omega_s^2/\epsilon_a) \mathbf{A}(\mathbf{r}, t) = -\mathbf{J}_a(\mathbf{r}, t) \quad (10)$$

при условии $\text{div } \mathbf{A}(\mathbf{r}, t) = 0$. Здесь $\mathbf{J}_a(\mathbf{r}, t) = \epsilon_a \frac{\partial \mathbf{E}_s(\mathbf{r}, t)}{\partial t}$ – плотность токов поляризации, индуцированных внутренним полем частицы $\mathbf{E}_s(\mathbf{r}, t)$. При этом составляющие поля ($\mathbf{E}_s(\mathbf{r}, t) \equiv \mathbf{E}(\mathbf{r}, t, \omega_s)$) выражаются через векторный потенциал как

$$\mathbf{H}_s(\mathbf{r}, t) = \text{rot } \mathbf{A}(\mathbf{r}, t); \quad \mathbf{E}_s(\mathbf{r}, t) = -\frac{\partial \mathbf{A}(\mathbf{r}, t)}{\partial t}.$$

Решение уравнения (10) известно:

$$\mathbf{A}(\mathbf{r}, t) = i \omega_s \epsilon_a \int_{V_a} \frac{\mathbf{E}_s(\mathbf{r}', t)}{4\pi R} \exp(-i \mathbf{k}_s \mathbf{R}) d\mathbf{r}'.$$

Здесь \mathbf{r} – радиус-вектор точки наблюдения, где ищется значение поля; \mathbf{r}' – радиус-вектор точек внутри капли; $\mathbf{R} = \mathbf{r} - \mathbf{r}'$; \mathbf{k}_S – волновой вектор стоксовой волны. Интеграл берется по объему частицы V_a .

Поле ВР в точке наблюдения с радиусом-вектором \mathbf{r} записывается следующим образом:

$$\mathbf{E}_S(\mathbf{r}, t) = \text{rot rot} \int_{V_a} \frac{(\varepsilon_a - 1) \mathbf{E}_S(\mathbf{r}', t)}{4\pi \varepsilon_a R} \exp(-i \mathbf{k}_S \mathbf{R}) d\mathbf{r}'. \quad (11)$$

Под знаком интеграла в (11), как видно, стоит величина напряженности электрического стоксового поля $\mathbf{E}_S(\mathbf{r}', t)$ в частице, пространственная конфигурация которого соответствует одной из резонансных мод $TE_n(TH_n)$. Она, как было отмечено выше, может быть представлена в виде стоячей волны, локализованной у поверхности капли. Поэтому, используя известное решение Ми (1), например, для TE_n – резонансной моды сферического резонатора, имеем выражение

$$\mathbf{E}_S(\mathbf{r}', t) = A_E(t) b_n(x_a) \psi_n(k_S r') [\mathbf{M}_{nm}(\theta, \varphi) + \mathbf{M}_{nm}^*(\theta, \varphi)]/2, \quad (12)$$

где A_E – амплитуда волны ВКР. Аналогичное выражение может быть записано и для TH_n -мод.

После подстановки выражения (12) в (11) и разложения подынтегральной функции в ряд по сферическим гармоникам окончательно получаем

$$\mathbf{E}_S(\mathbf{r}, t) \cong \frac{k_S^2}{4\pi r} A_E(t) b_n(x_a) \int_{V_a} \sum_{l,m} \frac{2l+1}{l(l+1)} \psi_n(k_S r') \psi_l(k_S r) Y_{lm}(\theta, \varphi) [\mathbf{M}_{nm}(\theta', \varphi') + \mathbf{M}_{nm}^*(\theta', \varphi')] d\mathbf{r}'. \quad (13)$$

Один из результатов численной реализации (13) представлен на рис. 3, где показано сравнение результатов численных расчетов угловой структуры ВКР от капли этанола с радиусом $a_0 = 15,1$ мкм при облучении ее излучением второй гармоники Nd-YAG-лазера ($\lambda_L = 0,53$ мкм) с соответствующими экспериментальными данными, приведенными в [15]. Экспериментальные данные обозначены на рисунке точками. Возникающее стоксовое излучение имеет длину волны $\lambda_S = 0,65$ мкм. Приведена также расчетная угловая зависимость интенсивности упругого рассеяния. Отчетливо видна типичная V-образная форма угловой зависимости сигнала ВКР, наблюдавшаяся также и в [16].

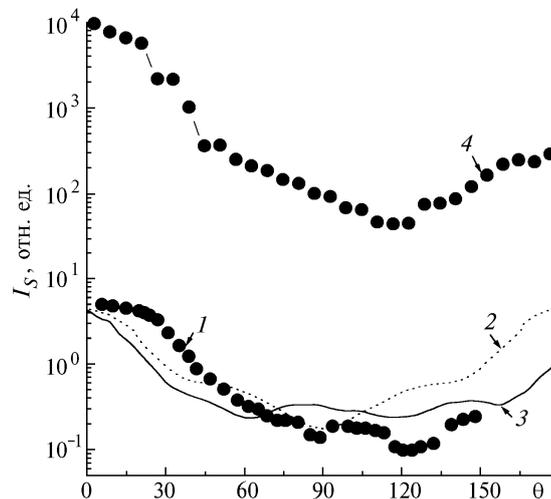


Рис. 3. Экспериментальные данные [15] по угловой структуре ВКР (1) и упругого рассеяния (4) от капли этанола с радиусом 15,1 мкм в дальней зоне. Кривые (2), (3) – теоретический расчет угловой зависимости ВКР при одномодовом (2) и многомодовом режиме (3) генерации ВКР в капле

Результаты исследований показывают, что диаграмма направленности ВР от частицы в среднем по углам более изотропна, чем диаграмма упругого рассеяния. Угловая структура одномодового ВР, т.е. когда процесс ВР поддерживается только одной собственной модой частицы, в отличие от упругого рассеяния симметрична. Это является следствием угловой

симметрии внутреннего стокового поля, находящегося в резонансе с собственной колебательной модой частицы.

В то же время, вследствие высокой спектральной плотности собственных мод в частице [1], возможны ситуации, когда одновременно несколько мод имеют собственные частоты, близкие к стоковой частоте ω_s . В этом случае все они дадут вклад в процесс развития ВР внутри частицы. При подобном многомодовом режиме генерации ВР угловое распределение стокового поля вдали от частицы становится асимметричным.

5. Комбинационное рассеяние света на колебаниях поверхности капли, вызванных действием пондеромоторных сил светового поля

За счет действия пондеромоторных сил электромагнитного поля происходят деформации и колебания прозрачных капель [6, 17–19]. Колебания поверхности капель приводят к комбинационному рассеянию падающей на нее световой волны.

В [21] впервые теоретически исследовалось комбинационное рассеяние малыми каплями ($ka_0 \ll 1$) при свободных колебаниях поверхности капель. Для случая оптически крупных частиц ($ka_0 \geq 1$) задача о комбинационном рассеянии света на колеблющейся прозрачной капле не была решена.

Рассмотрим решение данной задачи на основе интегрального уравнения для светового поля, следующего из уравнения Гельмгольца для векторного потенциала поля (10).

Комплексное электрическое поле $\mathbf{E}_1(\mathbf{r}, t)$ в точке наблюдения с радиусом-вектором \mathbf{r} находится из соотношения

$$\varepsilon_a \mathbf{E}_1(\mathbf{r}, t) = \mathbf{E}_0 e^{i\omega_0 t - i\mathbf{k}\mathbf{r}} + \text{rot rot} \int_{V_a} \frac{(\varepsilon_a - 1) \mathbf{E}(\mathbf{r}', t) e^{i\mathbf{k}\mathbf{R}}}{4\pi R} d\mathbf{r}',$$

где \mathbf{k} – волновой вектор падающей волны.

Дальнейшее рассмотрение проведем только для рассеянной волны. При этом

$$\mathbf{E}_{\text{iss}}(\mathbf{r}, t) = \text{rot rot} \int_{V_a} \frac{(\varepsilon_a - 1) \mathbf{E}(\mathbf{r}', t) e^{i\mathbf{k}\mathbf{R}}}{4\pi \varepsilon_a R} d\mathbf{r}'. \quad (14)$$

Возникающую деформацию капли с радиусом a за счет действия пондеромоторных сил в точке со сферическими координатами (Θ, φ) зададим соотношением

$$a(t, \Theta, \varphi) - a_0 = \xi(t, \Theta, \varphi) = \text{Re} \left\{ \sum_{l,n} \xi_{ln}(t) Y_{ln}(\Theta, \varphi) e^{i\Omega_l t} \right\},$$

где величина деформации ξ разложена по сферическим гармоникам.

Здесь $\Omega_l = [l(l-1)(l+2)\beta/(\rho_a a_0^3)]^{1/2}$ – собственные (рэлеевские) частоты колебаний капли; β – коэффициент поверхностного натяжения жидкости.

Интеграл по объему деформированной частицы представим в виде суммы интегралов:

$$\int_{V_a} \frac{(\varepsilon_a - 1) \mathbf{E}(\mathbf{r}', t) e^{i\mathbf{k}\mathbf{R}}}{4\pi \varepsilon_a R} d\mathbf{r}' = \int_{V_{a_0}} \frac{(\varepsilon_a - 1) \mathbf{E}(\mathbf{r}', t) e^{i\mathbf{k}\mathbf{R}}}{4\pi \varepsilon_a R} d\mathbf{r}' + \int \frac{(\varepsilon_a - 1) \mathbf{E}(\mathbf{r}', t) e^{i\mathbf{k}\mathbf{R}}}{4\pi \varepsilon_a R} d\omega' \int_{a_0}^{a(\Theta, \varphi)} r^2 dr',$$

где V_{a_0} – объем невозмущенной сферы; $d\omega' = \sin\theta' d\theta' d\varphi'$.

В предположении малости возмущений поверхности $\xi \ll a_0$ вдали от резонанса электромагнитное поле в деформированной частице $\mathbf{E}(\mathbf{r}', t)$ можно положить равным его значению при отсутствии возмущений сферической поверхности $\mathbf{E}_L(\mathbf{r}', t)$. Тогда выражение (14) для случая квазигармонического поля $\mathbf{E}_L(\mathbf{r}, t) = \mathbf{E}_L^0(\mathbf{r}, t) e^{i\omega_0 t}$ в дальней зоне ($\mathbf{k}\mathbf{r} \gg 1$) преобразуется к виду

$$\mathbf{E}_{\text{iss}}(\mathbf{r}, t) \approx \frac{k^2 (\varepsilon_a - 1)}{4\pi \varepsilon_a \mathbf{r}} e^{i\omega_0 t - i\mathbf{k}\mathbf{r}} \left[\int_{V_{a_0}} \mathbf{E}_L^0(\mathbf{r}', t) e^{i\mathbf{k}\mathbf{R}' \cos\vartheta} d\mathbf{r}' + a_0^2 \int \mathbf{E}_L^0(a_0, \Theta', \varphi', t) \times \right.$$

$$\times \operatorname{Re} \left\{ \sum_{l,n} \xi_{ln}(t) Y_{ln}(\Theta', \varphi') e^{i\Omega_l t} \right\} d\sigma', \quad (15)$$

где Θ – угол между векторами \mathbf{r} и \mathbf{r}' . Первое слагаемое в правой части (15) представляет собой обычное упругое рассеяние на частоте волны падающего излучения ω_0 , в то время как второе – комбинационное рассеяние на поверхностных волнах частицы с частотами $\omega_0 \pm \Omega_l$.

Коэффициенты разложения смещения поверхности капли $\xi_{ln}(t)$ удовлетворяют уравнению колебаний, в правой части которого стоит вынуждающая сила:

$$\frac{d^2 \xi_{ln}}{dt^2} + \frac{2}{t_l} \frac{d \xi_{ln}}{dt} + \Omega_l^2 \xi_{ln} = \frac{l f_{ln}}{\rho_a a_0}. \quad (16)$$

Здесь $f_{ln} = \int f(t, a_0) Y_{ln}^*(\theta, \varphi) d\sigma'$; $t_l = \frac{a_0^2}{2\nu(2l+1)(l-1)}$ – характерное время затухания колебаний за счет вязких сил; ν – кинематическая вязкость жидкости. Начальные условия к (16) имеют вид $\xi_{ln}(0) = d \xi_{ln}(0)/(dt) = 0$.

Величина f представляет собой скачок нормальной компоненты натяжения электромагнитного поля на поверхности капли:

$$f = \frac{\varepsilon_a - 1}{8\pi} [(\varepsilon_a - 1) (\mathbf{E}(a_0, \theta, \varphi, t) \mathbf{n}_r)^2 + (\mathbf{E}(a_0, \theta, \varphi, t))^2]. \quad (17)$$

В этом выражении следует учитывать лишь низкочастотные по отношению к частоте возбуждающего светового поля составляющие. Из выражения (17) видно, что вид функции $f(a_0, \theta, \varphi, t)$ зависит от угловой структуры внутреннего электромагнитного поля на поверхности капли, которая дается решением Ми (1).

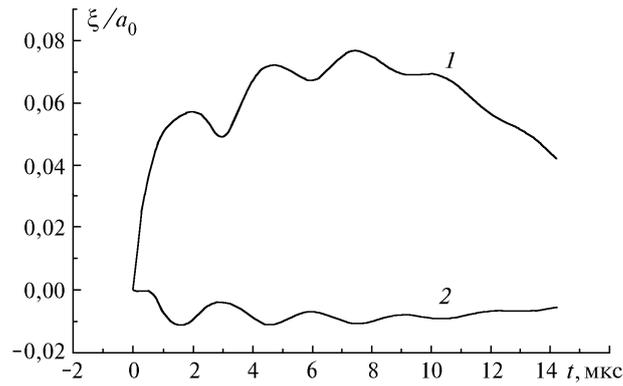
Численные расчеты, проведенные по (16) – (17) для капель воды с различным значением параметра дифракции [17], показали, что для малых частиц ($x_a \ll 1$) сила f в соответствии с распределением внутреннего оптического поля имеет максимумы на полюсах капли, а для крупных капель ($x_a > 1$) они смещаются в зоны экватора.

Это приводит к тому, что начальная фаза колебаний малых и больших капель отличается на $\pi/2$. Малые частицы деформируются в направлении, перпендикулярном к направлению воздействующего излучения, а большие – параллельно воздействию. При этом различны и амплитуды колебаний. Так, например, $\xi_{\max}/a_0 = 3 \cdot 10^{-5}$ для капель воды с $x_a = 0,3$ (воздействующее излучение имеет длину волны $\lambda_L = 0,53$ мкм), и $\xi_{\max}/a_0 = 10^{-3}$ для $x_a = 3$ при интенсивности воздействующего импульса излучения $I_0 = 10^8$ Вт/см² длительностью $t_p = 10^{-7}$ с.

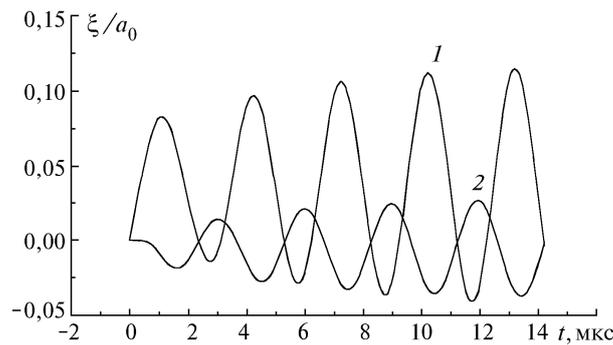
Когда воздействие на каплю ведется модулированным излучением с частотой $\Omega_{ex} \sim \Omega_l$, колебания капли приобретают вынужденный характер и их частота после времени установления соответствует частоте вынуждающей силы. Этот процесс иллюстрирует рис. 4, где представлена зависимость от времени величины относительного смещения поверхности водной капли $\xi(t)/a_0$ с радиусом $a_0 = 5$ мкм в направлениях $\theta = 180^\circ$ и $\theta = 90^\circ$. Интенсивность воздействующего излучения составляла 10^7 Вт/см². На этом рисунке приведены три ситуации: частота модуляции ниже частоты колебания капли на основной моде, $\Omega_{ex}/\Omega_2 = 0,1$ (рис. 4,а); случай резонансного возбуждения колебаний, $\Omega_{ex}/\Omega_2 = 1$ (рис. 4,б), а также когда частота модуляции выше частоты основной моды, $\Omega_{ex}/\Omega_2 = 2$ (рис. 4,в). Как следует из рисунка, во втором случае амплитуда колебаний существенно выше, и она продолжает расти со временем, что при продолжительном воздействии может явиться причиной разрушения жидкой частицы.

Одна из реализаций численного расчета интенсивности рассеянной световой волны ($\lambda_L = 0,53$ мкм) при колебаниях поверхности водной капли с радиусом $a_0 = 20$ мкм представлена на рис. 5. Параметры воздействующего импульса излучения, который возбуждал колебания, следующие: $I_0 = 10^8$ Вт/см², $t_p = 10^{-7}$ с. Рис. 5,а отражает зависимость $\xi(t)/a_0$ в направлении $\theta = 180^\circ$. На рис. 5,б показана угловая структура сигнала рассеяния (в плоскости векторов \mathbf{k} и \mathbf{E}_l) для момента времени $t = 13,5$ мкс. Рис. 5,в представляет зависимость

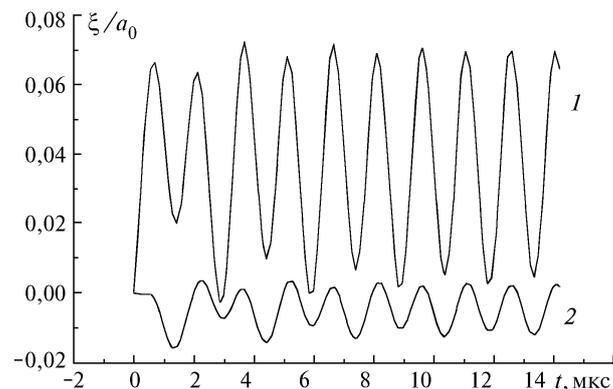
рассеянного сигнала в трех направлениях (назад, поперек и в направлении, близком к направлению первой радуги) от времени. Здесь же штриховыми линиями приведен сигнал упругого рассеяния на невозмущенной частице. Как следует из рис. 5,а, после окончания действия лазерного импульса капля совершает свободные затухающие колебания на основной (самой низкой) собственной частоте $\Omega_2 \approx 0,3$ МГц. В соответствии с этими колебаниями изменяется и сигнал рассеяния, временная зависимость которого приобретает характер «вспышек», отмеченных ранее в [18]. Причем наибольшие изменения относительно уровня невозмущенного рассеяния наблюдаются в направлениях поперек действия излучения и в направлении, близком к направлению первой радуги. Это закономерно, поскольку именно данные направления характеризуются тем, что здесь возникают наибольшие изменения интенсивности упругого рассеяния по углу.



а



б



в

Рис. 4. Зависимость от времени относительного смещения водной капли с радиусом $a_0 = 5$ мкм в направлениях $\theta = 180^\circ$ (1) и $\theta = 90^\circ$ (2) при воздействии на нее модулированным лазерным излучением ($\lambda_L = 0,53$ мкм). Относительная частота модуляции $\Omega_{\text{ев}}/\Omega_2$ равняется: а – 0,1; б – 1; в – 2

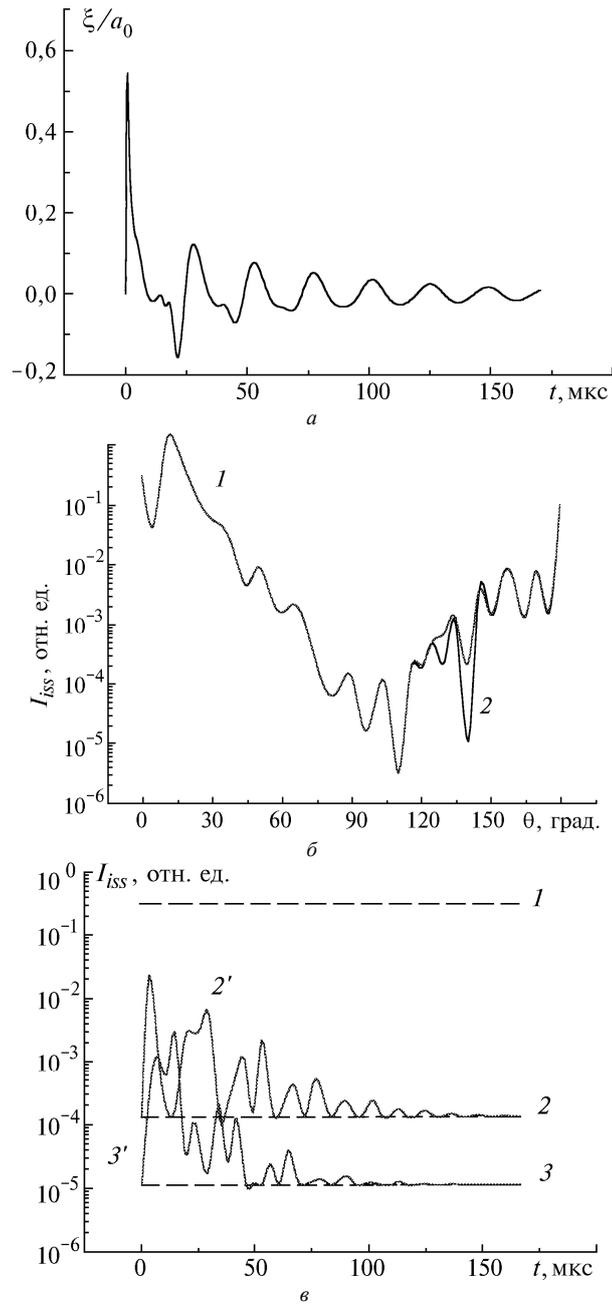


Рис. 5. Численный расчет интенсивности рассеянной световой волны: *a* – зависимость от времени относительного смещения водной капли с радиусом $a_0 = 20$ мкм в направлении $\theta = 180^\circ$ за счет действия пондеромоторных сил при импульсном облучении; *б* – угловая зависимость излучения, рассеянного на водной капле при возбуждении на ее поверхности колебаний *1*. Кривая *2* – упругое рассеяние на невозмущенной капле; *в* – временная зависимость рассеянного на колеблющейся водной капле излучения для различных углов наблюдения: $\theta = 0^\circ$ (*1*, *1'*); $\theta = 90^\circ$ (*2*, *2'*); $\theta = 137^\circ$ (*3*, *3'*). Линии *1*, *2*, *3* – уровень сигнала упругого рассеяния при отсутствии колебаний

Заключение

Кратко формулируем основные результаты работы.

С единых физических позиций проведено теоретическое описание нелинейно-оптических эффектов ВКР, ВРМБ, ВФ в прозрачных частицах, как в микрорезонаторах.

Установлено соотношение для энергетического порога вынужденного рассеяния в частице, учитывающее резонансные условия для параметрически взаимодействующих полей.

Исследованы угловые характеристики ВР. Показано, что диаграмма направленности ВР менее асимметрична в направлениях вперед и назад по сравнению с упругим рассеянием.

Теоретически исследован эффект комбинационного рассеяния света на колебаниях поверхности жидких частиц произвольного размера, инициированных пондеромоторными силами воздействующего интенсивного светового излучения. Установлено, что данный эффект проявляется в направлении, близком к углу радужного рассеяния, а также в направлении, поперечном к направлению воздействующего излучения, и носит характер временных пульсаций.

1. Serpengurel A.S., Swindal J.C., Chang R.K., Acker W.P. // *Appl. Opt.* 1992. V. 31. N 18. P. 3543–3551.
2. Xie J.C., Ruekgauer T.E., Gu J., Armstrong R.L., Pinnick R.G. // *Appl. Opt.* 1994. V. 33. N 3. P. 368–372.
3. Pinnick R.G., Biswas A., Pendleton J., Armstrong R.L. // *Appl. Opt.* 1992. V. 31. N 3. P. 987–996.
4. Zhang J.-Z., Chen G., Chang R.K. // *J. Opt. Soc. Am. B* 1990. V. 7. N 1. P. 108–115.
5. Kwok A.S., Chang R.K. // *Opt. Lett.* 1993. V. 18. N 19. P. 1597–1599.
6. Землянов А.А. // *Квантовая электроника*. 1974. Т. 1. С. 2085–2088.
7. Пришивалко А.П. *Оптические и тепловые поля внутри светорассеивающих частиц*. Минск: Наука и техника, 1983. 190 с.
8. Chylek P., Kiehl J.T., Ko M.K.W. // *Appl. Opt.* 1978. V. 17. N 19. P. 3019–3021.
9. Li J., Chylek P. // *J. Opt. Soc. Am. A* 1993. V. 10. N 4. P. 687–692.
10. Zhang J.-H., Leach D.H., Chang R.K. // *Opt. Lett.* 1988. V. 13. N 4. P. 270–272.
11. Cantrell C.D. // *J. Opt. Soc. Am. B* 1991. V. 8. N 10. P. 2158–2180.
12. Гейнц Ю.Э., Землянов А.А., Чистякова Е.К. // *Оптика атмосферы и океана*. 1995. Т. 8. N 10. С. 1480–1487.
13. Белокопытов Г.В., Пушечкин Н.П. // *Письма в ЖТФ*. 1991. Т. 17. Вып. 22. С. 71–75.
14. Qian S.-X., Snow J.B., Tzeng H.-M., Chang R. K. // *Science*. 1986. V. 231. P. 486–488.
15. Pinnick R.G., Biswas A., Armstrong R.L. et al. // *Opt. Lett.* V. 13. N 12. 1988. P. 1099–1101.
16. Chen C., Acker W.P., Chang R.K. // *Opt. Lett.* V. 16. N 3. 1991. P. 117–119.
17. Гейнц Ю.Э., Землянов А.А. // *Оптика атмосферы и океана*. 1996. Т. 9. N 10. С. 1343–1352.
18. Стерлядкина Е.А., Стерлядкин В.В. // *Оптика и спектроскопия*. 1988. Т. 64. Вып. 3. С. 685–688.
19. Zhang I. Z., Chang R.K. // *Opt. Lett.* 1988. V. 13. N 10. P. 916–918.
20. Леднева Г.П. // *Оптика и спектроскопия*. 1994. Т. 76. N 3. С. 506–509.
21. Быковский Ю.А., Манькин Э.А., Нахутин И.Е. и др. // *Квантовая электроника*. 1976. Т. 3. N 1. С. 157–162.

Институт оптики атмосферы СО РАН,
Томск

Поступила в редакцию
20 января 1997 г.

Ju. E. Geints, A. A. Zemlyanov. **Stimulated Light Scattering by Spherical Particles.**

Phenomena of stimulated light scattering (SLS) by transparent spherical particles (stimulated Raman scattering, stimulated Brillouin scattering, stimulated fluorescence) caused by amplification of spontaneous scattering by resonance modes of internal optical field of a particle are examined. The phenomena are theoretically described in unified physical terms with pointing out of their common regularities; threshold and angular characteristics of the SLS are discussed.

The Raman scattering effect on surface waves of the liquid particles induced by ponderomotive forces of the light field is also described theoretically. An angular structure of the scattered wave field is treated.