## А.А. Землянов, Ю.Э. Гейнц

## НЕЛИНЕЙНЫЕ ЭФФЕКТЫ ВЫНУЖДЕННОГО РАССЕЯНИЯ СВЕТА В СФЕРИЧЕСКИХ ЧАСТИЦАХ

Институт оптики атмосферы СО РАН, г. Томск

#### Поступила в редакцию 5.07.99 г.

Дано теоретическое описание эффектов вынужденного комбинационного рассеяния света и вынужденного рассеяния Мандельштама–Бриллюэна в прозрачных сферических частицах. Получена и исследована система уравнений для амплитудных коэффициентов полей стоксовой и основной волн. Установлено соотношение для порога смены режима спонтанного рассеяния на режим вынужденного комбинационного рассеяния света. Показано существенное влияние пространственной структуры взаимодействующих собственных колебательных мод частицы на величину этого порога. Установлено, что чем выше добротность резонансных мод, тем большее влияние на нее оказывают деформации поверхности частицы, которые могут носить спонтанный характер либо могут быть связаны с действием пондеромоторных сил светового поля.

### Введение

Нелинейно-оптические эффекты вынужденного рассеяния света (ВР), среди которых важно отметить вынужденное комбинационное рассеяние (ВКР), вынужденное рассеяние Мандельштама - Бриллюэна (ВРМБ), вынужденную флуоресценцию (ВФ), вынужденное температурное рассеяние (ВТР), в газах и конденсированных протяженных средах достаточно хорошо изучены. Однако только в последнее двадцатилетие было обнаружено существование данных эффектов и в веществе, находящемся в дисперсном состоянии (твердые и жидкие частицы микронных размеров). Такой факт связан с тем, что микронная частица долгое время не рассматривалась в качестве объекта для исследований по вынужденному светорассеянию, поскольку длина нелинейного взаимодействия волн, необходимая для формирования поля BP, по крайней мере на порядок превышает диаметр частицы. И лишь в конце 70-х – начале 80-х гг. после работ [1-4] и др., показавших, что сферические частицы способны подобно резонатору накапливать в себе энергию светового поля, многократно увеличивая время, а значит, и длину нелинейного взаимодействия волн, были экспериментально обнаружены эффекты ВКР и ВФ [5, 6], более «слабые» эффекты параметрической генерации высших гармоник (когерентное антистоксово рассеяние (КАРС), когерентное смешение волн (КРС)) [7], а затем и ВРМБ [8] в подкрашенных каплях воды, этанола и топлива.

Был установлен ряд не наблюдавшихся ранее в протяженных средах закономерностей в проявлении эффектов ВР в микронных частицах. Оказалось, например, что спектральная форма сигналов ВР имеет характерную «пичковую» структуру в пределах спонтанного контура рассеяния [6], что происходит запаздывание сигнала ВКР относительно импульса накачки [9, 10] и, кроме того, наблюдается снижение энергетических порогов всех перечисленных выше эффектов ВР по сравнению с соответствующими величинами в сплошной среде [11].

Основной предпосылкой возникновения нелинейнооптических эффектов в микронных частицах, как было отмечено выше, является возможность резонансного возбуждения в них оптического поля. Характеристики этих резонансов подробно рассмотрены, например, в [12]. Здесь же подчеркнем, что они наблюдаются при определенных значениях параметра дифракции частицы и теоретически могут быть достаточно узкими с добротностью порядка  $Q \sim 10^{10} - 10^{20}$ . На практике значения Q, как правило, достигают величин не выше  $10^6 - 10^8$  [11], что связано, вопервых, с наличием поглощения излучения в жидкости, а во-вторых, с отклонением формы частиц от идеальной сферы вследствие различных физических процессов. Немаловажную роль в возникновении эффектов ВР играет также способность прозрачных частиц фокусировать световое поле внутри своего объема. Два главных максимума электромагнитного поля, формирующихся вблизи теневой и освещенной поверхностей частицы, являются мощными источниками спонтанного комбинационного излучения.

Отмеченные особенности пространственной конфигурации полей накачки и BP в сферических частицах приводят к появлению временной задержки возникновения сигнала BP от частиц по отношению к моменту начала воздействия на них импульса накачки [9, 10, 13]. В рамках существующей теоретической модели процесса ВР в прозрачной частице, которой будет посвящен соответствующий раздел настоящей статьи, наличие данной временной задержки  $\Delta t$  следует из факта конечности времени формирования сигнала ВР. Другими словами, подобно возникновению стимулированного излучения в резонаторе лазера световая волна должна совершить определенное число проходов от зеркала к зеркалу (в микрочастице – вдоль поверхности, которая играет роль зеркал), чтобы сформировалось достаточно интенсивное излучение на комбинационной частоте, способное поддерживать вынужденный процесс. Типичные значения временной задержки сигналов  $\Delta t$  в экспериментах с микронными каплями лежат в интервале  $1 \le \Delta t \le 10$  нс [13] и практически не зависят от размера частицы. Это говорит о том, что в формировании сигналов ВР основную роль играют резонансные моды с одним и тем же (по порядку величины) значением добротности  $Q \sim 10^5 - 10^6$ .

Пороговые характеристики процессов ВР, в отличие от частотных и временных характеристик, экспериментально исследованы значительно меньше. Как было отмечено выше, резонансный характер возбуждения ВР в микронных частицах приводит к значительному снижению энергетического порога его проявления, причем в ряде случаев при наложении определенных условий на геометрию и временной режим накачки возможны аномально низкие пороги ВР [14, 15].

Подчеркнем, что все перечисленные выше нелинейные процессы протекают внутри самих частиц. С этой точки зрения их можно назвать процессами объемного рассеяния света. Исключение составляет только явление, связанное с комбинационным рассеянием световых волн на поверхности жидкой частицы, колебания которой были предварительно возбуждены мощным лазерным излучением (данный эффект рассмотрен в [16, 17]). Причиной этих колебаний, как известно, являются пондеромоторные силы светового поля [18, 19]. Амплитуда данных сил в прозрачных оптически крупных частицах может быть достаточно велика для того, чтобы вызвать не только их существенные деформации, но даже и разрушение [20].

Эффекты вынужденного рассеяния света в прозрачных частицах, как было отмечено выше, имеют ряд характерных особенностей в своем проявлении по сравнению с их реализацией в сплошной среде. Само существование данных эффектов в дисперсной среде связано с возможностью возбуждения в частицах резонансных колебательных мод электромагнитного поля, что, прежде всего, приводит к появлению резонансной структуры спектров вынужденного рассеяния в частицах. Основной предпосылкой для практического приложения эффектов вынужденного светорассеяния является четко обусловленная связь между этой резонансной структурой и морфологией частицы. Фактически это свидетельствует о том, что спектральное положение резонансных «пичков» в спектрах ВР однозначно определяется формой частицы, ее параметром дифракции  $x_a = 2\pi a_0/\lambda$  ( $a_0$  – радиус частицы;  $\lambda$  – длина волны излучения) и показателем преломления. Поэтому любые изменения в спектральном положении резонансов при неизменности химического состава частицы однозначно соответствуют изменениям перечисленных выше параметров. Эта идея лежит в основе ряда методик бесконтактной диагностики микрофизических параметров аэрозольных частиц, получивших свое развитие в работах [21, 22].

Более низкие по сравнению со сплошной средой энергетические пороги возникновения процессов BP в частицах, узкая спектральная ширина линии комбинационного рассеяния (~0,01 см<sup>-1</sup>) открывают также перспективы практического использования указанных эффектов светорассеяния и в Раман-спектроскопии аэрозолей [22 - 24]. В отличие от традиционных спектроскопических методов определения химического состава образцов по спектрам их комбинационного рассеяния, для получения достаточно интенсивного сигнала ВКР Раман-спектроскопия микрочастиц, являясь, по сути дела, внутрирезонаторной спектроскопией, не накладывает ограничений на минимальный размер исследуемой среды, позволяя проводить in situ диагностику аэрозольных образований. Прозрачные частицы действуют как высокодобротные оптические резонаторы, многократно усиливая волну спонтанного комбинационного рассеяния и обеспечивая положительную обратную связь для возникновения стимулированного излучения. Высокие значения коэффициента нелинейного преобразования основной волны в комбинационную составляющую существенно повышают чувствительность микроРаман-спектроскопии, позволяя обнаруживать даже малые примеси (< 10%) в базовом веществе [22]. Более того, данный порог может быть еще на порядок величины понижен при помещении в исследуемую частицу небольшого количества лазерного красителя [24], который, активно флуоресцируя, обеспечивает более быстрый рост сигнала комбинационного рассеяния.

И наконец, еще одно направление практического приложения эффектов ВР в микрочастицах связано не столько с физической оптикой, сколько с оптическими технологиями. Резонансные свойства микронных частиц открывают заманчивые перспективы создания на их основе лазерных источников с высокими значениями кпд, работающих не только в оптическом, но и СВЧ-диапазонах [25]. В литературе известны также реальные применения микрорезонаторов как высокодобротных частотных фильтров в устройствах оптической связи [26].

В настоящей статье дано теоретическое описание основных сторон нелинейных эффектов ВР в слабо поглощающих частицах. Основное внимание при изучении данных вопросов уделено исследованию пространственной структуры световых полей внутри сферических частиц в условиях их резонансного возбуждения. Степень взаимодействия этих колебательных мод является фактором, который в конечном итоге и определяет эффективность возбуждения нелинейных процессов светорассеяния в частице.

### 1. Теоретическая модель процессов вынужденного рассеяния света в сферических частицах

Рассмотрим основные моменты теоретического описания процессов вынужденного рассеяния света в прозрачных частицах. Качественная картина возникновения ВР в сферической частице выглядит следующим образом [10, 16].



Рис. 1. Схема развития процесса вынужденного рассеяния света в сферической частице. Заштрихованные области показывают основные источники спонтанного комбинационного рассеяния, усиливаемого затем полем резонансной моды частицы (кольцевая зона у поверхности)

При нелинейном взаимодействии излучения с веществом прозрачной частицы во всем ее объеме возникает спонтанное неупругое рассеяние, причем в областях фокусировки внутреннего оптического поля (поля накачки) оно наиболее интенсивно. Причиной появления комбинационных частот в сигнале рассеяния могут явиться процессы взаимодействия основной волны с молекулярными колебаниями среды (ВКР), рассеяние на возникающих в результате эффекта электрострикции акустических фононах (ВРМБ), эмиссия флуоресцирующих молекул (ВФ), а также рассеяние на тепловых флуктуациях плотности среды (ВТР). Часть волн из спектра спонтанного комбинационного излучения покидает каплю, а часть за счет полного внутрен-

него отражения (точнее, близкого к полному внутреннему отражению) распространяется вдоль ее поверхности (рис. 1). На своем пути эти волны ослабляются за счет поглощения и выхода излучения через поверхность частицы, а также могут усиливаться за счет нелинейности среды. В случае, когда для одной или нескольких частот из комбинационного спектра рассеяния выполняется условие резонанса, т.е. когда частота волны  $\omega_s$  совпадает с частотой какой-либо из собственных резонансных мод капли  $\omega_n$ , усиление спонтанной волны может превысить 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 [16]. Это объясняется, прежде всего, тем, что все рассматриваемые здесь нелинейно-оптические эффекты являются, по сути, резонансными процессами в том смысле, что сам факт их возникновения в частице связан с ее резонансными свойствами. Поэтому пороговые, угловые, а также спектральные характеристики всех типов вынужденного рассеяния в частице несут на себе «отпечаток» резонансной структуры внутренних полей.

Исходными уравнениями для теоретического анализа процессов нелинейного рассеяния света в частице являются уравнения Максвелла, в которых наведенная полем накачки нелинейная поляризация среды  $\mathbf{P}_N(\mathbf{r},t)$  служит источником поля волны комбинационного рассеяния [27]. 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  $\mathbf{E}(\mathbf{r},t)$ :

rot rot 
$$\mathbf{E}(\mathbf{r},t) + \frac{\varepsilon_a}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{E}(\mathbf{r},t)}{\partial t^2} + \frac{4\pi s}{c^2} \frac{\partial \mathbf{E}(\mathbf{r},t)}{\partial t} = -\frac{4\pi}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathbf{P}_N(\mathbf{r},t),$$
 (1)

где c – скорость света в вакууме;  $\varepsilon_a$ ,  $\sigma$  – диэлектрическая проницаемость и удельная проводимость вещества частицы соответственно, среда считается однородной. На границе шаровой области справедливы условия непрерывности тангенциальных компонент поля:

$$(\mathbf{E}_{i}(\mathbf{r},t) + \mathbf{E}_{sc}(\mathbf{r},t) - \mathbf{E}(\mathbf{r},t)) \times \mathbf{n}_{r} = (\mathbf{H}_{i}(\mathbf{r},t) + \mathbf{H}_{sc}(\mathbf{r},t) - \mathbf{H}(\mathbf{r},t)) \times \mathbf{n}_{r} = 0.$$
(2)

Здесь  $\mathbf{n}_r$  – внешняя нормаль к поверхности частицы, а индексы «*i*» и «*sc*» относятся к падающей и рассеянной вне частицы волнам соответственно.

Электрическое поле в частице **E**(**r**,*t*) является суммой полей на основной частоте  $\omega_L$  (частоте накачки) и на частотах комбинационного рассеяния. В дальнейшем ограничимся рассмотрением только первой стоксовой волны с частотой  $\omega_s = \omega_L - \omega_{vib}$  ( $\omega_{vib}$  – частота дипольного перехода молекул вещества), поскольку она, как известно, является наиболее интенсивной. Таким образом, **E**(**r**,*t*) = **E**<sub>L</sub>(**r**,*t*) + **E**<sub>s</sub>(**r**,*t*), где временную зависимость вектора **E** представим в виде гармонической части  $e^{-i\omega t}$  и медленно

меняющейся амплитуды 
$$E(\mathbf{r},t)$$
:

$$\mathbf{E}(\mathbf{r},t) = \frac{1}{2} \widetilde{\mathbf{E}}_{L}(\mathbf{r},t) e^{-i\omega_{L}t} + \frac{1}{2} \widetilde{\mathbf{E}}_{s}(\mathbf{r},t) e^{-i\omega_{s}t} + \kappa.c.$$

При этом волновое уравнение (1) фактически распадается на два связанных уравнения – для основной и рассеянной волн, причем нелинейная поляризация  $\mathbf{P}_n$  в приближении слабой нелинейности процесса также разбивается на два слагаемых:

$$\mathbf{P}_n = \mathbf{P}_s + \mathbf{P}_L = \chi^{(3)}(\omega_s) \left( \mathbf{\tilde{E}}_L \ \mathbf{\tilde{E}}_L^* \right) \mathbf{\tilde{E}}_s \ e^{-i\omega_s t} + \chi^{(3)}(\omega_L) \left( \mathbf{\tilde{E}}_s \ \mathbf{\tilde{E}}_s^* \right) \mathbf{\tilde{E}}_L \ e^{-i\omega_L t} + \text{k.c.},$$

где  $\chi^{(3)}$  – нелинейная диэлектрическая восприимчивость третьего порядка. Уравнение для поля (1) дополняется соотношениями, описывающими конкретный физический механизм возникновения нелинейно рассеянной волны [16].

Поскольку рассматривается формирование полей в объемном оптическом резонаторе, которым фактически и является прозрачная сферическая частица, то дальнейшим шагом будет представление решения волнового уравнения (1) для полей в виде разложения по собственным функциям (нормальным колебательным модам) частицырезонатора  $\mathbf{E}_n(\mathbf{r})$  и  $\mathbf{H}_n(\mathbf{r})$  с собственными частотами  $\omega_n$ , которые, заметим, для открытых резонаторов комплексны [28]. Эти функции образуют полную ортогональную систему в рамках электродинамической задачи (1) для закрытого резонатора без излучательных потерь и удовлетворяют уравнениям:

rot 
$$\mathbf{E}_n(\mathbf{r}) = i \frac{\omega_n}{c} \mathbf{H}_n(\mathbf{r}); \text{ rot } \mathbf{H}_n(\mathbf{r}) = -i \frac{\varepsilon_a \omega_n}{c} \mathbf{E}_n(\mathbf{r}).$$
 (3)

Тогда, например, для поля стоксовой волны

$$\mathbf{E}_{s}(\mathbf{r},t) = \sum_{n} A_{n}(t,\omega_{s}) \mathbf{E}_{n}(\mathbf{r}), \mathbf{H}_{s}(\mathbf{r},t) = -i\sqrt{\varepsilon_{a}} \sum_{n} B_{n}(t,\omega_{s}) \mathbf{H}_{n}(\mathbf{r}),$$
(4)

где временная зависимость учтена в коэффициентах  $A_n$  и  $B_n$ и, кроме того, явно выделена их частотная зависимость. Индекс n, в общем случае, отражает совокупность нескольких модовых индексов, число которых определяется конкретной геометрией резонатора. Для сферы, например, это три числа: номер моды n, азимутальное число l и порядок резонанса j.

Отметим, что описанный выше математический прием разложения полей в открытом резонатора с учетом реальных граничных условий на его поверхности в научной литературе носит название метода Слэтера [29]. При этом, однако, следует понимать, что разложения (4) не сходятся к реальным величинам при  $r = a_0$  из-за того, что на поверхности тангенциальные составляющие собственных функций идеального резонатора  $\mathbf{E}_n(\mathbf{r})$  и  $\mathbf{H}_n(\mathbf{r})$  равны нулю. Поэтому использование разложения реальных полей **E** и **H** под знаком rot, вообще говоря, является некорректным. Необходимо записать разложение самих функций (rot **E**) и (rot **H**) по системам  $\mathbf{E}_n(\mathbf{r})$  и  $\mathbf{H}_n(\mathbf{r})$ . Используя (3), (4), получим

$$\int_{V} \operatorname{rot} \mathbf{E}(\mathbf{r}') \mathbf{H}_{n}^{*}(\mathbf{r}') d\mathbf{r}' = -i \frac{\varepsilon_{a} \omega_{n}}{c} A_{n}(t) + \int_{S} \left[ \mathbf{E}(\mathbf{r}') \times \mathbf{H}_{n}^{*}(\mathbf{r}') \right] \mathbf{n}_{r} d\mathbf{r}' = -\frac{\omega_{n}}{c} \frac{dB_{n}(t)}{dt}.$$

Аналогичный вид имеет и разложение для (rot H).

Проведя стандартные для теории резонаторов преобразования, получим систему уравнений для коэффициентов разложения  $A_n(t)$ :

$$\frac{d^{2}A_{n}(t)}{dt^{2}} + \frac{4\pi\sigma}{\varepsilon_{a}}\frac{dA_{n}(t)}{dt} + \omega_{n}^{2}A_{n}(t) = -\frac{4\pi}{\varepsilon_{a}}\int_{V}\mathbf{E}_{n}^{*}(\mathbf{r}')\frac{\partial^{2}\mathbf{P}_{s}(\mathbf{r}',t)}{\partial t^{2}}d\mathbf{r}' - \frac{i\omega_{n}c}{\varepsilon_{a}}\Pi_{n}(t),$$
(5)

где

$$\Pi_n(t) = \int_{S} \left[ \mathbf{E}(\mathbf{r}') \times \mathbf{H}_n^*(\mathbf{r}') \right] \mathbf{n}_r \, dS - \frac{i}{\omega_n} \frac{\partial}{\partial t} \int_{S} \left[ \mathbf{H}(\mathbf{r}') \, \mathbf{E}_n^*(\mathbf{r}') \right] \mathbf{n}_r \, dS.$$

Проанализируем данное уравнение. Как видно, оно описывает затухающие во времени вынужденные колебания, возбуждаемые внешней силой, имеющей частоту  $\omega_s$  и пропорциональной наведенной полем накачки поляризации среды. Поверхностный интеграл  $\Pi_n(t)$  в правой части (5) учитывает потери энергии стоксовой волны за счет нелинейной связи собственных мод через поверхность частицы. Для сферического резонатора он может быть преобразован как

$$\Pi_n(t) = 2A_n(t) \frac{\omega_n \varepsilon_a}{c Q_n^r} \left[ 1 + \frac{i}{2Q_n^r} \right].$$

Здесь введен параметр радиационной добротности резонатора  $Q_n^r = \omega_n W_n/P_r$ ,

где

$$W_n = \frac{\varepsilon_a}{8\pi} \int_V \mathbf{E}_n(\mathbf{r}') \, \mathbf{E}_n^*(\mathbf{r}') \, d\mathbf{r}'$$

– средняя энергия электромагнитного поля, запасенная в собственной моде за период колебания, а  $P_r = \frac{c}{8\pi} \int_{S} \operatorname{Re}\{[\mathbf{E}_n(\mathbf{r}') \mathbf{H}_n^*(\mathbf{r}')]\} \mathbf{n}_r dS$  – средняя мощность ра-

диационных потерь световой волны. И окончательно уравнение для коэффициентов разложения поля  $\mathbf{E}(\mathbf{r},t)$  в частице примет вид

$$\frac{d^{2}A_{n}(t)}{dt^{2}} + \frac{\omega_{n}}{Q_{n}^{a}} \frac{dA_{n}(t)}{dt} + \left[\omega_{n}\left(1 + \frac{i}{2Q_{n}^{r}}\right)\right]^{2}A_{n}(t) =$$

$$= -\frac{4\pi}{\varepsilon_{a}}\int_{V} \mathbf{E}_{n}^{*}(\mathbf{r}') \frac{\partial^{2}\mathbf{P}_{s}(\mathbf{r}',t)}{\partial t^{2}} d\mathbf{r}'.$$
(6)

Параметр  $Q_n^a$  в левой части этого уравнения по смыслу также является добротностью резонатора (на частоте собственной моды  $\omega_n$ ), которая в отличие от радиационной добротности  $Q_n^r$  обусловлена только поглощением световой волны в веществе частицы:

$$Q_n^a = \frac{\omega_n W_n}{P_a} = \frac{\omega_n c^2}{4\pi s}.$$

Здесь 
$$P_a = \frac{1}{2} \int_V \sigma(\mathbf{r}') \mathbf{E}_n(\mathbf{r}') \mathbf{E}_n^*(\mathbf{r}') d\mathbf{r}'$$
 – средняя мощность

потерь световой волны на поглощение. Если параметр  $Q_n^a$  является неотъемлемой характеристикой любого типа резонаторов, то определение радиационной добротности  $Q_n^r$  имеет смысл только для открытых систем с дифракционными потерями. При этом сама величина добротности  $Q_n^r$  для прозрачных сферических частиц может быть чрезвычайно высокой [12] (рис. 2).



Рис. 2. Зависимость радиационной  $Q_n^r$  (пунктир) и суммарной добротности  $Q_n$  (сплошная линия) резонансных мод сферической частицы в зависимости от номера моды *n* для различных порядков *j* (цифры у кривых). Коэффициент поглощения вещества частицы выбран на уровне  $\kappa_a = 10^{-8}$ 

Частоты собственных колебаний в открытом резонаторе, как видно из (6), уже не являются действительными числами, как в идеальных закрытых системах, а комплексны:  $\omega'_n = \omega_n [1 + i/(2Q_n^r)] = \omega_n + i\omega''_n$ . Причем степень этой «неидеальности» как раз и учитывается величиной, обратно пропорциональной величине радиационной добротности резонатора:

$$\frac{1}{Q_n^r} = \frac{2\omega_n^{\prime\prime}}{\omega_n}.$$

Проведенные рассуждения позволяют говорить о суммарной (эффективной) добротности резонатора  $Q_n$ , величина которой определяется как

$$1/Q_n = 1/Q_n^a + 1/Q_n^r$$
(7)

и пропорциональна характерному времени существования электромагнитного поля собственной моды в резонаторе  $\tau_n$ . Очевидно, что учет поглощения в диэлектрике приведет к ограничению экспоненциального роста добротности частицы-резонатора при увеличении ее размера. Это видно из рис. 2, где показана зависимость суммарной добротности  $Q_n$  различных резонансных мод от их модового индекса *n*. Поглощение материала частицы выбрано на уровне  $\kappa_a = 10^{-8}$ . При исследовании электромагнитных колебаний в оптических резонаторах с потерями часто используют уравнение для коэффициентов разложения электромагнитных полей в виде [27, 30]:

$$\frac{d^2 A_n(t)}{dt^2} + 2\gamma_e \frac{dA_n(t)}{dt} + \omega_n^2 A_n(t) = -\frac{4\pi}{\varepsilon_a} \int_V \mathbf{E}_n^*(\mathbf{r}') \frac{\partial^2 \mathbf{P}_s(\mathbf{r}', t)}{\partial t^2} d\mathbf{r}', \quad (8)$$

где коэффициент затухания колебаний во времени равен  $\gamma_e = \frac{\omega_n}{2Q_n^a}$  и определяет полуширину резонансного контура собственной моды с учетом потерь волны на поглощение. Отметим, что структура решения данного уравнения будет аналогична решению уравнения (6), если в коэффициенте  $\gamma_e$  учесть также характерные для открытых резонаторов потери на излучение, причем параметр  $(1/Q_n^r)$  считать малым, когда членами порядка  $(1/Q_n^r)^2$  можно пренебречь.

Совершенно ясно, что симметрия исходного уравнения (1) относительно векторов поля позволяет сразу же записать уравнение, подобное уравнению (5), и для коэффициентов разложения электрического поля основной волны:  $\mathbf{E}_L(\mathbf{r},t) = \sum_n A_n(t,\omega_L) \mathbf{E}_n(\mathbf{r})$ . Единственная особенность данного уравнения заключается только в конкретном выражении для поверхностных интегралов  $\Pi_n(t)$ , поскольку граничные условия для поля волны накачки другие, нежели для поля стоксовой волны. Они даются соотноше-

нежели для поля стоксовой волны. Они даются соотношением (2), и в них, как видно, помимо рассеянных полей присутствуют поля падающей волны. Поэтому, обозначая комбинацию поверхностных интегралов как

$$-\frac{i\omega_n c}{\varepsilon_a} \left[ \int_{S} \left[ \mathbf{E}_i(\mathbf{r}') \times \mathbf{H}_n^*(\mathbf{r}') \right] \mathbf{n}_r \, dS - \frac{i}{\omega_n} \frac{\partial}{\partial t} \int_{S} \left[ \mathbf{H}_i(\mathbf{r}') \times \mathbf{E}_n^*(\mathbf{r}') \right] \mathbf{n}_r \, dS \right] = F_i(t),$$

где  $F_i(t)$  – внешняя сила, обеспечивающая приток энергии в резонатор, получаем дифференциальное уравнение для ко-эффициентов разложения основной волны (на частоте  $\omega_L$ ):

$$\frac{d^{2}A_{n}(t,\omega_{L})}{dt^{2}} + \frac{\omega_{n}}{Q_{n}^{a}}\frac{dA_{n}(t,\omega_{L})}{dt} + \left[\omega_{n}\left(1 + \frac{i}{2Q_{n}^{r}}\right)\right]^{2} \times A_{n}(t,\omega_{L}) = F_{i}(t) - \frac{4\pi}{\varepsilon_{a}}\int_{V} \mathbf{E}_{n}^{*}(\mathbf{r}')\frac{\partial^{2}\mathbf{P}_{L}(\mathbf{r}',t)}{\partial t^{2}}d\mathbf{r}'.$$
(9)

Нелинейная поляризация в правой части данного уравнения ответственна за отток энергии в стоксову волну.

Решение системы уравнений (6), (9) совместно с соответствующими уравнениями нелинейных процессов, а также начальными и граничными условиями позволяет полностью описать исследуемый процесс вынужденного рассеяния в частице.

При получении уравнения для коэффициентов разложения электромагнитных полей в резонаторе (6) нигде явно не был оговорен тот факт, что источником волны ВР первоначально служит спонтанное комбинационное рассеяние, возникающее во всем объеме частицы, интенсивность которого пропорциональна квадрату амплитуды поля накачки. Поэтому нелинейная поляризация  $\mathbf{P}_{s,s}$  стоящая в правой части уравнения (6), фактически может быть представлена в виде суммы двух слагаемых  $\mathbf{P}_{st}$  и  $\mathbf{P}_{sp}$ , отражающих соответственно индуцированный и спонтанный механизмы притока энергии в волну ВР [29]:  $\mathbf{P}_{s} = \mathbf{P}_{st} + \mathbf{P}_{sp}$ . Что касается индуцированной части поляризации  $\mathbf{P}_{st}$ , то она определена выше через нелинейную восприимчивость вещества и описывает когерентное взаимодействие поля накачки и поля стоксовой волны.

Конкретное выражение для второй составляющей нелинейной поляризации  $\mathbf{P}_{sp}$ , отвечающей за спонтанное рассеяние, определяется физическими механизмами неупругого рассеяния света, действующими в среде. Так, например, для явления комбинационного рассеяния используем следующее представление:

$$\mathbf{P}_{sp}(\mathbf{r},t) = N_0 \frac{\partial \alpha}{\partial q} \widetilde{q}_{sp}^*(\mathbf{r},t) \widetilde{\mathbf{E}}_L(\mathbf{r}) \, \mathrm{e}^{-i\omega_s t} + \mathrm{k.c.}, \tag{10}$$

где  $\tilde{q}_{sp}^*(\mathbf{r},t) = F_{sp}(\mathbf{r},t)T_2(1 - e^{-t/T_2})$  – амплитуда молекулярных колебаний среды, обусловленных только процессами спонтанного рассеяния;  $\alpha$  – поляризуемость молекулы вещества;  $N_0$  – концентрация молекул и  $F_{sp}(\mathbf{r},t)$  – некоторая внешняя распределенная сила, являющаяся источником молекулярных колебаний. Относительно последней, как правило, делается предположение о дельта-коррелированности во времени и в пространстве:  $\langle F_{sp}(\mathbf{r},t) F_{sp}(\mathbf{r}',t') \rangle = F_0^2 \, \delta(t-t') \, \delta(\mathbf{r}-\mathbf{r}')$ , где коэффициент  $F_0$  связан с квантово-механическими характеристиками молекул среды.

# 2. Энергетический порог возникновения ВР в микрочастице

Для того чтобы более явно обозначить пространственную структуру внешних источников волны комбинационного рассеяния, с помощью (10) преобразуем правую часть уравнения (8). Для этого вновь применим разложение для полей накачки  $\mathbf{E}_L(\mathbf{r})$  и стоксовой волны  $\mathbf{E}_s(\mathbf{r})$  по собственным функциям сферического резонатора и воспользуемся приближением медленно меняющихся амплитуд. Кроме того, будем считать поле накачки «заданным» ( $\mathbf{P}_L \approx 0$ ), а длительность импульса воздействующего излучения достаточно

большой, чтобы положить  $d\widetilde{A}_n(\omega_L)/dt \ll d\widetilde{A}_n(\omega_S)/dt$ , где

 $A_n$  – медленно меняющаяся амплитуда. Тогда уравнение (8) для коэффициентов  $A_n(t, \omega_s)$  примет вид

$$2(i\omega_{s} - \gamma_{e})\frac{d\tilde{A}_{n}(t,\omega_{s})}{dt} + (\omega_{s}^{2} - \omega_{n}^{2} + 2i\gamma_{e}\omega_{s})\tilde{A}_{n}(t,\omega_{s}) =$$

$$= -\frac{4\pi}{\varepsilon_{a}}\chi^{(3)}(\omega_{s})\sum_{l}\sum_{l'}\sum_{l'}\tilde{A}_{l}(t,\omega_{L})\tilde{A}_{l}^{*}(t,\omega_{L}) \times$$

$$\times \left[2i\omega_{s}\frac{d\tilde{A}_{n}(t,\omega_{s})}{dt} + \omega_{s}^{2}\tilde{A}_{n'}(t,\omega_{s})\right]S_{4} +$$

$$+ N_{0}\omega_{L}^{2}\frac{4\pi}{\varepsilon_{a}}\frac{\partial\alpha}{\partial q}F_{0}T_{2}\tilde{A}_{n}(t,\omega_{L}), \qquad (11)$$

Нелинейные эффекты вынужденного рассеяния света в сферических частицах

939

где 
$$S_4 = \int_{V} \mathbf{E}_n^*(\mathbf{r}') \mathbf{E}_{n'}(\mathbf{r}') \mathbf{E}_{l'}(\mathbf{r}') \mathbf{E}_{l'}(\mathbf{r}') d\mathbf{r}'$$
 – интегральные

коэффициенты пространственного перекрытия полей собственных мод в резонаторе. Цифровой индекс у данных коэффициентов указывает на количество взаимодействующих мод. Как следует из полученного выражения, в резонаторе коэффициенты перекрытия являются своеобразным селектором собственных мод, и очевидно, что наибольшее преимущество в процессе развития волны комбинационного рассеяния получат те собственные моды, чья пространственная структура будет наиболее близка к структуре поля накачки.

Дифференциальное уравнение (11) в рамках сделанных приближений допускает достаточно простое решение. Не умаляя общности рассуждений, проведем еще одно упрощение исследуемой задачи, считая поля накачки и стоксовой волны одномодовыми ( $\omega_s = \omega_n$ ;  $\omega_L = \omega_m$ ), что позволит нам избежать тройного суммирования в правой части (11). При «слабой» накачке, когда индуцированной частью нелинейной поляризации можно пренебречь, решение (11) описывает процесс спонтанного комбинационного рассеяния (СКР). Амплитуда волны СКР равна

$$\widetilde{A}_{n}(t,\omega_{s}) \approx \frac{4\pi}{\varepsilon_{a}} \frac{\partial \alpha}{\partial q} \frac{N_{0} \ \omega_{L}^{T} F_{0} T_{2}}{2(i\omega_{s} - \gamma_{e})} \exp\{-\gamma_{e}t\} \times$$

$$\times \int_{0}^{t} \exp\{\gamma_{e}t'\} \widetilde{A}_{n}(t',\omega_{L}) dt'.$$
(12)

(Модовые индексы у интегральных коэффициентов взаимодействия опущены для сокращения записи.)

В другом асимптотическом случае «сильного» поля накачки доминирующим механизмом в процессе рассеяния становится индуцированный самой волной КР приток энергии в рассеянную волну, что приводит к нелинейному росту ее амплитуды:

$$\widetilde{A}_{n}(t,\omega_{s}) \approx \frac{\partial \alpha}{\partial q} \frac{4\varepsilon_{a} N_{0} \omega_{L}^{2} F_{0} T_{2}}{c^{2} \omega_{s} g_{s} \widetilde{A}_{m}^{*}(t,\omega_{L}) S_{4}} \times \exp\left\{\frac{c^{2} g_{s} S_{4}}{16\pi} \int_{0}^{t} \left|\widetilde{A}_{n}(t',\omega_{L})\right|^{2} dt'\right\},$$
(13)

где  $g_s = -32\pi^2 \omega_s / (c^2 \varepsilon_a) \operatorname{Im} \{\chi^{(3)}(\omega_s)\}$  – стационарный коэффициент усиления ВКР [31].

Порог смены режимов СКР на ВКР, очевидно, соответствует пороговой величине амплитуды волны накачки

 $A_m(\omega_L)$ , когда решение уравнения (11) при  $t \to \infty$  становится неустойчивым. Используя стандартное определение асимптотической устойчивости решения обыкновенного дифференциального уравнения [32], получим условие генерации в резонаторе ВКР:

$$\left|\widetilde{A}_{m}(\omega_{L})\right|^{2} > 8\pi\omega_{s}/(c^{2}g_{s}Q_{n}S_{4}).$$
(14)

Здесь необходимо подчеркнуть два обстоятельства. Вопервых, выражение (14) получено в приближении «заданного» поля накачки, т.е. порог ВКР заведомо занижен. Учет истощения волны накачки, а также оттока энергии из стоксовой волны в более высокие гармоники приведет к

увеличению пороговой величины  $A_m(\omega_L)$ . Во-вторых, коэффициенты (14) соответствуют разложению поля накачки внутри частицы, а оно, как следует из теории Ми, может быть в десятки и сотни раз сильнее, чем поле падающей волны. Поэтому если определять порог вынужденного рассеяния света в частице как некоторую пороговую величину интенсивности возбуждающей световой волны до ее падения на частицу  $I_{st}(\omega_L)$ , при которой происходит генерация вынужденного излучения, то, выделяя амплитудную часть в выражении (14), будем иметь

$$I_{st}(\omega_L) = \frac{n_a \, \omega_s}{c g_s Q_n \left| b_m(x_a) \right|^2 S_4},\tag{15}$$

где коэффициент  $b_m(x_a)$  учитывает степень модификации поля падающей волны морфологией частицы.

### 3. Коэффициент пространственного перекрытия световых полей в сферической частице

Выше было получено выражение для пороговой интенсивности накачки, приводящей к смене режима спонтанного рассеяния на вынужденное [выражение (15)]. Подобный результат может быть получен также в рамках иного подхода, основанного на законе сохранения электромагнитной энергии в облученной частице [16]. Этот закон для векторов электромагнитного поля рассеянной волны в принятых выше обозначениях запишется в виде

$$\frac{dW_s}{dt} = P_g - (P_a + P_r),\tag{16}$$

где  $P_g = -\frac{1}{2} \int_V \operatorname{Re} \left\{ \widetilde{\mathbf{E}}_s^* \left( \partial \widetilde{\mathbf{P}}_s / \partial t \right) \right\} d\mathbf{r}' - \mathbf{y}$ средненная мощность

источников стоксовой волны.

Из условия  $\frac{dW_s}{dt} = 0$  следует выражение для пороговой интенсивности накачки, обеспечивающей режим ВР в прозрачной частице:

$$I_t(\omega_L) = \frac{n_a \,\omega_s}{g_s \, Q(\omega_s) \, B_c(\omega_L, \,\omega_s)},\tag{17}$$

где  $Q(\omega_s)$  – суммарная добротность частицы на частоте  $\omega_s$ , а  $B_c(\omega_L, \omega_s)$  – интегральный коэффициент, учитывающий пространственное перекрытие взаимодействующих полей внутри частицы:

$$B_{c}(\omega_{L}, \omega_{s}) = \left(\int_{V} B_{s}(\mathbf{r}) d\mathbf{r}'\right)^{-1} \int_{V} B_{s}(\mathbf{r}) B_{L}(\mathbf{r}) d\mathbf{r}'.$$
 (18)

В выражении (18)  $B_L(\mathbf{r})$ ,  $B_s(\mathbf{r})$  есть известные в теории Ми функции неоднородности внутреннего поля на частотах  $\omega_L$ 

и  $\omega_s$  соответственно [33], и в случае, когда поля  $\widetilde{\mathbf{E}}_L$  и  $\widetilde{\mathbf{E}}_s$  являются одномодовыми,

$$B_{s}(\mathbf{r}) = \left| b_{n}(x_{a}) \right|^{2} [\mathbf{E}_{n}(\mathbf{r}) \mathbf{E}_{n}^{*}(\mathbf{r})],$$
$$B_{L}(\mathbf{r}) = \left| b_{m}(x_{a}) \right|^{2} [\mathbf{E}_{m}(\mathbf{r}) \mathbf{E}_{m}^{*}(\mathbf{r})].$$

Землянов А.А., Гейнц Ю.Э.

Коэффициент перекрытия полей  $B_c(\omega_L, \omega_S)$  при этом приобретает следующий вид:

$$B_c(\omega_L,\omega_s) = \left| b_m(x_a) \right|^2 S_4,$$

а выражение для порога ВКР (17) переходит в формулу (15).

Пороговые значения  $I_t$  для процессов ВКР и ВРМБ в водных каплях при варьировании их радиуса приведены в работах [16, 34]. В [34] исследовано также поведение коэффициента перекрытия  $B_c$  для различных вариантов реализации процессов вынужденного рассеяния в сферических частицах. На рис. З сведены вместе зависимости коэффициента  $B_c$  от полуширины резонансов  $\Gamma = x_a/Q$  на частоте рассеянной волны для трех процессов: ВКР, ВКР при «двойном» резонансе оптических полей (накачка и стоксова волна) и ВРМБ. Данные на рисунке получены из численных расчетов коэффициента  $B_c$ , проведенных при различных конфигурациях пространственного перекрытия резонансных мод в водных частицах. Каждая группа данных (точки одного вида) для наглядности соединена сплайном.



Рис. 3. Зависимость коэффициента пространственного перекрытия полей  $B_c$  от полуширины резонансных мод сферической частицы Г при ВКР (1), ВКР «двойного» резонанса (2) и ВРМБ (3). Верхняя шкала – радиационная добротность резонансных мод  $O_n^r$ 

В первую очередь обращает на себя внимание различие в поведении зависимости  $B_c(\Gamma)$  при ВКР и ВРМБ. Если в первом случае данная зависимость монотонна, то зависимость  $B_c(\Gamma)$  для ВРМБ имеет явно выраженный максимум, который связан с нарушением условий резонанса для поля накачки. Таким образом, справа от максимума кривой  $B_c(\Gamma)$  для ВРМБ вынужденный процесс протекает при обоюдном резонансе взаимодействующих полей накачки и рассеянной волн, а слева от максимума наблюдается только резонанс для стоксовой волны.

Различия наблюдаются также и в величинах коэффициента перекрытия для одно- и двухрезонансного ВКР. При резонансной накачке ВКР в частице значения  $B_c$  существенно выше и имеют тенденцию к росту с уменьшением полуширины резонансных мод за счет увеличения их добротности. При нерезонансной накачке зависимость уже обратная. В этом случае падение коэффициента  $B_c$  связано с сужением резонансного максимума пространственного распределения поля рассеянной волны при одновременном его смещении по радиусу к поверхности частицы, где поле накачки имеет локальный минимум. В пределе очень узких резонансов ( $\Gamma \le 10^{-7}$ ) пространственная конфигурация поля накачки в сферической частице, учитываемая коэффициентом  $B_c$ , уже не оказывает влияния на процесс вынужденного рассеяния и значения  $B_c$  близки к единице, как в случае с протяженной средой.

При всех отмеченных выше различиях представленные на рисунке зависимости  $B_c(\Gamma)$  имеют одно общее свойство, а именно все они при больших  $\Gamma$  сходятся к одному уровню  $B_c \approx 4,5$ . В этом интервале «широких» собственных мод их резонансная природа становится практически неявной, и превышение значений коэффициента перекрытия над единичным уровнем обусловлено лишь фокусировкой падающего поля сферической поверхностью частицы.

### 4. Влияние деформаций поверхности сферических микрочастиц на добротность их собственных резонансных мод

Как следует из предыдущего изложения, параметр эффективной добротности Q является важнейшей характеристикой, оказывающей влияние на процессы нелинейного взаимодействия световых полей в оптических резонаторах. При этом сама величина добротности, помимо зависимости от оптических постоянных вещества. существенным образом зависит также от геометрической формы микрорезонатора. Если говорить о сферических частицах, то любые деформации их поверхности в конечном итоге приводят к ухудшению резонансных свойств. Одна из причин состоит в том, что электромагнитные волны, образующие поле резонансной моды, встречая на своем пути искажения сферической поверхности частицы, рассеиваются и тем самым обусловливают добавочную эмиссию излучения из резонатора. Следует отметить, однако, что подобный подход приводит к несколько завышенным оценкам для величины Q по сравнению с наблюдаемыми величинами и не дает объяснения ряду экспериментально установленных фактов (например, эффект расщепления собственных мод по азимутальному индексу l в сферах [35], селекция низкодобротных мод в деформированных частицах [36]).

Другой и наиболее вероятной, по нашему мнению, причиной падения добротности является нарушение условий фазового синхронизма для резонансов оптических мод в частицах при наличии их деформаций. Это вызывает изменение пространственной структуры собственных колебаний и приводит к смещению частотного положения резонансов. Ниже рассмотрим данный эффект более подробно.

При оценке влияния деформаций поверхности на добротность резонансных мод будем исходить из модели формирования ВР в частице. Резонансную моду будем трактовать как стоячую волну, образованную суперпозицией двух волн, распространяющихся навстречу друг другу по границе главного сечения сферической частицы (рис. 4). Плоскость данного сечения проходит через центр сферы и наклонена к оси *z* под углом  $\theta_{nl}$ , который определяется отношением азимутального индекса резонансной моды *l* к ее номеру *n*:  $\theta_{nl} = \arccos(l/n)$ . Поскольку значение индекса *l* меняется в интервале (*n*; *-n*), то и плоскость круга, где преимущественно локализовано

поле мод, располагается под полярными углами  $\theta = 0 \div \pi/2.$ 



Рис. 4. Схема, иллюстрирующая распределение поля резонансной моды, имеющей значение азимутального индекса l. Электромагнитное поле локализовано в кольцевой зоне, наклоненной относительно экватора под углом  $\theta_{nl}$ 

Для формирования стоячей волны бегущие волны должны приходить в исходную точку с фазой, кратной  $2\pi$ , т.е. должно выполняться условие фазового синхронизма:  $ka_0 = n$ , где k – волновое число внутри частицы. Следовательно, любые деформации поверхности сферы, приводящие к изменению длины пути бегущих волн на величину  $\delta L$ , должны, для сохранения фазового синхронизма, компенсироваться соответствующим изменением величины модуля волнового вектора  $\delta k$ :  $\delta L/L_0 = \delta k/k$ , где  $L_0 = 2\pi a_0$  – геометрическая длина пути волны в идеальной сфере.

Принимая  $\xi(\theta) = a(\theta) - a_0$ , где  $a(\theta) - радиус деформированной частицы (рассматриваются симметричные по сферическому углу <math>\phi$  деформации), для приращения длины  $\delta L$  можно получить:

$$\delta L \cong \int_{\theta_{nl}}^{\pi-\theta_{nl}} \xi(\theta) d\theta \bullet \frac{2\pi a_0}{\pi-2\theta_{nl}} = \xi_A \int_{\theta_{nm}}^{\pi-\theta_{nl}} \overline{\xi}(\theta) d\theta \bullet \frac{2\pi a_0}{\pi-2\theta_{nl}}$$

где  $\xi_A$  – амплитуда деформаций поверхности;  $\overline{\xi} = \xi(\theta)/\xi_A$ .

В приближении малости смещения поверхности ( $\xi_A \ll 1$ ) будем считать, что форма деформированного главного сечения частицы также является кругом с некоторым эффективным радиусом  $a_e$ , зависящим от амплитуды и угловой структуры наложенных деформаций:

$$a_e = 1/2\pi (L_0 + \delta L) = a_0 (1 + \xi_A q_{nl}).$$

Здесь  $q_{nl} = \frac{1}{\pi - 2\Theta_{nl}} \int_{\Theta_{nl}}^{\pi - \Theta_{nl}} \overline{\xi}(\Theta) d\Theta$  – коэффициент преобразова-

ния (очевидно, что  $|q_{nl}| \leq 1$ ). Тогда для величины изменения параметра дифракции эффективной сферы  $\delta x$  для TE(TH)<sub>nl</sub>-моды получим выражение

$$\delta x = x_e - x_0 = \delta k / n_a \, a_0 = x_0 \, \xi_A \, q_{nl}, \tag{19}$$

где  $x_0$  – резонансное значение параметра дифракции невозмущенной сферы;  $x_e = k_0 a_e$ .

Для примера на рис. 5 приведена зависимость коэффициентов  $q_{nl}$  от отношения (l/n) при деформациях капель жидкости цугом пикосекундных лазерных импульсов (данные по деформациям взяты из работы [36]). Видно, что значения  $q_{nl}$  лежат в пределах  $10^{-3} \div 10^{-2}$  и максимальны для мод, лежащих в плоскости экватора капли (l = n).



Рис. 5. Зависимость коэффициентов преобразования  $q_{nl}$  от параметра (l/n) для капель воды (l) и CS<sub>2</sub>(2)

Как показывают расчеты, форма резонансной кривой собственных мод частицы соответствует лоренцеву контуру, поэтому в непосредственной окрестности какого-либо резонанса можно ввести так называемую функцию добротности:

$$Q_{\rm g}(x) = \frac{Q_0}{1 + (x - x_0)^2 / \Gamma^2}$$

где  $Q_0$  – добротность какой-либо резонансной моды невозмущенной сферы (модовые индексы опускаем для упрощения) с полушириной резонансной кривой Г. Значение данной функции при  $x = x_0$ , очевидно, совпадает с добротностью резонанса. Используя (19) и учитывая, что  $Q_0 = x_0/\Gamma$ , получим

$$Q_{\rm A}(x) = \frac{Q_0}{1 + (q_{nl}\,\xi_A\,Q_0)^2}$$

Как следует из данного выражения, чем более высокодобротной первоначально является резонансная мода (выше значения  $Q_0$ ), тем сильнее деформации оказывают влияние на ее добротность. В этом случае преимущественное развитие получают моды с меньшими значениями добротности, но наиболее устойчивые к деформациям частицы, поскольку электромагнитное поле данных мод сконцентрировано дальше от ее поверхности [12].

### Заключение

Кратко сформулируем основные результаты работы. Теоретическое рассмотрение основных эффектов вынужденного рассеяния света (ВКР, ВРМБ) в прозрачных сферических частицах показало, что основными параметрами, определяющими характер проявления различных нелинейных волновых процессов, являются эффективная добротность *Q* и коэффициент пространственного перекрытия оптических полей взаимодействующих мод *B<sub>c</sub>*. Получена система уравнений для амплитудных коэффициентов полей стоксовой и основной волн. Для двух асимптотических случаев спонтанного комбинационного рассеяния и развитого ВКР найдены соответствующие приближенные решения, а также установлено пороговое соотношение, определяющее смену данных режимов. Выполнены численные оценки, показавшие влияние пространственной структуры взаимодействующих собственных колебательных мод частицы на величину этого порога. Установлено, что коэффициент перекрытия оптических полей накачки и ВР внутри частицы, определяющий пороговую интенсивность ВР, зависит от того, насколько точно соответствуют друг другу их пространственные профили. При этом значения фактора  $B_c$  заметно увеличиваются в случае, когда частотное смещение между волнами накачки и ВР меньше полуширины линии собственного резонанса частицы (ВРМБ), либо накачка также осуществляется в резонансных условиях (ВКР «двойного» резонанса).

Установлена существенная роль деформаций формы сферических частиц на их резонансные свойства. Получено аналитическое выражение, определяющее изменение добротности собственных резонансных мод при небольших отклонениях формы частицы от сферической. Показано, что чем выше добротность резонансных мод, тем большее влияние на нее оказывают деформации поверхности частицы.

Авторы выражают искреннюю признательность сотрудникам ИОА СО РАН Е.К. Чистяковой и А.В. Пальчикову за помощь в работе.

- 1. Chýlek P. // J. Opt. Soc. Am. 1976. V. 66. № 3. P. 285–287.
- 2. Chew H., McNulty P.J., Kerker M. // Phys. Rev. A. 1976. V. 13. № 1. P. 396–404.
- 3. Rosasco G.J., Bennet H.S. // J. Opt. Soc. Am. 1978. V. 68. № 9. P. 1242–1250.
- 4. Ashkin A., Dziedzic J.M. // Appl. Opt. 1981. V. 20. № 10. P. 1803– 1814.
- 5. Owen J.F., Chang R.K., Barber P.W. // Aerosol Sci. Technol. 1982. V. 1. P. 293–302.
- 6. Qian S.-X., Snow J.B., Tzeng H.-M., Chang R.K. // Science. 1986. V. 231. № 4737. P. 486–488.
- 7. Qian S.-X., Snow J.B., Chang R.K. // Opt. Let. 1985. V. 10. № 10. P. 499–501.
- 8. Zhang J.-Z., Chang R.K. // J. Opt. Soc. Am. B. 1989. V. 6. № 2. P. 151–153.
- 9. Pinnick R.G., Biswas A., Chylek P., Armstrong R.L., Latifi H., Creegan E., Srivastava V., Jarzembski M. // Opt. Let. 1988. V. 13. № 6. P. 494–496.

- Serpenguzel A., Chen G., Chang R.K. // J. Opt. Soc. Am. B. 1992.
   V. 9. P. 871–883.
- 11. Pinnick R.G., Biswas A., Pendleton J.D., Armstrong R.L. // Appl. Opt. 1992. V. 31. № 3. P. 311–318.
- Гейнц Ю.Э., Землянов А.А., Чистякова Е.К. // Оптика атмосферы и океана. 1994. Т. 7. № 7. С. 914–928.
- Biswas A., Latifi H., Armstrong R.L., Pinnik R.G. // Opt. Let. 1989.
   V. 14. № 4. P. 214–216.
- 14. Vehring R., Schweiger G. // J. Aerosol Sci. 1995. V. 26. Suppl. 1. P. S235–S236.
- 15. Белокопытов Г.В., Пушечкин Н.П. // Письма в ЖТФ. 1991. Т. 17. Вып. 22. С. 71–75.
- 16. Гейнц Ю.Э., Землянов А.А. // Оптика атмосферы и океана. 1997. Т. 10. № 4–5. С. 500–515.
- 17. Гейнц Ю.Э., Землянов А.А., Пальчиков А.В. // Оптика атмосферы и океана. 1998. Т. 11. № 9. С. 959–966.
- 18. Землянов А.А. // Квантовая электроника. 1974. Т. 1. № 9. С. 2085–2088.
- Zuev V.E., Zemlyanov A.A., Kopytin Yu. D., Kuzikovskii A.V. Highpower laser radiation in atmospheric aerosols. Dordrecht. Holland: D. Reidel Publ. Corp., 1984.
- 20. Zhang J.-Z., Chang R.K. // Opt. Let. 1988. V. 13. №. 10. P. 916–918.
- 21. Hill S.C., Rushforth C.K., Barber R.E., Conwell P.R. // Appl. Opt. 1985. V. 24. № 15. P. 2380–2390.
- 22. Acker W.P. et al. // Appl. Phys. 1990. B 51. P. 9-16.
- 23. Schweiger G. // Part. Charact. 1987. V. 4. P. 67-73.
- 24. Kwok A.S., Chang R.K. // Optics & Photonics News. 1993. №12. Р.34. 25. Ораевский А.Н., Скалли М., Величанский В.Л. // Квантовая элек-
- троника. 1998. Т. 25. № 3. С. 211–216. 26. *Little B., Haus H., Ippen E., Steinmeyer G., Thoen E. //* Optics & Photonics News. 1998. V. 9. № 12. Р. 32–33.
- 27. Ханин Я.И. Динамика квантовых генераторов. (Квантовая радиофизика. Т. 2). М.: Сов. радио, 1975. 496 с.
- Вайнштейн Л.А. Открытые резонаторы и открытые волноводы. М.: Сов. радио, 1966. 518 с.
- Климонтович Ю.Л. Волновые и флуктуационные процессы в лазерах. М.: Наука, 1974. 432 с.
- 30. Путхов Г., Пантел Р. Основы квантовой электроники. М.: Мир, 1972. 384 с.
- 31. Шен И.Р. Принципы нелинейной оптики. М.: Наука, 1989. 560 с.
- 32. Понтрягин Л.С. Обыкновенные дифференциальные уравнения. М.: Наука, 1970. 332 с.
- Пришивалко А.П. Оптические и тепловые поля внутри светорассеивающих частиц. Минск: Наука и техника, 1983. 190 с.
- 34. Гейнц Ю.Э., Землянов А.А., Чистякова Е.К. // Оптика атмосферы и океана. 1998. Т. 11. № 1. С. 34–42.
- 35. Swindal J.C., Leach D.H., Chang R.K., Young K. // Opt. Lett. 1993. V. 18. № 3. P. 191–193.
- 36. Hartings J.M., Pu X., Cheung J.L., Chang R.K. // J. Opt. Soc. Am. B. 1997. V. 14. № 11. P. 2842–2849.

### A.A. Zemlyanov, Yu.E. Geints. Nonlinear Effects of Light Stimulated Scattering in Spherical Particles.

Effects of stimulated Raman scattering and Mandelstamm – Brillouin stimulated scattering of light in transparent spherical particles are described theoretically. A system of equations for amplitude coefficients of fields of stokes and principal waves has been obtained and investigated. A relationship is obtained for the threshold of a change of spontaneous scattering by stimulated Raman scattering. Significant influence of spatial structure of interacting vibrational eigenmodes of a particle on the threshold magnitude has been shown. It is found that the higher is the Q-factor of the resonance modes the more it is affected by the particle surface deformations, which can be spontaneous or associated with an action of pondermotive forces of the light field.