

А.А. Землянов, Ю.Э. Гейнц

Резонансное возбуждение светового поля в слабопоглощающих сферических частицах фемтосекундным лазерным импульсом. Особенности нелинейно-оптических взаимодействий

Институт оптики атмосферы СО РАН, г. Томск

Поступила в редакцию 3.05.2001 г.

На основе численного решения линейной задачи о дифракции плоской волны фемтосекундной длительности на слабопоглощающей сферической частице исследована пространственно-временная структура светового поля внутри сферы. Установлено существование многомодового режима возбуждения мод шепчущей галереи (ШГ). Проанализировано влияние отношения ширины частотного спектра возбуждаемой моды ШГ к ширине частотного спектра импульса. Показано, что уменьшение данного фактора при переходе от случая монохроматической волны к фемтосекундному импульсу приводит к значительному снижению интенсивного внутреннего поля в местах его максимумов. Показана возможность генерации вынужденных излучений в микрочастице на стоксовых частотах и частотах третьей гармоники.

Введение

Прогресс в генерации мощных лазерных фемтосекундных импульсов существенно расширяет рамки использования лазеров для изучения окружающей среды. Благодаря высокой интенсивности ($\sim 10^{13} + 10^{15}$ Вт/см²), сверхмалой длительности (до нескольких фемтосекунд) и широкому спектральному интервалу таких импульсов [1], возникают новые возможности в диагностике параметров газовой-аэрозольных сред с высоким пространственным разрешением и чувствительностью [2, 3].

К настоящему времени проведены первые эксперименты, показавшие высокую эффективность использования фемтосекундных технологий в задачах зондирования атмосферы [2].

В атмосферной оптике получило свое развитие новое научное направление – фемтосекундная атмосферная оптика [4]. В рамках данной проблемы большой интерес представляет задача о взаимодействии мощного фемтосекундного излучения с аэрозольной компонентой. Возбуждение различных типов вынужденных рассеяний в микрочастицах позволяет определять химический состав вещества аэрозольных частиц и в ряде случаев осуществлять диагностику их размеров [5]. Наряду с этим важные для атмосферной оптики теоретические и экспериментальные работы по нелинейной фемтосекундной оптике аэрозолей представляют самостоятельный интерес и для другой области оптических исследований – оптики микрорезонаторов и связанной с ней спектроскопией вещества в микрочастицах.

В нелинейной оптике аэрозолей в квазистационарных световых полях изучены процессы вынуж-

денных рассеяний света: вынужденного комбинационного рассеяния (ВКР), вынужденного рассеяния Мандельштама – Бриллюэна (ВРМБ), вынужденной флуоресценции (ВФ) [6, 19]. Получены экспериментальные [7, 8, 10] и теоретические [9] результаты по генерации третьей гармоники (ТГГ) в микрочастицах.

В [7] установлено, что для квазистационарных режимов возбуждения ТГГ в микрочастице возникает наряду с генерацией ВКР, причем результирующий спектр состоит из отдельных линий, начиная от линий третьей гармоники ВКР q -го порядка ($q = 1, 2, \dots$) $3\omega_{sq}$ и заканчивая частотой $3\omega_0$ (ω_0 – частота лазерного излучения). Для данных режимов эффективность ТГГ низка, и ее интенсивность составляет обычно $\sim 10^{-4} + 10^{-6}$ от интенсивности ВКР [8].

В эксперименте [10] был зарегистрирован сигнал третьей гармоники от аэрозольных частиц при облучении их импульсами Ti:Sapphire-лазера длительностью 80 фс и пиковой мощностью $\sim 5,3$ ГВт. Частота повторения лазерных импульсов составляла 1 кГц, а центр спектра излучения источника располагался вблизи 820 нм. Использовались капли воды размерами от 1 до 32 мкм. Исследовались также и угловые характеристики излучения. Экспериментальный порог наблюдения сигнала ТГ составил $5 \cdot 10^{11}$ Вт/см². Экспериментальные данные по регистрации другого важного эффекта – ВКР, возбужденного фемтосекундным импульсом в частице, в литературе отсутствуют.

В последнее время получены новые результаты по фемтосекундной нелинейной оптике протяженных сред. Они представляют значительный интерес для нелинейной оптики аэрозолей. Для фемтосекундных импульсов с длительностью t_p короче, чем период молекулярных колебаний в веществе T_R , проявление

ВКР имеет свои особенности по сравнению с квазистационарным режимом. Для такого импульса, распространяющегося вдоль комбинационно-активной среды, происходит нелинейное преобразование каждой его Фурье-компоненты, что влечет перестройку всего спектра импульса – происходит смещение в красную область [11, 13].

В [14] предсказаны эффект «очистки» импульса от высокочастотных компонент и его преобразование в ИК-фемтосекундный импульс.

Другой интересный эффект был экспериментально обнаружен в [12]. При воздействии на комбинационно-активную среду цуга фемтосекундных импульсов с периодом следования, равным периоду молекулярных колебаний, возникали вынужденные молекулярные колебания. Свойства их изучались по рассеянию пробной световой волны.

Очевидно, что условия проявления подобных эффектов в микрочастицах будут иные. Это связано с существенно отличным характером пространственно-временного поведения оптических полей в частице-микрорезонаторе по сравнению с бегущими волнами.

Важной особенностью фемтосекундного лазерного импульса является его широкополосность. Ширина спектра импульса $\Delta\omega_p$ обратно пропорциональна длительности t_p и может составлять $\Delta\omega_p \sim 10^{15} \div 10^{16}$ Гц для $t_p \approx 10^{-14} \div 10^{-15}$ с. Столь широкий частотный диапазон позволяет осуществить в частице возбуждение большого числа высокооборотных резонансных мод, так называемых мод шепчущей галереи (ШГ), наличие которых способствует эффективному нелинейному взаимодействию волн. В модах ШГ значительно увеличивается время взаимодействия оптических полей, что для случая бегущих волн эквивалентно увеличению дистанции их взаимодействия. Таким образом, для фемтосекундного импульса снимаются строгие ограничения по настройке частоты падающего поля на резонансы частицы и возрастает эффективность связи мод при их нелинейном взаимодействии. В микрорезонаторе не все моды находятся в одинаковых энергетических условиях, и только моды ШГ могут активно участвовать в процессе.

Важным звеном исследований по нелинейно-оптическим взаимодействиям в микрочастице является изучение резонансных структур их внутреннего оптического поля. Решение этой задачи и рассмотрено в данной статье. Кроме того, в статье дается анализ особенностей нелинейных взаимодействий оптических полей для фемтосекундного импульса в микрочастице.

1. Оптическое поле сверхкороткого импульса в диэлектрической сфере

Обсуждаемая задача относится к классу задач дифракции нестационарного и, в общем случае, неоднородного светового поля на диэлектрической сфере. Методика решения подобных задач обсуждалась, например, в [15–17]. Рассмотрим основные моменты теорети-

ческого описания переходной стадии формирования внутреннего оптического поля в сферических диэлектрических частицах в линейной постановке. Оценка влияния нелинейных эффектов будет проведена в разделе 3. Будем считать, что частица расположена в начале координат, а дифрагирующий на ней лазерный импульс распространяется вдоль оси z . Напряженность электрического поля в падающем излучении запишем в виде

$$\mathbf{E}_0(\mathbf{r}; \tau) = 1/2 E_0 \mathbf{p}_e g(\tau) H(\mathbf{r}_\perp) \exp(i\omega_0\tau) + \text{к.с.}, \quad (1)$$

где $\omega_0 = 2\pi f_0$, f_0 – несущая частота импульса; E_0 – действительная амплитуда поля; $g(\tau)$, $H(\mathbf{r}_\perp)$ – временной и пространственный профили импульса соответственно; $\mathbf{r} = \mathbf{r}_\perp + \mathbf{e}_z z$; \mathbf{e}_z – единичный вектор в направлении оси z ; $\tau = t - z/c$ – время, отсчитываемое в системе координат, движущейся вместе со световым импульсом (далее «смещенное» время); c – скорость света; \mathbf{p}_e – вектор, определяющий направление поляризации световой волны.

Для того чтобы рассчитать распределение внутреннего оптического поля частицы и применить результаты теории Ми, необходимо сначала перейти из временных координат в область спектральных частот, представив исходный световой импульс его спектральным Фурье-образом:

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_0(\mathbf{r}; \omega) &= \int_{-\infty}^{\infty} \mathbf{E}_0(\mathbf{r}; \tau) \exp(-i\omega\tau) d\tau = \\ &= E_0 \mathbf{p}_e H(\mathbf{r}_\perp) G(\omega - \omega_0), \end{aligned} \quad (2)$$

где $G(\omega - \omega_0) = \int_{-\infty}^{\infty} g(\tau) \exp\{-i(\omega - \omega_0)\tau\} d\tau$ – Фурье-образ функции $g(\tau)$. Аналогично, проводя обратное преобразование, получим

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_0(\mathbf{r}; \tau) &= \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \mathbf{E}_0(\mathbf{r}; \omega) \exp(i\omega\tau) d\omega = \\ &= \frac{1}{2\pi} \mathbf{p}_e H(\mathbf{r}_\perp) \int_{-\infty}^{\infty} E_0 G(\omega - \omega_0) \exp(i\omega\tau) d\omega. \end{aligned} \quad (3)$$

Формально данное соотношение определяет исходный импульс излучения в виде суммы бесконечно-го числа элементарных монохроматических волн с амплитудами $A(\omega) = E_0 G(\omega - \omega_0) d\omega$. Каждая из этих волн дифрагирует на частице, внося некоторый вклад $A(\omega)\mathbf{E}_s(\mathbf{r}; \omega)$ в суммарную амплитуду внутреннего поля. Величина данного вклада определяется оптическими свойствами частицы, а также пространственным профилем пучка $H(\mathbf{r}_\perp)$, что учтено в функции импульсного отклика (функции передачи) системы «частица – окружающая среда» $\mathbf{E}_s(\mathbf{r}; \omega)$. Таким образом, зависящая от времени напряженность электрического поля внутри частицы $\mathbf{E}_i(\mathbf{r}; \tau)$ выражается через обратное Фурье-преобразование от произведения частотного спектра исходного светового импульса и функции передачи:

$$\mathbf{E}_i(\mathbf{r}; \tau) = \frac{1}{4\pi} E_0 \exp(i\omega_0\tau) \times$$

$$\times \int_{-\infty}^{\infty} G(\omega) \mathbf{E}_\delta(\mathbf{r}; \omega - \omega_0) \exp(i\omega\tau) d\omega + \text{к.с.} \quad (4)$$

Функция импульсного отклика $\mathbf{E}_\delta(\mathbf{r}; \omega)$ может быть определена из стационарной теории Ми путем вычисления амплитуды внутреннего поля частицы при падении на нее монохроматической световой волны единичной амплитуды с частотой ω , вектором поляризации \mathbf{p}_e и пространственным профилем $H(\mathbf{r}_\perp)$. Так, например, в сферической системе координат $\mathbf{r} = (r, \theta, \varphi)$ функция \mathbf{E}_δ дается выражением [18, 19]:

$$\mathbf{E}_\delta(\mathbf{r}; \omega) = \frac{1}{2k_a r} \sum_{n=1}^{\infty} \sum_{m=-n}^n \{c_{nm}(x_a) \mathbf{M}_{nm}(\theta, \varphi) \psi_n(k_a r) + \frac{1}{k_a} d_{nm}(x_a) \nabla \times [\mathbf{M}_{nm}(\theta, \varphi) \psi_n(k_a r)]\} + \text{к.с.}, \quad (5)$$

где $k_a = \omega n_a / c$ – волновое число внутри частицы; $m_a = n_a + i\iota_a$ – комплексный показатель преломления; n_a – действительный показатель преломления; ι_a – показатель поглощения вещества частицы; $m = m_a / m_0$ – относительный показатель преломления (m_0 – показатель преломления окружающей среды); $x_a = k_a a_0 / n_a$, a_0 – параметр дифракции и радиус частицы соответственно; \mathbf{M}_{nm} – сферические вектор-гармоники; ψ_n, ξ_n – сферические функции Рикатти – Бесселя; c_{nm}, d_{nm} – обобщенные коэффициенты Ми, связанные с известными амплитудами парциальных волн внутреннего поля c_n, d_n для плоской волны [18] и коэффициентами формы пучка $(g_{nm})_{\text{TE}}, (g_{nm})_{\text{TH}}$ TE и TH поляризации соответственно посредством выражения [20]:

$$\begin{aligned} c_{nm} &= c_n (g_{nm})_{\text{TH}}; & d_{nm} &= d_n (g_{nm})_{\text{TE}}; \\ c_n &= i^n \frac{2n+1}{n(n+1)} \frac{-m}{\xi'_n(x_a) \psi_n(mx_a) - m \xi_n(x_a) \psi'_n(mx_a)}; \\ d_n &= i^n \frac{2n+1}{n(n+1)} \frac{m}{\xi_n(x_a) \psi'_n(mx_a) - m \xi'_n(x_a) \psi_n(mx_a)}. \end{aligned}$$

Значение коэффициентов g_{nm} определяется только конкретным профилем пучка $H(\mathbf{r}_\perp)$ и геометрией его падения на частицу.

Комбинируя выражения (4) и (5), окончательно для огибающей напряженности внутреннего поля запишем:

$$\begin{aligned} \tilde{\mathbf{E}}_i(\mathbf{r}; \tau) &= \frac{1}{4k_a r} \sum_{n=1}^{\infty} \sum_{m=-n}^n \{[s_{nm}]_{\text{TH}} \mathbf{M}_{nm}(\theta, \varphi) + \\ &+ \nabla \times [[s_{nm}]_{\text{TE}} \mathbf{M}_{nm}(\theta, \varphi)]\} + \text{к.с.}, \quad (6) \end{aligned}$$

где $[s_{nm}]$ – зависящие от времени парциальные амплитуды:

$$\begin{aligned} [s_{nm}]_{\text{TH}} &= \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\omega}{\omega} c_{nm}(\omega - \omega_0) \times \\ &\times \psi_n(\omega - \omega_0, r) G(\omega) \exp(i\omega\tau), \\ [s_{nm}]_{\text{TE}} &= \frac{c}{2\pi n_a} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\omega}{\omega^2} d_{nm}(\omega - \omega_0) \times \\ &\times \psi_n(\omega - \omega_0, r) G(\omega) \exp(i\omega\tau). \quad (7) \end{aligned}$$

При проведении численных расчетов пространственно-временной эволюции интенсивности внутреннего оптического поля частицы временной профиль воздействующего лазерного импульса был выбран гауссовым:

$$g(\tau) = \exp\{-\tau^2/t_p^2\}, \quad (8)$$

где t_p – полуширина импульса по уровню e^{-1} . Кроме того, считалось, что в пространстве световой импульс представляет собой плоскую волну, поляризованную вдоль оси y , т.е. $\mathbf{p}_e H(\mathbf{r}_\perp) = \mathbf{e}_y$. Случай дифракции ограниченного в пространстве пучка является отдельной темой и здесь затрагиваться не будет. Для функции вида (8) трансформанта Фурье также является гауссовой с полушириной спектра $\Delta\omega_p = 4\pi/t_p$ и соответственно ее можно записать в виде

$$G(\omega) = \frac{4\pi\sqrt{\pi}}{\Delta\omega_p} \exp\left\{-4\pi^2 \frac{\omega^2}{\Delta\omega_p^2}\right\}. \quad (9)$$

2. Обсуждение результатов

Порядок расчетов был следующим. Вначале с заданным шагом дискретизации ($\Delta\omega = 4\pi f_s$, f_s – частота дискретизации) в N_s точках рассчитывался спектр воздействующего импульса (9). Число узлов N_s выбиралось таким образом, чтобы всегда выполнялось условие: $N_s \Delta\omega / \Delta\omega_p \geq 3$. Затем по формулам (7) при помощи специально разработанного программного пакета теории Ми вычислялись парциальные амплитуды $[s_{nm}]$ и проводилось их суммирование согласно выражению (6) отдельно для каждой из сферических составляющих напряженности внутреннего электрического поля $\tilde{\mathbf{E}}_i(\mathbf{r}; \tau)$. Из полученных значений потом строилась безразмерная комбинация, дающая относительную интенсивность внутреннего поля (фактор неоднородности): $B(\mathbf{r}; \tau) = \frac{1}{E_0^2} |\tilde{\mathbf{E}}_i(\mathbf{r}; \tau)|^2$. И наконец,

с использованием методики сплайн-аппроксимации производилась интерполяция значений полученной четырехмерной матрицы B из смещенного времени τ в реальное время t .

Настройка размера частицы на выбранную резонансную моду осуществлялась путем поиска соответствующего экстремума в амплитудных коэффициентах c_n и d_n методом «золотого» сечения [19]. Во всех случаях расчеты производились для водных капель с $n_a = 1,33$, находящихся в воздухе, и показателя поглощения воды $\iota_a = 10^{-8}$. Несущая частота лазерного импульса задавалась $f_0 = 5,64 \cdot 10^{14}$ Гц, что соответствует длине волны излучения $\lambda_0 = 0,532$ мкм. Частотная дисперсия коэффициента преломления воды в выбранном спектральном интервале не учитывалась.

Прежде чем перейти к обсуждению результатов, кратко остановимся на характерных особенностях пространственного распределения светового поля резонансных мод сферических частиц. В общем случае электромагнитное поле внутри крупных прозрачных частиц имеет весьма сложную пространственную структуру и

характеризуется наличием множества пиков с перепадом интенсивности в $10 \sim 100$ раз. При этом максимальные значения интенсивности внутреннего поля достигаются вблизи поверхности сферы вдоль направления падения световой волны и соответствуют областям фокусировки падающей волны передней и задней поверхностями частицы (рис. 1,а).

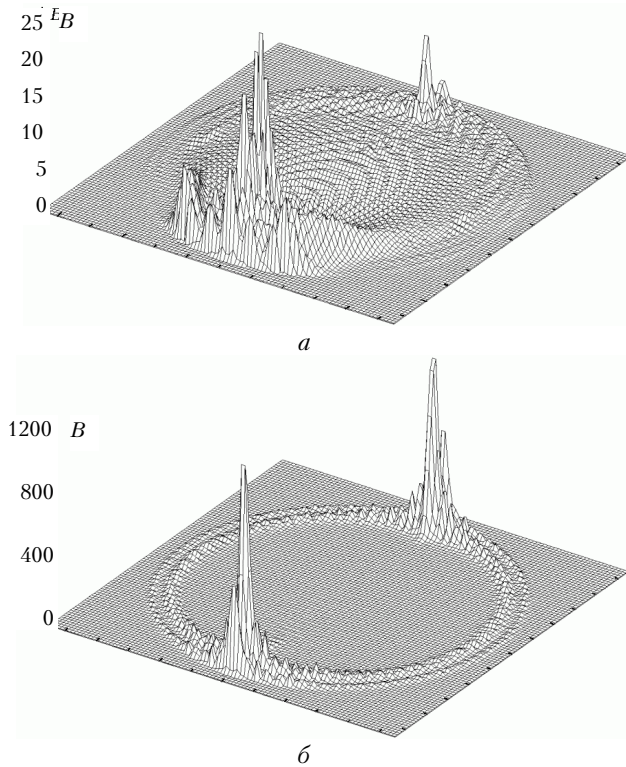


Рис. 1. Пространственное распределение относительной интенсивности оптического поля внутри водной капли радиуса $a_0 = 5$ мкм, освещенной плоской волной с $\lambda = 0,532$ мкм, в случае нерезонансного рассеяния (а) и при возбуждении резонансной $TE_{70,2}$ -моды (б)

Резонанс внутреннего поля частицы возникает при настройке частоты падающей световой волны на частоту одной из собственных мод частицы. В этом случае происходит перестройка пространственной структуры внутреннего поля, приводящая к резкому подъему интенсивности в зонах фокусировки (в сотни тысяч раз для высокодобротных резонансов), и локализация поля вблизи поверхности сферической частицы с образованием кольцевых периодических структур в форме стоячих волн (рис. 1,б). Эти приповерхностные резонансные моды, как уже отмечалось выше, получили название мод ШГ [21]. С точки зрения геометрической оптики моды ШГ соответствуют устойчивым конгруэнциям преломленных сферической поверхностью световых лучей при выполнении для них условия полного внутреннего отражения. Данные лучи как бы захватываются частицей и, распространяясь вдоль ее поверхности, образуют замкнутую область, ограниченную с одной стороны внутренней каустикой, а с другой – поверхностью частицы [22].

Резонансные моды сферических резонаторов обычно характеризуют поляризацией световой волны (ТЕ

или ТН) и двумя целыми индексами: номером моды n и ее порядком l . Если обратиться к рис. 1,б, то становится ясен физический смысл данных индексов. Номер моды равен деленному пополам числу максимумов внутреннего поля по сферическому углу θ , а порядок моды соответствует числу колец в радиальном направлении. Подобный вид поля является также и прямым следствием представления внутреннего поля в виде разложения по системе собственных мод частицы (5). При резонансе из всего ряда Ми начинает доминировать только одно слагаемое с соответствующими поляризацией и номером. При этом основная энергия резонансной моды, как и в нерезонансном случае, сосредоточена в областях фокусировки падающей световой волны, связанных между собой кольцевой структурой моды ШГ.

Теоретически добротность мод ШГ прозрачных сферических частиц Q , определяемая как отношение запасенной в моде энергии светового поля к мощности суммарных потерь в резонаторе, может быть очень большой, особенно для низкопорядковых резонансов. На практике, однако, она существенно ограничена наличием поглощения вещества резонатора, а также неидеальностью его поверхности (см. обзор в [19]). Поэтому обычно оперируют с суммарной (эффективной) добротностью резонатора Q , величина которой определяется как

$$1/Q = 1/Q_r + 1/Q_a, \quad (10)$$

где Q_r , Q_a – добротность резонатора, обусловленная радиационными потерями и поглощением излучения соответственно. Из данного соотношения видно, что величина Q будет определяться наименьшим из слагаемых.

С добротностью резонатора тесно связано и характерное время жизни резонансной моды $\tau_r = Q/\omega$, которое при $Q \sim 10^6 \div 10^8$ и частотах, лежащих в видимой области спектра, равно примерно $10^{-9} \div 10^{-7}$ с.

На рис. 2 построена зависимость времени жизни τ_r различных резонансных мод (разных модовых индексов и порядков) от параметра дифракции частиц.

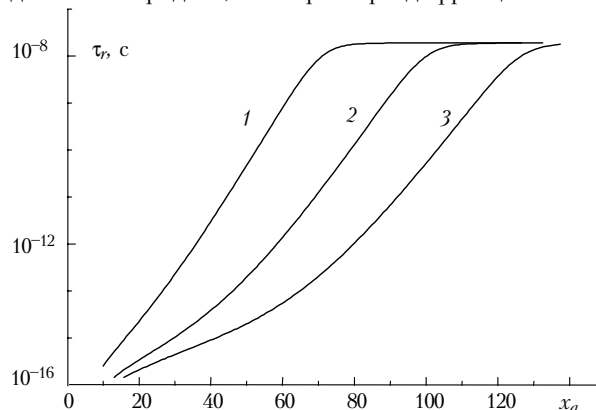


Рис. 2. Характерное время жизни τ_r различных резонансных мод ШГ, возбуждающихся в частицах, в зависимости от их параметра дифракции x_a . Номера кривых соответствуют порядку резонансных мод. Поглощение материала частицы (вода) выбрано на уровне $\iota_a = 10^{-8}$

Очевидно, что если длительность воздействующего импульса излучения $t_p < \tau_r$, то оптическое поле в частице будет существовать и после того, как лазерный импульс закончится.

Временная зависимость относительной интенсивности оптического поля, рассчитанная для $TE_{70,1}$ резонанса в капле воды с радиусом $a_0 = 5,97003$ мкм, при воздействии импульсов излучения с длительностями $t_p = 100$ пс и 10 фс, приведена на рис. 3.

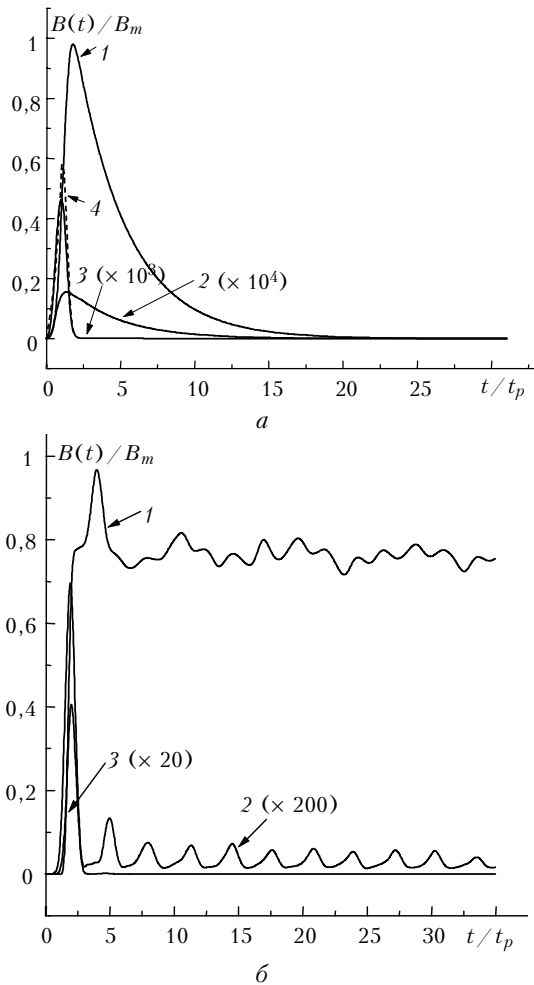


Рис. 3. Зависимость нормированного на свое максимальное значение фактора неоднородности внутреннего оптического поля частицы при возбуждении в ней $TE_{70,1}$ резонансной моды импульсом излучения длительностью $t_p = 100$ пс (а) и 10 фс (б). Зависимости даны в трех точках внутри частицы: в области фокусировки вблизи теневой поверхности (1), в кольцевой зоне моды ШГ (2) и в центральной области (3). Кривая 4 отражает временной профиль импульса (отн. ед.)

Фактор B вычислялся в трех точках, отражающих три характерные зоны внутри частицы. Это область абсолютного максимума интенсивности поля (точка 1) в теневой зоне фокусировки ($r/a_0 = 0,89$; $\theta = 0^\circ$), кольцевая зона моды ШГ (точка 2) у поверхности частицы ($r/a_0 = 0,89$; $\theta = 90^\circ$) и зона нерезонансного фона (точка 3) в центральной области капли ($r/a_0 = 0,40$; $\theta = 40^\circ$). Временная шкала на рис. 3 нормирована на длительность лазерного им-

пульса, а интенсивность – на свое максимальное по объему частицы значение.

Из рис. 3,а видно, что временная зависимость интенсивности оптического поля в точках 1 и 2 носит явно выраженный резонансный характер, экспоненциально спадая во времени с постоянной τ_r , равной $\sim 0,6$ нс для $TE_{70,1}$ -моды. В то же время в точке 3 интенсивность внутреннего поля полностью повторяет временной профиль воздействующего импульса (показан пунктиром). При существенно более коротком импульсе излучения (рис. 3,б) характер данных зависимостей меняется.

Во-первых, вместо плавного падения интенсивности в резонансных областях внутреннего поля происходят ее колебания около некоторого практически неизменного уровня. Данный факт связан с тем, что выбранный интервал рассмотрения (350 фс) много меньше времени жизни резонансной моды τ_r и относительное время ее существования достаточно велико ($\tau_r/t_p \sim 6 \cdot 10^4$).

Во-вторых, отличием от предыдущего случая является само наличие колебаний интенсивности в резонансе. В кольцевой зоне ШГ эти пульсации носят регулярный характер, причем их период коррелирует с временем пробега светового импульса по окружности частицы $2\pi a_0$, что составляет для рассматриваемого случая время ~ 50 фс. Данное обстоятельство косвенно подтверждает физическую трактовку резонансов в частицах как стоячей волны, образованной интерференцией двух сфазированных волн, распространяющихся навстречу друг другу вдоль поверхности частицы.

Как следует из принципов спектрального анализа сигналов, укорочение сигнала во времени сопровождается расширением его частотного спектра. В случае гауссова временного профиля сигнала (8), как известно, выполняется соотношение $(t_p \Delta\omega_p) = 4\pi$. Следовательно, при $t_p = 100$ пс полуширина спектра лазерного импульса $\Delta\omega_p \approx 1,3 \cdot 10^{11}$ Гц в то время как при $t_p = 10$ фс $\Delta\omega_p$ составляет уже $\sim 1,3 \cdot 10^{15}$ Гц, что сопоставимо с величиной несущей частоты импульса ω_0 . Это приводит к тому, что спектральная функция импульсного отклика частицы $E_8(\omega)$ в режиме коротких импульсов приобретает другой вид в отличие от квазистационарного возбуждения.

На рис. 4 приведена максимальная по объему частицы интенсивность внутреннего поля B_m в зависимости от относительной расстройки частоты облучающей частицу световой волны от ее резонансного значения: $\bar{\Delta\omega} = (\omega - \omega_r)/\omega_r$. Следует обратить внимание на то, что диапазон изменения частотной расстройки $\bar{\Delta\omega}$ на рис. 4 различен и отражает величину спектральной ширины дифрагирующего импульса. Из рис. 4 видно, что при $t_p = 10$ фс в спектр импульса попадает несколько достаточно интенсивных резонансов, соответствующих модам ШГ. С другой стороны, для $t_p = 100$ пс спектральная ширина исходного импульса излучения значительно уже и содержит только центральную резонансную моду ($\omega_r = \omega_0$).

Таким образом, широкий спектр коротких импульсов способен возбуждать одновременно несколько мод ШГ в частице, поля которых, накладываясь

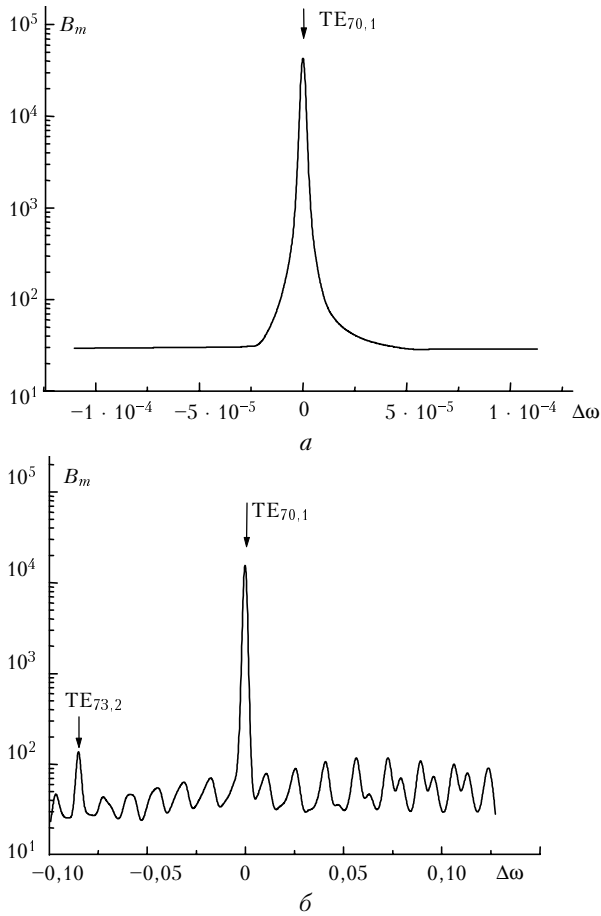


Рис. 4. Максимальная по объему частицы интенсивность внутреннего поля B_m в зависимости от относительной расстройки частоты облучающей частицу световой волны $\Delta\omega$. Рисунки соответствуют двум различным ситуациям воздействия лазерных импульсов: $t_p = 100$ пс (а) и 10 фс (б). Стрелками показаны положения наиболее интенсивных резонансных мод

друг на друга, обуславливают временную зависимость интенсивности суммарного поля в зоне ее максимума в виде характерных волновых колебаний. Амплитуда данных колебаний зависит от величины дефазировки резонансных полей. Расчеты показывают, что увеличение радиуса частицы и связанное с этим сгущение частотных мод по спектральной шкале приводят к уменьшению амплитуды наблюдающихся колебаний интенсивности.

Используя теорию Ми, а также лучевую асимптотику мод ШГ [22, 23], можно оценить среднее число резонансов, которые могут одновременно возбуждаться в частице при падении на нее импульса излучения с полушириной спектра $\Delta\omega_p$. Для этого вводится понятие спектральной плотности резонансных мод $f_m(\omega)$ как числа наиболее интенсивных резонансов (обеих поляризаций), приходящихся на единичный частотный интервал:

$$f_m(\omega) = \frac{2\omega_0 a_0}{\pi c} (n_a^2 - 1)^{1/2} \left[\frac{(n_a^2 - 1)^{1/2}}{\arctg \{(n_a^2 - 1)^{1/2}\}} - 1 \right]. \quad (11)$$

Здесь учтены только те резонансные моды, поле которых сосредоточено внутри так называемой переходной зоны [23], ограниченной внешней каустикой с радиусом $r_c = (n + 1/2) c / \omega_0$. Внешняя каустика, в свою очередь, образована световыми лучами, падающими на внутреннюю поверхность частицы под углом полного внутреннего отражения.

Интегрируя (11) в частотном интервале $2\Delta\omega_p$, получим полное число мод ШГ в частице

$$N_m = \int_{2\Delta\omega_p} f_m(\omega') d\omega' \approx K(n_a) \frac{a_0}{c^2} \omega_0^2 \left(\frac{\Delta\omega_p}{\omega_0} \right) \quad (12)$$

где $K(n_a) \approx 0,416 (n_a^2 - 1)^{1/2} (n_a - 1)$, $1 < n_a < 2$.

На рис. 5 построено число резонансов N_m в зависимости от длительности возбуждающего импульса t_p , связанной с $\Delta\omega_p$ посредством (9), для частиц различных

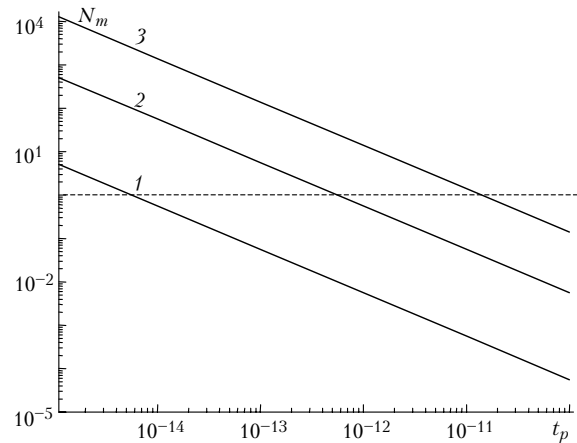


Рис. 5. Среднее число резонансных мод ШГ N_m , которые могут одновременно возбуждаться в частицах различного радиуса $a_0 = 1$ (1); 10 (2); 50 мкм (3) при падении на них импульсов излучения с длительностью t_p . Штриховая линия соответствует уровню $N_m = 1$

радиусов. Из рис. 5 видно, что импульсы пико- и субпикосекундной длительности могут реализовать многомодовое возбуждение только в крупных частицах, в то время как малые частицы ($a_0 < 1$ мкм) вследствие своих низких резонансных свойств способны поддерживать только одну резонансную моду практически во всем рассматриваемом интервале длительностей импульсов. Тот факт, что для таких частиц $N_m < 1$, не является ошибкой и говорит о том, что осуществить резонансное возбуждение малых частиц возможно только при специальной настройке на резонанс путем подбора частоты падающего излучения. В то же время при $N_m \gg 1$ оптическое поле внутри частиц всегда находится в резонансе с целым набором мод ШГ. А поскольку эти собственные моды являются независимыми, то все они могут быть поддержаны падающим излучением. Заметим, однако, что конкуренция между различными резонансными

модами будет всегда присутствовать, причем среди основных факторов, осуществляющих конкурентный отбор, можно назвать параметр эффективной добротности моды Q (выражение (10)) и степень удаленности резонансной частоты моды ШГ ω_r от центра спектра воздействующего импульса ω_0 .

Другим вопросом, представляющим интерес при исследовании возбуждения резонансов поля в частицах сверхкоротким излучением, является изучение максимально возможного уровня фокусировки интенсивности внутреннего поля по сравнению с интенсивностью воздействующего импульса или, другими словами, исследование зависимости максимальных значений фактора неоднородности внутреннего поля B_m в резонансной моде от длительности лазерного импульса. Важность данного вопроса обусловлена тем, что фактор B играет одну из ключевых ролей в процессах нелинейного взаимодействия волн в микрорезонаторах, оказывая непосредственное влияние на эффективность их связи [19].

Максимум интенсивности внутреннего поля, как следует из предыдущего изложения, расположен вблизи теневой поверхности частицы и обусловлен фокусирующими свойствами сферической поверхности. А так как частотный спектр лазерного импульса $\Delta\omega$ и спектр мод ШГ $\Delta\omega_r = \omega_r/Q$ имеют конечную ширину, то эффективность возбуждения данных резонансных мод в конечном счете будет определяться соотношением этих величин. Если возбуждающий импульс имеет узкий спектр, причем такой, что $\Delta\omega_p \ll \Delta\omega_r$ (режим длинных импульсов или непрерывного излучения), то вся его энергия целиком передается в резонансную моду. При обратном соотношении $\Delta\omega_p \gg \Delta\omega_r$ (короткие импульсы) мода ШГ «забирает» только часть энергии импульса излучения, которая переносится спектральными составляющими, заключенными в частотном интервале $\omega_0 - \Delta\omega_r/2 \leq \omega \leq \omega_0 + \Delta\omega_r/2$. Интенсивность внутреннего поля, а значит, и эффективность возбуждения резонанса в этом случае должны падать.

Приведенные рассуждения иллюстрирует рис. 6, где показана зависимость максимального значения фактора неоднородности B_m от параметра $\gamma = (\Delta\omega_r/\Delta\omega_p)$ при возбуждении в сферических частицах различных резонансных мод. На графике видна переходная зона в представленных зависимостях с центром около $\gamma = 1$, в которой начинается падение величины B_m при укорочении длительности импульса излучения (уменьшение параметра γ). Данная тенденция становится еще более очевидной, если произвести нормировку кривых на соответствующее значение величины B_m для каждого резонанса, достигаемое в пределе непрерывного излучения $t_p \rightarrow \infty$. Результат такой нормировки приведен на рис. 7. В первую очередь обращает на себя внимание то, что все построенные для различных мод ШГ кривые при изменении параметра γ в диапазоне $0,1 \div 10$ сходятся на одну зависимость, имеющую характерный профиль экспоненциального падения величины. Если из спектральной области вновь перейти во временные масштабы, то условию

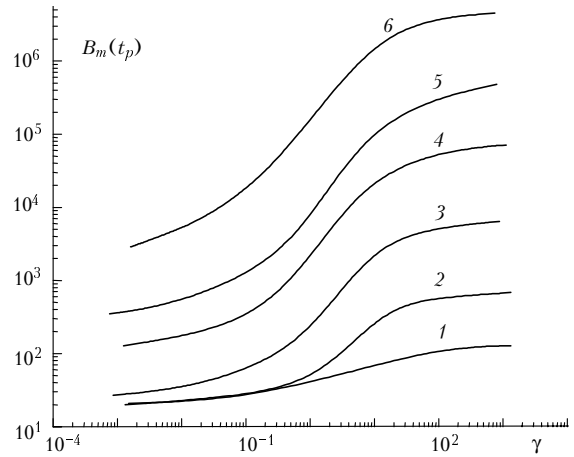


Рис. 6. Зависимость максимальных значений фактора неоднородности оптического поля B_m возбуждаемых в частице резонансных мод от параметра отношения частотной полуширины этих мод к полуширине лазерного импульса γ . Показаны моды $TE_{85,3}$ (1); $TE_{70,2}$ (2); $TE_{85,2}$ (3); $TE_{100,2}$ (4); $TE_{70,1}$ (5); $TE_{85,1}$ (6)

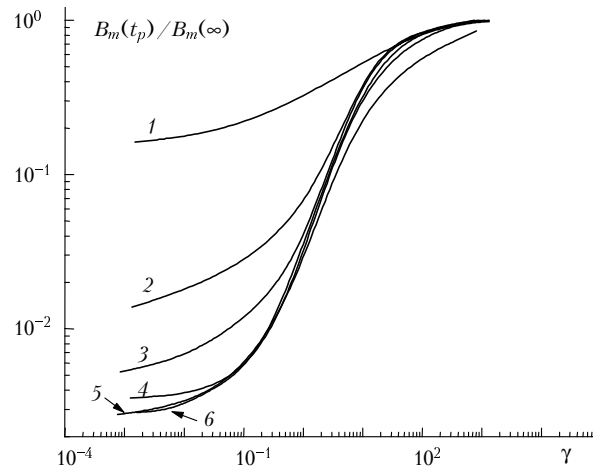


Рис. 7. То же, что и на рис. 6, для значений фактора неоднородности B_m , нормированных на уровень, достигаемый в пределе непрерывного излучения ($t_p \rightarrow \infty$) для каждого резонанса

эффективного возбуждения резонансов в частице $\gamma > 1$ будет соответствовать неравенство $t_p > t_r$. Таким образом, проводя аналогию с линейным случаем взаимодействия бегущих волн, можно утверждать, что в сферическом резонаторе перекачка энергии из основной волны в поле резонансной моды происходит тем эффективнее, чем больше время взаимодействия этих волн.

Следствием расширения спектра воздействующего импульса излучения является, как уже отмечалось выше, возможность одновременного возбуждения нескольких резонансных мод в частице. Многомодовое возбуждение приводит, с одной стороны, к временным колебаниям суммарной интенсивности внутреннего поля (см. рис. 3,б), а с другой – к некоторому ее подъему за счет вклада различных мод при пространственном наложении их полей, что и наблюдается на рис. 7 при $\gamma \ll 1$. И чем более долгоживущей является центральная мода ШГ (мода с собственной частотой ω_0), тем слабее этот вклад.

Сравнение зависимостей интенсивности поля в различных пространственных зонах резонансной моды от параметра γ показало, что уменьшение длительности светового импульса практически не сказывается на величине интенсивности внутреннего поля в приповерхностной кольцевой зоне моды ШГ (точка 2 на рис. 3), в то время как в зонах фокусировки лучей интенсивность поля изменяется, например для $TE_{70,1}$ -моды, почти на три порядка величины (рис. 8).

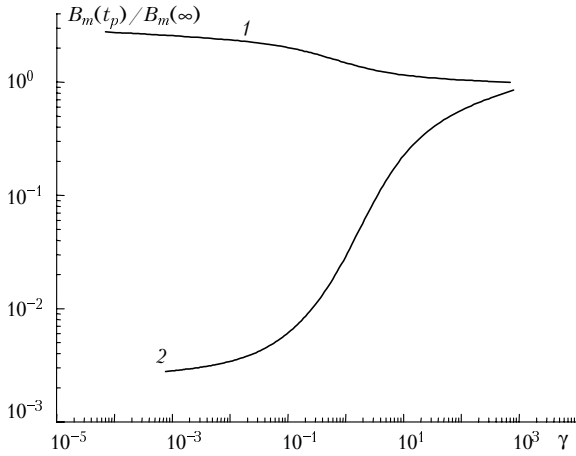


Рис. 8. Зависимость относительной интенсивности оптического поля в различных пространственных зонах $TE_{70,1}$ резонансной моды от параметра γ : область фокусировки вблизи теневой поверхности частицы (1), кольцевая зона моды ШГ (2)

Объясняется это тем, что практически вся энергия резонансной моды сосредоточена в области абсолютных максимумов поля. Поэтому эффект оттока энергии светового поля из центральной резонансной моды в соседние моды, которые возбуждаются уже не столь эффективно, сильнее всего сказывается именно на области максимума поля.

3. Особенности нелинейных взаимодействий оптических полей фемтосекундного импульса в микрочастице

В предыдущем разделе было отмечено, что, благодаря широкому спектру фемтосекундного лазерного импульса внутри микрочастицы, одновременно могут возбуждаться несколько или множество мод ШГ, т.е. реализуется многомодовый режим возбуждения резонансных мод. Эти моды способны генерировать нелинейные волны в различных спектральных интервалах.

Запишем сначала наиболее общие соотношения, характеризующие нелинейно-оптические взаимодействия в веществе частицы. Эффекты нелинейной оптики ультракоротких импульсов для жидких микрочастиц связаны с наличием нелинейной поляризации среды третьего порядка [1]. Соответствующий действительный вектор нелинейной поляризации \mathbf{P}_{NL} представляется в виде [24]:

$$\mathbf{P}_{NL} = N_0 Q_m \mathbf{E} + \hat{\chi}_e^{(3)} \mathbf{E} \mathbf{E} \mathbf{E}. \quad (13)$$

В (13) первое слагаемое ответственно за вклад в нелинейную поляризацию среды вынужденного комбинационного (рамановского) рассеяния света, а второе – за вклад электронной поляризуемости, приводящей к генерации третьей гармоники. Обозначения имеют следующий смысл: \mathbf{E} – действительный вектор электрического поля в среде; N_0 – число молекул в единице объема; Q_m – координата смещения ядер в молекуле; $\hat{\chi}_e^{(3)}$ – тензор электронной восприимчивости вещества третьего порядка. Для жидкости роль восприимчивости второго порядка, приводящая, в частности, к генерации второй гармоники, чрезвычайно мала. Отметим, что электронная поляризуемость практически мгновенно следует за полем. В то же время эффект ВКР более инерционен.

Нелинейная поляризация является источником нелинейных оптических волн в частице. Уравнение для электрического поля имеет вид

$$\begin{aligned} \text{rot rot } \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) + \frac{\epsilon_a}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{E}(\mathbf{r}, t)}{\partial t^2} + \frac{4\pi\sigma}{c^2} \frac{\partial \mathbf{E}(\mathbf{r}, t)}{\partial t} = \\ = - \frac{4\pi}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathbf{P}_{NL}(\mathbf{r}, t), \end{aligned} \quad (14)$$

где ϵ_a , σ – диэлектрическая проницаемость и удельная проводимость вещества частицы соответственно. Среда в частице считается однородной. Координата Q_m определяется уравнением вынужденных колебаний

$$\frac{\partial^2 Q_m}{\partial t^2} + \frac{2}{T_2} \frac{\partial Q_m}{\partial t} + \Omega_R^2 Q_m = F(t), \quad (15)$$

где $F(t) = \frac{1}{2m} \frac{\partial \alpha}{\partial Q_m} n_m |\mathbf{E}|^2$ – вынуждающая сила; α – поляризуемость среды; m – масса молекулы; T_2 – время поперечной релаксации; Ω_R – частота молекулярных колебаний; $n_m = (N_1 - N_2)/N_0$, $N_{1,2}$ – населенности комбинационно-активного перехода $1 \rightarrow 2$ соответственно. Уравнение для n_m имеет следующий вид:

$$\frac{\partial n_m}{\partial t} + \frac{n_m - 1}{T_1} = \frac{1}{2\hbar \Omega_R} \frac{\partial \alpha}{\partial Q_m} |\mathbf{E}|^2 \frac{\partial Q_m}{\partial t}, \quad (16)$$

где T_1 – время продольной релаксации; \hbar – постоянная Планка.

Решение для координаты Q_m известно:

$$\begin{aligned} Q_m = \frac{1}{2m} \frac{\partial \alpha}{\partial Q_m} \exp(-t/T_2) \times \\ \times \int_0^t F(t') \exp(t'/T_2) \sin \Omega_R (t - t') dt'. \end{aligned} \quad (17)$$

Особенностью поведения координаты Q_m в микрочастице является то, что благодаря возбуждению в ней мод ШГ характерные признаки «ультракороткости» импульса ($t_p \ll T_2$ или $t_p < \Omega_R^{-1}$) проявляются не будут. Это связано с тем, что временная зависимость функции F для мод ШГ определяется не длительно-

стью лазерного фемтосекундного импульса, как для условий распространения бегущих волн, а временем жизни мод.

Будем исходить из физической модели, когда по мере продвижения импульса через частицу происходит формирование мод шепчущей галереи (за время $t_m \sim 2\pi a/c$) и существенных процессов нелинейного рассеяния в веществе частицы не происходит. Если среди сформированных фемтосекундным импульсом мод найдутся такие, что их частоты ω удовлетворяют условию комбинационного резонанса: $\omega_S \approx \omega_L - \Omega_R$, то становится возможным процесс усиления поля одной моды с частотой ω_S за счет поля другой моды, имеющей частоту ω_L .

Для момента времени $t > t_p$ интенсивность в моде ШГ без наличия нелинейности запишем в виде:

$$I_{WG}(\omega_{L,S}, t) = I_{WG}(\omega_{L,S}, t_p) \times \exp\{- (t - t_p) \omega_{L,S} / Q_{L,S}\}. \quad (18)$$

Здесь $Q_{L,S}$ – добротности соответствующих мод, определяются по формуле (10). Поскольку время жизни мод $\tau_r \sim 10^{-9} \div 10^{-7}$ с, то для таких времен процесс нелинейного взаимодействия мод может быть рассмотрен в квазистационарном приближении. При этом в среде формируется нелинейная поляризация, связанная с процессом ВКР. Вектор нелинейной поляризации представляется следующим образом:

$$\mathbf{P}_R^{(3)}(\omega_S) = \chi_R^{(3)}(\omega_S) (\tilde{\mathbf{E}}_L \tilde{\mathbf{E}}_L^*) \tilde{\mathbf{E}}_S + \text{к.с.} \quad (19)$$

В (19) $\tilde{\mathbf{E}}_{L,S}$ – комплексные электрические поля мод L и S ; $\chi_R^{(3)}(\omega_S)$ – нелинейная восприимчивость среды для эффекта ВКР. В условиях ВКР-резонанса

$$\chi_R^{(3)} = -i \frac{N_0 T_2}{16m\Omega_R} \left(\frac{\partial \alpha}{\partial Q_m} \right)^2. \quad (20)$$

Уравнения, описывающие взаимодействие мод при ВКР в микрочастице в квазистационарном приближении, получены в [25]. Воспользуемся результатами этой работы, а также приближением заданного поля моды накачки. Для интенсивности стоксовой моды получим

$$I_{WG}(\omega_S, t_p) = I_{WG}(\omega_S, t_p) \times \exp\left\{ \int_{t_p}^t g I_{WG}(\omega_L, t') dt' - \frac{(t - t_p) \omega_S}{Q_S} \right\} \approx I_{WG}(\omega_S, t_p) \exp\left\{ \frac{g I_{WG}(\omega_L, t_p) Q_L}{\omega_L} \times [1 - \exp\{- (t - t_p) \omega_L / Q_L\}] - \frac{(t - t_p) \omega_S}{Q_S} \right\}, \quad (21)$$

где $g = \frac{cg_s B_c}{n_a}$, $g_s = \frac{2\pi N_0 \omega_S T_2}{c^2 \varepsilon_a m \Omega_R} \left(\frac{\partial \alpha}{\partial Q_m} \right)^2$ – коэффициент усиления стоксовой волны; B_c – коэффициент пространственного перекрытия полей мод L и S [19].

Отношение (21) показывает, что ВКР приводит к уменьшению декремента затухания стоксовой моды. Величина максимального инкремента усиления, который возможен в моде стоксовой частоты, выражается как

$$G_m = \frac{cg_s B_c I_{WG}(\omega_L, t_p) Q_S}{n_a \omega_S}. \quad (22)$$

Примем для оценок $I_{WG} \approx I_0 \frac{\Delta \omega_L}{\Delta \omega_p}$, где I_0 – максимальная интенсивность в фемтосекундном импульсе. Ширина моды ШГ $\Delta \omega_L = \omega_L / Q_L$. Таким образом, получим, что

$$G_m = \frac{cg_s B_c I_0 Q_S \omega_L \tau_p}{n_a \omega_S Q_L 4\pi}. \quad (23)$$

Значение G_m существенным образом зависит от степени пространственного перекрытия мод – коэффициента B_c . Для его достоверной оценки необходимо провести дополнительные исследования. Если положить $B_c = 1$, то для $\omega_L = 3542$ ТГц, $\omega_S = 2898$ ТГц, $g_s = 10^{-3}$ см/МВт, $Q_S = Q_L$, $\tau_p = 10$ фс, получим, что $G_m = 1$ при $I_0 \approx 5 \cdot 10^{13}$ Вт/см². Такие уровни интенсивности являются типичными для экспериментов по рассеянию мощных фемтосекундных импульсов на водных частицах [10].

Рассмотрим, как формируется поле ТГ в сферической частице под действием фемтосекундного импульса. При прохождении импульса такого излучения через частицу происходит нелинейная поляризация среды на утроенной частоте от каждой гармоники спектра излучения. Эта поляризация является источником волн ТГ. Если какая-либо Фурье-компонента спектра импульса находится в резонансе с модой ШГ, то эффективное нелинейное взаимодействие между данной компонентой и полем ее ТГ возможно, если ТГ является также модой ШГ. При таком взаимодействии происходит перекачка доли энергии исходного импульса в ТГ в течение всего процесса существования поля в частице. Таким образом, в отличие от ВКР, когда в самом импульсе есть составляющие с частотами, разность между которыми равна частоте молекулярных колебаний, для процесса ГТГ необходимо, чтобы была сформирована мода на такой же частоте. Для оценки процесса формирования моды ШГ можно использовать приближение бегущей волны [26]. Для интенсивности ТГ, которая генерируется в процессе прохождения импульса через частицу, можно записать

$$I_3 = 576\pi^6 / n_a^4 \lambda_L^3 c^2 |\chi_{eg}^{(3)}|^2 I_0^3 L^2. \quad (24)$$

Здесь $L \approx 2\pi a_0$ – дистанция распространения вдоль поверхности частицы; $\chi_{eg}^{(3)}$ – компонента тензора $\hat{\chi}_e^{(3)}$, ответственная за генерацию ТГ. Оценки, проведенные по (24), указывают на то, что для частиц с радиусами $a_0 \sim 10$ мкм возможно достижение сигнала I_3 , который может быть зафиксирован в эксперименте.

Рассмотрим соотношение между вкладом ВКР и ГТГ в искажение спектра импульса. Если моды, подерживающие ВКР и ТГ, пространственно перекрываются, то между эффектами возможна конкуренция. Для определения, какой из эффектов превалирует в нелинейном взаимодействии, используем квазистационарное приближение. В этом приближении параметр, характеризующий соотношение между компонентами нелинейной восприимчивости, которые определяют вклад в нелинейную поляризацию эффектов вынужденных молекулярных колебаний и нелинейной электронной поляризуемости, соответственно равен [24]:

$$\delta = \frac{|\operatorname{Im} \chi_R^{(3)}|}{|\chi_{eg}^{(3)}|} = \frac{N_0}{48m} \left(\frac{\partial \alpha}{\partial Q_m} \right)^2 \frac{T_2}{\Omega_R} / |\chi_{eg}^{(3)}|.$$

Для воды δ равно 0,65 [24]. Данное значение указывает на то, что для водных частиц вклад электронной поляризуемости в процесс нелинейного взаимодействия несколько выше, чем вклад ВКР.

Из приведенного выше физического рассмотрения следует, что для фемтосекундного импульса в микрочастице возможна генерация высокочастотных составляющих светового поля, обусловленных нелинейной электронной поляризуемостью, а также стоксовых частот, инициированных вынужденным рамановским рассеянием. Более точное соотношение между вкладами этих двух процессов в общую картину может быть установлено из строгого решения задачи, когда учитывается пространственное и частотное взаимодействие возбуждающих и рассеянных полей, и будет рассмотрено в дальнейшем.

Очевидно, что если воздействовать на частицу цугом фемтосекундных импульсов с периодом $T_0 < \tau_r$, где τ_r – характерное время жизни моды, участвующей в нелинейном взаимодействии, то возможен режим квазистационарного возбуждения вынужденного излучения. Это отличает частотно-импульсные режимы взаимодействия фемтосекундного импульса с частицей и протяженной средой, поскольку в последнем случае важно, чтобы частота повторения импульсов была сравнимой с частотой молекулярных колебаний среды.

Заключение

Проведенные исследования позволяют сделать следующие выводы:

1. Возбуждение резонансных мод оптического поля в слабопоглощающих сферических частицах фемтосекундным излучением по сравнению с длинными лазерными импульсами (или непрерывным излучением) имеет ряд характерных особенностей, таких как снижение резонансных значений интенсивности внутреннего светового поля, особенно в зонах его максимумов (вблизи освещенной и теневой поверхностей частицы), реализация режима многомодового возбуждения резонансных мод.

2. Эффективность передачи энергии падающей световой волны в поле резонансной моды зависит от отношения ширины частотного спектра возбуждаемой резонансной моды к ширине частотного спектра действующего импульса излучения. Чем меньше данное отношение по сравнению с монохроматической волной, тем менее эффективно происходит возбуждение резонансов, значения интенсивности внутреннего поля в его максимумах падают.

3. Нелинейно-оптические эффекты ВКР и ГТГ в микрочастице под действием мощного фемтосекундного импульса могут реализоваться в двух стадиях. На первой из них (переходной) формируются моды шепчущей галереи. На второй стадии (квазистационарной), не зависящей от длительности импульса, возможна квазистационарная генерация вынужденного излучения в стоксовом и высокочастотном, соответствующем частоте третьей гармоники, спектральных интервалах.

Работа выполнена при финансовой поддержке комплексного интеграционного проекта № 8 СО РАН и гранта РФФИ № 01-02-16908.

1. *Ахманов С.А., Выслоух В.А., Чиркин А.С.* Оптика фемтосекундных импульсов. М.: Наука, 1988. 312 с.
2. *Rairoux P., Schillinger H., Niedermeier S. Rodriguez M., Ronneberger F., Sauerbrey R., Stein B, Wedekind C., Woste L.* Remote sensing of the atmosphere using ultrashort // *Appl. Phys.* 2000. В71. P. 573–580.
3. *Гордиенко В.М., Холодных А.И., Прялкин В.И.* Новые возможности использования широкополосного фемтосекундного ПГС при дистанционной диагностике многокомпонентных аэрозольно-газовых загрязнений в атмосфере // *Квант. электрон.* 2000. Т. 30. № 9. С. 839–842.
4. *Кандидов В.П., Косарева О.Г., Можаяев Е.И., Тамаров М.П.* Фемтосекундная нелинейная оптика атмосферы // *Оптика атмосф. и океана.* 2000. Т. 13. № 5. С. 429–436.
5. *Kasparian J., Wolf J.-P.* A new transient SRS analysis method of aerosols and application to a nonlinear femtosecond lidar // *Opt. Commun.* 1998. V. 152. P. 355–360.
6. *Schweiger G.* Raman scattering on single aerosol particles and on flowing aerosols: a review // *J. Aerosol. Sci.* 1990. V. 21. № 4. P. 483–509.
7. *Acker W.P., Leach D.H., Chang R.K.* Third-order optical sum-frequency generation in micrometer-sized liquid droplets // *Opt. Lett.* 1989. V. 14. № 8. P. 402–404.
8. *Leach D.H., Chang R.K., Acker W.P., Hill S.C.* Third-order sum frequency generation in droplets: experimental results // *J. Opt. Soc. Amer. B.* 1993. V. 10. № 1. P. 34–45.
9. *Hill S.C., Leach D.H., Chang R.K.* Third-order sum frequency generation in droplets: model with numerical results for third-harmonic generation // *J. Opt. Soc. Amer. B.* 1993. V. 10. № 1. P. 16–33.
10. *Kasparian J., Krämer B., Leisner T., Rairoux P., Boutou V., Vezin B., Wolf J.-P.* Size dependence of nonlinear Mie scattering in microdroplets illuminated by ultrashort pulses // *J. Opt. Soc. Amer. B.* 1998. V. 15. № 7. P. 1918–1922.
11. *Yan Y.-X., Gamble E.B., Nelson K.A.* Impulsive stimulated scattering: General importance in femtosecond laser pulse in-

- interactions with matter, and spectroscopic applications // J. Chem. Phys. 1985. V. 85. № 11. P. 5391–5399.
12. *Weiner A.M., Leaird D.E., Wiederrecht G.P., Nelson K.A.* Femtosecond multiple-pulse impulsive stimulated Raman scattering spectroscopy // J. Opt. Soc. Amer. B. 1991. V. 8. № 6. P. 1264–1275.
 13. *Беленов Э.М., Назаркин А.В., Прокопович И.П.* Динамика мощного фемтосекундного импульса в комбинационно-активной среде // Письма в ЖЭТФ. 1992. Т. 55. Вып. 4. С. 223–227.
 14. *Nazarkin A., Korn G.* Raman self-conversion of femtosecond laser pulses and generation of single-cycle radiation // Phys. Rev. A. 1998. V. 58. № 1. P. R61–R64.
 15. *Зуев В.Е.* Распространение видимых и инфракрасных волн в атмосфере. М.: Сов. радио, 1970. 497 с.
 16. *Chowdhury D.Q., Hill S.C., Barber P.W.* Time dependence of internal intensity of a dielectric sphere on and near resonance // J. Opt. Soc. Amer. A. 1992. V. 9. № 8. P. 1364–1373.
 17. *Shifrin K.S., Zolotov I.G.* Quasi-stationary scattering of electromagnetic pulses by spherical particles // Appl. Opt. 1994. V. 33. № 9. P. 7798–7804.
 18. *Шифрин К.С.* Рассеяние света в мутной среде. М.; Л.: ГИТТЛ, 1951. 288 с.
 19. *Гейнц Ю.Э., Землянов А.А., Зуев В.Е., Кабанов А.М., Погодаев В.А.* Нелинейная оптика атмосферного аэрозоля. Новосибирск: Изд-во СО РАН, 1999. 260 с.
 20. *Землянов А.А., Гейнц Ю.Э.* Эффективность возбуждения резонансных пространственных конфигураций внутреннего оптического поля сферических микрочастиц фокусированными лазерными пучками // Оптика атмосф. и океана. 2000. Т. 13. № 5. С. 447–456.
 21. *Бабич В.М., Булдырев В.С.* Асимптотические методы в задачах дифракции коротких волн. М.: Наука, 1972. 295 с.
 22. *Roll G., Schweiger G.* Geometrical optics model of Mie resonances // J. Opt. Soc. Amer. A. 2000. V. 17. № 7. P. 1301–1311.
 23. *Chylek P.* Resonance structure of Mie scattering: distance between resonances // J. Opt. Soc. Amer. A. 1990. V. 7. № 7. P. 1609–1613.
 24. *Алманов С.А., Кортаев Н.И.* Методы нелинейной оптики в спектроскопии рассеяния света. М.: Наука, 1981. 544 с.
 25. *Землянов А.А., Гейнц Ю.Э.* Нелинейные эффекты вынужденного рассеяния света в сферических частицах // Оптика атмосф. и океана. 1999. Т. 12. № 10. С. 935–944.
 26. *Роджерс Дж.* Нелинейные параметрические процессы в жидкости и газах. М.: Мир, 1987. 510 с.

A.A. Zemlyanov, Yu.E. Geints. Resonance excitation of light field in weakly absorbing spherical particles by femtosecond laser pulse. Peculiarities of nonlinear optical interactions.

Based on numerical solution of linear problem on diffraction of plane wave of femtosecond duration by a weakly absorbing spherical particle, the spatial-temporal structure of the internal light field is studied. An existence of a multi-mode exciting regime of whispering gallery modes (WG) is found. The influence of the ratio of the width of frequency spectrum of the excited mode WG to the width of the pulse frequency spectrum has been analyzed. It is shown that a decrease of this factor at transition from the monochromatic wave to the femtosecond pulse results in significant decrease of intense internal field in the points of its maxima. A possibility to generate stimulated radiation in a particle at the Stokes frequencies and the third harmonics frequencies is also shown.