

НЕЛИНЕЙНЫЕ ОПТИЧЕСКИЕ ЯВЛЕНИЯ

УДК 535.345.6

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

ЭНЕРГЕТИЧЕСКИЙ ПОРОГ ГЕНЕРАЦИИ ВКР В ПРОЗРАЧНЫХ КАПЛЯХ

На основе закона сохранения энергии в сферической частице получено выражение для пороговой интенсивности накачки, приводящей к возникновению ВКР в прозрачных каплях. Выполнены расчеты энергетических порогов генерации вынужденного комбинационного рассеяния каплями в зависимости от их радиуса для условий резонансного возбуждения ВКР лазерным излучением. Проведено сравнение с известными экспериментальными данными. Установлено, что существует неоднозначность в зависимости порога ВКР от радиуса капель в пределах реализации одного определенного типа резонансных мод, поддерживающих ВКР.

Нелинейно-оптические эффекты в прозрачных каплях микронных размеров являются в последнее время предметом многочисленных исследований. Ведутся работы по изучению процессов вынужденного комбинационного рассеяния (ВКР) [1–4], вынужденного рассеяния Мандельштама–Бриллюэна (ВРМБ) [5], вынужденной флюоресценции [6, 7], нелинейного смещения волн [8]. Это связано со свойством сферической частицы концентрировать в своем объеме падающую электромагнитную энергию, а также с наличием в ней собственных резонансных мод, имеющих пространственную структуру, аналогичную структуре мод шепчущей галереи в акустике. Вместе с тем вопрос об энергетических порогах проявления эффекта ВКР требует дальнейших теоретических исследований.

Существующий экспериментальный материал по данной теме не позволяет четко очертить энергетические границы исследуемых явлений. В настоящей статье представлены теоретические оценки порогов генерации ВКР в прозрачных каплях ($\kappa \leq 10^{-6}$ для видимого диапазона длин волн) различного радиуса на основе подхода, аналогичного применяемому в физике лазеров для определения порога генерации.

Обратимся к выяснению условий возникновения вынужденного комбинационного рассеяния в жидкой частице. Большие капли можно рассматривать как оптические резонаторы, в которых сферическая поверхность капля–воздух играет роль зеркал. Спектр собственных мод такого резонатора зависит от параметра дифракции $x = 2\pi a_0/\lambda$ (a_0 – радиус капли, λ – длина волны излучения) и величины комплексного показателя преломления жидкости $m_a = n_a + ik$.

Как известно, поле падающей световой волны распределяется внутри прозрачной частицы крайне неоднородно [9], с главными максимумами вблизи теневой и освещенной поверхностей капли вдоль направления распространения. Именно эти области являются главными источниками спонтанного комбинационного рассеяния электромагнитной волны. Часть волн из спектра спонтанного комбинационного рассеяния покидает каплю, а часть за счет полного внутреннего отражения от поверхности распространяется вдоль нее. Для тех частот ω , из рамановского спектра рассеяния, для которых полный набег фазы вдоль окружности капли кратен 2π , возникающая положительная обратная связь может привести к их последующему усилению и возникновению ВКР. Фактически данное условие соответствует настройке частоты комбинационного рассеяния ω_s на резонансную частоту капли-резонатора ω_n^i . С этой точки зрения поле ВКР представляет собой стоячую волну с пространственной конфигурацией, соответствующей конфигурации поля данного резонанса.

Пространственное распределение поля собственных резонансных мод характеризуется обычно тремя индексами:

– номером моды n , который равен удвоенному числу пиков в распределении внутреннего поля по углу вдоль экватора капли;

– порядком моды l , определяющим число пиков усредненного по углу внутреннего поля в радиальном направлении $0 \leq r \leq a_0$;

– азимутальным индексом m_z .

В качестве примера на рис. 1 приведен пространственный профиль резонансной моды TE_{50} внутри капли этанола ($m_a = 1,4746 + i \cdot 0$) для трех различных порядков l .

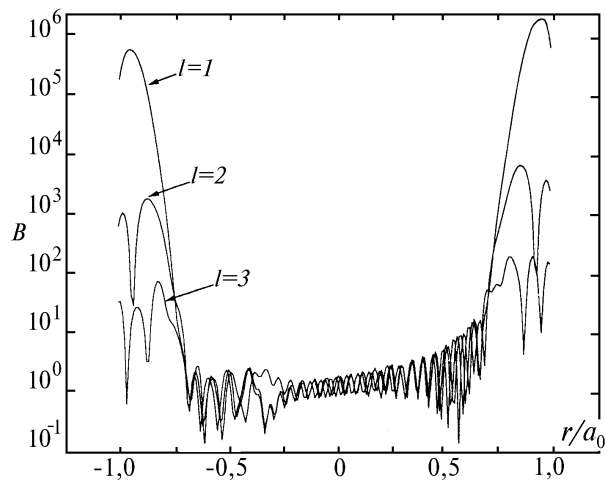


Рис. 1. Пространственный профиль резонансной моды внутри непоглощающей капли этанола ($m_a=1,4746 + i \cdot 0$, $\lambda = 0,53$ мкм) для различных порядков l

Как известно, для идеальной сферы наблюдается вырождение собственных мод по индексу m_z , и для характеристики каждого отдельного резонанса достаточно двух величин n и l . Деформация сферы устраняет это азимутальное вырождение, и каждая мода разбивается на мультиплет, состоящий из $(2n + 1)$ линий. Поле резонансной моды, как правило, локализовано у поверхности капли. Резонансные свойства каждой моды (резонансная частота, добротность) существенно зависят от ее номера и порядка. С ростом модового числа n добротность собственных резонансных мод растет, при этом ее эффективный объем уменьшается: $V_m \sim 1/(2n + 1)$. При фиксированном n увеличение порядка моды приводит к падению добротности и увеличению модового объема.

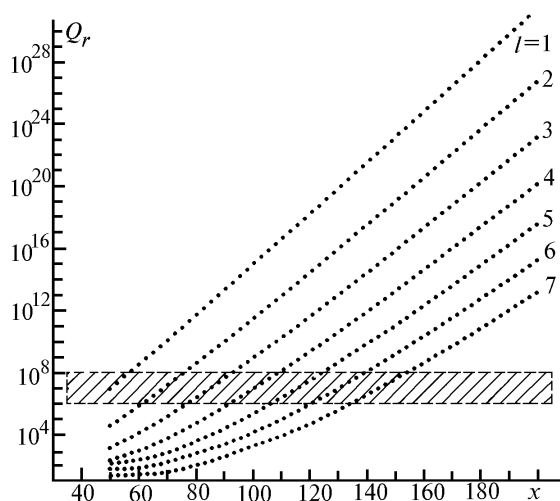


Рис. 2. Зависимость радиационной добротности Q_r различных резонансов от параметра дифракции капли в отсутствие поглощения света веществом резонатора

На рис. 2 представлена добротность различных резонансов Q_r в зависимости от параметра дифракции капли при отсутствии поглощения света веществом резонатора. Расчеты проведены по формулам, полученным из теории Ми [11]:

$$Q_r = (1/2)(n + 1/2) (\varepsilon/n_a)^{2k-1} (n_a^2 - 1)^{1/2} \exp(2T_p); \quad (1)$$

$$T_p = (n + 1/2) (\eta_p - th(\eta_p)); \quad ch(\eta_p) \equiv n_a/(1 - \Delta_p);$$

$$\Delta_p = (n + 1/2)^{-1} x_l [(1/2)(n + 1/2)]^{1/3} + (\varepsilon/n_a)^{1-2k} (n_a^2 - 1)^{1/2},$$

где ε – диэлектрическая проницаемость жидкости; $k = 1$ и $k = 0$ для ТМ и ТЕ волн соответственно; x_l – l -й корень уравнения $Ai(x_l) = 0$ (Ai – функция Эйри).

Из рисунка видно, что теоретические значения Q_r могут достигать величин, больших 10^{30} . Однако в экспериментах [5, 6] из измерений времени жизни возбужденных состояний установлено, что значения Q_r , как правило, не превышают $10^6 \div 10^8$ [3]. Это указывает на наличие дополнительных потерь излучения в капле-резонаторе, не учитываемых классической теорией Ми. К ним можно отнести потери, вызванные отклонением формы поверхности капли от идеальной сферы (например, за счет ее термокапиллярных колебаний), рассеяние света на неоднородностях в жидкости, нелинейное изменение показателя преломления в областях локализации внутреннего электромагнитного поля. Как показывают оценки [10], учет первого из перечисленных эффектов имеет принципиальное значение при рассмотрении добротности резонансных мод, тогда как остальными двумя в большинстве случаев можно пренебречь.

Приведенные результаты свидетельствуют также о том, что в капле с данным значением параметра x могут одновременно существовать резонансные моды с различной комбинацией параметров n и l . В принципе, каждая из этих мод может инициировать процесс ВКР.

Вопрос о конкуренции в процессе инициирования ВКР резонансных мод разных порядков, имеющих одинаковые (или близкие) резонансные частоты, сложен и является к настоящему времени недостаточно изученным. Из общих соображений ясно, что моды низких порядков имеют существенно более высокую добротность. Преимуществом же мод высоких порядков является их большая протяженность внутри капли, т.е. большее перекрытие с полем накачки. Кроме того, порядок возбуждаемой моды зависит от геометрии эксперимента [8]. Установлено, что при фокусировке излучения накачки в центр капли, как правило, возбуждаются моды высоких порядков. При смещении фокуса ближе к краю частицы доминируют моды с малым значением порядка l .

При получении энергетического порога генерации ВКР будем исходить из интегральной формы закона сохранения энергии в замкнутом объеме (теорема Умова–Пойнтинга). В стационарном случае порог генерации ВКР определяется при приравнении усиления комбинационной волны к суммарным ее потерям в объеме частицы

$$P_g = P_r + P_a,$$

где для квазимонохроматических полей $P_r = \frac{c}{8\pi} \int_{S_0} [\mathbf{E}_s(\mathbf{r}, t) \mathbf{H}_s^*(\mathbf{r}, t)] \mathbf{r} dS'$ – средняя мощность радиационных потерь через поверхность капли;

$P_a = \sigma_l \sqrt{\varepsilon} \int_{V_0} \mathbf{E}_s(\mathbf{r}, t) \mathbf{E}_s^*(\mathbf{r}, t) dV'$ – средняя мощность тепловых потерь внутри объема;

$P_g = \frac{c}{8\pi} \int_{V_0} G_R(I_i(\mathbf{r}, t)) \mathbf{E}_s(\mathbf{r}, t) \mathbf{E}_s^*(\mathbf{r}, t) dV'$ – средняя мощность источников поля ВКР, связанных с усилением стоксовой волны в капле (σ_l – проводимость вещества капли; $\mathbf{E}_s, \mathbf{H}_s$ – мгновенные значения амплитуды электрических и магнитных колебаний стоксовой волны; G_R – коэффициент усиления стоксовой волны; c – скорость света; V_0, S_0 – объем и площадь поверхности капли).

Далее, исходя из определения добротности резонатора,

$$Q = \frac{\omega_s W_s}{P}; \quad W_s = \frac{\varepsilon}{8\pi} \int_{V_0} \mathbf{E}_s(\mathbf{r}, t) \mathbf{E}_s^*(\mathbf{r}, t) dV',$$

где W_s – запасенная в резонаторе средняя за период колебаний энергия электромагнитного поля; P – мощность потерь в резонаторе; ω_s – резонансная частота. Определим радиационную

добротность (обусловленную только радиационными потерями) $Q_r = \omega_s W_s / P_r$ и добротность, обусловленную только поглощением $Q_a = \omega_s W_s / P_a = n_a \omega_s / \alpha c$ ($\alpha = 8\pi\sigma_l / c$ – объемный коэффициент поглощения жидкости).

Коэффициент усиления G_R стоксовой волны в стационарном режиме может быть представлен как $G_R = g_s I_i(\mathbf{r})$, где g_s – коэффициент рамановского усиления; I_i – интенсивность поля накачки (на частоте падающего излучения ω_i). Последнюю выразим через фактор неоднородности поля внутри частицы $B_i(\mathbf{r})$ [9]: $I_i(\mathbf{r}) = I_i^0 B_i(\mathbf{r})$, где I_i^0 – интенсивность падающего на каплю излучения.

Тогда пороговая интенсивность ВКР выражается как

$$I_{SRS} = \frac{n_a^2 x_n^l}{Q_n^l g_s a_0} \frac{\int_{V_0} \mathbf{E}_s(\mathbf{r}, t) \mathbf{E}_s^*(\mathbf{r}, t) dV'}{\int_{V_0} B_i(\mathbf{r}) \mathbf{E}_s(\mathbf{r}, t) \mathbf{E}_s^*(\mathbf{r}, t) dV'}, \quad (2)$$

где $1/Q_n^l = 1/Q_r + 1/Q_a$; x_n^l – резонансное значение дифракционного параметра капли.

Далее учтем следующее обстоятельство. Поскольку для появления ВКР в капле необходимо, чтобы комбинационная частота ω_s соответствовала какому-либо из резонансов (с частотой ω_n^l) то, очевидно, пространственное распределение поля ВКР также должно соответствовать пространственной структуре поля данной резонансной моды. Поэтому электрический вектор стоксовой волны $\mathbf{E}_s(\mathbf{r})$ в стационарном случае может быть представлен в виде произведения некоторой амплитуды \mathbf{E}_s^0 на коэффициент, являющийся функцией только пространственных координат:

$$\mathbf{E}_s(\mathbf{r}) = \mathbf{E}_s^0 \sqrt{B(\mathbf{r})}.$$

Учитывая это, отношение интегралов в правой части (2) примет вид

$$\left[\int_{V_0} B_i(\mathbf{r}) B_s(\mathbf{r}) dV' \right] \left/ \left[\int_{V_0} B_s(\mathbf{r}) dV' \right] \right. \equiv B_c.$$

Коэффициент B_c имеет смысл коэффициента соответствия пространственной структуры полей накачки и ВКР внутри капли. Чем лучше данное соответствие, тем ниже пороговые значения I_{SRS} . Величина B_c зависит также и от того, находится ли падающее (накачивающее) поле в резонансе. В случае соответствия падающего поля какой-либо резонансной моде, говорят о наличии двойного резонанса ВКР [3], т.е. как резонанса для стоксовой волны λ_s , так и резонанса в капле для длины волны накачки λ_i . Заметим, что ситуация, когда одновременно наблюдаются оба резонанса, достаточно трудно реализуема из-за небольшой ширины линии резонансов (порядка 3 см^{-1} [1]).

На рис. 3 представлены значения фактора B_c для различных резонансных мод. Расчет соответствовал случаю реализации TE_n^l – колебаний в водной капле при $\lambda_i = 0,532 \text{ мкм}$, $\lambda_s = 0,65 \text{ мкм}$.

Таким образом, возвращаясь к пороговой интенсивности падающего излучения, приводящей к генерации ВКР в сферической капле, получим

$$I_{SRS} = (n_a^2 x_n^l) / (g_s Q_n^l a_0 B_c). \quad (3)$$

Пороговые значения I_{SRS} , рассчитанные по (1) – (3) для водных капель различного радиуса ($\kappa = 10^{-8}$), приведены на рис. 4. Здесь также представлены известные экспериментальные данные по эффекту ВКР как в одиночных [3, 14, 15] каплях воды и этанола, так и в аэрозолях [16]. Кривые на рисунке отражают диапазон значений Q_n^l (см. рис. 2), соответствующих модам, имеющим одну резонансную частоту, но разные значения индексов n и l , конкурирующих в процессе инициирования ВКР. Как следует из рисунка, пороговая интенсивность ВКР резко возрастает при уменьшении размера капель, что связано с аналогичным падением радиационной добротности для малых частиц (см. рис. 2). При $x \geq 100$ I_{SRS} практически перестает зависеть от радиуса жидких частиц вследствие ограничения добротности потерями, связанными с

поглощением в жидкости. Для $x \leq 20-40$ эффект ВКР может подавляться оптическим пробоем, возникающим внутри частицы [14].

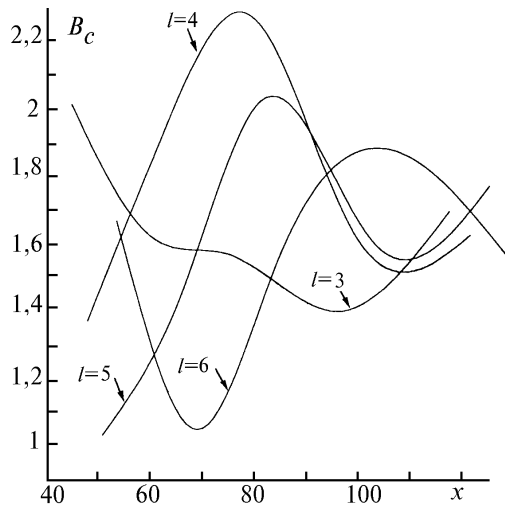


Рис. 3. Зависимость коэффициента соответствия полей накачки и ВКР в водной капле B_c от параметра дифракции капли x для различных порядков ТЕ-моды

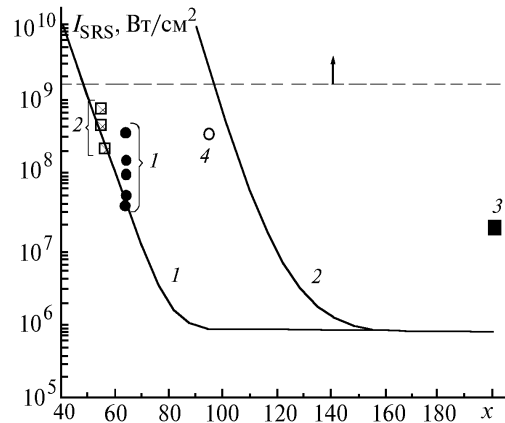


Рис. 4. Пороговая интенсивность ВКР в прозрачных каплях. Экспериментальные данные: 1 – капли этанола [15]; 2 – капли воды [16]; 3 – водная капля [3]; 4 – водный аэрозоль [17]. Теоретический расчет: кривая 1 – для резонансов высоких порядков; кривая 2 – для резонансов низких порядков. Штриховая кривая – порог оптического пробоя каплей этанола [14], [18]

Сделаем ряд замечаний относительно величин g_s и Q_n^l , входящих в выражение (3). Коэффициент рамановского усиления g_s , как известно, зависит от физико-химических свойств жидкости [13]:

$$g_s \sim [(d\sigma/d\Omega)_R] / \Gamma_s,$$

где $(d\sigma/d\Omega)_R$ – дифференциальное сечение комбинационного рассеяния; Γ_s – полуширина линии спонтанного комбинационного рассеяния. Типичные значения g_s для больших объемов жидкости составляют $\sim 1,3$ (этанол) $\div 3$ (бензол) $\text{см}^2/\text{ГВт}$ [1]. Высокая концентрация электромагнитного поля в резонаторе может оказывать влияние на излучательные свойства атомов, приводя к росту квантового выхода процесса комбинационного рассеяния. Этот эффект получил в научной литературе название эффекта резонансной квантовой электродинамики [10]. Как показывают исследования [1], данный эффект наблюдается в основном только при определенном соотношении между полушириной линии ВКР, генерируемой каплей Γ_n^l и расстоянием между отдельными резонансами по частотной шкале Δ_n , а именно: $\Gamma_s < \Delta_n$. В этом случае увеличение коэффициента рамановского усиления g_s пропорционально отношению $k_s = \Delta_n / \Gamma_s$ и может достигать 100–1200 раз. Так, например, полуширина линии комбинационного рассеяния в капле бензола с $a_0 = 6,4$ мкм ($\lambda_s = 0,56$ мкм) составляет $\Gamma_n^l \sim 2,6$ см^{-1} при накачке излучением с $\lambda_i = 0,53$ мкм. В то же время $\Delta_n \approx 190$ см^{-1} и, следовательно, $k_s = 73$. Для капли этанола того же радиуса с $\Gamma_n^l \sim 30$ см^{-1} коэффициент $k_s = 6$. При увеличении размера капли (так как $\Delta_n \sim 1/a_0$ [12]), а также для веществ с большими значениями Γ_n^l эффект резонансной квантовой электродинамики не наблюдается.

Как отмечалось выше, нарушение сферичности формы капли (что практически всегда происходит в реальных условиях) приводит к резкому ухудшению ее резонансных свойств, и прежде всего добротности. Помимо расщепления одной резонансной моды на мультиплет, состоящий из $(2n + 1)$ мод, которое приводит к увеличению суммарной ширины резонансной линии Γ_n , смещение границы капли нарушает резонансные условия для ВКР. В результате этого падает запасенная в капле на частоте ВКР энергия электромагнитного поля (W_s) и, соответственно, добротность капли (Q_r).

Например, поле ТЕ_n-моды, находящейся в резонансе, может быть записано как

$$|\mathbf{E}_s(\mathbf{r}, x_n)| \approx B_n(x_n) j_n(k_a r) S_n(\theta) \cos\varphi$$

и, следовательно,

$$W_s = \int_V |\mathbf{E}_s|^2 dV' \sim |B_n|^2,$$

где B_n – коэффициент Ми; $j_n(k_a r)$ – сферическая функция Бесселя; $S_n(\theta)$ – угловая функция; r, θ, φ – сферические координаты; k_a – модуль волнового вектора внутри капли.

Расчеты зависимости $B_n(x)$ вблизи резонансного значения x_n^l [17] показывают, что по форме данная зависимость близка к лоренцевскому контуру:

$$B_n(x) = [B_n(x_n^l)] / [1 + ((x - x_n^l)/G_n^l)^2].$$

Поэтому при смещении поверхности капли на величину $\Delta a \geq \Gamma_n$ ($\Delta a \ll a_0$) происходит расстройка резонанса и, соответственно, падение добротности на частоте данной моды.

Так, например, при термокапиллярных колебаниях поверхности капли среднеквадратической оценкой амплитуды колебаний может служить величина

$$\Delta r = \sqrt{(k_B T) / (4\pi\gamma)},$$

где k_B – постоянная Больцмана; T – температура поверхности капли; γ – коэффициент поверхностного натяжения. Для воды при $T = 300^\circ\text{K}$ $\Delta r = 0,44 \cdot 10^{-10}$ м, для этанола при тех же условиях $\Delta r = 1,35 \cdot 10^{-10}$ м. Очевидно, что резонансные моды, для которых $Q_n^l \gg a_0/\Delta r$ будут «разрушаться» колебаниями поверхности, тогда как моды с $Q_n^l \leq a_0/\Delta r$ останутся способными поддерживать процесс развития ВКР в капле.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант N 93-05-9378).

1. Lin H.-B., Eversole J.D., Campillo A.J. // Opt. Lett. 1992. V. 17. N. 11. P. 828–830.
2. Kwok A.S., Chang R.K. // Optics and Phot. News. 1993. P. 34.
3. Serpenguzel A.S., Swindal J.C., Chang R.K., Acker W.P. // Appl. Opt. 1992. V. 31. N. 18. P. 3543–3551.
4. Xie J.C., Ruekgauer T.E., Gu J., Armstrong R.L., Pinnick R.G. // Appl. Opt. 1994. V. 33. N. 3. P. 368–372.
5. Wirth F.H., Juvan K.A., Chang R.K. et al. // Opt. Lett. 1992. V. 17. N. 9. P. 1334–1336.
6. Biswas A., Latifi H., Armstrong R.L., Pinnick R.G. // Opt. Lett. 1989. V. 14. N. 4. P. 214–216.
7. Леднева Г.П. // Оптика и спектроскопия. 1994. Т. 76. Вып. 3. С. 506–509.
8. Leach D.H., Chang R.K., Acker W.P., Hill S.C. // JOSA. 1993. V. 10. N. 1. P. 34–45.
9. Пришивалко А.П. Оптические и тепловые поля внутри светорассеивающих частиц. Минск: Наука и техника, 1983. 190 с.
10. Lai H.M., Leung P.T., Young K. // Phys. Rev. 1990. A 41. N. 9. P. 5199–5204.
11. Вайнштейн Л.А. Открытые резонаторы и открытые волноводы. М.: Сов. радио, 1966. 476 с.
12. Chylek P., Lin H.-B., Eversole J.D., Campillo A.J. // Opt. Lett. 1992. V. 16. N. 22. P. 1723–1725.
13. Борн М., Вольф Э. Основы оптики. М.: Наука, 1970. 856 с.
14. Pinnick R.G., Biswas A., Pendleton J.D., Armstrong R.L. // Appl. Opt. 1992. V. 31. N. 3. P. 311–318.
15. Chylek P., Jarzembki M.A., Srivastava V. et al. // Appl. Opt. 1987. V. 26. N. 5. P. 760–762.
16. Копвиллем У.Х., Букин О.А., Чудновский В.М. и др. // Оптика и спектроскопия. 1985. Т. 59. Вып. 2. С. 306–310.
17. Hill S.C., Leach D.H., Chang R.K. // J. Opt. Soc. Am. B. 1993. V. 10. N. 1. P. 16–33.
18. Погодаев В.А., Рождественский А.Е. // II Всесоюзное совещание по распространению лазерного излучения в дисперсной среде. (Тезисы докл.). Ч 2. Обнинск, 1982. С. 119–122.

Институт оптики атмосферы СО РАН,
г. Томск

Поступила в редакцию
21 апреля 1995 г.

Ju.E. Geints, A.A. Zemlyanov, E.K. Chistyakova. **Energy Threshold of SRS generation in Translucent Drops.**

An expression for threshold intensity of the pumping which causes an arise of stimulated Raman scattering (SRS) in translucent drops is obtained based on the law of conservation of energy. The values of the energy threshold of the SRS generation by drops are evaluated depending on the drops radius for conditions of the SRS resonance excitation by laser radiation. The result obtained are compared with the available experimental data. It is stated that there is an ambiguity in the SRS threshold dependence on the drops radius within limits of a definite type of resonance modes which maintain the SRS.

Энергетический порог генерации ВКР

1485