

А.А. Землянов, Ю.Э. Гейнц

Генерация вынужденного комбинационного рассеяния света в сферической микрочастице

Институт оптики атмосферы СО РАН, г. Томск

Поступила в редакцию 24.09.2002 г.

На основе метода разложения оптических полей в ряды по собственным функциям стационарной задачи линейного рассеяния получены дифференциальные уравнения для временных амплитуд связанных волн на стоксовой и основной частотах в сферической микрочастице. Проведен анализ решений уравнений для начального этапа процесса ВКР и условий реализации стационарного состояния. Установлен порог начала ВКР, и для случая «двойного» резонанса полей найден порог стационарного ВКР с заданной интенсивностью. Показано, что для возбуждения ВКР необходимо скомпенсировать потери стоксовой волны на поглощение и излучение через поверхность частицы. Для обеспечения стационарной генерации ВКР необходимо дополнительно скомпенсировать энергопотери, вызванные истощением накачки.

Введение

Исследования генерации вынужденного комбинационного рассеяния света в микрочастицах под действием интенсивного лазерного излучения важны в первую очередь для задач Раман-спектроскопии капле, поскольку повышают чувствительность и информативность измерений по сравнению с линейным случаем [1]. С другой стороны, в литературе активно обсуждаются и вопросы генерации лазерного излучения на модах шепчущей галереи в микрорезонаторах, т.е. когда микрочастица выступает в роли микролазера [2, 3]. Обзоры работ по указанным проблемам содержатся, например, в [1, 4, 5].

Природа вынужденного излучения из микросферы-резонатора связана с генерацией излучения, находящегося в резонансе с собственными модами такой частицы. Поэтому как экспериментальные, так и теоретические аспекты этих двух направлений исследований имеют много общего. Необходимо отметить, что большинство работ носит экспериментальный характер. В них рассмотрены физические основы и получены количественные данные о процессах вынужденного комбинационного рассеяния (ВКР), вынужденного рассеяния Мандельштама-Бриллюэна (ВРМБ), генерации третьей гармоники, вынужденной флуоресценции и лазерной генерации в микрочастицах. Для придания им законченного вида необходимо последовательное количественное описание процесса генерации, которое позволит как интерпретировать и правильно объяснить экспериментальные факты, так и давать прогнозы ожидаемых результатов при постановке новых экспериментов.

В данной статье мы рассмотрим теоретическое описание процесса ВКР света в прозрачной микрочастице на основе метода разложения решения в ряды по собственным функциям стационарной линейной задачи рассеяния. Будет проанализирован эффект ВКР в частице в момент его зарождения и в условиях стационарного режима рассеяния.

Основные соотношения

Будем считать, что в процессе нелинейного рассеяния участвуют лишь две волны: волна накачки и волна комбинационного рассеяния (стоксова волна) с частотами ω_L , ω_s соответственно, которые связаны соотношением фазового синхронизма $\omega_s = \omega_L - \Omega_R$ (Ω_R – частота молекулярных колебаний). Волновые уравнения при данных условиях имеют следующий вид:

$$\begin{aligned} \operatorname{rot} \operatorname{rot} \mathbf{E}_s(\mathbf{r}; t) + \frac{\varepsilon_a}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{E}_s(\mathbf{r}; t)}{\partial t^2} + \frac{4\pi\sigma}{c^2} \frac{\partial \mathbf{E}_s(\mathbf{r}; t)}{\partial t} = \\ = - \frac{4\pi}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{P}_N^s(\mathbf{r}; t)}{\partial t^2}, \end{aligned} \quad (1)$$

$$\begin{aligned} \operatorname{rot} \operatorname{rot} \mathbf{E}_L(\mathbf{r}; t) + \frac{\varepsilon_a}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{E}_L(\mathbf{r}; t)}{\partial t^2} + \frac{4\pi\sigma}{c^2} \frac{\partial \mathbf{E}_L(\mathbf{r}; t)}{\partial t} = \\ = - \frac{4\pi}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{P}_N^L(\mathbf{r}; t)}{\partial t^2}, \end{aligned} \quad (2)$$

где \mathbf{E}_L , \mathbf{E}_s – действительные электрические векторы накачки и стоксовой волн соответственно; ε_a , σ – диэлектрическая проницаемость и удельная проводимость вещества частицы; c – скорость света в вакууме; \mathbf{P}_N^L , \mathbf{P}_N^s – действительные векторы нелинейной поляризации среды на частотах ω_L , ω_s . Среда считается немагнитной, изотропной, эффекты дисперсии не учитываются. Уравнения для полей (1), (2) дополняются соответствующими граничными условиями [4], которые заключаются в непрерывности тангенциальных сферических составляющих полей (θ и φ компонент) при переходе через поверхность частицы:

$$(\mathbf{E}_L)_{\theta,\varphi} = (\mathbf{E}_L^{sc})_{\theta,\varphi} + (\mathbf{E}_L^i)_{\theta,\varphi};$$

$$(\mathbf{H}_L)_{\theta,\varphi} = (\mathbf{H}_L^{sc})_{\theta,\varphi} + (\mathbf{H}_L^i)_{\theta,\varphi};$$

$$(\mathbf{E}_s)_{\theta,\varphi} = (\mathbf{E}_s^{sc})_{\theta,\varphi}, \quad (\mathbf{H}_s)_{\theta,\varphi} = (\mathbf{H}_s^{sc})_{\theta,\varphi},$$

где индексы «sc» и «i» относятся соответственно к рассеянной и падающему полям.

Перейдем от действительных векторов поля к их комплексному представлению:

$$\begin{aligned} 2\mathbf{E}(\mathbf{r}; t) &= \tilde{\mathbf{E}}(\mathbf{r}; t) e^{i\omega t} + \tilde{\mathbf{E}}^*(\mathbf{r}; t) e^{-i\omega t}, \\ 2\mathbf{P}_N(\mathbf{r}; t) &= \tilde{\mathbf{P}}_N(\mathbf{r}; t) e^{i\omega t} + \tilde{\mathbf{P}}_N^*(\mathbf{r}; t) e^{-i\omega t}, \end{aligned}$$

где $\tilde{\mathbf{E}}$, $\tilde{\mathbf{P}}_N$ – медленно меняющиеся функции времени, и представим поля взаимодействующих волн в виде рядов по собственным функциям частицы-резонатора $\mathbf{E}_{np}^{\text{TE,TH}}(\mathbf{r})$, $\mathbf{H}_{np}^{\text{TE,TH}}(\mathbf{r})$, описывающим пространственный профиль полей колебательных мод ТЕ- и ТН-поляризации с собственными частотами $\omega_{np}^{\text{TE,TH}}$:

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_{L,s}(\mathbf{r}; t) &= \sum_{n=1}^{\infty} \sum_{p=1}^{\infty} [A_{np}^{L,s}(t) \mathbf{E}_{np}^{\text{TE}}(\mathbf{r}) - iB_{np}^{L,s}(t) \mathbf{E}_{np}^{\text{TE}}(\mathbf{r})]; \\ \mathbf{H}_{L,s}(\mathbf{r}; t) &= \sqrt{\varepsilon_a} \sum_{n=1}^{\infty} \sum_{p=1}^{\infty} [iA_{np}^{L,s}(t) \mathbf{H}_{np}^{\text{TE}}(\mathbf{r}) + B_{np}^{L,s}(t) \mathbf{H}_{np}^{\text{TH}}(\mathbf{r})], \end{aligned} \quad (3)$$

где коэффициенты $A_{np}^{L,s}(t)$, $B_{np}^{L,s}(t)$ отражают временное поведение полей. Функции $\mathbf{E}_{np}^{\text{TE,TH}}(\mathbf{r})$, $\mathbf{H}_{np}^{\text{TE,TH}}(\mathbf{r})$, образующие ортогональную систему в пределах шара, удовлетворяют однородным уравнениям Максвелла и выражаются через векторные сферические гармоники $\mathbf{M}_{np}(r, \theta, \varphi)$, $\mathbf{N}_{np}(r, \theta, \varphi)$ [6].

Подстановка (3) в (1), (2) после ряда преобразований (см. [7]) приводит к системе дифференциальных уравнений для коэффициентов разложения основной и стоксовой волн. Рассмотрим далее волны с ТЕ-поляризацией. Соответствующие уравнения имеют вид:

$$A_{np}^{L,s}(t) + 2\Gamma_{np}^{L,s} \frac{d}{dt} A_{np}^{L,s}(t) + \omega_{np}^2 A_{np}^{L,s}(t) = J_{np}^{L,s}(t), \quad (4)$$

где «вынуждающие силы» выражаются следующими образом:

$$\begin{aligned} J_{np}^L(t) &= F_{np}^i(t) + \frac{4\pi}{\varepsilon_a} \int_{V_a} \mathbf{E}_{np}^* \frac{\partial^2 \mathbf{P}_N^L}{\partial t^2} d\mathbf{r}, \\ J_{np}^s(t) &= -\frac{4\pi}{\varepsilon_a} \int_{V_a} \mathbf{E}_{np}^* \frac{\partial^2 \mathbf{P}_N^s}{\partial t^2} d\mathbf{r}. \end{aligned} \quad (5)$$

Здесь $\Gamma_{np}^{L,s} = \omega_{np}/[2Q_{np}(\omega_{L,s})]$ – коэффициент затухания моды; Q_{np} – параметр суммарной добротности частицы-резонатора, учитывающий общие потери моды на поглощение и излучение световой волны [4]; V_a – объем частицы. Слагаемое $F_{np}^i(t)$ связано с притоком электромагнитной энергии в частицу за счет падающего излучения и находится из линейной задачи упругого рассеяния [7].

Пусть на сферическую частицу падает плоская световая волна вида

$$\mathbf{E}^i(\mathbf{r}; t) = E_0 \mathbf{p}_e \tilde{f}(t) \exp[i(\omega_L t - k_L z)],$$

где E_0 – действительная амплитуда; \mathbf{p}_e – вектор поляризации волны; $k_L = \omega_L/c$, а $\tilde{f}(t)$ есть функция времени (временной профиль излучения). В дальнейшем ограничимся ситуацией воздействия на частицу импульсов излучения с длительностью такой, что эффектами запаздывания оптических полей при рассеянии можно пренебречь. В этих условиях для $F_{np}^i(t)$ получаем:

$$\begin{aligned} F_{np}^i(t) &= -\frac{ic}{\varepsilon_a} \left\{ \int_S \left[\omega_{np} [\mathbf{E}^i \times \mathbf{H}_{np}^*] - i \frac{\partial}{\partial t} (\mathbf{H}^i \times \mathbf{E}_{np}^*) \right] \cdot \mathbf{n}_r ds \right\} = \\ &= E_0 f(t) K_{np}^n. \end{aligned} \quad (6)$$

Здесь $f(t) = \tilde{f}(t) \exp\{i\omega_L t\}$; \mathbf{E}^i , \mathbf{H}^i – векторы электрического и магнитного полей в падающей волне; \mathbf{n}_r – внешняя нормаль к поверхности частицы S_a . В данном выражении коэффициент K_{np}^n учитывает степень возбуждения моды внутреннего поля (с индексами « np ») каждой из мод внешнего поля (с индексом « n »). При циркулярной поляризации волны накачки ($\mathbf{p}_e = \mathbf{e}_x + i\mathbf{e}_y$, где \mathbf{e}_x , \mathbf{e}_y – орты) для рассматриваемых ТЕ-мод внутреннего поля он, в частности, равен:

$$\begin{aligned} K_{np}^n &= \frac{ic^2 R_n}{\varepsilon_a k_L z_{np} V_a} \left[\Psi_n(k_L a_0) \Psi_n^*(n_a k_{np} a_0) - \right. \\ &\left. - \frac{1}{n_a} \frac{\omega_L}{\omega_{np}} \Psi_n'(k_L a_0) \Psi_n^*(n_a k_{np} a_0) \right], \end{aligned} \quad (7)$$

где $k_{np} = \omega_{np}/c$; n_a – показатель преломления частицы; z_{np} – нормировочный коэффициент для собственных функций:

$$z_{np}^{-2} = \int_0^{2\pi} d\varphi \int_0^{\pi} \sin\theta d\theta \int_0^{a_0} r^2 dr |\mathbf{M}_{np}|^2;$$

Ψ_n – сферические функции Рикатти–Бесселя; $R_n = i^n (2n+1)/[n(n+1)]$. Штрихи означают производную по всему аргументу функции.

Заметим, что уравнения для коэффициентов ТН-мод $B_{np}(t)$ полностью аналогичны системе (4). Отличие заключается только в выражении для коэффициентов K_{np}^n .

Квазистационарное приближение

Решение дифференциального уравнения (4) проведем в приближении медленно меняющихся амплитуд, т.е. когда считается, что $A_{np}^s(t) = \tilde{A}_{np}^s(t) e^{i\omega_s t}$, где $\tilde{A}_{np}^s(t)$ – медленно меняющаяся амплитуда, или, что то же – в квазистационарном приближении. Векторы нелинейной поляризации, ответственной за рамановское рассеяние, в изотропной среде для волн с частотами ω_L и ω_s представляются следующим образом:

$$\begin{aligned} \mathbf{P}_N^L(\mathbf{r}, t) &= \chi_R^{(3)}(\omega_L) [\mathbf{E}_s(\mathbf{r}, t) \cdot \mathbf{E}_s^*(\mathbf{r}, t)] \mathbf{E}_L(\mathbf{r}, t), \\ \mathbf{P}_N^s(\mathbf{r}, t) &= \chi_R^{(3)}(\omega_s) [\mathbf{E}_L(\mathbf{r}, t) \cdot \mathbf{E}_L^*(\mathbf{r}, t)] \mathbf{E}_s(\mathbf{r}, t) + \mathbf{P}_N^{sp}(\mathbf{r}, t), \end{aligned} \quad (8)$$

где $\chi_R^{(3)}$ – нелинейная (рамановская) диэлектрическая восприимчивость среды третьего порядка, причем $\text{Im}\chi_R^{(3)}(\omega_L) = -\text{Im}\chi_R^{(3)}(\omega_s)$; $\mathbf{P}_N^{sp}(\mathbf{r}, t)$ – нелинейная поляризация, отвечающая за спонтанное комбинационное рассеяние.

При комбинационном резонансе рамановская восприимчивость становится чисто мнимой

$$\chi_R^{(3)}(\omega_s) = -i \frac{N_0 T_2}{16m\Omega_R} \left(\frac{\partial \alpha}{\partial \mathbf{q}_k} \right)^2$$

и ее, обычно, связывают со стационарным коэффициентом усиления ВКР g_s :

$$g_s = -\frac{32\pi^2 \omega_s}{\varepsilon_a c^2} \text{Im}(\chi_R^{(3)}). \quad (9)$$

Здесь \mathbf{q}_k – координата смещения ядер в молекуле; α – поляризуемость среды; m – приведенная масса молекулы; T_2 – время поперечной релаксации; N_0 – концентрация молекул среды.

Вследствие стохастической природы спонтанного рассеяния для выяснения вида последнего слагаемого в (8) необходимо решить уравнение гармонического осциллятора под действием случайной силы для комплексной функции q_k (см., например, [8]):

$$\frac{\partial^2 q_k}{\partial t^2} + 2\Gamma_k \frac{\partial q_k}{\partial t} + \Omega_R^2 q_k = f_E(\mathbf{r}; t) + f_{sp}(\mathbf{r}; t), \quad (10)$$

где

$$2\mathbf{q}_k = q_k + q_k^*; f_E = \frac{1}{2m} \frac{\partial \alpha}{\partial \mathbf{q}_k} n_m (\mathbf{E}_L \cdot \mathbf{E}_s^*)$$

– вынуждающая сила – источник стимулированного излучения; n_m – разность населенностей комбинационно-активного перехода, которая в принятом нами приближении считается постоянной; $\Gamma_k = 1/T_2$; $f_{sp}(\mathbf{r}; t)$ – случайная распределенная сила. Относительно последней делается предположение о дельта-коррелированности в пространстве и во времени:

$$\langle f_{sp}(\mathbf{r}; t) f_{sp}(\mathbf{r}'; t') \rangle = F_0^2 \delta(t-t') \delta(\mathbf{r}-\mathbf{r}');$$

F_0 – среднеквадратическая амплитуда случайного возмущения, определяемая через сечение комбинационного рассеяния вещества.

При комбинационном резонансе решение уравнения (10) имеет вид:

$$\begin{aligned} q_k(t) &= \frac{e^{-\Gamma_k t}}{\Omega_R} \int_0^t \sin[\hat{\Omega}_R(t-t')] e^{\Gamma_k t'} [f_E(t') + f_{sp}(t')] dt' = \\ &= q_k^E(t) + q_k^{sp}(t), \end{aligned}$$

где

$$\hat{\Omega}_R = \Omega_R \sqrt{1 - (\Gamma_k^2 / \Omega_R^2)}.$$

Для спонтанной компоненты стоксовой поляризации получаем

$$\begin{aligned} \mathbf{P}_N^{sp}(\mathbf{r}, t) &= N_0 \frac{\partial \alpha}{\partial \mathbf{q}_k} (q_k^{sp})^* \mathbf{E}_L(\mathbf{r}; t) + \text{к.с.} \approx \\ &\approx -\frac{N_0}{\Omega_R} \frac{\partial \alpha}{\partial \mathbf{q}_k} \tilde{\mathbf{E}}_L(\mathbf{r}; t) e^{i\omega_s t - \Gamma_k t} \int_0^t \sin[\hat{\Omega}_R(t-t')] \times \\ &\times e^{\Gamma_k t'} f_{sp}^*(\mathbf{r}; t') dt' + \text{к.с.}, \end{aligned} \quad (11)$$

где $\tilde{\mathbf{E}}_L$ – медленно меняющаяся функция времени.

Преобразуем выражение (5) для источника стоксовой волны J_{np}^s . Для этого вновь воспользуемся разложением полей по собственным модам частицы, а также учтем (8). В результате получим

$$\begin{aligned} J_{np}^s(t) &= -\frac{4\pi \chi_R^{(3)}(\omega_s)}{\varepsilon_a} \sum_{n'} \sum_{p'} \frac{d^2}{dt^2} \left[|A_{n'p'}^L|^2 \sum_m \sum_q A_{mq}^s(t) \right] \times \\ &\times \int_{V_a} (\mathbf{E}_{n'p'} \cdot \mathbf{E}_{n'p'}^*) \cdot (\mathbf{E}_{mq} \cdot \mathbf{E}_{np}^*) d\mathbf{r} + F_{np}^{sp}(t), \end{aligned}$$

где

$$F_{np}^{sp}(t) = -\frac{4\pi}{\varepsilon_a} \int_{V_a} \mathbf{E}_{np}^* \frac{\partial^2 \mathbf{P}_N^{sp}}{\partial t^2} d\mathbf{r}$$

– источник спонтанного излучения на частоте ω_s . Согласно определению собственные моды, по которым проводится разложение поля, считаются не взаимодействующими друг с другом в пределах объема частицы-микрорезонатора [9]. Обмен энергией между модами возможен только при наличии локальных неоднородностей диэлектрической проницаемости либо через взаимодействие мод на поверхности частицы при ее деформациях. Следовательно, в полученном выражении можно опустить суммирование по модам стокова поля. С учетом (11) получим

$$J_{np}^s(t) = -i \frac{c^2 g_s}{8\pi\omega_s} \sum_{n'} \sum_{p'} \frac{d^2}{dt^2} [|A_{n'p'}^L(t)|^2 A_{np}^s(t)] S_{n'p'}^{np} + F_{np}^{sp}(t), \quad (12)$$

где посредством $S_{n'p'}^{np}$ обозначен интеграл пространственного перекрытия оптических мод основной и стоксовой волн:

$$S_{n'p'}^{np} = \int_{V_a} [(\mathbf{E}_{n'p'} \cdot \mathbf{E}_{n'p'}^*) \cdot (\mathbf{E}_{np} \cdot \mathbf{E}_{np}^*)] d\mathbf{r}, \quad (13)$$

а суммирование идет только по модам поля накачки.

Возвращаясь к выражению (12), отметим, что каждая мода поля накачки вносит свой вклад в процесс развития выбранной моды волны комбинационного рассеяния, пропорциональный интегральному параметру перекрытия этих мод.

В рамках квазистационарного приближения исходное уравнение приобретает следующий вид:

$$\left\{ 2i\omega_s + 2\Gamma_{np}^s + \frac{2i}{\omega_s} \left[\frac{dG_{np}^s(t)}{dt} + i\omega_s G_{np}^s(t) \right] \right\} \frac{d\tilde{A}_{np}^s(t)}{dt} +$$

$$+ \omega_s^2 \left[\Delta_{np_s}^2 + \frac{2i \Gamma_{np}^s}{\omega_s} - \frac{2}{\omega_s^2} \frac{dG_{np}^s(t)}{dt} + \frac{i}{\omega_s} G_{np}^s(t) \right] \tilde{A}_{np}^s(t) = \tilde{F}_{np}^{sp}(t), \quad (14)$$

где $\Delta_{np_s} = (\omega_{np} - \omega_s)/\omega_s$ – относительная частотная расстройка моды стоксова поля;

$$G_{np}^s(t) = \frac{c^2 g_s}{8\pi} \sum_{n'} \sum_{p'} |A_{n'p'}^L(t)|^2 S_{n'p'}^{np}.$$

Выразим амплитудный коэффициент стоксовой моды $A_{np}^s(t)$ через интегральное соотношение. При условии развития вынужденного излучения на долгоживущих резонансных модах ($\omega_{L,s} \gg \Gamma_{np}^s, G_{np}^s$) данное соотношение записывается в форме

$$A_{np}^s(t) = \tilde{A}_{np_s}^0(t) e^{D_{np}^s(t)} \exp[i\tilde{\omega}_{np}^s t + i\phi_{np}^s(t)]. \quad (15)$$

В (15) введены следующие обозначения:

$$\tilde{\omega}_{np}^s = \omega_s (1 - \Delta_{np_s}^2 / 2)$$

– частота генерации моды поля стоксовой волны;

$$\phi_{np}^s(t) = \frac{1}{2\omega_s} \int_0^t [G_{np}^s(t') - \Gamma_{np}^s]^2 dt';$$

$$D_{np}^s(t) = \frac{1}{2} (1 - \Delta_{np_s}^2) \int_0^t [G_{np}^s(t') - 2\Gamma_{np}^s] dt'$$

– функция, учитывающая усиление и ослабление моды;

$$\tilde{A}_{np_s}^0(t) = \frac{1}{2i\omega_s} \int_0^t e^{-D_{np}^s(t')} \tilde{F}_{np}^{sp}(t') dt'$$

– амплитудный множитель, характеризующий спонтанное комбинационное рассеяние.

Выражение для усредненной по объему частицы интенсивности волны вынужденного рассеяния

$$\bar{I}_s(t)_s = \frac{1}{V_a V_a} \int I_s(\mathbf{r}; t) d\mathbf{r} = \frac{c n_a}{8\pi V_a} \sum_n \sum_p |A_{np}^s(t)|^2$$

с учетом (9)–(15) при условии резонансного возбуждения ($\Delta_{np_s} = 0$) запишется в следующем виде (модовые индексы опущены):

$$\bar{I}_s(t) = \bar{I}_{sp}(t) e^{2D^s(t)}. \quad (16)$$

Здесь

$$\bar{I}_{sp}(t) = 2 \left[\frac{8\pi N_0 F_0}{\Gamma_k n_a \Omega_R} \frac{\partial \alpha}{\partial q_k} \right]^2 \int_0^t e^{-2D^s(t')} \times \\ \times \sum_{n'} \sum_{p'} |A_{n'p'}^L(t')|^2 S_{n'p'}^{np} dt'$$

характеризует интенсивность спонтанного комбинационного рассеяния. С ростом фактора D^s функция \bar{I}_{sp} имеет тенденцию к насыщению.

Для волны накачки интегральная формулировка задачи будет следующей:

$$A_{np}^L(t) = \tilde{A}_{np_L}^0(t) e^{-D_{np}^L(t)} \exp[i\tilde{\omega}_{np}^L(t) + i\phi_{np}^L(t)],$$

где

$$\tilde{\omega}_{np}^L = \omega_L \left(1 - \frac{\Delta_{np_L}^2}{2} \right); \quad \Delta_{np_L} = \frac{\omega_{np} - \omega_L}{\omega_L};$$

$$\phi_{np}^L(t) = -\frac{1}{2\omega_L} \int_0^t [G_{np}^L(t') + 2\Gamma_{np}^L]^2 dt';$$

$$D_{np}^L(t) = \frac{1}{2} (1 - \Delta_{np_L}^2) \int_0^t [G_{np}^L(t') + 2\Gamma_{np}^L] dt';$$

$$\tilde{A}_{np_L}^0(t) = \frac{1}{2i\omega_L} \int_0^t e^{D_{np}^L(t')} \tilde{F}_{np}^{si}(t') dt';$$

$$G_{np}^L(t) = \frac{c^2 g_s \omega_L}{8\pi \omega_s} \sum_n \sum_p |A_{np}^s(t)|^2 S_{n'p'}^{np}.$$

Пороги генерации ВКР

Для установления порога генерации ВКР необходимо выразить среднюю по объему интенсивность накачки внутри частицы \bar{I}_L через интенсивность падающего излучения $I_0 = cE_0^2/8\pi$. Здесь возможны две формулировки данной задачи: 1) определение порога начала генерации вынужденного излучения; 2) определение порога генерации вынужденного излучения с заданной интенсивностью, превышающей интенсивность спонтанного рассеяния. Рассмотрим сначала первую из них. Очевидно, что здесь можно воспользоваться приближением заданного поля накачки.

Функцию G_{np}^s представим в следующем виде:

$$G_{np}^s(t) = (c g_s / n_a) \bar{B}_c^{np} \bar{I}_L(t), \quad (17)$$

где

$$\bar{I}_L(t) = \frac{1}{V_a V_a} \int I_L(\mathbf{r}; t) d\mathbf{r} = \frac{c n_a}{8\pi V_a} \sum_{n'} \sum_{p'} |A_{n'p'}^L(t)|^2; \quad (18)$$

$$\bar{B}_c^{np}(\omega_L; \omega_{np}) = \frac{c n_a}{8\pi \bar{I}_L} \sum_{n'} \sum_{p'} |A_{n'p'}^L|^2 S_{n'p'}^{np} \quad (19)$$

– нормированный коэффициент пространственного перекрытия взаимодействующих полей внутри частицы. Коэффициент \bar{B}_c^{np} имеет слабую зависимость от времени на начальном этапе и на стационарной стадии ВКР. На начальном этапе процесса он может быть вычислен отдельно в линейном приближении, т.е. в рамках теории Ми. При

этом \bar{B}_c^{np} определяется, в основном, морфологией частицы и ее оптическими свойствами. В случае, когда поле стоксовой волны можно считать одномодовым ($\omega_{np} = \omega_s$), из (19) с учетом (13) следует, что

$$\bar{B}_c^{np}(\omega_L; \omega_s) = V_a \left[\int_{V_a} (\mathbf{E}_L \cdot \mathbf{E}_L^*) d\mathbf{r} \right]^{-1} \times \\ \times \int_{V_a} (\mathbf{E}_{np} \cdot \mathbf{E}_{np}^*) \sum_{n' p'} |A_{n' p'}^L|^2 (\mathbf{E}_{n' p'} \cdot \mathbf{E}_{n' p'}^*) d\mathbf{r}.$$

После сворачивания суммы в правой части данного выражения и использования тождества, следующего из условия нормировки собственных функций

$$|A_{np}^s|^2 = \int_{V_a} (\mathbf{E}_s \cdot \mathbf{E}_s^*) d\mathbf{r},$$

выражение (19) для коэффициента перекрытия полей приобретает следующий вид (модовые индексы опущены):

$$\bar{B}_c(\omega_L; \omega_s) = V_a \left[\int_{V_a} (\mathbf{E}_L \cdot \mathbf{E}_L^*) d\mathbf{r} \cdot \int_{V_a} (\mathbf{E}_s \cdot \mathbf{E}_s^*) d\mathbf{r} \right] \times \\ \times \int_{V_a} (\mathbf{E}_L \cdot \mathbf{E}_L^*) (\mathbf{E}_s \cdot \mathbf{E}_s^*) d\mathbf{r}. \quad (20)$$

В рамках приближения заданного поля отношение \bar{I}_L/I_0 постоянно во времени и определяется посредством следующей интегральной формулы:

$$\frac{\bar{I}_L}{I_0} = \bar{B}_L = \frac{1}{V_a E_0^2} \int_{V_a} \mathbf{E}_L(\mathbf{r}) \mathbf{E}_L^*(\mathbf{r}) d\mathbf{r}. \quad (21)$$

Заметим, что в большинстве случаев фактор \bar{B}_L равен единице и существенно отличен от нее только при резонансном возбуждении частицы полем накачки.

Тогда, окончательно, плотность энергии падающей световой волны w_0 , при которой в частице реализуется генерация вынужденного излучения, определяется следующим выражением:

$$w_0 > w_0^{th} = n_a \omega_s t / (c g_e Q_s \bar{B}_L). \quad (22)$$

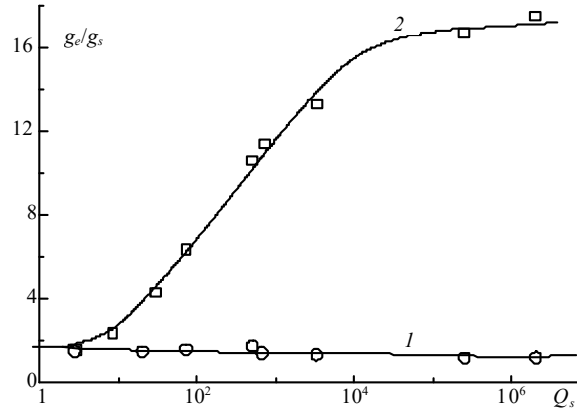
В (22) введен эффективный коэффициент усиления ВКР в микрорезонаторе

$$g_e = g_s \bar{B}_c,$$

отражающий отличие темпов генерации стоксовой волны в частице и в протяженной среде. Это приводит к значительному понижению порогов процесса и в ряде случаев позволяет использовать непрерывное излучение для накачки микрорезонатора [10, 11].

На рисунке приведена зависимость отношения g_e/g_s от эффективной добротности собственных мод стоксова поля Q_s , соответствующей различному размеру частиц. Расчет производился для капель воды ($n_a = 1,33$; $\lambda_L = 0,53$ мкм; $\lambda_s = 0,65$ мкм) в двух ситуациях нелинейного взаимодействия

волн: резонанс только стоксова поля («одинарный» резонанс) и резонанс обеих волн («двойной» резонанс).



Зависимость отношения g_e/g_s от добротности резонансных мод Q_s стоксова поля при возбуждении в каплях ВКР «одинарного» (1) и «двойного» (2) резонанса полей. Точки для наглядности соединены сплайнами

Из рисунка следует, что величина отношения g_e/g_s при нерезонансном возбуждении ВКР близка к единице. Существенный рост эффективности нелинейного взаимодействия наблюдается только в случае «двойного» резонанса полей. На это обстоятельство впервые было обращено внимание в экспериментальной работе [12] при исследовании порогов возбуждения ВКР в каплях водного раствора глицерина. Подробные теоретические исследования коэффициента пространственного перекрытия полей при различных вариантах возбуждения ВКР и ВРМБ в сферических частицах приведены, например, в [4, 13].

Если излучение падающего на частицу света является достаточно продолжительным во времени, то в выражении (22) от плотности энергии излучения можно перейти к его интенсивности. Таким образом, условие генерации ВКР при непрерывной или квазинепрерывной накачке примет следующий вид:

$$I_0 > I_0^{th} = \frac{n_a \omega_s}{c g_e Q_s B_L} = \frac{n_a^2 V_a \omega_L \omega_s}{c^2 g_e \sigma_{ex}(a_0; \omega_L) Q_L Q_s}, \quad (23)$$

где $\sigma_{ex}(a_0; \omega_L)$ – сечение ослабления частицы для падающего излучения. Данная формула ранее была получена в наших работах [4, 13] при рассмотрении баланса энергии стоксовой волны в частице.

Подчеркнем еще раз, что рассматриваемый порог возбуждения комбинационной волны, по сути дела, соответствует выполнению условия возникновения положительной обратной связи в частице-резонаторе для стоксовой волны, когда ее суммарные потери на поглощение и радиационный выход через поверхность частицы сравниваются с усилением за счет нелинейного взаимодействия с полем накачки. Интенсивность вынужденного рассеяния при таких условиях мала и, как видно из (15), (16), соответствует интенсивности спонтанного комбинационного рассеяния.

Задача о пороге возбуждения волны ВКР с заданным уровнем интенсивности связана с нахождением определенного уровня коэффициента усиления ВКР G^s в частице, который, в свою очередь, зависит от величины интенсивности волны накачки. Данное решение возможно провести лишь численным путем и планируется представить в по-

следующих работах авторов. Здесь мы ограничимся анализом важного вопроса – стационарного состояния генерации ВКР в частице.

При $I_0 \geq I_0^{th}$ в частице реализуется генерация вынужденного излучения, носящая в общем случае нестационарный характер, и при достаточно продолжительном действии излучения возможно установление стационарного режима ВКР. Экспериментально подобная стационарная генерация ВКР в микрочастице наблюдалась в [10, 11].

Условием выхода процесса нелинейного рассеяния на стационарный режим является равенство нулю производной по времени от правой части (16). Это достигается, когда средняя по объему интенсивность основной волны внутри частицы также выходит на стационарный уровень

$$\bar{I}_L^{st} = 2n_a \Gamma^s / (cg_e). \quad (24)$$

Установим соотношения между уровнем интенсивности падающего на частицу света I_0 и стационарным значением интенсивности ВКР I_s^{st} . Запишем интегральное соотношение для интенсивности поля волны накачки внутри частицы в условиях «двойного» резонанса полей, когда падающее на частицу лазерное излучение находится в резонансе с одной из мод частицы-микрорезонатора, а генерация вынужденного комбинационного излучения происходит на другой моде этого резонатора (модовые индексы опущены):

$$\bar{I}_L(t) = \bar{I}_L^0(t) e^{-2D^L(t)}, \quad (25)$$

где

$$\bar{I}_L^0(t) = (cn_d/8\pi) \tilde{A}_L^0(t) [\tilde{A}_L^0(t)]^*.$$

Из (24), (25) при условии квазинепрерывного возбуждения следует искомое соотношение между стационарными интенсивностями взаимодействующих волн в частице и интенсивностью накачки:

$$\bar{I}_L^{st} = 4\pi |K_{np}^n|^2 I_0 [(G_{st}^L + 2\Gamma^L)^2 cn_a \omega_L^2]. \quad (26)$$

Здесь G_{st}^L – стационарное значение фактора G^L .

При малой интенсивности стоксова излучения (26) переходит в полученное выше выражение для пороговой интенсивности падающего поля, приводящей к генерации ВКР в условиях стационарной накачки. Для генерации стоксовой волны большей интенсивности соответствующее значение порога возрастет в $(1 + G_{st}^L/2\Gamma^L)^2$ число раз.

Таким образом, при стационарной генерации стоксова излучения в частице-микрорезонаторе возникают дополнительные потери энергии падающего светового поля, что эквивалентно уменьшению эффективной добротности резонатора для частоты падающего света. При такой трактовке процессов сохраняется соотношение для пороговой интенсивности падающего излучения, приводящего к ВКР в частице, и на случай возбуждения волны ВКР конечной амплитуды с той лишь разницей, что в выражении (23) вместо Q_L следует ставить $Q_L(1 + \eta)^{-2}$, где η – фактор истощения накачки.

Данный фактор может быть определен из численного решения задачи стационарного ВКР. Однако для предварительных оценок возможно использование его приближенного значения, которое получается из линейной теории:

$$\eta \approx \frac{cg_e \omega_L}{2\Gamma^L n_a \omega_s} \frac{\bar{I}_s^{st}}{\bar{I}_L^{st}}.$$

Условием, когда необходимо учитывать истощение накачки, будем считать уровень $\eta = 1$. Таким образом, при

$$\bar{I}_s^{st} = (Q_s/Q_L) \bar{I}_L^{st}$$

в режиме стационарного ВКР наступает режим истощения накачки.

Заключение

Теоретически рассмотрен процесс вынужденного комбинационного рассеяния света в прозрачной микрочастице с использованием подхода, основанного на представлении оптических полей связанных волн в виде разложения в ряды по собственным функциям стационарной линейной задачи рассеяния. Получены дифференциальные уравнения для временных амплитуд волн на стоксовой и основной частотах в сферической микрочастице. Анализ решений уравнений для начального этапа процесса ВКР и условий реализации стационарного состояния показал, что порог возбуждения ВКР определяется величиной потерь стоксовой волны на поглощение и излучение через поверхность частицы. Для обеспечения стационарной генерации ВКР необходимо дополнительно скомпенсировать энергопотери, вызванные истощением накачки.

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

1. Schweiger G. Raman scattering on single aerosol particles and on flowing aerosols: a review // J. Aerosol Sci. 1990. V. 21. N 4. P. 483–509.
2. Леднева Г.П. Нестационарная генерация в сферической микрочастице // Оптика и спектроскопия. 1994. Т. 76. № 3. С. 506–509.
3. Ораевский А.Н., Скалли М., Величанский В.Л. Лазер на основе квантовой точки // Квант. электрон. 1998. Т. 25. № 3. С. 211–216.
4. 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.
5. Дацюк В.В., Измайлов И.А. Оптика микрокапель // Успехи физ. наук. 2001. Т. 171. № 10. С. 1117–1129.
6. Борен К., Хафмен Д. Поглощение и рассеяние света малыми частицами. М.: Мир, 1986. 660 с.
7. Землянов А.А., Гейнц Ю.Э. Нестационарное упругое линейное рассеяние света на сферических микрочастицах // Оптика атмосф. и океана. 2002. Т. 15. № 8. С. 684–692.
8. Сухоруков А.П. Нелинейные волновые взаимодействия в оптике и радиофизике. М.: Наука, 1988. 232 с.
9. Ханин Я.И. Динамика квантовых генераторов. Квантовая радиофизика. Т. 2. М.: Сов. радио, 1975. 496 с.
10. Lin H.-B., Eversole J.D., Campillo A.J. Continuous-wave stimulated Raman scattering in microdroplets // Opt. Lett. 1992. V. 17. N 11. P. 828–830.
11. Vehring R., Schweiger G. Threshold of stimulated Raman scattering in microdroplets // J. Aerosol Sci. 1995. V. 26. Suppl. 1. P. 235–236.

12. *Biswas A., Latifi H., Armstrong R.L., Pinnik R.G.* Double-resonance stimulated Raman scattering from optically levitated glycerol droplets // *Phys. Rev. B.* 1989. V. 40. N 12. P. 7413–7416.

13. *Гейнц Ю.Э., Землянов А.А., Чистякова Е.К.* Энергетический порог генерации ВКР в прозрачных каплях // *Оптика атмосф. и океана.* 1995. Т. 8. № 10. С. 1480–1487.

A.A. Zemlyanov, Yu.E. Geints. **Stimulated Raman scattering in a spherical microparticle.**

Differential equations for the time-dependent amplitudes of coupled waves at the Stokes frequency and the frequency of incident radiation in a spherical particle are obtained based on the method of expanding optical fields into series about eigenfunctions of the stationary linear scattering problem. Solutions of the equations for the initial stage of the SRS process and the conditions of the stationary state are analyzed. The SRS threshold is determined, and the threshold for the stationary SRS with a given intensity is found for the case of double resonance between fields. It is shown that to excite SRS, one should compensate for the loss of the Stokes wave for absorption and emission through the particle surface. To provide for stationary SRS generation, it is necessary to additionally compensate for the energy loss due to pump depletion.