

УДК 534:535

ВЫНУЖДЕННОЕ РАССЕЯНИЕ НА УПРУГИХ КОЛЕБАНИЯХ НАНОЧАСТИЦ В ОПТИЧЕСКОМ РЕЗОНАТОРЕ С НАНОДИСПЕРСНЫМ ЗАПОЛНЕНИЕМ

© 2021 г. А. Ф. Бункин¹, *, В. Г. Михалевич¹, В. Н. Стрельцов¹

¹Федеральное государственное бюджетное учреждение науки Федеральный исследовательский центр
“Институт общей физики имени А.М. Прохорова Российской академии наук”, Москва, Россия

*E-mail: abunkin@rambler.ru

Поступила в редакцию 09.12.2020 г.

После доработки 25.01.2021 г.

Принята к публикации 26.02.2021 г.

Приводятся результаты исследования динамики диэлектрических наночастиц и электромагнитного поля в оптическом резонаторе, заполненном жидкостью и возбуждаемом внешним монохроматическим излучением. Найдена нелинейная поляризация среды и описан стационарный режим нелинейного возбуждения электромагнитного поля в резонаторе. Показано, что раскачка упругих пульсаций частиц под действием пондеромоторных сил в электромагнитном поле приводит к генерации полей комбинационных частот.

DOI: 10.31857/S0367676521060077

ВВЕДЕНИЕ

Жидкие суспензии наночастиц представляют собой интересные в физическом и прикладном отношении среды. Такие взвеси могут иметь искусственное происхождение, но часто реализуются и естественным путем (например, в виде суспензий вирусов). Существенной особенностью таких сред является высокая подвижность частиц суспензии в электромагнитном поле. Это свойство позволяет эффективно управлять пространственным распределением частиц суспензии и, тем самым, формировать среды с необходимыми физическими свойствами.

Благодаря высокой интенсивности электромагнитного поля весьма перспективным для исследования подобных сред, в том числе вирусных суспензий, представляется внутррезонаторная спектроскопия. При этом в отличие от спектроскопии мутных аэрозолей здесь возникает целый ряд специфических физических задач. Одной из принципиальных проблем является вопрос о пространственном распределении и кинетике наночастиц в световых полях различной пространственной структуры. Особенно актуальным это становится при напряженностях внутррезонаторного поля порядка 100–1000 ед. СГСЭ, когда энергия дипольного электромагнитного взаимодействия становится сравнимой с тепловой энергией частиц.

Число работ, посвященных различным аспектам электродинамики жидких суспензий диэлектрических наночастиц достаточно велико (см., например, [1–6]). В указанных работах поведение наночастиц в электромагнитном поле рассматривалось без учета его воздействия на возбуждающее поле. В то же время, пространственная конфигурация поля существенно определяется наличием такой обратной связи (например, в оптическом резонаторе), что влияет как на динамику частиц, так и на режим установления поля в системе. Заметим, что подобная ситуация возникает при рассмотрении практически всех нелинейных оптических процессов в резонаторах. При этом характер генерации в системе существенно определяется методом возбуждения резонатора. Так, например, при рассмотрении вынужденного рассеяния Мандельштама–Бриллюэна в оптическом резонаторе с внешним возбуждением возникает ряд физически интересных особенностей по сравнению с аналогичной генерацией в лазерном резонаторе [7, 8].

В настоящей работе исследуется ряд существенных аспектов нелинейного возбуждения поля в оптическом резонаторе с внешним возбуждением, полностью заполненном жидкой суспензией диэлектрических наночастиц. В отличие от ранее применяемых упрощенных моделей нами на основе максвеллова тензора натяжений для электромагнитного поля в плоском оптическом резонаторе с внешним возбуждением получены уравнения движения для диэлектрических нано-

шаров в жидком растворителе под действием пондеромоторных сил.

ДИНАМИКА НАНОЧАСТИЦ В ОПТИЧЕСКОМ РЕЗОНАТОРЕ

Рассмотрим добротный открытый оптический резонатор, полностью заполненный жидкой суспензией наночастиц. Будем предполагать, что рассматриваемые частицы представляют собой шары с диэлектрической проницаемостью, мало отличающейся от диэлектрической проницаемости ϵ_l раствора. Для простоты будем считать ϵ_l близкой к 1. Резонатор возбуждается внешней световой волной частоты ω , совпадающей с некоторой собственной частотой резонатора. Предполагается, что в ширину линии, отвечающей собственной частоте попадает одна пространственная мода. В описанных условиях рассеяние падающей волны на шаре будет мало, и действующее поле вблизи поверхности шара при не слишком большой плотности дисперсной фракции будет совпадать с макроскопическим внутрирезонаторным полем в чистом растворителе.

Таким образом, вектор напряженности $\vec{E}(\vec{x}, t)$ действующего поля в резонаторе можно записать в виде:

$$\vec{E}(\vec{x}, t) = \vec{E}(\vec{x}) \cos \omega t, \quad (1)$$

где $\vec{E}(\vec{x})$ – пространственное распределение моды резонатора с собственной частотой возбуждающего лазерного излучения.

Для определенности будем считать, что поле $\vec{E}(\vec{x}, t)$ линейно поляризовано по оси x_1 (используется декартова система координат x_1, x_2, x_3).

Усредненный по времени максвеллов тензор натяжений электромагнитного поля [9] на поверхности диэлектрического шара будет иметь диагональный вид

$$T_{ij}(\vec{x}) = T^{(i)} \delta_{ij}, \quad (2)$$

где $T^{(1)} = \frac{1}{8\pi} \epsilon_p E^2(\vec{x})$; $T^{(2, 3)} = -T^{(1)}$, δ_{ij} – символ Кронекера.

Составляющая F_i результирующей пондеромоторной силы, действующей на шар, определяется интегралом

$$F_i = -\oint T_{i,i} \cos(\vec{n}, i) ds, \quad (3)$$

где ds – элемент поверхности частицы.

Интеграл берется по поверхности шара, \vec{n} – внешняя нормаль к поверхности, суммирование по i не производится.

Удобно ввести локальную декартову систему координат \vec{x}' с началом в центре шара \vec{x}_0 , оси ко-

торой параллельны осям основной системы координат: $x_i = x_{i0} + x'_i$.

Если характерный масштаб неоднородности поля превосходит радиус шара R : $\frac{1}{E} \frac{\partial E}{\partial x_i} R < 1$, то плотность электрического поля в (2), (3) можно разложить в ряд по степеням x'_i . В первом порядке малости по данному параметру

$$T^{(1)} = \frac{1}{8\pi} \epsilon_l \left[E^2(\vec{x}_0) + 2E(x_0) \frac{\partial E}{\partial x_{j0}} x'_j \right]. \quad (4)$$

Тогда

$$F_i = \mp \frac{1}{2\pi} \epsilon_l E(\vec{x}_0) \frac{\partial E}{\partial x_{j0}} \int x'_j \cos(\vec{n}, i) ds'. \quad (5)$$

Интеграл берется по верхней части полусферы $x_j'^2 = R^2$, знак (–) относится к F_1 , две остальные компоненты положительны. Постоянный член $E^2(\vec{x}_0)$ в (4) не дает вклада в интеграл (3), вклад в двойной интеграл (5) линейных слагаемых (4) отличен от нуля только для $x'_j = x'_j$.

Интеграл (5) вычисляется элементарно, и окончательно получаем:

$$F_i = \mp \frac{\epsilon_l}{6} E(\vec{x}_0) \frac{\partial E}{\partial x_{j0}} R^3. \quad (6)$$

Для дальнейшего необходимо конкретизировать вид и параметры оптического резонатора. Будем рассматривать плоский резонатор с расстоянием (по оси z) L между зеркалами.

Собственную аксиальную моду электромагнитного поля в резонаторе с частотой ω , совпадающей с частотой возбуждающего излучения можно представить в виде:

$$E(\vec{r}) = E \sin(kz) g(\vec{r}_\perp) \quad (7)$$

здесь $k = \frac{\pi}{L} m$, m – большое целое число, $\omega \approx \frac{\pi c}{L \sqrt{\epsilon_L(\omega)}} m$, $g(\vec{r}_\perp)$ – поперечное распределение поля моды, зависящее от номера моды, длины резонатора L , формы и размера зеркал, \vec{r}_\perp – поперечная часть радиус-вектора \vec{r} . В (7) мы перешли к обычному обозначению векторов (x, y, z) , ϵ_L – линейная часть диэлектрической проницаемости суспензии (см. ниже), c – скорость света.

Исходя из (7), рассмотрим, например, движение дисперсной частицы вдоль оси резонатора.

Заметим, что в обычных условиях $\frac{\partial g}{\partial \vec{r}_\perp} \frac{1}{k} < 1$, и для описания продольного движения частицы можно

использовать одномерное приближение. Из (6), (7) для координаты центра шара получаем:

$$\ddot{z} = \frac{\varepsilon_l E^2}{8\pi\rho} k \sin(kz) \cos(kz) g^2(\vec{r}_\perp), \quad (8)$$

где с учетом присоединенной массы для сферических частиц $\rho = \rho_s + \rho_l/2$, ρ_s – плотность вещества частицы, ρ_l – плотность растворителя. Положение равновесия частицы определяется одним из равенств $kz = \pi l$ или $kz = \pi/2 + \pi l$.

Анализ показывает, что устойчивому положению равновесия отвечает второе соотношение.

Линеаризуя (8) вблизи устойчивого положения равновесия, получаем ожидаемый результат. В отсутствие диссипации частица будет совершать продольные гармонические колебания с частотой $\Omega^2 = \frac{E^2}{8\pi\rho} k^2$.

Под действием диссипативных сил, например вязкости, частицы с некоторым временем установления придут в механическое и термодинамическое равновесие. Разумеется, во всем предыдущем рассмотрении предполагалось: $\alpha_s V_s E^2 > kT$, где V_s – объем частицы примеси, α_s – поляризуемость единицы объема материала примеси.

Если тепловая энергия примесных частиц превышает их энергию в поле, то очевидно примесные частицы можно рассматривать как идеальный газ. Тогда сохраняется физический смысл химического потенциала θ для подсистемы примесных частиц: $\theta = kT \ln n V_q$, где n – концентрация примесных частиц, V_q – квантовый объем частицы с учетом присоединенной массы.

Пространственная конфигурация частиц в таких условиях будет иметь Больцмановское распределение с энергией равной энергии поляризованной частицы в поле резонатора. Перераспределение частиц в электромагнитном поле приведет, очевидно, к возникновению добавочной нелинейной поляризации, изменению динамики генерации в системе и значений амплитуд стационарных колебаний поля. Рассмотрим эти вопросы более подробно.

С учетом ранее сказанного, электромагнитное поле в резонаторе имеет вид:

$$E(\vec{r}, t) = E(t) E(\vec{r}), \quad (9)$$

где $E(t)$, $E(\vec{r})$ – временная и пространственная части электромагнитного поля. Напомним, что падающая волна и поле в резонаторе поляризованы по оси x .

Наночастицы в рассматриваемых условиях имеют Больцмановское пространственное равновесное распределение:

$$n' = n_0 \exp \left[\frac{\alpha_s V_s \overline{E^2}(t)}{kT} g^2(\vec{r}_\perp) \sin^2 kz \right]. \quad (10)$$

Здесь n', n_0 – плотности частиц дисперсной фазы, при этом $n_0 = n_0(\overline{E^2}(t))$, $\overline{E^2}(t)$ – усредненная по времени плотность энергии поля.

Учитывая, как было указано ранее, $\frac{\alpha_s V_s \overline{E^2}(t)}{kT} < 0.1$, (10) может быть разложено в ряд. Из условия сохранения полного числа частиц примеси в объеме резонатора V : $\int n' d\vec{r} = nV$, где V – объем резонатора, n – однородная плотность частиц до включения поля, после интегрирования с точностью до первого порядка малости по параметру $\frac{\alpha_s V_s \overline{E^2}(t)}{kT}$ находим:

$$n' = n \left(1 - \frac{\alpha_s L}{2kTV} \overline{E^2}(t) \int g^2(\vec{r}_\perp) d\vec{r}_\perp \right). \quad (11)$$

Найдем поляризуемость смеси α . Объем растворителя в единичном объеме смеси составляет величину $(1 - n'V_s)$, а его поляризуемость $p_l = \alpha_l(1 - n'V_s)$. Подставляя сюда n' из (10), (11) и учитывая поляризацию, вносимую диэлектрическими частицами, получаем

$$\alpha = \alpha_l \left[1 + nV_s \left(\frac{\alpha_s}{\alpha_l} - 1 \right) \right] + \alpha_l n \frac{\alpha_s V_s^2}{kT} \left(\frac{\alpha_s}{\alpha_l} - 1 \right) \times \left[g^2(\vec{r}_\perp) \sin^2 kz - \frac{L}{2V} \int g^2(\vec{r}_\perp) d\vec{r}_\perp \right] \overline{E^2}. \quad (12)$$

Первое слагаемое в (12) дает линейную часть поляризуемости α_L , определяющую частоту ω собственных колебаний электромагнитного поля в резонаторе (7): $\varepsilon_L = 1 + 4\pi\alpha_L$.

Уравнение Максвелла для поля в резонаторе имеет обычный вид:

$$\frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} + \frac{4\pi}{c^2} \frac{\partial^2 \alpha E}{\partial t^2} + \frac{\omega}{Q} \frac{\partial E}{\partial t} - \Delta E = -\frac{4\pi}{c^2} \frac{\partial^2 P_{ins}}{\partial t^2}. \quad (13)$$

Здесь P_{ins} – сторонняя поляризация, создаваемая лазерным излучением $P_{ins}(\vec{r}, t) = \frac{1}{2} (P_{ins}(\vec{r}) e^{-i\omega t} + \text{к.с.})$, Q – добротность резонатора на частоте ω , определяемая дифракционными потерями на краях зеркал, их коэффициентами пропускания и пассивными потерями в веществе резонатора.

При выводе (13) мы учли, что в обычных условиях поле в резонаторе плавно меняется в попе-

речной плоскости $\frac{\partial E}{E \partial r_{\perp}} \frac{c}{\omega} < 1$ и пренебрегли градиентным членом $\nabla r_{\perp} \text{div}[\alpha E(\vec{r}, t)]$ по сравнению с $\frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \alpha E}{\partial t^2}$.

Уравнение (13) описывает систему, близкую к консервативной. Для исследования периодических решений перейдем на плоскость Ван-дер-Поля, сделав замену:

$$E(\vec{r}, t) = \left[\frac{1}{2} Y(t) e^{-i\omega t} + c.c. \right] E(\vec{r}), \quad (14)$$

где $Y(t)$ – медленно меняющаяся амплитуда. Подставляя (14) в (13), умножая обе части равенства скалярно на $E(\vec{r})$ после интегрирования по z , получаем уравнение для $Y(t)$:

$$\dot{Y}(t) + \mu Y + i\Gamma |Y|^2 Y = W. \quad (15)$$

Здесь $\mu = \frac{1}{2Q}$, Q – добротность резонатора на частоте ω .

$$\Gamma = -\frac{1}{2} \pi \omega \gamma \left[\frac{3 \int g^4(\vec{r}_{\perp}) d\vec{r}_{\perp}}{2 \int g^2(\vec{r}_{\perp}) d\vec{r}_{\perp}} - \frac{L}{V} \int g^2(\vec{r}_{\perp}) d\vec{r} \right],$$

$$\gamma = \alpha_t \alpha_s \frac{n V_s^2}{k T} \left(\frac{\alpha_s}{\alpha_t} - 1 \right), \quad W = i 2 \pi \omega \frac{\int \vec{P}_{ins}(\vec{r}) \vec{E}(\vec{r}) d\vec{r}}{\int E^2(\vec{r}) d\vec{r}}.$$

СТАЦИОНАРНЫЙ РЕЖИМ НЕЛИНЕЙНОГО ВОЗБУЖДЕНИЯ ЭЛЕКТРОМАГНИТНОГО ПОЛЯ В ОПТИЧЕСКОМ РЕЗОНАТОРЕ, ЗАПОЛНЕННОМ ЖИДКОЙ СУСПЕНЗИЕЙ НАНОЧАСТИЦ

Рассмотрим стационарный режим генерации, положив $\dot{Y} = 0$, тогда (15) переходит в:

$$Y + i\chi |Y|^2 Y = Z_L, \quad (16)$$

где $\chi = \Gamma/\mu$; Z_L – стационарная амплитуда колебаний электромагнитного поля в резонаторе при данной интенсивности возбуждающего излучения в условиях пространственно-однородного распределения наночастиц в суспензии: $Z_L = \frac{iW}{\mu}$.

Фаза Y стационарных колебаний зависит от фазы Z_L , которая, в свою очередь, определяется фазой возбуждающей световой волны. В большинстве случаев интерес представляет плотность энергии электромагнитных колебаний $I = |Y|^2$, при этом фазу Z_L можно задавать произвольно, удобным для вычисления способом. Наиболее наглядным образом влияние нелинейности в рассматриваемой системе проявляется в отклонении истинной плотности энергии колебаний поля I от значения плотности энергии колебаний I_0 в от-

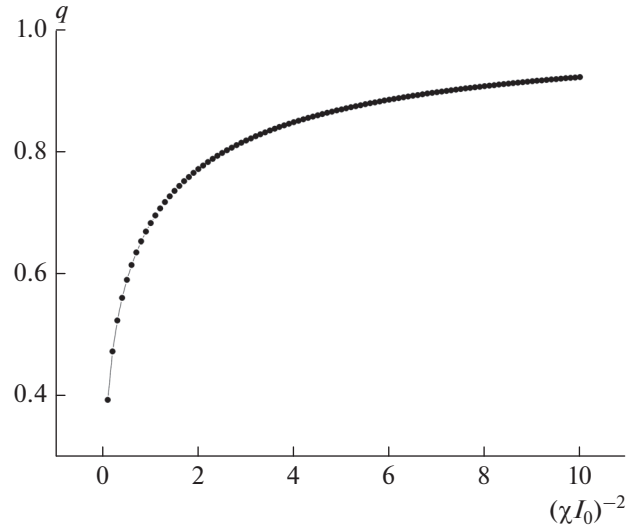


Рис. 1. Зависимость коэффициента нелинейной трансформации интенсивности прошедшего излучения от параметра нелинейности нанодисперсной среды $(\chi I_0)^{-2}$.

сутствии нелинейности при том же уровне накачки. Для безразмерной величины $q = I/I_0$ получено неполное кубическое уравнение:

$$(\chi I_0)^2 q^3 + q - 1 = 0. \quad (17)$$

Сделаем следующее замечание. Отказ от принятых выше во избежание громоздкости, ограничений, за исключением требования разложимости бальмановского распределения (10) в ряд по степеням плотности электромагнитного поля, приводит лишь к изменению величин коэффициентов в (15), не меняя вида (17) и, тем самым, качественной картины динамики поля в резонаторе. При этом, во всех физических ситуациях, мы можем придавать параметру χI_0 любые численные значения, не противоречащие требованию малости экспоненты в (10).

На рис. 1 приведена зависимость коэффициента трансформации q от безразмерного параметра нелинейности $(\chi I_0)^2$ в системе. Кривая монотонна. Таким образом, в системе реализуется мягкий режим самовозбуждения.

В условиях точного согласования частоты накачки с собственной частотой резонатора (см. (7)), при условии близости поперечного распределения возбуждающего излучения к поперечному распределению резонансной моды при слабом затухании поля в веществе резонатора и его зеркалах для плотности энергии I_T прошедшего пучка с достаточной степенью точности можно записать: $I_T = T^2 I = q T^2 I_0 \approx q I_{ins}$, где T – коэффици-

ент пропускания по полю выходного зеркала, I_{ins} — плотность энергии возбуждающего излучения.

Сделаем численные оценки. Примем радиус R сферической наночастицы 10^{-5} см. При комнатной температуре больцмановский фактор (10) оказывается порядка $\sim 10^{-1}I_0$, при этом при концентрации наночастиц $n \sim 10^{13}$ см $^{-3}$ и добротности резонатора $Q \approx 10^5$ (что отвечает времени установления в системе $\tau \approx 10^{-10}$ с) параметр нелинейности $\chi I_0 \approx 4I_0$, и заметное отклонение от линейного режима возникает при $I_0 \sim 0.25$ CGSE. Еще раз напомним, что речь идет о плотности энергии I_0 поля в резонаторе. При высокой добротности внутрирезонаторное поле намного превышает поле возбуждающего излучения.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Таким образом, проведено исследование наиболее принципиальных физических аспектов общей динамики наночастиц в жидких невязких средах во внешнем электромагнитном поле с пространственной конфигурацией, отвечающей хорошо разрешенным модам оптического резонатора и одновременно исследована нелинейная стационарная генерация поля в таком резонаторе при индуцированном концентрационным перераспределении частиц дисперсной фазы. Полученные результаты, в частности, показывают, что нелинейная модификация стационарной динамики поля в резонаторе с заполнением жидкой

суспензией наночастиц может быть использована для эффективного определения концентрации частиц примеси. Другим практически важным аспектом использования полученных результатов является возможность селекции наночастиц по размерам в нанодисперсной жидкой суспензии, помещенной в резонатор.

Работа была частично поддержана РФФИ (проекты № 18-52-16016, 19-02-00013, 20-02-00172).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Ashkin A.* // Phys. Rev. Lett. 1970. V. 24. No. 4. P. 156.
2. *Smith P.W., Maloney P.J., Ashkin A.* // Opt. Lett. 1982. V. 7. P. 347.
3. *Andres-Arroyo A., Gupta B., Wang F. et al.* // Nano Lett. 2016. V. 16. P. 1903.
4. *Bunkin A.F., Mikhalevich V.G., Pershin S.M. et al.* // Phys. Wave Phenom. 2019. V. 27. No. 4. P. 278.
5. *Архипенко М.В., Бункин А.Ф., Давыдов М.А. и др.* // Письма в ЖЭТФ. 2019. Т. 109. № 9. С. 598; *Arkhipenko M.V., Bunkin A.F., Davydov M.A. et al.* // JETP Lett. 2019. V. 109. No. 9. P. 578.
6. *Афанасьев А.А., Гайда Л.С., Гузатов Д.В. и др.* // Опт. и спектроск. 2016. Т. 120. № 1. С. 153; *Afanas'ev A.A., Gaida L.S., Guzatov D.V. et al.* // Opt. Spectrosc. 2016. V. 120. P. 138.
7. *Lugovoi V.N., Streltsov V.N.* // Opt. Acta. 1973. V. 20. No. 3. P. 165.
8. *Луговой В.Н., Стрельцов В.Н.* // ЖЭТФ. 1972. Т. 62. № 4. С. 1312; *Lugovoi V.N., Strel'tsov V.N.* // JETP. 1972. V. 35. No. 4. P. 692.
9. *Тамм И.Е.* Основы теории электричества. М.: Физматлит, 2003. 416 с.

Stimulated scattering by elastic vibrations of nanoparticles in an optical resonator with nano-disperse filling

A. F. Bunkin^{a,*}, V. G. Mikhalevich^a, V. N. Streltsov^a

^a*Prokhorov General Physics Institute of the Russian Academy of Sciences, Moscow, 119991 Russia*

**e-mail: abunkin@rambler.ru*

The dynamics of dielectric nanoparticles and the electromagnetic field in an optical cavity filled with a liquid and excited by external monochromatic radiation is studied. The nonlinear polarization of the medium is found and the stationary regime of nonlinear excitation of the electromagnetic field in the resonator is described. The buildup of elastic pulsations of particles under the action of ponderomotive forces in an electromagnetic field leads to the generation of fields of combination frequencies.