

## ИЗ ТЕКУЩЕЙ ЛИТЕРАТУРЫ

## Оптика микрокапель

В.В. Дацюк, И.А. Измайлов

*Дан обзор оптических эффектов, наблюдавшихся в каплях микрометрового радиуса. Изложены основы оптики микрокапель и проанализированы такие явления, как увеличение вероятности спонтанного излучения, лазерная генерация, комбинационное рассеяние света, изменение скоростей физико-химических процессов, особенности воздействия на капли световых импульсов высокой мощности. Отмечено применение полученных знаний для структурного анализа капель, основанного на измерениях положения и амплитуды резонансов в спектрах упругого или неупругого рассеяния света.*

PACS numbers: 12.20.Fv, 42.50.-p, 42.55.-f, 42.65.-k, 42.68.Wt

## Содержание

1. Введение (1117).
  2. Рассеяние Ми (1118).
  3. Увеличение вероятностей спонтанного излучения (1119).
  4. Структурный анализ капель (1123).
  5. Лазерная генерация в каплях (1123).
  6. Вынужденное комбинационное рассеяние света (1124).
  7. Изменение скоростей физико-химических процессов (1126).
  8. Иерархия процессов при облучении капель светом высокой интенсивности (1127).
  9. Заключение (1127).
- Список литературы (1127).

## 1. Введение

Исследование гетерофазных мелкодисперсных сред, таких как аэрозоли, суспензии, газы и плазма, содержащие кластеры, представляет значительный интерес как с точки зрения развития новых технологий, так и с точки зрения изучения аномальных физических явлений [1–15]. Действительно, скорости элементарных физико-химических процессов в дисперсных средах могут изменяться так сильно, что можно говорить о новых физических объектах со специфическими свойствами. Так, в работах [10–12] изложена концепция кластерной плазмы. Настоящий обзор посвящен особенностям оптических процессов, наблюдавшихся в микрокаплях.

Оптика микрокапель имеет долгую историю. Обзор научных исследований в этой области можно начать с

работы Декарта, опубликованной в 1639 г. [16]. В ней была развита лучевая теория преломления и отражения света в одиночной сферической капле. Спустя два столетия эта теория была улучшена Эйри, принявшим во внимание дифракцию света [17] (см. [18]). Чтобы проиллюстрировать значимость проблемы, отметим следующее. С одной стороны, решение задачи рассеяния света было получено Декартом сразу же после создания им аналитической геометрии [19]. С другой стороны, решение той же задачи в рамках лучевой оптики исследуется в современных работах [20–27].

Строгое аналитическое решение задачи рассеяния электромагнитной волны на однородной сфере произвольного радиуса и с произвольной диэлектрической проницаемостью было получено независимо друг от друга Лоренцем [28], Ми [29], Дебаем [30] и Лявом [31] (см. [18, 32, 33]). В это же время лорд Рэлей исследовал распространение звука вдоль изогнутой поверхности галереи [34]. Эту работу Рэля следует упомянуть, поскольку термин "моды шепчущей галереи" (МШГ) часто используется и по отношению к электромагнитным поверхностным колебаниям в оптических резонаторах.

В течение длительного периода времени интерес к распространению света в каплях был академическим. Однако ситуация радикально изменилась в середине 80-х годов XX в. в связи с созданием лазеров и вычислительных машин. Изучению микрокапель посвящены сотни экспериментальных и теоретических работ. Результаты этих исследований нашли применение в технике. Понимание оптических процессов, достигнутое при изучении капель, вызвало появление новых направлений прикладной физики [35–44]. Так, в [36, 37] изучается возможность использования МШГ в твердотельных микрорезонаторах для создания фейнмановского квантовомеханического компьютера. В [44] предложена схема лазера на основе квантовой точки.

Далее в обзоре будут рассмотрены разнообразные свойства МШГ в каплях, которые наблюдались при условии применимости теории Лоренца – Ми.

**В.В. Дацюк.** Киевский национальный университет им. Тараса Шевченко, физический факультет, 01033 Киев, ул. Владимирская 64, Украина  
Тел. (038 044) 266-44-77. E-mail: datsyuk@ups.kiev.ua

**И.А. Измайлов.** Институт физики полупроводников НАН Украины, 03028 Киев, просп. Науки 45, Украина  
Тел. (038 044) 265-77-78

Статья поступила 22 мая 2001 г.

Рассеяние света одиночной каплей принято называть рассеянием Ми, если безразмерный радиус каплей лежит в диапазоне от нескольких десятков до нескольких сотен,

$$x \equiv \frac{2\pi a}{\lambda} \simeq 10^2.$$

Здесь и ниже  $\lambda$  — длина волны света в окружающей каплю среде,  $a$  — радиус капли. Если  $\lambda$  лежит в видимом диапазоне, то  $a$  — величина порядка нескольких десятков микрометров. (При  $x \ll 1$  рассеяние света называют рэлеевским [45].)

## 2. Рассеяние Ми

Формализм, использованный при решении задачи о рассеянии плоской монохроматической волны на шаре, называют теорией Лоренца – Ми. Эта теория достаточно подробно изложена в [32, 46] (см. также [47]). Ниже мы даем ее краткое описание. Изложение теоретической модели необходимо не только для вычисления характеристик рассеянного излучения. Как будет видно из сравнения формул, возбуждение МШГ приводит к образованию резонансных структур как в спектрах рассеянного света, так и в спектрах спонтанного излучения.

В рамках классической электродинамики векторы напряженности электрического  $\mathbf{E}$  и магнитного  $\mathbf{H}$  полей можно выразить через электрический и магнитный потенциалы Дебая  $v^p$ . Здесь и далее мы используем индекс  $p$  для обозначения поляризации электромагнитного поля. Пусть  $p = 0$  для поля поперечного электрического (ТЕ) типа и  $p = 1$  для поля поперечного магнитного (ТМ) типа. Потенциалы Дебая  $v^p$  удовлетворяют скалярному волновому уравнению

$$\Delta v^p + \frac{\varepsilon\mu}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} v^p = 0, \quad (1)$$

где  $\Delta$  — оператор Лапласа,  $\partial/\partial t$  обозначает производную по времени,  $c$  — скорость света в вакууме. Предполагается, что константы диэлектрической и магнитной проницаемости шара (II) и окружающей его среды (I) постоянны:

$$\varepsilon = \begin{cases} \varepsilon^{(II)}, & r \leq a, \\ \varepsilon^{(I)}, & r > a, \end{cases} \quad \mu = 1.$$

Здесь  $r$  — расстояние от центра шара. Относительный показатель преломления света

$$n = \sqrt{\frac{\varepsilon^{(II)}}{\varepsilon^{(I)}}}.$$

Общее решение уравнения (1) в сферической системе координат  $r, \theta, \phi$  при  $r \leq a$  можно представить в виде суперпозиции шаровых функций

$$v_i^p = \sum_{l,m} a_{plm} \frac{1}{r} j_l(z\xi) Y_l^m(\theta, \phi) \exp(-i\omega t), \quad (2)$$

где  $z \equiv nx$ ,  $\xi \equiv r/a$ ,  $j_l(z) \equiv \sqrt{\pi z/2} J_{l+1/2}(z)$  — функция Риккати – Бесселя,  $J_{l+1/2}(z)$  — функция Бесселя,  $Y_l^m(\theta, \phi)$  — сферическая функция. При  $r > a$  поле состоит из поля падающей на шар волны

$$v_0^p(\mathbf{r}, t) = v_0^p \exp[i(\mathbf{k}\mathbf{r} - \omega t)]$$

и поля рассеянного излучения

$$v_s^p = \sum_{l,m} b_{plm} \frac{1}{r} h_l(x\xi) Y_l^m(\theta, \phi) \exp(-i\omega t), \quad (3)$$

где  $h_l(z) \equiv \sqrt{\pi z/2} H_{l+1/2}^{(1)}(z) = j_l(z) + iy_l(z)$ ,  $H_{l+1/2}^{(1)}(z)$  — функция Ханкеля первого рода. Если зависимость электромагнитного поля от времени берется в виде  $\exp(i\omega t)$ , то вместо  $H_{l+1/2}^{(1)}$  в формулы войдет функция Ханкеля второго рода  $H_{l+1/2}^{(2)}$  [26, 48]. Коэффициенты  $a_{plm}$  и  $b_{plm}$  в уравнениях (2), (3) находят из условий непрерывности тангенциальных составляющих векторов  $\mathbf{E}$  и  $\mathbf{H}$  на поверхности шара. После определения  $a_{plm}$  и  $b_{plm}$  электромагнитное поле может быть вычислено в любой точке пространства.

В качестве интегральной характеристики рассеяния используют сечение экстинкции  $\sigma_{\text{ext}}$ . Его вводят как отношение мощности поглощаемого и рассеиваемого излучения к потоку энергии электромагнитной волны [32, 46]. (Если поглощение света внутри шара отсутствует,  $\sigma_{\text{ext}}$  совпадает с сечением рассеяния света.) Отношение  $\sigma_{\text{ext}}$  к поперечному сечению шара  $\pi a^2$  обозначим  $Q_{\text{ext}}$ . Согласно теории Лоренца – Ми нормализованное сечение экстинкции

$$Q_{\text{ext}} = \frac{2}{x^2} \sum_{p=0}^1 \sum_{l=1}^{\infty} (2l+1) \text{Re } \alpha_{pl}. \quad (4)$$

Здесь

$$\alpha_{pl} = \frac{n^{1-2p} j_l'(z) j_l(x) - j_l(z) j_l'(x)}{D_{pl}(x, n)}, \quad (5)$$

где

$$D_{pl}(x, n) \equiv n^{1-2p} j_l'(z) h_l(x) - j_l(z) h_l'(x)$$

(штрих обозначает производную функции по ее аргументу). Формулу (4) обычно называют разложением Ми, а коэффициенты  $\alpha_{pl}$  — функциями рассеяния Ми.

Чтобы оценить величину коэффициентов разложения в (4), формулу (5) можно записать в виде

$$\alpha_{pl} = \frac{1}{1 + i u_{pl}}, \quad (6)$$

где

$$u_{pl} = \frac{n^{1-2p} j_l'(z) y_l(x) - j_l(z) y_l'(x)}{n^{1-2p} j_l'(z) j_l(x) - j_l(z) j_l'(x)}.$$

Для действительного параметра  $n$  выражение  $u_{pl}$  — действительная величина. Поэтому вещественная часть коэффициента (6)

$$\text{Re } \alpha_{pl} = \frac{1}{1 + u_{pl}^2}$$

изменяется от 0 до 1. Вместо действительной функции  $u_{pl}$  часто вводят фазовый угол  $\delta_{pl}$ :

$$u_{pl} = \cot \delta_{pl}.$$

В этом случае выражение для сечения экстинкции принимает следующий вид:

$$Q_{\text{ext}} = \frac{2}{x^2} \sum_{p=0}^1 \sum_{l=1}^{\infty} (2l+1) \sin^2 \delta_{pl}.$$

В качестве иллюстрации на рис. 1 представлена функция  $Q_{\text{ext}}(x)$ , вычисленная нами для шара с  $n = 1,5$ . Кривая на рис. 1б — это совокупность точек  $(x, Q_{\text{ext}}(x))$ , расположенных на расстоянии  $\Delta x = 0,005$ . Кривая на рис. 1а — та же расчетная зависимость, но из [32, рис. 32]. Эту кривую можно получить, если вычислить  $Q_{\text{ext}}(x)$  с шагом  $\Delta x = 0,1$ . Сверхтонкая структура сечения рассеяния Ми [49] в области  $x = 15-20$  на рис. 1б не видна на рис. 1а. Это очевидное отличие двух кривых свидетельствует о том, что расчет  $Q_{\text{ext}}(x)$  до последнего времени представлял сложную вычислительную задачу. Сложность вычислительных расчетов стимулировала поиск аналитического решения задачи рассеяния, альтернативного разложению Ми (см., например, [50, 51]). Однако алгоритм вычисления коэффициентов  $\alpha_{pl}$ , предложенный в [18], и современная вычислительная техника упрощают решение задачи.

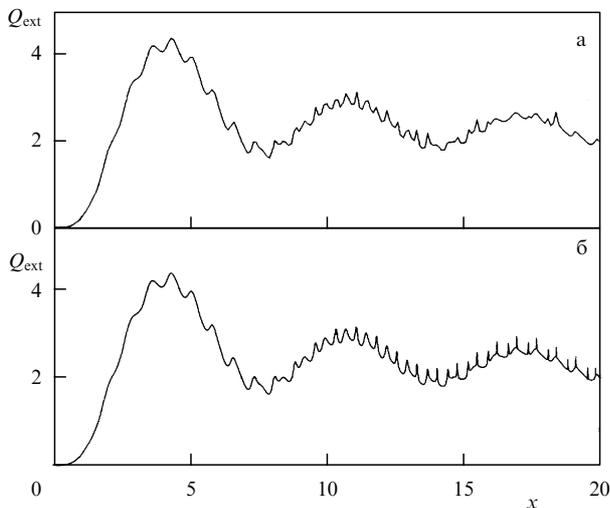


Рис. 1. Зависимость нормализованного сечения рассеяния диэлектрического шара с показателем преломления  $n = 1,5$  от параметра  $x$ .

Для зависимости  $Q_{\text{ext}}(x)$  при больших значениях  $x$  характерно наличие наборов равноотстоящих пиков [52–59]. Так, два набора пиков на рис. 1б при  $x = 15-20$  соответствуют возбуждению мод ТЕ и ТМ поляризации. Величина  $x$  для резонансной моды с номером  $l$  лежит в окрестности

$$x_l \simeq \frac{1}{n} \left( l + \frac{1}{2} \right)$$

(номер моды иногда называют индексом углового момента). Таким образом, расстояние между модами одинаковой поляризации примерно равно  $\Delta x = 1/n$  [56]. На резонансной частоте мнимая часть знаменателя в правой части формулы (5) обращается в нуль,  $u_{pl} = 0$ , и  $\text{Re } \alpha_{pl} = 1$  [26, 52].

### 3. Увеличение вероятностей спонтанного излучения

Одна из интересных особенностей оптических микрорезонаторов — изменение коэффициентов Эйнштейна для спонтанного излучения. Впервые это было отмечено в тезисах [60]. Если между энергетическими уровнями

частицы возможен переход с дипольным моментом  $\mu_d$ , то согласно [60] вероятность спонтанного излучения ( $s^{-1}$ )

$$A = \frac{8\pi v^2}{c^3} h\nu \frac{8\pi^3 \mu_d^2}{3h^2},$$

где  $8\pi v^2/c^3$  — спектральная плотность фотонов в вакууме. Однако для системы, находящейся в резонансном контуре, фактор  $8\pi v^2/c^3$  уже не дает правильного числа колебаний излучения в единичном объеме на единицу частоты, теперь в частотном интервале  $v/Q$  будет одно колебание, связанное с контуром. Таким образом, вероятность спонтанного излучения возрастет на величину

$$f = \frac{3Q\lambda^3}{4\pi^2 V}, \quad (7)$$

где  $V$  — объем резонатора.

Используя язык качественных оценок, можно сказать, что капли имеют чрезвычайно высокие значения  $Q$  при малых объемах  $V$  [36, 37]. Поэтому  $A$  может увеличиться на несколько порядков. Строгое теоретическое обоснование этой идеи дано в работах [61–63]. Соответствующие экспериментальные данные приведены в [64, 65] (см. также обзор [66]).

Так, в [61] были изучены резонансные свойства электромагнитного поля в диэлектрическом шаре с вещественным  $n$ , помещенном внутрь полый проводящей сферы радиуса  $A$ , при  $A \rightarrow \infty$ . Бесконечно удаленная поверхность, на которой равна нулю тангенциальная составляющая  $\mathbf{E}$ , была введена в модель для корректного квантования электромагнитного поля с учетом утечки энергии из резонатора. Такой подход можно считать стандартным при изучении одномерно неоднородных сред [67–69]. Векторы  $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$  и  $\mathbf{H}(\mathbf{r}, t)$  были найдены посредством разложения по вещественным собственным векторам напряженности электрического  $\mathbf{e}(s, \mathbf{r})$  и магнитного  $\mathbf{b}(s, \mathbf{r})$  полей [61]:

$$\mathbf{E} = \sum_s \omega_s^{-1} \frac{d\alpha(s, t)}{dt} \mathbf{e}(s, \mathbf{r}), \quad (8)$$

$$\mathbf{H} = \sum_s \alpha(s, t) \mathbf{b}(s, \mathbf{r}), \quad (9)$$

$$\nabla \times \mathbf{e}(s, \mathbf{r}) = -\frac{\omega_s}{c} \mathbf{b}(s, \mathbf{r}).$$

Здесь постоянные  $\omega_s$  — частоты. Собственный вектор  $\mathbf{e}(s, \mathbf{r})$  — это решение уравнения

$$\nabla \times [\nabla \times \mathbf{e}(s, \mathbf{r})] = \frac{\omega_s^2}{c^2} \varepsilon(\mathbf{r}) \mathbf{e}(s, \mathbf{r}),$$

где  $\varepsilon(\mathbf{r}) = n^2$  при  $r \leq a$  и  $\varepsilon(\mathbf{r}) = 1$  при  $r > a$ . Коэффициенты разложения  $\alpha(s, t)$  удовлетворяют уравнениям

$$\frac{d^2 \alpha(s, t)}{dt^2} = -\omega_s^2 \alpha(s, t).$$

Нормировка  $\mathbf{e}$  и  $\mathbf{b}$  была выбрана так, что выполнялись соотношения

$$I^{(1)}(s, s') = I^{(2)}(s, s') = \hbar \omega_s \delta_{ss'}, \quad (10)$$

где

$$I^{(1)}(s, s') = \frac{1}{4\pi} \iiint_{r < A} \boldsymbol{\varepsilon}(\mathbf{r}) \mathbf{e}(s, \mathbf{r}) \mathbf{e}(s', \mathbf{r}) dV,$$

$$I^{(2)}(s, s') = \frac{1}{4\pi} \iiint_{r < A} \mathbf{b}(s, \mathbf{r}) \mathbf{b}(s', \mathbf{r}) dV.$$

Разложения (8) и (9) позволяют записать полную энергию электромагнитного поля как

$$\frac{1}{8\pi} \iiint (\boldsymbol{\varepsilon} \mathbf{E} \mathbf{E} + \mathbf{H} \mathbf{H}) dV = \sum_s N_s \iiint u_s(\mathbf{r}) dV.$$

В правой части полученного выражения интеграл движения

$$N_s = \frac{1}{2} \left\{ \frac{1}{\omega_s^2} \left[ \frac{d\alpha(s, t)}{dt} \right]^2 + \alpha^2(s, t) \right\}$$

— это число квантов в моде  $s$ , а

$$u_s(\mathbf{r}) = \frac{1}{8\pi} \left[ \boldsymbol{\varepsilon}(\mathbf{r}) \mathbf{e}(s, \mathbf{r}) \mathbf{e}(s, \mathbf{r}) + \mathbf{b}(s, \mathbf{r}) \mathbf{b}(s, \mathbf{r}) \right]$$

— плотность энергии электромагнитного поля в условиях, когда на моду  $s$  приходится один квант. Согласно условиям (10) функция  $u_s(\mathbf{r})$  нормирована на  $\hbar\omega_s$ , так что  $(1/\hbar\omega_s) u_s(\mathbf{r})$  — вероятность найти фотон в моде  $s$  в точке пространства  $\mathbf{r}$ . Таким образом, плотность состояний электромагнитного поля в единичном интервале частоты  $\omega$

$$\rho(\omega, \mathbf{r}) = \frac{1}{\hbar\omega} \sum_s \delta(\omega - \omega_s) u_s(\mathbf{r}). \tag{11}$$

В правой части формулы (11) суммирование проводится по введенным выше индексам  $p, l, m$ , а также радиальному квантовому числу  $v$  системы шар–проводящая сфера. В пределе  $A \rightarrow \infty$  расстояние между радиальными модами стремится к нулю, так что от суммирования по  $v$  можно перейти к интегрированию:

$$\sum_v \rightarrow \frac{A}{\pi c} \int d\omega_s.$$

После интегрирования выражения (11) по частоте  $\omega_s$  и углам  $\theta, \phi$  и суммирования по  $m$  авторы работы [61] провели детальное исследование отношений

$$g(x, n; \xi) \equiv \frac{\rho(\omega, r)}{\rho_v(\omega)}, \quad G(x, n) \equiv \frac{\rho^C(\omega)}{\rho_v(\omega) V},$$

где

$$\rho^C(\omega) \equiv \int_0^a \rho(\omega, r) r^2 dr, \tag{12}$$

$$V \equiv \frac{4\pi}{3} a^3, \quad \rho_v(\omega) = \frac{\omega^2}{\pi^2 c^3}, \quad \xi \equiv \frac{r}{a}.$$

Величина  $g$  характеризует изменение локальной плотности состояний на расстоянии  $r$  от центра шара по сравнению с бесконечным вакуумом. Величина  $G$  есть отношение спектральной плотности состояний электромагнитного поля во всем шаре к спектральной плотности

состояний объема  $V$  бесконечного вакуума. Опубликованные в [61] графики  $g(x), g(\xi)$  и  $G(x)$  соответствуют зависимостям

$$g(x, n; \xi) = \frac{n}{4x^2 \xi^2} \sum_{p=0}^1 \sum_{l=1}^{\infty} (2l+1) \left| \frac{n^{1-2p} j_l(z\xi)}{D_{pl}(x, n)} \right|^2 \times \left[ 1 + \frac{l(l+1)}{z^2 \xi^2} + \left( \frac{j'_l(z\xi)}{j_l(z\xi)} \right)^2 \right], \tag{13}$$

$$G(x, n) = \frac{3n}{x^2} \sum_{p=0}^1 \sum_{l=1}^{\infty} (2l+1) \left| \frac{n^{1-2p} j_l(z)}{D_{pl}(x, n)} \right|^2 \times \left[ 1 - \frac{l(l+1)}{z^2} + \left( \frac{j'_l(z)}{j_l(z)} \right)^2 \right]. \tag{14}$$

Важное значение в функциях  $g(x, n; \xi)$  (13) и  $G(x, n)$  (14) имеет фактор  $|D_{pl}(x, n)|^{-2}$ , аналогичный множителю  $D_{pl}^{-1}(x, n)$  в формуле для коэффициента разложения Ми (5).

Если выполняется условие  $\text{Im } D_{pl}(x, n) = 0$  и добротность соответствующей МШГ велика, то в зависимости  $\rho^C$  от  $x$  (как и в зависимости  $Q_{\text{ext}}(x)$ ) возникает резкий резонансный пик. В [61] указаны закономерности, которые предсказывают положение и амплитуду резонансов в  $\rho^C(\omega)$ . Для иллюстрации особенностей (12) на рис. 2 функция  $G(x; 1, 4)$  сравнивается с  $Q_{\text{ext}}(x; 1, 4)$ . Из рисунков видно, что узкие резонансные пики в функциях  $G(x; 1, 4)$  и  $Q_{\text{ext}}(x; 1, 4)$  существуют на одинаковых частотах. Однако если величина  $Q_{\text{ext}}$  на резонансной частоте сравнима с величиной  $Q_{\text{ext}}$  на нерезонансных частотах, то амплитуда максимумов  $G(x, n)$  лежит в диапазоне 40–90.

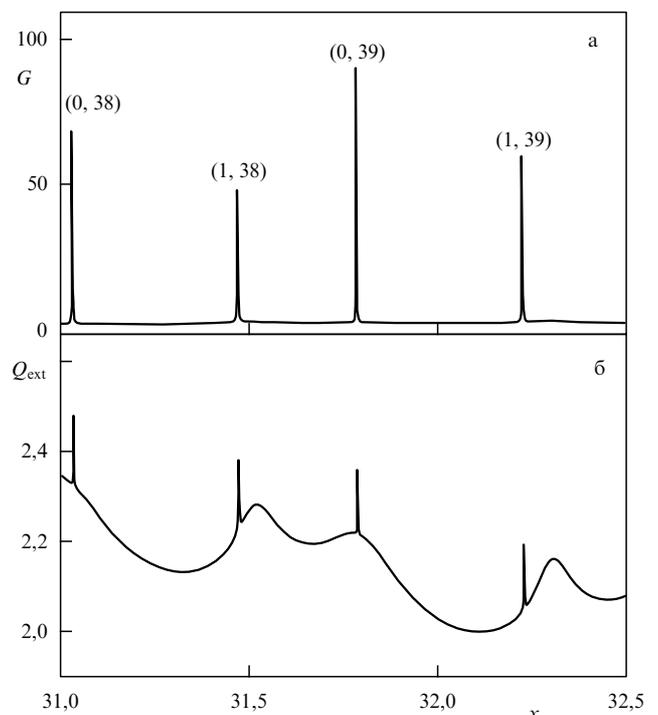


Рис. 2. Нормализованная плотность состояний  $G$  (а) и сечение экстинкции  $Q_{\text{ext}}$  (б) как функции  $x$  для диэлектрического микрошара с  $n = 1, 4$ . Пики помечены индексами  $(p, l)$ .

То, что максимумы в  $G(x, n)$  существуют действительно благодаря поверхностным МШГ, видно из следующих рисунков. На рисунке 3 представлена величина  $g$  как функция положения внутри капли  $\xi$ . Зависимость  $g(\xi)$  позволяет оценить вклад в  $G(x, n)$  от различных частей капли, поскольку

$$G(x, n) = 3 \int_0^1 g(x, n; \xi) \xi^2 d\xi.$$

Согласно рис. 3а основной вклад в  $G(x, n) \simeq 90$  на резонансной частоте  $\omega_{0,39}$  дает узкая область вблизи поверхности капли, где  $g \simeq 300$ . Если же частота отличается от резонансной, то  $g(x, n; \xi) \leq 3$ , согласно рис. 3б.

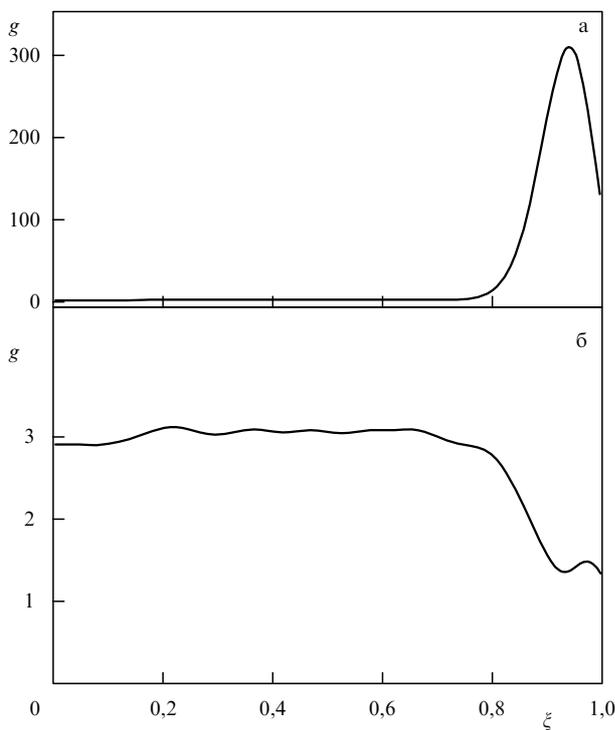


Рис. 3. Нормализованная локальная плотность состояний  $g$  как функция параметра  $\xi$  при  $n = 1,4$  и  $x = 31,7892$  (что соответствует резонансному пику с  $p = 0$  и  $l = 39$ ) (а) и  $x = 31,9000$  (б).

Здесь следует отметить, что параметры  $G$  и  $g$  по порядку величины равны фактору (7). Их можно использовать для качественного описания изменения вероятности спонтанного излучения в капле  $A^C$  по сравнению с вероятностью спонтанного излучения в вакууме  $A_v$ . Фактор  $G$  характеризует усредненное по всему объему капли отношение коэффициентов Эйнштейна  $\langle A^C/A_v \rangle$ , а фактор  $g$  — отношение  $A^C/A_v$ , усредненное по углам  $\theta$  и  $\phi$ , но не по расстоянию от центра капли  $r$ . Пределы применимости модели, предсказывающей увеличение  $A^C/A_v$  на резонансных частотах, указаны в [62].

Выводы авторов [61, 62] согласуются с результатами других исследований. Так, в работах [70, 71] приведены полученные в рамках классической электродинамики формулы для мощностей дипольного излучения  $R^\perp/R_0^\perp$  и  $R^\parallel/R_0^\parallel$  атома, находящегося внутри или снаружи диэлектрического шара. Знаки  $\perp$  и  $\parallel$  указывают на то,

что диполь осциллирует перпендикулярно или параллельно поверхности шара,  $R_0$  — мощность излучения в отсутствие шара. В формулы для отношения мощностей излучения, как и в (14), (13), вошли множители  $|D_{pl}(x, n)|^{-2}$ . Поэтому, как было показано в [70, 71], мощность излучения в каплях может возрасти в сотни раз. Для этого частота колебаний диполя должна совпадать с резонансной частотой МШГ диэлектрического шара, а сам диполь должен находиться вблизи его поверхности. Вычисление отношения мощностей  $\langle R/R_0 \rangle$ , усредненного по ориентации и положению диполя в капле, дает тот же результат, что и вычисление  $\langle A^C/A_v \rangle$ .

Теория неупругого рассеяния света (комбинационного рассеяния и флуоресценции) в диэлектрическом шаре была развита в работах [72–75]. В этой теоретической модели также использована классическая электродинамика. А именно, переизлучающие свет молекулы рассматривались как внедренные в шар осциллирующие диполи, индуцированные электрическим полем, прошедшим в частицу. Как было показано, излучение диполя сильно зависит от его положения внутри сферической частицы и резонансных оптических свойств шара.

Изменение излучательных свойств жидкости при образовании капли можно проиллюстрировать с помощью следующего схематического рисунка [76]. На рисунке 4 сравниваются спектры флуоресценции некоторого объема жидкости, содержащей краситель, и той же жидкости, образующей каплю. Для капли эффективность флуоресценции на определенных дискретных длинах волн излучения значительно возрастает, в то время как на других длинах волн подавляется. Положение резонансов в спектре сильно зависит от строения капли (ее размера, показателя преломления света). Поэтому их и назвали структурными резонансами [77–84]. Амплитуда каждого резонанса пропорциональна добротности резонатора, а ширина резонанса обратно пропорциональна  $Q$  [83, 85]. Следовательно, эффективности флуоресценции оптической ячейки и капли, проинтегрированные по широкому спектральному интервалу, будут приблизительно одинаковы.

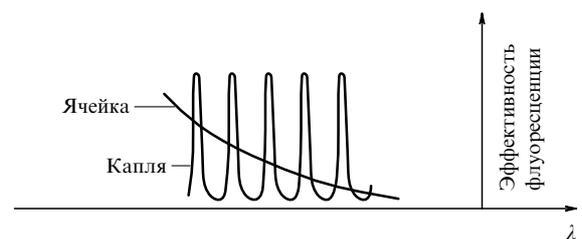


Рис. 4. Типичные спектральные профили эффективности флуоресценции для оптической ячейки и капли [76].

Рисунок 4 дает схематическую иллюстрацию увеличения и подавления эффективности флуоресценции. Реальный спектр флуоресценции полимерного микростара, содержащего краситель, приведен на рис. 5. Структурные резонансы в спектре флуоресценции имеют такое же происхождение, что и острые пики в спектрах рассеяния света Ми. Эти резонансы появляются благодаря возбуждению мод шепчущей галереи [49, 52].

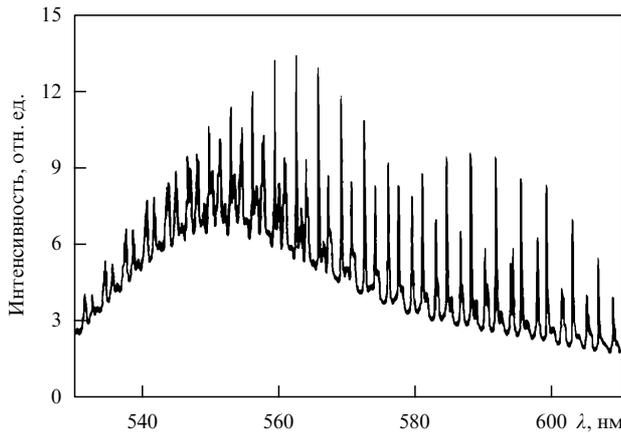


Рис. 5. Спектр флуоресценции родамина 6G в полимерной частице [86].

Поскольку капля рассматривается как оптический резонатор, важно вычислить его добротность, которая характеризует диссипацию энергии из резонатора и определяется следующей формулой [47]:

$$\frac{1}{Q} \equiv \frac{1}{\omega \langle W(t) \rangle} \left\langle \frac{d}{dt} W(t) \right\rangle = \frac{2\omega''}{\omega'}.$$

Здесь  $W(t)$  — энергия электромагнитной моды,  $\omega = \omega' + i\omega''$  — угловая частота, скобки  $\langle \dots \rangle$  обозначают усреднение по периоду колебаний  $T = 2\pi/\omega'$ .

Из условий непрерывности тангенциальных составляющих  $\mathbf{E}$  и  $\mathbf{H}$  на поверхности шара [47] следует характеристическое уравнение для частоты моды

$$D_{pl}(x, n) = 0. \quad (15)$$

По виду уравнение (15) совпадает с условием равенства нулю знаменателя в правой части выражений (5), (13), (14). Здесь, однако, следует учитывать, что параметр  $x$  в формулах (5), (13), (14) — действительная величина, а в уравнении (15) — комплексная. Из характеристического уравнения (15) можно найти как частоту резонансной моды ( $\omega'$ ), так и ее мнимую часть ( $\omega''$ ). А именно, использование асимптотических выражений для функций Бесселя и Ханкеля дает следующую формулу для  $\omega$  [47, 53–58]:

$$\omega = \frac{c}{na} \left[ l + \frac{1}{2} - (t_q + \Delta t)\beta \right]. \quad (16)$$

Здесь  $t_q$  —  $q$ -й корень уравнения

$$\text{Ai}(t_q) = 0, \quad q = 1, 2, 3, \dots, \quad t_q < 0,$$

где  $\text{Ai}$  — функция Эйри, число  $q$  называют порядком моды или радиальным индексом моды,

$$\Delta t = n^{1-2p} \frac{1 + i \exp(-2T)}{\beta \sqrt{n^2 - 1}},$$

$$T \equiv \left( l + \frac{1}{2} \right) (\eta - \tanh \eta), \quad \left( \frac{3T}{2} \right)^{2/3} \gg 1,$$

$$\cosh \eta = n \left[ 1 - \frac{1}{l + 1/2} \left( t_q \beta + \frac{n^{1-2p}}{\sqrt{n^2 - 1}} \right) \right]^{-1}.$$

Формализм, развитый в [47], позволяет предсказать основные свойства МШГ. Моды вырождены по азимутальному номеру моды  $m$ , которая принимает  $2l + 1$  значений ( $-l \leq m \leq l$ ). Толщина слоя локализации энергии МШГ в радиальном направлении зависит от квантового числа  $q$  и равна  $|t_q| \beta \lambda / 2\pi n$  [53]. (Вычисления эффективного объема моды были проведены в [37, 44, 53].) При  $x \leq 30$  возбуждением мод с  $q > 1$  можно пренебречь (все резонансные пики на рис. 2 соответствуют  $q = 1$ ).

Теория открытых резонаторов [47] дает аномально большое значение излучательной добротности микрокапель. Например, для капли воды радиуса 50 мкм добротность должна быть порядка  $10^{73}$  при  $\lambda = 0,6$  мкм. Данное значение  $Q$  намного превосходит типичные величины  $Q \simeq 10^7 - 10^8$ , определенные экспериментально [76, 85, 87].

Для правильного вычисления  $Q$  необходимо учесть отклонение поверхности капли от идеальной сферической формы [37, 56, 88–90].

Теоретическое исследование в рамках квантовой электродинамики показало, что поверхностные возмущения снимают азимутальное вырождение мод в мультиплете [39, 88–90]. Предсказанный эффект подтвержден результатами измерения с высоким разрешением по времени и по частоте спектров излучения движущихся деформированных капель. В экспериментах наблюдались спектры вынужденного комбинационного рассеяния света (ВКР) [91, 92], флуоресценции [93] и лазерного излучения [94]. Сдвиг частоты моды  $\Delta\omega$  по сравнению с исходным значением  $\omega$  был вычислен для малых деформаций, когда поверхность капли можно было аппроксимировать эллипсоидом. Для эллипсоида с малым отклонением от сферической формы сдвиг каждой МШГ дается следующей формулой [88]:

$$\frac{\Delta\omega_m}{\omega} = \frac{\epsilon}{6} \left[ \frac{3m^2}{l(l+1)} - 1 \right],$$

где  $\epsilon = (r_{\text{pol}} - r_{\text{eq}})/a$ ,  $r_{\text{pol}}$ ,  $r_{\text{eq}}$  — полярный и экваториальный радиусы соответственно, малый параметр  $\epsilon$  положителен для вытянутого эллипсоида и отрицателен для сплюснутого. Сдвиг частоты не зависит от поляризации (ТЕ или ТМ), радиального порядка моды  $q$  и радиуса капли  $a$ .

Теория показала, что расщепление мультиплета может сопровождаться уменьшением добротности МШГ. Предположение о том, что все компоненты мультиплета участвуют в процессе излучения когерентным образом, давало теоретическую оценку  $Q$ , согласующуюся с экспериментальными данными. Однако теория не предсказывала индивидуального уширения компонент мультиплета, ширины которых слабо зависели от  $\Delta\omega_m$ . Другими словами, согласно [88, 89] радиационная добротность деформированной капли не должна уменьшаться при возбуждении одиночной моды независимо от других мод мультиплета.

В более простой модели [56] использована теория дифракции электромагнитных волн. Была предложена формула для добротности, учитывающая рассеяние света на неоднородностях поверхности резонатора. Было найдено, что тепловые капиллярные колебания поверхности капли с амплитудами порядка  $3 \times 10^{-4}$  мкм понижали величину  $Q$  до экспериментально установленных значений.

Чем выше значения  $Q$ , тем уже структурные резонансы в спектрах излучения капель, так как ширина резонансов  $\Delta\lambda = \lambda/Q$  [83, 85]. Поэтому измерение положений пиков в спектрах излучения может быть использовано для точного определения строения капель.

#### 4. Структурный анализ капель

Спектры рассеяния Ми используют для диагностики капель начиная с 60-х годов XX в. [95–97]. На основе теории Лоренца–Ми было развито два метода. В исторически первом методе измеряется интенсивность рассеянного света как функция угла рассеяния (последнюю часто называют фазовой функцией). Второй подход, так называемый метод оптического резонанса, основан на измерениях интенсивности при фиксированных углах, но при изменяющемся  $x$ . Оба метода сравниваются в работе [97]. В эксперименте [97] исследовались как однокомпонентные, так и многокомпонентные аэрозоли. Для медленно испаряющихся капель радиусом 10 мкм были измерены изменения радиуса порядка 1 Å. Таким образом, при использовании техники оптического резонанса погрешность измерения макроскопического параметра оказалась меньше размеров молекул. При диагностике многокомпонентных аэрозолей и при быстром испарении капель относительная погрешность измерения была выше. Она составляла  $10^{-4}$  как при измерении радиуса капель, так и при определении показателя преломления света.

В [98] описана методика диагностики, основанная на анализе положения резонансов в спектрах упругого и комбинационного рассеяния света. Методика применялась для изучения быстрого испарения линейного потока монодисперсных капель этанола. Радиус капель был равен  $a \simeq 10$  мкм, расстояние между соседними каплями — 40 мкм. Экспериментальная установка [98] позволяла определять изменения одновременно радиуса капель ( $\Delta a$ ) и показателя преломления света в жидкости. Последний изменялся из-за охлаждения испаряющихся капель. Температура жидкости определялась с точностью 0,25 °С.

Отношение ошибки измерения  $\Delta a$  к  $a$  было равно примерно  $10^{-4}$ . Измерения, в принципе, могли проводиться с временным шагом 10 мкс. Эксперимент ставился так, что содержанием этанола в окружающем капли газе можно было пренебречь. При выполнении этого условия измеренная скорость испарения капель в потоке оказалась в три раза меньше, чем скорость, вычисленная для одиночной капли. Данная особенность была объяснена взаимодействием капель в процессе испарения. Наблюдавшийся эффект межкапельного взаимодействия был впервые обнаружен в эксперименте [99].

Схема вычисления функции распределения рассеивающих частиц по размерам на основе экспериментальных данных по многократному рассеянию электромагнитного излучения разработана в серии теоретических работ [100–103]. В [104] дано описание современной экспериментальной установки для диагностики аэрозолей методом фотонной корреляционной спектроскопии. Установка позволяет проводить одновременное измерение локальных размера, концентрации и скорости субмикронных частиц.

Согласно [105] диаграмму рассеяния Ми можно также использовать при экспериментальном исследовании сфе-

рических полостей в жидкости. Таким образом, точная оптическая диагностика может быть применена и при изучении кавитации [106–108].

Метод диагностики, основанный на измерении спектра флуоресценции капель, предложен в работе [79]. Эта публикация открыла серию экспериментов, в которых в капли добавлялся флуоресцентный краситель [80, 109–112]. В опытах обычно использовался родамин с концентрацией порядка  $10^{-4}$ . Вначале в [109] были определены скорости роста и испарения капель этанола радиуса 30 мкм. При измерениях использовали простое соотношение

$$\frac{\Delta a}{a} = \frac{\Delta \lambda}{\lambda}, \quad (17)$$

согласно которому длина волны структурного резонанса уменьшается или увеличивается при изменении радиуса  $a$ . Равенство (17) можно использовать, если температура капли и ее химический состав постоянны.

На основании (17) в опыте [109] были зафиксированы изменения  $\Delta a$  порядка 0,7 нм для линейного потока монодисперсных капель. Была определена скорость испарения капель, равная 25 мкм  $\text{с}^{-1}$ . Относительная точность измерения оценена как

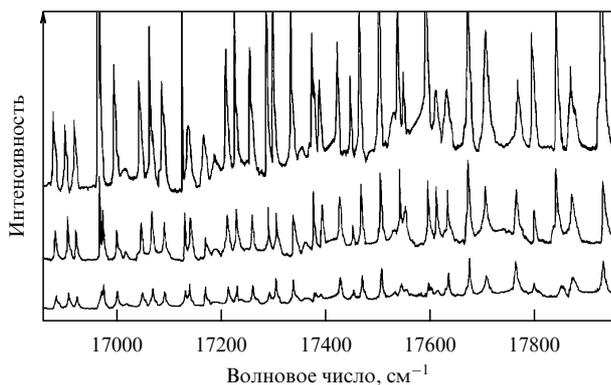
$$\frac{\Delta a}{a} = 2 \times 10^{-5}.$$

Последовавшие усовершенствования методики позволили наблюдать более сложные эффекты. Так, в [113] измерение временных зависимостей спектров было использовано для изучения затухающих колебаний капель этанола с  $a = 20$  мкм. Колебания поверхности возникали вследствие облучения капель импульсами лазерного излучения с энергией 0,15 мкДж. Амплитуда колебаний составляла  $5 \times 10^{-4} a$ . Спектры флуоресценции позволили определить величины поверхностного натяжения и вязкости жидкости для отдельных капель этанола.

#### 5. Лазерная генерация в каплях

При исследовании флуоресценции капель, содержащих краситель, интенсивность излучения накачки изменялась в широком диапазоне значений. Было обнаружено, что возрастание интенсивности накачки приводит к нелинейному возрастанию эффективности излучения на определенных частотах МШГ при одновременном сужении линий излучения [114, 115]. Типичная картина процесса излучения, нелинейного по интенсивности накачки, приведена на рис. 6. Из рисунка видно, что на эффект увеличения коэффициента Эйнштейна  $A$  накладывается эффект вынужденного излучения [114]. При преобладании вынужденного излучения над спонтанным оптический процесс принято называть лазерной генерацией. Таким образом, в определенных условиях каплю можно рассматривать как лазер на модах шепчущей галереи [87].

Порог лазерной генерации в капле был впервые обнаружен в работе [114]. В эксперименте отдельные капли этанола диаметром около 60 мкм облучались непрерывным излучением аргонового лазера с  $\lambda = 514,5$  мкм. Мощность  $P$  лазерного излучения, сфокусированного в пятно диаметром 200 мкм, плавно увеличивалась от  $10^{-4}$  до 1 Вт. Оказалось, что порог лазерной



**Рис. 6.** Три типичных спектра излучения родамина в каплях этанола диаметром 14 мкм при накачке излучением аргонового лазера с длиной волны 514,5 нм [115]. При записи каждого нового спектра интенсивность излучения накачки увеличивалась в 1,5 раза.

генерации достигается при  $P = 10^{-2}$  Вт. Таким образом, благодаря малому размеру капель и высоким значениям  $Q$  нелинейные оптические процессы могут наблюдаться при низких интенсивностях накачки.

## 6. Вынужденное комбинационное рассеяние света

Лазерная генерация — не единственный нелинейный оптический процесс, который наблюдался в экспериментах. Большое число публикаций посвящено комбинационному рассеянию (КР) света в каплях. Исследования в этой области были начаты в конце 60-х годов XX в. в связи с развитием биологии клетки и изучением атмосферных аэрозолей. Ссылки на первые работы можно найти в работе [72]. Среди пионерских работ следует отметить [116, 117], в которых был открыт эффект КР на колебаниях формы жидких сферических частиц.

В одной из первых работ рамановская спектроскопия была использована для изучения микрочастиц, находящихся на подложке [118]. Через 10 лет началось применение оптического подвешивания микрочастиц [119–122], т.е. фиксация частиц с помощью светового поля. Вначале был записан спектр КР одиночных стеклянных микрошариков [119, 120]. Затем были изучены капли, состоящие из смесей глицерина и воды [121]. В работе [122] спектры спонтанного комбинационного рассеяния в каплях эфира фталевой кислоты, диоктилфтолата, сравнивались с соответствующими спектрами объемных образцов.

В другом методе используется электродинамическое подвешивание капель [123–127], при этом может возникнуть необходимость расчета колебаний формы жидкой заряженной сферы. Впервые эта задача была изучена Рэлеем [128]. Ее современное решение дано в работе [129].

С 1984 г. широко исследуются не только одиночные подвешенные капли, но и потоки капель [130–136].

Учитывая изученные особенности КР в каплях, можно условно выделить такие направления исследований: сравнение структуры резонансов в спектрах упругого и комбинационного рассеяния света [72, 75, 98, 137–140]; конкуренция лазерной генерации и КР [141], включая подавление лазерной генерации вынужденным КР [142]; исследования ВКР [91, 130, 136, 143–151], в том

числе когерентного антистоксовского КР [134, 152], вынужденного антистоксовского КР [153], вынужденного резонансного КР [154]; ВКР высоких порядков [134, 155–157]; вынужденного бреллиэновского рассеяния [149, 157–160]; исследование генерации света на суммарной частоте третьего порядка [161, 162].

В экспериментальных работах [127, 163] процесс ВКР в оптических ячейках сравнивался со световыми колебаниями на стоксовской частоте в микрокаплях. Разумеется, механизм комбинационного рассеяния света в обеих системах был одинаковым. Различие состояло в намного более высокой эффективности нелинейных процессов в каплях [150]. При качественном объяснении капля рассматривалась как линза, повышающая интенсивность падающего света, и как оптический резонатор, обеспечивающий обратную связь [164]. Вследствие указанных особенностей число стоксовских линий КР света в капле значительно превосходит число таких линий в случае рассеяния света в обычной жидкости. А именно, в оптических ячейках обычно наблюдаются стоксовские линии только первого порядка. Согласно [163] в эксперименте с каплями [165] наблюдалось стоксовское излучение с порядками вплоть до семнадцатого. Детально кинетика последовательного возбуждения стоксовского излучения высоких порядков изучалась в работах [155–157].

Высокая эффективность комбинационного рассеяния света в каплях использована при разработке методов диагностики капель. В работе [166] была оценена возможность применения разрешенной во времени рамановской спектроскопии для изучения химических реакций в микрокаплях аэрозоля. В качестве пробной реакции было исследовано поглощение паров  $D_2O$  каплями глицерина, подвешенными в световом поле. Сравнение относительных амплитуд различных составляющих спектра КР позволило определить состав капель в любой момент времени. А именно, было измерено отношение числа связей  $-OD$  молекул  $D_2O$  к числу связей  $-CH$  молекул глицерина. Кроме того в рассматриваемой системе могла быть определена средняя температура капель.

В работе [167] процесс ВКР использован для диагностики распыления горючего в дизельных двигателях. Показано, что существует возможность определения как размера, так и химического состава капель, образующихся при распылении смесей топлив. Чтобы проиллюстрировать методы диагностики процесса горения, были сделаны цветные фотографии аэрозолей и фотографии с использованием зеленого и красного светофильтров. (Поток капель освещался излучением второй гармоники неодимового лазера с  $\lambda = 532$  нм и мощностью около 1 ГВт  $см^{-2}$ .) Показано, что зеленое излучение возникает благодаря упругому рассеянию света на всех составляющих аэрозоля: листьях и фрагментах жидкости, крупных и мелких микрокаплях, парах горючего [76]. Красное излучение появлялось лишь благодаря ВКР света в крупных микрокаплях с  $a > 20$  мкм, имеющих достаточно высокую добротность.

На рисунке 7 приведены спектры ВКР индивидуальных микрокапель различных топлив, измеренные для монодисперсного потока капель с  $a \approx 45$  мкм, который создавался с помощью генератора Берглунда–Лиу, основанного на выпрыскивании жидкости через колеблющееся отверстие. В спектре хорошо видно наличие

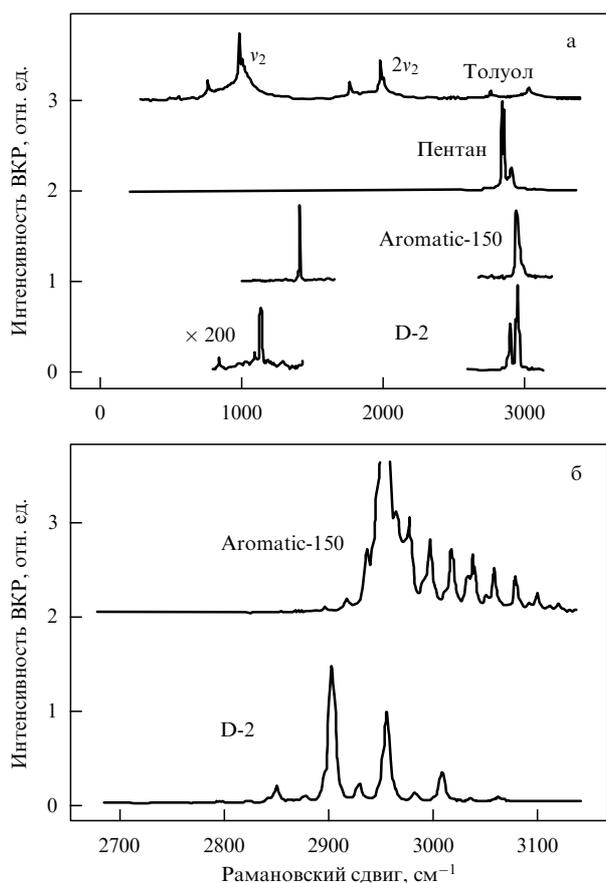


Рис. 7. Спектры ВКР на каплях различных топлив [167]: толуола, пентана, Exxon Aromatic-150 и Mobil D-2. По оси ординат отложена интенсивность стоксовского излучения первого порядка, по оси абсцисс — рамановский сдвиг от частоты падающего лазерного излучения.

циклической моды углеродного кольца толуола с частотой около  $1000 \text{ см}^{-1}$  и мод валентных колебаний пентана с частотами в области  $2900 \text{ см}^{-1}$ . Таким образом, анализ интенсивностей вынужденного комбинационного рассеяния с различными сдвигами частоты может быть использован для определения относительных концентраций толуола и пентана в каплях.

При исследовании процесса горения оптические методы дают возможность измерить и температуру пламени. Например, в [168] описана схема установки для определения локального распределения температуры вблизи потока капель. В измерениях использовался процесс когерентного антистоксовского рассеяния света в пламени горящих капель метанола.

В работах [123–127] комбинационное рассеяние света позволило изучить капли водных растворов неорганических солей, таких как сульфаты и нитраты. С помощью монохроматора с высокой разрешающей способностью наблюдалась тонкая структура спектров, указывающая на фазовые переходы в каплях перенасыщенных жидкостей и на влияние катионов на рамановские спектры анионов. Такие исследования интересны возможностью исключить влияние стенок сосуда и примесей на кинетику фазовых переходов. Тем самым в изученных каплях растворов достигались чрезвычайно высокие степени пересыщения. Поэтому взаимодействие анионов и катионов приводило к появлению новых молекулярных полос,

которые ранее не наблюдались ни в объемных растворах, ни в объемных кристаллических образцах [127]. Кристаллическая фаза, которая образовывалась в капле, отличалась от фазы, обычно образующейся в большой массе раствора [169, 170].

В [170] описана методика анализа химического состава атмосферных частиц по спектрам КР. С помощью описанной экспериментальной установки проводилась регистрация примесей с массой порядка  $10^{-10} \text{ г}$  в частице диаметром от 1 до 10  $\mu\text{м}$ . Если содержание примеси в микрочастице превышало 10  $\mu\text{г}$ , авторы [170] не только идентифицировали молекулярные полосы, но могли изучать и силы межмолекулярного взаимодействия. Например, был определен тип кристаллической фазы, образующейся в микрочастице пересыщенного водного раствора сульфата натрия.

Обзор экспериментальных работ, в которых использовалось КР для диагностики микрочастиц и опубликованных до 1990 г., сделан в [171]. Его можно дополнить ссылками на более поздние исследования неорганических [139, 169, 172–175] и органических [176–188] микрочастиц, а также на исследования химических реакций в подвешенных каплях [189–195].

Характерной особенностью спектров флуоресценции и КР света в каплях являются так называемые входные и выходные резонансы [65, 80, 139, 140, 178, 184, 196–198]. Наиболее ярко эта особенность проявляется при измерении временной зависимости спектра КР индивидуальной испаряющейся капли. Выходные резонансы наблюдаются, если выполняется условие (16) для частоты рассеянного света. При испарении капли ее диаметр уменьшается, и структурный резонанс в спектре КР смещается в сторону более коротких длин волн. В случае постоянной скорости испарения зависимость сдвига резонансной частоты рассеянного света  $\Delta\nu$  от времени  $t$  в декартовой системе координат  $t, \Delta\nu$  имеет вид наклонных параллельных линий [184].

Входные резонансы наблюдаются, если выполняется условие (16) для частоты падающего на каплю света. При выполнении данного условия плотность энергии в капле возрастает. Поскольку пропорционально увеличению плотности энергии происходит рост сечения КР, эффективность комбинационного рассеяния света повышается во всем интервале частот. Поэтому график временной зависимости  $\Delta\nu(t)$  в декартовой системе координат  $t, \Delta\nu$  представлен вертикальными линиями [184]. Благодаря входным резонансам частотная зависимость сечения комбинационного рассеяния света, проинтегрированного по широкому интервалу частот, имеет сильно выраженные узкие пики. Большинство входных резонансов наблюдается и в спектре упруго рассеянного света. Однако некоторые входные резонансы в спектре рассеяния Ми могут ослабляться из-за действующего на каплю давления света [199].

В [184] комбинационное и упругое рассеяние света изучалось для случая, когда капля была неоднородной. А именно, она состояла из двух несмешивающихся жидкостей: ядро из глицерина было покрыто оболочкой из диоктилфталата. С помощью оптической диагностики в [184] удалось обнаружить, что испарение ядра капли протекало быстрее, чем испарение однородной капли глицерина. Такой же результат был получен ранее в работе [200] на основе измерений сечения рассеяния Ми. Упругое рассеяние света двухслойной сферой наблюда-

лось также в [201]. В [202, 203] методика резонансного рассеяния света применялась для изучения подвешенных микрочастиц, имеющих оболочку толщиной несколько нанометров. Свойства структурных резонансов в интенсивностях внутреннего и рассеянного света для сферы с оболочкой были предметом исследования в [204–206]. Во всех этих исследованиях можно было использовать теоретическую модель [207], развивающую теорию Лоренца – Ми для рассеяния света в двухслойной сфере.

Неоднородность капли в экспериментах [182, 198] создавалась добавлением в жидкость полимерных сферических частиц радиусом несколько десятков нанометров. Обусловленное этой добавкой дополнительное рассеяние света в жидкости приводило к заметному изменению излучательных свойств капель. А именно, в спектрах флуоресценции [198] и комбинационного рассеяния [182] появлялись новые резонансные линии, связанные с возбуждением менее добротных мод более высоких порядков.

## 7. Изменение скоростей физико-химических процессов

Изменение коэффициентов Эйнштейна для спонтанного излучения — не единственный эффект, в котором проявляется зависимость скорости процесса от плотности фотонных состояний. Можно ожидать, что в каплях существуют и другие физические аномалии. В настоящее время известно об увеличении скорости передачи энергии между молекулами красителей в капле [66, 208–211]. В [208] обнаружено, что передача энергии между донорными и акцепторными молекулами красителей в капле может осуществляться с участием оптических МШГ, если концентрация молекул мала и не происходит обычной безызлучательной диффузии возбуждения. Результаты экспериментов были удовлетворительно объяснены теорией [210], в которой рассматривается две стадии процесса. На первом этапе донорные молекулы красителя излучают свет в моды шепчущей галереи. На втором этапе молекулы — акцепторы поглощают свет, циркулирующий внутри капли.

Формализм работы [61] позволяет изучить изменение спектральной плотности теплового излучения  $S(\omega, T)$  микрокапель, находящихся в состоянии теплового равновесия с окружающей средой. Действительно, величина  $S(\omega, T)$ , определяемая как энергия, излучаемая в единичный интервал частоты  $\omega$  при температуре шара  $T$ , прямо пропорциональна плотности состояний (12):

$$S(\omega, T) = \rho^c(\omega) W(\omega, T), \quad (18)$$

где средняя энергия моды  $W(\omega, T)$  задается распределением Планка:

$$W(\omega, T) = \hbar\omega \left( \exp \frac{\hbar\omega}{k_B T} - 1 \right)^{-1}.$$

Здесь  $k_B$  — постоянная Больцмана. Отношение  $S(\omega, T)$  к планковской плотности излучения абсолютно черного тела объема  $V$

$$S_P(\omega, T) = \rho_v(\omega) V W(\omega, T),$$

будет равно

$$\frac{S(\omega, T)}{S_P(\omega, T)} = G(x, n).$$

Согласно рисунку 2 фактор  $G$  как функция  $x$  может иметь резкие максимумы с амплитудой порядка 100.

В [212] теоретически исследован перенос теплового излучения в микрокапле. Модель построена на теории КР, в которой интенсивность излучения диполя в диэлектрическом шаре вычисляется в рамках классической электродинамики [72–74]. Согласно [212] тепловое излучение шара создается совокупностью ячеек, каждая из которых дает дипольное излучение. Мощность излучения каждой ячейки  $P_P(r, \omega/c)$  усреднялась по ориентации диполя. Поглощение света в шаре учитывалось с помощью мнимой добавки к показателю преломления света. Вначале в [212] изучались свойства микрокапли при амплитуде колебаний диполя, не зависящей от его положения внутри капли, что соответствует постоянной  $T$ . Как было показано, из этого приближения следует закон Кирхгофа: мощность теплового излучения тела в состоянии теплового равновесия равна мощности поглощаемого им излучения. Затем модель обобщалась на случай произвольного распределения температуры. Были предсказаны вызванные возбуждением МШГ аномальные зависимости как амплитуды, так и углового распределения теплового излучения. А именно, на планковское распределение мощности теплового излучения накладывалась периодическая структура, обусловленная влиянием шара как резонатора. В частности, в зависимости  $P_P$  от волнового числа  $k = \omega/c$  в центре частицы ( $r = 0$ ) возникали равноотстоящие максимумы из-за возбуждения радиальных стоячих волн ТЕ поляризации. Интервал между соседними максимумами был равен примерно  $\pi/a$ . Вблизи поверхности капли ( $r \geq 0,8a$ ) периодическая структура возникала благодаря возбуждению МШГ. При  $r = 0,4a$  возбуждением как радиальных стоячих мод, так и МШГ можно было пренебречь. Поэтому  $P_P(\omega, k)$  незначительно отклонялось от планковского распределения.

В работе [213] теоретически предсказан эффект светоиндуцированной диффузии (СИД) газов, состоящий в том, что газ, резонансно поглощающий на переход из основного состояния, может двигаться с макроскопической скоростью по направлению светового потока или против него. Известно, что СИД наблюдается лишь в поле бегущей волны, для стоячей волны эффект отсутствует [213–215]. Однако это справедливо для однородных систем. В случае неоднородной системы СИД должна проявлять себя нетривиальным образом. В [216] изучалось рассеяние света при облучении капель в газовой смеси. Согласно [216] рассеяние света каплей можно рассматривать как преобразование поля стоячей волны в бегущие волны, распространяющиеся от капли. Такие волны могут вызывать светоиндуцированный дрейф молекул, причем перестройкой частоты поток молекул можно направить либо к капле, либо от нее. Для описания светоиндуцированных явлений роста (испарения) капель была записана система уравнений СИД с учетом пространственной неоднородности и диффузионных потоков [213–215]. Весьма громоздкое решение данной системы найдено авторами [216]. Были сделаны численные оценки для скорости светоиндуцированного роста капель. Например, показано, что вследствие СИД капли размером порядка 10 мкм, находящиеся на расстоянии 1 мм, могут поглотить весь пар за 0,1–1 с. При перестройке частоты света может протекать светоиндуцированное испарение капель, причем вследствие возра-

стания упругости пара возможно возникновение стационарного распределения капель по размерам. Таким образом, светоиндуцированная неустойчивость капель в поле стоячей волны дает уникальную возможность управления их ростом или испарением.

## 8. Иерархия процессов при облучении капель светом высокой интенсивности

В работе [217] дан обзор результатов экспериментов, в которых изучалось изменение излучательных характеристик капель по мере возрастания интенсивности падающего излучения значительно выше порога лазерной генерации. В экспериментах использовались капли этанола с примесью родамина. Радиус капель, полученных с помощью генератора Берглунда – Лиу, составлял 35 мкм. В качестве источника излучения использовалась вторая гармоника ( $\lambda = 532$  нм) неодимового лазера с модулированной добротностью. Интенсивность импульсов света длительностью около 15 нс увеличивалась от 100 МВт см<sup>-2</sup> до 6 ГВт см<sup>-2</sup>.

Было известно, что порог лазерной генерации достигается при интенсивностях накачки 0,5 Вт см<sup>-2</sup> в случае использования излучения непрерывного аргонового лазера [114] и 10<sup>4</sup> Вт см<sup>-2</sup> в случае второй гармоники импульсного неодимового лазера [87]. Лазерное излучение капель наблюдалось в широком диапазоне интенсивности импульсной накачки (от 1 до 100 МВт см<sup>-2</sup>). Спектры излучения состояли из нескольких наборов узких равноотстоящих пиков, что свидетельствовало о лазерной генерации на МШГ с разными индексами  $p, l, q$  (см. рис. 6 и уравнение (16)).

С увеличением интенсивности накачки более 100 МВт см<sup>-2</sup> наблюдалось уширение пиков вынужденного излучения в МШГ. В результате в спектрах исчезали резкие пики, зависящие от структуры капли. Такие широкие спектры лазерного излучения объяснялись тем, что достигался режим насыщения лазерной генерации на МШГ с высокими  $Q$ . Одновременно с этим начиналась лазерная генерация на менее добротных МШГ. Согласно [218] эффект уширения каждого пика вынужденного излучения может быть обусловлен зависимостью показателя преломления света в жидкости от мощности света. Вследствие указанной особенности поле лазерного излучения внутри капли может вызывать изменение фазы колебаний с течением времени.

Если интенсивность накачки превышала 500 МВт см<sup>-2</sup>, то могло возникать вынужденное комбинационное рассеяние света. Этот процесс сильно зависит от рода образующей каплю жидкости и растворенных в ней примесей. Эффект ВКР как один из каналов диссипации энергии падающего на каплю излучения может конкурировать с процессом лазерной генерации [142, 154].

При интенсивностях накачки в области 6 ГВт см<sup>-2</sup> за неосвещенной стороной капли появлялся плазменный факел длиной в несколько ее диаметров. Источником непрерывного излучения была как капля, так и плазменный факел. Непрерывное излучение возникало в результате рекомбинации и излучательных переходов между энергетическими уровнями электронов, ионизированных атомов и электронно-возбужденных молекул. На непрерывный спектр накладывались дискретные линии излучения атомарного водорода ( $H_\alpha, H_\beta$ ) и ионов кислорода и азота ( $O(II), N(II)$ ), что было связано с лазерным

разложением этанола и воздуха. Образование электронов, ионизированных атомов и возбужденных состояний молекул в плазменном факеле с обратной стороны капли инициировалось процессами многофотонного поглощения и каскадной столкновительной ионизацией внутри капли. Затем образованные частицы перемещались из капли по направлению лазерного луча (ударной волной или созданной светом детонационной волной), вызывая последующий пробой воздуха за неосвещенной стороной капли. В некоторых экспериментах плазменный факел меньшего размера наблюдался и с освещенной стороны капли.

В ряде экспериментов исследовались специфические особенности воздействия лазерного излучения высокой мощности на капли. Так, в работе [219] были достигнуты условия, в которых сила электрострикции, возникающей при лазерном облучении капли, была сравнима с силой поверхностного натяжения. Поэтому капля принимала форму цилиндра или выбрасывала каплю меньшего радиуса. Лазерный пробой и детонационные волны в каплях изучались в экспериментах [220–226]. Особенности взрывного испарения прозрачных капель посвящены работы [227–232].

## 9. Заключение

В области рассеяния света Ми в сферической частице существуют резонансные электромагнитные моды (электромагнитное поле в шаре существенно отличается от поля в однородной среде). Это приводит к значительному изменению скоростей оптических процессов, что можно рассматривать как резонансное взаимодействие излучающих атомов и молекул с диэлектрическими частицами. В частности, при определенных дискретных значениях радиуса шара вероятность спонтанного излучения возбужденного атома, находящегося вблизи его поверхности, может увеличиваться на несколько порядков величины. Аналогичные особенности наблюдаются и в других, в том числе нелинейных, оптических процессах. Важно, что, во-первых, микрокапли характеризуются чрезвычайно высокими значениями добротности, во-вторых, объемы, которые заполняют моды шепчущей галереи, малы. Благодаря сочетанию этих двух факторов пороги нелинейных оптических явлений достижимы при малых интенсивностях накачки. Вследствие этого в последние годы наблюдалось большое количество новых оптических эффектов, которым и посвящен настоящий обзор.

## Список литературы

1. Зуев В Е, Копытин Ю Д, Кузиковский А В *Нелинейные оптические эффекты в аэрозолях* (Новосибирск: Наука, 1980)
2. Смирнов Б М *УФН* **160** (4) 1 (1990)
3. Корум К Л, Корум Дж Ф *УФН* **160** (4) 47 (1990)
4. Смирнов Б М *УФН* **162** (1) 119 (1992)
5. Смирнов Б М *УФН* **162** (8) 43 (1992)
6. Васильева И А *УФН* **163** (8) 47 (1993)
7. Смирнов Б М *УФН* **163** (10) 29 (1993)
8. Смирнов Б М *УФН* **164** 665 (1994)
9. Смирнов Б М *УФН* **164** 1165 (1994)
10. Елецкий А В, Смирнов Б М *УФН* **166** 1197 (1996)
11. Смирнов Б М *УФН* **167** 1169 (1997)
12. Смирнов Б М *УФН* **170** 495 (2000)
13. Конохов В К, Файзуллаев В Н *Квант. электрон.* **1** 2623 (1974)
14. Гордиец Б Ф, Шелепин Л А, Шмоткин Ю С *ФГВ* **18** 71 (1982)

15. Ораевский А Н, Проценко И Е *Письма в ЖЭТФ* **72** 641 (2000)
16. Descartes R *Dioptrique* (Leiden, 1639)
17. Airy G B *Trans. Cambridge Philos. Soc.* **6** 379 (1838)
18. Wang R T, van de Hulst H C *Appl. Opt.* **30** 106 (1991)
19. Descartes R *Géométrie* (Leyde: De Limprimerie de I Maire, 1637)
20. Ungut A, Grehan G, Goesbet G *Appl. Opt.* **20** 2911 (1981)
21. Glantschnig W J, Chen S H *Appl. Opt.* **20** 2499 (1981)
22. Lock J A *Appl. Opt.* **35** 500 (1996)
23. Muinonen K et al. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Trans.* **55** 577 (1996)
24. Velesco N, Kaiser T, Schweiger G *Appl. Opt.* **36** 8724 (1997)
25. Roll G et al. *J. Opt. Soc. Am. A* **15** 2879 (1998)
26. Roll G, Kaiser T, Schweiger G *J. Opt. Soc. Am. A* **16** 882 (1999)
27. Velesco N, Schweiger G *Appl. Opt.* **38** 1046 (1999)
28. Lorenz L V *Vidensk. Selsk. Skrifter* **6** 1 (1890)
29. Mie G *Ann. Phys. (Leipzig)* **25** 377 (1908)
30. Debye P *Ann. Phys. (Leipzig)* **30** 57 (1909)
31. Love A E *Proc. Lond. Math. Soc.* **30** 308 (1899)
32. Ван де Хюлст Г *Рассеяние света малыми частицами* (М.: ИЛ, 1961)
33. Kerker M *The Scattering of Light, and Other Electromagnetic Radiation* (New York: Academic Press, 1969)
34. Rayleigh J W, Lord *Philos. Mag.* **20** 1001 (1910)
35. Брагинский В Б, Ильченко В С *ДАН СССР* **293** 1358 (1987)
36. Брагинский В Б, Ильченко В С, Городецкий М Л *УФН* **160** 157 (1990)
37. Braginsky V B, Gorodetsky M L, Ilchenko V S *Phys. Lett. A* **137** 393 (1993)
38. Ilchenko V S, Gorodetsky M L, Vyatchanin S P *Opt. Commun.* **107** 41 (1994)
39. Gorodetsky M L, Ilchenko V S *Opt. Commun.* **113** 133 (1994)
40. Gorodetsky M L, Savchenkov A A, Ilchenko V S *Opt. Lett.* **21** 453 (1996)
41. Oraevsky A N, Bandy D K *Opt. Commun.* **129** 75 (1996)
42. Klimov V V, Ducloy M, Letokhov V S *J. Modern Opt.* **44** 1081 (1997)
43. Klimov V V, Letokhov V S, Ducloy M *Phys. Rev. A* **56** 2308 (1997)
44. Ораевский А Н, Скалли М, Вличанский В Л *Квант. электрон.* **25** 211 (1998)
45. Rayleigh J W (Strutt) *Philos. Mag.* **41** 107, 274, 447 (1871)
46. Борн М, Вольф Э *Основы оптики* (М.: Наука, 1973)
47. Вайнштейн Л А *Открытые резонаторы и открытые волноводы* (М.: Сов. радио, 1966)
48. Shifrin K S, Zolotov I G *Appl. Opt.* **32** 5397 (1993)
49. Chýlek P, Kiehl J T, Ko M K W *Appl. Opt.* **17** 3019 (1978)
50. Perelman A Y *Appl. Opt.* **30** 475 (1991)
51. Каур D J *Phys. Rev. A* **41** 5092 (1990)
52. Chýlek P *J. Opt. Soc. Am.* **66** 285 (1976)
53. Дацик В В, Измайлов И А, Кочелан В А *Квант. электрон.* (Киев) **38** 56 (1990)
54. Chýlek P *J. Opt. Soc. Am. A* **7** 1609 (1990)
55. Schiller S, Byer R L *Opt. Lett.* **16** 1138 (1991)
56. Datsyuk V V *Appl. Phys. B* **54** 184 (1992)
57. Lam C C, Leung P T, Young K J *J. Opt. Soc. Am. B* **9** 1585 (1992)
58. Schiller S *Appl. Opt.* **32** 2181 (1993)
59. Johnson B R *J. Opt. Soc. Am. A* **10** 343 (1993)
60. Purcell E M *Phys. Rev.* **69** 681 (1946)
61. Ching S C, Lai H M, Young K J *J. Opt. Soc. Am. B* **4** 1995 (1987)
62. Ching S C, Lai H M, Young K J *J. Opt. Soc. Am. B* **4** 2004 (1987)
63. Lai H M, Leung P T, Young K J *Phys. Rev. A* **37** 1597 (1988)
64. Campillo A J, Eversole J D, Lin H-B *Phys. Rev. Lett.* **67** 437 (1991)
65. Lin H-B et al. *Phys. Rev. A* **45** 6756 (1992)
66. Campillo A J, Eversole J D, Lin H-B *Modern Phys. Lett. B* **6** 447 (1992)
67. Власенко Н А, Пекар С И, Пекар В С *ЖЭТФ* **64** 371 (1973)
68. Пекар В С *ЖЭТФ* **67** 471 (1974)
69. Пекар В С *УФЖ* **19** 1351 (1974)
70. Chew H J *Chem. Phys.* **87** 1355 (1987)
71. Chew H *Phys. Rev. A* **38** 3410 (1988)
72. Chew H, McNulty P J, Kerker M *Phys. Rev.* **13** 396 (1976)
73. Kerker M et al. *J. Opt. Soc. Am.* **68** 1676 (1978)
74. Chew H et al. *J. Opt. Soc. Am.* **68** 1686 (1978)
75. Kerker M, Druger S D *Appl. Opt.* **18** 1172 (1979)
76. Serpengüzel A et al. *Appl. Opt.* **31** 3543 (1992)
77. Ashkin A, Dziedzic J M *Phys. Rev. Lett.* **38** 1351 (1977)
78. Chýlek P *Phys. Rev. A* **18** 2229 (1978)
79. Benner R E et al. *Phys. Rev. Lett.* **44** 475 (1980)
80. Owen J F, Chang R K, Barber P W *Aerosol Sci. Technol.* **1** 293 (1982)
81. Conwell P R, Barber P W, Rushfort C K *J. Opt. Soc. Am. A* **1** 62 (1984)
82. Chýlek P, Pendleton J D, Pinnick R G *Appl. Opt.* **24** 3940 (1985)
83. Hill S C, Benner R E *J. Opt. Soc. Am. B* **3** 1509 (1986)
84. Chang R K, in *Advances in Laser Science – II* (AIP Conf. Proc., Vol. 160, Eds M Lapp, W C Stwalley, G A Kenney-Wallace) (New York: AIP, 1987) p. 509
85. Chýlek P et al. *Opt. Lett.* **16** 1723 (1991)
86. Esen C, Schweiger G *Chem. Sci. Technol.* **21** 36 (1998)
87. Lin H B et al. *J. Opt. Soc. Am. B* **8** 250 (1986)
88. Lai H M et al. *Phys. Rev. A* **41** 5187 (1990)
89. Lai H M, Leung P T, Young K J *Phys. Rev. A* **41** 5199 (1990)
90. Lai H M et al. *J. Opt. Soc. Am. B* **8** 1962 (1991)
91. Chen G et al. *Opt. Lett.* **16** 1269 (1991)
92. Chen G, Swindal J C, Chang R K *Proc. SPIE* **1726** 292 (1992)
93. Chen G et al. *Proc. SPIE* **1862** 200 (1993)
94. Chen G et al. *Opt. Lett.* **18** 1993 (1993)
95. Guker F T, Egan E E *J. Colloid Sci.* **16** 68 (1961)
96. Davis E J, in *Surface Colloidal Sci.* Vol. 14 (Ed. E Matijevic) (New York: Plenum Press, 1987)
97. Ray A K et al. *Appl. Opt.* **30** 3974 (1991)
98. Devarakonda V et al. *Aerosol Sci. Tech.* **28** 531 (1998)
99. Swindal J C et al. *Recent Adv. in Spray Combust., American Institute of Aeronautics and Astronautics (AIAA) Progr. Ser.* **63** (1996)
100. Толпыго К Б, Чалый А В *ЖПЦ* **2** 167 (1965)
101. Толпыго К Б, Чалый А В *ЖПЦ* **2** 447 (1965)
102. Чалый А В *ЖПЦ* **4** 162 (1966)
103. Чалый А В *УФЖ* **11** 50 (1966)
104. Weber R, Schweiger G *J. Colloid Interf. Sci.* **210** 86 (1999)
105. Holt R G, Crum L A *Appl. Opt.* **29** 4182 (1990)
106. Rayleigh J W, Lord *Philos. Mag.* **34** 94 (1917)
107. Зельдович Я Б, Райзер Ю П *Физика ударных волн и высокотемпературных гидродинамических явлений* (М.: Наука, 1966)
108. Маргулис М А *УФН* **170** 263 (2000)
109. Tzeng H-M et al. *Opt. Lett.* **8** 273 (1984)
110. Tzeng H-M et al. *Proc. SPIE* **573** 80 (1985)
111. Hill S C et al. *Appl. Opt.* **24** 2380 (1985)
112. Qian S-X et al. *Science* **231** 486 (1986)
113. Tzeng H-M et al. *Opt. Lett.* **10** 209 (1985)
114. Tzeng H-M et al. *Opt. Lett.* **9** 499 (1984)
115. Eversole J D, Lin H-B, Campillo A J *Appl. Opt.* **31** 1982 (1992)
116. Быковский Ю А и др. *Квант. электрон.* **2** 1803 (1975)
117. Быковский Ю А и др. *ЖПЦ* **23** 866 (1975)
118. Rosasco G J, Etz E S, Cassatt W A *Appl. Spectrosc.* **29** 396 (1975)
119. Thurn R, Kiefer W *J. Raman. Spectrosc.* **15** 411 (1984)
120. Thurn R, Kiefer W *Appl. Spectrosc.* **38** 78 (1984)
121. Thurn R, Kiefer W *Appl. Opt.* **24** 1515 (1985)
122. Lettieri T R, Preston R E *Opt. Commun.* **54** 349 (1985)
123. Fung K H, Tang I N *Appl. Opt.* **27** 206 (1988)
124. Fung K H, Tang I N *Chem. Phys. Lett.* **147** 509 (1988)
125. Fung K H, Tang I N *J. Colloid Interf. Sci.* **130** 219 (1989)
126. Tang I N, Fung K H *J. Aerosol Sci.* **20** 609 (1989)
127. Fung K H, Tang I N *Chem. Phys. Lett.* **163** 560 (1989)
128. Rayleigh J W, Lord *Philos. Mag.* **14** 184 (1882)
129. Feng J Q, Beard K V *Proc. R. Soc. Lond. A* **430** 133 (1990)
130. Snow J B, Qian S-X, Chang R K *Opt. Lett.* **10** 37 (1985)
131. Qian S-X, Snow J B, Chang R K, in *Laser Spectroscopy VII* (Springer Series in Optical Sciences, Vol. 49, Eds T W Hänsch, Y R Shen) (Berlin: Springer-Verlag, 1985) p. 204
132. Qian S, Snow J B, Chang R K *Opt. Lett.* **10** 499 (1985)
133. Snow J B, Qian S-X, Chang R K *Opt. News* **12** 5 (1986)
134. Qian S-X, Chang R K *Phys. Rev. Lett.* **56** 926 (1986)
135. Eickmans J H, Qian S-X, Chang R K *Part. Character.* **4** 85 (1987)
136. Zhang J-Z, Leach D H, Chang R K *Opt. Lett.* **13** 270 (1988)
137. McNulty P J, Chew H W, Kerker M, in *Aerosol Microphysics I: Particle Interaction* (Topics in Current Physics, Vol. 16, Ed W H Marlow) (Berlin: Springer-Verlag, 1980)
138. Kerker M *Aerosol Sci. Technol.* **1** 275 (1982)
139. Chan K, Flagan R C, Seinfeld J H *Appl. Opt.* **30** 459 (1991)
140. Lange S, Schweiger G *J. Opt. Soc. Am. B* **13** 1864 (1996)
141. Latifi H et al. *Appl. Opt.* **29** 5387 (1990)
142. Kwok A S, Chang R K *Opt. Lett.* **18** 1597 (1993)

143. Chang R K, in *Laser Optics of Condensed Matter: Proc. of the Third USA-USSR Symp., 1987, USSR* (Eds J L Birman, H Z Cummins, A A Kaplyanskiy) (New York: Plenum, Press 1988) p. 193
144. Biswas A et al. *Phys. Rev. A* **40** 7413 (1989)
145. Lin H-B, Eversole J D, Campillo A J *Opt. Commun.* **77** 407 (1990)
146. Lin H-B et al. *J. Opt. Soc. Am. B* **7** 2079 (1990)
147. Serpengüzel A, Chen G, Chang R K *Part. Sci. Technol.* **8** 179 (1990)
148. Chen G et al. *Opt. Lett.* **16** 117 (1991)
149. Chang R K et al. *Proc. SPIE* **1497** 2 (1991)
150. Lin H B, Eversole J D, Campillo A J *Opt. Lett.* **17** 828 (1992)
151. Lange S, Schweiger G *J. Opt. Soc. Am. B* **14** 1931 (1997)
152. Chang R K, Qian S-X, Eickmans J, in *Methods of Laser Spectroscopy* (Eds Y Prior, A Ben-Reuven, M Rosenbluh) (New York: Plenum Press, 1986) p. 249
153. Leach D H, Chang R K, Acker W P *Opt. Lett.* **17** 387 (1992)
154. Kwok A S, Chang R K *Opt. Lett.* **18** 1703 (1993)
155. Hsieh W-F, Zheng J-B, Chang R K *Opt. Lett.* **13** 497 (1988)
156. Zheng J-B et al., in *Proc. of the Topical Meeting on Laser Materials and Laser Spectroscopy, China, 1988* (Eds Z Wang, Z Zhang) (Singapore: World Scientific, 1989) p. 259
157. Serpengüzel A et al. *J. Opt. Soc. Am. B* **9** 871 (1992)
158. Zhang J-Z, Chang R K *J. Opt. Soc. Am. B* **6** 151 (1989)
159. Zhang J-Z, Chen G, Chang R K *J. Opt. Soc. Am. B* **7** 108 (1990)
160. Wirth F H et al. *Opt. Lett.* **17** 1334 (1992)
161. Acker W P, Leach D H, Chang R K *Opt. Lett.* **14** 402 (1989)
162. Leach D H, Acker W P, Chang R K *Opt. Lett.* **15** 894 (1990)
163. Qian S et al. *Opt. Commun.* **74** 414 (1990)
164. Chang R K, in *Resonances* (Eds M D Levenson et al.) (Singapore: World Scientific, 1990) p. 200
165. Qian S, Wang J, Li Y *Chinese Phys. Lett.* **5** 205 (1988)
166. Carls J C, Moncivais G, Brock J R *Appl. Opt.* **29** 2913 (1990)
167. Acker W P et al. *Appl. Phys. B* **51** 9 (1990)
168. Zhu J, Dunn-Rankin D *Appl. Opt.* **30** 2672 (1991)
169. Tang I N et al. *Aerosol Sci. Technol.* **23** 443 (1995)
170. Vehring R et al. *J. Aerosol Sci.* **29** 1045 (1998)
171. Schweiger G *J. Aerosol Sci.* **21** 483 (1990)
172. Fung K H, Tang I N *Appl. Spectrosc.* **45** 734 (1991)
173. Fung K H, Tang I N *Appl. Spectrosc.* **46** 1189 (1992)
174. Fung K H, Imre D G, Tang I N *J. Aerosol Sci.* **25** 479 (1994)
175. Vehring R et al. *Rev. Sci. Instrum.* **68** 70 (1997)
176. Davis E J, Buehler M F, Ward T L *Rev. Sci. Instrum.* **61** 1281 (1990)
177. Buehler M F, Allen T M, Davis E J *J. Colloid Interf. Sci.* **146** 79 (1991)
178. Schweiger G *J. Opt. Soc. Am. B* **8** 1770 (1991)
179. Foss W et al. *Aerosol Sci. Technol.* **18** 187 (1993)
180. Schaschek K, Popp J, Kiefer W *Ber. Bunsen. Phys. Chem.* **97** 1007 (1993)
181. Schaschek K, Popp J, Kiefer W *J. Raman Spectrosc.* **24** 69 (1993)
182. Kaiser T, Roll G, Schweiger G *J. Opt. Soc. Am. B* **12** 281 (1995)
183. Kaiser T et al. *Ber. Bunsen. Phys. Chem.* **100** 119 (1996)
184. Kaiser T, Roll G, Schweiger G *Appl. Opt.* **35** 5918 (1996)
185. Popp J et al. *Appl. Opt.* **34** 2380 (1995)
186. Popp J et al. *J. Mol. Struct.* **348** 281 (1995)
187. Aardahl C L, Foss W F, Davis E J *J. Aerosol Sci.* **27** 1015 (1996)
188. Aardahl C L, Foss W F, Davis E J *Indian. Eng. Chem. Res.* **35** 2834 (1996)
189. Rassat S D, Davis E J *J. Aerosol Sci.* **23** 165 (1992)
190. Buehler M F, Davis E J *Colloid Surf. A* **79** 137 (1993)
191. Li W et al. *J. Colloid Interf. Sci.* **162** 267 (1994)
192. Aardahl C L, Davis E J *Mater. Res. Soc. Symp. Proc.* **432** 209 (1996)
193. Aardahl C L, Davis E J *Appl. Spectrosc.* **50** 71 (1996)
194. Essen C, Kaiser T, Schweiger G *Appl. Spectrosc.* **50** 823 (1996)
195. Essen C et al. *Colloid Polym. Sci.* **275** 131 (1997)
196. Schweiger G *Opt. Lett.* **15** 156 (1990)
197. Eversole J D, Lin H-B, Campillo A J *J. Opt. Soc. Am. B* **12** 287 (1995)
198. Lin H-B et al. *Opt. Lett.* **17** 970 (1992)
199. Schweiger G *J. Opt. Soc. Am. B* **8** 174 (1991)
200. Ray A K et al. *Langmuir* **7** 525 (1991)
201. Hightower R L et al. *Opt. Lett.* **13** 946 (1988)
202. Huckaby J L, Ray A K *Langmuir* **11** 80 (1995)
203. Ray A K, Nandakumar R *Appl. Opt.* **34** 7759 (1995)
204. Hightower R L, Richardson C B *Appl. Opt.* **27** 4850 (1988)
205. Lock J A *Appl. Opt.* **29** 3180 (1990)
206. Kaiser T, Lange S, Schweiger G *Appl. Opt.* **33** 7789 (1994)
207. Aden A L, Kerker M *J. Appl. Phys.* **22** 1242 (1951)
208. Folan L M, Arnold S, Druger S D *Chem. Phys. Lett.* **118** 322 (1985)
209. Druger S D, Arnold S, Folan L M *J. Chem. Phys.* **87** 2649 (1987)
210. Leung P T, Young K J *Chem. Phys.* **89** 2894 (1988)
211. Arnold S, Folan L M *Opt. Lett.* **14** 387 (1989)
212. Lange S, Schweiger G *J. Opt. Soc. Am. B* **11** 2444 (1994)
213. Гельмуханов Ф Х, Шалагин А М *ЖЭТФ* **77** 461 (1979)
214. Гельмуханов Ф Х, Шалагин А М *ЖЭТФ* **78** 1672 (1980)
215. Анцыгин В Д, в кн. *Нелинейная оптика. Труды VI Вавиловской конференции*. Ч. II (Под ред. В П Чеботаева) (Новосибирск: Изд. Ин-та теплофизики СО АН СССР, 1979) с. 159
216. Калечин В И, Нахутин И Е, Полуэктов П П *Квант. электрон.* **9** 1518 (1982)
217. Hsieh W-F, Tzeng H-M, Chang R K *Acad. Sinica* **16** 1 (1986)
218. Qian S-X, Chang R K *Opt. Lett.* **11** 371 (1986)
219. Zhang J Z, Chang R K *Opt. Lett.* **13** 916 (1988)
220. Chang R K et al. *Appl. Opt.* **27** 2377 (1988)
221. Hsieh W-H et al. *Opt. Lett.* **12** 576 (1987)
222. Hsieh W-H, Eickmans J H, Chang R K *J. Opt. Soc. Am. B* **4** 1816 (1987)
223. Eickmans J H, Hsieh W-H, Chang R K *Appl. Opt.* **26** 3721 (1987)
224. Zheng J-B et al. *Opt. Lett.* **13** 559 (1988)
225. Hsieh W-F, Zheng J-B, Chang R K *Opt. Lett.* **14** 1014 (1989)
226. Zheng J-B et al. *J. Opt. Soc. Am. B* **8** 319 (1991)
227. Eickmans J H, Hsieh W-H, Chang R K *Opt. Lett.* **12** 22 (1987)
228. Кузиковский А В, Погодаев В А, Хмелевцов С С *ИФЖ* **20** 21 (1971)
229. Костин В А и др. *ЖЭТФ* **66** 1970 (1974)
230. Zhang J-Z et al. *Appl. Opt.* **26** 4731 (1987)
231. Wood C F et al. *Appl. Opt.* **27** 2279 (1988)
232. Kwok A S, Wood C F, Chang R K *Opt. Lett.* **15** 664 (1990)

### Optics of microdroplets

V.V. Datsyuk

Taras Shevchenko Kiev National University, Department of Physics,  
Vladimirskaya ul. 64, 01033 Kiev, Ukraine  
Tel. (038-044) 266-44 77. E-mail: datsyuk@ups.kiev.ua

I.A. Izmailov

Institute of Semiconductor Physics, National Academy of Sciences of the Ukraine,  
prosp. Nauki 45, 03028 Kiev, Ukraine  
Tel. (038-044) 265-77 78

A review of optical effects observed in micrometer-sized droplets is given. The fundamentals of microdroplet optics are presented, and such aspects as the spontaneous-emission rate enhancement, lasing, Raman scattering, acceleration of physical and chemical processes, and how high-power light pulses affect droplets, are considered. It is pointed out that existing knowledge can be applied to the structure analysis of droplets using the positions and amplitudes of resonances in elastic or inelastic light scattering.

PACS numbers: 12.20.Fv, **42.50.-p**, **42.55.-f**, **42.65.-k**, 42.68.Wt  
Bibliography — 232 references

Received 22 May 2001