

А.А. Землянов, Ю.Э. Гейнц, Д.В. Апексимов

## Рассеяние цуга фемтосекундных лазерных импульсов сферической микрочастицы: временная динамика внутреннего оптического поля

*Институт оптики атмосферы СО РАН, г. Томск*

Поступила в редакцию 2.10.2003 г.

На основе аналитического решения уравнений Максвелла, полученного через представление световых полей в виде разложения в ряды по собственным электромагнитным модам диэлектрической сферы, решена задача о линейном рассеянии цуга фемтосекундных лазерных импульсов на сферической частице малого поглощения. Проведен сравнительный анализ временной динамики формирования внутреннего оптического поля частицы при облучении ее одиночным импульсом и цугом лазерных импульсов. Установлено, что при падении на частицу последовательности фемтосекундных лазерных импульсов в зависимости от их скважности изменяются как временное поведение внутреннего поля частицы, так и его интенсивность. Показано, что данный эффект связан с возбуждением собственных электромагнитных мод частицы (мод «шепчущей галереи»), резонансные частоты которых попадают в спектр исходного лазерного импульса. Существует оптимальная скважность следования импульсов излучения, при которой происходит дополнительное увеличение интенсивности внутреннего оптического поля в зоне его максимума. Значение данной скважности обратно пропорционально относительной отстройке частоты возбуждающейся собственной моды от центральной частоты падающего излучения.

Одной из особенностей фемтосекундного лазерного излучения является высокая временная когерентность в цуге импульсов при частотно-импульсном режиме работы лазерного источника. Это может привести к специфическим эффектам взаимодействия цуга таких импульсов и нелинейной среды. В частности, на данной особенности основывается известный метод когерентной спектроскопии рассеяния света [1]. В рамках данного метода возбуждение и зондирование среды осуществляются короткими световыми импульсами, а спектроскопическая информация при этом содержится в форме импульсного отклика среды. Применение данного метода в микрообъеме вещества, каким, например, является сферическая микрочастица, может иметь особенности по сравнению со случаем исследования протяженных сред. Это связано как с наличием фокусировки внутреннего оптического поля поверхностью частицы, так и с так называемым резонаторным эффектом, проявляющимся в возбуждении долгоживущих электромагнитных колебательных мод (мод «шепчущей галереи» [2]) в частице-микрорезонаторе. Анализу данных эффектов были посвящены, например, работы авторов [2, 3].

В связи с этим представляет интерес рассмотрение линейного рассеяния последовательности фемтосекундных лазерных импульсов на прозрачных диэлектрических микросферах с точки зрения установления особенностей в величине и временном поведении интенсивности внутреннего оптического поля при вариации скважности следования отдельных импульсов в цуге.

Для рассмотрения задачи дифракции последовательности сверхкоротких лазерных импульсов на сферической частице был использован теоретический подход [2, 4], активно развиваемый в оптике лазеров. Здесь для изучения временного поведения оптических полей предлагается искать решение неоднородных уравнений Максвелла в виде рядов по собственным функциям линейной задачи стационарного рассеяния (резонансным модам диэлектрического шара). При этом пространственная и временная зависимости оптических полей факторизуются так, что вся информация о временном поведении рассеянного поля переходит в коэффициенты рядов, для которых записывается система дифференциальных уравнений. При задании конкретного профиля исходного импульса данная система уравнений затем может быть аналитически или численно решена.

Следуя описанной методике, разложим напряженность электрического  $\mathbf{E}(\mathbf{r}; t)$  и магнитного  $\mathbf{H}(\mathbf{r}; t)$  полей внутри частицы по системе собственных функций сферического резонатора  $\mathbf{E}_{np}^{\text{TE, TH}}(\mathbf{r})$ ,  $\mathbf{H}_{np}^{\text{TE, TH}}(\mathbf{r})$  с собственными частотами  $\omega_{np}$  и затуханием  $\Gamma_{np}$ , описывающих пространственный профиль полей собственных колебательных мод ТЕ- и ТН-поляризацій [5, 6]:

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}; t) = \sum_{n=1}^{\infty} \sum_{p=1}^{\infty} \left[ A_{np}(t) \mathbf{E}_{np}^{\text{TE}}(\mathbf{r}) - i B_{np}(t) \mathbf{E}_{np}^{\text{TH}}(\mathbf{r}) \right];$$

$$\mathbf{H}(\mathbf{r}; t) = \sqrt{\varepsilon_a} \sum_{n=1}^{\infty} \sum_{p=1}^{\infty} \left[ i A_{np}(t) \mathbf{H}_{np}^{\text{TE}}(\mathbf{r}) + B_{np}(t) \mathbf{H}_{np}^{\text{TH}}(\mathbf{r}) \right],$$

где  $\epsilon_a$  — диэлектрическая проницаемость вещества частицы;  $A_{np}$ ,  $B_{np}$  — зависящие от времени коэффициенты. Здесь и далее рассматривается комплексное представление оптических полей.

Соответствующая система дифференциальных уравнений для коэффициентов разложения имеет вид [4]:

$$\frac{d^2}{dt^2} A_{np}(t) + 2\Gamma_{np} \frac{d}{dt} A_{np}(t) + \omega_{np}^2 A_{np}(t) = F_{np}^i(t), \quad (1)$$

где правые части

$$F_{np}^i(t) = \frac{E_0}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} G(\omega - \omega_0) e^{i\omega t} K_{np}^n(\omega; \omega_{np}) d\omega \quad (2)$$

представляются интегралами Фурье от спектральной функции исходного импульса излучения  $G(\omega - \omega_0)$  и некоторого коэффициента  $K_{np}^n(\omega; \omega_{np})$ , учитывающего степень возбуждения моды внутреннего поля (с индексами  $np$ ) соответствующей ей модой ( $n$ ) внешнего поля:

$$K_{np}^n(\omega; \omega_{np}) = \frac{ic^2 R_n e^{-ika_0}}{V_a \epsilon_a k c_{np}} \left[ \Psi_n(ka_0) \Psi_n^*(n_a k_{np} a_0) - \frac{1}{n_a \omega_{np}} \Psi_n'(ka_0) \Psi_n^*(n_a k_{np} a_0) \right].$$

Здесь  $E_0$  — напряженность электрического поля падающей волны с центральной частотой  $\omega_0$ ;  $R_n = i^n \frac{2n+1}{n(n+1)}$ ;  $k = \omega/c$ ;  $k_{np} = \omega_{np}/c$ ;  $a_0$  — радиус частицы;

$n_a$  — показатель преломления вещества частицы;  $V_a$  — объем частицы;  $c_{np}$  — нормировочные коэффициенты [4];  $\Psi_n(z)$  — сферические функции Риккати–Бесселя;  $c$  — скорость света в вакууме. Далее для простоты изложения мы ограничимся учетом только ТЕ-мод оптического поля.

Частное решение неоднородного уравнения (1), отражающее колебания под действием «внешней» силы, записывается как

$$A_{np}(t) = \frac{\exp\{-\Gamma_{np} t\}}{2i\omega_{np}} E_0 \times \left[ \exp\{i\omega_{np} t\} \int_0^t F_{np}^i(t') \exp\{-i(\omega_{np} + i\Gamma_{np}) t'\} dt' - \frac{\exp\{-\Gamma_{np} t\}}{2i\omega_{np}} E_0 \times \exp\{-i\omega_{np} t\} \int_0^t F_{np}^i(t') \exp\{i(\omega_{np} - i\Gamma_{np}) t'\} dt' \right], \quad (4)$$

где  $\omega_{np} = \omega_{np} \sqrt{1 - \Gamma_{np}^2 / \omega_{np}^2}$  — частота свободных колебаний моды с учетом потерь.

Для дальнейшего анализа зададим временную зависимость падающего на частицу излучения в виде

последовательности (цуга) из  $N_p$  равноотстоящих импульсов с гауссовским временным профилем:

$$f(t) = e^{i\omega_0 t} \sum_{j=1}^{N_p} f_j^0(t), \quad (5)$$

где  $f_j^0(t) = e^{-\frac{(t-t_j)^2}{t_p^2}}$ ;  $t_j = (j-1)T$ ;  $T$  — интервал следования импульсов;  $t_0$ ,  $t_p$  — временные параметры. При этом Фурье-спектр такого излучения описывается следующей функцией:

$$G(\omega - \omega_0) = G_0(\omega - \omega_0) \sum_{j=1}^{N_p} e^{-i(\omega - \omega_0)t_j}, \quad (6)$$

где

$$G_0(\omega - \omega_0) = \frac{4\pi\sqrt{\pi}}{\Delta\omega_p} \exp\left\{-4\pi^2 \frac{(\omega - \omega_0)^2}{(\Delta\omega_p)^2} - i(\omega - \omega_0)t_0\right\}$$

задает спектральный контур всего цуга в целом, с полушириной  $\Delta\omega_p = 4\pi/t_p$ .

Рассмотрим интегралы (2). Как показывают расчеты, в большинстве случаев возможно вынести коэффициент  $K_{np}^n(\omega; \omega_{np})$  за знак интеграла при некотором значении частоты  $\omega'$ , применив соответствующую теорему о среднем, т.е.

$$F_{np}^i(t) \cong \frac{E_0}{2\pi} K_{np}^n(\omega'; \omega_{np}) \int_{-\infty}^{\infty} G(\omega - \omega_0) e^{i\omega t} d\omega = E_0 K_{np}^n(\omega'; \omega_{np}) f(t). \quad (7)$$

В общем случае эта частота  $\omega'$  определяется исходя из конкретной частотной зависимости коэффициента  $K_{np}^n(\omega; \omega_{np})$ , однако вследствие экспоненциальной ограниченности спектра исходного излучения положение точки  $\omega'$  будет в пределах спектрального контура  $G_0(\omega - \omega_0)$ .

На рис. 1 показана частотная зависимость нормированного фактора

$$\bar{K}_{np}^n = K_{np}^n \frac{V_a \epsilon_a c_{np}}{ic^2}$$

для различных комбинаций модовых индексов при падении на водную каплю одиночного импульса излучения. Здесь же для наглядности показан и спектральный контур  $G_0(\omega - \omega_0)$ . Набор собственных мод на рис. 1 различен вследствие того, что различна ширина спектрального контура исходного лазерного излучения.

Из рис. 1 видно, что при  $t_p = 10$  фс поведение коэффициента  $\bar{K}_{np}^n$  достаточно сложное и характеризуется быстрым изменением его величины в области высоких частот, в то время как для более длинных импульсов данная зависимость уже гладкая. Однако и в том, и другом случае вариации среднего значения исследуемой функции для различных собственных мод в пределах спектрального контура излучения невелики (таблица), и, следовательно, при-

ближение интеграла (2) выражением (7) достаточно корректно.

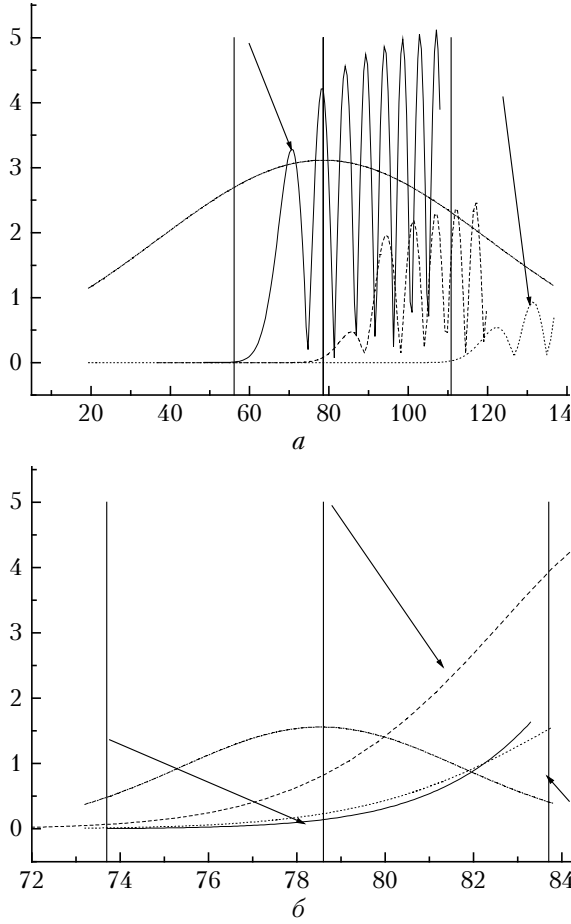


Рис. 1. Зависимость фактора  $\bar{K}_{np}^n(\omega; \omega_{np})$  от параметра  $x = \omega a_0/c$  для собственных мод при падении на водную каплю радиусом  $a_0 = 10$  мкм одиночного импульса излучения ( $\lambda = 0,8$  мкм) с длительностью  $t_p = 10$  (а) и 100 фс (б). Вертикальными линиями показано положение резонансной частоты мод по шкале абсцисс

Длительность импульса, фс	Модовый индекс	Диапазон изменения $\bar{K}_{np}^n \cdot 10^4$ , м	Среднее значение $\bar{K}_{np}^n \cdot 10^4$ , м	«Средняя» частота $\omega' \cdot 10^{-13}$ , Гц
10	TE <sub>56,1</sub>	$1,21 \cdot 10^{-2} \div 5,12$	2,56	2,70
	TE <sub>85,3</sub>	$1,21 \cdot 10^{-2} \div 2,46$	1,23	3,15
	TH <sub>120,4</sub>	$1,80 \cdot 10^{-3} \div 0,93$	0,47	3,66
100	TE <sub>90,1</sub>	$5,73 \cdot 10^{-3} \div 0,16$	0,08	2,46
	TE <sub>85,3</sub>	$1,21 \cdot 10^{-2} \div 2,46$	1,23	2,45
	TE <sub>87,4</sub>	$1,13 \cdot 10^{-2} \div 0,16$	0,08	2,43

После подстановки (7) в (4) и проведения интегрирования получим

$$A_{np}(t); \frac{iE_0 K_{np}^n(\omega'; \omega_{np})}{2\omega_{np}} e^{i\omega_{np}t} G_0(\Delta\omega_{np} + i\Gamma_{np}) \times \sum_{j=1}^{N_p} e^{-i\phi_{np}^j} e^{-\Gamma_{np}(t-t_0-t_j)} \left[ \operatorname{erf} \left( \frac{t-t_0-t_j}{t_p} + i \frac{t_p}{2} (\Delta\omega_{np} + i\Gamma_{np}) \right) \right]$$

$$- \operatorname{erf} \left( -\frac{t_0+t_j}{t_p} + i \frac{t_p}{2} (\Delta\omega_{np} + i\Gamma_{np}) \right) \right]. \quad (8)$$

Здесь  $\Delta\omega_{np} = \omega_{np} - \omega_0$ ;  $\phi_{np}^j = \omega_{np} t_j$ ;  $\operatorname{erf}(z)$  – интеграл ошибок. Мы пренебрегли вторым интегралом в (4) ввиду его малости из-за наличия в нем множителя  $G_0(\Delta\omega_{np} + 2\omega_0 + i\Gamma_{np})$ . В выражении (8) удобно провести замену переменных:  $\tau = t/t_p$ ;  $\tau_0 = t_0/t_p$ ;  $\gamma_{np} = \Gamma_{np}/\Delta\omega_p \equiv (1/4\pi) \cdot (t_p/t_{np})$ ;  $t_{np} = \omega_{np}/\Gamma_{np}$  – характерное время жизни собственной моды;  $\Delta\bar{\omega}_{np} = \Delta\omega_{np}/\Delta\omega_p$ ;  $s_p = T/t_p$  – скажность следования импульсов. Тогда окончательно можно записать:

$$A_{np}(\tau); \frac{iE_0 K_{np}^n(\omega'; \omega_{np})}{2\omega_{np}} e^{i(\omega_{np} t_p) \tau} G_0(\Delta\bar{\omega}_{np} + i\gamma_{np}) \times \sum_{j=1}^{N_p} e^{-i\phi_{np}^j} e^{-4\pi\gamma_{np}} \left\{ \operatorname{erf} [\tau - \tau_0 - \tau_j + 2\pi i(\Delta\bar{\omega}_{np} + i\gamma_{np})] - \operatorname{erf} [-\tau_0 - \tau_j + 2\pi i(\Delta\bar{\omega}_{np} + i\gamma_{np})] \right\}. \quad (9)$$

Анализ полученного выражения показывает, что структурно оно состоит из нескольких сомножителей: гармонической части с частотой собственной моды, огибающей спектрального контура исходного цуга импульсов, учитывающей смещение частоты собственной моды от центра спектра, и суммы вкладов от отдельных импульсов в цуге. В свою очередь, вклад в результирующую временную зависимость коэффициента  $A_{np}$  от каждого импульса имеет свою фазу  $\phi_{np}^j$ , экспоненциально затухающую часть и функцию, описывающую первоначальное нарастание амплитуды моды. Очевидно, что основное отличие частотно-импульсного возбуждения моды внутреннего поля от возбуждения ее моноимпульсом излучения заключено в фазовом соотношении между отдельными импульсами в цуге. Рассмотрим данное соотношение подробнее.

Запишем фазу  $\phi_{np}^j$  в новых переменных:

$$\phi_{np}^j = 4\pi\Delta\bar{\omega}_{np}(j-1)s_p. \quad (10)$$

При  $\phi_{np}^j = 2\pi l$ , где  $l$  – целое число, каждый новый импульс в цуге будет приходить в фазе с полем внутри частицы, образованным предыдущими импульсами. Таким образом, произойдет синфазное сложение полей и соответствующее увеличение суммарной амплитуды по сравнению с одиночным импульсом, которое будет тем заметнее, чем меньше затухание моды  $\Gamma_{np}$ . Выражение (10) накладывает условие на скажность импульсов, при которой указанный эффект будет максимален:

$$s_p = |2\Delta\bar{\omega}_{np}|^{-1}, \quad (11)$$

откуда следует, что чем больше отстройка частоты собственной моды от центральной частоты падающего излучения, тем меньше должна быть скажность следования импульсов. Так, например, для эффективного

возбуждения моды с частотой  $\omega_{np}$ , находящейся на краю спектрального контура исходного излучения ( $\Delta\bar{\omega}_{np} \approx 1$ ), требуется воздействие цуга импульсов со скважностью  $s_p \approx 0,5$ , т.е. при их частичном временном перекрытии. И наоборот, при резонансном возбуждении моды ( $\Delta\bar{\omega}_{np} \approx \Gamma_{np}^2 / (\omega_0 \Delta\omega_p) \ll 1$ ), вследствие собственного затухания моды, эффект фазировки импульсов в цуге практически исчезает.

Заметим, что с точки зрения спектрального анализа сигналов соотношение (11) имеет достаточно ясную трактовку. Действительно, при выполнении данного условия на скважность следования импульсов в спектре цуга появляется составляющая с относительной расстройкой от центральной частоты  $\Delta\bar{\omega}_{np}$  [7]. Эта спектральная составляющая резонансно возбуждает рассматриваемую собственную моду частицы, что приводит к подъему интенсивности всего оптического поля.

В качестве иллюстрации данного вывода на рис. 2, а – 4, а представлена временная зависимость относительной интенсивности

$$B(\mathbf{r}; t) = (\mathbf{E}(\mathbf{r}; t) \cdot \mathbf{E}^*(\mathbf{r}; t)) / E_0^2$$

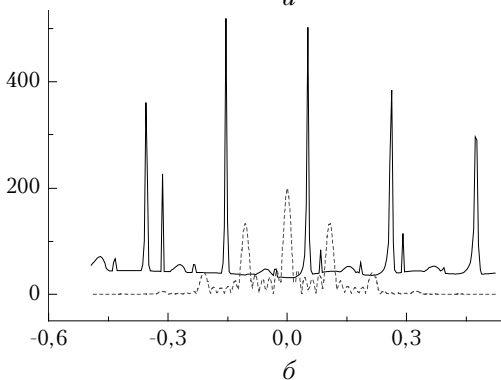
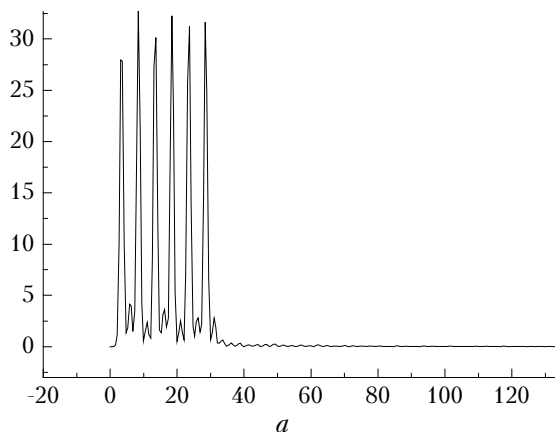


Рис. 2. Временная зависимость относительной интенсивности  $B_m$  внутреннего оптического поля капли воды ( $a_0 = 10$  мкм) при освещении ее цугом из шести импульсов излучения с  $\lambda = 0,8$  мкм,  $t_p = 100$  фс при скважности их следования  $s_p = 5$  (а); спектральный контур цуга импульсов с параметрами, соответствующими рис. 2, а в зависимости от относительной частоты  $\Delta\bar{\omega} = (\omega - \omega_0) / \omega_0$  (сплошная линия), и функция  $I_\delta(\omega)$  (штриховая), в усл. ед. (б)

внутреннего оптического поля капли воды в зоне его абсолютного максимума  $B_m$  (теневая полусфера) при освещении частицы цугом из шести 100-фс импульсов при различной скважности их следования. На рис. 2, б – 4, б в условных единицах показаны спектральный контур цуга при данных скважностях и функция  $I_\delta(\omega) = (\mathbf{E}_\delta(\omega; \mathbf{r}) \cdot \mathbf{E}_\delta^*(\omega; \mathbf{r}))$ , где  $\mathbf{E}_\delta(\omega; \mathbf{r})$  – так называемый спектральный отклик частицы [3]. Данные расчеты были выполнены по методике, описанной в [4, 8] с использованием метода Фурье в комбинации с линейной теорией светорассеяния.

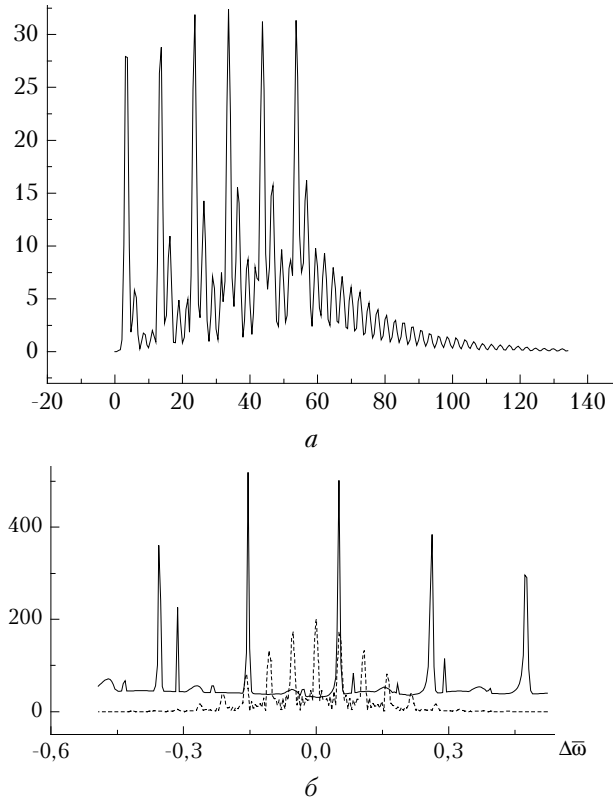


Рис. 3. То же, что на рис. 2, а, при  $s_p = 10$

Из рис. 2 – 4 отчетливо видно, что в ряде случаев происходит синфазное сложение полей в частице от отдельных импульсов в цуге. Это наиболее заметно, когда локальные спектральные максимумы в спектре цуга совпадают с сильными резонансными модами капли. Так, например, при  $s_p = 10$  и 20, когда выполняется условие (11), наблюдается некоторый подъем интенсивности поля в промежутках между импульсами благодаря возбуждению находящейся рядом с центральной частотой  $TE_{85,3}$  собственной моды. В то же время при  $s_p = 5$  возбуждение данной моды проходит неэффективно.

Таким образом, основное отличие частотно-импульсного режима рассеяния излучения на сферической микрочастице от рассеяния на ней моноимпульса излучения заключается в возможности своеобразной фазировки отдельных импульсов в цуге, когда реализуется резонансное возбуждение мод «шепчущей галереи», попадающих в спектральный

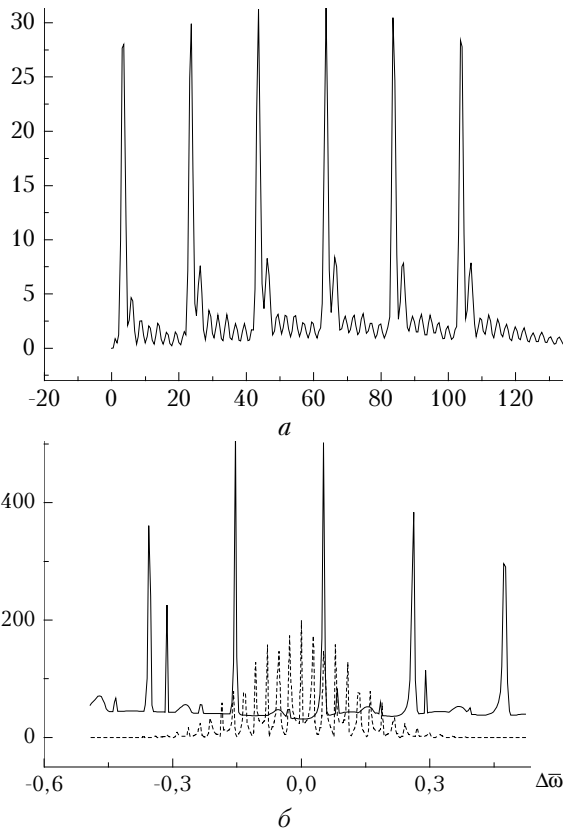


Рис. 4. То же, что на рис. 2, а, при  $s_p = 20$

контур дуга. При этом чем больше отстройка частоты собственной моды от центральной частоты падающего излучения, тем меньше должна быть скважность следования импульсов.

Работа выполнена при финансовой поддержке проекта 2.9 Программы отделения физических наук РАН.

1. Ахманов С.А., Выслоух В.А., Чиркин А.С. Оптика фемтосекундных импульсов. М.: Наука, 1988. 312 с.
2. Гейнц Ю.Э., Землянов А.А., Зуев В.Е., Кабанов А.М., Погодаев В.А. Нелинейная оптика атмосферного аэрозоля. Новосибирск: Изд-во СО РАН, 1999. 260 с.
3. Землянов А.А., Гейнц Ю.Э. Резонансное возбуждение светового поля в слабопоглощающих сферических частицах фемтосекундным лазерным импульсом. Особенности нелинейно-оптических взаимодействий // Оптика атмосф. и океана. 2001. Т. 14. № 5. С. 349–359.
4. Землянов А.А., Гейнц Ю.Э. Нестационарное упругое линейное рассеяние света на сферических микрочастицах // Оптика атмосф. и океана. 2002. Т. 15. № 8. С. 684–692.
5. Стрэттон Дж.А. Теория электромагнетизма. М.; Л.: ОГИЗ, 1948. 540 с.
6. Борен К., Хафмен Д. Поглощение и рассеяние света малыми частицами. М.: Мир, 1986. 660 с.
7. Гоноровский И.С. Радиотехнические цепи и сигналы. М.: Сов. радио, 1971. 672 с.
8. Шифрин К.С. Рассеяние света в мутной среде. М.; Л.: ГИТТЛ, 1951. 288 с.

*A.A. Zemlyanov, Yu.E. Geints, D.V. Apeksimov. Scattering of a train of femtosecond laser pulses at a spherical microparticle: temporal dynamics of the internal optical field.*

The problem on linear scattering of a train of femtosecond laser pulses at a weakly absorbing spherical particle is solved based on analytical solution of the Maxwell equations derived through representation of light fields as a series expansion in terms of electromagnetic eigenmodes of a dielectric sphere. The temporal dynamics of formation of the optical field in the particle as it is illuminated to a single pulse or a train of laser pulses is analyzed comparatively. It is found that when a particle is illuminated to a series of femtosecond laser pulses, the time behavior of the particle's internal field and its intensity vary depending on the gap between the pulses. This effect is shown to be connected with excitation of electromagnetic eigenmodes (whispering gallery modes) in the particle with the resonance frequencies falling in the spectrum of the initial laser pulse. There exists the optimal gap between the pulses, at which the intensity of the internal optical field additionally increases in the zone of its maximum. The value of this gap is inversely proportional to the relative detuning of the frequency of the eigenmode excited from the central frequency of the incident radiation.