

А.А. Землянов, Ю.Э. Гейнц

Нестационарное упругое линейное рассеяние света на сферических микрочастицах

Институт оптики атмосферы СО РАН, г. Томск

Поступила в редакцию 11.04.2002 г.

Для решения задачи о нестационарном линейном упругом рассеянии света на диэлектрической сферической частице развит теоретический подход, заключающийся в представлении оптических полей рассеянного излучения в виде разложения по собственным функциям стационарной задачи, где коэффициенты разложения определяют временное поведение поля и удовлетворяют неоднородным уравнениям колебаний. Изучены переходные процессы при формировании оптических полей в микрочастице. Показано, что нестационарность рассеяния импульса проявляется, прежде всего, во временном сдвиге максимума внутреннего поля относительно профиля исходного импульса и затягивании его заднего фронта. Указанное поведение нестационарных полей связано с резонансным характером процесса упругого рассеяния световой волны на частице, когда возбуждаются собственные колебательные моды внутреннего оптического поля, времена жизни которых могут быть сравнимы или значительно больше длительности лазерного импульса.

Проблема упругого линейного рассеяния оптического излучения на диэлектрических сферических микрочастицах, несмотря на свою более чем вековую историю, остается актуальной и в настоящее время. Известно, что основные положения данной теории, заложенные еще в работах Дебая [1], Ми [2] и развитые затем в [3–6], относятся к дифракции плоской монохроматической световой волны на частице в стационарных условиях.

Условие стационарности применительно к процессу упругого рассеяния света на частице означает, что времена установления оптических полей в частице и вне ее значительно меньше длительности дифрагирующего импульса излучения и, следовательно, их установление может считаться мгновенным. В то же время рассеяние света, как и любой другой физический процесс, всегда имеет нестационарные фазы своего развития. Это обстоятельство особо важно в связи с перспективами применения в оптике аэрозольных лазерных источников излучения сверхкороткой длительности [7]. При таких временных масштабах нестационарность процесса рассеяния уже начинает вписываться во временные рамки исходного импульса излучения.

Исследования временной и спектральной структур поля упругого рассеяния от сферических частиц малого поглощения [8] показали существование в диэлектрических сферах системы собственных электромагнитных колебательных мод, частоты которых определяются размером частицы и ее оптическими свойствами. При совпадении частоты падающей на частицу световой волны с частотой одной из ее собственных мод происходит резонансное возбуждение внутреннего оптического поля, причем его пространственно-временное распределение целиком определя-

ется полем возбужденной моды. Характерные времена жизни τ_R наиболее высокочастотных резонансов (мод «шепчущей галереи») в частицах микронных размеров лежат, как правило, в наносекундной области [9]. Таким образом, если исходный импульс излучения имеет длительность, сравнимую и меньше, чем время τ_R , то его рассеяние на частице может носить нестационарный характер.

Теоретические исследования нестационарного рассеяния света базируются на решениях уравнений Максвелла в полной постановке с учетом временной изменчивости полей. Известным подходом к решению данной задачи является метод спектрального Фурье-анализа [10–13]. Он позволяет свести задачу о нестационарном рассеянии импульса, имеющего спектральное распределение, к рассеянию на частице набора монохроматических Фурье-гармоник. При этом рассеивающие свойства частицы характеризуются так называемой функцией спектрального отклика, представляющей собой традиционные ряды Ми, записанные для всех частот из спектра исходного импульса. Рассеянное и внутреннее поля записываются в виде интеграла свертки от спектра импульса и функции спектрального отклика частицы [13]. Здесь аналитическое решение задачи светорассеяния удалось получить лишь для некоторых специальных случаев (оптически малые частицы [10]), когда функция спектрального отклика имеет достаточно простой вид. Были получены также численные решения обсуждаемой задачи, дающие временное поведение внутреннего [11, 13] и внешнего полей [12] рассеянной волны.

Среди других численных методов важно отметить метод конечных разностей в пространстве времен (finite-difference time domain method), фактически представляющий собой прямое численное решение

нестационарных уравнений Максвелла [14,15]. Им целесообразно пользоваться при расчетах дифракции излучения на объектах сложной геометрической формы, а также при наличии неоднородностей их оптических свойств.

В наших работах [9, 16] при исследовании нестационарной задачи нелинейного рассеяния света в микронных частицах был обоснован подход, развиваемый в оптике лазеров [17, 18]. В нем для изучения процессов предлагается искать решение в виде разложения по собственным функциям линейной задачи стационарного рассеяния (резонансным модам шара). При этом пространственная и временная зависимости полей факторизуются так, что вся информация о временном поведении рассеянного поля переходит в коэффициенты ряда. Для них на основании уравнений Максвелла записывается система дифференциальных уравнений, по смыслу являющихся неоднородными уравнениями колебаний. При задании конкретного профиля исходного импульса данная система затем может быть аналитически или численно решена.

Целью настоящей работы является теоретическое исследование нестационарного упругого линейного рассеяния света на диэлектрической микрочастице на основе разложения полей по ее резонансным модам. Нашей задачей являются также подробное описание данного метода, получение с его помощью соотношений, характеризующих основные черты нестационарного рассеяния, а также проведение численных расчетов, количественно характеризующих процесс.

Уравнения Максвелла, описывающие нестационарное упругое линейное рассеяние света, имеют вид:

$$\begin{aligned} \operatorname{rot} \mathbf{E}(\mathbf{r}; t) &= -\frac{1}{c} \frac{\partial}{\partial t} \mathbf{H}(\mathbf{r}; t); \\ \operatorname{rot} \mathbf{H}(\mathbf{r}; t) &= -\frac{\varepsilon_a}{c} \frac{\partial}{\partial t} \mathbf{E}(\mathbf{r}; t) + \frac{4\pi\sigma}{c} \mathbf{E}(\mathbf{r}; t), \end{aligned} \quad (1)$$

где $\mathbf{E}(\mathbf{r}; t)$, $\mathbf{H}(\mathbf{r}; t)$ – электрический и магнитный векторы поля соответственно; ε_a , σ – диэлектрическая проницаемость и проводимость вещества частицы; c – скорость света в вакууме. Рассматривается комплексное представление полей.

Представление сферической частицы как открытого оптического резонатора позволяет искать решение (1) в виде разложения по системе собственных функций такого резонатора $\mathbf{E}_{np}^{\text{TE,TH}}(\mathbf{r})$, $\mathbf{H}_{np}^{\text{TE,TH}}(\mathbf{r})$, описывающих пространственный профиль полей собственных колебательных мод ТЕ- и ТН-поляризацій [19, 20]:

$$\begin{aligned} \mathbf{E}(\mathbf{r}; t) &= \sum_{n=1}^{\infty} \sum_{p=1}^{\infty} [A_{np}(t) \mathbf{E}_{np}^{\text{TE}}(\mathbf{r}) - iB_{np}(t) \mathbf{E}_{np}^{\text{TH}}(\mathbf{r})]; \\ \mathbf{H}(\mathbf{r}; t) &= \sqrt{\varepsilon_a} \sum_{n=1}^{\infty} \sum_{p=1}^{\infty} [iA_{np}(t) \mathbf{H}_{np}^{\text{TE}}(\mathbf{r}) + B_{np}(t) \mathbf{H}_{np}^{\text{TH}}(\mathbf{r})], \end{aligned} \quad (2)$$

где неизвестные пока коэффициенты $A_{np}(t)$, $B_{np}(t)$ отражают временное поведение поля. При этом сами

функции \mathbf{E}_{np} , \mathbf{H}_{np} , как известно, образуют ортогональную систему и удовлетворяют уравнениям Максвелла (1):

$$\operatorname{rot} \mathbf{E}_{np} = -i \frac{\omega_{np}}{c} \mathbf{H}_{np}; \quad \operatorname{rot} \mathbf{H}_{np} = i \frac{\varepsilon_a \omega_{np}}{c} \mathbf{E}_{np} \quad (3)$$

с собственными частотами ω_{np} и выражаются через векторные сферические гармоники $\mathbf{M}_{np}(r, \theta, \varphi)$, $\mathbf{N}_{np}(r, \theta, \varphi)$:

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_{np}^{\text{TE}} &= c_{np}(x_{np}) \mathbf{M}_{np}(r, \theta, \varphi); \\ \mathbf{E}_{np}^{\text{TH}} &= d_{np}(x_{np}) \mathbf{N}_{np}(r, \theta, \varphi); \\ \mathbf{H}_{np}^{\text{TE}} &= d_{np}(x_{np}) \mathbf{N}_{np}(r, \theta, \varphi); \\ \mathbf{H}_{np}^{\text{TH}} &= c_{np}(x_{np}) \mathbf{M}_{np}(r, \theta, \varphi), \end{aligned} \quad (4)$$

где $x_{np} = \omega_{np} a_0 / c$ – резонансный параметр дифракции частицы радиуса a_0 , а масштабные коэффициенты c_{np} и d_{np} определяются из условия единичной нормировки векторных гармоник. Конкретные выражения для функций $\mathbf{M}_{np}(r, \theta, \varphi)$, $\mathbf{N}_{np}(r, \theta, \varphi)$, а также их основные свойства приведены, например, в [20].

Перед началом дальнейшего изложения сделаем ряд замечаний относительно формы и применимости разложений (2) для решения рассматриваемой задачи.

1. Основной особенностью диэлектрической частицы по сравнению с традиционными резонаторами с металлическими стенками является ее «открытость», означающая, что электромагнитное поле собственных мод не равно нулю на поверхности частицы, а существует и за ее пределами. Это приводит к тому, что собственные частоты такого резонатора ω_{np} описываются уже комплексными числами: $\omega_{np} = \omega'_{np} - i\omega''_{np}$, причем их действительная часть определяет частоту колебаний полей собственных мод, а мнимая часть несет информацию об амплитуде «уходящего» поля [18]. В связи с этим на больших расстояниях от частицы $r \gg 1$ гармоническая часть волны рассеяния $\exp\{i\omega_{np} r/c\}$, очевидно, приведет к неограниченному росту ее амплитуды. Поэтому, строго говоря, использование системы собственных функций (2) для описания полей в открытых резонаторах некорректно. Однако поскольку величина мнимой части частоты ω''_{np} определяется параметром радиационной (излучательной) добротности моды Q_{np}^R [9]: $\omega''_{np} \sim 1/Q_{np}^R$, характерные значения которого в прозрачных частицах микронных размеров, как правило, имеют порядков $Q_{np}^R \sim 10^6 \div 10^{15}$, то при $r \ll c/\omega''_{np}$ можно говорить о сходимости рядов (2) в рамках частичной области [21].

2. Представление электромагнитных полей в виде (2) имеет смысл только тогда, когда функции, по которым проводится разложение, сами являются известными. Применение в качестве производящих функций сферических вектор-гармоник (4) накладывает определенные ограничения на пространственный профиль диэлектрической проницаемости частицы, а именно полагается $\varepsilon_a = \text{const}$ при $r \leq a_0$. Наличие у ε_a пространственной изменчивости в пределах объема

частицы требует для выполнения разложения предварительного решения задачи на собственные функции такой системы, что само по себе является нетривиальной проблемой. Однако в некоторых случаях, например, в случае радиально-неоднородных частиц, состоящих из концентрических слоев с разными значениями ε_a , удается построить систему собственных функций, аналогичную (4), разве что более громоздкую [6, 22, 23].

Другое очевидное ограничение рассматриваемого подхода к решению задачи о дифракции световой волны на частице заключается в игнорировании частотной дисперсии диэлектрической проницаемости, поскольку сама форма разложения полей (2) при наличии зависимости $\varepsilon_a(\omega)$ вступает в противоречие с требованиями физической обоснованности собственных функций задачи (4). Следует заметить, что хотя это обстоятельство и сужает область применимости разложений (2), на практике достаточно редко встречаются такие задачи, когда существенным становится учет дисперсии ε_a , если только не захватываются области сильных спектральных резонансов вещества частицы.

3. Собственные частоты колебаний ω_{np} определяются из решения задачи Дирихле для сферической области V_0 (см., например, [18, 19]). В случае идеальной сферы они, как известно, помимо поляризации волны (ТЕ, ТН) характеризуются всего двумя индексами: номером моды n (угловой индекс по координате θ) и порядком p (радиальный индекс по координате r). В азимутальном направлении (по φ) собственные частоты сферы вырождены. Вследствие особенности сферических функций Бесселя, характеризующих радиальное поведение поля собственных колебаний сферы, точного аналитического выражения для ω_{np} получить не удастся. Известны только приближенные формулы [18, 24], полученные путем аппроксимации сферических функций Бесселя при больших значениях аргумента функцией Эйри, позволяющие рассчитать собственные частоты диэлектрической сферы.

4. Граничные условия на поверхности сферической частицы заключаются в непрерывности тангенциальных составляющих полей $E_{\theta,\varphi}$, $H_{\theta,\varphi}$ при переходе через поверхность:

$$E_{\theta,\varphi} = E_{\theta,\varphi}^s + E_{\theta,\varphi}^i; \quad H_{\theta,\varphi} = H_{\theta,\varphi}^s + H_{\theta,\varphi}^i, \quad (5)$$

где индексы «s» и «i» относятся соответственно к рассеянному и падающему полям. При этом, однако, нормальные компоненты полей терпят скачок, пропорциональный относительному показателю преломления $m = m_a/m_0$, где m_a , m_0 – комплексные показатели преломления частицы и окружающей среды соответственно. Данное обстоятельство не позволяет напрямую использовать разложения полей (2) под знаком rot. Вместо этого корректным приемом будет поиск разложения самих функций $\text{rot}\mathbf{E}(\mathbf{r}; t)$ и $\text{rot}\mathbf{H}(\mathbf{r}; t)$ по системе (4) и получение на этой основе уравнения для временных коэффициентов разложения.

Для упрощения изложения дальнейшее рассмотрение будем проводить для волн какой-либо одной поляризации, например ТЕ-волн и соответственно для коэффициентов $A_{np}(t)$. Заметим, что вследствие симметрии уравнений Максвелла итоговые выражения для $B_{np}(t)$ будут подобны.

Следуя [17], умножим первое из уравнений (1) справа на \mathbf{H}_{np}^* и проинтегрируем по объему частицы V_0 , учтя выражение (3), а также ортогональность и нормировку собственных функций:

$$\begin{aligned} \int_{V_0} (\text{rot}\mathbf{E} \cdot \mathbf{H}_{np}^*) d\mathbf{r} &= \int_{V_0} (\mathbf{E} \cdot \text{rot}\mathbf{H}_{np}^*) d\mathbf{r} + \\ &+ \int_{S_0} [\mathbf{E} \times \mathbf{H}_{np}^*] \cdot \mathbf{n}_r ds = -i \frac{\varepsilon_a \omega_{np}}{c} A_{np}(t) + \\ &+ \int_{S_0} [\mathbf{E} \times \mathbf{H}_{np}^*] \cdot \mathbf{n}_r ds = -\frac{\varepsilon_a}{c} \frac{d}{dt} A_{np}(t), \end{aligned} \quad (6)$$

где $d\mathbf{r} = r^2 \sin\theta dr d\theta d\varphi$; $ds = a_0^2 \sin\theta d\theta d\varphi$; \mathbf{n}_r – внешняя нормаль к поверхности частицы; S_0 – поверхность, ограничивающая объем V_0 . То же самое произведем и со вторым уравнением (1), только умножим его на \mathbf{E}_{np}^* :

$$\begin{aligned} \int_{V_0} (\text{rot}\mathbf{H} \cdot \mathbf{E}_{np}^*) d\mathbf{r} &= \int_{V_0} (\mathbf{H} \cdot \text{rot}\mathbf{E}_{np}^*) d\mathbf{r} + \int_{S_0} [\mathbf{H} \times \mathbf{E}_{np}^*] \cdot \mathbf{n}_r ds = \\ &= -\frac{\sqrt{\varepsilon_a} \omega_{np}}{c} A_{np}(t) + \int_{S_0} [\mathbf{H} \times \mathbf{E}_{np}^*] \cdot \mathbf{n}_r ds = \\ &= \frac{\varepsilon_a}{c} \frac{d}{dt} A_{np}(t) + \frac{4\pi\sigma}{c} A_{np}(t). \end{aligned} \quad (7)$$

Продифференцируем (7) по времени и вместо производной $\frac{d}{dt} A_{np}(t)$ подставим соответствующее ей выражение из (6). После перегруппировки слагаемых получим следующее уравнение для коэффициентов A_{np} :

$$\frac{d^2}{dt^2} A_{np}(t) + \frac{4\pi\sigma}{\varepsilon_a} \frac{d}{dt} A_{np}(t) + \omega_{np}^2 A_{np}(t) = \Pi_{np}(t), \quad (8)$$

где

$$\Pi_{np}(t) = -\frac{ic}{\varepsilon_a} \left[\int_{S_0} \left\{ \omega_{np} [\mathbf{E} \times \mathbf{H}_{np}^*] - i \frac{\partial}{\partial t} [\mathbf{H} \times \mathbf{E}_{np}^*] \right\} ds \right]. \quad (9)$$

Уравнение (8) по смыслу является уравнением колебаний, в котором вынуждающая сила представлена комбинацией поверхностных интегралов $\Pi_{np}(t)$. Определим их вид, для чего используем граничное условие (5). Тогда получим

$$\begin{aligned} \Pi_{np}(t) &= -\frac{ic}{\varepsilon_a} \left[\int_{S_0} \left\{ \omega_{np} [\mathbf{E}^s \times \mathbf{H}_{np}^*] - \right. \right. \\ &\left. \left. - i \frac{\partial}{\partial t} [\mathbf{H}^s \times \mathbf{E}_{np}^*] \right\} ds \right] + F_{np}^i(t). \end{aligned} \quad (10)$$

Здесь $F_{np}^i(t)$ имеет вид, аналогичный первому слагаемому, но вместо поля рассеянной волны в векторных произведениях стоит поле падающего излучения.

После несложных преобразований первое слагаемое в (10) выражается через радиационную добротность частицы Q_{np}^R на частоте собственной моды:

$$\Pi_{np}(t) = 2i\omega_{np}^2 A_{np}(t) \left(1 + \frac{i}{2Q_{np}^R} \right) + F_{np}^i(t), \quad (11)$$

где

$$Q_{np}^R = \omega_{np} W_{np} / P_{np}^R, \quad (12)$$

а запасенная энергия в моде W_{np} и усредненная мощность радиационных (излучательных) потерь через поверхность частицы P_{np}^R имеют следующее выражение:

$$W_{np} = \frac{1}{16\pi V_0} \int (\varepsilon_a \mathbf{E}_{np} \mathbf{E}_{np}^* + \mathbf{H}_{np} \mathbf{H}_{np}^*) d\mathbf{r}; \quad (13)$$

$$P_{np}^R = \frac{c}{8\pi} \operatorname{Re} \left\{ \int_{S_0} [\mathbf{E}_{np}^s \times (\mathbf{H}_{np}^s)^*] d\mathbf{s} \right\}. \quad (14)$$

Подставив (11) в (8), получим

$$\begin{aligned} & \frac{d^2}{dt^2} A_{np}(t) + \frac{\omega_{np}}{Q_{np}^R} \frac{d}{dt} A_{np}(t) + \\ & + \left[\omega_{np} \left(1 + \frac{i}{Q_{np}^R} \right) \right]^2 A_{np}(t) = F_{np}^i(t), \end{aligned} \quad (15)$$

где, подобно (12), добротность резонансной моды Q_{np}^a , обусловленная только тепловыми потерями в веществе частицы, выражается через мощность тепловых потерь P_{np}^a :

$$P_{np}^a = \int_{V_0} \frac{\sigma}{2} (\mathbf{E}_{np} \cdot \mathbf{E}_{np}^*) d\mathbf{r}. \quad (16)$$

Завершающим этапом осталось определение конкретного вида внешней силы $F_{np}^i(t)$, связанной с действием падающего излучения. Будем считать для определенности, что дифрагирующее на частице световое поле представляет собой плоскую циркулярно поляризованную волну, распространяющуюся вдоль оси z с временным профилем амплитуды, задаваемым функцией

$$f(t) = \tilde{f}(t) \exp\{i\omega_0 t\}, \quad (17)$$

где $\tilde{f}(t)$ – медленно меняющаяся функция времени, т.е. с учетом запаздывания поля в точке с координатой z имеем:

$$\mathbf{E}^i(\mathbf{r}; t) = E_0 (\mathbf{e}_x + i\mathbf{e}_y) \tilde{f} \left(t - \frac{z+a_0}{c} \right) \exp\{i\omega_0 t - ik_0(z+a_0)\}, \quad (18)$$

Здесь $\mathbf{e}_x, \mathbf{e}_y$ – единичные векторы; E_0 – амплитуда волны; $k_0 = \omega_0/c$. Система координат расположена в центре частицы радиусом a_0 .

Перейдем в (18) от смещенного времени к реальному, для чего применим преобразование Фурье и воспользуемся известным разложением плоской волны по сферическим гармоникам [20]. Тогда получим

$$\begin{aligned} \mathbf{E}^i(\mathbf{r}; t) &= \frac{E_0}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} G(\omega - \omega_0) e^{i\omega t - ika_0} \sum_n R_n [\mathbf{M}_{1n}^{(1)}(kr) - \\ & \quad - i\mathbf{N}_{1n}^{(1)}(kr)] d\omega; \\ \mathbf{H}^i(\mathbf{r}; t) &= \sqrt{\varepsilon_a} \frac{E_0}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} G(\omega - \omega_0) e^{i\omega t - ika_0} \sum_n R_n [i\mathbf{N}_{1n}^{(1)}(kr) + \\ & \quad + \mathbf{M}_{1n}^{(1)}(kr)] d\omega, \end{aligned} \quad (19)$$

где $R_n = i^n(2n+1)/[n(n+1)]$; $k = \omega/c$; $G(\omega - \omega_0)$ – трансформанта Фурье функции $f(t)$, а выражения $\mathbf{M}_{1n}^{(1)}, \mathbf{N}_{1n}^{(1)}$ есть сферические вектор-гармоники при значении азимутального индекса m , равном единице. По-прежнему будем рассматривать только ТЕ-моды. Заметим, что тип поляризации исходной волны влияет только на конкретный вид функций $\mathbf{M}_{1n}^{(1)}, \mathbf{N}_{1n}^{(1)}$ [20].

Очевидно, что в данном случае вследствие взаимной ортогональности сферических гармоник из всей суммы в (19) останутся только слагаемые с индексом n , равным индексу рассматриваемой моды внутреннего поля, и для «внешней» силы следует выражение

$$F_{np}^i(t) = \frac{E_0}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} G(\omega - \omega_0) e^{i\omega t} K_{np}^n(\omega; \omega_{np}) d\omega, \quad (20)$$

где коэффициент $K_{np}^n(\omega; \omega_{np})$ учитывает степень возбуждения моды внутреннего поля соответствующей ей модой внешнего поля:

$$\begin{aligned} K_{np}^n(\omega; \omega_{np}) &= \frac{ic^2 R_n e^{-ika_0}}{V_0 \varepsilon_a k c_{np}} \left[\psi_n(ka_0) \psi_n^*(n_a k_{np} a_0) - \right. \\ & \quad \left. - \frac{1}{n_a} \frac{\omega}{\omega_{np}} \psi_n'(ka_0) \psi_n^*(n_a k_{np} a_0) \right]. \end{aligned}$$

Для дальнейшего анализа удобно модифицировать уравнение (15), приведя его к каноническому виду уравнения вынужденных колебаний:

$$\frac{d^2}{dt^2} A_{np}(t) + 2\Gamma_{np} \frac{d}{dt} A_{np}(t) + \omega_{np}^2 A_{np}(t) = F_{np}^i(t), \quad (21)$$

которое следует из (15) при коэффициенте затухания

моды $\Gamma_{np} = \frac{\omega_{np}}{2Q_{np}^R}$ и $Q_{np}^R \gg 1$. В (21) введен параметр

суммарной добротности частицы-резонатора

$$\frac{1}{Q_{np}} = \frac{1}{Q_{np}^a} + \frac{1}{Q_{np}^R}, \quad (22)$$

учитывающий общие потери моды на поглощение и излучение световой волны.

В общем виде частное решение неоднородного уравнения (21), отражающее только колебания под действием «внешней» силы, записывается как

$$A_{np}(t) = \frac{\exp\{-i\Gamma_{np}t\}}{2i\hat{\omega}_{np}} E_0 \left[\exp\{i\hat{\omega}_{np}t\} \times \int_0^t F_{np}^i(t') \exp\{-i(\hat{\omega}_{np} + i\Gamma_{np})t'\} dt' \right] - \frac{\exp\{-i\Gamma_{np}t\}}{2i\hat{\omega}_{np}} E_0 \left[\exp\{-i\hat{\omega}_{np}t\} \times \int_0^t F_{np}^i(t') \exp\{i(\hat{\omega}_{np} - i\Gamma_{np})t'\} dt' \right], \quad (23)$$

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

Зададим гауссовский временной профиль импульса излучения

$$\tilde{f}(t) = \exp\left\{-\frac{(t-t_0)^2}{t_p^2}\right\}.$$

При этом, как известно:

$$G(\omega - \omega_0) = \frac{4\pi\sqrt{\pi}}{\Delta\omega_p} \exp\left\{-4\pi^2 \frac{(\omega - \omega_0)^2}{(\Delta\omega_p)^2} - i\omega t_0\right\}, \quad (24)$$

где t_0, t_p – параметры; $\Delta\omega_p = 4\pi/t_p$ – спектральная полуширина импульса. Подставим (24) в (23) и, применяя теорему о среднем, получим выражение для временной зависимости амплитудного коэффициента моды внутреннего поля:

$$A_{np}(\tau) \cong \frac{\sqrt{\pi} K_{np}^n(\bar{\omega}; \omega_{np}) E_0}{i\hat{\omega}_{np} \Delta\omega_p} \exp\{-i\omega_0 t_0\} \times \exp\left\{-4\pi^2 \frac{(\delta\omega_{np} + i\Gamma_{np})^2}{(\Delta\omega_p)^2}\right\} \exp\{\tau(i\hat{\omega}_{np} - \Gamma_{np})\} \times \left[\operatorname{erf}\left(\frac{\tau + 2t_0}{t_p} - \frac{4\pi}{\Delta\omega_p} \left[\Gamma_{np} - i\frac{\delta\omega_{np}}{2} \right] \right) + 1 \right] + O\left(\exp\left\{-\frac{\omega_{np}^2}{(\Delta\omega_p)^2}\right\}\right). \quad (25)$$

Здесь $\tau = t - t_0$; $\delta\omega_{np} = \omega_0 - \hat{\omega}_{np}$; $\bar{\omega}$ – некоторая частота внутри спектрального контура импульса.

Проанализируем данное выражение. Как видно, временная зависимость амплитуды собственного колебания определяется функцией экспоненциального спада, в показателе которой стоит коэффициент затухания моды Γ_{np} , а также интегралом вероятностей от комплексного аргумента. Его мнимая часть связана с

расстройкой частоты моды от частоты падающего излучения, а действительная часть дает характерное время выхода амплитуды на максимальное значение τ_m , которое, исходя из свойств $\operatorname{erf}(x)$, можно определить как

$$\tau_m \approx t_p^2 \left(\frac{1}{t_p} + \frac{1}{\tau_{np}} \right) = t_p(1 + \gamma), \quad \text{при } \gamma \leq 1, \\ \tau_m \approx \tau_{np}, \quad \text{при } \gamma \gg 1, \quad (26)$$

где $\tau_{np} = 1/\Gamma_{np}$ – характерное время жизни моды; $\gamma = (t_p/\tau_{np})$. Полученное соотношение свидетельствует о том, что время, когда амплитуда собственной моды частицы достигает своего максимума, зависит от отношения характерных времен длительности лазерного импульса и времени жизни моды γ и определяется, в общем случае, наименьшим из них.

Сама величина максимальной (во времени) амплитуды собственного колебания с сокращением длительности импульса изменяется по закону

$$A_{\max}(\gamma) \sim \gamma \exp\{-\gamma\},$$

что отражает уменьшение доли спектральной энергии импульса, расходуемой на возбуждение выбранной резонансной моды. В другом пределе, в области длинных импульсов $\gamma \gg 1$, из (23) имеем соответствующее решение для непрерывного излучения (запаздывание здесь не существенно):

$$A_{np}(t) \cong \frac{K_{np}^n E_0}{2\hat{\omega}_{np}(\delta\omega_{np} - i\Gamma_{np})} \times \exp\{it(\hat{\omega}_{np} + i\Gamma_{np})\} [\exp\{it(\delta\omega_{np} - i\Gamma_{np})\} - 1] \quad (27)$$

и амплитуда колебания достигает своего максимального значения

$$A_{\max}(\infty) = K_{np}^n E_0 / (2\hat{\omega}_{np} \Gamma_{np}).$$

Возвращаясь к выражению (25), необходимо также отметить, что на амплитуду поля собственной моды оказывает влияние и ее частотное положение относительно спектра исходного импульса излучения. Чем больше частотная расстройка моды $\delta\omega_{np}$, тем хуже происходит ее возбуждение. Если спектр импульса достаточно широк, т.е. $\Delta\omega_p > \delta\omega_{np}$, и создаются благоприятные условия для возбуждения нескольких собственных мод частицы, то результирующая временная зависимость амплитуды поля будет определяться суперпозицией данных колебаний, имея характерный вид биений.

На рис. 1 приведена временная зависимость относительной (нормированной на максимальное значение) интенсивности внутреннего поля $I(\tau)$, рассчитанной с учетом (25) в произвольной точке внутри частицы. Рассмотрено два модельных варианта возбуждения мод: резонанс одной моды и нерезонансное возбуждение трех соседних мод частицы с разными резонансными характеристиками (амплитуды всех мод считались равными единице): $Q_1 < Q_2 < Q_3$; $\omega_1 < \omega_2 < \omega_3$. Видно, что в последнем случае зависимость $I(\tau)$ при $\tau > t_p$ имеет два характерных участка.

Быстро затухающие моды формируют начальный участок резкого падения интенсивности поля, в то время как мода с наибольшим значением добротности (Q_3) определяет длинный хвост в данной зависимости, временная протяженность которого зависит от времени жизни данной моды τ_3 . Очевидно, что при выполнении соотношения $t_p < \tau_3$ оптическое поле в частице будет существовать и после того, как закончится исходный импульс излучения.

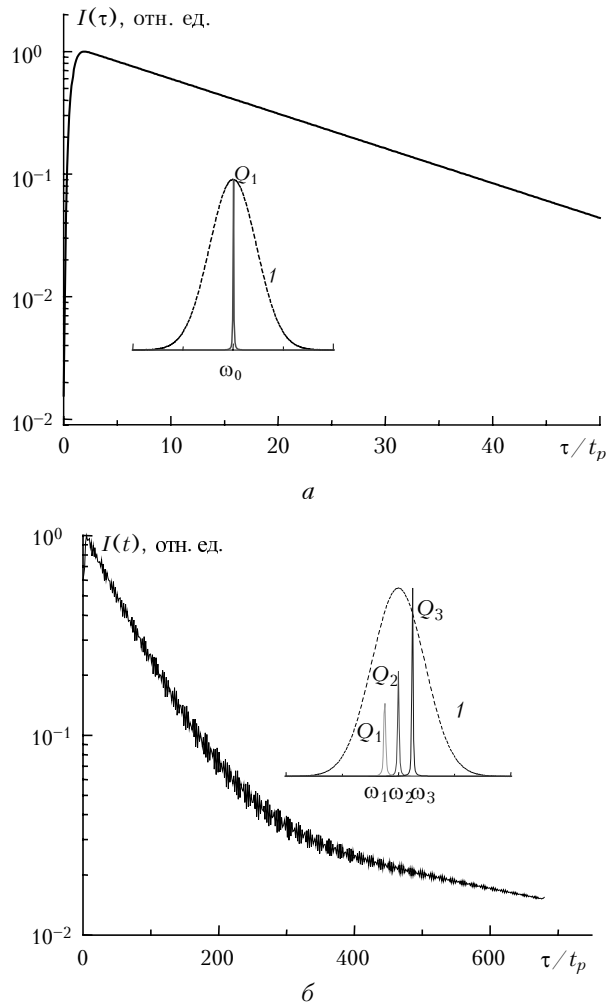


Рис. 1. Модельная зависимость интенсивности внутреннего поля сферической частицы при возбуждении одной резонансной моды (а) и трех мод (б). Спектральное положение мод схематически показано на врезках. Кривая 1 – спектр исходного импульса излучения

Последнее утверждение, напрямую следуя из полученного решения для коэффициентов разложения оптического поля (25), в то же время является несколько необычным для линейной теории дифракции света на сферической частице, традиционно рассматривающей процесс рассеяния в стационарных условиях: $t_p \gg \tau_{np}$. Это позволяет говорить о том, что нестационарное упругое рассеяние света на частице носит резонансный характер тем более выраженный, чем короче импульс излучения. Поскольку характерные времена жизни собственных мод в частицах с

малым поглощением могут достигать $\sim 10^{-8} \div 10^{-9}$ с [9], то рассеяние пико- и фемтосекундных лазерных импульсов можно считать резонансным.

В случае дифракции на частице длинных импульсов $t_p \gg \tau_{np}$, t_0 поле ТЕ-моды внутри частицы с учетом выражения (27) запишется как

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}; t) = E_0 \exp\{i\omega_0 t\} \sum_{n,p} \frac{K_{np}^n c_{np}}{2\hat{\omega}_{np}(\delta\omega_{np} - i\Gamma_{np})} \mathbf{M}_{np}(\mathbf{r}). \quad (28)$$

В то же время теория Ми в аналогичном случае, как известно, дает

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}; t) = E_0 \exp\{i\omega_0 t\} \sum_n c_n^{Mie}(x_a) \mathbf{M}_n(\mathbf{r}). \quad (29)$$

Здесь c_n^{Mie} – коэффициенты Ми [20]. Сравнивая (28) и (29), получим

$$c_n^{Mie}(x_a) = \sum_p c_n^{Mie}(x_{np}) \frac{\Gamma_{np}}{(\delta\omega_{np} - i\Gamma_{np})}, \quad (30)$$

где $c_n^{Mie}(x_{np}) = K_{np}^n c_{np} / (2\Gamma_{np} \hat{\omega}_{np})$ – резонансное значение коэффициента Ми при $\omega_0 = \hat{\omega}_{np}$.

Выражение (30) показывает связь между использованным выше разложением электромагнитного поля по собственным модам частицы (так называемый ряд Фурье–Бесселя [19]) и традиционным представлением поля как суперпозиции парциальных волн в теории Дебая. Из данного выражения следует, что информация о собственных резонансах частицы напрямую заложена в коэффициенты Ми в виде бесконечной суммы функций резонансных контуров. Этот факт иллюстрирует рис. 2, где приведен модуль одного из коэффициентов Ми при изменении параметра дифракции частицы x_a . Численный расчет проведен по формуле (30).

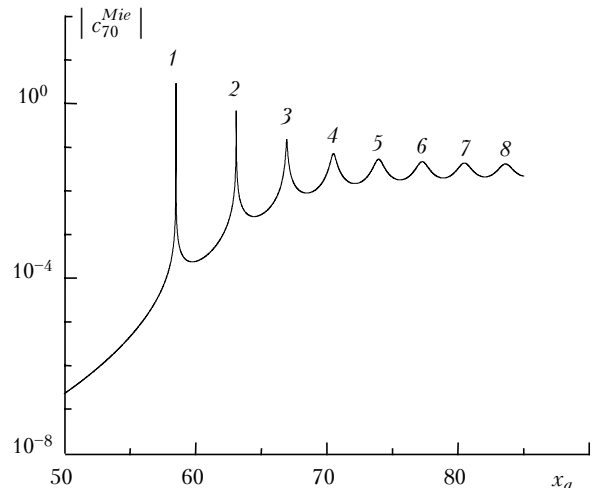


Рис. 2. Зависимость модуля коэффициента Ми $|c_{70}^{Mie}|$ от параметра дифракции частицы $x_a = 2\pi a_0 / \lambda$. Цифрами показаны порядки резонансных мод

Проведенное выше рассмотрение закономерностей переходных процессов дифракции световой волны

на частице было бы неполным без обсуждения временной эволюции электромагнитного поля рассеянной волны. Прямое использование той же методики разложения рассеянного поля по собственным функциям частицы-резонатора вида (2), что и для внутреннего поля, очевидно, является некорректным, поскольку сама область определения резонансных мод ограничена поверхностью, близкой к поверхности частицы (см. замечания на с. 685). Следовательно, для описания поля на произвольном удалении от частицы с помощью функций (4) нет достаточных оснований.

Выход из этой проблемы заключается в переходе от задачи дифракции волны на сферическом препятствии к задаче излучения волны сферическим объемом с заданным (известным) распределением электромагнитного поля. Следуя работам [4,9], кратко рассмотрим основные этапы решения данной задачи с помощью так называемого метода интегриродифференциального уравнения.

Исследуется уравнение Гельмгольца для вектора Герца $\mathbf{\Pi}_e(\mathbf{r}; t)$ (можно также рассматривать аналогичное уравнение и для векторного потенциала поля [9]):

$$\Delta \mathbf{\Pi}_e(\mathbf{r}; t) - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathbf{\Pi}_e(\mathbf{r}; t) = -4\pi \mathbf{P}(\mathbf{r}; t), \quad (31)$$

которое следует из уравнений Максвелла (1), а сам вектор $\mathbf{\Pi}_e(\mathbf{r}; t)$ определен через векторы электромагнитного поля как

$$\begin{aligned} \mathbf{E}(\mathbf{r}; t) &= -\frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathbf{\Pi}_e(\mathbf{r}; t) + \nabla \text{div} \mathbf{\Pi}_e(\mathbf{r}; t); \\ \mathbf{H}(\mathbf{r}; t) &= -\frac{1}{c} \frac{\partial}{\partial t} \text{rot} \mathbf{\Pi}_e(\mathbf{r}; t). \end{aligned} \quad (32)$$

Здесь

$$\mathbf{P}(\mathbf{r}; t) = \left[\frac{\varepsilon_a - 1}{4\pi} - i \frac{\sigma}{\omega} \right] \mathbf{E}(\mathbf{r}; t)$$

– поляризация вещества. Решение (31) известно и может быть записано в виде интеграла запаздывания в точке пространства с радиусом-вектором \mathbf{r} :

$$\mathbf{\Pi}_e(\mathbf{r}; t) = \int_{V_0} \frac{\mathbf{P}(\mathbf{r}'; t)}{R} \exp\{-ikR\} d\mathbf{r}', \quad (33)$$

где $R = |\mathbf{r} - \mathbf{r}'|$ – расстояние между точкой наблюдения и излучающим элементарным источником. Интегрирование проводится по всему объему, занятому источниками рассеянной волны (объему частицы V_0).

Для полного поля вне частицы $\mathbf{E}(\mathbf{r}; t)$ из (33) и (32) следует выражение

$$\begin{aligned} \mathbf{E}(\mathbf{r}; t) &= \mathbf{E}^i(\mathbf{r}; t) + \mathbf{E}^s(\mathbf{r}; t) = \\ &= \mathbf{E}^i(\mathbf{r}; t) + \text{rot} \text{rot} \int_{V_0} \frac{(\varepsilon_a - 1) \mathbf{E}(\mathbf{r}'; t)}{4\pi R} \exp\{-ik_a R\} d\mathbf{r}', \end{aligned} \quad (34)$$

где $k_a = m_a k$, m_a – комплексный показатель преломления вещества частицы. В дальней зоне излучения

($k_a r \gg 1$; $\mathbf{r} \gg \mathbf{r}'$), учитывая, что

$$R = \sqrt{r^2 - (r')^2 - 2rr' \cos \vartheta} \cong r - r' \cos \vartheta,$$

где ϑ – угол между векторами \mathbf{r} и \mathbf{r}' , можно упростить выражение (34), поменяв местами операции интегрирования и дифференцирования. В результате поле рассеянного излучения $\mathbf{E}^s(\mathbf{r}; t)$ представляется как волна, образованная суперпозицией полей, созданных поляризованными элементами объема частицы [9]:

$$\begin{aligned} \mathbf{E}^s(\mathbf{r}; t) &\cong \frac{k^2(\varepsilon_a - 1)}{4\pi r} \exp\{ikr\} \times \\ &\times \int_{V_0} \mathbf{E}(\mathbf{r}'; t - r/c) \exp\{ik_a r' \cos \vartheta\} d\mathbf{r}'. \end{aligned} \quad (35)$$

Как видно, ключевым моментом в данном подходе является знание структуры поля внутри частицы $\mathbf{E}(\mathbf{r}'; t)$, которое как раз и дается рядами (2). Подставим (2) в (35) и запишем окончательное выражение для электрического поля вдали от частицы (ТЕ-мода):

$$\mathbf{E}^s(\mathbf{r}; t) \cong \frac{k^2(\varepsilon_a - 1)}{4\pi r} \exp\{ikr\} \sum_n \sum_p A_{np}(t - r/c) I_{np}^{\text{TE}}(\theta, \varphi), \quad (36)$$

где интегралы

$$I_{np}^{\text{TE}}(\theta, \varphi) = \int_{V_0} \mathbf{E}_{np}^{\text{TE}}(\mathbf{r}') \exp\{ik_a r' \cos \vartheta\} d\mathbf{r}'$$

дают угловое поведение рассеянного поля. Из данного выражения следует, что временная зависимость внутреннего и рассеянного полей в рамках отдельной моды одна и та же. Однако поскольку каждая мода входит в сумму (36) со своим коэффициентом I_{np}^{TE} ,

то временная зависимость результирующего (полного) рассеянного поля, вообще говоря, может быть отличной от временного поведения поля внутри частицы. И только лишь тогда, когда все модовые коэффициенты A_{np} зависят от времени одинаково, например, в случае длинных импульсов (27), временную часть можно вынести за знак суммирования.

На рис. 3 приведены некоторые результаты численного расчета, проведенного по методике [13], зависимости относительной интенсивности оптических полей внутри и вне капли воды $I(\tau)$ (в дальней зоне) при дифракции на ней импульсного излучения с различной длительностью. Интенсивность внутреннего поля вычислялась в точке абсолютного максимума поля при следующем значении сферических координат: $r = 0,92 a_0$; $\theta = \pi$; $\varphi = 0$. Нормировка интенсивности полей производилась на соответствующий максимальный по времени уровень. Полагалось, что импульсы имеют гауссов временной профиль и длину волны $\lambda = 0,81$ мкм, типичную для фемтосекундных лазеров на кристаллах Ti:Sapphire [25]. Для сравнения на рис. 4 показаны те же зависимости, но в слу-

чае длинного прямоугольного импульса, с которыми оперирует теория Ми.

Отчетливо прослеживается различие во временном поведении полей при сверхкоротком облучении

капли и, следовательно, существенно резонансном характере рассеяния света. В то же время временной ход интенсивности внутреннего и рассеянного полей, показанный на рис. 4, одинаков.

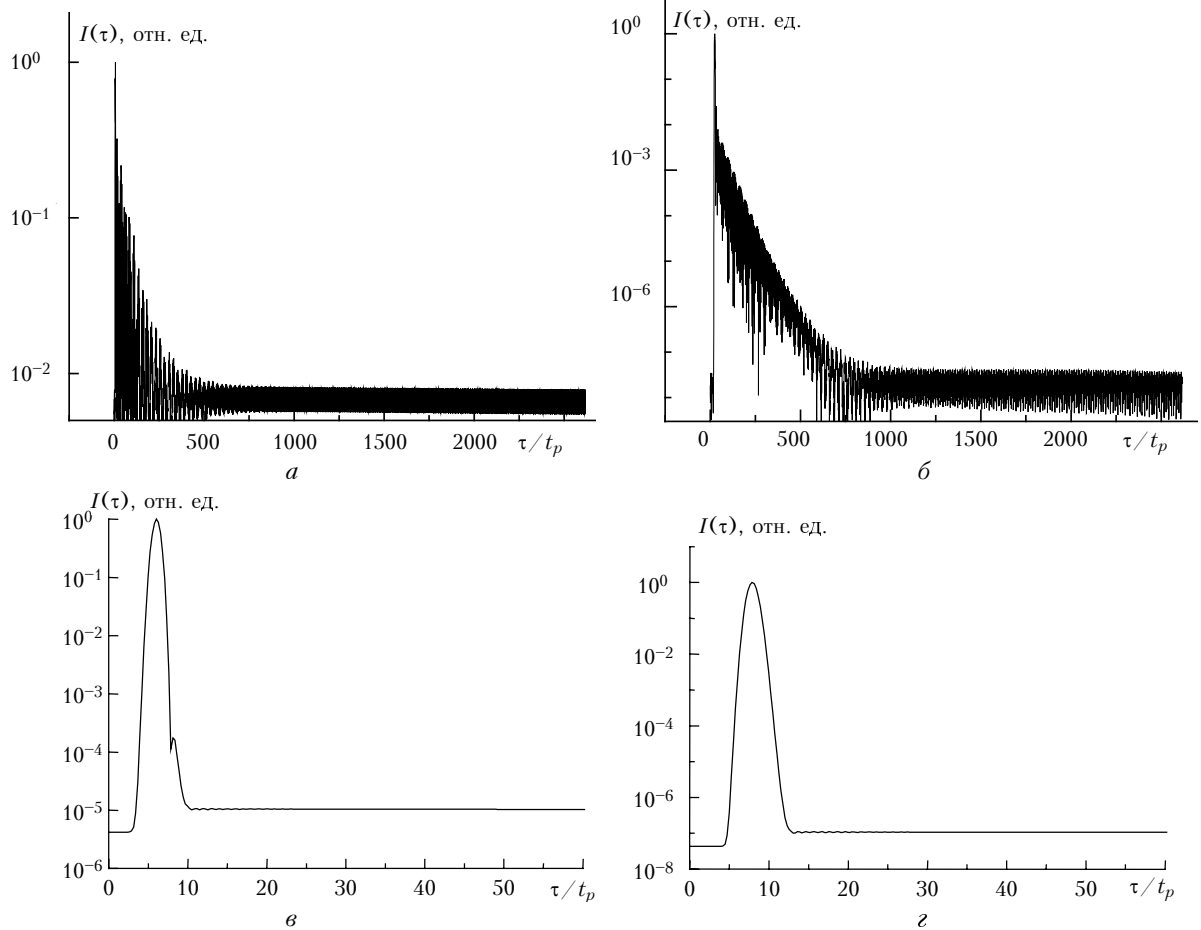


Рис. 3. Зависимость относительной (нормированной на максимальное значение) интенсивности внутреннего оптического поля (*а, в*) и поля волны обратного рассеяния (*б, г*) от безразмерного времени τ/t_p при рассеянии на водной капле с $a_0 = 10$ мкм импульсного излучения с $\lambda = 0,81$ мкм и длительностью $t_p = 100$ фс (*а, б*) и 1 пс (*в, г*)

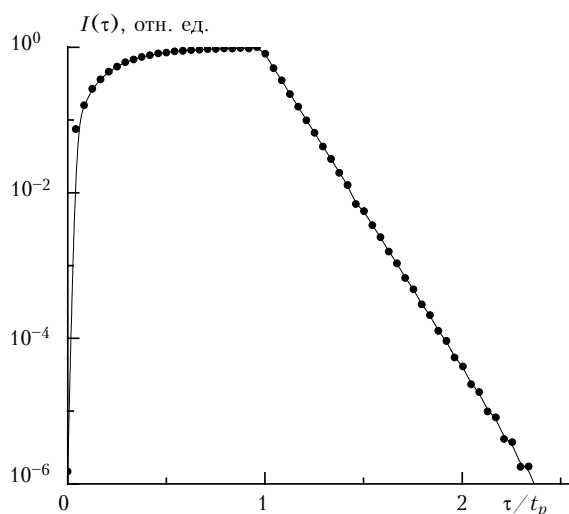


Рис. 4. То же, что и на рис. 3, при резонансном рассеянии прямоугольного импульса излучения (TE_{100,1}-мода) с $t_p = 1$ мкс. Интенсивность внутреннего поля показана сплошной линией, интенсивность рассеянного поля – точками

Таким образом, можно сделать следующие выводы.

1. Применительно к задаче нестационарного линейного упругого рассеяния света на диэлектрической сферической частице развит теоретический подход, заключающийся в представлении оптических полей рассеянного излучения в виде разложения по собственным функциям стационарной задачи, где коэффициенты разложения определяют временное поведение поля и удовлетворяют неоднородным уравнениям колебаний.

2. Изучение переходных процессов при формировании оптических полей в прозрачной сферической частице, проведенное на основе данного подхода, показало, что нестационарность рассеяния импульса проявляется, прежде всего, во временном сдвиге максимума внутреннего поля относительно профиля исходного импульса и затягивании его заднего фронта. Указанное поведение нестационарных полей связано с резонансным характером процесса рассеяния световой волны на частице, когда возбуждаются резонансные колебательные моды внутреннего оптического поля,

времена жизни которых могут быть сравнимы или значительно больше длительности лазерного импульса.

3. Основными параметрами, влияющими на переходную стадию формирования внутреннего оптического поля частицы, являются длительность лазерного импульса и характерные времена жизни резонансных мод. При этом время нарастания интенсивности внутреннего поля частицы зависит от отношения данных времен и определяется наименьшим из них. Характерное время спада интенсивности дается временем жизни наиболее высокодобротной из возбуждаемых резонансных мод. Нестационарность рассеяния присуща импульсам, длительность которых не превышает характерного времени жизни мод внутри резонатора-микрочастицы. Для пикосекундных импульсов такое рассеяние возникает в редких случаях, но для фемтосекундного импульса оно проявляется всегда для оптически «больших» частиц.

Авторы выражают признательность член-корр. РАН С.Д. Творогову за интерес к работе и ценные рекомендации.

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

1. *Debye P.* Der Lichtdruck auf Kugeln von beliebigem Material // *Ann. Phys. (Leipzig)*. 1909. S. 57–136.
2. *Mie G.* Beiträge zur Optik trüber Medien, speziell kolloidaler Metallösungen // *Ann. Phys. (Leipzig)*. 1908. Bd 25. N. 25. S. 377–445.
3. *Ван де Хюлст Г.* Рассеяние света малыми частицами. М.: Изд-во иностр. лит-ры, 1961. 536 с.
4. *Шифрин К.С.* Рассеяние света в мутной среде. М.; Л.: ГИТТЛ, 1951. 288 с.
5. *Kerker M.* The scattering of light and other electromagnetic radiation. New York: Academic Press, 1969. 619 p.
6. *Пришивалко А.П.* Оптические и тепловые поля внутри светорассеивающих частиц. Минск: Наука и техника, 1983. 190 с.
7. *Rairoux P., Schillinger H., Niedermeier S., Rodriguez M., Ronneberger F., Sauerbrey R., Stein B., Waite D., Wedekind C., Wille H., Woste L.* Remote sensing of the atmosphere using ultrashort laser pulses // *Appl. Phys. B*. 2000. V. 71. P. 573–580.
8. *Fuchs R., Kliewer K.L.* Optical modes of vibration in an ionic crystal sphere // *J. Opt. Soc. Amer.* 1968. V. 58. № 3. P. 319–330.
9. *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.

A.A. Zemlyanov, Yu.E. Geints. Nonstationary elastic linear light scattering by spherical microparticles.

To solve the problem of nonstationary elastic light scattering by a dielectric spherical particle, a theoretical approach is developed. The approach proposes a representation of optical fields of the scattering radiation as an expansion in terms of eigenfunctions of the stationary problem, when the expansion coefficients determine the temporal behavior of the field and comply with inhomogeneous equations for oscillations. Transient processes at formation of optical fields in a microparticle are under study. It is shown that the nonstationary of a pulse scattering manifests itself, first of all, in time shift of the maximum of internal field relative to the profile of the initial pulse and in time delay of its trailing edge. Such a behavior of nonstationary fields is connected with resonance character of the process of elastic light scattering by a particle, when vibrational eigenmodes of the internal optical field are excited, the life times of which are comparable or much greater than the laser pulse duration.

10. *Калиненко А.Н., Творогов С.Д.* Рассеяние импульса света на сферических частицах с большим показателем преломления // *Ж. прикл. спектроскопии*. Т. XX. Вып. 1. С. 140–145.
11. *Chowdhury D.Q., Hill S.C., Barber P.W.* Time dependence of internal intensity of a dielectric sphere on and near resonance // *J. Opt. Soc. Amer.* B. 1992. V. 9. № 8. P. 1364–1373.
12. *Shifrin K.S., Zolotov I.G.* Nonstationary scattering of electromagnetic pulses by spherical particles // *Appl. Opt.* 1995. V. 34. № 3. P. 552–558.
13. *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.
14. *Yee K.S.* Numerical Solution of Initial Boundary Value Problems Involving Maxwell's Equations in Isotropic Media // *IEEE Trans. Antennas and Propag.* 1966. V. AP-14. № 3. P. 302–307.
15. *Yang P., Liou K.N., Mishchenko M.I., and Bo-Cai Gao.* Efficient finite-difference time-domain scheme for light scattering by dielectric particles: application to aerosols // *Appl. Opt.* 2000. V. 39. № 21. P. 3727–3737.
16. *Землянов А.А., Гейнц Ю.Э.* Нелинейные эффекты вынужденного рассеяния света в сферических частицах // *Оптика атмосф. и океана*. 1999. Т. 12. № 10. С. 935–944.
17. *Ханин Я.И.* Динамика квантовых генераторов // *Квант. радиофиз.* Т. 2. М.: Сов. радио, 1975. 496 с.
18. *Вайнштейн Л.А.* Открытые резонаторы и открытые волноводы. М.: Сов. радио, 1966. 518 с.
19. *Стрэттон Дж.А.* Теория электромагнетизма. М.; Л.: ОГИЗ, 1948. 540 с.
20. *Борен К., Хафмен Д.* Поглощение и рассеяние света малыми частицами. М.: Мир, 1986. 660 с.
21. *Никольский В.В.* Вариационные методы для внутренних задач электродинамики. М.: Наука, 1967. 460 с.
22. *Aden A.L., Kerker M.* Scattering of electromagnetic waves from two concentric spheres // *J. Appl. Phys.* 1951. V. 22. № 9. P. 1242–1245.
23. *Kaiser T., Lange S., Schweiger G.* Structural resonances in a coated sphere: investigation of the volume-averaged source function and resonance position // *Appl. Opt.* 1994. V. 33. № 33. P. 7789–7797.
24. *Lam C.C., Leung P.T., Young R.* Explicit asymptotic formulas for the position, widths and strengths of resonances in the Mie scattering // *J. Opt. Soc. Amer.* B. 1992. V. 9. № 9. P. 1585–1592.
25. *Kasparian J., Wolf J.-P.* A new transient SRS analysis method of aerosols and application to a nonlinear femtosecond lidar // *Opt. Commun.* 1998. V. 152. № 3. P. 355–360.