

Нелинейное поглощение фемтосекундных лазерных импульсов ($\lambda = 800$ нм) атмосферным воздухом и водяным паром

А.М.Киселев, Ю.Н.Пономарев, А.Н.Степанов, А.Б.Тихомиров, Б.А.Тихомиров

Получены количественные данные о сечении нелинейного поглощения для воздуха и водяного пара фемтосекундных лазерных импульсов, генерируемых Ti:сапфировым лазером. При калибровке оптико-акустического спектрометра по расчетной величине линейного поглощения лазерных импульсов (длина волны излучения 800 нм, ширина спектра 17.7 нм) водяным паром измеренное сечение нелинейного поглощения этого излучения для водяного пара (σ_2^g) составило $(2.6 \pm 0.4) \times 10^{-55}$ см⁴·с, для воздуха (σ_2^g) – $(8.7 \pm 1.0) \times 10^{-56}$ см⁴·с. Измерения поглощения этих фемтосекундных импульсов с помощью оптико-акустического детектора, прокалиброванного по известному поглощению импульсного излучения рубинового лазера водяным паром в атмосферном воздухе, позволили оценить сечение нелинейного поглощения для воздуха σ_2^g , составившее $(8.2 \pm 0.9) \times 10^{-56}$ см⁴·с.

Ключевые слова: фемтосекундный лазер, сечение нелинейного поглощения, оптико-акустический метод.

1. Введение

Результаты обширных фундаментальных исследований взаимодействия мощных фемтосекундных лазерных импульсов с газами находят применение в задачах дистанционной (лидарной) диагностики атмосферы [1] и удаленных объектов (в том числе в терагерцевом диапазоне) [2] и управления высоковольтными электрическими разрядами [3]. Для моделирования распространения фемтосекундных лазерных импульсов в атмосфере требуются количественные данные о характеристиках поглощения этих импульсов атмосферным воздухом и его молекулярными составляющими. В большинстве экспериментов используется Ti:сапфировый лазер, генерирующий высокоинтенсивное фемтосекундное излучение на длине волны $\lambda_0 \approx 800$ нм с шириной спектра $\Delta\lambda \sim 20$ нм. Обычное (не зависящее от интенсивности) поглощение излучения с таким спектральным составом в атмосферном воздухе определяется поглощением на колебательно-вращательных переходах молекул водяного пара. Расчеты, сделанные с использованием базы данных HITRAN [4], показывают, что поглощение водяным паром невелико и характеризуется эффективным коэффициентом поглощения $k_{\text{eff}} \sim 1.5 \times 10^{-8}$ см⁻¹·мбар⁻¹. Значительно больший вклад в ослабление фемтосекундных импульсов при их распространении в атмосфере может вносить нелинейное поглощение фемтосекундных импульсов основными молекулярными составляющими атмосферного воздуха (азотом, кислородом и водяным паром) [5]. Количественные данные о характеристиках нелинейного поглощения фемтосекундных импульсов Ti:сапфирового лазера атмосферным воздухом в литературе отсутствуют.

Целью настоящей работы являются измерения сечений нелинейного поглощения фемтосекундного излучения с длиной волны $\lambda_0 = 800$ нм атмосферным воздухом и водяным паром.

2. Техника и методика измерений

Схема оптико-акустического (ОА) спектрометра, созданного на основе Ti:сапфирового лазера [6], представлена на рис.1. Лазер позволяет получать фемтосекундные импульсы излучения длительностью $\tau = 50 - 500$ фс с частотой повторения 10 Гц. Радиус пучка с гауссовым распределением интенсивности излучения на выходе из лазера составляет 5 мм. Спектр излучения фемтосекундных импульсов, регистрируемый с помощью монохроматора и ПЗС-линейки с разрешением 0.04 нм, имеет ширину на полувысоте $\Delta\lambda = 17.7$ нм с максимумом на длине волны $\lambda_0 = 800$ нм. Энергия фемтосекундных импульсов изменяется поляризационным аттенюатором и измеряется с помощью калиброванного фотодиода.

ОА детектор [7] содержит цилиндрическую ячейку диаметром 20 см и длиной 25 см, на торцах которой для ввода и вывода излучения установлены оптические окна из MgF₂ толщиной 2 мм. Излучение лазера заводится в ячейку с помощью плоского и сферического (фокусное расстояние 86.5 см) диэлектрических зеркал. Ячейка размещается таким образом, чтобы фокус сферического зеркала находился за ней, а радиус лазерного пучка по половине интенсивности w_0 в плоскости регистрации акустического сигнала составлял 2.5 мм (см. рис.1).

Для повышения чувствительности детектора в ячейку помещен акустический концентратор, состоящий из двух параболических зеркал (рис.2). Перед измерениями производится юстировка ОА детектора. Ось лазерного пучка совмещается с фокальной осью параболического цилиндра. Акустическая волна, возникающая в облучаемом объеме поглощающего газа, после отражения от поверхности параболического цилиндра направляется на параболоид вращения. В фокусе параболоида вращения находится конденсаторный микрофон, регистрирующий усиленный сигнал давления.

А.М.Киселев, А.Н.Степанов. Институт прикладной физики РАН, Россия, 603950 Н.Новгород, ул. Ульянова, 46; e-mail: step@ufr.appl.sci-nnov.ru

Ю.Н.Пономарев, А.Б.Тихомиров, Б.А.Тихомиров. Институт оптики атмосферы им. В.Е.Зуева СО РАН, Россия, 634021 Томск, пл. акад. Зуева, 1

Поступила в редакцию 22 марта 2011 г, после доработки – 24 августа 2011 г.

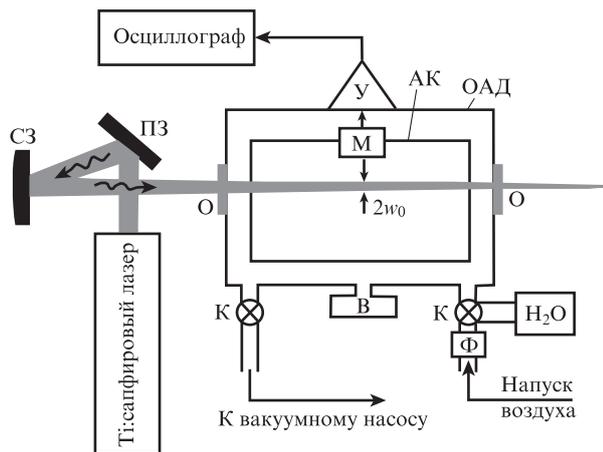


Рис.1. Схема ОА спектрометра: ОАД – ОА детектор; АК – акустический концентратор; ПЗ – плоское зеркало; СЗ – сферическое зеркало; О – оптическое окно (MgF_2); М – конденсаторный микрофон МК-221; У – широкополосный усилитель; В – вакуумметр DVR-5; К – вакуумный кран; Ф – азрозольный фильтр.

Электрический сигнал, снимаемый с выхода микрофона, усиливается широкополосным усилителем и регистрируется цифровым осциллографом. Характерная форма сигнала, генерируемого в результате поглощения энергии короткого лазерного импульса в воздухе при атмосферном давлении, представлена на рис.3. На осциллограмме цифрами отмечены три импульса. Первый импульс соответствует воздействию на микрофон импульса давления, распространяющегося из освещенной излучением области. Второй более слабый импульс появляется с задержкой $\Delta t = 550$ мкс относительно лазерного импульса и является результатом воздействия на микрофон импульса давления, отраженного от поверхности парабооида вращения. Третий импульс с амплитудой U_{PA} появляется еще с некоторой задержкой и соответствует импульсу давления, отраженному от поверхности пара-

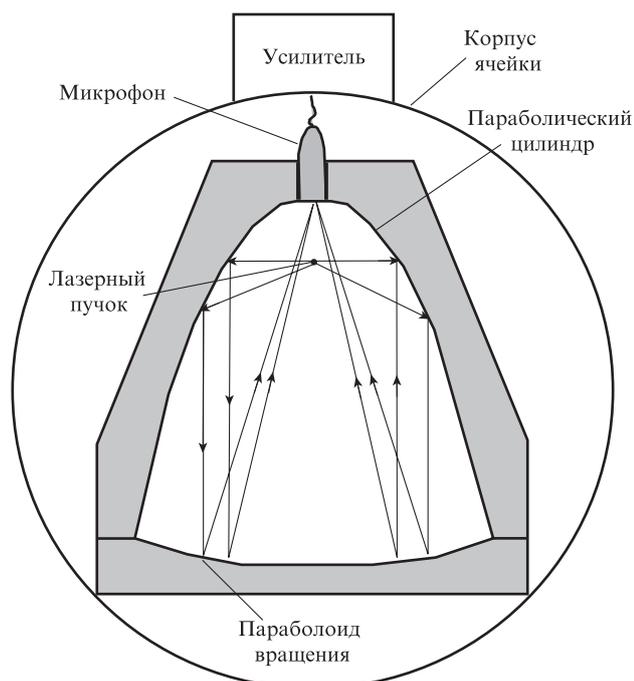


Рис.2. ОА детектор с параболическими зеркалами.

болического цилиндра и сфокусированному на микрофон парабоидом вращения. В эксперименте измеряется амплитуда U_{PA} .

Исследуемые газы готовятся непосредственно в ОА ячейке, из которой предварительно откачивается воздух до давления ≤ 0.1 мбар. Затем в ячейку напускается исследуемый газ (воздух, пары H_2O). Забор проб воздуха осуществляется методом прокачки с использованием азрозольного фильтра. Водяной пар напускается в вакуумированную ячейку путем испарения дистиллированной воды из колбы (см. рис.1). Давление газа измеряется с помощью вакуумметра DVR-5 с емкостным датчиком VSK-5 (пределы измерения 0.1 – 1100 мбар).

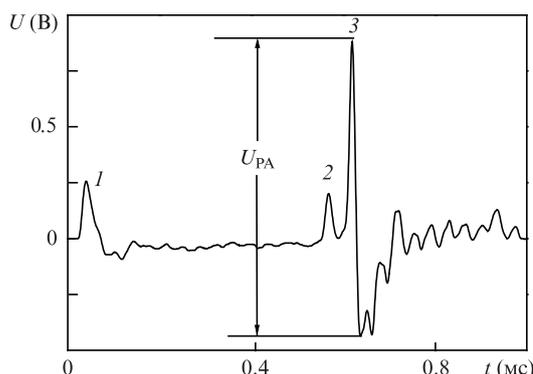


Рис.3. Осциллограмма сигнала ОА детектора с акустическим концентратором и микрофоном МК-221.

3. Амплитуда ОА сигнала при линейном и нелинейном поглощении

Недостатком ОА метода считается то, что для получения количественных данных о коэффициентах и сечениях поглощения необходима калибровка ОА спектрометра [8]. При исследованиях спектров линейного поглощения калибровка ОА спектрометра производится либо на основе измерений амплитуды ОА сигнала и расчета коэффициента поглощения для эталонной газовой смеси с использованием банков данных спектральных линий, либо на основе одновременных измерений поглощения ОА и спектрофотометрическими методами. Калибровка ОА спектрометра при измерениях характеристик нелинейного поглощения сложнее, поскольку для лазерных пучков с переменной в поперечном сечении интенсивностью коэффициент поглощения также будет изменяться в поперечном сечении пучка. Таким образом, по сравнению со случаем линейного поглощения, в котором распределение плотности возбужденных молекул в поперечном сечении и соответствующий ему профиль источника акустического сигнала [9] совпадают с распределением интенсивности излучения, профиль источника акустического сигнала для нелинейного поглощения будет иным. Чувствительность ОА спектрометра, используемого для измерений характеристик нелинейного поглощения, будет отличаться от чувствительности, полученной в результате калибровки ОА спектрометра по известному линейному поглощению.

Согласно [8] амплитуда ОА сигнала прямо пропорциональна поглощенной энергии лазерного импульса и содержит информацию о характеристиках линейного и нелинейного поглощения газа в ячейке. В общем случае амплитуда электрического сигнала ОА спектрометра, реги-

стрируемого при поглощении короткого гауссова импульса в слабо поглощающем газе, определяется выражением [10]:

$$U_{PA} = \alpha_M p_{PA} = \alpha_M p_{PA} E_{abs} \approx \sum_n U_n$$

$$= \alpha_M \sum_n \left[1.5926 \frac{n^{3/4}}{(2\pi\epsilon)^{3/2}} \left(\frac{v}{r} \right)^{1/2} \left(\frac{1}{C_p T} \right) \right] (\sigma_n N n^{-3/2} I_0^{n-1}) E, \quad (1)$$

где N – концентрация поглощающих молекул; E – энергия импульса; v – скорость звука в исследуемом газе; r – расстояние от оси лазерного пучка до микрофона; C_p – удельная теплоемкость газа при постоянном давлении; T – температура; $I_0 = 2E\pi^{-3/2}w_0^{-2}\tau^{-1}$ – пиковая величина интенсивности излучения, выраженная через количество фотонов в единицу времени на единицу площади; α_M – чувствительность акустического датчика; σ_n – сечение поглощения (σ_1 – сечение линейного поглощения, σ_2 – сечение поглощения с показателем нелинейности $n = 2$ и т. д.). Для гауссова импульса излучения справедливы соотношения [9]: $I(r = w_0, t = 0) = I_0 e^{-2}$, $I(r = 0, t = \tau) = I_0 e^{-1}$ и $\epsilon = (\tau_2^2 + w_0^2/2v^2)^{1/2}$. Сомножитель $\sigma_n N n^{-3/2} I_0^{n-1}$ имеет смысл эффективного коэффициента поглощения [10], выраженного через пиковую интенсивность гауссова импульса. Сомножитель в квадратных скобках соответствует коэффициенту преобразования поглощенной на единице длины энергии лазерного импульса $E_{abs} = \sigma_n N n^{-3/2} I_0^{n-1} E$ в амплитуду импульса давления p_{PA} (или чувствительности ОА метода α_{PA}). Из (1) видно, что при переходе от линейного поглощения к нелинейному поглощению с показателем нелинейности n чувствительность α_{PA} увеличивается пропорционально $n^{3/4}$. Сечение нелинейного поглощения σ_n связано с сечением линейного поглощения σ_1 простым соотношением:

$$\sigma_n = \frac{U_n n^{3/4}}{U_1 I_0^{n-1}} \sigma_1. \quad (2)$$

Из (2) следует, что для нахождения σ_n по известному сечению поглощения σ_1 необходимо из эксперимента определить амплитуды U_n , U_1 и пиковую интенсивность излучения I_0 . Показатель нелинейности n определяется в результате измерений зависимости $U_n(E)$.

4. Результаты измерений и их обсуждение

На рис.4 представлена измеренная зависимость отношения U_{PA}/E (правая ось координат) от E (верхняя ось) для случая поглощения водяным паром гауссова импульса излучения с длительностью $\tau = 72$ фс. Давление водяного пара $P = 13$ мбар, концентрация молекул N_w при температуре $T = 295$ К составляет 3.23×10^{17} см $^{-3}$. Из рисунка видно, что зависящее от энергии нелинейное поглощение регистрируется на фоне линейного поглощения. Нелинейное поглощение прямо пропорционально энергии лазерного импульса ($n = 2$) и при энергии импульса $E = 10$ мДж сравнимо по величине с линейным поглощением.

Рассчитанное с использованием базы данных HITRAN [4] эффективное (усредненное по спектру лазерного излучения шириной $\Delta\lambda = 17.7$ нм) сечение линейного поглощения для молекулы воды σ_1 составляет $(6.2 \pm 0.5) \times 10^{-25}$ см 2 . Это значение используется для калибровки ОА спек-

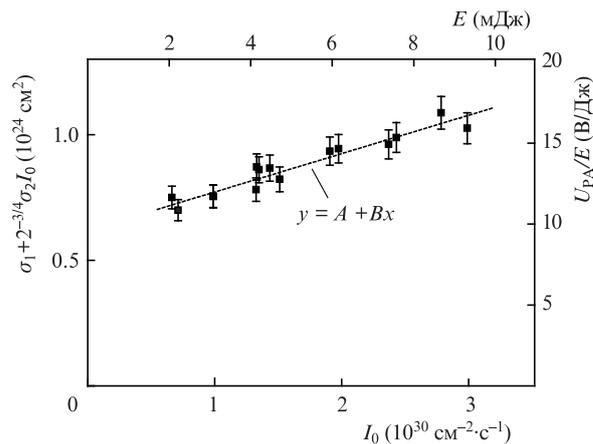


Рис.4. Зависимость поглощения гауссова импульса излучения ($\lambda_0 = 800$ нм, $\Delta\lambda = 17.7$ нм и $\tau = 72$ фс) водяным паром при давлении $P = 13$ мбар от энергии (пиковой интенсивности) лазерного импульса $E(I_0)$. Штриховая линия соответствует линейной функции $y = A + Bx$.

трометра (или пересчета от правой оси ординат на рис.4 к левой). В случае однокомпонентного газа для отношения U_{PA}/E исходя из формулы (1) можно получить

$$U_{PA}/E \sim (\sigma_1 + 2^{-3/4} \sigma_2 I_0). \quad (3)$$

Из линейной ($y = A + Bx$) регрессии экспериментальных данных, представленных на рис.4, в соответствии с соотношением (3) находим сечение нелинейного поглощения для молекулы воды $\sigma_2^w = (2.6 \pm 0.4) \times 10^{-55}$ см 4 ·с. Указанная среднеквадратическая ошибка определения этой величины включает в себя погрешность расчета сечения линейного поглощения σ_1 (8%) и среднеквадратическую ошибку определения подгоночного параметра B (13%). Относительная ошибка измерения отношения U_{PA}/E оценивается в 6% и на рис.4 представлена доверительными интервалами.

Зависимость отношения U_{PA}/E от энергии лазерного импульса с длительностью $\tau = 114$ фс для влажного воздуха при общем давлении $P = 997$ мбар ($N_a = 2.44 \times 10^{19}$ см $^{-3}$) и парциальном давлении водяного пара $P_w = 11.2$ мбар ($N_w = 2.78 \times 10^{17}$ см $^{-3}$) представлена на рис.5. В данном случае в амплитуду ОА сигнала вносят вклад линейное и нелинейное поглощение лазерных импульсов водяным паром и нелинейное поглощение основными компонентами воздуха – молекулами азота (80%) и кислорода (20%). Соотношение (3) принимает вид

$$U_{PA}/E \sim [N_w \sigma_1 + 2^{-3/4} I_0 (N_w \sigma_2^w + N_a \sigma_2^a)], \quad (4)$$

где σ_2^a – сечение нелинейного поглощения для воздуха. Так же, как и в первом случае, проводим калибровку ОА спектрометра, используя расчетное значение коэффициента линейного поглощения для водяного пара $k_{eff} = N_w \sigma_1 = (1.7 \pm 0.2) \times 10^{-7}$ см $^{-1}$. Из линейной регрессии экспериментальных данных в соответствии с формулой (4) и с учетом полученного ранее сечения σ_2^w находим сечение нелинейного поглощения для воздуха $\sigma_2^a = (8.7 \pm 1.0) \times 10^{-56}$ см 4 ·с. Ошибка определения этой величины включает в себя погрешность расчета коэффициента k_{eff} (10%) и среднеквадратическую ошибку определения параметра B (5%). Относительная ошибка измерения отношения

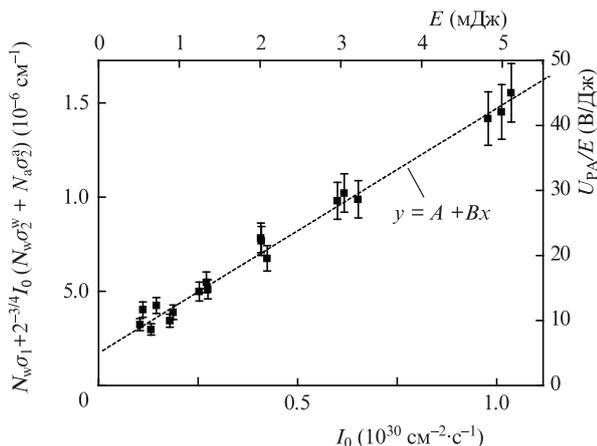


Рис.5. Зависимость поглощения гауссова импульса излучения ($\lambda_0 = 800$ нм, $\Delta\lambda = 17.7$ нм и $\tau = 114$ фс) в воздухе при общем давлении $P = 997$ мбар и парциальном давлении водяного пара $P_w = 11.2$ мбар от энергии (пиковой интенсивности) лазерного импульса $E(I_0)$. Штриховая линия соответствует линейной функции $y = A + Bx$.

U_{PA}/E оценивается в 10% и на рис.5 представлена доверительными интервалами.

Те же результаты для воздуха (см. рис.5) могут быть обработаны на основе калибровки ОА детектора по известному поглощению импульсов излучения рубинового лазера водяным паром в воздухе в центре линии поглощения молекулы воды 694.380 нм. Из (1) для отношения U_{PA}/E имеем

$$U_{PA}/E = \alpha_M \alpha_{PA} [N_w \sigma_1 + 2^{-3/4} I_0 (N_w \sigma_2^w + N_a \sigma_2^a)].$$

Чувствительность ОА спектрометра с Ti:сапфировым лазером, определенная по независимым калибровочным измерениям с использованием рубинового лазера, $\alpha_M \alpha_{PA} = (3.05 \pm 0.31) \times 10^7$ В·см⁻¹·Дж. Используем это значение для перехода на рисунке от правой оси ординат к левой и из линейной регрессии экспериментальных данных получаем $\sigma_1 = (5.9 \pm 0.8) \times 10^{-25}$ см², хорошо согласующееся с расчетным сечением линейного поглощения $\sigma_1 = (6.2 \pm 0.5) \times 10^{-25}$ см², и сечение нелинейного поглощения для воздуха $\sigma_2^a = (8.2 \pm 0.9) \times 10^{-56}$ см⁴·с, находящееся также в хорошем согласии с определенным выше значением σ_2^a . В ошибку определения σ_2^a включены ошибка калибровки спектрометра (10%) и ошибка определения параметра B (5%). Как и в случае, описанном выше, здесь мы использовали

найденное ранее сечение нелинейного поглощения для молекулы воды σ_2^w .

5. Заключение

В настоящей работе выполнены измерения сечений нелинейного поглощения фемтосекундных импульсов Ti:сапфирового лазера атмосферным воздухом и водяным паром. Калибровка ОА спектрометра производилась по известному линейному поглощению водяным паром импульсных излучений Ti:сапфирового лазера и лазера на рубине. При калибровке ОА спектрометра по расчетной величине линейного поглощения лазерного излучения с длиной волны 800 нм и шириной спектра 17.7 нм водяным паром измеренное сечение нелинейного поглощения этого излучения для водяного пара составило $(2.6 \pm 0.4) \times 10^{-55}$ см⁴·с, для воздуха – $(8.7 \pm 1.0) \times 10^{-56}$ см⁴·с. Измерения сечений поглощения фемтосекундных импульсов Ti:сапфирового лазера с помощью ОА детектора, прокалиброванного по известному поглощению импульсного излучения рубинового лазера водяным паром в атмосферном воздухе, позволили определить сечение линейного поглощения для молекул воды $\sigma_1 = (5.9 \pm 0.8) \times 10^{-25}$ см², хорошо согласующееся с расчетным значением $\sigma_1 = (6.2 \pm 0.5) \times 10^{-25}$ см², и сечение нелинейного поглощения для воздуха $\sigma_2^a = (8.2 \pm 0.9) \times 10^{-56}$ см⁴·с.

Работа выполнена при поддержке Программы Президиума РАН «Экстремальные световые поля и их приложения» (проект 12.1) и Интеграционного проекта СО РАН (№81).

1. Kasparian J., Rodriguez M., Mejean G., et al. *Science*, **301**, 61 (2003).
2. Manceau J.-M., Nevin A., Fotakis C., et al. *Appl. Phys. B*, **90**, 365 (2008).
3. Tzortzakis S., Franco M. A., Andre Y.-B., et al. *Phys. Rev. E*, **60**, R3505 (1999).
4. Rothman L.S., Jacquemart D., Barbe A., et al. *J. Quantum Spectrum Rad. Transfer.*, **96**, 139 (2005).
5. Kartashov D.V., Kirsanov A.V., Kiselev A.M., et al. *Opt. Express*, **14**, 7552 (2006).
6. Бабин А.А., Киселев А.М., Сергеев А.М., Степанов А.Н. *Квантовая электроника*, **31**, 623 (2001).
7. Tikhomirov A.B., Firsov K.M., Kozlov V.S., et al. *Opt. Eng.*, **44**, 071203-1 (2005).
8. Жаров В.П., Летохов В.С. *Лазерная оптико-акустическая спектроскопия* (М.: Наука, 1984, с. 320).
9. Heritier J.-M. *Opt. Commun.*, **44**, 267 (1983).
10. Протасевич А.Е., Тихомиров Б.А. *Оптика атмосферы и океана*, **24**, 328 (2011).