

# Распад лазерного пучка при ВТР света в толуоле в результате двухфотонного поглощения излучения накачки и нестационарного взаимодействия лазерного импульса со средой

А.А.Гордеев, В.Ф.Ефимков, И.Г.Зубарев, С.И.Михайлов

*Рассмотрен распад пространственной структуры пучка излучения накачки при вынужденном температурном рассеянии импульсного лазерного излучения в толуоле в результате двухфотонного поглощения излучения накачки и нестационарного взаимодействия лазерного импульса со средой.*

**Ключевые слова:** вынужденное температурное рассеяние, двухфотонное поглощение света в толуоле, распад пространственной структуры пучка излучения накачки.

В последнее десятилетие в связи с разработкой эффективных методов получения диэлектрических и металлических наночастиц появилось множество работ, посвящённых исследованию различных процессов в суспензиях таких частиц. В частности, имеются работы по наблюдению вынужденного температурного рассеяния (ВТР) света в этих суспензиях [1–4], в том числе в суспензиях различных металлических наночастиц в толуоле [3]. В [5] было показано, что при ВТР второй гармоники излучения неодимового лазера с длиной волны 0.53 мкм в суспензии наночастиц серебра в толуоле, а также в чистом толуоле спектральный сдвиг антистоксовой компоненты почти на порядок превышает значение, которое следует из стационарной теории рассеяния. При этом физической причиной такого различия является существенная нестационарность процесса ВТР коротких лазерных импульсов [6], когда их длительность  $\tau_{\text{las}}$  становится сравнимой со временем релаксации тепловой решётки  $\tau_r = 1/(\chi q^2)$ , где  $\chi$  – коэффициент температуропроводности вещества, а  $q$  – модуль волнового вектора тепловой решётки. В то же время в стационарных условиях наблюдалось прекрасное согласие экспериментальных и теоретических результатов [7]. Здесь следует отметить, что процесс ВТР второй гармоники излучения неодимового лазера в чистом толуоле развивается в результате двухфотонного поглощения на длине волны 0.53 мкм [5, 6]. По нашим оценкам, коэффициент двухфотонного поглощения при этом равен  $(0.5–1) \times 10^{-9}$  см/МВт.

В работах [5, 6] основное внимание уделялось спектральным характеристикам процесса. В продолжение этих работ нами были выполнены измерения временных и энергетических параметров импульсов взаимодействующих волн. На рис. 1 приведены типичные осциллограммы наблюдаемых импульсов. Обращает на себя внимание их необычное временное поведение. Импульс антистоксовой компоненты ВТР заканчивается раньше, чем импульс на-

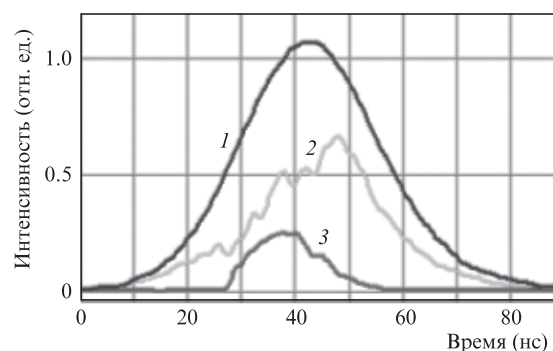


Рис. 1. Осциллограммы импульсов взаимодействующих волн: импульсов накачки на входе в активную среду (1) и на выходе из неё (2), а также импульса рассеянного назад излучения при ВТР (3).

качки, а мощность выходящего из активной среды излучения накачки растёт в пределах импульса накачки с ростом её мощности, несмотря на наличие двухфотонного поглощения. Наши попытки математически описать подобное временное поведение импульсов не дали положительных результатов. Наиболее вероятная причина этого заключается в том, что использованная в расчётах модель плоских волн неадекватна исследуемому процессу. В условиях проводимого нами эксперимента в области фокальной перетяжки происходит существенный нагрев активной среды, что приводит к пространственной трансформации пучка излучения накачки, которую нельзя описать в рамках модели плоских волн. Для проверки этой гипотезы в процессе наблюдения ВТР второй гармоники излучения неодимового лазера в толуоле были измерены пространственные структуры взаимодействующих волн в области фокальной перетяжки. Результатам этих измерений и посвящена настоящая работа.

В толуоле кроме ВТР может наблюдаться и вынужденное рассеяние Мандельштама – Бриллюэна (ВРМБ). В работе [6] были экспериментально определены условия, при которых процесс ВТР происходит в отсутствие маскирующего ВРМБ. Описываемые ниже эксперименты проводились в таких условиях.

Схема экспериментальной установки представлена на рис. 2. Источником накачки служила вторая гармоника излучения одночастотного и одномодового неодимово-

А.А.Гордеев, В.Ф.Ефимков, И.Г.Зубарев, С.И.Михайлов. Физический институт им. П.Н.Лебедева РАН, Россия, 119991 Москва, Ленинский просп., 53; e-mail: efimkovvf@lebedev.ru

Поступила в редакцию 7 июля 2020 г., после доработки – 3 сентября 2020 г.

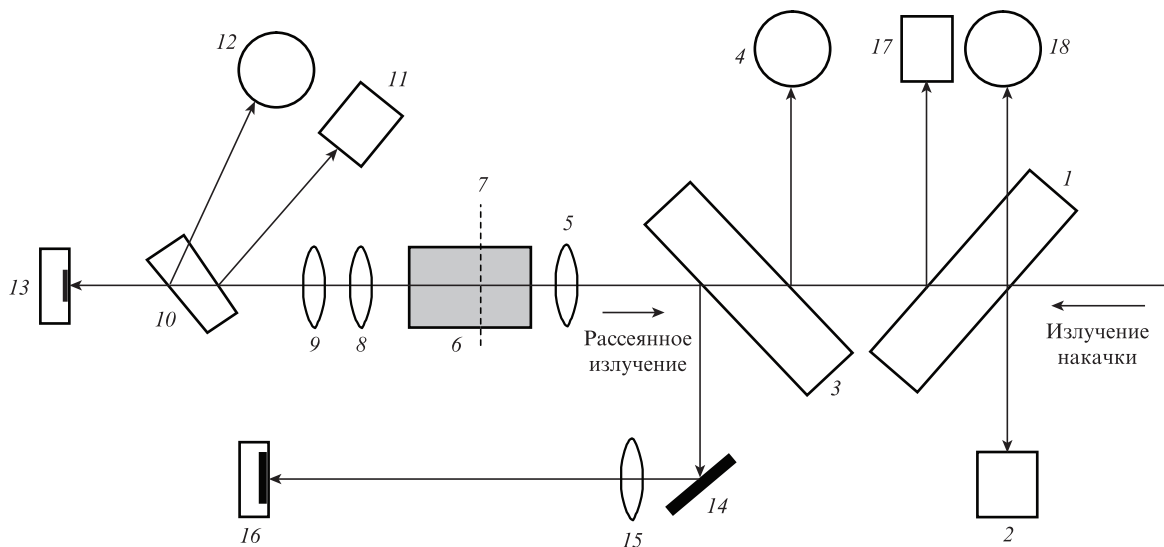


Рис.2. Экспериментальная схема:  
 1, 3 – плоскопараллельные стеклянные пластины; 2, 11, 17 – калориметры; 4, 12, 18 – фотодиоды; 5, 8, 9, 15 – линзы; 6 – кювета с толуолом; 7 – воображаемая плоскость в фокусе линз 5 и 8; 10 – стеклянный клин; 13, 16 – ПЗС-матрицы; 14 – плоское зеркало.

го лазера. Длительность колоколообразного импульса накачки составляла примерно 30 нс, а расходимость излучения – около  $3 \times 10^{-4}$  рад. Регистрирующая система позволяла измерять энергии и формы импульсов, а также расходимости всех взаимодействующих излучений. В качестве калориметров использовались фотодиоды ФД-7К с интегрирующей цепочкой, импульсы с которых подавались на запоминающий осциллограф Rigol DS 5062M с полосой пропускания 60 МГц. Для регистрации формы импульсов излучений применялись фотодиоды G6854-01 с полосой пропускания 2 ГГц, импульсы с которых подавались на запоминающий осциллограф GDS-73504A (фирма GWINSTEK) с полосой пропускания 500 МГц. ПЗС-матрицы WinCamD-USeries (UCM и UCD-12) фирмы DataRay регистрировали пространственные структуры лазерных пучков.

Излучение накачки фокусировалось в кювету 6 длиной 7 см с толуолом линзой 5 с фокусным расстоянием  $f = 3$  см. С помощью линзы 15 ( $f = 160$  см) фокальная плоскость 7 линзы 5 проецировалась на ПЗС-матрицу 16 с увеличением в 53 раза. Получаемое изображение представляет собой поперечное пространственное распределение интенсивности рассеянного назад излучения (антистоксова компонента ВТР), выходящего из фокальной плоскости 7. По существу это распределение характеризует расходимость антистоксовой компоненты ВТР. Изображение фокальной плоскости 7 в проходящем через кювету 6 в прямом направлении излучении накачки с помощью линзы 8 ( $f = 7$  см) и линзы 9 ( $f = 75$  см) проецировалось на ПЗС-матрицу 13 с увеличением в 10 раз. Зарегистрированное изображение представляет собой поперечное пространственное распределение интенсивности излучения накачки в плоскости 7 внутри активной среды.

На рис.3 приведена серия изображений поперечных пространственных распределений интенсивности рассеянного назад антистоксова излучения и излучения накачки в фокальной плоскости 7 линзы 5 (рис.2), соответствующих возрастающим энергиям импульса накачки. Здесь верхний ряд изображений – это пространственные распределения интенсивности антистоксовой компоненты ВТР, выходящей из фокальной плоскости 7, которые зарегистрированы

ПЗС-матрицей 16. Нижний ряд – это пространственные распределения интенсивности излучения накачки в плоскости 7, зарегистрированные ПЗС-матрицей 13. Для каждой пары указанных выше одновременно зарегистрированных изображений также были измерены энергии входящего в кювету импульса излучения накачки ( $E_p^{in}$ ), импульса антистоксовой компоненты ВТР ( $E_{STS}$ ) и импульса излучения накачки, прошедшего через кювету ( $E_p^{out}$ ). Используя значения этих энергий для 10 импульсов, в том числе для восьми импульсов, соответствующих рис.3 (представлены в табл.1), была построена (рис.4) зависимость доли энергии импульса излучения накачки

$$\eta = \frac{E_p^{in} - (E_p^{out} + E_{STS})}{E_p^{in}}$$

поглощённой в процессе взаимодействия волн, от энергии входящего в кювету импульса накачки  $E_p^{in}$ .

Пороговая энергия импульса накачки для возбуждения ВТР в наших условиях составляла  $\sim 1.3$  мДж. Если бы процесс был линейным, то излучение накачки с расходимостью  $3 \times 10^{-4}$  рад в фокусе линзы с  $f = 3$  см при учёте показателя преломления толуола  $n \approx 1.5$  имело бы фокальное пятно диаметром  $\sim 14$  мкм. Тогда интенсивность излучения накачки в фокальной плоскости линзы 5 (рис.2) равнялась бы  $1.5 \times 10^{10}$  Вт/см<sup>2</sup>. Из данных табл.1 следует, что доля энергии излучения накачки, поглощаемая в толуоле, составляет  $\sim 40\%$ . Если вся поглощённая энергия выделяется в области фокальной перетяжки, где происходит основное взаимодействие волн, то температура этой области должна возрасти на  $\Delta T = E_{abs}/(Cm)$ , где  $E_{abs}$  – поглощённая энергия,  $C \approx 2$  Дж  $\cdot$  г<sup>-1</sup>  $\cdot$  К<sup>-1</sup> – теплоёмкость толуола, а  $m$  – масса толуола в области фокальной перетяжки. Плотность толуола  $\rho \approx 1$  г/см<sup>3</sup>, объём фокальной перетяжки  $V_f \approx 10^{-7}$  см<sup>3</sup>, поэтому температура увеличится на  $\Delta T = 5 \times 10^3$  К. За время действия лазерного импульса  $\tau_{las} = 30$  нс эта область не может охладиться за счёт теплопроводности при коэффициенте температуропроводности толуола  $\chi = 1.9 \times 10^{-3}$  см<sup>2</sup>/с. Действительно, размер прогретой области составит всего лишь  $\sqrt{\chi \tau_{las}} \approx 7.5 \times 10^{-6}$  см при диаметре фокальной перетяжки  $1.4 \times 10^{-3}$  см.

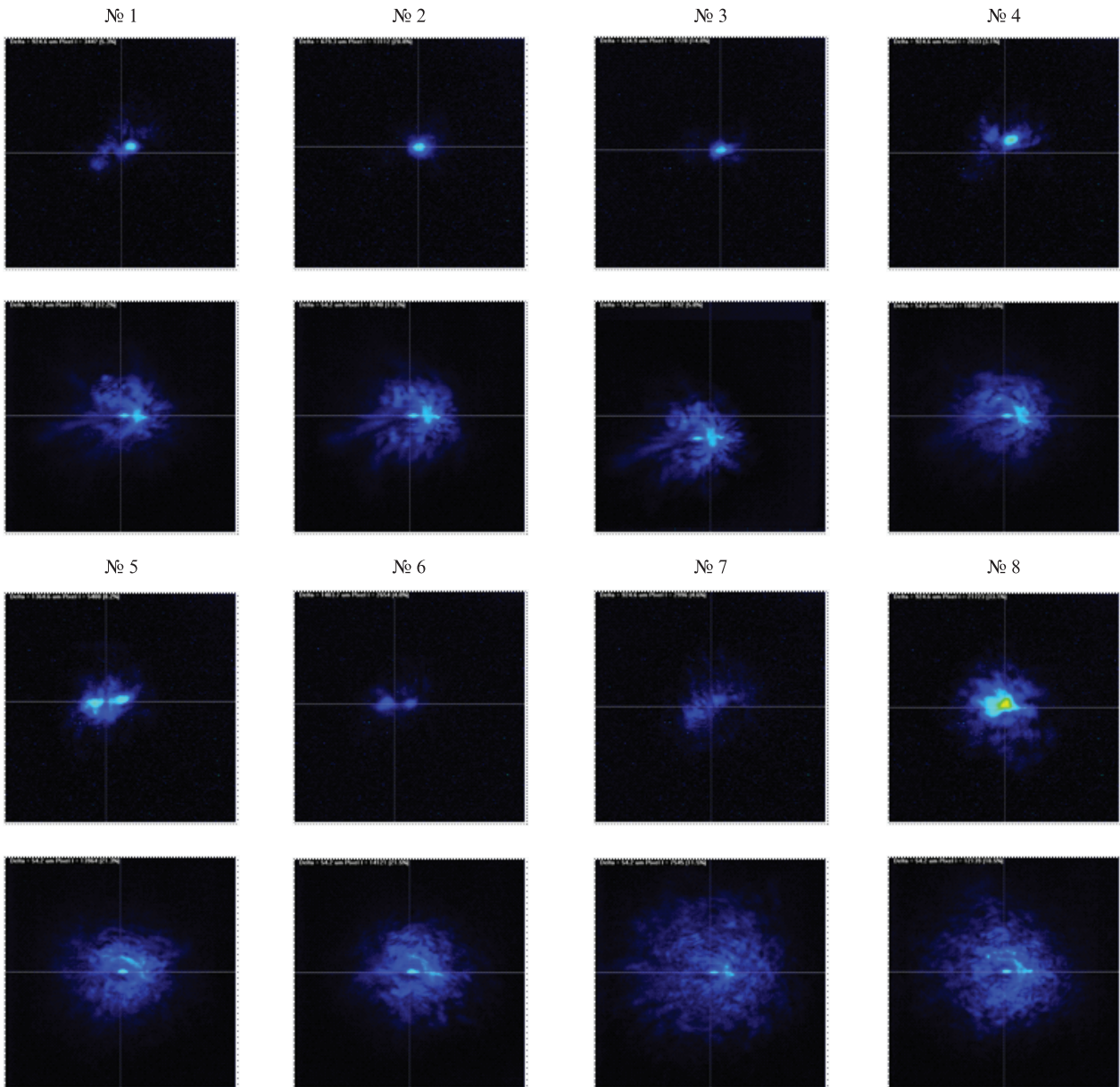


Рис.3. Поперечные пространственные распределения интенсивностей излучений для восьми импульсов, одновременно зарегистрированных ПЗС-матрицами: верхний ряд – антистоксова компонента ВТР (матрица 16), нижний ряд – излучение накачки, прошедшее через линзу (матрица 13). Цветной вариант рис.3 помещён на сайте нашего журнала <http://www.quantum-electron.ru>.

Табл.1.

Номер импульса	$E_p^{in}$ (мДж)	$E_p^{out}$ (мДж)	$E_{STS}$ (мДж)
1	2.2	1.27	0.12
2	2.3	1.35	0.08
3	2.43	1.44	0.12
4	2.8	1.5	0.2
5	3.3	1.7	0.28
6	3.6	1.75	0.49
7	4.25	2.5	0.16
8	4.44	2.3	0.49

Для качественного объяснения наблюдаемых экспериментальных фактов выдвигается следующая гипотеза. Задолго до достижения максимальной температуры из-за нагрева в веществе формируется пространственно-неоднородная отрицательная тепловая линза. Это приводит к

росту диаметра пучка излучения накачки и, тем самым, к уменьшению его интенсивности. В результате коэффициент двухфотонного поглощения становится столь малым, что данный процесс оказывается несущественным и взаи-

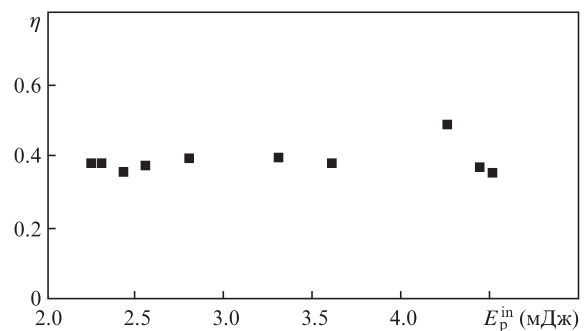


Рис.4. Зависимость доли поглощённой энергии импульса излучения накачки  $\eta$  от его энергии.

модействие волн прекращается. Качественно это объясняет и пространственную трансформацию пучка излучения накачки, и ограничение энергии импульса накачки, прошедшего через кювету.

Анализ фотографий на рис.3 показывает следующее. Фокальное распределение интенсивности антистоксовой компоненты ВТР иногда бывает сравнимо с распределением интенсивности излучения накачки. Этот факт можно интерпретировать как обращение волнового фронта при ВТР излучения накачки. Однако столь же часто данные распределения не имеют между собой ничего общего. Такая же ситуация имеет место и для процесса ВРМБ при фокусировке возбуждающего излучения линзой, поскольку в этом случае также нет достаточной дискриминации пространственной структуры спонтанных шумов, с которых начинается развитие отражённого излучения. Что касается пространственного распределения интенсивности излучения накачки в фокальной плоскости 7 линзы 5, то здесь ситуация другая. Указанные распределения при каждом измерении имеют примерно одинаковую структуру: узкий kern и широкий пространственно-неоднородный фон, причём структура фона статистически меняется от опыта к опыту. Иное искажение пространственной структуры проходящего излучения наблюдали авторы работы [2], но они интерпретировали свой результат как влияние низкого оптического качества выходного окна кюветы. В нашем случае это заведомо не так.

На основе анализа приведённых выше фотографий (рис.3) естественно предположить, что антистоксова компонента ВТР формируется в области керна. При этом распределение её интенсивности в фокальной плоскости 7 (рис.2) не совпадает с пространственной структурой

керна в распределении интенсивности излучения накачки в данной плоскости. Такой вывод наглядно демонстрируют денситограммы, приведённые на рис.5 и 6.

Обработка денситограмм показала, что ширина керна по полувысоте на рис.5 равна 20 мкм, а на рис.6 – 16 мкм. При этом полуширина распределения интенсивности антистоксовой компоненты ВТР на рис.5 составляет 10 мкм, а распределение её интенсивности на рис.6 состоит из двух пиков с полуширинами 8 и 9 мкм и расстоянием между ними 16 мкм. Ширина же распределения интенсивности фоновой компоненты излучения накачки равна ~400 мкм на рис.5 и ~300 мкм на рис.6. Указанные величины необходимо сравнивать с диаметром фокальной перетяжки излучения накачки (14 мкм для линейного случая). Поскольку на рис.5 и 6 энергия прошедшего через кювету излучения накачки пропорциональна площади под соответствующими кривыми, то видно, что энергия в фоновом излучении больше, чем энергия излучения в керне. Это, по нашему мнению, является следствием возмущения оптических свойств среды при двухфотонном поглощении. Именно такой результат мы и интерпретируем как распад пространственной структуры излучения накачки при ВТР за счёт её двухфотонного поглощения в толуоле. Следует подчеркнуть, что, поскольку эффективность двухфотонного поглощения зависит от интенсивности излучения накачки, измеренные с помощью ПЗС-матриц распределения интенсивности излучения в фокальной плоскости 7 (рис.2) являются интегральными по времени. И здесь необходимо отметить, что температура окончательно сформированной области фокальной перетяжки с диаметром ~300 мкм при указанных выше значениях погло-

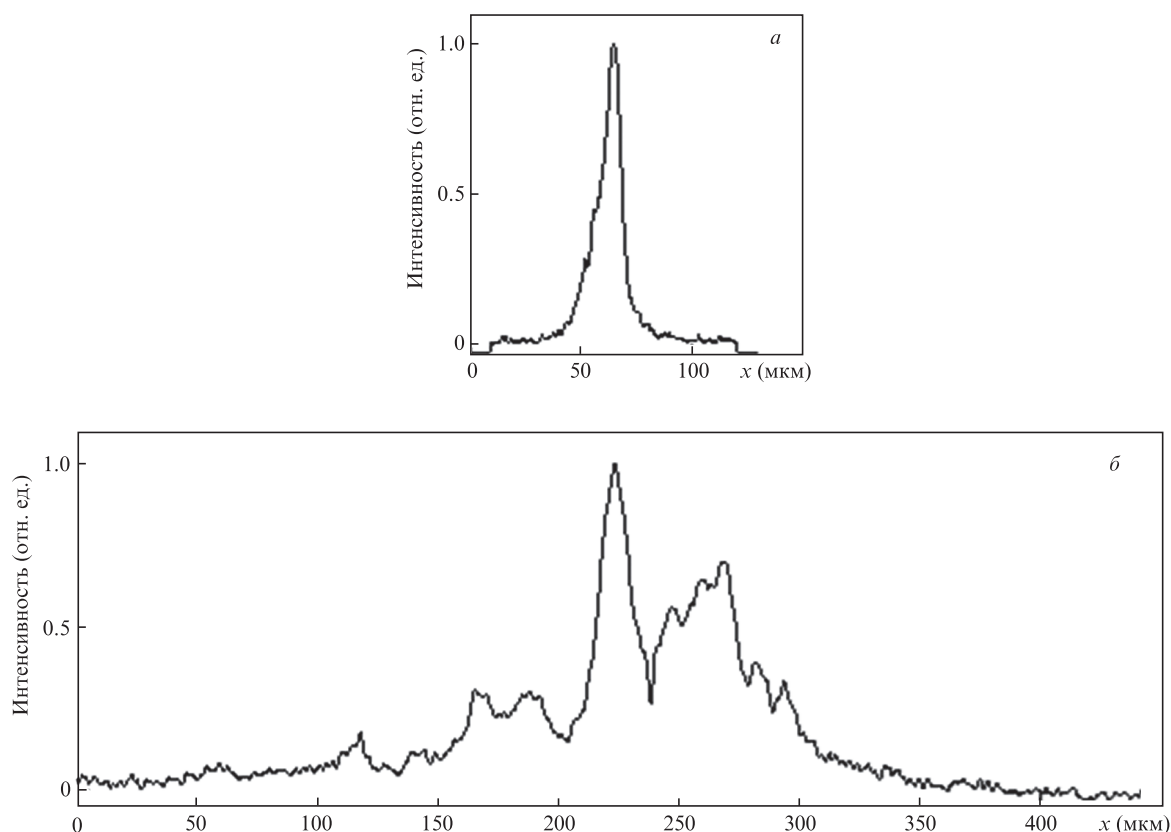


Рис.5. Нормированные денситограммы распределений интенсивности излучения (в одинаковом масштабе) вдоль горизонтальной оси для кадра №8 на рис.3: антистоксова компонента ВТР (а) и излучение накачки (б).



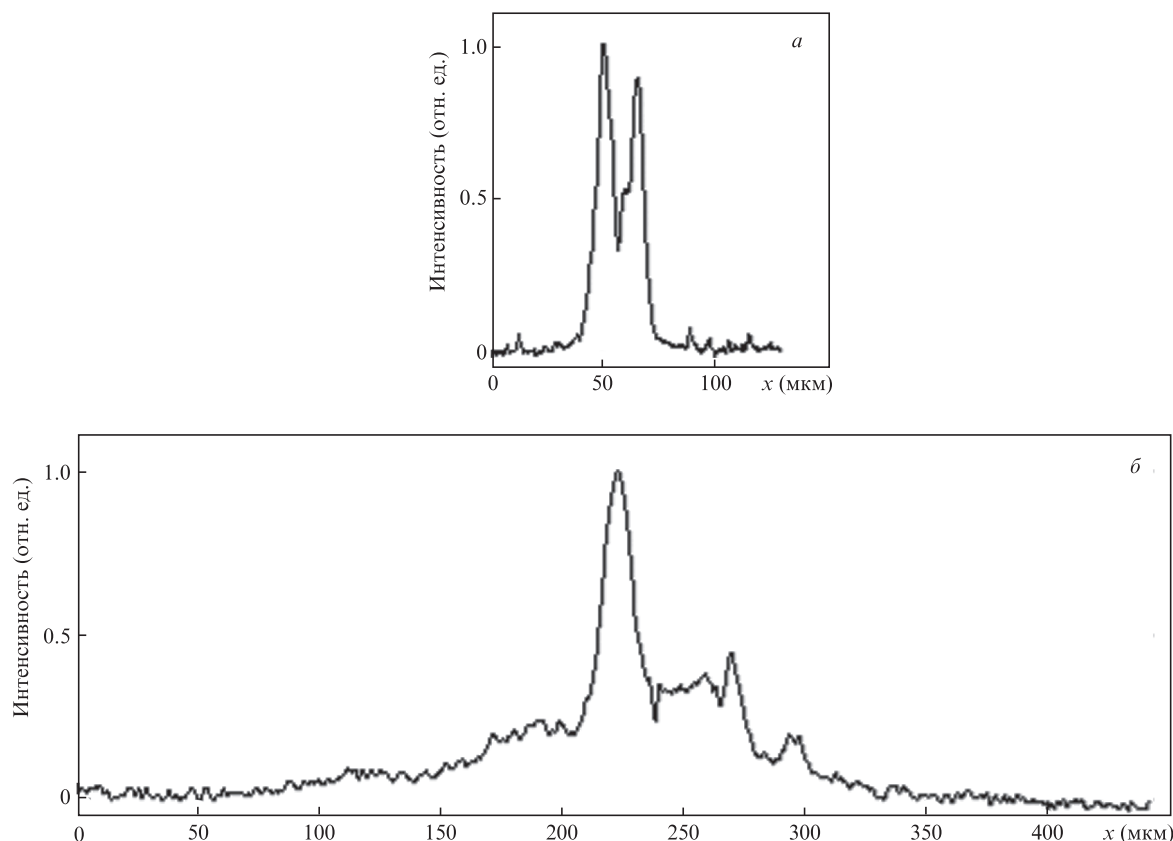


Рис.6. Нормированные денситограммы распределений интенсивности излучения (в одинаковом масштабе) вдоль горизонтальной оси для кадра №5 на рис.3: антистоксова компонента ВТР (а) и излучение накачки (б).

щённой энергии накачки (рис.4) составляет доли градуса Кельвина.

Таким образом, в работе экспериментально установлены следующие факты: пространственный распад пучка излучения накачки в области фокальной перетяжки при существенном двухфотонном поглощении в толуоле второй гармоники излучения неодимового лазера и необычное для процессов вынужденного рассеяния временное поведение импульсов антистоксовой компоненты ВТР и излучения накачки на выходе активной среды. Более детальная интерпретация полученных результатов требует дальнейших исследований.

1. He G.S., Yong K., Zhu J., Prasad P.N. *Phys. Rev. A*, **85**, 043839 (2012).
2. He G.S., Law W., Zhang X., Prasad P.N. *Appl. Phys. Lett.*, **101**, 011110 (2012).
3. He G.S., Law W., Baev A., Liu S., Swihart M.T., Prasad P.N. *J. Chem. Phys.*, **138**, 024202 (2013).
4. Shi I., Wu H., Yan F., Yang J., He X. *J. Nanopart. Res.*, **18**, 23 (2016).
5. Averyushkin A.S., Bulychev N.A., Efimkov V.F., Erokhin A.I., Kazaryan M.A., Mikhailov S.I., Saraeva I.N., Zubarev I.G. *Laser Phys.*, **27**, 055401 (2017).
6. Гордеев А.А., Ефимков В.Ф., Зубарев И.Г., Михайлов С.И. *Квантовая электроника*, **48** (9), 823 (2018) [*Quantum Electron.*, **48** (9), 823 (2018)].
7. Faris G.F., Gerken M., Jirauschek C., Hogan D., Chen Y. *Opt. Lett.*, **26** (23), 1894 (2001).