

НЕЛИНЕЙНО-ОПТИЧЕСКИЕ ЯВЛЕНИЯ

Двухфотонное поглощение световых пучков переменного поперечного сечения

А.А.Гордеев, В.Ф.Ефимков, И.Г.Зубарев

Получено уравнение для описания двухфотонного поглощения световых пучков переменного поперечного сечения. Показано, что экспериментальные значения коэффициентов двухфотонного поглощения сфокусированных лазерных пучков, рассчитанные в приближении плоских волн в области фокальной перетяжки и при учёте изменяющегося поперечного сечения светового пучка, различаются на два порядка величины.

Ключевые слова: коэффициент двухфотонного поглощения света, толуол, сфокусированные пучки.

1. Введение

При наблюдении различных нелинейных процессов в экспериментальной практике очень часто используют фокусировку возбуждающего излучения для увеличения его интенсивности, поскольку эффективность наблюдаемых нелинейных процессов, как правило, определяется интенсивностью возбуждающего излучения. Такая ситуация, в частности, имеет место при наблюдении вынужденного температурного рассеяния, обусловленного двухфотонным поглощением излучения накачки металлическими наночастицами в растворах некоторых жидкостей [1–5] или в самих чистых жидкостях [3, 5]. Коэффициент двухфотонного поглощения зависит от квадрата интенсивности возбуждающего излучения. Поэтому часто предполагают, что основное поглощение происходит в области фокальной перетяжки [2–6], где интенсивность накачки имеет максимальное значение. Поскольку в этой области и волновой фронт возбуждающего излучения является плоским, то для описания происходящих процессов можно использовать плосковолновое приближение. Как будет показано ниже, при учёте реальной переменной поперечной структуры пучка результаты существенно различаются, по крайней мере при фокусировке возбуждающего излучения достаточно короткофокусными линзами с числовой апертурой $N \geq 0.1$.

2. Результаты экспериментов

Схема экспериментальной установки представлена на рис.1. Накачка осуществлялась излучением второй гармоники одномодового одночастотного импульсного неодимового лазера. В ходе экспериментов измерялись энергия и форма импульсов падающего на кювету с жидким толуолом излучения и импульсов прошедшего излучения.

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

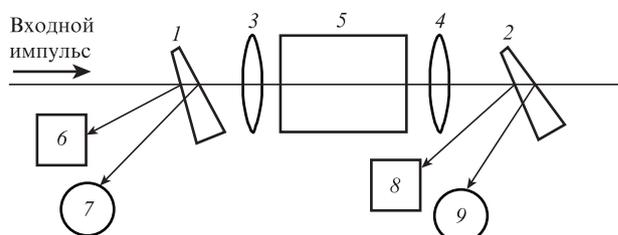


Рис.1. Схема экспериментальной установки:

1, 2 – стеклянные клинья; 3 – линза с $f = 3$ см; 4 – линза с $f = 7$ см; 5 – кювета с толуолом длиной $l = 7$ см; 6, 8 – калориметры; 7, 9 – скоростные фотодиоды.

Возбуждающее излучение фокусировалось линзой 3 с фокусным расстоянием 3 см в кювету 5 с жидким толуолом. С помощью линзы 4 с фокусным расстоянием $f = 7$ см компенсировалась расходимость выходящего из кюветы излучения, чтобы доставить его без потерь до соответствующих измерителей 8, 9.

На рис.2 представлена экспериментальная зависимость энергии выходящих из кюветы импульсов от энергии падающих импульсов. При её построении были учтены потери на френелевское отражение от всех оптических поверхностей, через которые проходят соответствующие лазерные импульсы.

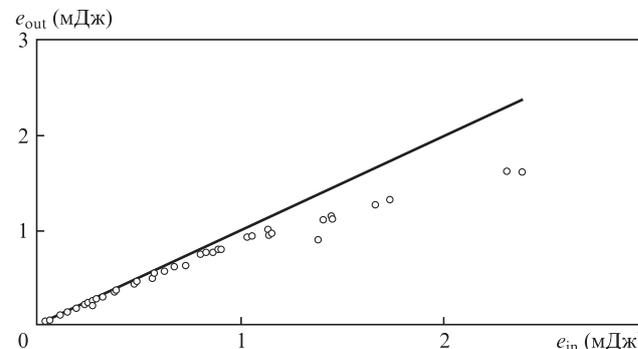


Рис.2. Зависимость энергии e_{out} импульсов, прошедших через кювету с толуолом, от энергии e_{in} падающих импульсов. Прямая линия соответствует пропусканию кюветы в отсутствие двухфотонного поглощения.

3. Вычисление коэффициента двухфотонного поглощения излучения в плосковолновом приближении

В этой модели процесса эволюция интенсивности I возбуждающего излучения описывается следующим уравнением, учитывающим возможное слабое линейное поглощение:

$$\frac{dI}{dz} = -\alpha I - \beta I^2, \tag{1}$$

где α и β – коэффициенты линейного и двухфотонного поглощения соответственно. Переменные в (1) разделяются, в связи с чем, решая это уравнение, получаем

$$\int_{I_{in}}^{I_{out}} \frac{dI}{I[1 + (\beta/\alpha)I]} = -\alpha \int_0^l dz, \tag{2}$$

$$\ln \left| \frac{I_{out}}{1 + (\beta/\alpha)I_{out}} \right| - \ln \left| \frac{I_{in}}{1 + (\beta/\alpha)I_{in}} \right| = -\alpha l,$$

и после преобразования последнего выражения

$$I_{out} = \frac{I_{in} e^{-\alpha l}}{1 + (\beta/\alpha)I_{in}(1 - e^{-\alpha l})}. \tag{3}$$

Как видно из рис.2, в нашем случае $\alpha l \ll 1$, поэтому решение принимает окончательный вид

$$I_{out} = \frac{I_{in}}{1 + \beta I_{in}}. \tag{4}$$

Из этого выражения вычисляем коэффициент двухфотонного поглощения:

$$\beta = \frac{1}{I_{in} l} \left(\frac{I_{in}}{I_{out}} - 1 \right). \tag{5}$$

Для получения среднего значения коэффициента двухфотонного поглощения β с учётом экспериментальных ошибок измерений, используя зависимость на рис.2, сформируем табл.1 для пяти значений энергий падающих импульсов, кратных 0.5 мДж.

Длительность импульсов возбуждающего излучения по полувысоте на частоте второй гармоники неодимового лазера $\tau_{in} = 28$ нс. Расходимость этого излучения $\theta = 3 \times 10^{-4}$ рад. Фокусное расстояние f_n линзы 3 в кювете с учётом показателя преломления толуюла $n = 1.5$ составит 4.5 см, поэтому диаметр фокального пятна $d_f = \theta f_n = 13.5 \times 10^{-4}$ см. Радиус гауссова пучка в фокальной перетяжке $w_0 = (\lambda z_0/\pi)^{1/2}$, где $\lambda = 0.53$ мкм – длина волны излучения накачки, z_0 – длина фокальной перетяжки. Отсюда $z_0 = \pi w_0^2/\lambda$, а поскольку $w_0 = d_f/2$, то $z_0 = 2.7 \times 10^{-2}$ см. Площадь фокальной перетяжки $S_f = \pi w_0^2 = 1.43 \times 10^{-6}$ см², интенсивность излучения $I = e_{in}/(\tau_{in} S_f)$, где $\tau_{in} = 2.8 \times 10^{-8}$ с. Используя эти значения, преобразуем данные табл.1 в ин-

Табл.1.

e_{in} (мДж)	e_{out} (мДж)
0.5	0.46
1.0	0.88
1.5	1.19
2.0	1.5
2.5	1.67

Табл.2.

I_{in} (10^{10} Вт/см ²)	I_{out} (10^{10} Вт/см ²)	β (10^{-10} см/Вт)
1.26	1.15	2.8
2.5	2.2	2.0
3.75	2.97	2.59
5.0	3.75	2.47
6.24	4.17	2.95

тенсивности соответствующих импульсов и затем, исходя из того, что $l = z_0$, вычислим коэффициенты двухфотонного поглощения β по формуле (5). Из результатов, приведенных в табл.2, получаем среднее значение $\beta_{av} = (2.56 \pm 0.26) \times 10^{-10}$ см/Вт.

4. Двухфотонное поглощение световых пучков переменного поперечного сечения

Мощность импульсов возбуждающего излучения, распространяющихся по среде, не зависит от площади их поперечного сечения. Поэтому необходимо получить уравнение, описывающее эволюцию мощности пучка возбуждающего излучения переменного сечения по мере его распространения по нелинейной среде. Для этого используем выражение для интенсивности импульса $I(z) = P(z)/S(z)$, где $P(z)$ – мощность светового импульса, $S(z)$ – переменная площадь его поперечного сечения. Продифференцируем обе части этого равенства и сравним результат с уравнением (1) без линейного члена. В итоге получим

$$\frac{dI}{dz} = \frac{1}{S(z)} \frac{dP}{dz} - \frac{P}{S^2} \frac{dS}{dz} = -\beta I^2 = -\frac{\beta}{S^2} P^2, \tag{6}$$

или

$$\frac{dP}{dz} - \frac{P}{S} \frac{dS}{dz} = -\frac{\beta}{S} P^2. \tag{7}$$

Изменение радиуса гауссова пучка по длине среды описывается выражением

$$w(z) = w_0 \left[1 + \left(\frac{z}{z_0} \right)^2 \right]^{1/2}, \tag{8}$$

площадь гауссова пучка

$$S(z) = \pi w^2(z) = \pi w_0^2 \left[1 + \left(\frac{z}{z_0} \right)^2 \right], \quad \frac{dS}{dz} = \pi w_0^2 2 \left(\frac{z}{z_0} \right) \frac{1}{z_0}. \tag{9}$$

Тогда, обозначив коэффициенты в уравнении (7) как

$$\frac{-1}{S} \frac{dS}{dz} = \frac{-z_0^2}{\pi w_0^2 (z^2 + z_0^2)} \pi w_0^2 2 \left(\frac{z}{z_0} \right) \frac{1}{z_0} = -\frac{2z}{z^2 + z_0^2} = p(z), \tag{10}$$

$$-\frac{\beta}{S} = \frac{-\beta z_0^2}{\pi w_0^2 (z^2 + z_0^2)} = q(z),$$

приведём уравнение (7) к классическому виду уравнения Бернулли

$$\frac{dP}{dz} + p(z)P = q(z)P^m \tag{11}$$

с показателем степенного члена $m = 2$. Как известно, общее решение уравнения Бернулли имеет вид [7]

$$P(z) = \left\{ \exp \left[\int (m-1)p(z) dz \right] \times \left\{ C + \int (1-m)q(z) \exp \left[\int (1-m)p(z) dz \right] dz \right\} \right\}^{1/(1-m)}. \quad (12)$$

Это выражение содержит следующие интегралы:

$$\begin{aligned} \int (m-1)p(z) dz &= -2 \int \frac{z dz}{z^2 + z_0^2} = -\ln |z^2 + z_0^2|, \\ \int (1-m)p(z) dz &= 2 \int \frac{z dz}{z^2 + z_0^2} = \ln |z^2 + z_0^2|, \\ \int (1-m)q(z) \exp(\ln |z^2 + z_0^2|) dz &= \frac{\beta z_0^2}{\pi w_0^2} \int \frac{dz}{z^2 + z_0^2} \exp(\ln |z^2 + z_0^2|) = \frac{\beta z_0^2}{\pi w_0^2} \int dz = \frac{\beta z_0^2}{\pi w_0^2} z. \end{aligned} \quad (13)$$

Подставив эти интегралы в общее решение, приведём его к виду

$$P(z) = \left(\frac{C}{z^2 + z_0^2} + \frac{\beta z_0^2}{\pi w_0^2} \frac{z}{z^2 + z_0^2} \right)^{-1}. \quad (14)$$

Поскольку возбуждающее излучение фокусируется в кювету линзой с фокусным расстоянием f_n , то область изменения переменной z определяется неравенствами

$$-f_n \leq z \leq f_n, \quad (15)$$

где $z = -f_n$ отвечает входной плоскости кюветы, а $z = f_n$ — ее выходной плоскости. При этом $z = 0$ соответствует фокальной плоскости линзы 3 на рис.1.

В итоге решение (14) принимает следующий вид:

$$P_{in} = \left(\frac{C}{f_n^2 + z_0^2} - \frac{\beta z_0^2}{\pi w_0^2} \frac{f_n}{f_n^2 + z_0^2} \right)^{-1}, \quad (16)$$

$$P_{out} = \left(\frac{C}{f_n^2 + z_0^2} + \frac{\beta z_0^2}{\pi w_0^2} \frac{f_n}{f_n^2 + z_0^2} \right)^{-1}.$$

Представим эти выражения в виде

$$\begin{aligned} P_{in} &= \frac{1}{A-B}, \quad P_{out} = \frac{1}{A+B} = \frac{1}{A-B+2B} \\ &= \frac{1}{(A-B)[1+2B/(A-B)]} = \frac{P_{in}}{1+2BP_{in}}, \end{aligned} \quad (17)$$

и в результате получим

$$P_{out} = P_{in} \left(1 + \frac{\beta z_0^2}{\pi w_0^2} \frac{2f_n}{f_n^2 + z_0^2} P_{in} \right)^{-1} = P_{in} \left(1 + \frac{\beta z_0}{\lambda} \frac{2f_n}{f_n^2 + z_0^2} P_{in} \right)^{-1}. \quad (18)$$

Это выражение в предельном случае переходит в формулу (4). Действительно, подставим в (18) выражение $P = IS$, где $S(z) = \pi w_0^2 [1 + (z/z_0)^2]$. В итоге (18) примет вид

Табл.3.

P_{in} (10^4 Вт)	P_{out} (10^4 Вт)	β (10^{-8} см/Вт)
1.8	1.6	3
3.6	3.1	2
5.4	4.25	2.2
7.2	5.4	2
8.9	6.0	2.4

$$I_{out} = I_{in} \left\{ 1 + \beta \frac{z_0}{\lambda} \frac{2f_n}{f_n^2 + z_0^2} I_{in} \pi w_0^2 \left[1 + \left(\frac{z}{z_0} \right)^2 \right] \right\}^{-1}. \quad (19)$$

В плосковолновом приближении длина фокальной перетяжки z_0 неограниченно возрастает. Тогда $(z/z_0)^2 \rightarrow 0$, $f_n^2 \ll z_0^2$ и, поскольку $\lambda z_0 = \pi w_0^2$, а $2f_n = l$, в итоге получаем (4).

Так как в нашем случае $z_0 = 2.7 \times 10^{-2}$ см, а $f_n = 4.5$ см, то, пренебрегая величиной z_0^2 по сравнению с f_n^2 в знаменателе выражения (18), приведём его к окончательному виду:

$$P_{out} = P_{in} \left(1 + \frac{\beta z_0}{\lambda} \frac{2}{f_n} P_{in} \right)^{-1}. \quad (20)$$

Отсюда получаем выражение для коэффициента двухфотонного поглощения излучения β в данной модели:

$$\beta = \left(\frac{z_0}{\lambda} \frac{2}{f_n} P_{in} \right)^{-1} \left(\frac{P_{in}}{P_{out}} - 1 \right) \quad (21)$$

или, с использованием приведённых выше значений z_0, λ, f_n ,

$$\beta = \frac{1}{2.26 \times 10^2 P_{in}} \left(\frac{P_{in}}{P_{out}} - 1 \right). \quad (22)$$

Пересчитаем данные табл.1 на мощности импульсов, учитывая длительность импульса возбуждающего излучения 2.8×10^{-8} с, а затем, пользуясь выражением (22), вычислим соответствующие значения коэффициента двухфотонного поглощения β . Полученные результаты представлены в табл.3, по данным которой среднее значение $\beta_{av} = (2.32 \pm 0.30) \times 10^{-8}$ см/Вт.

5. Заключение

В нашей предыдущей работе [6], к сожалению, содержалась опечатка в приведённом значении коэффициента двухфотонного поглощения $\beta \approx (0.5 - 1) \times 10^{-9}$ см/МВт. На самом деле $\beta \approx (0.5 - 1) \times 10^{-9}$ см/Вт. Это значение оценивалось по порядку величины в плосковолновом приближении с использованием некоторых результатов, представленных на рис.4 работы [6]. Полученное при этой оценке значение β всего лишь в 2 - 4 раза отличается от приведённого в табл.2.

В работе [6] на рис.4 приведена зависимость отношения $\Delta e/e_{in} = (e_{in} - e_{out})/e_{in}$ от e_{in} . Используя результаты, представленные на рис.2 настоящей работы, мы построили такую же зависимость (рис.3).

Здесь разброс точек существенно превышает наблюдаемый в работе [6]. Существенным различием между этими зависимостями является диапазон энергий импульсов накачки. Большой разброс точек на рис.3, по нашему мнению, свидетельствует о том, что при построении зависимости разности двух экспериментально измеренных ве-

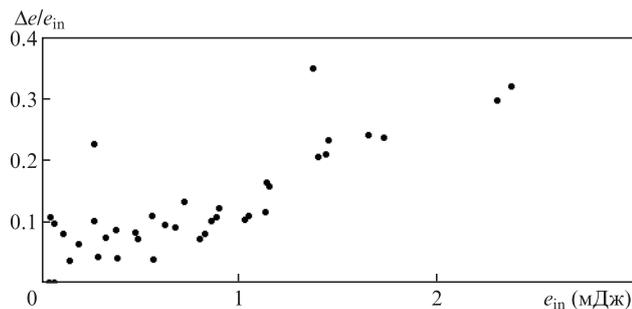


Рис.3. Зависимость $\Delta e/e_{in}$ от e_{in} , построенная с использованием экспериментальных точек на рис.2.

личин относительные ошибки измерений играют тем большую роль, чем меньше абсолютные значения самих величин.

Построим ещё одну экспериментальную зависимость типа приведенной на рис.3. Для этого построим зависимости

$$\frac{\Delta I}{I_{in}}(I_{in}) = \frac{I_{in} - I_{out}}{I_{in}} = \frac{\beta I_{in}}{1 + \beta I_{in}}, \quad (23)$$

$$\frac{\Delta P}{P_{in}}(P_{in}) = \frac{P_{in} - P_{out}}{P_{in}} = \frac{\beta z_0}{\lambda} \frac{2}{f_n} P_{in} \left(1 + \frac{\beta z_0}{\lambda} \frac{2}{f_n} P_{in} \right)^{-1}.$$

При их расчете используем данные табл.2 и 3. Оказалось, что полученные с использованием обеих формул значения совпадают в пределах ошибок измерений. Результаты вычислений представлены на рис.4. Разброс этих данных уже не столь велик, как на рис.3.

В заключение еще раз отметим, что для определения некоторых нелинейных коэффициентов, в частности коэффициента двухфотонного поглощения излучения, обычно экспериментально измеряется зависимость энергии лазерных импульсов, прошедших нелинейную среду, от энергии падающих импульсов. При этом для увеличения интенсивности накачки возбуждающее излучение часто фокусируют в нелинейную среду. Затем коэффициент двухфотонного поглощения излучения вычисляется с помощью выражений, полученных в рамках некоторых теоретических моделей. В эти выражения подставляются экспериментально измеренные параметры типа приведенных на рис.2. Нами показано, что рассчитанные коэф-

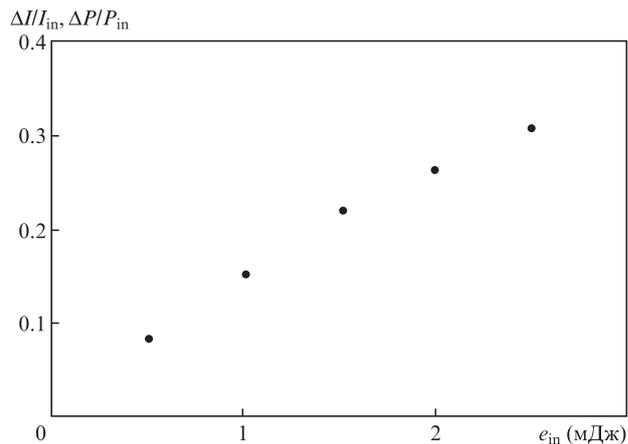


Рис.4. Зависимости отношений $\Delta I/I_{in}$, $\Delta P/P_{in}$ (23) от энергии входного импульса, которая может быть пересчитана в интенсивность или мощность входного излучения с использованием данных табл.2 и 3.

фициенты двухфотонного поглощения отличаются на два порядка величины при использовании выражений, полученных на основе следующих теоретических моделей: плосковолнового приближения, когда считается, что всё поглощение происходит на длине фокальной перетяжки, где волновые фронты импульсов излучения являются плоскими, и второго использованного нами приближения, когда рассматривается фокусировка реального гауссова пучка с переменным поперечным сечением.

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., Lin S., Swihart M.T., Prasad P.N. *J. Chem. Phys.*, **138**, 024202 (2013).
4. Shi I., Wu H., Yan F., Yang J., He Y. *J. Nanopart. Res.*, **18**, 23 (2016).
5. Averyushkin A.S., Bulychev N.A., Efimov 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*, **50** (11), 1078 (2020) [*Quantum Electron.*, **50** (11), 1078 (2020)].
7. Матвеев Н.М. *Методы интегрирования обыкновенных дифференциальных уравнений* (Л.: изд-во Ленинградского университета, 1955).