

ВЫНУЖДЕННОЕ ТЕМПЕРАТУРНОЕ РАССЕЯНИЕ, ОБУСЛОВЛЕННОЕ ДВУХФОТОННЫМ ПОГЛОЩЕНИЕМ, И ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЕ НАБЛЮДЕНИЕ ВЫНУЖДЕННОГО РАССЕЯНИЯ МАНДЕЛЬШТАМА – БРИЛЛЮЭНА В УФ-ДИАПАЗОНЕ

*В. Б. Карпов**, *В. В. Коробкин***

*Отдел когерентной и нелинейной оптики
Института общей физики им. А. М. Прохорова Российской академии наук
119991, Москва, Россия*

Поступила в редакцию 8 апреля 2004 г.

Анализ результатов предшествующих работ по изучению вынужденного рассеяния (ВР) наносекундных импульсов излучения ближнего УФ-диапазона в жидкостях показал, что они противоречат теории ВР. С целью разрешения этих противоречий проведено экспериментальное исследование ВР излучения эксимерного ХеСІ-лазера ($\lambda = 308$ нм) с длительностью импульса $\tau \approx 8$ нс в жидком гексане (C_6H_{14}). Теоретический анализ полученных результатов позволил обнаружить новое нелинейно-оптическое явление — вынужденное температурное рассеяние, обусловленное нагревом вследствие двухфотонного поглощения (двухфотонное ВТР-2). Двухфотонному ВТР-2 в спектре ВР соответствует ранее не известная спектральная линия. Кроме спектральной линии двухфотонного ВТР-2 впервые экспериментально обнаружена линия ВРМБ в УФ-диапазоне. Эта линия получена для $\lambda = 308$ нм в жидком гексане и имеет спектральный сдвиг $\Omega_B = 0.33$ см⁻¹, полностью соответствующий теории ВРМБ. Называемая авторами предшествующих работ «линией ВРМБ» линия ВР со сдвигом, значительно меньшим, чем теоретический бриллюэновский, на самом деле являлась несмещенной линией двухфотонного ВТР-2. При использовании двухфотонного ВТР-2 для получения обращения волнового фронта (ОВФ) качество ОВФ хуже, чем при использовании ВРМБ, из-за теплового самовоздействия и медленной релаксации температурной решетки.

PACS: 42.65.Es, 42.65.Hw, 78.35.+c, 33.80.Rv

1. ВВЕДЕНИЕ

Вынужденное рассеяние (ВР) света находит широкое применение в научных исследованиях и практических приложениях. В связи с этим изучение физических механизмов ВР в различных областях спектрального диапазона представляет значительный интерес. Одно из важнейших приложений ВР — обращение волнового фронта (ОВФ при ВР). Физическим механизмом явления ОВФ при ВР является одна из особенностей ВР назад, а именно — «самообращение волнового фронта при ВР света», открытое в лаборатории КРФ (ФИАН) в 1971 г. В. В. Рагуль-

ским, В. И. Поповичевым и Ф. С. Фазуиловым (см. [1, с. 244]). В этом смысле явления «ОВФ при ВР» и «ВР назад» эквивалентны. С другой стороны, физические механизмы ВР разнообразны (вынужденное рассеяние Мандельштама–Бриллюэна (ВРМБ), вынужденное комбинационное рассеяние (ВКР) и др.), и характерные особенности каждого механизма (спектральный сдвиг, время релаксации и др.) должны проявляться в свойствах получаемого на его основе ОВФ.

Подробное экспериментальное изучение ВР в различных средах проводилось только для ближнего ИК-диапазона по историческим причинам. Для этого требовалось излучение не только с большой мощностью, но и с высокой временной когерентно-

*E-mail: karpov@kapella.gpi.ru

**E-mail: korobkin@kapella.gpi.ru

стью (узкой спектральной линией). Первыми источниками такого излучения были одномодовые твердотельные лазеры на рубине ($\lambda = 0.69$ мкм) и на неодимовом стекле ($\lambda = 1.06$ мкм) с модуляцией добротности, генерирующие «гигантские» наносекундные импульсы в ближнем ИК-диапазоне [2–4]. Для таких импульсов в жидкостях (вода, метанол и др.) с относительно слабым линейным поглощением чаще всего наблюдалась единственная линия ВР, соответствующая механизму ВРМБ. При увеличении линейного поглощения наблюдалась линия вынужденного температурного рассеяния (ВТР) вследствие линейного поглощения (линейного ВТР-2). Многофотонное поглощение в ИК-диапазоне практически не проявлялось, поскольку использовались жидкости, прозрачные в ИК- и видимом диапазонах, а для попадания в ближайший электронный резонанс с энергией порядка 10 эВ требовалось приблизительно 5–10 ИК-фотонов с энергией примерно 1–2 эВ каждый.

Теоретическое изучение ВР проводилось с учетом экспериментальных результатов, полученных преимущественно для ближнего ИК-диапазона. Таким образом, полная и последовательная теория ВР до настоящего времени не создана, а имеющаяся теория учитывает только линейное поглощение. В частности, теория вынужденного температурного рассеяния была развита в работе [5] и учитывает только линейное поглощение (см. [1, с. 240–242]).

Специальное экспериментальное изучение ВР излучения ближнего УФ-диапазона не проводилось по двум причинам. Во-первых, эффективные источники такого излучения — электроразрядные эксимерные лазеры [6] — появились значительно (почти на 10 лет) позже твердотельных. Во-вторых, особенностью эксимерных лазеров было малое (< 100 нс) время существования усиления, которое не позволяло распространить на них методы сужения спектра твердотельных лазеров, характеризующихся большим (порядка 1 мкс) временем существования усиления. В результате, когда экспериментаторы столкнулись с ВР при изучении ОВФ-излучения эксимерных лазеров, на УФ-диапазон была перенесена теория, развитая для ИК-диапазона и учитывающая только линейное поглощение.

2. ПРОБЛЕМЫ ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОГО ИЗУЧЕНИЯ ВР И ОВФ ИЗЛУЧЕНИЯ БЛИЖНЕГО УФ-ДИАПАЗОНА

Интерес к получению ОВФ при ВР в УФ-диапазоне был обусловлен перспективностью использо-

вания эксимерных лазеров для индуцирования термоядерных реакций, обработки материалов и фотолитографии [6–9]. Первые сообщения о получении ОВФ при ВР назад наносекундных импульсов эксимерных лазеров в жидкостях были опубликованы в работах [7] (XeF-лазер, $\lambda = 351$ нм), [10] (XeCl-лазер, $\lambda = 308$ нм), [8, 11] (KrF-лазер, $\lambda = 248$ нм), [9] (ArF-лазер, $\lambda = 193$ нм). Во всех этих, а также в более поздних работах [12, 13] в экспериментальном спектре ВР наблюдалась единственная линия, а в качестве механизма ВР авторами называлось вынужденное рассеяние Манделштама–Бриллюэна. При этом в работах [9–11] авторы не могли измерить спектральный сдвиг «ВРМБ» пучка относительно накачки, в связи с тем что он был «порядка предела спектрального разрешения лазерной системы». В работе [11] экспериментальный коэффициент отражения от «ВРМБ» зеркала плавно уменьшался с ростом интенсивности I_L накачки от приблизительно 25 % на пороге ($I_L \approx 10^{10}$ Вт/см²) до приблизительно 10 % при $I_L \approx 10^{11}$ Вт/см². Важно отметить, что уменьшение коэффициента отражения в этом эксперименте обусловлено ухудшением качества ОВФ. В работах [7, 8, 10, 12] обнаружена деградация качества ОВФ при отражении от «ВРМБ» зеркала при увеличении коэффициента α линейного поглощения нелинейной среды. В работе [14] в спектре ВР назад излучения эксимерного KrF-лазера ($\lambda = 248$ нм) в гексане также наблюдалась единственная линия, а в качестве механизма ВР называлось «линейное ВТР-2».

Коэффициент α линейного поглощения нелинейной жидкости в работах [7–13], посвященных механизму «ВРМБ», изменялся от 0.02 см⁻¹ до 0.1 см⁻¹, а в работе [14], посвященной механизму «линейного ВТР-2», составлял 0.22 см⁻¹.

При изучении влияния резонансного поглощения на нелинейно-оптические явления наносекундных длительностей, необходимо учитывать как затухание амплитуд волн, так и изменение их фаз вследствие нагрева среды. В работах [7–14] накачка фокусировалась в нелинейную жидкость линзами с фокусным расстоянием 5–10 см, следовательно, длина нелинейного взаимодействия составляла $L \leq 0.1$ см. На таких длинах затухание становится значительным при $\alpha > 2$ см⁻¹, что существенно превышает используемые значения.

Экспериментальные результаты предшествующих работ [7–11, 13, 14] по изучению ВР назад в гексане представлены в табл. 1. Во втором и третьем столбцах этой таблицы приведены длина волны λ и

Таблица 1. Экспериментальные результаты работ [7–11, 13, 14] по изучению ВР назад в гексане для различных длин волн ближнего УФ-диапазона, соответствующих эксимерным лазерам на ArF ($\lambda = 193$ нм), KrF ($\lambda = 248$ нм), XeCl ($\lambda = 308$ нм) и XeF ($\lambda = 351$ нм)

Статья	Длина волны накачки λ , нм	Интенсивность накачки I_L , Вт/см ²	Экспериментально измеренный спектральный сдвиг ВР назад в гексане Ω , см ⁻¹	Названный авторами статьи физический механизм ВР в гексане
[9]	193	$\approx 10^{10}$	≈ 0.2	ВРМБ
[8]	248	$> 2 \cdot 10^{10}$	≈ 0.1	ВРМБ
[11]	248	$> 10^{10}$	≈ 0.1	ВРМБ
[10]	308	$> 10^{11}$	< 0.15	ВРМБ
[13]	308	$> 10^{12}$	0.24	ВРМБ
[7]	351	$> 5 \cdot 10^9$	0.2	ВРМБ
[14]	248	$> 10^{11}$	< 0.02	линейное ВТР-2

Таблица 2. Теоретический бриллюэновский сдвиг частоты Ω_B для ВРМБ назад ($\theta = \pi$) в гексане, полученный из выражения (8), для различных длин волн ближнего УФ-диапазона, соответствующих эксимерным лазерам на ArF ($\lambda = 193$ нм), KrF ($\lambda = 248$ нм), XeCl ($\lambda = 308$ нм) и XeF ($\lambda = 351$ нм)

Длина волны накачки λ , нм	Теоретический спектральный сдвиг для ВРМБ назад в гексане Ω_B , см ⁻¹
193	0.49
248	0.41
308	0.33
351	0.30

интенсивность I_L излучения накачки. В четвертом столбце — экспериментально измеренный спектральный сдвиг Ω ВР пучка относительно накачки. В последнем столбце — физический механизм экспериментально наблюдаемого ВР, названный авторами соответствующей работы.

Теоретический бриллюэновский спектральный

сдвиг Ω_B зависит от длины волны λ (частоты ω_L) накачки и определяется выражением (8) (см. ниже). Значения Ω_B в случае ВРМБ назад ($\theta = \pi$) в гексане, вычисленные с помощью (8) для тех же, что и в табл. 1, длин волн ближнего УФ-диапазона, приведены в табл. 2. Видно значительное расхождение теоретических сдвигов Ω_B (табл. 2) с экспериментальными сдвигами Ω (табл. 1) для называемого авторами [7–11, 13] механизма «ВРМБ». Важно отметить, что для одной и той же длины волны λ экспериментальные значения Ω (табл. 1) значительно меньше теоретических Ω_B (табл. 2).

Таким образом, обобщая результаты предшествующих экспериментальных работ по изучению ВР и ОВФ излучения ближнего УФ-диапазона, нужно отметить следующее.

1. Измеренные в работах [7–11, 13] величины бриллюэновских спектральных сдвигов противоречат теории ВРМБ. Это противоречие столь значительно, что не может быть объяснено лишь экспериментальными ошибками.

2. Для диапазона длин волн накачки от $\lambda = 193$ нм до $\lambda = 351$ нм, представленного в [7–11, 13], экспериментальные значения бриллюэновского спектрального сдвига значительно меньше теоретических. Это позволяет предположить, что проблема спектрального сдвига в этих работах имеет общие корни.

3. Наблюдаемое в [11] ухудшение качества ОВФ

при небольшом превышении порогового значения интенсивности накачки не характерно для ВРМБ в прозрачных средах.

Таким образом, проблемы, накопившиеся в данной области, носят комплексный характер. Они затрагивают как временное, так и пространственное поведение лазерного излучения в нелинейной среде. Во временном поведении существует проблема спектрального сдвига при ВРМБ, а в пространственном — качества ОВФ при ВРМБ. С другой стороны, большое количество работ [7–11, 13], в которых наблюдалось «неправильное ВРМБ», было выполнено в лабораториях разных стран за достаточно большой промежуток времени (около 10 лет). Значит, случайная экспериментальная ошибка здесь исключена. Решения таких проблем нужно искать не только в экспериментальных погрешностях, но и на фундаментальном уровне физических механизмов ВР.

3. ПРЕДВАРИТЕЛЬНЫЙ АНАЛИЗ ВОЗМОЖНЫХ МЕХАНИЗМОВ ВР

Учитывая опыт предшествующих исследований, прежде чем переходить к новым экспериментам, полезно ответить на вопрос: какие физические механизмы ВР могут работать в условиях, соответствующих экспериментам [7–14]?

Экспериментальные условия предшествующих работ следующие. Для накачки использовалось излучение ближнего УФ-диапазона, генерируемое эксимерными лазерами на ArF ($\lambda = 193$ нм), KrF ($\lambda = 248$ нм), XeCl ($\lambda = 308$ нм) и XeF ($\lambda = 351$ нм). Длительность и интенсивность импульса накачки составляли, соответственно, $\tau \approx 5\text{--}10$ нс и $I_L \approx 5 \cdot 10^9\text{--}10^{12}$ Вт/см². В качестве нелинейных сред использовались жидкости, прозрачные в ближнем УФ-диапазоне, — гексан, гептан и др. Коэффициент линейного поглощения этих жидкостей изменялся в диапазоне $\alpha \approx 0.02\text{--}0.22$ см⁻¹.

3.1. Механизмы вынужденного рассеяния

Рассеяние света представляет собой процесс, в котором атом (среда) поглощает фотон падающего излучения и испускает вторичный фотон. В зависимости от характера испускания вторичного фотона рассеяние может быть спонтанным или вынужденным [15].

При классическом подходе источником рассеяния в прозрачных макроскопически однородных неионизованных средах являются флуктуации диэлектрической проницаемости, обусловленные флук-

туациями термодинамических (плотности, температуры) и физико-химических (концентрации, анизотропии, поляризуемости) параметров среды.

Если оптические неоднородности среды обусловлены только тепловыми флуктуациями ее параметров, то рассеяние называется спонтанным (или тепловым) [2, 16]. Если амплитуда электрического поля накачки достаточно велика, то развивается процесс вынужденного рассеяния. На начальном этапе слабая рассеянная волна образуется за счет спонтанного рассеяния накачки. Затем возбуждающая и рассеянная световые волны начинают оказывать влияние на внутреннее движение в среде, причем те моды, которые вызвали начальное спонтанное рассеяние, при определенных условиях резонансно усиливаются. Это приводит к увеличению эффективности рассеяния и после установления стационарного режима без учета ослабления накачки к нелинейному возрастанию интенсивности I_S рассеянной волны по закону [3]

$$I_S(L) = I_S^0 \exp(G I_L L), \quad (1)$$

где I_S^0 — интенсивность теплового рассеяния, G — параметр усиления интенсивности для данного вида ВР, I_L — интенсивность накачки, L — длина нелинейного взаимодействия.

ВР является частным случаем взаимодействия трех волн — двух световых и одной поляризации. Для эффективного взаимодействия необходимо, чтобы для этих волн во всем объеме выполнялись равенства

$$\omega_L - \omega_S = \Omega, \quad (2)$$

$$\mathbf{k}_L - \mathbf{k}_S = \mathbf{q}, \quad (3)$$

где ω_L , \mathbf{k}_L , ω_S , \mathbf{k}_S — частоты и волновые векторы световых волн накачки

$$E_L \exp[i(\mathbf{k}_L \cdot \mathbf{r} - \omega_L t)] + \text{c.c.}$$

и рассеянной

$$E_S \exp[i(\mathbf{k}_S \cdot \mathbf{r} - \omega_S t)] + \text{c.c.},$$

Ω , \mathbf{q} — частота и волновой вектор поляризации.

При ВР волна поляризации формируется такой кубичной нелинейностью, что условия (2) и (3) выполняются автоматически [2, 17]. С другой стороны, при ВР единственным источником энергии является накачка, так что динамика нелинейного взаимодействия поля со средой определяется распределением комплексной амплитуды накачки во времени. Поэтому требования к когерентности накачки высоки.

Физический механизм ВР обеспечивает два условия:

1) интерференционная компонента квадрата напряженности электрического поля должна резонансно раскачивать моду внутреннего движения;

2) резонансная мода должна модулировать диэлектрическую проницаемость среды.

Такой механизм имеется у каждого из известных видов ВР [17, 18]: вынужденного рассеяния Мандельштама–Бриллюэна, вынужденного комбинационного рассеяния, вынужденного рассеяния крыла линии Рэлея (ВРКЛР), вынужденного температурного рассеяния (ВТР-1 и линейного ВТР-2).

Математическое описание ВР основывается на системе уравнений для поля и среды. В результате ее решения каждый механизм ВР характеризуется своим параметром усиления G в формуле (1) и своим временем релаксации резонансной моды.

Для импульсов накачки длительностью $\tau \geq 10$ нс (характерных для эксимерных и твердотельных лазеров) в экспериментах чаще всего наблюдаются ВРМБ и линейное ВТР-2, поскольку для конденсированных сред и сжатых газов, являющихся самыми распространенными нелинейными элементами, значения параметра усиления G здесь выше, чем у других видов ВР. В результате пороговые для ВР интенсивности накачки в этих случаях ниже. С другой стороны, истощение накачки вследствие насыщения, как правило, приводит к тому, что наблюдается только один вид ВР, обладающий максимальным усилением.

Ввиду особой важности ВРМБ и линейного ВТР-2 для ВР наносекундных лазерных импульсов в жидкостях рассмотрим основные характеристики их механизмов, которые нам понадобятся в дальнейшем при анализе ВР в различных условиях.

3.1.1. Основные характеристики механизма ВРМБ

Известно [19], что адиабатические флуктуации давления распространяются в виде волн со скоростью звука. В гидродинамике ВРМБ учитывается, что электрострикционная сила втягивает вещество в область с большей напряженностью поля. Интерференционная часть стрикционного давления обеспечивает резонансное возбуждение гиперзвуковой волны с волновым вектором \mathbf{q} и частотой

$$\Omega_B(\mathbf{q}) = |\mathbf{q}|v, \quad (4)$$

где v — скорость звука. Величина Ω_B характеризует также сдвиг частоты стоксовой волны относительно накачки при ВРМБ, что обеспечивает выполнение условия (2). Вязкое затухание определяет ста-

ционарную амплитуду звуковой волны, а константа релаксации Γ_B связана с временем τ_B релаксации ВРМБ:

$$\Gamma_B(\mathbf{q}) = A|\mathbf{q}|^2, \quad \tau_B \approx \Gamma_B^{-1}. \quad (5)$$

Для жидкостей $A = 2\eta/(3\rho)$, где ρ — плотность, η — сдвиговой коэффициент вязкости [17, 20].

Модуляция плотности в звуковой волне приводит к появлению бегущей объемной решетки диэлектрической проницаемости (фазовой голограммы). Взаимодействие накачки с этой решеткой дает усиление рассеянной волны. Стационарный параметр усиления вблизи стоксова резонанса равен [3, 17]:

$$G_B = \frac{\rho^2(\partial\varepsilon/\partial\rho)^2}{1 + (\omega_L - \omega_S - \Omega_B)^2/\Gamma_B^2} \frac{\omega_S q^2}{4\Omega_B \Gamma_B \varepsilon \rho c^2}. \quad (6)$$

Максимальное усиление достигается при $\omega_L - \omega_S = \Omega_B$.

Если рассеянная волна распространяется под углом θ к направлению распространения волны накачки, то из условия (3) для волновых векторов получаем

$$q = |\mathbf{q}| = |\mathbf{k}_L - \mathbf{k}_S| \approx 2|\mathbf{k}_L| \sin(\theta/2) = 2(\omega_L \sqrt{\varepsilon}/c) \sin(\theta/2). \quad (7)$$

Тогда для бриллюэновского спектрального сдвига Ω_B с учетом (4) имеем

$$\Omega_B = qv = 2\omega_L \sqrt{\varepsilon} (v/c) \sin(\theta/2). \quad (8)$$

3.1.2. Основные характеристики механизма линейного ВТР-2

Известно [19, 21], что флуктуации энтропии при постоянном давлении вообще не распространяются в среде, постепенно затухая лишь под влиянием теплопроводности. В термодинамике линейного ВТР-2 считается, что тепловыделение промодулировано интерференционной компонентой квадрата напряженности электрического поля. Диэлектрическая проницаемость зависит от температуры, так что в среде формируется бегущая объемная решетка диэлектрической проницаемости (фазовая голограмма). Взаимодействие накачки с этой решеткой приводит к усилению рассеянной волны. Стационарный параметр усиления равен [3, 17]

$$G_T \approx \frac{\omega_S \alpha}{c n \rho c_p} \frac{\partial \varepsilon}{\partial T} \frac{\Omega}{\Gamma_T^2 + \Omega^2} \approx \frac{\omega_S \alpha}{c n \rho c_p \Gamma_T} \frac{\partial \varepsilon}{\partial T} \frac{\Omega/\Gamma_T}{1 + \Omega^2/\Gamma_T^2}, \quad (9)$$

где c_p — теплоемкость, n — невозмущенный показатель преломления. Константа релаксации Γ_T связана с временем τ_T релаксации линейного ВТР-2:

$$\Gamma_T = \chi |\mathbf{q}|^2, \quad \tau_T \approx \Gamma_T^{-1}, \quad (10)$$

где χ — температуропроводность.

Для большинства веществ $\partial\varepsilon/\partial T$ отрицательна, поэтому усиление имеет место при антистоксовом сдвиге $\Omega < 0$. Максимальное усиление достигается при

$$\omega_L - \omega_S = \Omega_T = -\Gamma_T.$$

3.1.3. Нарушение фазового синхронизма для ВРМБ в средах с линейным поглощением

Слабое поглощение, влияющее лишь на фазы волн, может существенно изменять картину ВР. Действительно, для ВР требуется выполнение условий (2) и (3). В идеальном случае эти условия должны выполняться без изменений на временах, соответствующих длительности импульса накачки. Для ВРМБ это означает, что фазовые соотношения между интерференционной электромагнитной и акустической волнами не изменяются со временем. Тогда амплитуды акустической волны и фазовой голограммы устанавливаются за время релаксации τ_B . Далее картина стационарна, а эффективность преобразования накачки в рассеянную волну максимальна.

Если диэлектрическая проницаемость среды как целого изменяется со временем, то длины волн накачки и рассеянной будут изменяться. Соответственно будут изменяться акустическая волна и фазовая голограмма. Поскольку электромагнитное поле безынерционно, а акустическая волна — нет, стабильность фазовых соотношений между ними нарушится. В результате картина ВРМБ становится нестационарной, а эффективность преобразования накачки в рассеянную волну падает. Если изменения диэлектрической проницаемости среды за время импульса значительны, это может привести к сбою ВРМБ.

Рассмотрим влияние нагрева, вызванного линейным поглощением с коэффициентом α , на ВРМБ [3, 4]. Будем использовать приближение плоских волн. Накачка входит через границу $z = L$ нелинейной среды и распространяется в отрицательном направлении оси z , а стоксов сигнал входит через границу $z = 0$ и распространяется в положительном направлении оси z .

Пусть $I_L(L)$ и $I_S(L)$ — интенсивности волн на границе $z = L$. Их отношение

$$\eta = \frac{I_S(L)}{I_L(L)}$$

представляет собой коэффициент преобразования накачки в волну ВРМБ, накопленный на длине L нелинейного взаимодействия. Иногда η называют коэффициентом отражения от ВРМБ зеркала [17]. Зависимость η от $I_L(L)$ имеет вид [3, 4]

$$h(D + \ln \eta) = \Gamma_B G_B \arctg \{ I_L(L)(1-\eta)Lh/\Gamma_B \}, \quad (11)$$

где

$$D = 25-30,$$

$$G_B = \frac{\rho(\partial\varepsilon/\partial\rho)^2\omega^2}{2c^3\nu n\Gamma_B}$$

— параметр усиления ВРМБ назад (6) в максимуме распределения,

$$h = \frac{\alpha\omega(\partial\varepsilon/\partial T)}{2c n \rho c_p},$$

v — скорость звука, $\omega = \omega_L$.

Численные расчеты зависимости $\eta[I_L(L)]$ по формуле (11) для различных значений α дают критическую величину α_{CR} , выше которой наблюдается сбой ВРМБ [3, 4].

4. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ УСТАНОВКА И МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТА

4.1. Общие требования к экспериментальной установке

С целью изучения физических механизмов ВР наносекундных импульсов ближнего УФ-диапазона в жидкостях была создана экспериментальная установка на базе промышленного эксимерного ХеСл-лазера ($\lambda = 308$ нм) ЭЛИИ-91 [22–24]. В качестве нелинейной жидкости был выбран гексан. При разработке экспериментальной установки принимались во внимание следующие соображения.

1. Каждый механизм ВР характеризуется своим спектральным сдвигом рассеянного излучения относительно накачки, поэтому изучение спектральных характеристик представляет особый интерес.

Теоретический спектральный сдвиг ВРМБ компоненты, получаемый из (8) (табл. 2) для гексана, $\lambda = 308$ нм и $\theta = \pi$, составляет величину $\Omega_B = 0.33$ см⁻¹. Теоретический спектральный сдвиг линейного ВТР-2, получаемый из (7) и (10) для гексана, $\lambda = 308$ нм и $\theta = \pi$, составляет величину:

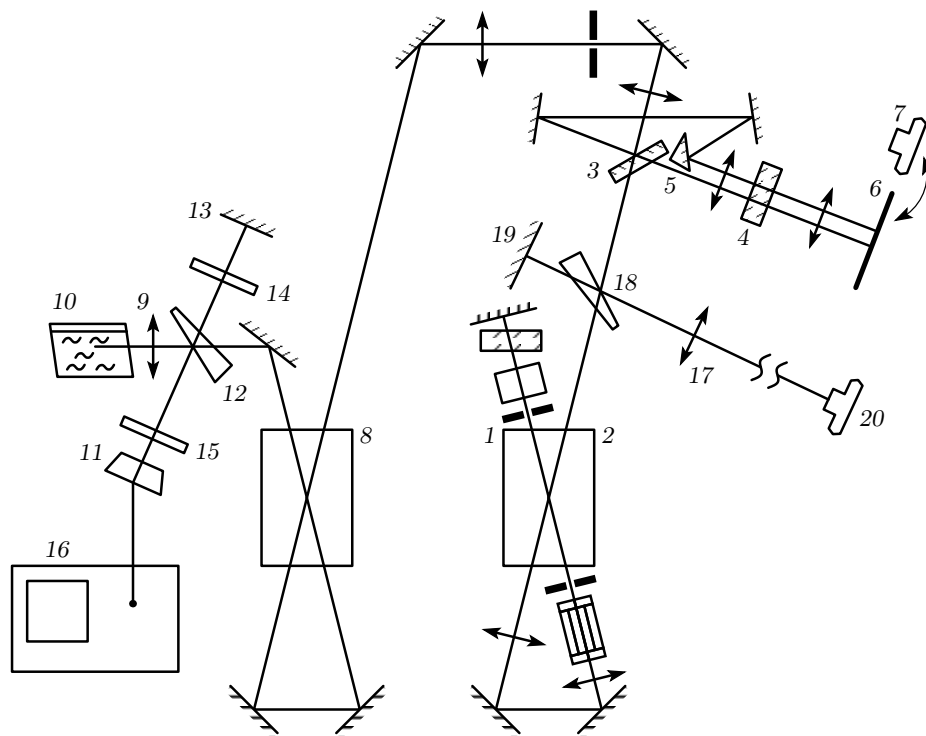


Рис. 1. Схема экспериментальной установки для изучения механизмов ВР излучения эксимерного ХеСl-лазера ($\lambda = 308$ нм) в гексане: 1, 2 — ЗГ и предусилитель на базе одного лазера ЭЛИ-91; 3, 12, 18 — светоделители; 4, 5 — эталон Фабри-Перо и призма схемы спектрального анализа; 6 — люминесцентный экран; 7, 20 — фотокамеры; 8 — двухпроходный усилитель на базе второго лазера ЭЛИ-91; 9 — линза с фокусным расстоянием F ; 10 — кювета с гексаном; 11 — фотодиод ФЭК-29КПУ (временное разрешение приблизительно 200 пс); 13, 19 — зеркала; 14, 15 — нейтральные фильтры; 16 — осциллограф С7-19 (полоса пропускания приблизительно 5 ГГц); 17 — длиннофокусная ($f_1 = 3$ м) линза схемы анализа расходимостей

$\Omega_T \approx -\Gamma_T \approx -0.01$ см $^{-1}$. Для уверенного разделения ВРМБ и линейного ВТР-2 спектральное разрешение должно быть $\leq 10^{-1}$ см $^{-1}$.

2. Для адекватного анализа физических процессов, происходящих при нелинейном взаимодействии лазерного излучения с веществом, требуется излучение, спектрально-ограниченное во времени и в пространстве. Для наносекундных импульсов этого можно достичь, работая в одномодовом режиме — на одной продольной и основной поперечной моде TEM_{00q} .

3. Нелинейно-оптические явления требуют высокой интенсивности излучения. С учетом конечности поперечного размера сфокусированного пучка, это равносильно требованию значительной мощности пучка.

Выполнения этих условий можно добиться, создавая установку по принципу задающий генератор (ЗГ)–усилители. ЗГ обеспечивает получение излучения, спектрально-ограниченного во времени и

в пространстве (с предельно малой расходимостью и предельно узким спектром), но с малой мощностью. Далее это излучение усиливается с сохранением пространственной и временной когерентности. Мощность усиленного излучения позволяет при фокусировке получить требуемую интенсивность.

Схема экспериментальной установки представлена на рис. 1. Используемая в ней эксимерная ХеСl-лазерная ($\lambda = 308$ нм) система построена по принципу ЗГ–усилители.

4.2. Задающий генератор

Подробное описание ЗГ приведено в работах [23–26].

Дифракционная расходимость излучения ЗГ обеспечивалась двумя диафрагмами радиусом $r_0 = 0.8$ мм, установленными по обе стороны активного объема.

Сужение спектра излучения ЗГ осуществлялось

при помощи спектрально-селективного резонатора. Он состоит из глухого плоского зеркала с одной стороны, и спектрального селектора — с другой. Работа селектора основана на интерференции, и его коэффициент отражения зависит от частоты. Впервые такой селектор был предложен в работе [27] для сужения спектра неодимового лазера, характеризующегося большим (примерно 1 мкс) временем жизни излучения в резонаторе. Для эксимерного ХеСл-лазера это время составляет приблизительно 20 нс. При длине резонатора около 1 м число обходов его излучением равно приблизительно 6. Этого недостаточно для селекции одной продольной моды. Поэтому применение оптической схемы работы [27] для эксимерного ХеСл-лазера ЭЛИ-91 не привело к успеху. Установка внутри резонатора ЗГ дополнительного эталона Фабри-Перо, работающего на пропускание, позволило выделить одну продольную моду.

Параметры излучения ЗГ приведены в третьем столбце табл. 3. Во втором столбце даны характеристики промышленного лазера ЭЛИ-91 в неселективном режиме.

4.3. Схема экспериментальной установки

Задающий генератор 1 и предусилитель 2 собраны на базе одного ХеСл-лазера ЭЛИ-91. Излучение ЗГ после расширения телескопом усиливалось в том же активном объеме приблизительно до 1 мДж. После двухпроходного усилителя 8 на базе второго ХеСл-лазера ЭЛИ-91 импульс имел гауссову форму, энергию около 3 мДж, длительность примерно 8 нс и спектральную ширину около $5 \cdot 10^{-3} \text{ см}^{-1}$. Параметры усиленного излучения приведены в последнем столбце табл. 3.

Усиленное излучение фокусировалось линзой 9 с фокусным расстоянием F в кювету 10 с гексаном. Нелинейное взаимодействие накачки со средой происходило в фокальной каустике линзы 9. Созданный в результате ВР назад пучок, совершал обратный обход оптической схемы, усиливаясь в усилителе 8.

Светоделитель 12 обеспечивал вывод прямого и обратного пучков в схему временного анализа. Временной ход интенсивностей падающих на линзу 9 усиленного прямого пучка и обратно рассеянного ВР пучка измерялся фотодиодом ФЭК-29КПУ 11 (временное разрешение около 200 пс) и осциллографом С7-19 16 (полоса пропускания около 5 ГГц).

Светоделитель 3 обеспечивал вывод прямого и обратного пучков в схему спектрального анализа, включающую эталон Фабри-Перо (ЭФП) 4 и призму 5, и создающую одновременно изображения времен-

ных спектров накачки и ВР пучка на люминесцентном экране 6 или фотокамере 7.

Светоделитель 18 обеспечивал вывод прямого и обратного пучков в схему анализа расходимостей. Расходимости определялись по размерам фокальных пятен, полученных при фокусировке линзой 17 с фокусным расстоянием $f_1 = 3 \text{ м}$.

4.4. Нелинейная жидкость и кюветы

В предшествующих работах [7–14] по изучению ВР и ОВФ излучения ближнего УФ-диапазона в качестве нелинейных сред применялись жидкости, известные как органические растворители для УФ-хроматографии: гексан, гептан, изооктан, этанол и др. Результаты, полученные для разных жидкостей, были близки. При этом гексан исследовался почти в каждой работе (в табл. 1 собраны результаты именно для гексана). Поэтому в настоящей работе был также выбран жидкий гексан (C_6H_{14}).

Были исследованы хроматографически чистый гексан (HPLC-grade, фирма «OLDRICH», США) и химически чистый гексан отечественного производства. Измеренный коэффициент линейного поглощения на $\lambda = 308 \text{ нм}$ составил $\alpha = 0.01 \pm 0.003 \text{ см}^{-1}$ для хроматографически и $\alpha = 0.046 \pm 0.003 \text{ см}^{-1}$ для химически чистого гексана.

Для экспериментов требовался гексан с увеличенным коэффициентом линейного поглощения. Это достигалось добавлением в него малого количества ацетона. В результате в экспериментах использовались кюветы с гексаном, коэффициент линейного поглощения которого на $\lambda = 308 \text{ нм}$ принимал значения: $\alpha = 0.01, 0.046, 0.08$ и 0.17 см^{-1} .

Нелинейная жидкость заливалась в стеклянную цилиндрическую кювету с окнами из плавленого кварца, наклоненными под углом 5° , чтобы избежать влияния паразитных отражений. Использовались два типа кювет с различной длиной: «короткие» (5 см) — для линзы 9 с $F = 11 \text{ см}$ и «длинные» (30 см) — для линзы 9 с $F = 50 \text{ см}$ или 100 см. Внутренний диаметр всех кювет был равен 40 мм.

Показатель преломления гексана на $\lambda = 308 \text{ нм}$ составлял $n \approx 1.4$, а его температурная производная составляла [18]

$$\left(\frac{\partial n}{\partial T}\right)_p = -53 \cdot 10^{-5} \text{ К}^{-1}.$$

Отсюда получаем для диэлектрической проницаемости и ее производной:

$$\varepsilon = n^2 \approx 2,$$

Таблица 3. Параметры лазерного излучения

Параметр	ЭЛИ-91 (промышленный)	ЗГ	После усиления
Ширина спектра	15 см ⁻¹	5 · 10 ⁻³ см ⁻¹	5 · 10 ⁻³ см ⁻¹
Апертура	10 мм × 20 мм	Ø1.6 мм	8 мм × 10 мм
Расходимость	10 ⁻² рад	6 · 10 ⁻⁴ рад	3 · 10 ⁻⁴ рад
Длительность импульса (FWHM)	20 нс	8 нс	8 нс
Энергия импульса	50 мДж	50 мкДж	3 мДж
Длина волны	308 нм	308 нм	308 нм

$$\left(\frac{\partial \varepsilon}{\partial T}\right)_p = \frac{\partial \varepsilon}{\partial n} \left(\frac{\partial n}{\partial T}\right)_p = 2n \left(\frac{\partial n}{\partial T}\right)_p \approx -1.5 \cdot 10^{-3} \text{ К}^{-1}.$$

5. ЭКСПЕРИМЕНТЫ

5.1. Эксперимент № 1. Исследование зависимости временного спектра ВР от интенсивности накачки

При фиксированной мощности усиленного импульса варьировать интенсивность излучения в кювете 10 (рис. 1) можно, во-первых, нейтральными фильтрами, а во-вторых, меняя фокусное расстояние F линзы 9.

Энергия усиленного импульса составляла около 3 мДж (табл. 3). Как показали эксперименты, условия возбуждения ВР в гексане таким импульсом при фокусировке любой линзой 9 близки к пороговым. Поэтому использование нейтральных фильтров, снижающих мощность, было затруднено. Интенсивность I_L накачки изменялась только за счет изменения фокусного расстояния F линзы 9.

Использовались три линзы 9 с $F = 11, 50$ и 100 см. Для каждой линзы с помощью схемы спектрального анализа (см. выше) снималась одна фотография сразу двух временных спектров — накачки и ВР пучка — в форме, удобной для измерения спектральных сдвигов. Затем линза заменялась и процедура повторялась. Использовались кюветы с гексаном только хроматографической ($\alpha = 0.01$ см⁻¹) чистоты.

На рис. 2 представлены три фотографии временных спектров для трех значений F , полученные при $\alpha = 0.01$ см⁻¹ = const. Видно, что в спектре ВР пучка при $F = 11$ см (а) присутствует одна компонента, причем заметный спектральный сдвиг между ней и

накачкой отсутствует (далее она будет называться несмещенной); при $F = 50$ см (б) присутствуют две компоненты — несмещенная и стоксово смещенная на 0.33 см⁻¹; при $F = 100$ см (в) присутствует одна компонента, стоксово смещенная на 0.33 см⁻¹.

5.2. Эксперимент № 2. Исследование зависимости временного спектра ВР от интенсивности накачки и коэффициента линейного поглощения

Использовался весь набор кювет с гексаном, различающихся коэффициентом линейного поглощения $\alpha = 0.01, 0.046, 0.08$ и 0.17 см⁻¹. Для каждого фиксированного α изучалась зависимость временного спектра ВР пучка от интенсивности накачки. При этом интенсивность I_L накачки изменялась за счет изменения фокусного расстояния F линзы 9. Оказалось, что при $\alpha = 0.046$ и 0.08 см⁻¹ зависимость спектра ВР пучка от F оставалась такой же, как при $\alpha = 0.01$ см⁻¹ (рис. 2а-в), при $\alpha = 0.17$ см⁻¹ в спектре ВР пучка присутствовала одна несмещенная компонента (как на рис. 2а) при всех значениях $F = 11, 50$ и 100 см.

5.3. Эксперимент № 3. Исследование зависимости качества ОВФ от интенсивности накачки

Измерялись угловые расходимости прямого лазерного пучка и обратного ВР пучка в месте расположения светоделителя 18 (рис. 1). Определялась зависимость расходимости обратного ВР пучка от интенсивности накачки. При этом интенсивность I_L накачки изменялась за счет изменения фокусного расстояния F линзы 9. Прохождение через усилитель 8

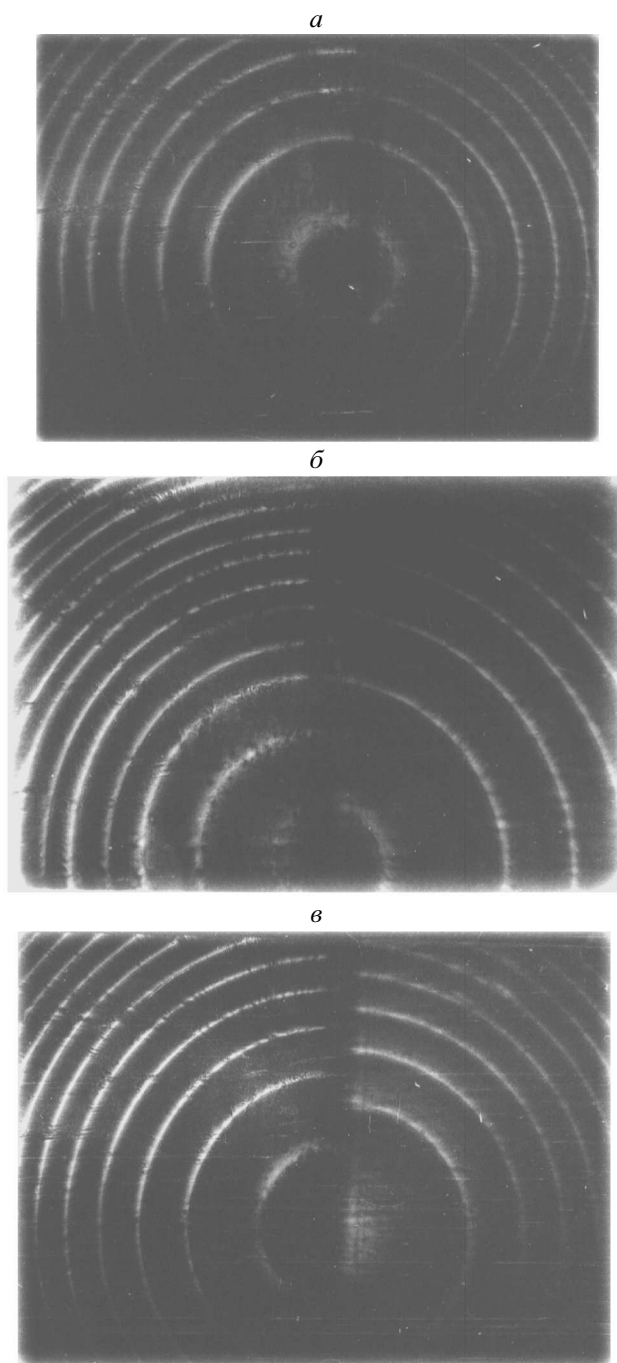


Рис. 2. Результаты экспериментов № 1 и № 2: три фотографии временных спектров для трех фокусных расстояний линзы 9: $F = 11$ (а), 50 (б) и 100 (в) см, полученные для гексана с фиксированным значением коэффициента линейного поглощения α . Каждая фотография состоит из двух частей: спектра накачки (справа) и спектра ВР пучка (слева). Область свободной дисперсии эталона Фабри-Перо 0.66 см^{-1} . Представленные на фотографиях (а–в) зависимости спектра ВР от F оставались неизменной для трех значений $\alpha = 0.01, 0.046$ и 0.08 см^{-1}

портит качество пучка, увеличивая его угловую расходимость примерно в три раза. Такой эксперимент давал информацию о качестве ОВФ: при «хорошем» ОВФ пространственный спектр обратного ВР пучка должен снова стать свободным от возмущений, внесенных усилителем 8. Использовались кюветы с гексаном только хроматографической ($\alpha = 0.01 \text{ см}^{-1}$) чистоты, чтобы избежать влияния теплового воздействия из-за линейного поглощения.

На рис. 3 представлены созданные линзой 17 фотографии фокальных пятен от прямого лазерного пучка (а) и от обратного ВР пучка для двух значений $F = 100$ см (б) и 11 см (в). Поскольку в дальней зоне фазовые aberrации переходят в амплитудные, расходимости пучков могут быть определены по этим фотографиям из выражения

$$\theta \approx d/f_1, \quad (12)$$

где θ — искомая расходимость, d — диаметр фокального пятна, $f_1 = 3$ м — фокусное расстояние линзы 17. В итоге измеренные расходимости составили $\theta \approx 3 \cdot 10^{-4}$ рад для прямого лазерного пучка (рис. 3а), $\theta \approx 3 \cdot 10^{-4}$ рад для обратного ВР пучка при $F = 100$ см (рис. 3б) — «хорошее» ОВФ и $\theta \approx 2 \cdot 10^{-3}$ рад для обратного ВР пучка при $F = 11$ см (рис. 3в) — «плохое» ОВФ.

5.4. Эксперимент № 4. Исследование временного хода интенсивностей импульсов

При изучении ВР важно знать временное поведение импульсов, поскольку нелинейное взаимодействие может приводить к изменению их амплитуд, длительностей и форм. Импульсы регистрировались с помощью схемы временного анализа (см. выше). Коэффициент отражения от ОВФ зеркала определялся как отношение максимальных интенсивностей обратного ВР пучка и усиленного прямого пучка. Использовался весь набор кювет с гексаном, различающихся коэффициентом линейного поглощения $\alpha = 0.01, 0.046, 0.08$ и 0.17 см^{-1} .

Оказалось, что интенсивность обратно рассеянного ВР импульса имеет почти гауссову форму и длительность около 7 нс (FWHM). Небольшое укорочение ВР импульса по сравнению с накачкой может быть связано с пороговым характером ВР.

Коэффициент отражения от ОВФ зеркала достигал почти 20% как для $F = 11$ см, так и для $F = 100$ см при $\alpha = 0.01 \text{ см}^{-1}$ и уменьшался с ростом α . При этом коэффициент отражения возрастал при смещении фокальной перетяжки внутри кюветы в сторону входного окна.

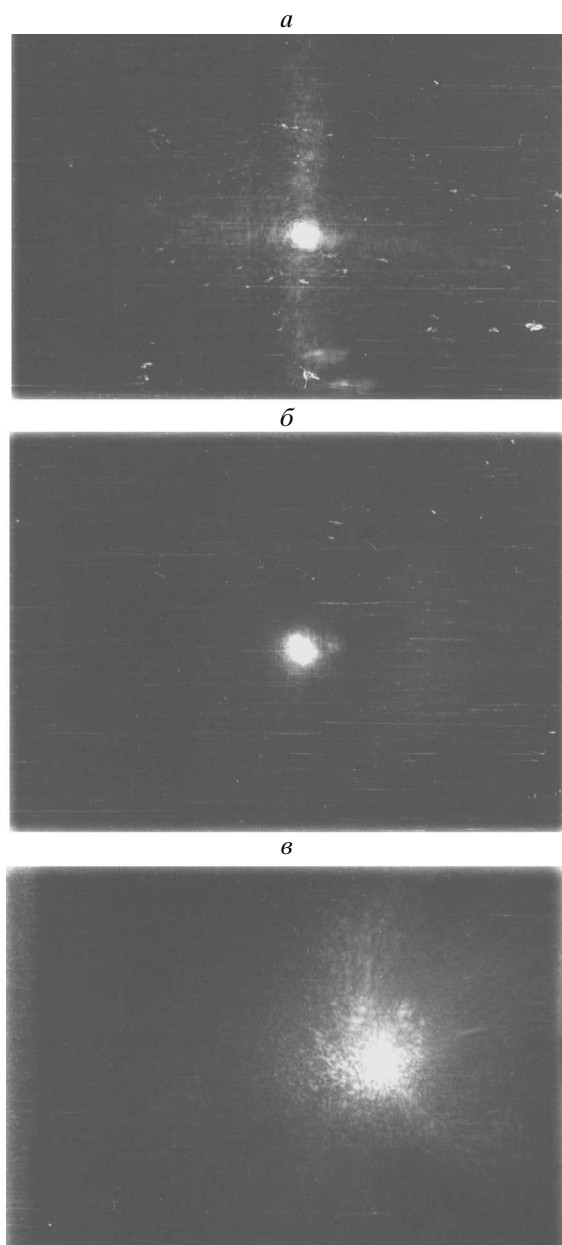


Рис. 3. Результаты эксперимента № 3: фотографии фокальных пятен, созданных линзой 17 с фокусным расстоянием $f_1 = 3$ м, для прямого лазерного пучка (а) и обратного ВР пучка в случае $F = 100$ см (б) («хорошее» ОВФ) и $F = 11$ см (в) («плохое» ОВФ). Фотографии б, в получены для гексана с фиксированным значением коэффициента линейного поглощения $\alpha = 0.01$ см $^{-1}$

5.5. Результаты наших экспериментов, требующие теоретического анализа

Выпишем результаты наших экспериментов №№ 1–4 для гексана и $\lambda = 308$ нм, которые требуют

дополнительного теоретического анализа.

1. Наличие в спектре ВР пучка при $F = 50$ см и $\alpha = 0.01$ – 0.08 см $^{-1}$ двух компонент: несмещенной (с точностью 0.02 см $^{-1}$) и стоксово смещенной на 0.33 см $^{-1}$ (рис. 2б).

2. Зависимость спектрального состава ВР пучка при $\alpha = 0.01$ – 0.08 см $^{-1}$ от фокусного расстояния F линзы 9:

2.1) исчезновение несмещенной компоненты при увеличении F от 50 до 100 см (рис. 2б, в);

2.2) исчезновение смещенной компоненты при уменьшении F от 50 до 11 см (рис. 2а, б).

3. Зависимость спектрального состава ВР пучка от коэффициента α линейного поглощения гексана:

3.1) исчезновение смещенной компоненты для $F = 50$ и 100 см при увеличении α от 0.08 см $^{-1}$ до 0.17 см $^{-1}$;

3.2) появление несмещенной компоненты для $F = 100$ см при увеличении α от 0.08 до 0.17 см $^{-1}$.

4. Существенное увеличение расходимости ВР пучка при уменьшении F от 100 до 11 см для $\alpha = 0.01$ см $^{-1} = \text{const}$ (рис. 3б, в).

6. АНАЛИЗ И ИНТЕРПРЕТАЦИЯ ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫХ РЕЗУЛЬТАТОВ

6.1. Особенности возбуждения ВР в наших экспериментах

В соответствии с формулой (1) порог возбуждения ВР определяется выражением [3, 17]

$$(I_L GL)^{thr} \approx 25\text{--}30. \quad (13)$$

Если величина полного инкремента $I_L GL$ для некоторого механизма ВР меньше пороговой (13), то этот механизм не дает вклада в суммарную картину ВР, наблюдаемую в эксперименте.

Световой импульс длительностью $\tau \approx 8$ нс имеет протяженность $L_p \approx 2.4$ м. Усиленный лазерный пучок длительностью около 8 нс имел энергию около 3 мДж, поперечный размер приблизительно 1 см и расходимость $\theta \approx 3 \cdot 10^{-4}$ рад (табл. 3). Этот пучок фокусировался линзами 9, фокусные расстояния F которых изменялись от 11 до 100 см, в кювету с нелинейной жидкостью. Фокальные каустики имели длину от $L \approx 0.6$ мм ($F = 11$ см) до $L \approx 6$ см ($F = 100$ см). При любых F выполнялось условие «длинного» импульса: $L_p \gg L$. В каждый момент времени можно считать, что на всей длине L фокальной каустики, с достаточной точностью равной длине нелинейного взаимодействия, интенсивность поля одинакова.

Для упрощения анализа будем предполагать, что лазерный пучок имеет равномерное распределение интенсивности I_L в фокальной каустике диаметром d_f и длиной L . Можно показать, что при фокусировке линзой лазерного пучка с фиксированными мощностью W_L , радиусом R_L и расходимостью θ_L величина произведения $I_L L$ не зависит от фокусного расстояния F этой линзы. Действительно, имеем

$$I_L \approx \frac{W_L}{S_f}, \quad (14)$$

$$S_f = \frac{\pi(d_f)^2}{4} \approx \frac{\pi(F\theta_L)^2}{4}, \quad (15)$$

$$L \approx \frac{d_f}{\theta_0/2} \approx \frac{2F\theta_L}{2R_L/F} = \frac{F^2\theta_L}{R_L}, \quad (16)$$

где W_L , R_L и θ_L не зависят от F , $d_f \approx F\theta_L$ и $S_f = \pi(d_f)^2/4$ — диаметр и площадь поперечного сечения фокальной каустики, $\theta_0 \approx 2R_L/F$ — геометрический угол схождения пучка к фокусу после линзы. Получаем

$$I_L \propto (F)^{-2}, \quad L \propto (F)^2 \rightarrow I_L L \approx \text{const}. \quad (17)$$

Принципиально важно, что в наших экспериментах величина произведения $I_L L$ была одинаковой для всех значений фокусного расстояния F линзы 9 и составляла

$$I_L L \approx 1.4 \cdot 10^3 \text{ МВт/см}. \quad (18)$$

В наших экспериментах варьировались два параметра — фокусное расстояние F линзы 9 и коэффициент α линейного поглощения гексана. Значит, с точки зрения возбуждения ВР (при учете только линейного поглощения) единственным варьируемым параметром, влияющим через G на полный инкремент $I_L G L$, являлся коэффициент α . Если механизм ВР не связан с поглощением, то для него G не зависит от α , и условия возбуждения в наших экспериментах не изменяются.

Поперечный диаметр усиленного лазерного пучка, падающего на линзу 9, составлял $D_L \leq 1$ см (табл. 3). Фокусное расстояние линзы 9 принимало значения $F > 10$ см. Значит, выполнялось соотношение $D_L/F < 0.1$, и искажения фокальной каустики вследствие сферических aberrаций линзы 9 и скачка показателя преломления на границе воздух — кювета не было.

6.2. Анализ динамики спектральных компонент ВР при учете только линейного поглощения

6.2.1. Полные инкременты усиления $I_L G L$ для линейного ВТР-2 и ВРМБ

Сначала оценим времена релаксации линейного ВТР-2 и ВРМБ.

Время релаксации температурной решетки определяется выражениями (7), (10) и для гексана может быть представлено следующим образом [28]:

$$\tau_T = \Gamma_T^{-1} \approx \frac{1.4 \cdot 10^{-7} \lambda^2}{[2 \sin(\theta/2)]^2} \text{ с}, \quad (19)$$

где λ — длина волны в мкм, θ — угол рассеяния. Для $\lambda = 0.308$ мкм и $\theta = \pi$ рассчитанное по формуле (19) время релаксации составляет $\tau_T \approx 3$ нс. Несмотря на то что это время почти в три раза меньше, чем длительность накачки ($\tau \approx 8$ нс), пользоваться стационарной теорией в полной мере нельзя. Поскольку наша цель — не достижение максимальной эффективности при линейном ВТР-2, а лишь оценка возможности его возбуждения в экспериментах, для упрощения мы будем пользоваться стационарным параметром усиления G_T , который определяется выражением (9).

Длина волны Λ_T температурной решетки при ВР назад ($q_T \approx 2k_L$, $n \approx 1.4$) равна

$$\Lambda_T = \frac{2\pi}{q_T} \approx \frac{2\pi}{2k_L} = \frac{n\lambda}{2} \approx 2 \cdot 10^{-7} \text{ м}. \quad (20)$$

Время выравнивания давления на Λ_T равно ($v \approx 10^3$ м/с — скорость звука)

$$\tau_{pr} = \frac{\Lambda_T}{v} \approx 2 \cdot 10^{-10} \text{ с}. \quad (21)$$

Поскольку $\tau_{pr} \ll \tau$, при расчете G_T можно пользоваться величиной

$$\left(\frac{\partial \varepsilon}{\partial T} \right)_p \approx -1.5 \cdot 10^{-3} \text{ К}^{-1}.$$

Время релаксации гиперзвуковой решетки $\tau_B \approx (\Gamma_B)^{-1}$, вычисленное по формуле (5) с учетом (7) и работы [16], для гексана ($\lambda = 0.308$ мкм и $\theta = \pi$) составляет $\tau_B \approx 0.3$ нс. Поскольку $\tau_B \ll \tau$, можно пользоваться стационарной теорией ВРМБ. Тогда параметр усиления G_B определяется выражением (6).

Параметры усиления G_T и G_B (оптимизированные по частоте) и полные инкременты $I_L G_T L$ и $I_L G_B L$ линейного ВТР-2 и ВРМБ, рассчитанные

для гексана ($\lambda = 308$ нм и $\theta = \pi$), для различных коэффициентов линейного поглощения α , но при постоянном произведении

$$I_L L \approx 1.4 \cdot 10^3 \text{ МВт/см},$$

соответствующие условиям наших экспериментов, приведены в табл. 4.

Из теоретических результатов (табл. 4) можно сделать следующие выводы.

Во-первых, зависящий от α (через G_T) полный инкремент усиления линейного ВТР-2 $I_L G_T L$ значительно меньше порогового значения (13) как для химически ($\alpha = 0.046 \text{ см}^{-1}$), так и тем более для хроматографически ($\alpha = 0.01 \text{ см}^{-1}$) чистого гексана. Пороговая величина полного инкремента линейного ВТР-2 достигается при $\alpha \approx 0.1 \text{ см}^{-1}$.

Во-вторых, не зависящий от α полный инкремент усиления ВРМБ $I_L G_B L$ превышает пороговое значение (13) при любых значениях α .

Поэтому в соответствии с известной теорией ВР, учитывающей только линейное поглощение, в наших экспериментальных условиях ВРМБ должно наблюдаться всегда, а линейное ВТР-2 не наблюдаться никогда ни для химически, ни для хроматографически чистого гексана.

6.2.2. Анализ смещенной спектральной компоненты ВР

Поскольку инкремент усиления ВРМБ $I_L G_B L$ превышает порог (табл. 4) и величина экспериментально измеренного спектрального сдвига смещенной компоненты (0.33 см^{-1}) (рис. 2б, в) полностью согласуется с теоретической формулой (8) для ВРМБ в гексанах при $\lambda = 308$ нм и $\theta = \pi$ (табл. 2), очевидно, что смещенная компонента в спектре ВР пучка соответствует механизму ВРМБ.

Чтобы объяснить отсутствие смещенной компоненты (рис. 2а) в гексанах хроматографической ($\alpha = 0.01 \text{ см}^{-1}$) и химической ($\alpha = 0.046 \text{ см}^{-1}$) чистоты, оценим возможность сбоя ВРМБ.

Единственным механизмом, способным привести к подавлению ВРМБ в этих условиях, является эффект нарушения фазового синхронизма для ВРМБ в поглощающих средах [3, 4]. На рис. 4 представлена полученная численно по формуле (11) зависимость коэффициента преобразования

$$\eta = \frac{I_S(L)}{I_L(L)}$$

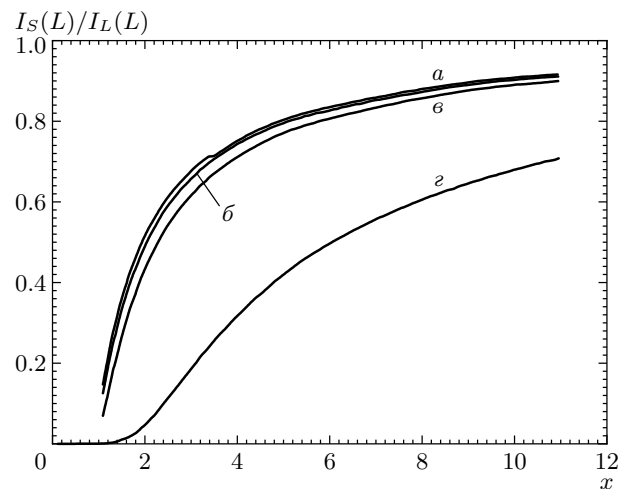


Рис. 4. Теоретическая зависимость коэффициента преобразования накачки в ВРМБ волну $\eta = I_S(L)/I_L(L)$ от относительного превышения порогового значения инкремента усиления $x = I_L G_B L / D$ в гексанах, $\lambda = 0.308$ мкм. Коэффициент линейного поглощения $\alpha = 0.0001$ (а), 0.03 (б), 0.1 (в) см^{-1}

накачки в ВРМБ волну от относительного превышения порогового значения инкремента усиления

$$x = \frac{I_L G_B L}{D}$$

для различных значений коэффициента α линейного поглощения гексана при $\lambda = 0.308$ мкм. Видно, что критическая величина, соответствующая графику (з), составляет $\alpha_{CR} \approx 0.1 \text{ см}^{-1}$.

Поскольку коэффициенты α линейного поглощения гексана химической и тем более хроматографической чистоты меньше, чем $\alpha_{CR} \approx 0.1 \text{ см}^{-1}$, подавление ВРМБ вследствие нарушения фазового синхронизма (при учете только линейного поглощения) в этих случаях не должно иметь места.

6.2.3. Анализ несмещенной спектральной компоненты ВР

Известны [17, 29] другие механизмы ВР света, кроме бриллюэновского, способные приводить к ОВФ. Поскольку экспериментально измеренная величина спектрального сдвига несмещенной компоненты относительно накачки с учетом экспериментальной ошибки не превышает 0.02 см^{-1} , в нашем случае следует учесть вынужденное температурное рассеяние (ВТР-1 и линейное ВТР-2) и вынужденное рассеяние крыла линии Рэлея (ВРКЛР).

Таблица 4. Параметры усиления G_T и G_B и полные инкременты $I_L G_T L$ и $I_L G_B L$ линейного ВТР-2 и ВРМБ, рассчитанные для различных α , но при постоянном произведении $I_L L \approx 1.4 \cdot 10^3$ МВт/см в гексане, $\lambda = 308$ нм, $\theta = \pi$ (условия наших экспериментов)

α , см ⁻¹	G_T , см/МВт	Полный инкремент линейного ВТР-2 $I_L G_T L$	G_B , см/МВт	Полный инкремент ВРМБ $I_L G_B L$
0.01	0.0024	3.3	0.022	31
0.046	0.011	15	0.022	31
0.1	0.024	33	0.022	31

Вследствие того что молекулярная анизотропия жидкого гексана мала [30], возбуждение ВРКЛР невозможно. Типичное значение параметра усиления G_{RW} для ВРКЛР не превышает величины [29]:

$$(G_{RW})_{max} \approx 10^{-3} \text{ см/МВт.}$$

Тогда для наших экспериментальных условий ($I_L L \approx 1.4 \cdot 10^3$ МВт/см) полный инкремент ВРКЛР $I_L G_{RW} L \approx 1.4$ существенно меньше порогового значения (13).

Рассмотрим вынужденное температурное рассеяние, обусловленное электрокалорическим эффектом — ВТР-1. В соответствии с [29] отношение параметров усиления G_B для ВРМБ и G_{RL} для ВТР-1 имеет вид

$$\frac{G_{RL}}{G_B} = \frac{\gamma^R \Gamma_B}{\gamma^e \Gamma_{RL}} = \frac{(\delta - 1)c\Gamma_B}{4\pi v \omega_2}, \quad (22)$$

где ω_2 — частота ВР волны,

$$\begin{aligned} \gamma^e &= \rho \left(\frac{\partial \epsilon}{\partial \rho} \right)_T, \\ \gamma^R &= \frac{(\delta - 1)c\gamma^e \Gamma_{RL}}{4\pi v \omega_2}, \\ \delta &= \frac{C_p}{C_v}, \end{aligned}$$

v — скорость звука.

Для гексана и $\lambda = 308$ нм имеем $\delta = 1.4$, $v \approx 10^3$ м/с, $\Gamma_B \approx 3 \cdot 10^9$ Гц, $\omega_2 \approx 10^{15}$ Гц. Тогда

$$G_{RL}/G_B \approx 2 \cdot 10^{-2}.$$

Отсюда, с учетом данных табл. 4 для G_B , следует невозможность достижения порогового условия (13) для ВТР-1 в наших экспериментах ($I_L L \approx 1.4 \cdot 10^3$ МВт/см), поскольку $I_L G_{RL} L \approx 0.6$.

Физические механизмы ВРКЛР и ВТР-1 не связаны с поглощением излучения в среде. Значит, как и для ВРМБ, условия их возбуждения должны оставаться постоянными при изменении α (табл. 4). Следовательно, для ВРМБ, ВРКЛР и ВТР-1 условия возбуждения в наших экспериментах ($I_L L \approx \text{const}$) не изменялись.

Физический механизм линейного ВТР-2 связан с поглощением, а условия его возбуждения при $I_L L \approx \text{const}$ изменялись вместе с α . В частности (табл. 4), в наших экспериментальных условиях возбуждение линейного ВТР-2 возможно только при $\alpha > 0.1$ см⁻¹.

6.3. Анализ ухудшения качества ОВФ при учете только линейного поглощения

Будем рассматривать цилиндрически-симметричную задачу. Волна накачки с плоским фронтом, пространственно-неоднородной интенсивностью $I_L(R, t)$ (R — поперечный радиус) и длительностью τ поступает в момент $t = 0$ на границу $z = L$ нелинейно-оптической среды и распространяется в направлении границы $z = 0$. В этой среде возбуждается фазово-сопряженная накачке обратная ВР волна с интенсивностью $I_S \ll I_L$, которая распространяется от $z = 0$ в направлении $z = L$. Среда является линейно поглощающей с коэффициентом α . Предположим, что за время t ($t \leq \tau$) теплопроводность не оказывает влияния на перераспределение температуры на поперечном размере пучка. Тогда приращение температуры за время t равно

$$\Delta T(R, t) = \frac{1}{\rho C_p} \int_0^t \alpha I_L(R, \tau) d\tau = \frac{\alpha}{\rho C_p} \int_0^t I_L(R, \tau) d\tau. \quad (23)$$

Показатель преломления среды зависит от температуры, и его пространственно-однородное распределение n_0 будет искажено:

$$n = n_0 + \delta n(T),$$

где нелинейная добавка является функцией R и t :

$$\delta n(R, t) = \frac{\partial n}{\partial T} \Delta T(R, t) = \frac{\partial n}{\partial T} \frac{\alpha}{\rho C_p} \int_0^t I_L(R, \tau) d\tau. \quad (24)$$

Волновое число в возмущенной среде равно

$$k = k_0 + \delta k = \frac{\omega}{c} (n_0 + \delta n),$$

а нелинейный набег фазы волны на длине L равен

$$\Delta \Phi(R, t) = \delta k L = \frac{\omega L}{c} \delta n(R, t) = \frac{\omega L}{c} \left(\frac{\partial n}{\partial T} \right) \frac{\alpha}{\rho C_p} \int_0^t I_L(R, \tau) d\tau. \quad (25)$$

Из соотношения (25) видно, что волна с плоским фронтом при $z = 0$ приобретает пространственно-неоднородный по R нелинейный фазовый набег, т.е. при $z = L$ фронт уже не плоский. Величина этого нелинейного фазового набегает зависит от t : она равна нулю при $t = 0$ и максимальна в конце импульса.

Такого рода динамические искажения пучка накачки приведут к тому, что обратная ВР волна будет возбуждаться не пучком, расходимость которого близка к дифракционной, а искаженным пучком. При этом фазово-сопряженная к накачке ВР волна также будет, очевидно, иметь искаженный волновой фронт.

В формулу (25) для нелинейного фазового набегает на длине L , на самом деле, входит произведение $I_L L$, которое, как было показано выше, остается неизменным при изменении фокусного расстояния F . Поэтому линейное поглощение с $\alpha = 0.01 \text{ см}^{-1} = \text{const}$ не может объяснить не только ухудшения качества ОВФ при ВР, но даже значительного усиления нелинейной фазовой самомодуляции пучка накачки в гексане при уменьшении фокусного расстояния от $F = 100 \text{ см}$ до $F = 11 \text{ см}$ (рис. 3б, в).

6.4. Учет двухфотонного поглощения в теории ВР

Таким образом, известная теория ВР, учитывающая только линейное поглощение, не может объяснить всех наших экспериментальных результатов по изучению механизмов ВР излучения эксимерного ХеСл-лазера ($\lambda = 308 \text{ нм}$) в гексане. В частности, во-первых, линейное поглощение с $\alpha < 0.1 \text{ см}^{-1}$ не обеспечивает возбуждения линейного ВТР-2, значит, вопрос о происхождении несмещенной спектральной компоненты для $\alpha < 0.1 \text{ см}^{-1}$ на рис. 2а, б остается открытым. Во-вторых, линейное поглощение с $\alpha < 0.1 \text{ см}^{-1}$ не обеспечивает подавления ВРМБ вследствие нарушения фазового синхронизма, значит, вопрос о причине исчезновения ВРМБ-компоненты при уменьшении фокусного расстояния линзы 9 от $F = 50 \text{ см}$ до $F = 11 \text{ см}$ для $\alpha < 0.1 \text{ см}^{-1}$ (рис. 2а, б) также остается открытым. В-третьих, линейное поглощение с $\alpha = 0.01 \text{ см}^{-1} = \text{const}$ не может объяснить значительного ухудшения качества ОВФ, происходящего только за счет уменьшения фокусного расстояния линзы 9 от $F = 100 \text{ см}$ до $F = 11 \text{ см}$ (рис. 3б, в).

Известно, что для гексана следует ожидать двухфотонного поглощения в диапазоне $\lambda < 400 \text{ нм}$ [31]. Предположим, что на результаты наших экспериментов по изучению механизмов ВР излучения эксимерного ХеСл-лазера ($\lambda = 308 \text{ нм}$) в гексане существенное влияние оказывало двухфотонное поглощение. В частности, сделаем предположение, что наблюдаемая в экспериментальном спектре ВР несмещенная спектральная линия (рис. 2а, б) соответствует механизму ВТР-2, обусловленному нагревом за счет двухфотонного поглощения. В дальнейшем этот новый механизм ВР будем называть для краткости «двухфотонным ВТР-2», в отличие от известного механизма ВТР-2, обусловленного нагревом за счет линейного (однофотонного) поглощения — «линейного ВТР-2».

Динамика излучения при двухфотонном поглощении описывается уравнением [29, 32]

$$\frac{dI}{dz} = -\gamma I^2, \quad (26)$$

где I — интенсивность излучения, распространяющегося вдоль оси z , γ — коэффициент двухфотонного поглощения. Его решение имеет вид

$$I(z) = \frac{I_0}{1 + I_0 \gamma z}, \quad (27)$$

где $I_0 = I(0)$. В случае слабого поглощения ($I_0\gamma z \ll 1$) это решение приводится к виду

$$I(z) = I_0(1 - I_0\gamma z). \quad (28)$$

В наших экспериментальных условиях $I_L L \approx 1.4 \cdot 10^3$ МВт/см и $\gamma \approx 10^{-4}$ см/МВт (см. ниже), получаем $I_L\gamma L < 0.2$. Значит, можно пользоваться соотношением (28).

Динамика излучения при слабом линейном поглощении с коэффициентом α описывается уравнением

$$I(z) = I_0(1 - \alpha z). \quad (29)$$

Из (28) и (29) следует, что в наших экспериментальных условиях величина $I_L\gamma$ эквивалентна коэффициенту α . Можно ввести суммарный коэффициент поглощения α_Σ :

$$\alpha_\Sigma = \alpha + I_L\gamma. \quad (30)$$

Величину $I_L\gamma$ можно рассматривать как двухфотонную составляющую в суммарном коэффициенте поглощения α_Σ .

Важно отметить, что здесь речь идет только о количественной эквивалентности. Процессы линейного (однофотонного) и двухфотонного поглощения могут считаться одинаковыми только с точки зрения конечного результата резонансного взаимодействия электромагнитного поля со средой — необратимого преобразования энергии поля в нагрев среды. Что касается исходного этапа резонансного взаимодействия, то здесь линейное и двухфотонное поглощения различаются как квантовыми схемами, так и матричными элементами оператора дипольного момента, входящими в выражения для сечений поглощения. Таким образом, линейное ВТР-2 и двухфотонное ВТР-2 имеют разную природу и похожи в грубом приближении, учитывающем только конечный этап термализации электромагнитной энергии — переход флуктуаций температуры во флуктуации диэлектрической проницаемости.

6.5. Определение сечения двухфотонного поглощения по порогу возбуждения двухфотонного ВТР-2

Как указывалось ранее, при $I_L L = \text{const}$ линейное ВТР-2 является пороговым по α , т.е. оно может возбуждаться только при $\alpha \geq \alpha_{sts}^{thr}$. По аналогии с линейным ВТР-2, двухфотонное ВТР-2 тоже должно быть пороговым, но не по α , а по величине $I_L\gamma$. Значит, при $I_L L = \text{const}$ и неизменных параметрах среды $\alpha, \gamma = \text{const}$, увеличение интенсивности I_L накачки за счет уменьшения F должно

совершенно по-разному отразиться на механизмах линейного ВТР-2 и двухфотонного ВТР-2. А именно, величина полного инкремента ($I_L G_T L$) линейного ВТР-2 останется неизменной, так как при этом $G_T \propto \alpha = \text{const}$. В то же время величина полного инкремента ($I_L G_T L$) двухфотонного ВТР-2 увеличится, так как при этом $G_T \propto (I_L\gamma) \propto I_L$.

Возникает реальная возможность экспериментального разделения линейного ВТР-2 и двухфотонного ВТР-2. Действительно, если взять среду с фиксированным α , таким что $\alpha \ll \alpha_{sts}^{thr}$, и при $I_L L = \text{const}$ начать плавно увеличивать I_L , то при $I_L\gamma \approx \alpha_{sts}^{thr}$ в спектре ВР должна появиться компонента «чистого» двухфотонного ВТР-2.

Определим величину $I_L\gamma$ по порогу появления двухфотонного ВТР-2. В соответствии с табл. 4, инкремент ВТР-2 достигает порога при суммарном коэффициенте поглощения

$$\alpha_\Sigma^{thr} \approx \alpha_{sts}^{thr} \approx 0.1 \text{ см}^{-1}.$$

Из наших экспериментов следует, что для $\alpha = 0.01 \text{ см}^{-1}$ появление несмещенной спектральной компоненты ВТР-2 (рис. 2б) соответствует интенсивности накачки $I_L^{thr} \approx 10^9 \text{ Вт/см}^2$ ($F = 50 \text{ см}$). Действительно, для меньшей интенсивности $I_L \approx 2.5 \cdot 10^8 \text{ Вт/см}^2$ ($F = 100 \text{ см}$) несмещенная компонента отсутствует (рис. 2в), значит, порог ВТР-2 еще не достигнут. Вследствие малости α ,

$$\alpha = 0.01 \text{ см}^{-1} \ll \alpha_{sts}^{thr} \approx 0.1 \text{ см}^{-1},$$

очевидно, что наблюдаемая несмещенная спектральная компонента ВТР-2 (рис. 2б) может быть обусловлена только двухфотонным поглощением. Значит, при такой пороговой интенсивности $I_L^{thr} \approx 10^9 \text{ Вт/см}^2$ получаем оценку

$$\alpha_\Sigma^{thr} = \alpha + (I_L^{thr}\gamma) \approx (I_L^{thr}\gamma) \approx \alpha_{sts}^{thr} \approx 0.1 \text{ см}^{-1}.$$

Коэффициент двухфотонного поглощения γ для фиксированной длины волны λ является константой среды, в данном случае — хроматографически чистого гексана. Зная величину $I_L\gamma$ для одного значения I_L , можно легко вычислить $I_L\gamma$ и для других I_L . Величины $I_L\gamma$, рассчитанные для интенсивностей I_L накачки, соответствующих трем нашим экспериментальным значениям фокусного расстояния F линзы 9, приведены в табл. 5.

По величине $I_L\gamma$ можно определить значение ко-

Таблица 5. Двухфотонная составляющая $I_L\gamma$ в суммарном коэффициенте поглощения излучения с $\lambda = 308$ нм в гексане для трех экспериментальных значений фокусного расстояния F линзы 9 и соответствующих интенсивностей I_L накачки

F , см	I_L , Вт/см ²	$I_L\gamma$, см ⁻¹
11	$\geq 10^{10}$	≥ 1.0
50	10^9	≈ 0.1 (эксперимент)
100	$2.5 \cdot 10^8$	≈ 0.025

эффициента γ двухфотонного поглощения гексана для $\lambda = 308$ нм:

$$\gamma = \frac{I_L\gamma}{I_L} = \frac{0.1 \text{ см}^{-1}}{10^9 \text{ Вт/см}^2} = 10^{-10} \text{ см/Вт} = 10^{-4} \text{ см/МВт}. \quad (31)$$

Можно также определить значение сечения двухфотонного поглощения σ_2 нелинейной среды. Действительно,

$$I_L\gamma = \sigma_2 I_L N, \quad (32)$$

где I_L — интенсивность (фотон \cdot см⁻² \cdot с⁻¹), $N = \rho/M$ — молекулярная плотность (ρ — плотность, M — молекулярная масса). Для гексана (C₆H₁₄) $N \approx 4 \cdot 10^{21}$ см⁻³. При $\lambda = 0.308$ мкм ($\omega = 10^{15}$ Гц) энергия фотона $\hbar\omega \approx 4$ эВ $\approx 6.4 \cdot 10^{-19}$ Дж. С учетом значений $I_L\gamma = 0.1$ см⁻¹, $I_L = 10^9$ Вт/см² (табл. 5) получаем

$$\sigma_2 = \frac{\hbar\omega I_L\gamma}{I_L N} \approx (2 \pm 1) \cdot 10^{-50} \text{ см}^4 \cdot \text{с}. \quad (33)$$

Точность определения σ_2 оценивалась следующим образом:

$$\frac{\delta\sigma_2}{\sigma_2} = \frac{\delta\alpha^{thr}}{\alpha^{thr}} + \frac{\delta I_L}{I_L} = 0.2 + 0.3 = 0.5, \quad (34)$$

где α^{thr} — пороговая для возбуждения ВТР-2 величина коэффициента линейного поглощения.

Для сравнения, характерное значение сечения для прямой двухфотонной нерезонансной ионизации многоэлектронных атомов при не очень высокой напряженности поля, когда не играет существенной роли ни процесс надпорогового поглощения, ни процесс образования многозарядных ионов, ни процесс возмущения атомного спектра [33, 34], составляет

$$\sigma_2^i \approx 10^{-49} - 10^{-48} \text{ см}^4 \cdot \text{с}.$$

Известно, что процесс прямой двухфотонной нерезонансной ионизации характеризуется значениями σ_2^i обычно значительно меньшими, чем в случае связанно-связанных переходов в атомах или молекулах в центре линии поглощения. Тот факт, что полученная из эксперимента величина σ_2 меньше характерной для двухфотонной ионизации, подтверждает реальность предположения об определяющем вкладе двухфотонного поглощения в инкремент ВТР-2. Относительно малая величина σ_2 может быть связана с тем, что конечный уровень в схеме двухфотонного поглощения в нашем случае ($\lambda/2 = 154$ нм, гексан) соответствует крылу линии поглощения.

6.6. Нарушение фазового синхронизма для ВРМБ с учетом двухфотонного поглощения

Из табл. 5, связывающей двухфотонную составляющую $I_L\gamma$ в суммарном коэффициенте поглощения (30) с фокусным расстоянием F линзы 9, становится понятной причина отсутствия ВРМБ компоненты в спектре ВР хроматографически чистого гексана ($\alpha = 0.01$ см⁻¹) для линзы 9 с $F = 11$ см (рис. 2а). Действительно, в этом случае интенсивность накачки $I_L \geq 10^{10}$ Вт/см² и величина суммарного коэффициента поглощения (табл. 5)

$$\alpha_\Sigma = \alpha + I_L\gamma \approx I_L\gamma \geq 1.0 \text{ см}^{-1}$$

существенно превышает теоретическую критическую величину $\alpha_{CR} \approx 0.1$ см⁻¹ нарушения фазового синхронизма для ВРМБ (рис. 4). Нагрев за счет двухфотонного поглощения становится достаточным для подавления ВРМБ.

6.7. Анализ ухудшения качества ОВФ с учетом двухфотонного поглощения

В случае двухфотонного поглощения в (23) надо заменить α на $I_L\gamma$. Тогда для нелинейного набега фазы волны на длине L вместо (25) получим

$$\begin{aligned} \Delta\Phi(R, t) &= \delta kL = \frac{\omega L}{c} \delta n(R, t) = \\ &= \frac{\omega L}{c} \frac{\partial n}{\partial T} \frac{\gamma}{\rho C_p} \int_0^t I_L^2(R, \tau) d\tau. \end{aligned} \quad (35)$$

В формулу (35) входит величина LI_L^2 , которая возрастает при уменьшении F за счет увеличения интенсивности накачки в фокальной каустике. Значит, двухфотонное поглощение вполне объясняет усиление нелинейной фазовой самомодуляции пучка на-

качки при уменьшении фокусного расстояния от $F = 100$ см до $F = 11$ см.

Время релаксации гиперзвуковой решетки для гексана в наших экспериментах составляет (см. выше) $\tau_B \approx 0.3$ нс. Это время почти в тридцать раз меньше длительности импульса накачки $\tau \approx 8$ нс. Процесс ВРМБ можно считать безынерционным. Наведенная решетка диэлектрической проницаемости (фазовая голограмма) мгновенно подстраивается под изменяющееся поле накачки. Поэтому даже с учетом динамического изменения пространственной структуры поля накачки в процессе самовоздействия из-за нагрева среды при двухфотонном поглощении комплексно-сопряженная ВРМБ волна должна давать «хорошее» ОВФ.

Время релаксации температурной решетки для гексана в наших условиях равно (см. выше) $\tau_T \approx 3$ нс. Это время всего примерно в три раза меньше длительности импульса накачки $\tau \approx 8$ нс. Процесс двухфотонного ВТР-2 нельзя считать безынерционным. Динамические изменения наведенной решетки диэлектрической проницаемости не успевают за изменениями поля накачки. Новое поле рассеивается на старой фазовой голограмме. Это должно приводить к ухудшению качества ОВФ.

6.8. Физические механизмы ВР, соответствующие нашим экспериментам

Результаты экспериментального и теоретического изучения механизмов ВР назад лазерного излучения с $\lambda = 308$ нм и длительностью $\tau \approx 8$ нс в жидком гексане представлены в табл. 6. В первом столбце этой таблицы даны соответствующие нашим экспериментам значения фокусного расстояния F линзы 9. Во втором столбце приведены значения интенсивности I_L излучения накачки в области нелинейного взаимодействия длиной L . Эта область нелинейного взаимодействия соответствует фокальной каустике линзы 9, так что произведение $I_L L \approx 1.4 \cdot 10^3$ МВт/см поддерживается постоянным для всех F . В последних двух столбцах приведены физические механизмы ВР назад, обнаруженные для двух характерных значений коэффициента линейного поглощения гексана: $\alpha = 0.01$ – 0.08 см $^{-1}$ и $\alpha = 0.17$ см $^{-1}$.

Отметим, что в некоторых графах табл. 6 содержится по единственному механизму — ВРМБ, линейное ВТР-2 и двухфотонное ВТР-2. Другие графы содержат сразу по два механизма — ВРМБ + двухфотонное ВТР-2, линейное ВТР-2 + двухфотонное ВТР-2. В частности, из табл. 6 при

$I_L \approx 2.5 \cdot 10^8$ Вт/см 2 ($F = 100$ см), когда вклад двухфотонного поглощения в общую картину ВР незначителен (табл. 5), можно сделать следующие выводы.

1. Появление механизма «линейного ВТР-2» происходит при α большем, чем 0.08 см $^{-1}$, но меньшем 0.17 см $^{-1}$. Это соответствует сделанной выше теоретической оценке пороговой для линейного ВТР-2 величины $\alpha_{sts}^{thr} \approx 0.1$ см $^{-1}$ (табл. 4).

2. Отсутствие механизма «ВРМБ» для $\alpha = 0.17$ см $^{-1}$ и, наоборот, его наличие при $\alpha \leq 0.08$ см $^{-1}$ соответствуют сделанным выше теоретическим выводам об эффективности механизма нарушения фазового синхронизма для ВРМБ при $\alpha \geq \alpha_{CR} \approx 0.1$ см $^{-1}$ (рис. 4).

3. Отсутствие сочетания механизмов «ВРМБ + линейное ВТР-2» связано с тем, что пороговая для линейного ВТР-2 $\alpha_{sts}^{thr} \approx 0.1$ см $^{-1}$ и критическая для нарушения фазового синхронизма при ВРМБ $\alpha_{CR} \approx 0.1$ см $^{-1}$ величины близки, а точность шага изменения α в наших экспериментах от 0.08 см $^{-1}$ до 0.17 см $^{-1}$ недостаточна, для того чтобы наблюдать два этих механизма сразу.

Присутствие в табл. 6 сочетания механизмов «ВРМБ + двухфотонное ВТР-2» говорит о том, что точность шага изменения суммарного коэффициента поглощения $\alpha_{\Sigma} = \alpha + I_L \gamma$ в наших экспериментах достаточна, для того чтобы наблюдать два этих механизма сразу. Присутствие в табл. 6 сочетания механизмов «линейное ВТР-2 + двухфотонное ВТР-2» требует дополнительного обоснования. Эти два механизма, в отличие от сочетания «ВРМБ + ВТР-2», в экспериментальном спектре ВР практически неотличимы. Тем не менее проведенный теоретический анализ не дает каких-либо преимуществ ни одному из возможных при $\alpha > 0.1$ см $^{-1}$ и $I_L > 10^9$ Вт/см 2 механизмов ВТР-2 — ни линейному, ни двухфотонному.

6.9. Об экспериментальном наблюдении ВРМБ в УФ-диапазоне

С точки зрения известной теории ВР, учитывающей только линейное поглощение (см. табл. 4 и рис. 4), условие $I_L L \approx \text{const}$ означает, что при $\alpha < 0.1$ см $^{-1}$ в наших экспериментах должен работать один механизм — ВРМБ, а при $\alpha > 0.1$ см $^{-1}$ (с учетом нарушения фазового синхронизма для ВРМБ) тоже должен работать один механизм — линейное ВТР-2. Не удивительно, что именно эти два механизма и представлены в последнем столбце табл. 1 в качестве «названных авторами механизмов

Таблица 6. Физические механизмы ВР назад лазерного излучения с $\lambda = 308$ нм и длительностью $\tau \approx 8$ нс в жидком гексане для различных значений коэффициента линейного поглощения α и при различных интенсивностях I_L накачки, но при постоянном произведении $I_L L \approx 1.4 \cdot 10^3$ МВт/см (L — длина нелинейного взаимодействия)

F , см	I_L , Вт/см ²	Физические механизмы ВР назад	
		$\alpha = 0.01-0.08$ см ⁻¹	$\alpha = 0.17$ см ⁻¹
100	$2.5 \cdot 10^8$	ВРМБ	линейное ВТР-2
50	10^9	ВРМБ + двухфотонное ВТР-2	линейное ВТР-2 + двухфотонное ВТР-2
11	$\geq 10^{10}$	двухфотонное ВТР-2	

ВР в гексане» из предшествующих экспериментальных работ.

Можно показать, что в табл. 1 ошибочны оба этих названных авторами механизма «ВР»- и «ВРМБ» и «линейное ВТР-2». Действительно, из третьего столбца табл. 1 следует, что во всех предшествующих экспериментальных работах интенсивность накачки составляла $I_L \geq 10^{10}$ Вт/см². Но из табл. 6 следует, что при $I_L \geq 10^{10}$ Вт/см² в гексане должно наблюдаться либо «двухфотонное ВТР-2» при $\alpha < 0.1$ см⁻¹, либо «линейное ВТР-2 + двухфотонное ВТР-2» при $\alpha > 0.1$ см⁻¹. Значит, в последнем столбце табл. 1 во всех строках, кроме последней, вместо «ВРМБ» должно быть «двухфотонное ВТР-2», а в последней строке вместо «линейного ВТР-2» должно быть «линейное ВТР-2 + двухфотонное ВТР-2». Тот факт, что для одной и той же длины волны λ накачки представленный в четвертом столбце табл. 1 экспериментально измеренный спектральный сдвиг Ω значительно меньше теоретического бриллюэновского сдвига Ω_B (табл. 2), подтверждает наши рассуждения. Можно сделать следующий вывод: во всех предшествующих экспериментальных работах по изучению ВР в ближнем УФ-диапазоне настоящего ВРМБ вообще не наблюдалось.

В наших экспериментах по изучению ВР излучения с $\lambda = 308$ нм в гексане наблюдалась линия ВРМБ с бриллюэновским спектральным сдвигом $\Omega_B = 0.33$ см⁻¹ (см. рис. 2б, в), полностью соответствующим теории ВРМБ (табл. 2). Таким образом, именно в наших экспериментах впервые наблюдалась настоящая линия ВРМБ для УФ-диапазона.

Чтобы «увидеть» настоящую линию ВРМБ, в наших экспериментах потребовалось существенно уменьшить интенсивность накачки от

$I_L \geq 10^{10}$ Вт/см² (рис. 2а), характерной для предшествующих экспериментов (табл. 1), до $I_L \leq 10^9$ Вт/см² (рис. 2б, в), сохраняя неизменными условия возбуждения ВРМБ, т.е. $I_L L \approx \text{const}$. Это позволило уменьшить двухфотонную составляющую в суммарном коэффициенте поглощения гексана и, таким образом, ослабить влияние на ВРМБ нарушение фазового синхронизма из-за двухфотонного нагрева.

7. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Представленная работа посвящена выяснению физических механизмов вынужденного рассеяния излучения ближнего УФ-диапазона. Проблемы, накопившиеся в данной области, носят комплексный характер. Они затрагивают как временное, так и пространственное поведение лазерного излучения при ВР. Во временном поведении существует проблема спектрального сдвига. В пространственном поведении существует проблема ухудшения качества ОВФ при увеличении интенсивности накачки.

Для решения этих проблем была создана экспериментальная установка на базе эксимерного ХеСl-лазера ($\lambda = 308$ нм), которая позволяла получать одномодовый импульс длительностью $\tau \approx 8$ нс, энергией около 3 мДж и спектральной шириной приблизительно $5 \cdot 10^{-3}$ см⁻¹. В качестве нелинейной среды был выбран жидкий гексан (C₆H₁₄). На этой установке были проведены эксперименты по изучению как временного спектра ВР, так и качества ОВФ при ВР. Анализ полученных экспериментальных результатов показал, что известная теория ВР, учитывающая только линейное поглощение, не способна их объяснить. Только введение нового физического механизма

ВР — вынужденного температурного рассеяния, обусловленного нагревом вследствие двухфотонного поглощения (двухфотонного ВТР-2), позволило разрешить все эти проблемы.

Во-первых, было показано, что наблюдаемая в предшествующих экспериментах, линия «неправильного ВРМБ» с сильно уменьшенным спектральным сдвигом на самом деле была несмещенной линией двухфотонного ВТР-2.

Во-вторых, было показано, что наблюдаемое в предшествующих экспериментах «ухудшение качества ОВФ при ВРМБ из-за увеличения интенсивности накачки» на самом деле связано с ухудшением качества ОВФ при двухфотонном ВТР-2, из-за того что, в отличие от ВРМБ, механизм двухфотонного ВТР-2 сопровождается тепловым самовоздействием и характеризуется сравнительно большим временем релаксации.

В-третьих, по экспериментальному порогу возбуждения двухфотонного ВТР-2 было определено сечение двухфотонного поглощения нелинейной среды (гексана) на $\lambda = 308$ нм. Величина полученного таким образом сечения, с одной стороны, доказывает физическую реальность самого механизма двухфотонного ВТР-2. С другой стороны, двухфотонное поглощение с таким сечением объясняет некоторые экспериментальные результаты, в частности, подавление ВРМБ из-за нарушения фазового синхронизма при нагреве с учетом двухфотонного поглощения.

При сравнении свойств линейного ВТР-2 и двухфотонного ВТР-2 было показано, что это два совершенно разных физических механизма ВР, которые обладают легко разделяемыми линиями в спектре ВР. Именно то, что поведение спектральной линии двухфотонного ВТР-2 в экспериментах абсолютно не соответствует хорошо известному поведению линии линейного ВТР-2, и привело к тому, что в предшествующих экспериментальных работах по изучению ВР излучения ближнего УФ-диапазона в течение почти 10 лет линия двухфотонного ВТР-2 ошибочно принималась за линию ВРМБ. Настоящую линию ВРМБ в УФ-диапазоне в наших экспериментах удалось обнаружить только после существенного уменьшения интенсивности накачки. Механизм двухфотонного ВТР-2 имеет отношение не только к ближнему УФ-диапазону спектра и к конкретным жидкостям, а, как и другие механизмы ВР, носит общий характер.

ЛИТЕРАТУРА

1. В. Г. Дмитриев, *Нелинейная оптика и обращение волнового фронта*, Физматлит, Москва (2003).
2. И. Л. Фабелинский, *Молекулярное рассеяние света*, Наука, Москва (1965).
3. В. В. Кузьмин, *Труды ФИАН* **207**, Наука, Москва (1991), с. 3.
4. С. Ф. Григорьев, О. П. Заскалько, В. В. Кузьмин, *ЖЭТФ* **92**, 1246 (1987).
5. В. С. Старунов, *ЖЭТФ* **57**, 1012 (1969).
6. В. Ю. Баранов, В. М. Борисов, Ю. Ю. Степанов, *Электроразрядные эксимерные лазеры на галогенидах инертных газов*, Энергоатомиздат, Москва (1988).
7. M. Statkine, I. J. Bijio, B. J. Feldman, and R. A. Fisher, *Opt. Lett.* **7**, 108 (1982).
8. M. C. Gower, *Opt. Lett.* **7**, 423 (1982).
9. M. C. Gower, *Opt. Lett.* **8**, 70 (1983).
10. E. Armandillo and D. Proch, *Opt. Lett.* **8**, 523 (1983).
11. M. C. Gower and R. G. Caro, *Opt. Lett.* **7**, 162 (1982).
12. G. M. Davis and M. C. Gower, *IEEE J. Quant. Electr.* **27**, 496 (1991).
13. С. С. Алимшиев, В. С. Букреев, С. К. Вартапетов и др., *Кратк. сообщ. по физ. ФИАН* № 12, 11 (1989).
14. С. С. Алимшиев, В. С. Букреев, С. К. Вартапетов и др., *КЭ* **18**, 89 (1991).
15. Н. Б. Делоне, *Взаимодействие лазерного излучения с веществом*, Наука, Москва (1989).
16. В. С. Старунов, И. Л. Фабелинский, *УФН* **98**, 441 (1969).
17. Б. Я. Зельдович, Н. Ф. Пилипецкий, В. В. Шкунов, *Обращение волнового фронта*, Наука, Москва (1985).
18. С. Келих, *Молекулярная нелинейная оптика*, Наука, Москва (1981).
19. Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц, *Электродинамика сплошных сред*, Наука, Москва (1982).
20. М. Б. Виноградова, О. В. Руденко, А. П. Сухорук, *Теория волн*, Наука, Москва (1979).
21. Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц, *Статистическая физика*, Часть 1, Наука, Москва (1976).

22. В. Б. Карпов, И. Н. Князев, В. В. Коробкин, А. К. Набойченко, Труды 2-ой Всесоюзн. конф. «ОВФ-89», Институт физики АН БССР, Минск (1990), с. 245.
23. В. Б. Карпов, А. К. Набойченко, *Труды ИОФАН 41*, Наука, Москва (1993), с. 173.
24. V. B. Karpov, I. N. Knyazev, V. V. Korobkin, and A. K. Naboichenko, in *Short Wavelength Lasers and their Applications*, Nova Science Publisher Inc., NY, USA (1991), p. 391.
25. V. B. Karpov, I. N. Knyazev, V. V. Korobkin, and A. M. Prokhorov, in *Proc. Int. Conf. «LASERS-89»*, STS PRESS, VA, USA (1990), p. 325.
26. V. B. Karpov, V. V. Korobkin, and D. A. Dolgolenko, in *Proc. Int. Conf. «ECO-4»*, Netherlands, The Hague (1991).
27. А. Л. Егоров, В. В. Коробкин, Р. В. Серов, КЭ **2**, 513 (1975).
28. Н. Н. Жуков, О. П. Заскалько, И. Г. Кузнецов, КЭ **18**, 234 (1991).
29. И. Р. Шен, *Принципы нелинейной оптики*, Мир, Москва (1989).
30. P. P. Ho and R. R. Alfano, *Phys. Rev. A* **20**, 2170 (1979).
31. A. J. Gordon and R. A. Ford, *The Chemist's Companion*, Wiley (1972).
32. Ю. Н. Карамзин, А. П. Сухоруков, В. А. Трофимов, *Математическое моделирование в нелинейной оптике*, Изд-во МГУ, Москва (1989).
33. M. Ammosov, N. Delone, M. Ivanov, I. Bondar, and A. Masalov, *Adv. in Atom., Mol. and Opt. Phys.* **29**, 34 (1992).
34. Н. Б. Делоне, В. П. Крайнов, *Нелинейная ионизация атомов лазерным излучением*, Физматлит, Москва (2001).