

НЕЛИНЕЙНЫЕ ОПТИЧЕСКИЕ ЯВЛЕНИЯ В АТМОСФЕРЕ И ОКЕАНЕ

УДК 621.373

В.П. Кандидов, О.Г. Косарева, С.А. Шленов

ВЛИЯНИЕ КУБИЧНОЙ НЕЛИНЕЙНОСТИ И МНОГОФОТОННОЙ ИОНИЗАЦИИ НА ПРОСТРАНСТВЕННО-ВРЕМЕННЫЕ ХАРАКТЕРИСТИКИ СУБПИКОСЕКУНДНОГО ЛАЗЕРНОГО ИМПУЛЬСА В ВОЗДУХЕ

Средствами вычислительного эксперимента исследована трансформация частотного спектра импульса и пространственно-временное распределение излучения в перетяжке пучка при его фокусировке в воздухе. Рассмотрено влияние нелинейности типа керровской и плазменного механизма нелинейности, связанного с многофотонной ионизацией нейтральных молекул. Сделан вывод, что, меняя остроту фокусировки пучка, можно наблюдать симметрично-уширенный частотный спектр и асимметричный со сдвигом в голубую область.

Распространение в воздухе высокоинтенсивных субпикосекундных лазерных импульсов сопровождается существенным изменением их частотного спектра на расстояниях в несколько метров [1]. В фокусированных пучках изменение происходит в области перетяжки пучка. Речь идет об импульсах длительностью около 100 фс, мощностью порядка 10^9 Вт и интенсивности, достигаемой в перетяжке пучка, порядка 10^{13} – 10^{15} Вт/см².

В экспериментах авторы [2] наблюдали сильное уширение спектра, по своему характеру напоминающее фазовую самомодуляцию (ФСМ) на кубичной нелинейности. Существенно отличный характер изменения спектра в схожих условиях эксперимента зарегистрирован в [3]. При фокусировке пучка в воздухе спектр сдвигался в голубую область без заметного уширения. Авторы связывают «голубой» сдвиг спектра с образованием свободных носителей заряда вследствие многофотонной ионизации молекул в области перетяжки.

В литературе обсуждаются различные возможные механизмы изменения спектра [1, 4]. Важным обстоятельством является то, что нелинейность, вызывающая трансформацию спектра, должна быть достаточно «быстрой», чтобы обеспечить изменение оптических свойств среды в субпикосекундном масштабе времени. Для субпикосекундных импульсов возможно проявление по крайней мере, двух механизмов нелинейности, приводящих к качественно различным изменениям в частотном спектре.

В данной статье рассмотрены основные закономерности в изменении пространственно-временных (в том числе спектральных) характеристик субпикосекундного импульса при его фокусировке в воздухе с учетом совместного влияния кубичной нелинейности и самосогласованной с полем генерации свободных электронов.

Для излучения субпикосекундной длительности изменение показателя преломления воздуха определяется нелинейными эффектами с временем установления $\tau_{нл}$, не превышающим 10^{-13} с. К таким эффектам относятся электронный и ориентационный эффекты Керра, нелинейная ионизация [5, 6, 7]. Предполагая аддитивность вклада этих эффектов, можно записать суммарное возмущение показателя преломления δn в виде

$$\delta n = \Delta n_e + \Delta n_{or} + \Delta n_p. \quad (1)$$

Для электронной нелинейности Δn_e , связанной с перераспределением плотности электронов в изотропных молекулах, характерное время $\tau_{нл} \approx 10^{-15}$ с, если частота излучения лежит вне полосы поглощения. В этом случае

$$\Delta n_e = \frac{1}{2} n_{2e} |E|^2. \quad (2)$$

При нормальных условиях коэффициент нелинейности для воздуха $n_{2e} \approx 10^{-16}$ см³/эрг [8].

Характерное время $\tau_{\text{нл}}$ ориентационного эффекта порядка 10^{-13} – 10^{-12} с, и установление возмущения показателя преломления описывается релаксационным уравнением:

$$\left(\tau_{\text{нл}} \frac{\partial}{\partial t} + 1\right) \Delta n_{or} = \frac{1}{2} n_{2or} |E|^2, \quad (3)$$

где $n_{2or} \approx n_{2e}$ [8].

При ионизации газа в сильном световом поле образуются свободные заряды, что приводит к изменению оптических свойств среды. Для излучения субпикосекундной длительности мала вероятность соударения образовавшихся электронов с молекулами газовых компонент и ударной (электронной) ионизацией можно пренебречь. Плазма, генерируемая излучением, слабоионизована; к концу импульса степень ионизации достигает величины порядка 10^{-2} – 10^{-1} . В этом случае плазменная частота $\omega_p \approx 10^{13}$ с $^{-1}$, и среда остается оптически прозрачной для излучения видимого диапазона. В течение субпикосекундного импульса не происходит оптического пробоя в общепринятом определении, которое связывается с блокировкой излучения, с возникновением световой вспышки и резкого звука.

Если принять, что энергия свободных электронов при многофотонной ионизации порядка 1–10 эВ, то радиус Дебая для образующейся плазмы $r_D \approx 10^{-8}$ м. Тем самым даже в случае острой фокусировки пучка для плазмы выполняется условие пространственной квазинейтральности $r_D \ll l$, где l – пространственный масштаб плазменного образования. Кроме того, справедливо приближение идеальной плазмы, для которой велико число частиц в дебаевской сфере:

$$\frac{4}{3} \pi r_D^3 N_0 \gg 1, \quad (4)$$

где N_0 – концентрация нейтральных молекул в воздухе. Таким образом, для плазмы субпикосекундного импульса можно ввести макроскопические параметры, характеризующие ее оптические свойства.

Вклад плазменной компоненты в изменение показателя преломления равен

$$\Delta n_p = -\omega_p^2 / 2 \omega^2, \quad (5)$$

где $\omega_p^2 = 4 e^2 N_e / m$. Здесь ω – частота излучения, e и m – заряд и масса электрона. Так как в течение субпикосекундного лазерного импульса лавинные процессы не успевают развиваться, то источником свободных электронов могут служить многофотонная или туннельная ионизация компонентов воздушной смеси. При этом, исходя из значений адиабатического параметра γ [5], при интенсивностях $I \leq 10^{14}$ Вт/см 2 в видимом диапазоне более вероятен первый, т.е. многофотонный механизм ионизации. Предположим, что время электрон-ионной рекомбинации велико по сравнению с длительностью импульса. Далее, так как энергия большей части свободных электронов не превышает 10 эВ, они не успевают покинуть перетяжку пучка (поперечный размер порядка 1 мкм) и остаются в местах своего рождения. В этом случае концентрация свободных электронов N_e определяется скоростью многофотонной ионизации в той же точке пространства, монотонно увеличиваясь во времени:

$$N_e(r, t) = \int_{t_0}^t \frac{dN_e}{dt} dt, \quad N_e(r, t_0) = 0. \quad (6)$$

которая в свою очередь зависит от интенсивности излучения.

Таким образом, вклад плазменной компоненты в показатель преломления является локальным в пространстве и определяется формулами (3), (4).

Для нахождения скорости ионизации воспользуемся простой моделью [7], в которой квантово-механический расчет $\frac{dN_e}{dt}$ выполнен для водородоподобного атома в предположении, что в присутствии переменного электромагнитного поля меняется волновая функция

только свободного электрона. Несмотря на упрощенный характер модели, в которую «среда» входит только через потенциал ионизации, она достаточно адекватно описывает эксперименты по многофотонной ионизации газов [9]. Такая модель была успешно применена для сравнительного анализа экспериментальных данных [10] по трансформации частотного спектра в ксеноне с численными расчетами [11].

В воздухе основной вклад в генерацию свободных электронов при многофотонной ионизации вносят компоненты с наибольшим парциальным давлением, т.е. азот и кислород. Вклад остальных компонентов пренебрежимо мал.

Динамику образования свободных электронов под воздействием прямоугольного импульса длительностью $\tau = 1$ пс на длине волны $\lambda = 308$ нм и интенсивностью $I = 10^{14}$ Вт/см² иллюстрирует рис. 1. В течение первых примерно 350 фс большая часть свободных электронов – это «кислородные» электроны, так как потенциал ионизации кислорода меньше, чем азота. За это время кислород почти полностью ионизируется и дальнейший «прирост» свободных носителей заряда обеспечивается молекулами азота, так как их концентрация остается достаточно большой даже спустя 1 пс. Здесь и далее не учитываются эффекты многократной ионизации, поскольку потенциал ионизации газовых компонентов воздуха существенно больше, а скорость ионизации соответственно меньше, чем у молекул азота.

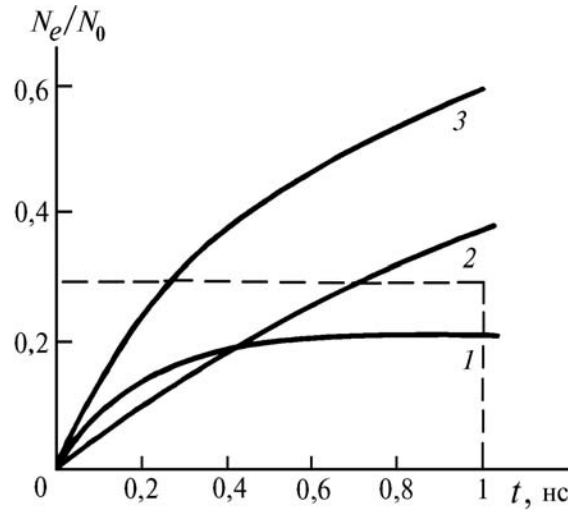


Рис. 1. Изменение концентрации свободных носителей заряда в течение прямоугольного импульса интенсивностью $I_0 = 10^{14}$ Вт/см² (штриховая линия); 1 – «кислородные» электроны; 2 – «азотные» электроны; 3 – суммарная концентрация «кислородных» и «азотных» электронов; N_0 – первоначальная концентрация нейтральных молекул

Поскольку реально высокие интенсивности излучения достигаются в острофокусированных пучках, модель распространения излучения включает прохождение пучком области перетяжки, где преимущественно и проявляются как нелинейные, так и дифракционные эффекты. Для этого воспользуемся параболическим уравнением дифракции для комплексной амплитуды электрического поля E :

$$2ik \left(\frac{\partial}{\partial z} + \frac{1}{v_r} \frac{\partial}{\partial t} \right) E = \Delta_{\perp} E + 2k^2 \frac{\delta n}{n_0} E - ik \alpha_{\text{нл}} [I] E. \quad (7)$$

Здесь z – направление распространения пучка; v_r – групповая скорость; Δ_{\perp} – поперечный Лапласиан; δn – нелинейная добавка к показателю преломления (1), причем мы предполагаем что значение n_2 не меняется при ионизации части нейтральных молекул. Последний член в (7) описывает нелинейные потери излучения на многофотонную ионизацию.

В (7) не учитывается дисперсия групповой скорости. Действительно, в предположении, что излучение с длиной волны λ находится вдали от резонансов молекулярных газов, входящих в состав атмосферы, дисперсионная длина субпикосекундного импульса составляет сотни метров. Дисперсионная длина в создаваемой импульсом плазме при полной ионизации

нейтральных молекул уменьшается до 1 м, однако размер перетяжки, где возможно достижение сильной ионизации, не превышает 1 мм.

В вычислительных экспериментах рассматривалось распространение аксиально-симметричных фокусированных пучков гауссовского профиля при излучении спектрально-ограниченного импульса гауссовской формы:

$$E(z = 0, \rho, t) = E_0 \exp\left(-\frac{t^2}{2\tau_0^2}\right) \exp\left(-\frac{\rho^2}{2a_0^2} + i\frac{k\rho^2}{2R_f}\right). \quad (8)$$

В серии выполненных расчетов рассматривался широкий диапазон параметров излучения с длиной волны $\lambda = 308$ и 628 нм и длительностью τ_0 от 85 до 350 фс. Пиковая мощность излучения выбиралась близкой к критической мощности самофокусировки, которая для $n_2 = 10^{-16} \text{ см}^3/\text{эрг}$ [8] и $\lambda = 308$ нм составляет $3,3 \cdot 10^8$ Вт. При ширине пучка $a_0 = 0,3$ см пиковая интенсивность на выходной апертуре принималась равной $I_0 = 9,4 \cdot 10^8 \text{ Вт/см}^2$. Такое значение интенсивности недостаточно для возникновения эффективной многофотонной ионизации, и в спектре импульса на выходе из перетяжки пучка наблюдается типичное для ФСМ симметричное уширение. Структура уширенного спектра не меняется вследствие пространственного саможатия пучка [12], по крайней мере, при умеренных параметрах нелинейности [13].

Однако ситуация изменяется для сфокусированных пучков той же мощности. На рис. 2 представлены частотные спектры, рассчитанные для излучения па оси пучка после прохождения им области перетяжки. Параметром кривых служит радиус фокусировки пучка. Видно, что при слабой фокусировке (кривая 1) частотный спектр мало отличается от симметричного; его уширение и модуляционная структура определяются электронной компонентой керровской нелинейности. Некоторая асимметрия спектра обусловлена вкладом многофотонной ионизации. Как показывает анализ, ориентационная нелинейность практически не оказывает влияния на спектр импульса.

С обострением фокусировки возрастает интенсивность в перетяжке и в области, близкой к фокусу, увеличивается концентрация свободных электронов. Их число растет во времени, в фазовой модуляции импульса появляется линейный тренд и положение «центра тяжести» частотного спектра сдвигается в область больших частот (кривая 2). При этом по мере уменьшения радиуса фокусировки и, соответственно, возрастания вклада ионизационной нелинейности модуляционная структура спектра исчезает в антистоксовой области и существенно уменьшается в стоксовой (кривая 3). Таким образом, ионизационная нелинейность как бы подавляет кубичную.

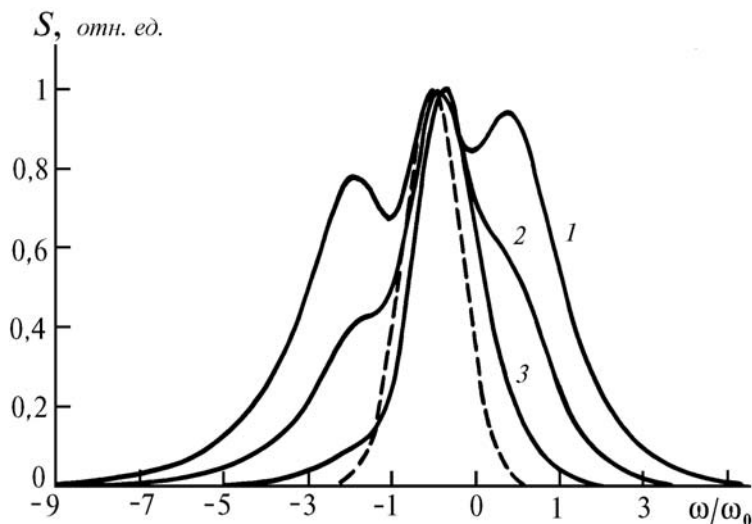


Рис. 2. Спектральная плотность мощности излучения на оси сфокусированного пучка. 1 – $R_f = 110$; 2 – $R_f = 80$, 3 – $R_f = 40$ см, штриховая кривая – спектр входного импульса, ω_0 – ширина спектра входного импульса по уровню e^{-1} , $I_0 = 9,4 \cdot 10^8 \text{ Вт/см}^2$, $a_0 = 0,3$ см

При малой, по сравнению с критической, мощности пучка в условиях сильной фокусировки можно достичь высокой интенсивности, при которой вклад кубичной нелинейности пренебрежимо мал, и трансформация спектра определяется многофотонной ионизацией. В этом случае сдвиг спектра гауссовского импульса в голубую область сопровождается его уширением, которое носит характер «затягивания» стоксова крыла и связано с нелинейной зависимостью фазы импульса от времени. Два фактора обуславливают изменение частоты: прямоугольная форма импульса и, соответственно, возрастание частоты на вершине импульса, и уменьшение источника свободных носителей – нейтральных молекул к концу импульса (см. рис. 1), которое замедляет рост частоты. В результате частотная модуляция импульса имеет сложный характер и приводит к отличию формы смещенного спектра от гауссовской.

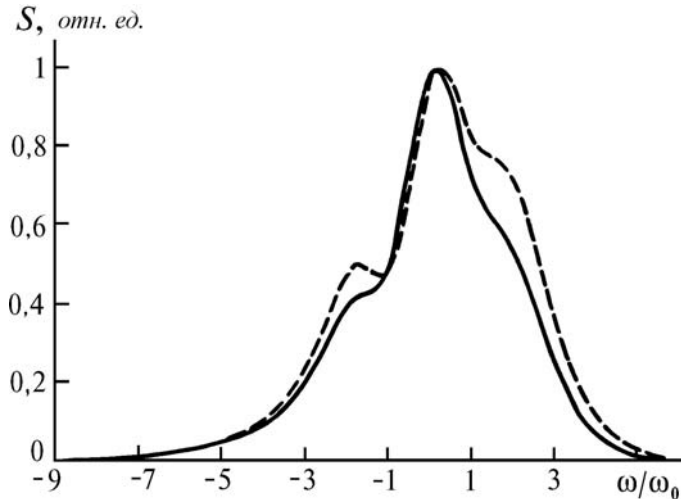


Рис. 3. Спектральная плотность мощности на оси пучка и усредненная по апертуре (штриховая кривая) при $R_f = 80$ см. $I_0 = 9,4 \cdot 10^3$ Вт/см², $a_0 = 0,3$ см)

В экспериментах, как правило, регистрируют частотный спектр со всей апертуры пучка. На рис. 3 приведен усредненный по апертуре спектр импульса. При отсутствии принципиальных отличий от спектра на оси пучка усредненный спектр сдвинут больше в голубую область на величину $0,2 \omega/\omega_0$, измеренную по положению «центра тяжести» спектрального распределения. Заметим также, что сглаживание модуляционной структуры в усредненном спектре проявляется меньше, чем в спектре на оси пучка.

Образование свободных электронов в области высокой интенсивности, т.е. прежде всего на оси пучка, приводит, в соответствии с (5), к формированию дефокусирующей «линзы», оптическая сила которой растет во времени. Поэтому излучение вытесняется из приосевой области. Рис. 4 иллюстрирует пространственное распределение интенсивности в пучке, полученное для различных моментов времени в области перетяжки пучка. Видно, как гауссовская форма пучка на фронте импульса в дальнейшем претерпевает искажения. На входе в перетяжку влияние ионизации на форму поперечного профиля невелико и проявляется только к моменту времени $t = \tau_0$ (рис. 4, а): приосевая часть пучка становится плоской. В перетяжке количество свободных носителей со временем увеличивается быстрее. К моменту времени $t = 0,3 \tau_0$ проявляется «ионизационная дефокусировка». Интенсивность на оси пучка оказывается меньше, чем на периферии (рис. 4, б), пучок приобретает ярко выраженную кольцевую структуру. При этом пиковая интенсивность уменьшается до $1,7 \cdot 10^{14}$ Вт/см² в отличие от значения в линейной перетяжке $2 \cdot 10^{14}$ Вт/см² и достигается на оси пучка в момент времени $t = -0,3 \tau_0$ (в бегущей системе координат).

Отметим, что провал на оси не связан с потерей энергии на генерацию носителей, т.к. потери оказываются практически не существенны и для случая, изображенного на рис. 4, не превышают 4% от начальной энергии импульса. После прохождения нелинейного фокуса провал на оси исчезает вследствие дифракции пучка (рис. 4, в).

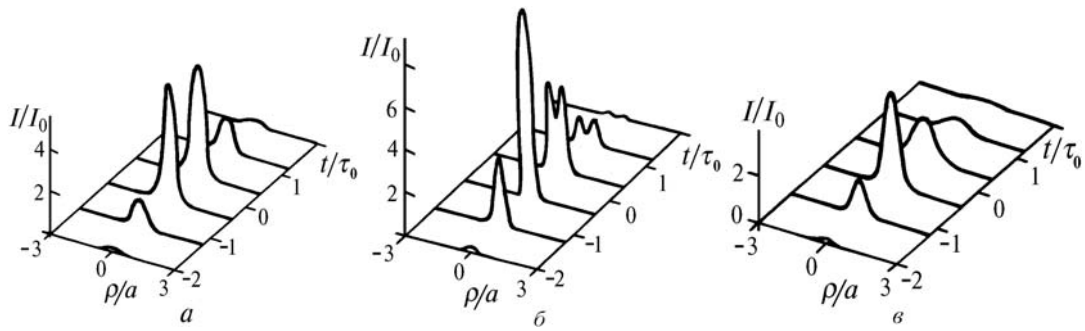


Рис. 4. Изменение поперечного распределения интенсивности в различных плоскостях z в течение импульса: а) $z = -1$, б) $z = 0$, в) $z = 1$. $I_0 = 2 \cdot 10^{13}$ Вт/см², координата z нормирована на конфокальный параметр пучка и отсчитывается от положения перетяжки в линейной среде, a – радиус пучка в плоскости $z = -3$

Изменение поперечного профиля в дальней зоне в течение импульса можно проследить, рассматривая форму углового спектра на выходе из перетяжки пучка (рис. 5). На фронте импульса угловой спектр имеет гауссовскую форму и практически совпадает со спектром входного пучка (рис. 5, а). С течением времени форма углового спектра меняется: в момент $t = 0$ происходит образование локального минимума при $k = 0$ (рис. 5, б), а к моменту $t = \tau_0$ возникает «уплощение» приосевой части спектра (рис. 5, в).

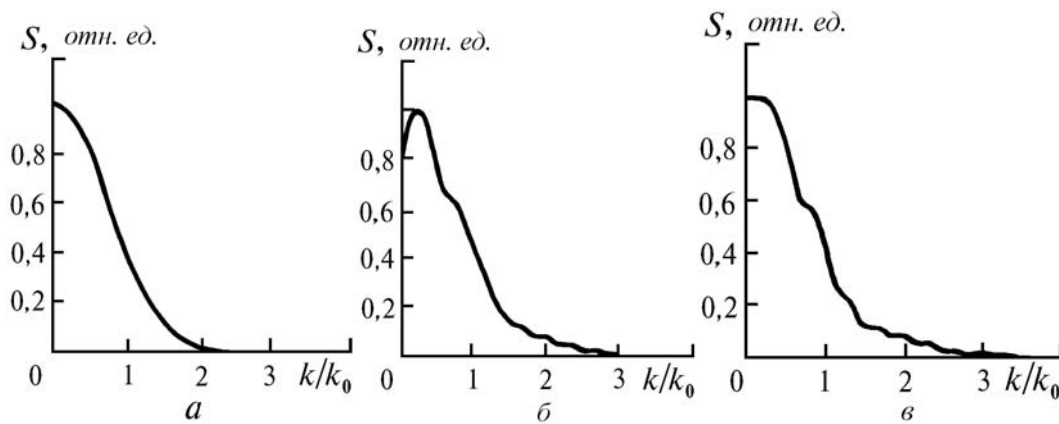


Рис. 5. Угловой спектр пучка в различные моменты времени t . а) $t = -\tau_0$, б) $t = 0$, в) $t = \tau_0$. k_0 – полуширина углового спектра пучка на входе в нелинейную среду

Соответственно ведет себя и профиль пучка в дальней зоне, детальный анализ показывает, что деформация поперечного профиля пучка в дальней зоне обусловлена, главным образом, отличием поперечного распределения и интенсивности от гауссова на выходе из перетяжки.

Таким образом, при распространении мощного субпикосекундного импульса в воздухе явление самовоздействия может возникать вследствие нелинейности типа керровской и многофотонной ионизации. Эти два механизма нелинейности оказывают конкурирующее влияние на трансформацию частотного спектра и пространственного распределения излучения. Выбором параметров излучения, в частности радиуса фокусировки, можно ослабить влияние кубичной нелинейности и соответственно изменять частотный спектр импульса после его фокусировки.

1. Ахманов С.А., Выслоух В.А., Чиркин А.С. Оптика фемтосекундных лазерных импульсов. М.: Наука, 1988. 310 с.
2. Kuhlke D., Herpers U., von der Linde D. //Opt. Comm. 1987. V. 63. P. 275.
3. Wood W. M., Focht G., Downer M. C. //Opt. Lett. 1988. V. 13. P. 984.
4. Corkum P. B., Rolland C. //IEEE J. Quantum Electron. 1989. V. 25. P. 863.
5. Делоне Н.Б., Крайнов В.П. Атом в сильном световом поле. М.: Энерго-атомиздат, 1984. 224 с.

6. Зуев В.Е., Землянов А.А., Копытин Ю.Д. Нелинейная оптика атмосферы. Л.: Гидрометеоздат, 1989. 256 с.
7. Szoke A. //NATO ASI Series physics B, 1988. V. 171. P. 207.
8. Shimoji Y. //J. Opt. Soc. Am. B 6, 1989. P. 1994.
9. Perry M.D., Landen O.L., Szoke A. //Phys. Rev A, 1987. V. 37. P. 747. Phys. Rev. Lett. 1988. V. 60. P. 1720.
10. Sorcum P.V., Rolland C. //NATO ASI Series physics B, 1988. V. 171. P. 157.
11. Косарева О.Г., Шленов С.А. //Известия АН СССР. Сер. физическая. 1992. Т. 56. № 9 (в печати).
12. Шленов С.А. //Известия АН СССР. Сер. физическая, 1991. Т. 55. № 2. С. 363.
13. Кочеткова А.М., Шленов С.А. //Оптика атмосферы и океана. 1992. Т. 5. № 2. С. 155–159.

Московский государственный университет

Поступила в редакцию
14 сентября 1992 г.

V.P. Kandidov, O.G. Kosareva, S.A. Shlyonov. Influence of the Kerr Nonlinearity and Multiphoton Ionization on Spatio-Temporal Behavior of a Subpicosecond Laser Pulse in Air.

Transformation of the laser pulse frequency spectrum and a spatio-temporal distribution of radiation over the beam waist in air are investigated numerically. The effects of Kerr nonlinearity and plasma initiation due to multiphoton ionization of neutral molecules are considered. It is shown that both the symmetric and a blue asymmetric broadening of the transmitted pulse spectrum can be observed depending on the degree of beam focusing.