

Временная динамика пространственной структуры интенсивности дальнего поля лазерного пучка, прошедшего тонкий слой нанокolloидной среды

Ю.Э. Гейнц¹, В.А. Донченко², Ал.А. Землянов², Н.С. Панамарев^{2*}

¹Институт оптики атмосферы им. В.Е. Зуева СО РАН
634021, г. Томск, пл. Академика Зуева, 1

²Сибирский физико-технический институт Томского государственного университета
634050, г. Томск, пл. Новособорная, 1

Поступила в редакцию 22.10.2010 г.

Представлены результаты экспериментальных исследований временной динамики формирования дифракционной картины малоомощного лазерного пучка, проходящего через кювету с взвешенными в жидкости металлическими наночастицами. Установлено, что устойчивая структура интенсивности дальнего поля пучка формируется за времена порядка нескольких секунд с момента включения лазерного излучения и состоит из нескольких соосных светлых и темных колец, диаметр и число которых варьируют в зависимости от типа и концентрации коллоидного раствора, а также зависят от величины оптической толщи коллоидной среды и мощности лазерного пучка. На основе дифракционного интеграла Кирхгофа и аналитического решения уравнения теплопроводности дается теоретическая интерпретация наблюдаемых закономерностей развития дифракционной картины от коллоидного раствора.

Ключевые слова: нанокolloидный раствор, лазерное излучение, тепловая самодефокусировка света, дифракция Фраунгофера; nanocolloid, laser radiation, thermal self-defocusing, Fraunhofer diffraction.

Введение

Нанокolloидные растворы (НКР) металлов, представляющие собой жидкость с взвешенными в ней металлическими частицами нанометровых размеров, привлекают неизменный научный интерес благодаря своим уникальным физико-химическим и оптическим свойствам, отличным от характеристик как сплошного металла, так и чистой жидкости [1, 2]. К настоящему времени сообщается об успешном применении НКР в медицине в качестве межклеточных контрастных веществ [3] и нанобиосенсоров [4], в нанофотонике [5, 6], в оптическом манипулировании нанообъектами [7]. НКР обладают ярко выраженной оптической нелинейностью, проявляющейся при достаточно низких плотностях мощности падающего лазерного излучения (~ 1 Вт/см²) [2] и приводящей к появлению зависимости показателя преломления НКР от интенсивности световой волны. В свою очередь, это является причиной пространственной фазовой и амплитудной самоодуляции лазерного пучка при прохождении через коллоидную среду и реализации различных нелинейно-оптических эффектов, таких как самофокусировка [8], формирование солитонов [9], самоканалирование пучка [10] и генерация суперконтин-

нуума [11], а также тепловая дефокусировка и оптическое ограничение [12–14]. Последний из перечисленных эффектов интересен тем, что позволяет создавать оптические устройства, которые беспрепятственно пропускают свет малой интенсивности, но кардинально ослабляют высокоинтенсивное излучение, что важно, например, для защиты фотосенсорных компонентов [15]. Основными преимуществами оптических ограничителей на основе НКР являются их высокая лучевая прочность и полное восстановление первоначальных свойств при снятии оптической нагрузки.

Физическим принципом работы большинства оптических ограничителей с использованием НКР является эффект самонаведенной отрицательной (рассеивающей) тепловой линзы, возникающей в поглощающей композитной среде за счет ее нагрева излучением [16]. Коллоидные частицы, обладая оптическим поглощением на несколько порядков величины выше, чем жидкая основа, выступают в качестве распределенных по объему источников тепла, существенно снижая энергетический порог проявления эффекта тепловой рефракции излучения.

Тепловая линза в коллоидной среде формируется за конечное время и перераспределяет световые потоки по сечению пучка, приводя к так называемой самодифракции излучения и формированию системы интерференционных колец в зоне дальнего поля [12, 17]. Изучению структуры этой дифракционной картины (ДК), ее зависимости от мощности лазерного пучка и условий его фокусировки

* Юрий Эльмарович Гейнц (ygeints@iao.ru); Валерий Алексеевич Донченко; Алексей Анатольевич Землянов; Николай Семенович Панамарев (kanc@spsti.tsu.ru).

посвящен ряд работ [12–14, 17], в которых, в частности, показано, что по числу наблюдающихся колец, а также по типу самой ДК (порядок следования светлых и темных колец) можно судить об оптической силе наведенной тепловой линзы. Однако ряд практически важных вопросов, например о переходных стадиях развития ДК, а также о влиянии типа коллоидного раствора на условия наблюдения дифракционных колец, рассмотрен не был.

В настоящей статье приведены результаты наших систематических экспериментальных исследований дифракционной (проекционной) картины непрерывного маломощного лазерного пучка, проходящего через кювету со взвешенными в жидкости наночастицами. Мы использовали различные типы металлических коллоидных растворов и подробно изучили временную динамику и структурные характеристики ДК, формирующейся в дальнем поле излучения. Проведено теоретическое описание данного явления с использованием дифракционного интеграла Кирхгофа в приближении оптически тонкой поглощающей среды с нелинейностью керровского типа, имеющей тепловую природу. Для определения профиля температуры НКР, освещенного лазерным пучком с гауссовским пространственным распределением интенсивности, выполнено решение уравнения теплопроводности модельной жидкой среды, на основе чего дана теоретическая интерпретация наблюдаемых закономерностей в развитии ДК от коллоидного раствора.

Эксперимент

Изучение ДК в различных коллоидных растворах производилось по следующей схеме (рис. 1). Излучение непрерывного твердотельного лазера LCS-DTL-317 (длина волны $\lambda = 532$ нм, мощность 20 мВт, диаметр пучка 1 мм, угловая расходимость пучка 0,6 мрад) направлялось на кювету с НКР, после чего производилась регистрация проекции пучка на экране фотоаппаратом Nikon D3000 и видеокамерой GZ-MG275E. Расстояние от кюветы до экрана составляло 8 м. Наночастицы различных материалов (колларгола, Al, Cu, Ni, Zn, TiO₂), разных размеров и разной степени агрегации взвешивались в этаноле, ацетоне, глицерине и дистиллированной воде. Толщины применяемых кювет (без учета стенок) составляли 100, 630 мкм и 2; 3; 10 мм.

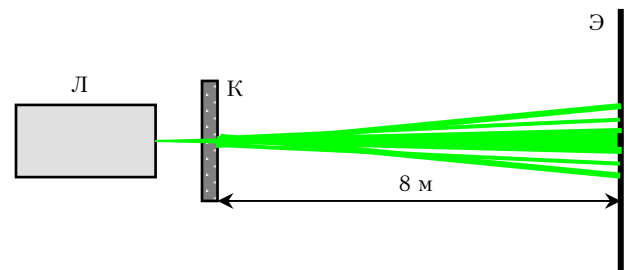


Рис. 1. Схема наблюдения дифракционной картины: Л – твердотельный лазер LCS-DTL-317; К – кювета с исследуемой взвесью наночастиц; Э – экран

Различные типы регистрируемых ДК лазерного пучка, прошедшего кювету с НКР, показаны на рис. 2.

Как видно, в некоторых случаях пространственное распределение энергии излучения имело вид спекл-картины (рис. 2, а, в, ж, к) с ярким центральным пятном, соответствующим проекции основного пучка, что является типичным для рассеяния света в дисперсной среде. В других же ситуациях наблюдалась устойчивая структура, состоящая из нескольких концентрических колец различной ширины (рис. 2, б, д, е, з), иногда деформированных в своей верхней части (рис. 2, г, и).

Нами было установлено, что регистрируемые на экране проекции прошедшего через кювету излучения существенным образом зависят от мощности лазерного излучения, концентрации наночастиц, их размера и толщины кюветы. В то же время зависимость характера ДК от материала наночастиц и применяемых жидкостей (за исключением воды) при прочих постоянных условиях оказалась незначительной. Особо отметим, что в условиях эксперимента распределение интенсивности излучения в виде колец не наблюдалось при облучении кювет со всеми видами наночастиц, взвешенными в воде (для всех размеров применявшихся кювет), а также для наночастиц размерами свыше 5–10 мкм (например, частицы TiO₂).

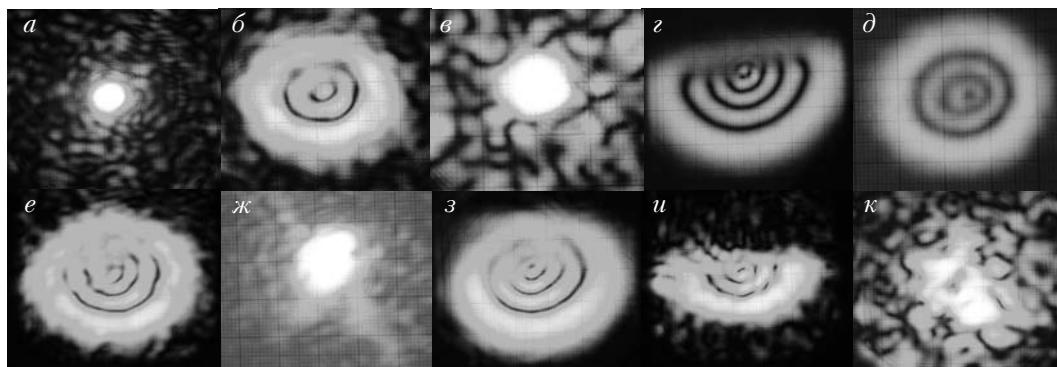


Рис. 2. Типичные ДК лазерного пучка, прошедшего через кювету с различными растворами наночастиц: а – TiO₂ в воде; б – Fe₃O₄ в спирте; в – Fe₃O₄ в воде; г – колларгол в спирте (большая концентрация 2%); д–е – колларгол в глицерине; ж – TiO₂ в спирте; з – колларгол в спирте (малая концентрация 0,03%); и – Cu в ацетоне; к – Fe₃O₄ в глицерине (2%)

Временная динамика формирования ДК лазерного пучка, прошедшего через кювету (толщиной 2 мм) с раствором колларгола в глицерине, показана на рис. 3 в виде последовательности кадров, снятых видеокамерой. В начальный момент времени (до 0,25 с, рис. 3, *a*) распределение энергии излучения на экране соответствует пятну диаметром, совпадающим с размером лазерного пучка, прошедшего кювету с чистым (без золя) растворителем. Это пятно быстро увеличивается в размерах (рис. 3, *б*),

трансформируясь за несколько секунд в устойчивую в систему колец (рис. 3, *в-д*). Эволюция суммарного размера проекционной картины D_{Σ} и размеров отдельных колец, где $d1, d3, d5$ – диаметры темных колец, а $d2, d4$ – соответственно светлых колец, представлена в виде графика на рис. 3.

Зависимость диаметра внешнего светлого кольца D_{Σ} от мощности лазерного излучения P_0 представлена на рис. 4, *a*, а аналогичная зависимость от оптической толщи τ коллоида приведена на рис. 4, *б*.

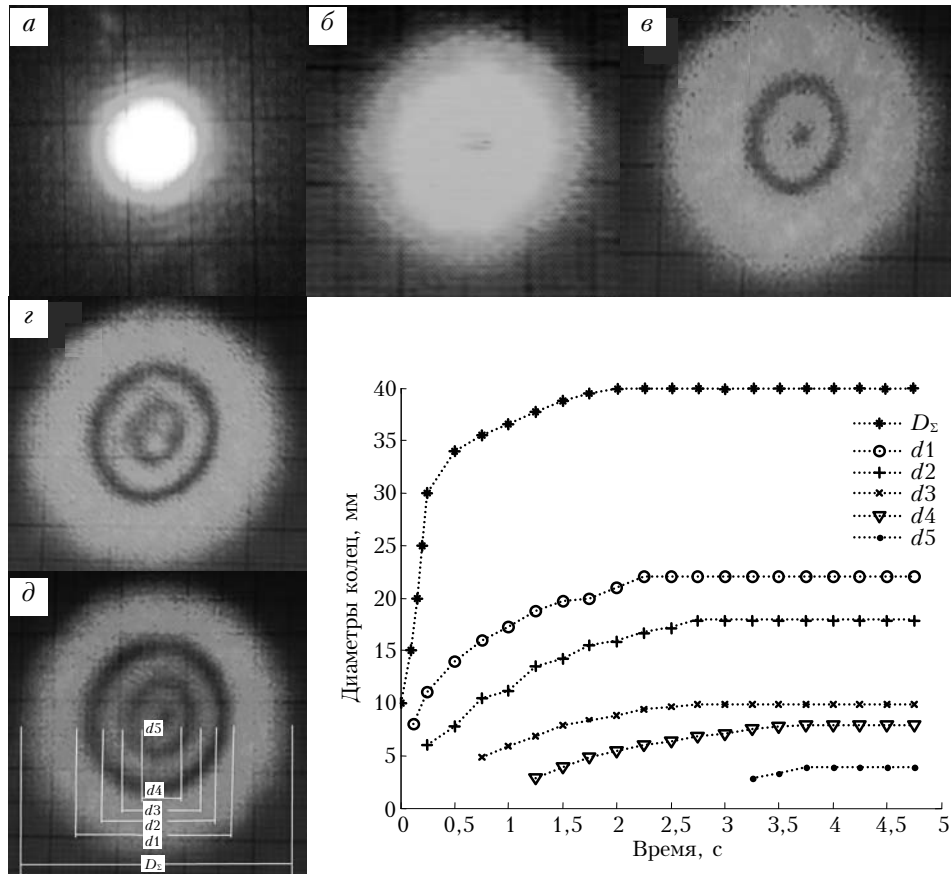


Рис. 3. Динамика изменения ДК лазерного пучка, прошедшего через кювету (2 мм) с раствором колларгола в глицерине

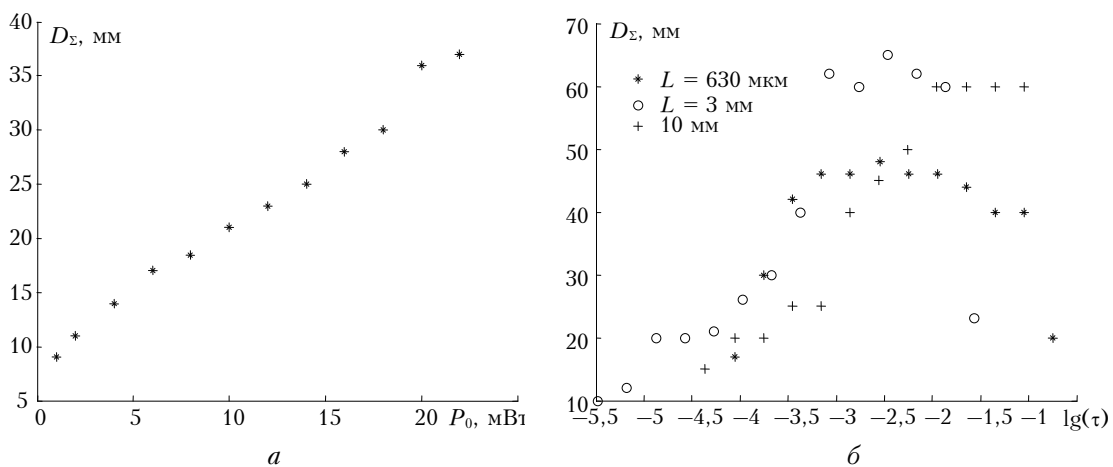


Рис. 4. Зависимость диаметра внешнего светлого кольца дифракционной картины от мощности лазерного излучения (*a*) и от оптической толщи коллоидного раствора колларгола в глицерине (*б*)

Видно, что размер наблюдаемой ДК линейно увеличивается с ростом мощности падающего излучения. Похожее поведение наблюдается и при повышении оптической толщи коллоидного раствора. Однако дальнейшее увеличение оптической плотности растворов приводит к уменьшению размеров наблюдаемой ДК практически до размеров пятна, получаемого в отсутствие наночастиц. При этом снова наблюдается ярко выраженное спекл-распределение.

Математическая модель динамической ДК при тепловой самодефокусировке лазерного пучка в НКР

Теоретическое описание ДК на экране, образовавшейся в результате прохождения светового пучка через слой НКР, проведем в рамках модели теплового самовоздействия лазерного излучения в поглощающей среде. Для этого воспользуемся дифракционным интегралом Кирхгофа [18]. В приближении Фраунгофера данный интеграл позволяет рассчитать поперечное распределение интенсивности оптического поля I в дальней зоне дифракции. В условиях цилиндрической симметрии задачи имеем

$$I(\beta, t) = \frac{\pi c}{2(\lambda D)^2} \left| \int_0^\infty E_L(r, t) J_0(kr\beta) r dr \right|^2, \quad (1)$$

где $E_L(r)$ — комплексная амплитуда электрического поля световой волны на выходной плоскости кюветы с раствором; $\beta = r'/D$, r' , r — угловая и радиальные координаты в плоскости регистрации (экрана) и кюветы соответственно; D — расстояние до экрана; $k = 2\pi/\lambda$ — волновое число; c — скорость света в вакууме; t — время; $J_0(x)$ — цилиндрическая функция Бесселя нулевого порядка.

Комплексную амплитуду поля E_L найдем, пренебрегая дифракцией внутри кюветы, как

$$E_L(r, t) = E_0(r) \exp(-ikL \cdot \overline{\Delta m}(r, t)). \quad (2)$$

Здесь $E_0(r)$ — профиль амплитуды поля пучка на входной плоскости кюветы; $\overline{\Delta m}$ — среднее изменение комплексного показателя преломления среды $m = n - ik$ на толщине кюветы L . В дальнейшем для упрощения расчетов будем считать кювету с коллоидом *оптически тонкой* средой. Тогда амплитуда поля на выходной плоскости кюветы с раствором примет следующий вид:

$$E_L(r, t) = E_0(r) \exp(-\alpha L/2) \exp(-i\Delta\varphi(r, t)), \quad (3)$$

где $\alpha = 2kn_c\kappa_c$ — объемный коэффициент поглощения коллоида; $\Delta\varphi(r, t) = kL[n_c(r, t) - n_c^0(r)]$; $n_c^0(r) = n_c(r, 0)$, n_c , κ_c — показатели преломления и поглощения коллоидной среды (предполагается, что в стенках кюветы и в воздухе поглощение света отсутствует, т.е. $\Delta\kappa_m = \kappa_c$). Окончательно, подставляя (3) в (1), получим

$$I(\beta, t) = \frac{\pi c}{2(\lambda D)^2} \exp(-\tau) \times$$

$$\times \left| \int_0^\infty E_0(r) \exp(-i\Delta\varphi(r, t)) J_0(kr\beta) r dr \right|^2, \quad (4)$$

где $\tau = \alpha L$ — оптическая толщина среды.

Как следует из (4), причиной возникновения ДК на экране является фазовая модуляция излучения при прохождении через коллоидную среду. В условиях тепловой самодефокусировки светового пучка, когда характер фазовой модуляции, как будет видно ниже, близок к нелинейности керровского типа ($\Delta\varphi \sim I$), вычисление интеграла Кирхгофа дает наблюдающийся в экспериментах набор концентрических колец.

При тепловом самовоздействии светового пучка источником изменения показателя преломления коллоидной среды является вариация ее температуры $\Delta T(r, t)$:

$$n_c(r, t) = n_c^0(r) + \frac{dn}{dT} \Delta T(r, t), \quad (5)$$

где dn/dT — термооптический коэффициент среды. Для большинства жидкостей $dn/dT < 0$, поэтому их нагрев приводит к локальному снижению коэффициента преломления, т.е. к появлению дефокусирующих излучение областей. Так, например, для воды $dn/dT \approx -10^{-4} \text{ K}^{-1}$, в то время как для этанола данный параметр в 4 раза выше: $dn/dT \approx -4 \cdot 10^{-4} \text{ K}^{-1}$ [19].

Раствор коллоида является дисперсной средой, образованной смешением жидкой (основа) и твердой (золь) фаз, поэтому, строго говоря, термооптические и другие свойства коллоида могут отличаться от их значений для чистой жидкости. Однако, поскольку объемная доля твердого золя δ в экспериментальных растворах была невелика (не превышала нескольких процентов), в дальнейшем будем рассматривать коллоидный раствор как некоторую однородную и однофазную среду с физико-химическими характеристиками, определяемыми свойствами основы.

В противоположность этому, оптическая активность коллоида существенно зависит от химического и микрофизического состава твердой фракции, добавленной в жидкую основу. Поэтому для расчета комплексного показателя преломления коллоида $m_c = n_c - ik_c$ воспользуемся известной теорией эффективной среды Максвелла—Гарнетта [20], согласно которой объемный коэффициент поглощения коллоида выражается следующим образом:

$$\alpha = \frac{9k\delta\epsilon_l^{3/2}\epsilon_s''}{(2\epsilon_l + \epsilon_s')^2 + (\epsilon_s'')^2}, \quad (6)$$

где $\epsilon_s = \epsilon_s' - i\epsilon_s''$, ϵ_l — диэлектрические проницаемости золя и основы.

Если частицы золя представляют собой металлические наносферы, то для определения ϵ_s можно использовать оптическую модель сплошного металла

(модель Друде), скорректированную с учетом влияния геометрического размера частицы на частоту столкновения свободных электронов [21]:

$$\varepsilon_s = \varepsilon_{sb}(\omega) + 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + \omega_c^2} \left(1 + i \frac{\omega_c}{\omega} \right), \quad \omega_c = v_F \left(\frac{1}{l_e} + \frac{1}{a_0} \right). \quad (7)$$

Здесь ε_{sb} — диэлектрическая проницаемость сплошного металла; ω_p — плазменная частота; v_F — скорость Ферми; l_e — средняя длина свободного пробега электрона; a_0 — радиус зольной частицы. Для серебра данные параметры равны: $\omega_p = 13,4$ ПГц, $v_F = 1,38 \cdot 10^6$ м/с, $l_e = 57$ нм, а зависимость $\varepsilon_{sb}(\omega)$ может быть взята из [22].

Обратимся вновь к соотношению (5). Пространственно-временную динамику температурного поля тонкого слоя коллоида, облученного световым пучком с интенсивностью I , будем рассматривать на основе уравнения теплопроводности неограниченной по поперечным коэффициентам двухмерной однофазной среды. В отсутствие конвекции и анизотропии теплофизических свойств среды это уравнение в декартовой системе координат имеет следующий вид:

$$\frac{\partial T(\mathbf{r}_\perp, t)}{\partial t} = \chi_T \Delta_\perp T(\mathbf{r}_\perp, t) + \frac{\alpha}{\rho C_p} I(\mathbf{r}_\perp, t), \quad (8)$$

где $\mathbf{r}_\perp = (x, y)$; ρ , C_p , χ_T — плотность, удельная изобарная теплоемкость и коэффициент теплопроводности коллоидной среды; $\Delta_\perp = \partial^2/\partial x^2 + \partial^2/\partial y^2$ — поперечный Лапласиан. Здесь и в дальнейшем для удобства записи под температурой T будем понимать ее приращение ΔT над начальным уровнем. Считается, что лазерное излучение включается в момент времени $t = 0$ и характеризуется радиусом R_0 , пиковой интенсивностью I_0 и поперечным профилем интенсивности $f_I(\mathbf{r}_\perp)$, т.е. $I(\mathbf{r}_\perp, t) = I_0 f_I(\mathbf{r}_\perp) \Theta(t)$, где $\Theta(t)$ — функция Хэвисайда.

Переходя в (8) к безразмерным переменным $x \rightarrow x/R_0$, $y \rightarrow y/R_0$ и решая его в области пространственных частот $\mathbf{k}_\perp \in \mathbf{K}_\perp$, получим

$$T(\mathbf{r}_\perp, t) = 4 \frac{I_0 t_\chi \alpha}{C_p \rho} \times \int \int_{\mathbf{K}_\perp} \frac{S_I(\mathbf{k}_\perp)}{k_\perp^2} \left(1 - \exp \left\{ -\frac{k_\perp^2 t}{4t_\chi} \right\} \right) \exp \{ i |\mathbf{k}_\perp \cdot \mathbf{r}_\perp| \} d\mathbf{k}_\perp, \quad (9)$$

где $t_\chi = R_0^2/4\chi_T$; $S_I(\mathbf{k}_\perp)$ — Фурье-трансформанта профиля интенсивности излучения.

Далее рассмотрим частный случай лазерного пучка с гауссовским поперечным распределением интенсивности: $f_I(\mathbf{r}) = \exp\{-(x^2 + y^2)/R_0^2\} = \exp\{-r^2/R_0^2\}$. Для такого пучка правая часть (9) выражается через экспоненциальные интегралы $Ei(x)$, что приводит к следующей временной зависимости пространственного профиля нормированной температуры коллоидной среды:

$$T(r, t) = \frac{P_0 \alpha}{4\pi \Lambda} \left[Ei \left(-\frac{r^2}{R_0^2} \right) - Ei \left(-\frac{r^2}{R_0^2(1+t/t_\chi)} \right) \right]. \quad (10)$$

Здесь Λ — коэффициент теплопроводности коллоида; $P_0 = \pi R_0^2 I_0$ — мощность лазерного излучения на входе в нелинейную среду. Теперь становится понятным сделанное выше замечание о керровском характере теплового самовоздействия излучения в поглощающей среде, поскольку из (5) и (10) можно записать: $n_c(r, t) = n_c^0(r) + n_2(r, t)I_0$, где коэффициент n_2 изменяется в пространстве-времени и зависит от теплофизических и оптических свойств среды распространения, а также от параметров лазерного пучка.

Уравнение (8) записано для бесконечно тонкого (в направлении распространения пучка) слоя коллоидной среды. Это означает, что мы пренебрегли вариацией интенсивности оптической волны вдоль координаты z по сравнению с изменением интенсивности в поперечном направлении. Феноменологически учесть поглощение лазерного пучка в среде можно, заменив в (10) начальную мощность P_0 на ее текущее значение $P(z) = P_0 \exp(-\alpha z)$ и усреднив затем по толщине слоя коллоида L , что эквивалентно замене реального коэффициента поглощения слоя α на его эффективную величину: $\alpha_{eff} = [1 - \exp(-\alpha L)]/L$ (условие $\alpha L < 1$ по-прежнему должно выполняться).

Для примера на рис. 5 показана рассчитанная по (10) временная динамика нагрева коллоидного раствора серебра в воде при облучении его лазерным пучком с длиной волны $\lambda = 532$ нм, $R_0 = 0,5$ мм и $P_0 = 10$ мВт.

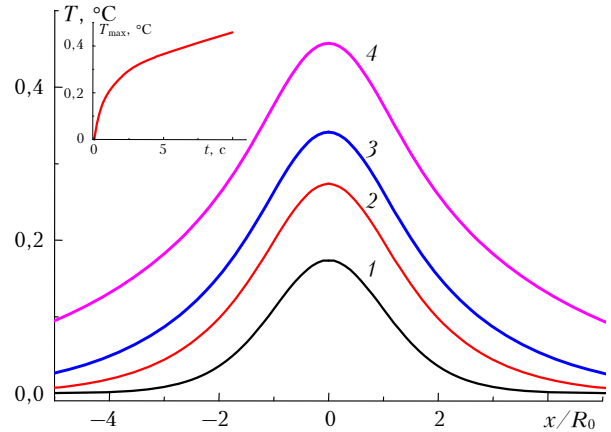


Рис. 5. Поперечный профиль температуры водного раствора серебра, облученного лазерным излучением, в различные моменты времени: $t = 0,5$ (1); 2 (2); 3,5 (3) и 10 с (4). Временная динамика температуры на оси пучка показана на врезке

Считалось, что кювета с коллоидными частицами ($a_0 = 10$ нм, объемная доля серебра $\delta = 10^{-5}$) имеет толщину 3 мм, что дает эффективное поглощение $\alpha \approx 0,09$ мм $^{-1}$.

На врезке к данному рисунку приведена зависимость от времени максимального значения при-

ращения температуры раствора T_{\max} , реализующегося на оси пучка. Видно, что первоначально резкое повышение температуры НКР за время $t \approx 5t_{\chi}$ (в рассматриваемом случае $t_{\chi} = 0,47$ с) сменяется ее последующим квазилинейным ростом. При этом к концу времени рассмотрения ($t = 10$ с) коллоидный раствор максимально нагревается примерно на полградуса ($\Delta T \sim 0,43$ °C).

Столь незначительное повышение температуры, однако, может существенно сказаться на фазе световой волны, проходящей кювету с раствором. Действительно, фазовый сдвиг на оси пучка $\Delta\phi_{\max} = kLT_{\max}(dn/dT)$ в данном случае составляет примерно $-\pi/2$, что вызовет его абберационную дефокусировку при свободном распространении до регистрирующего экрана и возможное появление колец.

Обсуждение результатов

Используя соотношения (4), (5) и (10), рассмотрим временную динамику интенсивности дальнего поля лазерного пучка, прошедшего слой коллоидного серебра (колларгол). Результаты соответствующего расчета приведены на рис. 6 для поперечного профиля интенсивности, формирующегося на расстоянии $D = 8$ м от кюветы. Значения интенсивности нормированы на свой максимум. Параметры лазерного излучения и зольных частиц были такие же, как и выше (см. рис. 5), за исключением более высокой концентрации серебра и использования спиртового, а не водного раствора.

Видно, что, как и в экспериментах (см. рис. 2), численное моделирование дает нарастание числа и размера интерференционных колец с течением времени от начала облучения кюветы с коллоидным серебром. Устойчивая картина интенсивности на экране, состоящая из трех отчетливых светлых ко-

лец и темной центральной зоны, формируется за времена порядка 3–4 с и в дальнейшем практически не изменяется вплоть до окончания времени счета (~ 2 мин). «Видимый» диаметр внешнего светлого кольца при этом составляет $\sim 3,5$ см, а внутреннего — 1 см, что коррелирует с экспериментально фиксируемым распределением интенсивности.

В центре ДК по мере ее развития наблюдается сначала максимум интенсивности, который соответствует яркой точке (рис. 6, *a, б*), затем происходит снижение осевого максимума (рис. 6, *в*) и, наконец, формирование центрального темного пятна (рис. 6, *г*). Темное пятно в центре является характерным именно для случая теплового самовоздействия расфокусированного или свободно распространяющегося лазерного пучка, и его наличие является ключевым для работы оптических ограничителей. В другом случае, предварительно сфокусированного пучка, в центре ДК интенсивность всегда будет максимальной [12].

Заметим, что распределения интенсивности, полученные из численных расчетов в рамках модели тепловой дефокусировки пучка в слое поглощающей среды, по своему виду несколько отличны от приведенных на рис. 2 и 3 экспериментальных фотографий. Прежде всего, обращает на себя внимание большая ширина светлых колец, реально наблюдавшихся на экране по сравнению с теоретическими профилями.

Причина, видимо, заключается в том, что при расчете набега фазы световой волны мы не учли диффузную компоненту рассеянного на частицах золя света. Прохождение светового пучка через слой случайно расположенных рассеивателей приведет к потере пространственной когерентности лазерного излучения на выходе из слоя и размытию интерференционных колец.

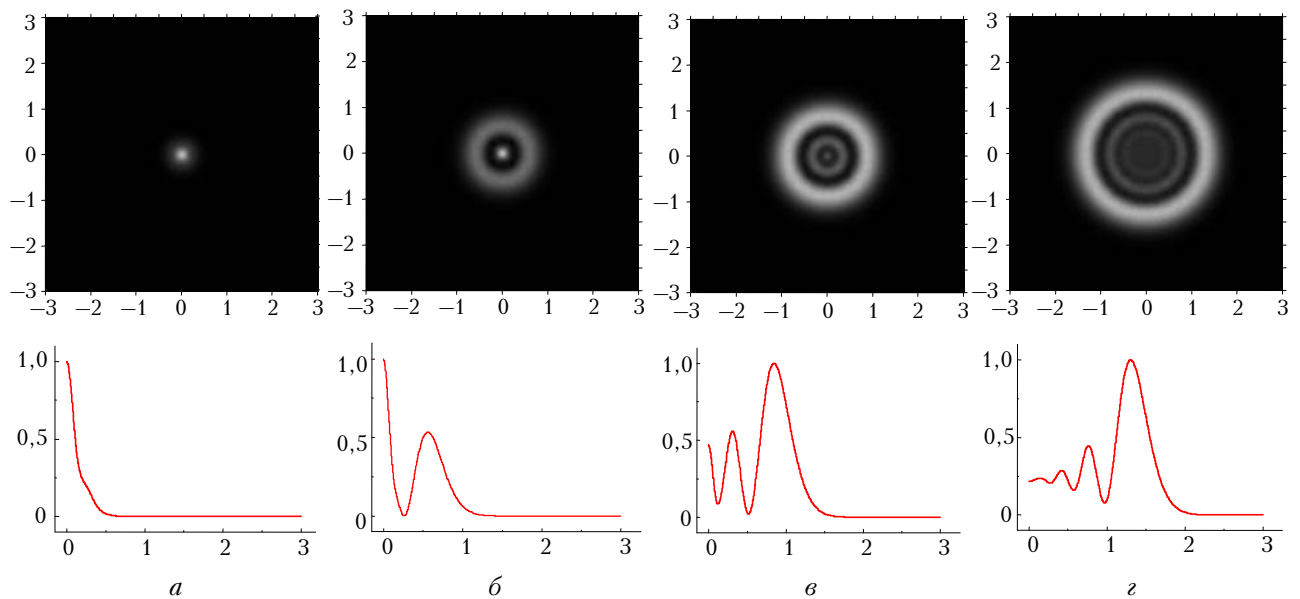


Рис. 6. Двумерное и соответствующее ему радиальное поперечные распределения нормированной интенсивности лазерного пучка, прошедшего слой коллоидного серебра (спиртовой раствор, $L = 630$ мкм, $\delta = 10^{-4}$), в различные моменты времени: 0,25 (*a*); 0,75 (*б*); 2,0 (*в*) и 4 с (*г*). Шкалы по осям x, y даны в см

Кроме того, в теоретической модели было использовано уравнение теплопроводности для сплошной среды, в то время как коллоидный раствор, строго говоря, таковой не является.

Само число наблюдающихся на экране светлых колец характеризует величину максимального фазового сдвига $\Delta\varphi_{\max}$, приобретаемого излучением в нелинейной среде. По данным работы [17], в условиях тепловой дефокусировки пучка каждое новое (светлое) кольцо в поперечном профиле интенсивности появляется при приращении фазы волны, кратном 2π , что соответствует конструктивной интерференции излучения из пространственных зон пучка со сдвигом фазы колебаний в один период. Таким образом, приблизительное число светлых колец определяется как $N_R = \lfloor |\Delta\varphi_{\max}| / 2\pi \rfloor$, где угловые скобки $\lfloor \rfloor$ означают взятие целой части числа. В расчетах, результаты которых показаны на рис. 6, пиковый фазовый сдвиг составлял $\Delta\varphi_{\max}/2\pi \approx -4,2$, что свидетельствует о зарождении четырех колец.

Используя решение для температуры коллоидной среды (10), найдем, что максимальное число наблюдаемых светлых колец в установившейся ДК дается соотношением

$$N_R = \left\lfloor \frac{P_0 \tau_{eff}}{4\pi\lambda\Lambda} \left| \frac{dn}{dT} \right| \right\rfloor, \quad (11)$$

т.е. прямо пропорционально мощности светового пучка, поглощенной в среде (здесь $\tau_{eff} = \alpha_{eff}L = 1 - \exp(-\tau)$).

В свою очередь угловой радиус θ_{\max} внешнего кольца связан с поперечной компонентой волнового вектора как $\theta_{\max} = |\mathbf{k}_\perp|_{\max}/k \approx 1/k|\partial\Delta\varphi_{\max}/\partial r|$. Следовательно, дифференцированием (11) по радиальной координате получим связь углового размера ДК с мощностью излучения или с числом светлых колец:

$$\theta_{\max} = \frac{1,2P_0\tau_{eff}}{4\pi R_0\Lambda} \left| \frac{dn}{dT} \right| \propto N_R \frac{\lambda}{R_0}. \quad (12)$$

Видно, что размер наблюдаемой проекции пучка на экране, как и число колец, линейно увеличивается

с ростом мощности лазерного пучка, что и было установлено нами в экспериментах (см. рис. 4, а).

Кроме того, наличествует и зависимость θ_{\max} от эффективной оптической толщи коллоидного раствора. Причем, поскольку в выражении (12) берется ее эффективное значение τ_{eff} , сам характер этой зависимости линеен при малых величинах τ и выходит на насыщение при заметном поглощении в растворе. Другими словами, выражение (12) говорит о том, что угловой размер наблюдаемой ДК стабилизируется начиная с некоторых значений оптической толщи НКР. Такое поведение видно на рис. 4, б при $\tau \approx 10^{-2}$. Дальнейшее уменьшение размера внешнего кольца с увеличением толщи раствора свидетельствует о существенном падении интенсивности прошедшего коллоидный слой пучка и не описывается используемой нами здесь моделью оптически тонкой среды.

Рис. 7 демонстрирует влияние типа растворителя на поперечное распределение интенсивности лазерного пучка в дальней зоне дифракции. Расчет проведен при одной и той же мощности излучения $P_0 = 20$ мВт для коллоидного раствора частиц серебра в трех различных жидкостях (воде, спирте и глицерине), имеющих близкий коэффициент преломления на длине волны 532 нм, но различающихся по своим физическим свойствам.

Видно, что из трех рассмотренных коллоидных сред раствор серебра в спирте дает наибольшее число колец (пять) в поперечном распределении интенсивности пучка и соответственно наиболее широкую ДК. Аналогичный по концентрации серебра водный раствор порождает только одно центральное пятно, а коллоид на глицерине — три кольца на экране.

Этот факт становится понятным, если обратиться к выражению (11) для числа колец. В него, как видно, входит комбинация физических характеристик основы $M = (\Lambda^{-1}|dn/dT|)$, величине которой пропорционально N_R . Расчет данного параметра с использованием табличных данных дает: $M = 0,15$ (H_2O), $2,2$ (C_2H_5OH) и $0,8$ мм/Вт ($C_3H_8O_3$).

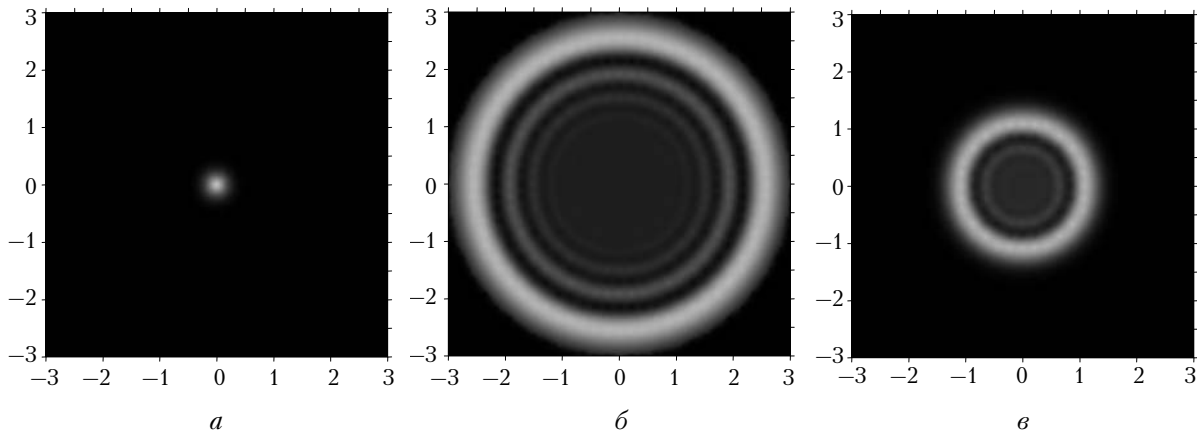


Рис. 7. Поперечное распределение интенсивности лазерного пучка, прошедшего слой ($\delta = 10^{-4}$, $L = 630$ мкм) коллоидного раствора серебра в воде (а), спирте (б) и глицерине (в)

Таким образом, спирт, обладая наименьшей из исследуемых веществ теплопроводностью и одновременно наибольшим термооптическим коэффициентом, способствует приобретению более глубокой пространственной фазовой модуляции ($\Delta\varphi_{\max}$) светового излучения после прохождения им слоя коллоидного раствора. Вода по данному параметру «отстает» от этанола более чем на порядок величины, и поэтому никаких вторичных колец (кроме центрального пятна) в эксперименте при $P_0 = 20$ мВт от водных коллоидов не наблюдалось.

Заключение

В статье рассмотрена временная динамика интенсивности оптического поля в дальней зоне дифракции гауссовского лазерного пучка, прошедшего тонкий слой коллоидного серебра. Как показали данные экспериментов, в плоскости наблюдения формируется динамическая дифракционная структура поля, состоящая из нескольких соосных светлых и темных колец, диаметр и число которых увеличиваются с течением времени наблюдения и варьируют в зависимости от типа и концентрации коллоидного раствора. Устойчивая дифракционная картина с неизменным количеством колец формируется на экране за времена порядка нескольких секунд с момента включения лазерного излучения. Число образующихся колец прямо пропорционально оптической толщине коллоидной среды и мощности светового пучка.

Теоретическая интерпретация экспериментальных результатов дана с точки зрения теплового самовоздействия лазерного излучения в поглощающей среде. Наночастицы коллоидного серебра выступают в роли эффективно поглощающих свет центров, которые за счет теплопроводности прогревают жидкую основу коллоида, приводя к появлению градиента температуры по сечению лазерного пучка. Поскольку термооптическая нелинейность жидкости понижает показатель преломления там, где температура среды выше, то в зоне воздействия пучка возникает прогрессирующий к центру отрицательный фазовый сдвиг, который действует на проходящее излучение подобно дефокусирующей абберационной линзе и приводит к формированию наблюдаемых в дальней зоне колец.

На основе аналитического решения одномерного (в цилиндрических координатах) уравнения теплопроводности однородной среды с тепловым источником, обусловленным линейным поглощением света, нами были рассчитаны пространственно-временные профили приращения температуры коллоидных растворов серебра. Для определения структуры дальнего поля был использован интеграл Кирхгофа в приближении дифракции Фраунгофера. Это позволило получить оценочные выражения, которые связали число светлых колец в плоскости наблюдения, а также угловой размер всей дифракционной картины с теплофизическими характеристиками жидкой основы, удельной долей золя и параметрами лазерного пучка.

Работа выполнена при финансовой поддержке Программы № 8.1 ОФН РАН, Федерального агентства по образованию в рамках реализации Федеральной целевой программы «Научные и научно-педагогические кадры инновационной России» на 2009–2013 гг., в рамках реализации мероприятия № 1.2.2 «Проведение научных исследований научными группами под руководством кандидатов наук» (Гос. контракт № П367 от 30 июля 2009 г.).

1. *Кавецкая И.В., Волошина Т.В., Капановский В.А., Красовский В.И.* Оптические свойства наночастиц золота // Конденсированные среды и межфазные границы. 2009. Т. 11, № 1. С. 53–57.
2. *Ganeev R.A., Ryasnyansky A.I., Kamalov Sh.R., Kodirov M.K., Usmanov T.* Nonlinear susceptibilities, absorption coefficients and refractive indices of colloidal metals // J. Phys. D. 2001. V. 34, N 11. P. 1602–1611.
3. *Pan D., Senpan A., Caruthers S.D., Williams T.A., Scott M.J., Gaffney P.J., Wickline S.A., Lamza J.M.* Sensitive and efficient detection of thrombus with fibrin-specific manganese nanocolloids // Chem. Commun. 2009. N 22. P. 3234–3236.
4. *Erickson D., Mandal S., Yang A.H.J., Cordovez B.* Nanobiosensors: Optofluidic, electrical and mechanical approaches to biomolecular detection at the nanoscale // Microfluid Nanofluid. 2008. V. 4, N 1–2. P. 33–52.
5. *Lapotko D.* Optical excitation and detection of vapor bubbles around plasmonic nanoparticles // Opt. Express. 2009. V. 17, N 4. P. 2538–2556.
6. *Righini M., Girard C., Quidant R.* Light-induced manipulation with surface plasmons // J. Opt. A. 2008. V. 10, N 9. 093001.
7. *Yoon Y.-Z., Cicuta P.* Optical trapping of colloidal particles and cells by focused evanescent fields using conical lenses // Opt. Express. 2010. V. 18, N 7. P. 7076–7084.
8. *Ashkin A., Dziedzic J.M., Smith P.W.* Continuous-wave self-focusing and self-trapping of light in artificial Kerr media // Opt. Lett. 1982. V. 7, N 6. P. 276–278.
9. *Яшин В.Е., Чижов С.А., Сабиров П.Л., Старикова Т.В., Высотина Н.В., Розанов Н.Н., Семенов В.Е., Смирнов В.А., Федоров С.В.* Формирование солитоноподобных световых пучков в водной суспензии полистироловых частиц // Оптика и спектроскопия. 2005. Т. 98, № 3. С. 511–514.
10. *Conroy R.S., Mayers B.T., Vezenov D.V., Wolfe D.B., Prentiss M.G., Whitesides G.M.* Optical waveguiding in suspensions of dielectric particles // App. Opt. 2005. V. 44, N 36. P. 7853–7857.
11. *Driben R., Husakou A., Herrmann J.* Supercontinuum generation in aqueous colloids containing silver nanoparticles // Opt. Lett. 2009. V. 34, N 14. P. 2132–2134.
12. *Deng L., He K., Zhou T., Li C.* Formation and evolution of far-field diffraction patterns of divergent and convergent Gaussian beams passing through self-focusing and self-defocusing media // J. Opt. A. 2005. V. 7, N 8. P. 409–415.
13. *Nascimento C.M., Alencar M., Chavez-Cerda S., Silva M., Meneghetti M.R., Hickmann J.M.* Experimental demonstration of novel effects on the far-field diffraction patterns of a Gaussian beam in a Kerr medium // J. Opt. A. 2006. V. 8, N 11. P. 947–951.
14. *Mao Z., Qiao L., He F., Liao Y., Wang C., Cheng Y.* Thermal-induced nonlinear optical characteristics of ethanol solution doped with silver nanoparticles // Chin. Opt. Lett. 2009. V. 7, N 10. P. 949–952.

15. *Ono H., Kawatsuki N.* Controllable optical intensity limiting of a He–Ne laser with host-guest liquid crystals // *Opt. Commun.* 1997. V. 139, N 1–3. P. 60–62.
16. *Gordon J.P., Leite R.C., Moore R.S., Porto P.S., Winery J.R.* Long-transient effects in lasers with inserted liquid samples // *J. Appl. Phys.* 1965. V. 36, N 1. P. 3–8.
17. *Durbin S.D., Arakelian S.M., Shen Y.R.* Laser-induced diffraction rings from a nematic-liquid-crystal film // *Opt. Lett.* 1981. V. 6, N 6. P. 411–413.
18. *Ахманов С.А., Никитин С.Ю.* Физическая оптика: Учебник. 2-е изд. М.: Изд-во МГУ–Наука, 2004. 656 с.
19. *Boyd R.W.* Nonlinear optics. 2nd edn. London: Academic Press., 2003. 619 p.
20. *Борн М., Вольф Э.* Основы оптики. 2-е изд. М.: Наука, 1973. 720 с.
21. *Mandal S.K., Roy R.K., Pal A.K.* Surface plasmon resonance in nanocrystalline silver particles embedded in SiO₂ matrix // *J. Phys. D.* 2002. V. 35, N 17. P. 2198–2205.
22. *Handbook of Optical Constants of Solids. Volume II* / Ed. by E.D. Palik. San Diego: Elsevier Science, 1998. 1096 p.

Yu.E. Geints, V.A. Donchenko, A.A. Zemlyanov, N.S. Panamarev. **Far-field temporal dynamics of laser beam passed through a thin nanocolloidal layer.**

We report on the experimental results of the temporal dynamics and formation of far-field diffraction patterns obtained when a low-intensity laser beam passes through a thin cell with metallic nanocolloids. The steady-state structure of the intensity distribution on a distant screen is shown to be formed in few seconds starting from the moment of laser beam incidence on the colloid and consists of several coaxial bright and dark rings. The ring's diameter and number vary depending on the solvent type and optical thickness of the colloid. The diffraction patterns depend also on the particle concentration and laser power. The theoretical interpretation of the observable peculiarities of diffraction patterns dynamics are carried out based on the free-space Kirchhoff diffraction integral and the analytical solution of heat transfer equation for a light absorbing medium.