

# Нелинейная рефракция гидрозолей серебра в процессе их агрегации

С.В.Карпов\*, М.К.Кодиров\*\*, А.И.Ряснянский\*\*, В.В.Слабко\*\*\*

*Экспериментально исследована взаимосвязь между степенью агрегации гидрозолей серебра и их нелинейным показателем преломления  $n_2$ . Обнаружено, что с ростом степени агрегации происходит смена знака  $n_2$  на длине волны 1.064 мкм, соответствующая смене самофокусировки режимом самодифокусировки. Найденные закономерности объяснены на основе анализа изменения нелинейной дисперсии среды с учетом механизмов взаимного влияния фаз, а также фотохромных эффектов, характерных для коллоидных структур с фрактальной геометрией. Показано, что основной причиной смены знака нелинейного показателя преломления гидрозолей при длительности облучающих импульсов менее  $10^{-7}$  с является возмущение резонансов серебра и воды и конкуренция керровских нелинейных поляризаций с участием этих резонансов.*

**Ключевые слова:** нелинейная рефракция, гидрозоль серебра, самодифокусировка.

## 1. Введение

Одной из основных задач квантовой электроники и нелинейной оптики является поиск и исследование новых сред с аномально высокими нелинейно-оптическими характеристиками. Это связано с широкими перспективами использования таких сред для создания активных элементов оптоэлектроники в интегральном исполнении, управление которыми может осуществляться с помощью полупроводниковых лазеров малой мощности. К классу таких нелинейно-оптических сред относятся золи металлов, в которых наночастицы дисперсной фазы объединены во фрактальные структуры. Уже в первых экспериментах [1, 2] были продемонстрированы уникальные нелинейно-оптические свойства подобных сред, подтвердившие предсказания новых физических теорий (см. ссылки в [1]).

Коллоиды серебра являются наиболее удобной модельной средой при изучении оптических явлений в золях металлов. Их оптические спектры в видимом диапазоне обуславливают изолированный поверхностный плазмонный резонанс, лежащий в стороне от полосы межзонного поглощения. Коагуляция частиц, как спонтанная, так и фотостимулированная, приводит к росту коллоидных структур с фрактальными свойствами (см. ссылки в [3]). Рост фрактальных агрегатов из-за электродинамического взаимодействия частиц сопровождается сильным неоднородным уширением спектра плазмонного поглощения гидрозоля [1, 3].

К настоящему времени в целом ряде экспериментов [1–6] выявлена взаимосвязь между степенью агрегации

коллоидов серебра, фрактальной размерностью агрегатов и нелинейно-оптическими характеристиками этого типа сред. Одним из наиболее простых и удобных инструментов для исследования нелинейно-оптических свойств материалов является метод  $z$ -сканирования – новый высокочувствительный однолучевой метод измерения нелинейного показателя преломления  $n_2$ , предложенный в [7].

Целью настоящей работы является исследование методом  $z$ -сканирования закономерностей в изменении  $n_2$  гидрозолей серебра при возрастании степени их агрегации, анализ механизмов оптической нелинейности и оценка роли сопутствующих процессов. Отметим, что в случае кубической нелинейности показатель преломления среды  $n$  связан с  $n_2$  известным выражением [7]  $n = n_0 + 0.5n_2|E|^2 = n_0 + \Delta n$ , где  $n_0$  – линейный показатель преломления;  $E$  – амплитуда напряженности поля.

## 2. Экспериментальная установка

В экспериментах использовался Nd:YAG-лазер с модуляцией добротности. Динамика изменения  $n_2$  гидрозолей серебра исследовалась на длине волны генерации Nd:YAG-лазера ( $\lambda = 1.064$  мкм,  $W = 12$  мДж,  $\tau = 15$  нс). Экспериментальная установка была построена по схеме с ограничивающей диафрагмой [7] (рис.1). Диа-

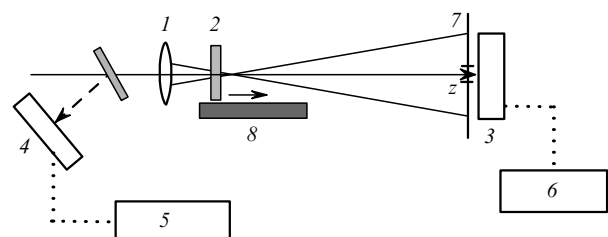


Рис.1. Схема экспериментальной установки:

1 – фокусирующая линза; 2 – кювета с гидрозолью; 3, 4 – фотодиоды; 5, 6 – цифровые вольтметры; 7 – диафрагма; 8 – микропозиционный столик.

\*Институт физики им.Л.В.Киренского СО РАН, Россия, 660036 Красноярск, Академгородок; e-mail: karpov@iph.krasn.ru

\*\*Самаркандский государственный университет, Узбекистан, 703004 Самарканд, Университетский просп., 15

\*\*\*Красноярский государственный технический университет, Россия, 660028 Красноярск, ул. Киренского 26

фрагма диаметром 1 мм, пропускавшая ~ 1 % лазерного излучения, устанавливалась на расстоянии 100 см от области фокуса. За диафрагмой располагался фотодиод 3, сигнал с которого измерялся цифровым вольтметром 6.

Для устранения влияния нестабильности выходных энергетических характеристик лазера на результаты измерений сигнал, регистрируемый фотодиодом 3, нормировался на соответствующие показания второго фотодиода 4. Лазерное излучение фокусировалось линзой 1 с фокусным расстоянием 18 см. Кварцевая кювета 2 толщиной 2 мм с гидрозолем серебра передвигалась вдоль оптической оси  $z$  с помощью микропозиционного столика 8, проходя фокус, предфокальную и зафокальную области. Размер фокального пятна в зоне перетяжки составлял 100 мкм. При этом максимальная интенсивность излучения достигала 8 ГВт/см<sup>2</sup>. Энергия излучения лазерных импульсов измерялась калиброванным фотодиодом 4 и регистрировалась цифровым вольтметром 5. Схема с ограничивающей диафрагмой позволяла определять как знак, так и абсолютное значение нелинейного показателя преломления  $n_2$  исследуемой среды.

Для приготовления стандартного Ag-гидрозоля использовался препарат колларгол (о методиках приготовления золь см. [3]). Размеры агрегатов серебра лежали в пределах 100–1000 нм при среднем размере составляющих их частиц 4–20 нм и объемной доле серебра порядка 10<sup>-6</sup>. Контроль за степенью агрегации осуществлялся по спектрам поглощения гидрозолей. Спектральное определение степени агрегации золь, основанное на уширении спектра поглощения, предложено, в частности, в [3]. Спектры поглощения гидрозоля, регистрировавшиеся в процессе агрегации, представлены на рис.2.

### 3. Результаты и их обсуждение

Характерные зависимости пропускания кюветы с Ag-гидрозолем от ее положения относительно точки фокусировки лазерного излучения  $T(z)$  приведены на рис.3. Эти зависимости были получены при двух крайних состояниях степени агрегации  $A$  – начальном ( $A = 0$ , интенсивность в околофокальной области  $I \approx 10^9$  Вт/см<sup>2</sup>) и конечном ( $A = 1$ ,  $I \approx 10^8$  Вт/см<sup>2</sup>). Обнаруженной особенностью является смена знака  $n_2$  с ростом  $A$ .

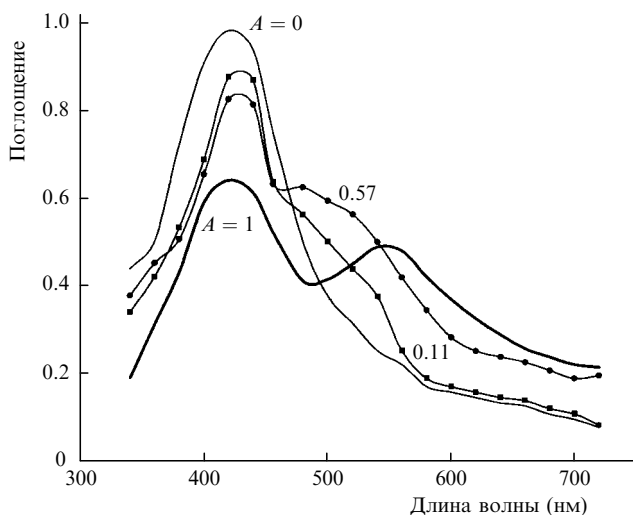


Рис.2. Спектры поглощения Ag-гидрозоля с разной степенью агрегации  $A$ .

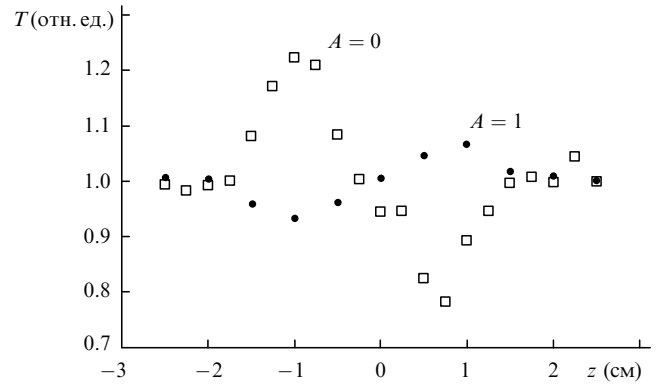


Рис.3. Нормированное пропускание  $T$  как функция положения кюветы с Ag-гидрозолем в схеме с ограничивающей диафрагмой при разной степени агрегации  $A$ .

Для определения нелинейно-оптических характеристик среды на основе данных об оптическом пропускании используется уравнение теории  $z$ -сканирования [7]:

$$\Delta T_{pv} = 0.404(1 - S)^{0.25} \left| \frac{2\pi\Delta n_0 [1 - \exp(-\alpha L)]}{\lambda\alpha} \right|, \quad (1)$$

где  $\Delta T_{pv}$  – нормализованная разница между максимумом и минимумом пропускания в зависимости  $T(z)$ ;  $\Delta n_0$  – нелинейная добавка к коэффициенту преломления  $\Delta n$  в фокусе ( $z = 0$ );  $S$  – геометрическое пропускание диафрагмы (доля излучения в расходящемся гауссовом пучке, попадающем через диафрагму 7 (рис.1) в фотоприемник, в отсутствие нелинейных эффектов);  $\lambda$  – длина волны излучения;  $L$  – длина образца;  $\alpha$  – линейный показатель поглощения. Рассчитанные с помощью выражения (1) значения  $n_2$  гидрозоля серебра составляли от  $1.1 \cdot 10^{-11}$  ( $A = 0$ ) до  $-3.2 \cdot 10^{-10}$  ед. СГСЭ ( $A = 1$ ).

К числу важных экспериментальных результатов данной работы, заслуживающих отдельного обсуждения, следует отнести смену знака  $n_2$  с ростом  $A$ . По сути дела при увеличении  $A$  первоначальная способность среды к самофокусировке излучения сменяется способностью к самодефокусировке, поскольку нелинейный показатель преломления среды связан с нелинейной восприимчивостью третьего порядка:  $n_2 \propto n_0^{-2} \chi^{(3)}$  [8]. Факт изменения  $\chi^{(3)}$  гидрозолей при их агрегации известен [1, 2], однако модели, используемые для описания этого эффекта, не предсказывают смены знака (во всяком случае, для излучения с  $\lambda = 1.064$  мкм). В связи с этим вопрос об интерпретации экспериментальных зависимостей нуждается в дополнительном анализе.

В настоящей работе мы исходим из того, что наиболее вероятным источником нелинейной рефракции (НР) в Ag-гидрозолях является высокочастотный эффект Керра на существующих в среде резонансах, поскольку, как показывают оценки, вклад теплового расширения среды при наносекундной длительности импульсов, использовавшихся в эксперименте, пренебрежимо мал. Для процесса  $\omega = \omega + \omega - \omega$  керровская нелинейная восприимчивость  $\chi^{(3)}$  многокомпонентной среды в случае простейшей двухуровневой системы вдали от резонансов может быть представлена следующим выражением (см., напр., [9]):

$$\chi^{(3)}(\omega, -\omega, \omega) \propto \sum_i N_i \frac{d_{12i}^4}{(\omega_{12i} - \omega)^3}, \quad (2)$$

где  $d_{12i}$  – матричный элемент электродипольного момента перехода на частоте  $\omega_{12i}$ ;  $N_i$  – концентрация частиц  $i$ -го компонента среды (суммирование выполняется по всем компонентам).

Из выражения (2) видно, что знак  $n_2$  будет определяться знаком резонансной отстройки. При этом, если выполняется условие  $\omega < \omega_{12}$ , в однокомпонентной среде наблюдается самофокусировка, если  $\omega > \omega_{12}$  – самодефокусировка. При выполнении суммирования по компонентам среды в случае, если парциальный вклад какой-либо из них доминирует, знак  $n_2$  будет зависеть также от  $d_{12i}$  и концентрации  $i$ -го компонента. Доминирование того или другого резонанса при изменении нелинейных дисперсионных свойств среды и может быть причиной проявления положительной или отрицательной НР. В нашем случае в качестве основных компонентов среды выступают наночастицы серебра и вода.

Рассмотрим вклад каждого из основных компонентов гидрозоля в  $\chi^{(3)}$  на длине волны лазерного излучения 1.064 мкм с учетом характерных для сред этого типа резонансов. Для частиц серебра основную роль в формировании нелинейного отклика играет поверхностный плазмон с центром полосы поглощения в области  $\lambda_{\text{pl}} = 0.42$  мкм, а также полоса межзонного поглощения, лежащая в области длин волн  $\lambda < 0.35$  мкм. Обе эти полосы характеризуются частотой, превышающей частоту лазерного излучения  $\omega_{\text{las}}$ , и, следовательно, их вклад в НР будет положительным.

Неоднородное уширение спектра поверхностного плазмона с эффективным сдвигом полосы поглощения в длинноволновую область спектра (см. рис.2), сопровождающее агрегацию частиц серебра, приводит к увеличению положительного вклада в НР. Отрицательный вклад в НР могут вносить дискретные состояния, обусловленные размерным квантованием энергии электронов в металлической частице малых размеров [10]. Однако в нашем случае для частиц Ag диаметром 10 нм разница между энергиями ближайших квантовых состояний для разрешенных переходов составляет  $740 \text{ см}^{-1}$  ( $\sim 13.5$  мкм). При таком различии энергий эти резонансы вряд ли внесут существенный отрицательный вклад в НР на длине волны 1.064 мкм.

Из вышесказанного следует, что агрегация Ag-частиц в чистом виде не должна приводить к смене знака НР, поскольку даже при максимальном спектральном уширении и распространении части полосы поглощения в область  $\omega < \omega_{\text{las}}$  весовой вклад в  $\chi^{(3)}$  резонансов, расположенных в области  $\omega > \omega_{\text{las}}$ , преобладает.

Керровская восприимчивость  $\chi^{(3)}$  воды обусловлена влиянием электронно-колебательной полосы ( $\lambda < 0.19$  мкм), характеризующейся интегральным элементом  $d_{12}^{\text{ev}} \sim 10^{-18}$  ед. СГСЭ, а также колебательной полосы с основным переходом ( $\lambda = 2.9$  мкм) и его первым обертоном ( $\lambda = 1.45$  мкм) [11, 12]. Вклад этих полос в  $\chi^{(3)}$  воды имеет разный знак, а результирующая НР будет определяться соотношением  $d_{12}^{\text{ev}}$  и  $d_{12}^{\text{v}}$ . Оценки показывают, что вклад коротковолновых переходов доминирует и НР воды в области  $\lambda = 1.064$  мкм положительна, что подтверждается данными [13, 14]. Это связано с некоторым превышением  $(d_{12}^{\text{ev}})^4 |\Delta\omega_{\text{ev}}|^{-3}$  над  $(d_{12}^{\text{v}})^4 |\Delta\omega_{\text{v}}|^{-3}$  ( $\Delta\omega_{\text{ev}}$  и  $\Delta\omega_{\text{v}}$  – отстройки соответствующих резонансов от  $\omega_{\text{las}}$ ).

Таким образом, получается, что вклад обоих компонентов среды в  $\chi^{(3)}$  гидрозоля положителен и должен возрастать в процессе агрегации частиц. Это противоре-

чит экспериментальным данным и делает необходимым корректировку модели.

### 3.1. Механизмы изменения оптических характеристик гидрозоля в поле лазерного излучения

Основная причина изменения оптических характеристик гидрозолей, по нашему мнению, связана с сильным нагревом частиц. Так, при интенсивности излучения в области перетяжки  $I = 8 \cdot 10^9 \text{ Вт/см}^2$  частица с размером  $10^{-6}$  см поглощает  $10^{-10}$  Дж. При данных условиях ее температура может возрасти до  $10^4 - 10^5$  К на расстоянии 2 см от фокуса, а непосредственно в области перетяжки – до  $10^6$  К (без учета теплообмена с окружающей средой). Последнее означает, что в этих условиях влияние плазмонного резонанса частиц серебра на дисперсионные свойства гидрозоля принципиально отличается от такового при комнатной температуре.

С ростом  $A$  из-за приближения резонансов серебра к  $\omega_{\text{las}}$  поглощение излучения увеличивается и возрастающий нагрев частиц серебра сопровождается изменением характеристик гидрозоля. Основные причины изменения оптических свойств гидрозоля, по нашему мнению, связаны с совокупным влиянием двух процессов. Во-первых, это испарение частиц серебра и расширение плазмонного сгустка за время действия импульса до размеров, при которых уменьшается как плазменная частота  $\omega_{\text{pl}}$  (до  $\omega_{\text{pl}} < \omega_{\text{las}}$ ), так и  $d_{12}^{\text{pl}}$  (последнее происходит из-за окисления ионов серебра в процессе разрушения кристаллической решетки и сольватации электронов). Во-вторых, это колебательное возбуждение молекул воды, находящихся в контакте с частицами серебра, с последующим заселением высоколежащих колебательных состояний молекул ( $v \gg 1$ ), электродипольный момент перехода между которыми возрастает как  $v^{1/2}$  [15]. Оба вышеназванных механизма приводят к увеличению отрицательного вклада в НР.

Оценка минимального невозмущенного значения  $d_{12}^{\text{pl}}$ , основанная на спектроскопических данных для Ag-золя с частицами размером  $\sim 10$  нм, дает  $2.5 \cdot 10^{-16}$  ед. СГСЭ. Для оценки  $d_{12}^{\text{v}}$  ближайшего к  $\omega_{\text{las}}$  колебательного перехода воды ( $v = 0 - 1$ ) можно воспользоваться значениями оптических констант воды на этой частоте [11, 12] и формулой Лоренц–Лорентца. Полученное  $d_{12}^{\text{v}} \approx 10^{-20}$  ед. СГСЭ.

При имеющихся соотношениях  $d_{12}^{\text{pl}}$  и  $d_{12}^{\text{v}}$  и при  $|\Delta\omega_{\text{pl}}^3 / \Delta\omega_{\text{v}}^3| \approx 10^4$ , а также объемной доле серебра  $N_{\text{Ag}} \leq 10^{-6}$  получаем, что для неагрегированного золя отношение нелинейных поляризацій на переходах серебра и воды

$$P_{\text{Ag}}^{(3)} : P_{\text{H}_2\text{O}}^{(3)} \propto [N_{\text{Ag}} (d_{12}^{\text{pl}})^4 |\Delta\omega_{\text{pl}}|^{-3}] : [(d_{12}^{\text{v}})^4 |\Delta\omega_{\text{v}}|^{-3}] \quad (3)$$

составляет  $\sim 10^7$ .

Экспериментальные данные показывают, что значение  $\chi^{(3)}$  гидрозоля на несколько порядков больше, чем в чистой воде, хотя и является заниженным с учетом значительных  $d_{12}^{\text{pl}}$ . Это позволяет сделать вывод о важной посреднической роли серебра в усилении оптической нелинейности гидрозоля и о наличии в гидрозоле процессов, которые уменьшают относительный вклад дисперсного серебра в  $\chi^{(3)}$  гидрозоля и характеризуются изменением параметров, входящих в выражение (2). Проанализируем эти процессы отдельно.

### 3.1.1. Механизмы увеличения электродипольных моментов переходов воды

Как уже отмечалось, одним из возможных механизмов влияния дисперсного серебра на нелинейные свойства воды в условиях сильного нагрева частиц является увеличение  $d_{12}^v$  вследствие заселения высоколежащих колебательных состояний молекул воды ( $d_{12}^v \sim v^{1/2}$  [15]) из-за их контакта с поверхностью нагретых излучением частиц либо с образующейся плазмой. Сходный механизм самофокусировки за счет колебательного, вращательного и электронного возбуждения молекул и атомов обсуждается в работе [16].

Приведем некоторые параметры, описывающие условия проявления данного механизма. Энергия разрыва связи молекулы воды близка к энергии верхнего колебательного состояния и составляет  $8.4 \cdot 10^{-20}$  Дж [17], что соответствует температуре  $6 \cdot 10^4$  К. Энергии  $\sim 10^{-10}$  Дж, поглощаемой отдельной частицей, достаточно для термодиссоциации  $\sim 10^8$  молекул, которые занимают объем  $3 \cdot 10^{-15}$  см<sup>3</sup> и могут располагаться вокруг частицы в сферическом слое толщиной  $R = 10^{-5}$  см. Соответственно время, в течение которого термодиссоциация молекул может охватить весь слой,  $t = R/v_s$ , составляет  $\sim 10^{-10}$  с, где  $v_s$  – скорость звука в воде.

Это означает, что объем, занимаемый термически возбужденными молекулами воды, как минимум в  $10^3$  раза больше объема частиц серебра, хотя доля максимально возбужденных молекул воды  $N_t$  не превышает  $10^{-3} - 10^{-2}$ . Если исходить из того, что  $d_{12}^v$  возрастет хотя бы на порядок, то с учетом соотношения  $|\Delta\omega_{ev}|^{-3}/|\Delta\omega_v|^{-3} \approx 10^6$  и приведенного диапазона значений  $N_t$  вклад колебательных переходов воды в ее керровскую восприимчивость  $\chi^{(3)}$  может, как минимум, достичь вклада электронно-колебательной полосы и существенно изменить отношение (3).

### 3.1.2. Механизм изменения резонансной частоты частиц серебра; динамические резонансы

В процессе агрегации золя поглощение перераспределяется в формирующееся длинноволновое крыло (см. рис.2). Это уже является одной из причин изменения дисперсионных свойств среды. Другой важный механизм также основан на вышеприведенных оценках увеличения температуры частиц в поле лазерных импульсов и на возможном изменении в таких условиях  $\omega_{pl}$ . Дело в том, что при сильном нагреве частицы и последующем образовании плазмы происходит увеличение ее объема, а значит, и уменьшение электронной концентрации  $n_e$ .

Однако, т.к.  $\omega_{pl} \sim n_e^{1/2}$ , то при расширении плазмы происходит низкочастотный сдвиг  $\omega_{pl}$ , зависящий от времени. Испарение большей части частиц за время действия импульса должно приводить к значительному динамическому возрастанию плотности поверхностных плазмонных резонансов в диапазоне  $\omega < \omega_{las}$ , ответственном за самодефокусировку. Так, для того чтобы в процессе расширения плазмы частота  $\omega_{pl}$  сместилась от  $c/0.42$  мкм в низкочастотный диапазон до частоты, соответствующей, например, 1.1–1.2 мкм, при которой уже может произойти смена знака НР, необходимо, чтобы размер плазменного сгустка увеличился приблизительно в два раза. При этом скорость его расширения будет ограничена скоростью звука в воде и при начальных размерах частиц  $\sim 10^{-8}$  м увеличение размера в два раза будет достигнуто за время порядка  $10^{-11}$  с, т.е. этот

эффект может быть замечен и при использовании пикосекундных импульсов. Очевидно, что именно в агрегированном золе с начальным низкочастотным сдвигом полосы плазмонного поглощения динамическое уменьшение  $\omega_{pl}$  приведет к наибольшему возрастанию спектральной плотности плазмонных резонансов в диапазоне  $\omega < \omega_{las}$ , ответственном за самодефокусировку.

При оценке динамических частотных сдвигов необходимо учесть также поправку на сдвиг  $\omega_{pl}$ , связанный с изменением диэлектрической проницаемости окружающей среды  $\epsilon_m$  в случае образования паровой полости вокруг частицы, т.к.  $\omega_{pl} \sim (1 + 2\epsilon_m)^{-1/2}$  [18]. Такая поправка  $\omega_{pl}^{vapor}/\omega_{pl}^{water}$  не превысит 1.17.

### 3.1.3. Механизмы изменения концентрации спектральных компонентов золя

При анализе условий перехода от режима самофокусировки к самодефокусировке в процессе агрегации важен учет парциального вклада основных компонентов гидрозоль, связанных с возможным изменением их объемной концентрации.

Прежде всего в процессе испарения частиц, разрушения кристаллической решетки и расширения плазмы исчезает поглощение в полосе межзонного поглощения металла, что существенно способствует самодефокусировке. Кроме того, возможность проявления обсуждаемых механизмов связана непосредственно с агрегацией золя. В частности, при появлении в процессе агрегации длинноволнового крыла в спектре поглощения золя возникают условия для фотомодификации фрактальных агрегатов и выжигания в них резонансных полюсов частиц [5] (другой фотохромный эффект – фотоагрегация [19] – проявляться не будет, т.к.  $\omega_{las}$  лежит за пределами красной границы этого процесса [3, 6]). Однако в условиях эксперимента интенсивность импульсов в  $\sim 10^3$  раз превышала порог резонансной фотомодификации. В этом случае фотомодификация агрегатов в поле ИК импульсов носит сильно неселективный характер, а доля частиц, вовлеченных в процесс, начинает резко возрастать за счет нерезонансных частиц. При полном испарении всех частиц в золе за время действия импульса их взаимодействие с излучением происходит только на динамических плазмонных резонансах серебра (частота которых меняется за время действия импульса).

Кроме того, низкочастотное уширение спектра поглощения, сопутствующее агрегации, способствует более эффективному поглощению частицами лазерного излучения, а значит, и их нагреву, поскольку приближает плазмонные резонансы к  $\omega_{las}$ . С этим, в частности, можно связать 30-кратное увеличение абсолютного значения  $n_2$  агрегированного золя по сравнению с  $n_2$  для неагрегированного золя.

### 3.2. Анализ сопутствующих процессов и их кинетики

Лазерное разрушение частиц в агрегатах как один из факторов смены знака НР в наносекундных импульсах требует дополнительного анализа и с точки зрения кинетики этого процесса – в случае, когда эксперимент выполняется с пикосекундными импульсами. Возникает вопрос: успеют ли частицы серебра испариться (прекратить взаимодействие со светом) за время действия импульса с  $\tau = 30$  пс? Для ответа на него воспользуемся зависимостями, описывающими время развития фотомодификации  $t_p$  в таких же Ag-гидрозолях [19].

Из [19] следует, что  $t_p$  зависит от плотности энергии импульсов и при ее четырехкратном увеличении уменьшается со 150 до 50 пс. Очевидно, что при более высоких плотностях энергии время  $t_p$  может уменьшиться дополнительно, а частицы могут испариться за время одного импульса, т. е. с точки зрения кинетики роль данного процесса в керровской нелинейности при пикосекундных импульсах также представляется реальной.

Отметим, что использование в схеме z-сканирования пикосекундных импульсов приводило к аналогичным результатам – смене знака  $n_2$  с последующим увеличением его абсолютного значения с ростом  $A$ . Этот результат позволяет сделать важный вывод о пренебрежимо малом вкладе тепловой составляющей нелинейности, обусловленной нагревом среды излучением и дальнейшим расширением зоны нагрева. Последнее приводит к уменьшению плотности среды, а значит, и ее коэффициента преломления.

Подтверждением того, что тепловой механизм не может вносить заметного вклада в самодефокусировку, является незначительность расширения зоны нагрева за время действия наносекундного импульса даже по сравнению с размером фокальной перетяжки. В самом деле, размер формирующейся тепловой линзы  $r_0 = v_s \tau$  ( $v_s \approx 10^5$  см/с – скорость звука в воде), и для импульсов с  $\tau = 15$  нс он не превышает  $\sim 10^{-3}$  см. Это на порядок меньше экспериментального размера фокальной перетяжки и, как минимум, на два порядка меньше диаметра пучка во внефокальном положении, где эффект самодефокусировки проявляется максимально (см. рис.3). Соответственно для импульсов с длительностью 30 пс  $r_0$  составит всего лишь  $\sim 10^{-6} d_b$ , где  $d_b$  – диаметр пучка. По крайней мере уже по этой причине вызывают сомнения выводы, сделанные в [8] о связи отрицательной НР Аи-гидрозолей с образованием тепловых линз в импульсах с  $\lambda = 0.53$  мкм,  $\tau = 35$  нс.

При анализе условий проявления НР следует принять во внимание и рассеяние лазерного излучения в гидрозолях металлов, связанное с образованием паровых пу-

зырьков вокруг поглощающих излучение частиц дисперсной фазы [20] (время их образования и роста в [20] составило  $\sim 10^{-8}$  с). Однако здесь в случае предфокального положения кюветы с гидрозолем (см. рис.1) данный эффект будет лишь противодействовать керровской самодефокусировке. Из этого следует вывод о существенно большем вкладе керровской нелинейности на динамических плазмонных резонансах серебра и колебательных переходах воды, чем в условиях реального эксперимента.

1. Shalaev V.M. *Phys.Rep.*, **272**, 61 (1996).
2. Butenko A.V., Danilova Yu.E., Karpov S.V. et al. *Zs.Phys.D*, **17**, 283 (1990)
3. Карпов С.В., Басько А.Л., Кошелев С.В. и др. *Коллоид.жс.*, **59**, 765 (1997)
4. Драчев В.П., Перминов С.В., Раутиан С.Г., Сафонов В.П. *Письма в ЖЭТФ*, **68**, 618 (1998)
5. Карпов С.В., Попов А.К., Раутиан С.Г. и др. *Письма в ЖЭТФ*, **48**, 528 (1988)
6. Карпов С.В., Попов А.К., Слабко В.В. *Письма в ЖЭТФ*, **66**, 97 (1997)
7. Sheik-Bahae M., Said A.A., Wei T.-H. et al. *IEEE J. Quantum Electron.*, **26**, 760 (1990)
8. Sheik-Bahae M., Said A.A., Van Stryland E.W. *Optics Letts*, **14**, 955 (1989).
9. Шен И.Р. *Принципы нелинейной оптики* (М., Наука, 1989).
10. Раутиан С.Г. *ЖЭТФ*, **112**, 836 (1997).
11. Hale G.M., Querry M.R. *Appl. Optics*, **12**, 555 (1973).
12. Kerr G.D., Hamm R.N., Williams M.W. et al. *Phys.Rev.A*, **5**, 2523 (1972).
13. Feng Q., Moloney J.V., Newell A.C., Wright E.M. *Optics Letts*, **20**, 1958 (1995)
14. Tsang T. *Phys.Rev.A*, **54**, 5454 (1996).
15. Ельяшевич М.А. *Атомная и молекулярная спектроскопия* (М., ГИФМЛ, 1962).
16. Аскарьян Г.А. *Письма в ЖЭТФ*, **4**, 400 (1966).
17. *Энергии разрыва химических связей. Потенциалы ионизации и средство к электрону* (М., Наука, 1974).
18. Борен К., Хафмен Д. *Поглощение и рассеяние света малыми частицами* (М., Мир, 1986).
19. Карпов С.В., Попов А.К., Слабко В.В. *Изв. РАН. Сер. физич.*, **60** 43 (1996)
20. Частов А.А., Лебедев О.Л. *ЖЭТФ*, **58**, 848 (1970).