

# Параметрические взаимодействия в глубоко очищенной воде в поле мощного оптического излучения. Эффект дегазации

В.А.Бабенко, Н.Ф.Бункин, Н.В.Суязов, А.А.Сычев

*Экспериментально изучено возбуждение оптического пробоя и четырехфотонных параметрических процессов в воде в поле накачки с длиной волны 1.064 мкм и длительностью импульса 20 пс. Показано, что дегазация и «промывка» гелием образца воды приводит к подавлению оптического пробоя; при этом процессы четырехфотонного параметрического взаимодействия возбуждаются наиболее эффективно. Такой результат объясняется тем, что в дегазированной и «промытой» гелием воде для данных условий эксперимента самофокусировка накачки имеет регулярный характер.*

**Ключевые слова:** параметрическое взаимодействие в жидкости, оптический пробой в жидкости, бабстонно-кластерная структура.

## 1. Введение

Проблема возбуждения четырехфотонных параметрических процессов в воде как наиболее распространенной в природе жидкости возникла в середине 1970-х годов, когда появились источники мощного излучения, позволяющие получать в фокусе линзы интенсивности порядка ТВт/см<sup>2</sup>. Необходимость в использовании источников излучения столь высокой интенсивности заключается в том, что вода как среда с центром инверсии обладает только кубической нелинейной восприимчивостью  $\chi^{(3)}$ ; по данным работы [1] эта величина мала, порядка  $10^{-13}$  ед. СГС. Другая причина применения мощных лазерных источников состоит в том, что в оптических полях с высокой интенсивностью возбуждаются процессы локального изменения симметрии жидкости, что позволяет говорить о вкладе состояний с квадратичной нелинейностью (см., напр., [2]). Среди механизмов, которые следует учитывать при рассмотрении параметрических процессов в жидкостях, выделим фазовую самомодуляцию (генерацию суперконтинуума) [1, 3], а также процессы четырехфотонного смешения [4]. Здесь уместно отметить, что по поводу механизма параметрического взаимодействия в жидкостях проводились достаточно оживленные дискуссии [5]; общий итог этих дискуссий сводился к тому, что для УКИ длительностью менее или порядка пикосекунд доминирующим механизмом является фазовая самомодуляция. Для импульсов длительностью десятки пикосекунд, т. е. когда самомодуляция подавлена, возможен вклад четырехфотонных процессов. Сразу ука-

жем, что для импульсов наносекундного диапазона параметрическое взаимодействие в жидкостях, насколько нам известно, не наблюдалось (во всяком случае, каких-либо упоминаний в литературе об этом нет). Причина здесь, по-видимому, в том, что для параметрических процессов в механизм формирования затравочных фотонов существенный вклад дают процессы фазовой самомодуляции, которые для наносекундных импульсов малоэффективны.

Общей чертой всех экспериментов по возбуждению параметрических процессов в воде является то, что эти процессы происходят в условиях самофокусировки излучения, что позволяет получать в каустике линзы очень высокие интенсивности. Кроме того, параметрические процессы сопровождаются оптическим пробоем. В связи с этим возникает проблема разделения спектров сигналов, возникающих при параметрическом взаимодействии и при вспышке во время пробоя. Данная проблема отчасти снимается в экспериментах с использованием лазерных импульсов фемтосекундной длительности, поскольку в этом случае вспышка при оптическом пробое, обусловленном электронной лавиной, не успевает сформироваться, а сам пробой проявляется в возникновении парогазового пузыря в каустике линзы спустя какое-то время после прохождения импульса (см., напр., [6]).

Наш интерес к изучению параметрических эффектов в жидкости обусловлен именно возможностью детально исследовать роль оптического пробоя в этих эффектах. Оптический пробой в чистой (т. е. свободной от поглощающих примесей) жидкости может быть обусловлен различными механизмами, среди которых разумно выделить два основных. Первый механизм связан с процессом многофотонной ионизации молекул жидкости в световом поле с достаточно высокой интенсивностью (см. обзор [7]); очевидно, что оптический пробой при таком механизме имеет регулярный характер, т. е. наступает в каждом лазерном выстреле, если достигнут порог по интенсивности. В соответствии с данными работы [7] для излучения с длиной волны  $\lambda = 1.064$  мкм при диаметре фокального пятна 30 мкм пороги пробоя для импульсов

В.А.Бабенко, А.А.Сычев. Физический институт им. П.Н.Лебедева РАН, Россия, 119991 Москва, Ленинский просп., 53; e-mail: babenko@sci.lebedev.ru, sychev@sci.lebedev.ru

Н.Ф.Бункин, Н.В.Суязов. Научный центр волновых исследований Института общей физики им. А.М.Прохорова РАН, Россия, 119991 Москва, ул. Вавилова, 38; e-mail: nbunkin@kapella.gpi.ru, nvnvns@orc.ru

Поступила в редакцию 10 января 2007 г., после доработки – 27 апреля 2007 г.

длительностью 10 пс – 10 нс примерно одинаковы и составляют порядка  $10^{11}$  Вт/см<sup>2</sup>. Вторым механизмом оптического пробоя был предложен в работе [8]. В соответствии с этим механизмом пробой имеет затравочный характер и возникает, если затравка для пробоя попадает во время импульса в такую область лазерного пучка, где интенсивность достаточна для того, чтобы на данной затравке пробой был реализован. В этом случае при малых интенсивностях излучения (порядка  $10^9$  Вт/см<sup>2</sup>) могут быть реализованы условия, при которых пробой наступает не в каждом лазерном импульсе, т. е. имеет спорадический характер; с ростом интенсивности пробой при затравочном механизме приобретает регулярный характер, т. е. возникает в каждом импульсе [8].

В очищенной от твердых микрочастиц и внешних ионогенных примесей жидкости затравками для пробоя являются бабстонные кластеры – стабильные частицы, состоящие из отдельных газовых нанопузырей – бабстонов [9, 10]. Бабстон (аббревиатура от bubble stabilized by ions) – это термодинамически устойчивый пузырек размером 10–100 нм; его механическая устойчивость обусловлена балансом сжимающих сил поверхностного натяжения и растягивающих кулоновских сил, связанных с тем, что в оболочки бабстонов специфически адсорбированы ионы определенного типа. Поскольку такие ионы имеют одинаковый знак, то это и приводит к появлению силы, растягивающей пузырек. Зародышами бабстонов служат молекулы растворенного газа, на которых конденсируются ионные капли [11]. Поэтому содержание бабстонных кластеров в жидкости резко уменьшается после дегазации и деионизации.

Здесь важно отметить следующее. Поскольку бабстоны возникают в чистой воде, свободной от каких-либо внешних примесей (экспериментальное подтверждение этого факта приведено в работе [11]), то данные по порогам оптического пробоя, приведенные в обзоре [7], по-видимому, следует рассматривать с учетом вклада механизма, обусловленного наличием бабстонных кластеров. Для развития нашей модели оптического пробоя было бы интересно разделить вклады в регулярный оптический пробой механизма многофотонной ионизации и механизма бабстонных кластеров. Из результатов обзора [7] следует, что такое разделение сделать невозможно. Отметим, впрочем, что в модели оптического пробоя при многофотонной ионизации вся каустика линзы заполнена электронной плазмой, т. е. в каустике происходит полная экранировка излучения. В то же время, как показано в работе [8] (см. также последующую работу [12]), при пробое на бабстонных кластерах экранировки нет, и излучение проникает за каустик. В связи с этим следует сказать, что в работах, цитированных в [7], также отмечается отсутствие экранировки. Таким образом, у нас есть определенные основания полагать, что данные обзора [7] для импульсов длительностью 10 нс – 10 пс относятся именно к пробоем на бабстонных кластерах.

В контексте исследования параметрических взаимодействий в воде возникает вопрос о роли оптического пробоя при таких взаимодействиях и о возможности сделать так, чтобы эти взаимодействия протекали более эффективно, если устранить затравочный механизм пробоя (очевидно, что механизм, связанный с многофотонной ионизацией, принципиально неустраним). Кроме того, возникает вопрос о том, как отличить вспышку, появляющуюся при оптическом пробое (излучение от этой

вспышки изотропно), от излучения, появившегося в результате параметрического взаимодействия (это излучение коллинеарно по отношению к накачке) и рассеянного затем в полный телесный угол. Решению этих вопросов и посвящена данная работа.

Прежде чем приступить к изложению основных результатов настоящей работы, отметим, что ранее нами был предложен метод глубокого обезгаживания воды с последующей «промывкой» гелием образца обезгаженной воды [12]. В результате такой процедуры из жидкости удаётся практически полностью удалить бабстонные кластеры, т. е. гетерогенные затравки для оптического пробоя. Первая часть эксперимента посвящена исследованию оптического пробоя и эффектов параметрического взаимодействия в различных образцах воды. Нами была использована вода, очищенная по технологии Milli-Q (Milli-Q-вода); ее удельное сопротивление составляло 18 МОм·см. Дегазированные и «промытые» гелием образцы такой воды содержались в специально изготовленной кювете, описанной в работе [12]. Образцы обработанной таким образом воды сравнивались с образцами необработанной Milli-Q-воды. Кроме того, в эксперименте была исследована обычная вода из-под крана.

В эксперименте использовался импульсный лазер с  $\lambda = 1.064$  мкм и длительностью импульса 20 пс. Как будет следовать из результатов первой части эксперимента (и это подтверждается многочисленными экспериментальными результатами других авторов), параметрические эффекты возникают в условиях самофокусировки. Вторая часть эксперимента посвящена исследованию влияния бабстонных кластеров на эффекты самофокусировки.

## 2. Исследование четырехфотонного параметрического взаимодействия в воде

Для наблюдения нелинейного рассеяния в воде была создана лазерная установка на основе активного элемента YAG: Nd<sup>3+</sup> с пассивным затвором, генерирующая лазерные импульсы пикосекундной длительности. Принципиальная схема экспериментальной установки представлена на рис. 1. Резонатор задающего генератора был

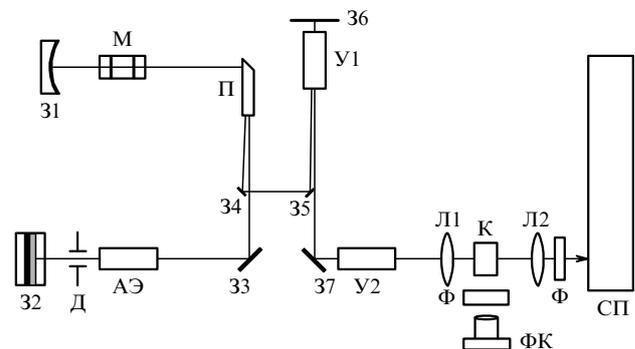


Рис. 1. Схема установки для регистрации параметрического взаимодействия света в воде:

АЭ – активный элемент YAG: Nd<sup>3+</sup>; 31 – глухое зеркало ( $R = 1.0$ ); 32 – кювета с пассивным затвором на зеркале ( $R = 1.0$ ); П – поляризационная призма; М – электрооптический модулятор (кристалл DKDP); Д – диафрагма ( $\varnothing 2.5$  мм); 33–37 – поворотные зеркала ( $R = 1.0$ ); У1, У2 – усилители на YAG: Nd<sup>3+</sup>; Л1 и Л2 – фокусирующие линзы с  $F_1 = 70$  мм и  $F_2 = 30$  мм; Ф – фильтры, отсекающие излучение генерации с  $\lambda = 1.064$  мкм; ФК – фотокамера; СП – спектральный прибор.

сформирован двумя концевыми зеркалами 31 и 32, поворотным зеркалом 33 и поляризационной призмой П. Глухое зеркало 31 (коэффициент отражения  $R = 1.0$ ) имело радиус кривизны 2.5 м. Использование такого зеркала позволяло получать устойчивую генерацию моды  $TEM_{00q}$ . Второй концевой отражателем 32 представлял собой кювету с пассивным затвором на плоском зеркале ( $R = 1.0$ ). Исходная вертикальная поляризация излучения лазера обеспечивалась поляризационной призмой П на основе кристалла DKDP. Для выделения из пучка импульсов генерации одиночного светового УКИ использовался электрооптический модулятор М. При подаче на модулятор высоковольтного электрического импульса длительностью, равной аксиальному периоду излучения лазера, происходил поворот плоскости поляризации лазерного излучения на  $90^\circ$ . Такое излучение выводилось поляризационной призмой П из резонатора. С помощью поворотных зеркал 34 и 35 это излучение направлялось в усиленные каскады У1 и У2.

Стабильная генерация УКИ длительностью  $\sim 20$  пс осуществлялась за счет реализации режима генерации, при котором насыщение усиления активной среды совпадало с просветлением пассивного затвора (так называемый режим второго порога генерации) [13]. Максимальная выходная энергия пучка излучения после усиления составляла 10 мДж. Диаметр выходного пучка равнялся 1 мм. Это излучение линзой Л1 с фокусным расстоянием  $F_1 = 70$  мм направлялось на кювету К длиной 40 мм. Все излучение видимого диапазона, выходящее из кюветы К в направлении лазерного излучения, фокусировалось линзой Л2 на входную щель миниспектрометра СП. Фильтры Ф отсекали излучение на основной частоте лазерной генерации ( $\lambda = 1.064$  мкм).

В дополнение к исследованию спектров нелинейного рассеяния в направлении лазерного пучка фотокамерой ФК проводилась съемка трека излучения под углом  $90^\circ$  к пучку (рис.1). Кроме того, к торцу кюветы прижимался акустический приемник (на рис.1 не показан), изготовленный на основе пьезоэлектрической пленки и описанный в работе [14]; резонансная частота этого приемника составляла 22 МГц. Сигналы с приемника поступали на вход осциллографа (на рис.1 не показан) для контроля звуковых импульсов, возникающих в жидкости в момент оптического пробоя.

Миниспектрограф СП с волоконно-оптическим входом (диаметр волоконно-оптического жгута в нашем случае был равен 400 мкм) включал в себя вогнутую дифракционную решетку и высокочувствительную ПЗС-матрицу; сам прибор через USB-порт подключался к компьютеру (на рис.1 не показан). Спектральная чувствительность миниспектрометра на  $\lambda = 628$  нм составляла менее 0.4 нВт (при отношении сигнал/шум 100). Волоконно-оптический вход миниспектрографа был снабжен микрообъективом с входной апертурой 10 мм; плоскопараллельное излучение, попадающее на вход микрообъектива, фокусировалось точно на скос волоконно-оптического жгута.

На рис.2 приведена фотография вспышки, возникшей в необработанной Milli-Q-воде при фокусировке лазерного импульса с энергией 1.1 мДж. Видно, что оптический пробой состоит из отдельных микровспышек, растянутых вдоль трассы пучка в каустике линзы. В нашей модели каждая вспышка соответствует возбуждению пробоя на бабстонном кластере; интенсивность излучения в

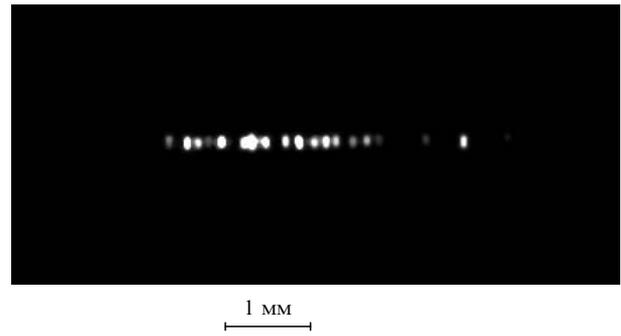


Рис.2. Картина оптического пробоя в необработанной Milli-Q-воде; интенсивность излучения  $10^{12}$  Вт/см<sup>2</sup>.

объеме, внутри которого реализуется пробой, превышает некоторое пороговое значение (более подробно см. работу [8]). Оптический пробой сопровождался генерацией ударной звуковой волны, которая фиксировалась акустическим датчиком в виде импульса на осциллографе. Отметим, что в данных экспериментальных условиях оптический пробой в Milli-Q-воде возникал не в каждом лазерном выстреле: он отсутствовал примерно в каждом пятом выстреле. В то же время в случае облучения воды из-под крана пробой возникал регулярно в каждом выстреле.

Как было показано в нашей предыдущей работе [12], последовательные отгазовка и «промывка» гелием образца воды позволяют в значительной степени понизить содержание бабстонных кластеров в образце. Поэтому в образцах обработанной таким образом воды не удавалось получать картины типа изображенной на рис.2 даже при увеличении энергии импульса до 10 мДж. Следовательно, можно сказать, что по отношению к оптическому пробую вода из-под крана и необработанная Milli-Q-вода различаются лишь количественно, в то время как обработанная Milli-Q-вода отличается от первых двух уже качественно. Спорадический характер пробоя и вспышка в виде множества ярких точек в необработанной Milli-Q-воде позволяют предположить, что этот пробой возник не вследствие многофотонной ионизации молекул воды, а благодаря присутствию затравок – бабстонных кластеров.

Нами было исследовано свечение, возникающее в воде, предварительно отгазованной и «промытой» гелием. Характерные картины свечения, которые получаются в этом случае, представлены на рис.3–5; на всех фотографиях направление распространения лазерного импульса – слева направо. На рис.3 (энергия в импульсе 1.3 мДж) видно свечение в желто-зеленой области спектра, сужающееся по ходу распространения импульса; в своей наиболее широкой части свечение имеет красный цвет. Видно также, что само свечение состоит из отдельных нитей,

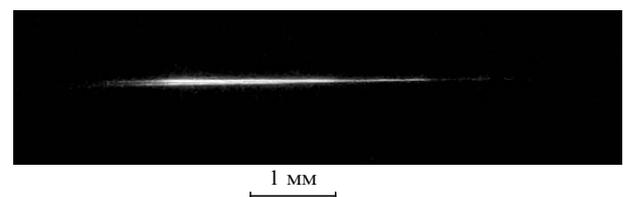


Рис.3. Излучение, выходящее под углом  $90^\circ$  из каустики, при облучении с интенсивностью  $10^{12}$  Вт/см<sup>2</sup> обработанной Milli-Q-воды (режим устойчивого филамента).

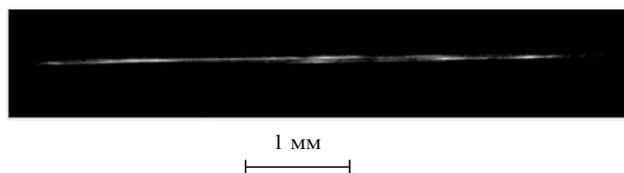


Рис.4. Излучение, выходящее под углом  $90^\circ$  из каустики, при облучении с интенсивностью  $10^{12}$  Вт/см<sup>2</sup> обработанной Milli-Q-воды (режим неустойчивого филамента).

поперечный размер такой нити составляет примерно 10 мкм. Тот факт, что излучение в видимой области исходит от светящихся нитей, а наиболее яркий по светимости участок находится спереди (по отношению к направлению движения лазерного импульса), позволяет сделать следующий вывод. По-видимому, мы имеем дело с самофокусировкой излучения, и у нас реализуется режим фокуса, бегущего навстречу лазерному импульсу (о различных режимах самофокусировки см. монографию [3]). Поскольку область свечения в данном случае имеет сплошной характер, можно говорить о реализации так называемого устойчивого филамента [3].

Однако, как показано в [3], устойчивые филаменты, как правило, реализуются крайне редко, т. к. при самофокусировке возникает фокусировка излучения в точку с последующим выходом его из этой точки, т. е. происходит чередование нескольких фокусов. Именно эта ситуация отражена на фотографии, приведенной на рис.4 (энергия в импульсе 1.1 мДж); здесь также видна длинная нить, которая по ходу распространения импульса переходит в «штриховую нить», состоящую в данном случае из трех отрезков. Цвет отрезков вдоль направления пучка меняется с зеленого на красный. Режим, представленный на этой фотографии, следует назвать неустойчивым филаментом.

Особый интерес вызывает картина, показанная на рис.5. В этом случае энергия импульса составляла 7.9 мДж (т. е. интенсивность была выше, чем при реализации режимов, продемонстрированных на рис.2–4). Здесь мы также видим разбиение исходного пучка на световые нити, сходящиеся к фокусу, а перед фокусом возникает яркая вспышка, которая почти полностью перекрывает каустику. На рис.5 четко видны две тонкие нити, которые проходят выше и ниже вспышки; излучение в нитях фокусируется за вспышкой, приводя к еще одной менее яркой вспышке в фокусе. Эта вспышка по своим характеристикам отличается как от свечения филамента (устойчивого либо неустойчивого), так и от вспышки при пробое на бабстонных кластерах (см. рис.2). Поскольку в данном случае при самофокусировке реализуется очень высокая интенсивность излучения с  $\lambda = 1.064$  мкм, возможно выполнение пороговых условий для многофотонной ионизации молекул воды, т. е. для многофотонного оптического пробоя. Отметим, что такой режим возникал не в каждом лазерном выстреле, т. е. имел вероятностный характер. На наш взгляд, это связано с флуктуациями интенсивности в световых нитях при самофокусировке. В настоящее время этот режим пробоя изучается нами более детально.

Для исследования спектрального состава свечения в видимой области спектра и измерения его интенсивности (последнее необходимо для расчета коэффициента преобразования излучения из ближней ИК области в видимую) излучение, выходящее из кюветы вдоль оптической

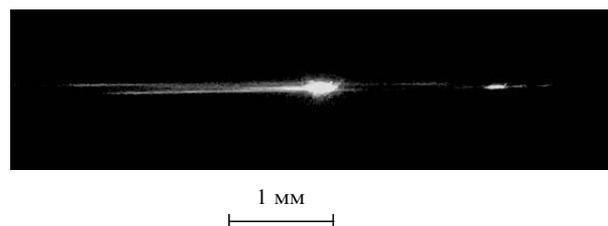


Рис.5. Излучение, выходящее под углом  $90^\circ$  из каустики, при облучении с интенсивностью  $10^{13}$  Вт/см<sup>2</sup> обработанной Milli-Q-воды (режим оптического пробоя в результате многофотонной ионизации молекул воды).

оси, поступало на вход миниспектрометра СП. Характерные примеры полученных спектров представлены на рис.6. Видно, что спектр состоит из достаточно узких линий, что исключает механизм фазовой самомодуляции (сверхуширение или генерацию суперконтинуума) в качестве механизма возникновения такого излучения. Подробный анализ полученных спектров приведен ниже (см. разд.4). Также на вход миниспектрометра поступало излучение от световых источников с калиброванной энергией в красной и зеленой областях спектра. Это позволило оценить коэффициент преобразования излучения из ИК области в видимую, который оказался равным  $\sim 1\%$ .

Отметим, что те же самые измерения были выполнены и для необработанной Milli-Q-воды. При этом в те моменты, когда оптический пробой отсутствовал, мы также наблюдали излучение в видимой области. Спектральный состав линий в видимой области, зарегистрированных для обработанной и необработанной Milli-Q-воды, примерно одинаков; для уточнения специфических спектральных особенностей требуются более детальные эксперименты. Как уже отмечалось, в диапазоне используемых интенсивностей в необработанной Milli-Q-воде наблюдался оптический пробой, сопровождаемый ударной звуковой волной; в этих случаях излучение видимого диапазона на вход миниспектрометра не поступало, в то время как сигнал с  $\lambda = 1.064$  мкм был на нем виден. При «обстреле» воды из-под крана эксперимент по снятию спектров в видимой области не дал никаких результатов: пробой возникал в каждом выстреле. При этом также не было полной экранировки излучения ИК диапазона. Таким образом, можно сделать вывод о том, что при пробое отсутствует экранировка и существенно подавлено параметрическое взаимодействие с преобразованием частоты вверх.

Естественно предположить, что причины, из-за которых перекачка энергии излучения из ИК области в видимую прекращается при оптическом пробое, должны быть как-то связаны с нарушением условий самофокусировки. Действительно, фотографии на рис.3–5 доказывают наличие самофокусировки при генерации света в видимой области. Если режимы самофокусировки и оптического пробоя имеют близкие пороговые интенсивности, то возможна их совместная реализация, как, например, в экспериментах работ [1, 6]. Однако для наших экспериментальных условий (длительность импульса 20 пс, энергия в импульсе от 1 до 10 мДж, нежесткая фокусировка) мы имеем четкую альтернативу: или оптический пробой, или параметрическое взаимодействие. Для выяснения причин отсутствия самофокусировки при оптическом пробое был поставлен эксперимент, описанный ниже.

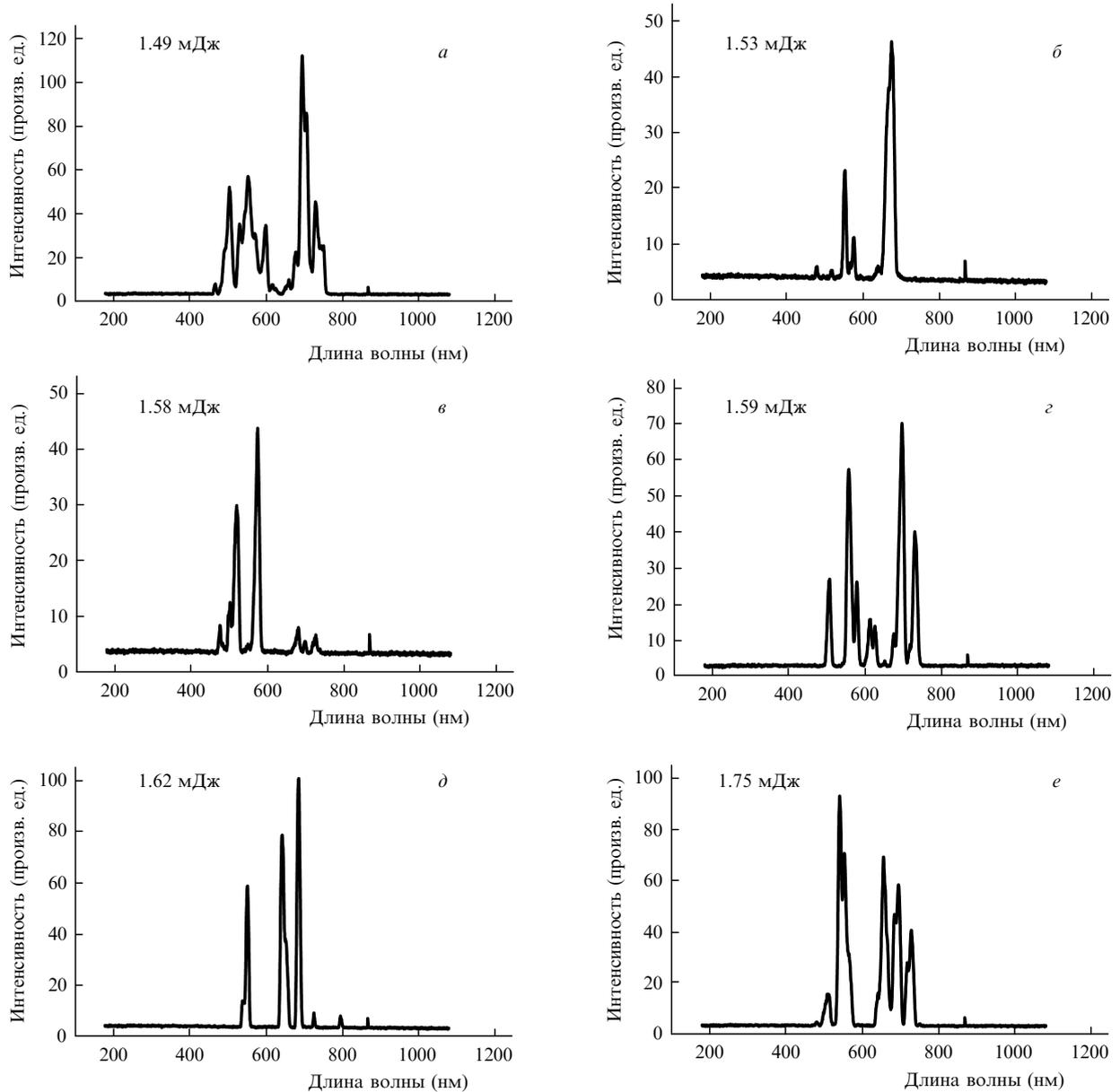


Рис.6. Характерные примеры спектров излучения, преобразованного из ИК области в видимую, при различных энергиях исходного импульса с  $\lambda = 1.064$  мкм.

### 3. Исследование режима вынужденной оптической коалесценции бабстонных кластеров при низких интенсивностях накачки

Схема установки для этого эксперимента представлена на рис.7. Мы использовали импульсно-периодический лазер с  $\lambda = 1.064$  мкм, работающий в режиме модуляции добротности; длительность импульса составляла 10 нс. Лазер работал на основной моде с расходимостью излучения 3 мрад и частотой повторения 2 Гц. Лазерный импульс с помощью набора линз и телескопа направлялся в кювету с исследуемой жидкостью, в качестве которой мы использовали необработанную воду. Часть излучения первой гармоники лазера преобразовывалась с помощью кристалла DKDP во вторую гармонику. За кюветой в дальней зоне размещался люминесцентный экран (лист белой бумаги), на который проецировалась дифракционная картина, возникающая на

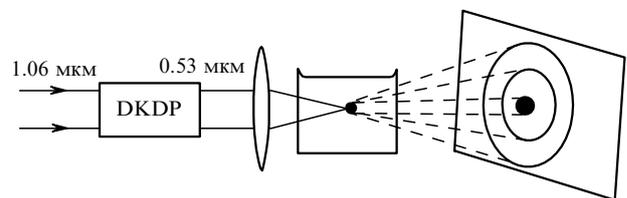


Рис.7. Схема экспериментальной установки для наблюдения вынужденной оптической коалесценции. Пояснения даны в тексте.

парогазовых пузырьках в жидкости (см. ниже); дифракционная картина фотографировалась.

Идея этого эксперимента состоит в следующем. Как показано в работе [8], на первой стадии оптического пробоя, затравкой для которого служит бабстонный кластер, происходит так называемая вынужденная оптическая коалесценция – схлопывание кластера в поле оптической накачки с образованием макроскопического (раз-

мером несколько микрометров) парогазового пузыря. В соответствии с моделью [8], вспышка при оптическом пробое обусловлена столкновением раскачиваемых световой волной электронов с молекулами воды внутри такого пузыря; при таких столкновениях электроны эффективно замедляются, т.е. теряют энергию в результате тормозного излучения. Если коалесценция бабстонного кластера предшествует оптическому пробое, то пробой развивается в условиях, когда перетяжка лазерного пучка уже заполнена макроскопическими пузырями, рассеивающими излучение, т.е. условия для возбуждения самофокусировки нарушаются. Таким образом, в этом эксперименте мы стремились, во-первых, доказать сам факт существования стадии коалесценции при оптическом пробое и, во-вторых, оценить порог ее наступления.

Для наблюдения эффекта коалесценции очень важно, чтобы при заданных условиях фокусировки направления излучения с  $\lambda = 1.064$  и  $0.532$  мкм строго совпадали вдоль всей трассы обоих пучков. Для выполнения указанного условия положение кристалла DKDP юстировалось таким образом, чтобы на люминесцентном экране в центре зеленого пятна появлялось характерное затемнение (рис.8). Эта темная область возникает по следующим причинам. Излучение второй гармоники сильнее отклоняется линзой (что связано с дисперсией показателя преломления стекла), поэтому его фокус находится перед фокусом излучения первой гармоники. При этом излучение с  $\lambda = 1.064$  мкм слегка поглощается в воде (коэффициент линейного поглощения для всех образцов исследованной воды составлял  $\sim 0.14 \text{ см}^{-1}$ ), в то время как поглощением в воде на  $\lambda = 0.532$  мкм можно пренебречь. Поскольку для воды  $dn/dT < 0$  (где  $n$  – коэффициент преломления воды, а  $T$  – температура), мы фактически имеем дело со слабой отрицательной термолинзой. Получившаяся термолинза эффективно отклоняет вышедшие из своего фокуса пучки второй гармоники, что и объясняет наличие темной области в центре зеленого пятна в том случае, если направления пучков первой и второй гармоник в точности совпадают. Тот факт, что затемнение связано именно со слабой термолинзой, проверялся при размещении перед кюветой спектрального фильтра, непрозрачного для ИК излучения, но прозрачного в видимой области; в этой ситуации затемнение исчезало. Затемнение также исчезало при добавлении в жидкость



Рис.8. Пятно излучения второй гармоники. Темная область в центре пятна обусловлена термолинзой.

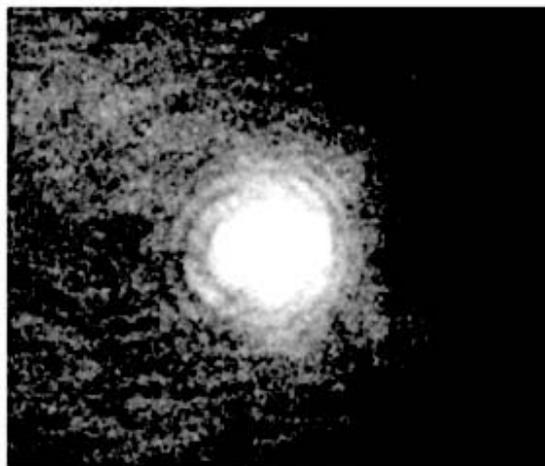


Рис.9. Дифракционная картина излучения второй гармоники. Яркое пятно в центре соответствует прямому излучению; темная область, связанная с термолинзой, не видна.

различных примесей, поглощающих излучение ИК диапазона, но прозрачных для видимого света (мы использовали добавки соли  $\text{CuSO}_4$ ); в этом случае излучение с  $\lambda = 1.064$  мкм поглощалось еще до каустики, т.е. не могло приводить к появлению термолинзы.

При облучении воды лазерными импульсами с  $\lambda = 1.064$  мкм при определенной интенсивности излучения на люминесцентном экране появлялись мгновенные дифракционные картины (рис.9). В некоторых случаях мы использовали маску, перекрывающую центральный максимум интенсивности излучения обеих гармоник, чтобы предотвратить попадание прямого света на ПЗС-матрицу фотокамеры (рис.10). По периоду наблюдаемых дифракционных колец была сделана оценка размера области, на которой происходит дифракция излучения второй гармоники: этот размер оказался равным  $1 - 5$  мкм. Следовательно, установлено, что при лазерном «обстреле» воды возникают объекты такого размера. Эти объекты мгновенно исчезают, если вода находится при нормальных условиях. Если вода поддерживалась при температуре, близкой к температуре кипения, то при тех же условиях эксперимента мы видели невооруженным глазом появление паровых пузырей, т.е. жидкость вскипала. Та-

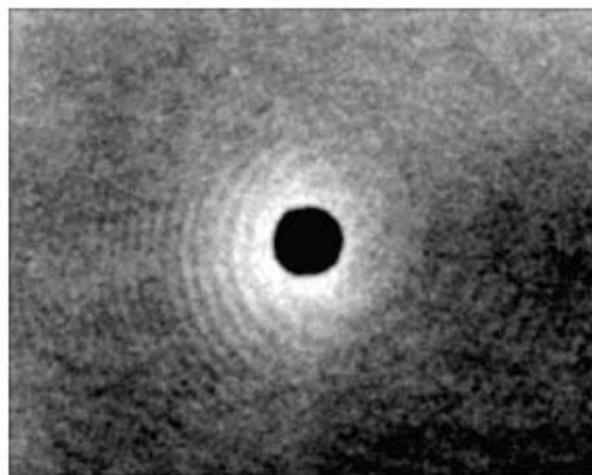


Рис.10. Дифракционная картина излучения второй гармоники; маска перекрывает прямое излучение.

ким образом, можно считать доказанным, что объекты, на которых испытывает дифракцию излучение второй гармоники, являются парогазовыми пузырями. В этом эксперименте важно то, что режим коалесценции возникает при интенсивностях порядка  $10^6 - 10^7$  Вт/см<sup>2</sup>, т.е. существенно ниже порога пробоя воды импульсами наносекундной длительности с  $\lambda = 1.064$  мкм, который, по нашим измерениям, составляет  $10^{10} - 10^{11}$  Вт/см<sup>2</sup>. Такое расхождение объясняется в рамках модели, изложенной в [8]: на фронте лазерного импульса формируется макроскопический парогазовый пузырь, который по отношению к излучению является рассеивающей линзой. Для того чтобы появилась вспышка при оптическом пробое (напомним, что эта вспышка обусловлена столкновениями электронов с молекулами воды, заполняющими такой пузырь), необходимо ввести излучение внутрь данного пузыря. Поскольку пузырь является рассеивающей линзой, то для возбуждения свечения в нем требуется больше световой энергии, чем для зарождения такого пузыря.

В свете поставленной выше задачи о влиянии бабстонных кластеров на самофокусировку излучения можно сказать следующее. Несмотря на то, что описанный выше эксперимент был выполнен для импульсов наносекундной длительности (эксперимент с пикосекундными импульсами у нас не получился, по-видимому, из-за того, что парогазовые пузыри не успевают вырасти до размеров, достаточных для появления дифракционной картины), можно утверждать, что и при «обстреле» необработанной воды пикосекундными импульсами сначала возникают парогазовые пузыри. Такой вывод вполне обоснован, поскольку оптический пробой для импульсов длительностью 20 пс имеет спорадический характер, т.е. возникает на затравках; в случае очищенной воды такими затравками могут быть только бабстонные кластеры. Кроме того, как видно из рис.2, пробой имеет вид отдельных вспышек. Следовательно, можно считать установленным, что для импульсов длительностью 20 пс справедливы те же представления, что были развиты для импульсов наносекундной длительности (см. [8], где изложена модель вынужденной оптической коалесценции бабстонного кластера как первой стадии оптического пробоя на бабстонных кластерах).

Поскольку порог вынужденной оптической коалесценции низок, парогазовые пузыри могут возникать на фронте лазерного импульса, т.е. еще до появления эффекта самофокусировки. Таким образом, если в область каустики попадает затравка в виде бабстонного кластера, то при малых интенсивностях накачки будут наблюдаться вынужденная оптическая коалесценция и дифракция на макроскопическом пузыре, что приведет к значительным искажениям фазового фронта. Поэтому самофокусировка оказывается в значительной степени (либо полностью) подавленной. Соответственно достижимые в среде значения интенсивности накачки уменьшаются. При больших интенсивностях накачки вынужденная коалесценция обязательно сопровождается оптическим пробоем, что в условиях нашего эксперимента служит индикатором подавления эффективной самофокусировки. Описанный механизм, по всей видимости, и объясняет тот факт, что параметрическое преобразование накачки не наблюдалось нами при возникновении пробоя даже в отсутствие экранировки накачки плазмой пробоя. Этот вывод справедлив для описанных выше экс-

периментальных условий, т.е. для импульсов длительностью порядка 20 пс; возможно, что для более коротких импульсов вынужденная оптическая коалесценция вообще не успевает развиться, и присутствие бабстонных кластеров никак себя не проявляет.

#### 4. Обсуждение результатов

Способ минимизации концентрации растворенного в воде газа «промывкой» гелием и контроль наличия пробоя двумя независимыми методами дали возможность надежного выделения режимов с гарантированным отсутствием пробоя. Это позволило получить более достоверную информацию о спектре выходного видимого излучения в контролируемых условиях по сравнению, например, с результатами работы [1], где параметры накачки были близки к нашим (лазерный импульс с той же длиной волны и длительностью 21 пс).

Спектр выходного (попутного) излучения содержит несколько (в подавляющем большинстве случаев от трех до шести-девяти) ярко выраженных линий, интенсивности которых превышают фон более чем на порядок. Во многих случаях расстояние между соседними линиями существенно превышает их ширину, и сами линии не эквидистантны. Такая структура спектра явно отличается от периодической интерференционной структуры, характерной для фазовой самомодуляции (см., напр., [3]). Кроме того, средняя спектральная интенсивность регистрируемого излучения значительно уменьшается в длинноволновой области даже с учетом того, что чувствительность ПЗС-матрицы миниспектрометра также немного уменьшается. В работе [1] для объяснения генерации в воде излучения видимого диапазона при аналогичных параметрах накачки был предложен механизм фазовой самомодуляции. Однако наблюдаемые нами особенности спектра излучения указывают на то, что основной механизм формирования спектра отличен от механизма фазовой самомодуляции.

Основным механизмом образования наблюдаемого спектра выходного излучения, по нашему мнению, является нелинейное параметрическое взаимодействие. Главную роль здесь могут играть четырехфотонные процессы вида

$$2\omega_L = \omega_v + \omega_{IR}, \quad (1)$$

где  $\omega_L$ ,  $\omega_v$  и  $\omega_{IR}$  ( $\omega_v > \omega_{IR}$ ) – частоты лазерного излучения, регистрируемого излучения в видимой области (сигнального) и ИК (холостого) излучения соответственно [3]. Такой механизм не противоречит линейчатости спектра, наблюдаемого нами в достаточно широком диапазоне мощностей накачки (изменяемых в условиях эксперимента в 2–2.5 раза). Более того, во многих случаях наблюдаемые линии соответствуют той частоте  $\omega_v$ , при которой частота холостой волны  $\omega_{IR}$  попадает в область максимума спектра поглощения воды. Здесь возможно резонансное увеличение нелинейной восприимчивости  $\chi^{(3)}$  и соответствующее значительное увеличение коэффициента нелинейного преобразования накачки (в том числе и с учетом возрастания поглощения холостой волны) [4]. В спектре поглощения воды можно выделить наиболее выраженные максимумы (см., напр., [15]) на частотах  $700 - 800$  см<sup>-1</sup> (либрация),  $1645$  см<sup>-1</sup> (изгибное колебание молекулы H<sub>2</sub>O),  $\sim 2200$  см<sup>-1</sup> (изгиб и либрация),  $3277$

$\text{см}^{-1}$  (симметричные колебания валентных связей),  $\sim 5200$  и  $6800 \text{ см}^{-1}$  (комбинации частот колебательных мод). Согласно (1) в спектре выходного излучения этим максимумам отвечают следующие длины волн  $\lambda_v$  линий: 550, 580, 600, 640, 730 и 830 нм. Можно еще отметить в спектре поглощения воды особенность типа точки перегиба на частоте  $4200 \text{ см}^{-1}$ , которая соответствует спектральной линии с  $\lambda_v = 680$  нм. Среди полученных спектров часто можно обнаружить линии, совпадающие с указанными выше с погрешностью до  $\pm 5$  нм, за исключением, быть может, линии с  $\lambda_v = 830$  нм, которая встречается редко. Из указанных линий наиболее часто в спектрах проявляются линии с  $\lambda_v = 730, 680, 580$  и  $550$  нм, причем последние регистрируются регулярно, почти в каждом из полученных спектров. Для линии с  $\lambda_v = 550$  нм можно предложить и альтернативный механизм, поскольку она соответствует частоте излучения третьей гармоники линии ВКР-излучения лазера накачки:  $\omega = 3(\omega_L - 3400 \text{ см}^{-1})$ ; однако вопрос о возможности реализации в воде достаточно сильного ВКР при ИК накачке ( $\lambda_L = 1.064$  мкм) до сих пор остается открытым.

Наблюдаемый спектр занимал область частот  $\omega > 2\omega_L$ . Отсутствие резкого падения спектральной интенсивности при  $\omega \approx 2\omega_L$  являлось одним из основных факторов, препятствующих доминированию механизма четырехфотонного преобразования [1]. В наших экспериментах для этой области характерна одна линия с частотой  $\omega_{v2} = 19700 - 20000 \text{ см}^{-1}$  ( $\lambda_{v2} = 500 - 508$  нм). Спектральные компоненты в данной области могут появляться в результате вторичного нелинейного параметрического взаимодействия

$$\omega_L + \omega_v = \omega_{v2} + \omega_{\text{IR2}} \quad (2)$$

с участием уже сформированного излучения ( $\omega_v$ ) и накачки ( $\omega_L$ ). Расчеты эффективности такого комбинированного нелинейного взаимодействия затруднительны, поскольку оно реализуется здесь в условиях сильной самофокусировки, в том числе и с образованием нитей (филаментацией). Предварительные оценки (см. напр., [4]) указывают на принципиальную возможность формирования излучения в коротковолновой области  $\omega > 2\omega_L$ . Предположение о вторичности излучения в области  $\omega > 2\omega_L$  согласуется с тем, что интегральная интенсивность в этой области много меньше, чем в области  $\omega < 2\omega_L$ , а максимум спектральной интенсивности в области  $\omega > 2\omega_L$  всегда уступает соответствующему максимуму в области  $\omega < 2\omega_L$ . Комбинированный (вторичный) механизм формирования спектральной линии с  $\lambda_{v2} \approx 505$  нм согласуется также с тем, что ее появление сопровождается наличием значительной спектральной интенсивности (а часто и максимума) на частоте  $\omega_v \approx 4250 \text{ см}^{-1}$  ( $\lambda_v \approx 685$  нм). При такой частоте  $\omega_v$  из условий (1) и (2) для  $\lambda_{v2} \approx 505$  нм следует равенство частот холостых волн:  $\omega_{\text{IR}} = \omega_{\text{IR2}} \approx 4250 \text{ см}^{-1}$ . Таким образом, возможно участие одной и той же пары волн (спектральных компонент с частотами  $\omega_v$  и  $\omega_{\text{IR}}$ ) как в первичном (1), так и во вторичном (2) параметрическом взаимодействии, а следовательно, и значительное повышение результирующей эффективности преобразования лазерного излучения в спектральную компоненту с  $\lambda_{v2} \approx 505$  нм. Другая обнаруженная особенность наблюдаемого спектра, вступающая в противоречие с тем, что механизм фазовой самофокусировки является доминирующим, – очевидное уменьшение

средней спектральной интенсивности при преобразовании излучения в ИК диапазон. Эта особенность также находит объяснение в рамках четырехфотонной параметрической генерации, поскольку вблизи ИК области значительно, более чем на порядок, уменьшается нелинейная восприимчивость  $\chi^{(3)}$  (см., напр., результаты расчетов, приведенные в [4]).

Следует, однако, подчеркнуть, что при используемой длительности импульса (20 пс) в условиях наблюдавшейся сильной самофокусировки должен проявляться и механизм фазовой самомодуляции. В данном случае этот механизм, по-видимому, может проявляться в уширении наблюдаемых линий. Но, по всей видимости, наиболее важную роль механизм фазовой самомодуляции должен играть в комбинации с механизмом параметрической генерации. Фотоны дальнего коротковолнового крыла спектра накачки, уширенного благодаря фазовой самомодуляции, могут оказаться значительно более эффективными для зарождения параметрической генерации по сравнению с фотонами квантового шума. При этом зависимость формы спектра выходного излучения от длительности импульса накачки приобретает более сложный характер, что может послужить предметом дальнейших исследований с целью выделения роли каждого из упомянутых механизмов формирования наблюдаемого спектра.

Наблюдаемая форма спектра не обнаруживает явной зависимости от мощности лазерного излучения накачки. Этот спектр имеет, строго говоря, случайный характер, причем отдельные линии повторяются (возможно, со смещением на примерно несколько нанометров); линия с  $\lambda_v = 550$  нм, например, проявляется в спектрах практически регулярно. Причина нерегулярности спектров, по всей видимости, лежит в нерегулярности модовой структуры лазерного излучения (прежде всего, структуры поперечных мод) при сильной самофокусировке. В сочетании со спектральной зависимостью фазовой расстройки эти эффекты могут значительно повлиять на инкремент параметрического усиления. Кроме того, нерегулярность поперечной структуры, очевидно, проявляется и в нерегулярности уширения спектра накачки при фазовой самомодуляции. В условиях, когда затравочные фотоны для параметрической генерации возникают в результате такого уширения спектра, значительные вариации режима самофокусировки (например, режима образования нитей) могут существенным образом отразиться на конкуренции спектральных компонент при параметрической генерации.

Нерегулярные особенности наблюдаемого спектра требуют статистической обработки. Такая обработка планируется нами в дальнейшем по мере накопления достаточного числа спектров, полученных при условии максимальной возможной стабильности параметров лазерного излучения. Предполагается также провести эксперименты с использованием  $\text{D}_2\text{O}$  и  $\text{HDO}$ , имеющих отличные от  $\text{H}_2\text{O}$  спектры поглощения (и спектры комбинационного рассеяния), для определения влияния этих спектров и соответствующих резонансов на эффективность преобразования и спектральный состав выходного излучения. Кроме того, актуальным представляется введение в схему эксперимента частотно-селективных элементов (резонаторов) для выделения отдельных спектральных компонент. Эффективность использования резонатора очевидна при экспоненциальном росте интенсивности спектральных компонент, т. е. именно при доминировании ме-

ханизма четырехфотонного параметрического взаимодействия. Поэтому предполагаемая модификация схемы эксперимента позволит окончательно прояснить вопрос о доминирующем механизме генерации излучения видимого диапазона в воде при пикосекундной накачке излучением с  $\lambda_L = 1.06$  мкм. Использование этой схемы откроет и очевидные перспективы практических приложений, таких как создание перестраиваемых параметрических генераторов с использованием в качестве нелинейной среды воды, обработанной по предлагаемой методике.

## 5. Заключение

Таким образом, в работе показано, что:

– Глубокая дегазация образца воды, полученная в результате ее вакуумирования с последующей «промывкой» гелием, приводит к подавлению оптического пробоя при возбуждении импульсом с длительностью 20 пс и  $\lambda = 1.064$  мкм. Это позволяет сделать вывод о том, что затравками оптического пробоя в данном режиме являются кластеры из нанопузырей растворенного газа – бабстонов.

– При отсутствии в каустике линзы затравок для оптического пробоя – бабстонных кластеров – в ней эффективно развиваются процессы самофокусировки излучения, что приводит к существенному росту его интенсивности. В этих условиях проявляются нелинейные параметрические процессы преобразования частоты. Для импульсов длительностью 20 пс наиболее эффективны процессы четырехфотонного смешения.

– В жидкости, не подвергнутой глубокой дегазации, объектами, ухудшающими качество излучения в каустике линзы, могут служить парогазовые пузыри микронного размера. Наиболее вероятный механизм их возник-

новения – вынужденная оптическая коалесценция бабстонного кластера, которая является начальной стадией оптического пробоя. Согласно нашим измерениям, порог коалесценции на три-четыре порядка меньше интенсивности, необходимой для эффективной самофокусировки. Следовательно, при наличии в перетяжке пучка бабстонного кластера при высоких интенсивностях будет происходить именно оптический пробой, подавляющий самофокусировку и нелинейные параметрические процессы.

Работа выполнена при поддержке РФФИ (гранты № 05-02-08311-офи-а, 06-02-16507-а и 06-02-16926-а).

1. Smith W.L., Liu P., Blombergen N. *Phys. Rev. A*, **15**, 2396 (1977).
2. Terhune R.W., Maker P.D., Savage C.M. *Phys. Rev. Lett.*, **14**, 681 (1965).
3. Шен И.Р. *Принципы нелинейной оптики* (М.: Наука, 1989).
4. Penzkofer A., Laubereau A., Kaizer W. *Phys. Rev. Lett.*, **31**, 863 (1973).
5. *Сверхкороткие световые импульсы*. Под ред. С.Шапиро (М.: Мир, 1981).
6. Liu W., Kosareva O., Golubtsov I.S., Iwasaki A., Beker A., Kandidov V.P., Chin S.L. *Appl. Phys. B*, **76**, 215 (2003).
7. Kennedy P.K., Hammer X., Rockwell B.A. *Prog. Quant. Electr.*, **21**, 155 (1997).
8. Bunkin N.F., Bunkin F.V. *Laser Phys.*, **3**, 63 (1993).
9. Бункин Н.Ф., Бункин Ф.В. *ЖЭТФ*, **100**, 512 (1992).
10. Бункин Н.Ф., Бункин Ф.В. *ЖЭТФ*, **123**, 828 (2003).
11. Бункин Н.Ф., Индукаев К.В., Игнатъева П.С. *ЖЭТФ*, **131**, 539 (2007).
12. Бакум С.И., Бункин Н.Ф. *Квантовая электроника*, **36**, 117 (2006).
13. Babenko V.A., Sychev A.A. *J. Rus. Laser Res.*, **20**, 478 (1999).
14. Веселовский И.А., Дорожкин Л.М., Лазарев В.В., Михалевич В.Г., Плешков Г.М., Родин А.М., Чаянов Б.А. *Акустический журн.*, **33**, 834 (1987).
15. Prah S. <http://omlc.ogi.edu/spectra/water/index.html>; Warren S.G. *Appl. Opt.*, **23**, 1206 (1984); Quickenden T.I., Irvin J.A. *J. Chem. Phys.*, **72**, 4416 (1980).