

Четырехфотонное параметрическое рассеяние света в воде в условиях слабой фазовой самомодуляции лазерных УКИ

В.А.Бабенко, А.А.Сычев

Уверенная регистрация гиперкомбинационного рассеяния (ГКР) света в воде осуществлена при использовании метода активной спектроскопии когерентного рассеяния света, в частности метода спектроскопии четырехфотонного параметрического рассеяния света в среде, при котором ГКР является «сигнальной» волной в параметрическом процессе с участием одновременно двух фотонов мощного лазерного излучения и фотонов инфракрасной «холодной» волны. Зарегистрировано ГКР на либрационных колебаниях молекул воды, практически не регистрируемое при традиционных методах исследования комбинационного рассеяния света.

Ключевые слова: параметрическое взаимодействие в жидкости, активная спектроскопия когерентного рассеяния света, оптическая прочность воды.

1. Введение

Вода является уникальным объектом нелинейной оптики. Она обладает малым показателем усиления ВКР ($G_R = 7 \times 10^{-5}$ см/МВт для линии 3435 см^{-1} [1]), малой величиной нелинейного показателя преломления ($n_2 = 1.4 \times 10^{-13}$ ед. СГСЭ [2]) и достаточно высоким порогом оптического пробоя $I > 1 \text{ ТВт/см}^2$ [3]. Это позволяет проводить исследования воды в сильных световых полях и наблюдать многофотонные параметрические процессы при распространении пикосекундных лазерных импульсов. Наиболее ярким наблюдаемым эффектом является генерация в воде синхронного, направленного, широкополосного излучения (пикосекундного суперконтинуума).

В настоящее время существуют два подхода для объяснения этого эффекта, согласно которым такое излучение является либо результатом фазовой самомодуляции проходящего через среду импульса излучения, либо эффектом четырехфотонного параметрического рассеяния лазерного излучения. Генерация суперконтинуума по первому механизму реализуется главным образом для субпикосекундных интенсивных лазерных импульсов при значительной модуляции показателя преломления воды, зачастую в условиях сильной самофокусировки излучения, и характеризуется сплошным диффузным спектром рассеянного излучения [4]. Генерация излучения по второму механизму предполагает когерентное взаимодействие волн накачки и рассеяния в условиях фазового синхронизма типа $2K_0 = K_s + K_i$, где K_0 , K_s и K_i – волновые векторы лазерного излучения, регистрируемого в видимой области «сигнального» излучения и ИК «холодного» излучения [5] соответственно. При этом эффектив-

ное преобразование может быть реализовано при меньшей интенсивности за счет эффекта параметрического преобразования на большой длине взаимодействия волн накачки и рассеяния. Поэтому для четырехфотонного параметрического преобразования важную роль играет условие фазового синхронизма всех участвующих в таком рассеянии волн.

Настоящая работа посвящена исследованию особенностей четырехфотонного параметрического рассеяния пикосекундных лазерных импульсов в воде. Для исследования использовались одиночные пикосекундные импульсы Nd^{3+} :YAG-лазера длительностью ~ 20 пс и энергией до нескольких миллиджоулей.

2. Экспериментальная установка и методика эксперимента

Принципиальная схема экспериментальной установки представлена на рис.1. Резонатор задающего генератора был сформирован двумя зеркалами 31 и 32, поворотным зеркалом 33 и поляризационной призмой. Глухое зеркало 31 ($R = 1.0$) имело радиус кривизны 2.5 м. Использование такого зеркала позволяло получать устойчивую генерацию моды TEM_{00q} . Отражатель 32 представлял собой кювету с пассивным затвором на плоском зеркале ($R = 1.0$). Исходная вертикальная поляризация излучения лазера обеспечивалась поляризационной призмой на основе кристалла DKDP. Для выделения из цуга генерации одиночного ультракороткого светового импульса (УКИ) использовался электрооптический модулятор. При подаче на модулятор высоковольтного электрического импульса длительностью, равной периоду повторения импульсов в цуге генерации лазера, происходил поворот плоскости поляризации лазерного излучения на 90° . Такое излучение выводилось поляризационной призмой из резонатора. С помощью поворотных зеркал 34 и 35 это излучение направлялось в двухпроходный усилитель. Стабильная генерация УКИ длительностью ~ 20 пс осуществлялась за счет реализации режима, при котором момент насыщения усиления активной среды

В.А.Бабенко, А.А.Сычев. Физический институт им. П.Н.Лебедева РАН, Россия, 119991 Москва, Ленинский просп., 53; e-mail: sychev4@yandex.ru

Поступила в редакцию 12 марта 2009 г., после доработки – 10 апреля 2009 г.

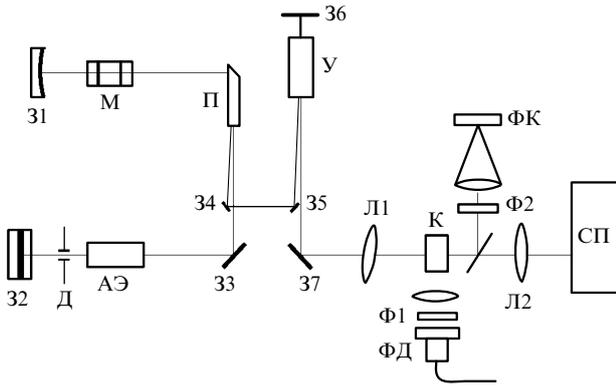


Рис. 1. Схема установки для регистрации параметрического взаимодействия света в воде:

АЭ – активный элемент YAG : Nd³⁺ (диаметром 4 и длиной 73 мм); 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 ($R = 1.0$); У – усилитель YAG : Nd³⁺ (диаметром 6 и длиной 80 мм); Л1 – фокусирующая линза ($F = 70$ мм); Л2 – линза, фокусирующая выходящее из кюветы излучение; Ф1 – фильтр, пропускающий только излучение генерации ($\lambda = 1.064$ мкм); Ф2 – фильтр, пропускающий излучение в диапазоне 300 – 800 нм; ФК – фотокамера; ФД – фотодиод; СП – спектральный прибор; К – кювета с исследуемой водой.

совпадал с моментом просветления пассивного затвора (так называемый режим второго порога генерации) [6].

Максимальная выходная энергия импульса 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 длиной 40 мм. Линза Л1 могла наклоняться на небольшой угол к оптической оси, что вносило небольшой астigmatизм в падающий пучок. Такая внеосевая аберрация линзы приводит к деформации пучка. При этом происходит искажение аксиальной симметрии пучка и увеличение его расходимости. А это с неизбежностью, как было показано в работе [7], приводит к увеличению порога самофокусировки. Таким образом, изменяя угол наклона линзы, можно было варьировать пороговые условия самофокусировки падающего излучения. Спектральный состав лазерного излучения, прошедшего через кювету, контролируется спектральным прибором.

В работе исследовалась очищенная от посторонних включений вода разного состава: дистиллированная вода, содержащая воздух, и вода, хранившаяся в предварительно откачанных ампулах и не содержащая газовой фазы. Отличительной особенностью этих двух образцов является разная степень рассеяния слабого излучения. Уровень рассеяния света в дистиллированной воде с воздушным компонентом больше, чем уровень рассеяния света в ампульной воде, приблизительно в 20 раз. Причиной этого является присутствие в очищенной от примесей жидкости бабстонных кластеров (стабильных частиц, состоящих из отдельных газовых нанопузырей – бабстонов [8]).

Исследования воды разного состава проводились по двум направлениям: измерялась оптическая прочность воды и определялись характеристики происходящего в воде четырехфотонного параметрического взаимодействия – спектральный и угловой состав излучения сигнальной волны в диапазоне 300–800 нм.

Под оптическим пробоем понимается процесс, приводящий к оптическому разрушению вещества в поле ин-

тенсивного лазерного излучения. В настоящее время существуют два метода исследования оптического пробоя в жидкостях [9]. Первый основан на исследовании рассеяния на неоднородностях, возникающих при пробое в воде. Этот метод обычно используется при изучении оптического пробоя лазерными импульсами длительностью короче 10 пс. Второй метод определения порога оптического пробоя основан на регистрации вспышки света, возникающей в треке пучка (так называемая модель вспышки). В настоящей работе мы определяли пробой воды по сигналу рассеяния (под углом 90°) света на длине волны возбуждающего лазерного излучения. Этот сигнал регистрировался фотодиодом.

Оказалось, что порог пробоя существенно зависит от концентрации газа в воде [10]. Для дистиллированной воды, содержащей воздух и, как следствие, большое количество бабстонных кластеров, порог оптического пробоя по энергии УКИ оказался равным $W_{th} = 0.07$ мДж. Напротив, в случае ампульной воды, содержащей значительно меньшее число бабстонных кластеров, порог оптического пробоя по энергии имеет большее значение, равное $W_{th} = 0.9$ мДж. В обоих случаях при энергиях в импульсе УКИ, превышающих W_{th} , визуально наблюдалась вспышка пробоя. Следовательно, оптический пробой в воде носит затравочный характер. Наиболее прочной с точки зрения оптического пробоя оказалась вода с меньшим содержанием газа. На этой воде и были проведены дальнейшие исследования.

3. Четырехфотонное параметрическое рассеяние пикосекундных лазерных импульсов в воде

В ампульной воде, обладающей более высоким значением порога оптического пробоя, удается отчетливо наблюдать эффект нелинейного параметрического взаимодействия. Четырехфотонное параметрическое взаимодействие волн в среде, обладающей нелинейностью третьего порядка, описывается спектральной компонентой нелинейной поляризации:

$$P(v_s) = \chi^{(3)}(-v_s, v_0, v_0, \pm v_i)E^2(v_0)E(v_i),$$

где v_0 – частота лазерного излучения, а v_s и v_i – частоты сигнальной и холостой волн ($v_s > v_i$ и $v_i < v_0$). В том случае, когда на входе взаимодействуют три фотона, вследствие параметрического преобразования частоты может излучаться четвертый фотон, т. е. $v_s = 2v_0 \pm v_i$. Процессы нелинейного преобразования могут эффективно протекать в условиях так называемого фазового синхронизма, когда $K_s = 2K_0 \pm K_i$. Этому соотношению при коллинеарном распространении излучений удовлетворяют два возможных типа взаимодействий когерентных волн (рис.2).

Для первого типа взаимодействия ($v_s = 2v_0 + v_i$) сигнальная частота v_s располагается в антистоксовой обла-

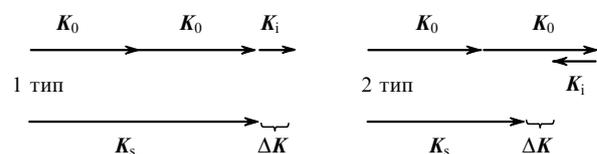


Рис.2. Возможные типы взаимодействия когерентных волн.

сти по отношению к частоте второй гармоники лазерного излучения $\nu_s > 2\nu_0$. При этом фазовая расстройка $\Delta K = 2K_0 - (K_s - K_i)$, т.е. ее модуль $\Delta K/2\pi = 2\nu_0(n_0 - n_s) + \nu_i(n_i - n_s)$, где n_0 , n_s и n_i – показатели преломления на лазерной, сигнальной и холостой частотах взаимодействующих волн соответственно, а частота ν выражается в обратных сантиметрах.

Аналогично, в случае второго типа взаимодействия ($\nu_s = 2\nu_0 - \nu_i$) сигнальная частота ν_s находится в стоксовой области по отношению к частоте второй гармоники лазерного излучения $\nu_s < 2\nu_0$. При этом $\Delta K = 2K_0 - (K_s + K_i)$ и $\Delta K/2\pi = 2\nu_0(n_0 - n_s) + \nu_i(n_s - n_i)$.

На рис.3 показаны частотные зависимости показателя поглощения воды, а также модуля фазовой расстройки $\Delta K/2\pi$ для коллинеарного четырехфотонного взаимодействия 1 и 2 типа. Обработка экспериментальных результатов показала, что коллинеарное взаимодействие, рассмотренное выше, реализовывалось при фокусировке излучения линзой с фокусным расстоянием $F = 70$ мм при энергиях импульса, меньших 1 мДж. Для эффективного подавления эффекта самофокусировки линза наклонялась к оптической оси. В результате выбирался такой режим регистрации четырехфотонного параметрического рассеяния в воде, при котором отсутствовали бы фазовая самомодуляция и самофокусировка пучка вплоть до энергии импульса $W \approx 1$ мДж. При этом спектральная ширина проходящего лазерного излучения ($\lambda = 1.064$ мкм) не превышала $\Delta\nu \approx 1.5$ см⁻¹. Выбранный таким образом режим соответствовал условиям слабой фазовой самомодуляции лазерных УКИ.

При большей энергии лазерного импульса наблюдалось искажение поперечного распределения интенсивности пучка после прохождения кюветы с водой. Самофокусировка пучка при энергии лазерного импульса $W > 1$

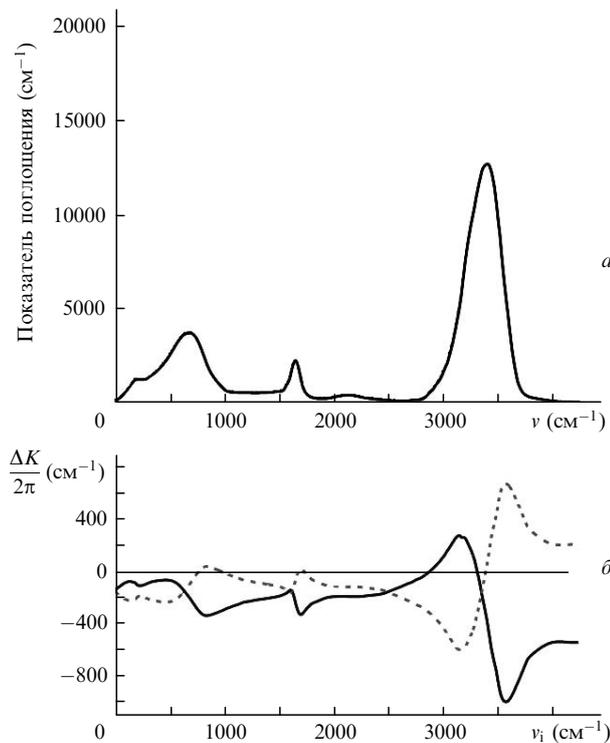


Рис.3. Частотные зависимости показателя поглощения воды (при 25 °С) (а) и фазовой расстройки четырехфотонного параметрического взаимодействия первого типа (сплошная линия) и второго типа (штриховая линия) (б).

мДж сопровождалась дополнительным неколлинеарным четырехфотонным параметрическим рассеянием.

Спектр четырехфотонного параметрического рассеяния регистрировался с помощью миниспектрометра. Все излучение видимого диапазона, выходящее из кюветы по направлению лазерного излучения, фокусировалось линзой Л2 на входную щель спектрографа.

На рис.4 показаны спектры для трех вспышек с малой энергией (до 1 мДж) световых импульсов излучения на длине волны 1.064 мкм в момент реализации коллинеарного взаимодействия. Обращает на себя внимание, что спектр параметрического рассеяния располагается по обе стороны от длины волны, соответствующей второй оптической гармонике падающего излучения ($\lambda = 532$ нм).

Как следует из рис.4,а, при самых малых значениях энергии возбуждения спектр параметрического рассеяния в основном расположен в коротковолновой области спектра по отношению к длине волны второй гармоники. Эта область спектра соответствует первому типу четырехфотонного параметрического взаимодействия, при котором частота сигнальной волны находится в антистоксовой области частот по отношению к частоте второй оптической гармоники лазерного излучения $\nu_s = 2\nu_0 + \nu_i$. Такой тип преобразования может реализоваться при наличии когерентного ИК излучения в виде холостой волны. Дело в том, что регистрация сигнала четырехфотонного параметрического взаимодействия в воде при интенсивности лазерного импульса $\sim 10^{11}$ Вт/см² происходит в условиях возможного возникновения ВКР [1] от основного лазерного излучения с $\lambda = 1.064$ мкм. При

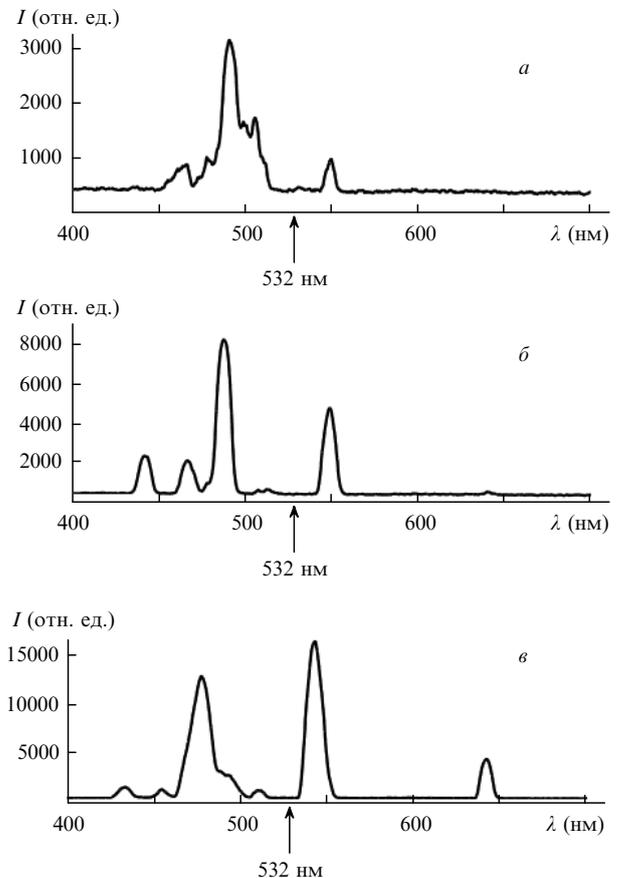


Рис.4. Спектры четырехфотонного параметрического рассеяния в воде при энергии W возбуждающего светового импульса (случай коллинеарного взаимодействия) 0.3 (а), 0.6 (б) и 0.9 мДж (в).

этом, как показано в работе [11], возможно возникновение ИК излучения, которое и является затравкой для когерентной холостой волны при четырехфотонном параметрическом взаимодействии первого типа. Обращает на себя внимание непостоянство спектрального состава такого излучения в антистоксовой части спектра ($\nu_s > 2\nu_0$) в различных вспышках. Этот факт, а также наблюдаемая асимметрия спектра параметрического рассеяния в стоксовой и антистоксовой областях, по-видимому, являются проявлением нестационарного характера ВКР в поле пикосекундных световых импульсов. В этом случае, как правило, возникает асимметрия в распределении интенсивности ВКР излучения вперед и назад.

Процесс четырехфотонного параметрического взаимодействия первого типа ($\nu_s = 2\nu_0 + \nu_i$), по-видимому, является единственно реально возможным для объяснения формирования излучения в антистоксовой области спектра. Напротив, вид спектра четырехфотонного параметрического взаимодействия второго типа ($\nu_s = 2\nu_0 - \nu_i$) в стоксовой области ($\nu_s < 2\nu_0$), как следует из рис.4, отличается заметной воспроизводимостью. Такой характер спектра свидетельствует о регулярном характере затравки излучения в стоксовой области спектра ($\nu_s < 2\nu_0$). Затравкой может являться излучение гиперкомбинационного рассеяния (ГКР) на стоксовой частоте $\nu_s = 2\nu_0 - \Omega$, где Ω – частота молекулярного колебания воды. Диаграмма ГКР, определяемого тензором третьего ранга ($\partial\beta_{ijk}/\partial q$) на молекулярном колебании с координатой q на частоте Ω представлена на рис.5. В соответствии с правилами отбора [12] спектр ГКР обладает большой информативностью. В нем не действуют правила альтернативного запрета и, кроме того, могут проявляться молекулярные колебания, не активные в спектрах как комбинационного рассеяния (КР), так и ИК поглощения.

Обработка спектров четырехфотонного параметрического рассеяния в стоксовой области при возбуждении воды импульсами с энергией 0.1 – 1.0 мДж позволила установить, что первоначально возникает излучение, смещенное от частоты второй гармоники на $\Omega = 480 \pm 30 \text{ см}^{-1}$ (рис.4,а). Эта частота вполне удовлетворительно соответствует частоте межмолекулярных либрационных колебаний молекул воды, проявляющихся в спектре спонтанного КР света [13]. Кроме этой линии в стоксовой области спектра отчетливо наблюдается излучение, смещенное от частоты второй гармоники на $\Omega = 3220 + 30 \text{ см}^{-1}$ (рис.4,б, в). Эта частота относится к внутримолекулярному колебанию молекулы воды. Следует отметить, что интенсивность линий обычного спонтанного КР, соответствующих основным тоновым колебаниям молекулы воды (симметричным $\Omega_1 = 3247 \text{ см}^{-1}$ и антисимметричным $\Omega_2 = 3435 \text{ см}^{-1}$) превышает интенсивность линии спонтанного КР для либрационного коле-

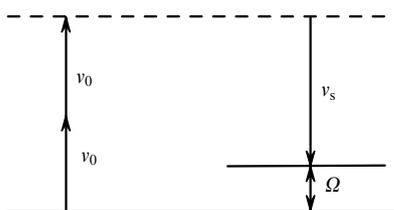


Рис.5. Диаграмма процесса ГКР света в среде, обладающей молекулярным колебанием на частоте Ω ($\nu_s = 2\nu_0 - \Omega$).

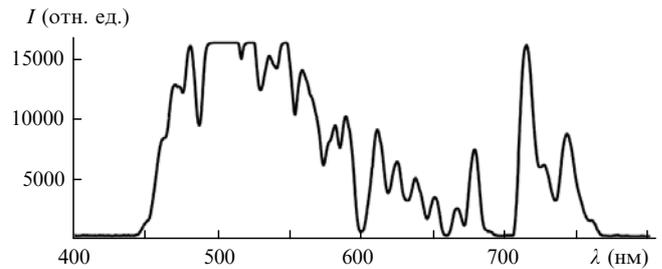


Рис.6. Спектр нелинейного рассеяния в воде при энергии лазерного импульса $W = 1.6$ мДж.

бания в области $\Omega \approx 500 \text{ см}^{-1}$. В нашем случае наблюдается обратное соотношение, которое может быть связано со спецификой четырехфотонного параметрического взаимодействия, согласно которой интенсивность сигнальной волны должна быть пропорциональна интенсивности ИК холостой волны. Для ИК излучения в области $\lambda \approx 3 \text{ мкм}$ вода обладает максимальным поглощением, и поэтому четырехфотонное параметрическое взаимодействие с участием холостой волны диапазона $\nu_i \approx 3300 \text{ см}^{-1}$ должно быть сильно демпфированным. Этим обстоятельством можно объяснить наблюдаемое преобладание интенсивности четырехфотонного параметрического рассеяния в области $\Omega \approx 500 \text{ см}^{-1}$ по сравнению с областью $\Omega \approx 3300 \text{ см}^{-1}$.

Таким образом, на основании обработки спектров в стоксовой области спектра ($\nu_s < 2\nu_0$) можно утверждать, что в результате четырехфотонного параметрического коллинеарного взаимодействия происходит эффективное усиление сигнала ГКР света. В этом случае излучение ГКР света является сигнальной волной для параметрического процесса ($\nu_s = 2\nu_0 - \nu_i$).

При больших значениях энергии лазерного импульса $W > 1$ мДж происходила самофокусировка лазерного пучка в воде. При этом изменение поперечного профиля лазерного пучка сопровождалось возникновением дополнительного неколлинеарного четырехфотонного параметрического рассеяния. Это, в свою очередь, приводило к значительному обогащению спектра нелинейного рассеяния, показанного на рис.6.

В дополнение к исследованию спектров нелинейного рассеяния по направлению лазерного пучка фотокамерой проводилась регистрация распределения параметрического излучения в дальней зоне (как показано на рис.1). Фильтр Ф2 отсекал излучение на основной частоте лазерной генерации ($\lambda = 1.064 \text{ мкм}$). На рис.7 приведена

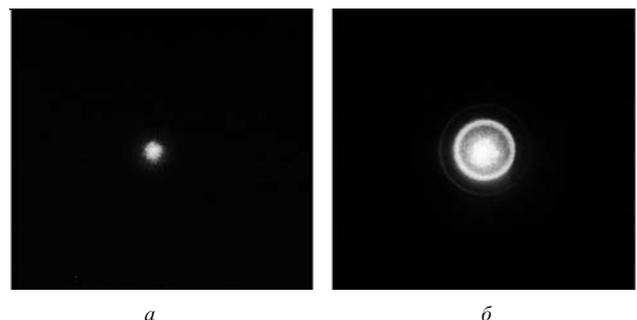


Рис.7. Картина четырехфотонного параметрического рассеяния в дальней зоне при энергии 0.6 (а) и 1.6 мДж (б) УКИ ($\lambda = 1.064 \text{ мкм}$, длительность 20 пс).

картина параметрического излучения в видимой области спектра для различных значений энергии падающего на кювету с водой лазерного импульса.

4. Заключение

Таким образом, нами изучены спектры коллинеарного четырехволнового взаимодействия при разных интенсивностях лазерного излучения ($\lambda = 1.064$ мкм). Обнаружено два типа параметрического взаимодействия участвующих в рассеянии волн. Антистоксово четырехфотонное параметрическое рассеяние в воде наблюдалось впервые.

Метод спектроскопии четырехфотонного параметрического рассеяния света представляется перспективным для исследования как молекулярных, так и межмолекулярных колебаний в конденсированных средах. Этот метод позволил зарегистрировать гиперкомбинационное рассеяние на либрационных колебаниях молекул воды,

практически не регистрируемое при традиционных методах исследования КР света.

1. Rahn O., Maier M., Kaiser W. *Opt. Commun.*, **1**, 109 (1969).
2. Paillette M. *Ann. Phys. (Paris)*, **4**, 671 (1969).
3. Lee Smith W., Liu P., Bloembergen N. *Phys. Rev. A*, **15**, 2396 (1977).
4. Shimizu F. *Phys. Rev. Lett.*, **19**, 1097 (1967).
5. Penzkofer A., Laubereau A., Kaiser W. *Phys. Rev. Lett.*, **14**, 863 (1973).
6. Babenko V.A., Sychev A.A. *J. Rus. Laser Research*, **20**, 478 (1999).
7. Wagner W.G., Haus H.A., Marburger J.H. *Phys. Rev.*, **175**, 256 (1968).
8. Bunkin N.F., Bunkin F.V. *Laser Phys.*, **3**, 63 (1993).
9. Kennedy P.K., Voppart S.A., Hammer D.X., Rockwell B.A., Noojin G.D., Roach W.P. *IEEE J. Quantum Electron.*, **31**, 2250 (1995).
10. Бабенко В.А., Бункин Н.Ф., Суязов Н.В., Сычев А.А. *Квантовая электроника*, **39**, 928 (2009).
11. Горелик В.С., Кудрявцева А.Д., Чернега Н.В. *Препринт ФИАН* (М., 2005, № 15).
12. Cyvin S.J., Rauch J.E., Decius J.C. *J. Chem. Phys.*, **43**, 4083 (1965).
13. Walrafen G.E. *J. Chem. Phys.*, **47**, 114 (1967).