

УДК 535.375.5,535.374

## МНОГОЧАСТОТНОЕ ВЫНУЖДЕННОЕ КОМБИНАЦИОННОЕ РАССЕЯНИЕ СВЕТА В ЖИДКОМ АЗОТЕ, ВВЕДЕННОМ В ТРЕХМЕРНЫЕ ФОТОННЫЕ КРИСТАЛЛЫ

В. С. Горелик<sup>1</sup>, А. Д. Кудрявцева<sup>1</sup>, М. В. Тареева<sup>1</sup>,  
Н. В. Чернега<sup>1</sup>, А. И. Водчиц<sup>2</sup>

*Исследованы спектральные характеристики вынужденного комбинационного рассеяния света в синтетических опаловых матрицах, инфильтрованных жидким азотом при возбуждении наносекундными лазерными импульсами. Продемонстрировано влияние положения стоп-зоны на эффективность генерации антистоксовых компонент вынужденного комбинационного рассеяния вплоть до третьего порядка. Порог возбуждения вынужденного комбинационного рассеяния в жидком азоте, инфильтрованном в опалы, был существенно ниже по сравнению с генерацией в объемных образцах.*

**Ключевые слова:** вынужденное комбинационное рассеяние света, жидкий азот, фотонный кристалл, стоп-зона.

*Введение.* Исследования вынужденного комбинационного рассеяния света (ВКР) в жидком азоте проводились во многих работах [1–5]. В работе [1] наблюдалось до 6 стоксовых и до 8 антистоксовых компонент ВКР. Число наблюдаемых компонент зависело от остроты фокусировки пучка накачки: с уменьшением фокусного расстояния линзы, фокусирующей возбуждающее излучение в вещество, число компонент возрастало. Экспериментально было показано, что интенсивность антистоксовых компонент падает с увеличением их частоты. ВКР возбуждалось, начиная с энергии накачки  $\sim 20$  мДж при длительности импульса 20 нс [1, 3], однако значительные коэффициенты преобразования достигались при существенно больших величинах энергии накачки ( $> 2.5$  Дж

<sup>1</sup> ФИАН, 119991 Россия, Москва, Ленинский пр-т, 53; e-mail: gorelik@sci.lebedev.ru.

<sup>2</sup> Институт физики им. Б. И. Степанова Национальной академии наук Беларуси, 220072 Беларусь, Минск, проспект Независимости, 68.

в работе [1] и  $> 0.5$  Дж в работе [3]). Кроме того, для достижения высоких коэффициентов преобразования лазерного излучения в ВКР необходимо использовать кюветы длиной несколько см (как правило, в экспериментах использовались кюветы длиной от 50 до 150 мм).

Для решения задач повышения эффективности нелинейно-оптических процессов идеальным является использование структур, обладающих модуляцией диэлектрической проницаемости на масштабе, соизмеримом с длиной волны электромагнитного излучения накачки [6, 7].

Усиление нелинейного оптического взаимодействия света и вещества в таких структурах происходит за счет высокой плотности фотонных состояний на краях фотонных запрещенных зон (ФЗЗ).

В последнее время была развита методика возбуждения ВКР, основанная на введении активной среды в структуры, обладающие ФЗЗ. В частности, большое распространение получило эффективное усиление ВКР в пористых фотонных волноводах, заполненных инертными газами [8–10] и в молекулярных жидкостях, введенных в поры коллоидных фотонных кристаллов [11, 12].

Коллоидные фотонные кристаллы, представляющие собой структуру, состоящую из плотноупакованных глобул диоксида кремния (синтетические опаловые матрицы), являются перспективными материалами для нелинейной оптики [6, 7]. Эффективность преобразования волны накачки в рассеянную волну может быть существенно увеличена в данных структурах, а порог возбуждения вынужденного рассеяния света – понижен [12, 13].

Несмотря на то, что полной фотонной запрещенной зоны в синтетических опаловых матрицах не существует (главным образом, из-за малости контраста показателя преломления), а существует лишь стоп-зона, задающая выделенное направление, в котором запрещено распространение электромагнитного излучения определенного частотного диапазона, опаловые матрицы удобно использовать, заполняя пустоты между глобулами диоксида кремния различными комбинационно-активными веществами.

Отработанные технологии производства синтетических опаловых матриц позволяют получать образцы с характерным размером глобул диоксида кремния 200–700 нм. Благодаря субмикронным размерам глобул в этих структурах образуются стоп-зоны в видимом спектральном диапазоне.

Используя матрицы с различными размерами сфер, а также изменяя геометрию освещения образцов, можно управлять параметрами стоп-зоны (ее положением в спек-

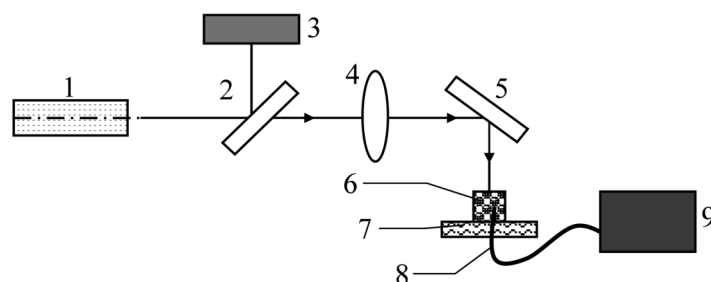


Рис. 1: Схема установки для наблюдения ВКР в направлении вперед. 1 – рубиновый лазер; 2 – кварцевая поворотная пластина; 3 – система регистрации параметров возбуждающего излучения; 4 – система линз, фокусирующая возбуждающее излучение на образец; 5 – зеркало; 6 – исследуемый образец; 7 – ячейка с жидким азотом; 8 – оптический волновод, 9 – спектрометр.

тре и контрастом) и тем самым увеличивать эффективность протекания различных нелинейных процессов, в том числе и ВКР.

*Эксперимент.* В данном эксперименте использовалась установка для наблюдения ВКР в жидкостях, схема которой приведена на рис. 1.

В качестве источника возбуждающего излучения в эксперименте по наблюдению ВКР в жидком азоте использовался моноимпульсный рубиновый лазер (1), работающий в режиме модуляции добротности. Длина волны генерации лазера составляла 694.3 нм, длительность импульса генерации на полувысоте  $\tau = 20$  нс, максимальная энергия в импульсе 0.4 Дж, расходимость пучка  $3.5 \cdot 10^{-4}$  рад и спектральная ширина линии генерации  $0.015 \text{ см}^{-1}$ .

Постоянная решетки синтетического опала в различных образцах определялась диаметром глобул диоксида кремния и составляла от 180 до 350 нм для различных образцов.

При изменении диаметра глобул и степени заполнения синтетического опала жидким азотом, положение стоп-зоны образца менялось согласно следующей зависимости:

$$\lambda_{\text{ФЗЗ}} = 2D\sqrt{2/3}n_{\text{эфф}} \cos \theta, \quad (1)$$

где  $n_{\text{эфф}}$  – эффективный коэффициент преломления света в кристалле, зависящий от степени инфильтрации образца,  $\theta$  – угол падения света на периодическую структуру.

Типичный спектр отражения образца синтетического опала, использовавшегося в эксперименте, представлен на рис. 2. Максимум в спектре отражения соответствует положению центра стоп-зоны:  $\lambda_{\text{ФЗЗ}} = 622$  нм. Ширина зоны составляет  $\Delta\lambda_{\text{ФЗЗ}} \approx 70$  нм.

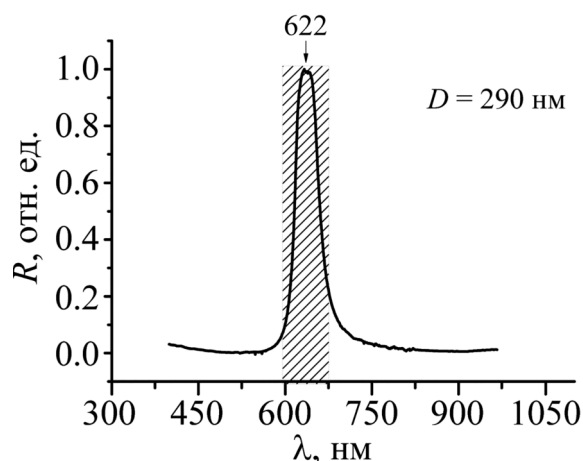


Рис. 2: Спектр отражения образца трехмерного синтетического опала с диаметром глобул диоксида кремния  $D = 290$  нм при нормальном падении излучения на образец. Затемненная область соответствует фотонной запрещенной зоне в образце.

*Экспериментальные результаты.* В данной серии экспериментов при рассеянии импульсного лазерного излучения в синтетических опаловых матрицах, инфильтрованных жидким азотом, наблюдалось ВКР в направлении вперед. На рис. 3 представлен нормированный на максимум интенсивности спектр ВКР в жидком азоте, инфильтрованном в синтетический опал.

Для исследования зависимости эффективности генерации ВКР в жидком азоте от морфологии синтетического опала, в который азот был инфильтрован, использовались образцы опаловых матриц с различными диаметрами глобул и, соответственно, положениями стоп-зоны.

Влияние наноструктуризации жидкого азота на процесс генерации ВКР проиллюстрировано на рис. 4. В случае (а) первая и вторая антистоксовы компоненты оказываются на краях стоп-зоны и существенно усиливаются. Первая антистоксова компонента ВКР жидкого азота попадает на длинноволновый край  $\delta_+$  фотонной запрещенной зоны данного фотонного кристалла ( $\lambda_{+1} = 598$  нм  $\in \delta_+(\lambda_{\text{ФЗЗ}})$ ), а вторая антистоксова компонента попадает на коротковолновый край  $\delta_-$  ( $\lambda_{+2} = 526$  нм  $\in \delta_-(\lambda_{\text{ФЗЗ}})$ ).

В случае (б) наблюдается подавление первой антистоксовой компоненты ВКР, поскольку она попадает в стоп-зону данного образца кристалла (диаметр глобул кристалла  $D = 280$  нм, положение стоп-зоны  $\lambda_{\text{ФЗЗ}} = 600$  нм, ширина стоп-зоны около 70 нм).

Стоит отметить, что частичное влияние синтетического опала на процесс генерации ВКР в жидкости состоит также в повышении эффективности преобразования лазерного

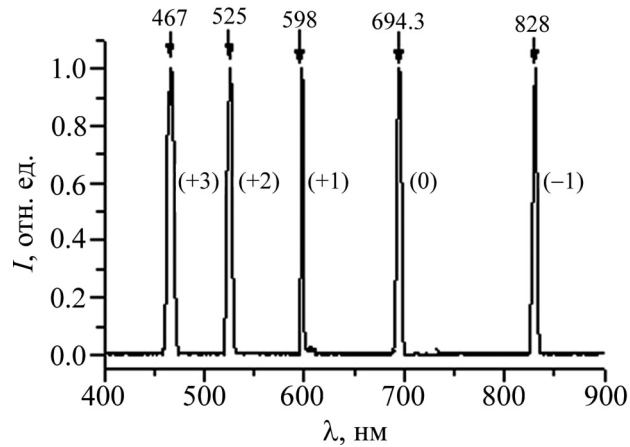


Рис. 3: Спектр ВКР в жидком азоте, инфильтрованном в матрицу синтетического опала с диаметром глобул 260 нм. Интенсивность компонент нормирована на максимальную интенсивность. Обозначения: (+3), (+2), (+1) – третья, вторая, первая антистоксовы компоненты соответственно, (0) – линия возбуждающего лазерного излучения, (-1) – первая стоксова компонента.

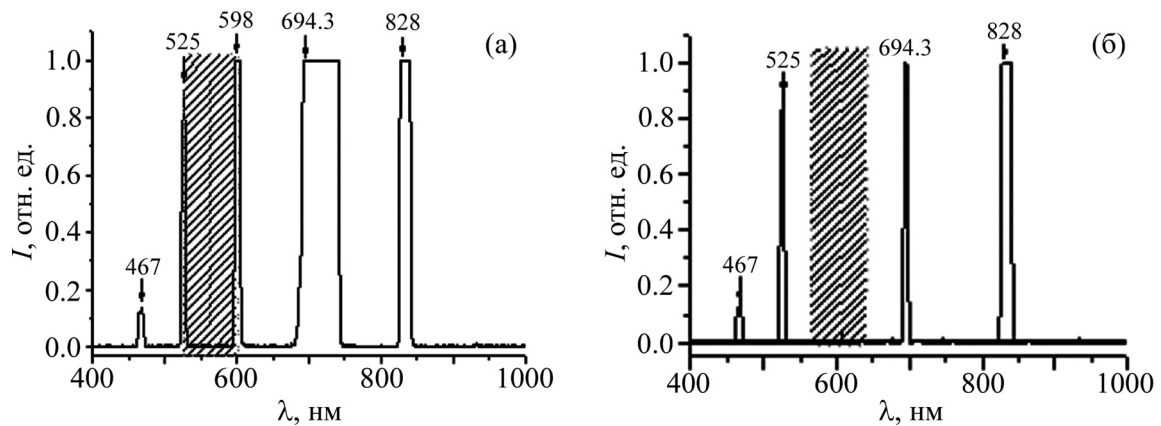


Рис. 4: Влияние структуры синтетического опала на процесс генерации ВКР в жидком азоте в направлении вперед: (а) первая и вторая антистоксовы компоненты усиливаются, попадая на края стоп-зоны (затемненная область) синтетического опала с диаметром глобул  $D = 260$  нм; (б) первая антистоксова компонента попадает в стоп-зону синтетического опала с диаметром глобул  $D = 280$  нм и подавляется.

излучения в ВКР на 5–6% за счет локальных (периодически расположенных) полей, которые, искривляясь на границе жидкость-глобула  $\text{SiO}_2$ , вносят свою долю в усиление фотон-фононного взаимодействия [14].

*Обсуждение результатов.* Полученная в данной работе генерация антистоксовых компонент ВКР в направлении вперед в жидком азоте, введенном в поры трехмерного фотонного кристалла – синтетического опала, стала возможной в тех образцах, в которых частоты возбуждающего излучения и компонент ВКР попадали на края фотонной стоп-зоны. Для генерации отдельных компонент были подобраны синтетические опалы с такими характеристиками стоп-зоны (положение и ширина), при которых данное условие выполняется. Это свидетельствует о том, что процесс генерации в данном случае не является полностью параметрическим.

*Заключение.* В данной работе установлено, что при введении жидкого азота в поры синтетического опала наблюдается уменьшение порога генерации ВКР при возбуждении гигантскими импульсами лазера на рубине. Таким образом, удалось наблюдать антистоксовы компоненты первого, второго и третьего порядка с эффективностью преобразования до 40%.

Данный способ генерации высших стоксовых компонент представляется значительно менее трудоемким в сравнении с методами генерации антистоксовых компонент ВКР высших порядков в фотонных волноводах, заполненных газами.

Выполненное исследование открывает возможность для многочастотного преобразования лазерного излучения видимого диапазона в ультрафиолетовую область спектра.

Высокий порог деструкции образца синтетического опала, инфильтрованного жидким азотом, открывает перспективы использования опаловых матриц для облучения высокоинтенсивными источниками возбуждения, такими как импульсные лазеры пикосекундной (20–30 пс) длительности с большой частотой повторения, обеспечивающими плотность мощности лазерного излучения внутри образца до 1 ТВт/см<sup>2</sup>.

Работа была выполнена при поддержке грантов РФФИ № 16-32-60026 мол-а-дк и РФФИ-БРФФИ № 16-52-00026-Бел\_а (BRFFR-RFBR F16R-063).

## Л И Т Е Р А Т У Р А

- [1] В. В. Рагульский, Ф. С. Файзуллов, Письма в ЖЭТФ **6**(10), 887 (1967).
- [2] J. B. Grun, A. K. McQuillan, and B. P. Stoicheff, Phys. Rev. **180**, 179 (1969).
- [3] А. Д. Кудрявцева, А. И. Соколовская, М. М. Суцинский, ЖЭТФ **59**(5), 1556 (1970).
- [4] S. R. J. Brueck and H. Kildal, IEEE J. Quantum Electron **QE-18**, 310 (1982).

- [5] N. Tcherniega, A. Sokolovskaya, A. D. Kudryavtseva, et al., *Optics Communications* **181**, 197 (2000).
- [6] M. Bertolotti, *J. Opt. A: Pure Appl. Opt.* **8**, S9 (2006).
- [7] V. S. Gorelik, N. V. Tcherniega, and A. D. Kudryavtseva, *Journal of Russian Laser Research* **29**(6), 551 (2008).
- [8] P. St. J. Russell, P. Hölzer, W. Chang, et al., *Nature Photonics* **8**, 278 (2014).
- [9] F. Couny, F. Benabid, and O. Carraz, *J. Opt. A: Pure Appl. Opt.* **9**, 156 (2007).
- [10] Takayuki Suzuki, Masataka Hirai, and Masayuki Katsuragawa, *Phys. Rev. Lett.* **10**, 243602 (2008).
- [11] V. S. Gorelik, A. D. Kudryavtseva, V. A. Orlovich, et al., *Journal of Russian Laser Research* **32**, 277 (2011).
- [12] В. С. Горелик, А. Д. Кудрявцева, М. В. Тареева, Н. В. Чернега, *Неорганические материалы* **50**, 1314 (2014).
- [13] V. S. Gorelik, A. D. Kudryavtseva, N. V. Tcherniega, et al., *Journal of Russian Laser Research* **34**, 50 (2013).
- [14] H. A. Sumeruk, S. Kneip, D. R. Symes, et al., *Phys. Rev. Lett.* **98**, 045001 (2007).

Поступила в редакцию 7 июля 2015 г.