

ВЫНУЖДЕННОЕ КОМБИНАЦИОННОЕ РАССЕЯНИЕ СВЕТА В ЖИДКОСТЯХ В ПОЛЕ УЛЬТРАЗВУКОВОЙ ВОЛНЫ

А. В. Скрабатун, А. А. Матрохин, А. Д. Кудрявцева, А. Н. Маресев,
Т. В. Миронова, С. Ф. Уманская, Н. В. Чернега, М. А. Шевченко

Обнаружено аномальное (более, чем на порядок) увеличение интенсивности ВКР в жидкостях при пикосекундном возбуждении при включении ультразвукового воздействия на среду. Физический механизм обнаруженного явления обсуждается. Предположительно он связан с образованием случайной обратной связи, причиной которой является образование неоднородностей в жидкости из-за воздействия ультразвукового возбуждения.

Ключевые слова: вынужденное рассеяние света, обратная связь, ультразвук, эффективность преобразования.

Введение. Вынужденное комбинационное рассеяние (ВКР) света с момента своего открытия в 1962 году [1] по настоящее время является объектом интенсивных теоретических и экспериментальных исследований. Это обусловлено прежде всего большим количеством практических приложений, таких как спектроскопия ВКР, создание ВКР-преобразователей, ВКР микроскопия. Во всех приложениях, использующих процесс ВКР, ключевым является вопрос энергетической эффективности процесса. Оптимизация энергетических, спектральных, временных характеристик возбуждающего излучения, использование эффекта локального поля [2] и структур, обладающих фотонными запрещенными зонами [3], активно применяются для повышения эффективности преобразования при ВКР. Ещё одним из часто используемых способов повышения эффективности ВКР является использование распределенной обратной связи, впервые рассмотренной в [4] и активно применяемой в настоящее время [5]. Также существенное влияние на эффективность процесса ВКР может оказывать точечная обратная связь, приводящая к резким скачкам интенсивности и к генерации антистоксовых и высших стоксовых

компонент [6]. Отметим также работу [7], в которой показано, что локальное увеличение давления, вызванное ударной волной, значительно повышает эффективность ВКР в тяжелой воде.

В данной работе приведены результаты экспериментальных исследований влияния ультразвуковой волны на эффективность процесса ВКР для ряда комбинационно-активных жидкостей.

Эксперимент. Для возбуждения вынужденного комбинационного рассеяния в среде использовалось излучение второй гармоники Nd: YAG-лазера с синхронизацией мод (длина волны – 532 нм, длительность импульса – 30 пс, максимальная энергия в импульсе 10 мДж, частота 10 Гц). Исследовалось ВКР в направлении попутно с накачкой (“вперед”) и навстречу накачке (“назад”). Эксперименты проводились для двух различных геометрий, в первом случае излучение заводилось сверху в образец, через свободную поверхность (рис. 1(а)). В этом случае регистрировалось ВКР “назад”. Во втором случае излучение фокусировалось через стенку кюветы и регистрировалось как ВКР “вперед”, так и “назад” (рис. 1(б)). Для исследования влияния ультразвука на сигнал ВКР использовалась ультразвуковая ванна максимальной мощностью 200 Вт, работающая на частоте 40 кГц. Отметим, что распределение плотности в жидкости было случайно-неоднородным, что объясняется протеканием в жидкости одновременно двух процессов: вихревыми потоками, возникающими под действием ультразвука, а также кавитации, приводящей к образованию ударных волн.

В схеме эксперимента с рассеянием “назад” (рис. 1(а)) линза 3 с фокусным расстоянием 11 см была закреплена на подвижной платформе, что позволяло плавно перемещать фокальную перетяжку относительно поверхности раздела сред. Как известно [8–10], для ВКР в жидкостях при использовании открытой поверхности определяющим фактором для энергетической эффективности процесса рассеяния является положение фокальной перетяжки в активной среде. Резкое возрастание эффективности ВКР преобразования и понижение порога при положении фокальной перетяжки вблизи границы раздела связано с влиянием поверхности жидкости, которая для рассеяния в направлении назад обеспечивает обратную связь за счет отражения от неё рассеянного излучения. Нами были проведены измерения энергии импульсов ВКР, распространяющихся навстречу накачке в зависимости от положения фокальной перетяжки относительно поверхности жидкости, при включенном и выключенном ультразвуке. Фокальная перетяжка сначала находилась выше свободной поверхности жидкости и затем плавно перемещалась в глубь среды, при этом регистрировался сигнал ВКР. Измерения про-

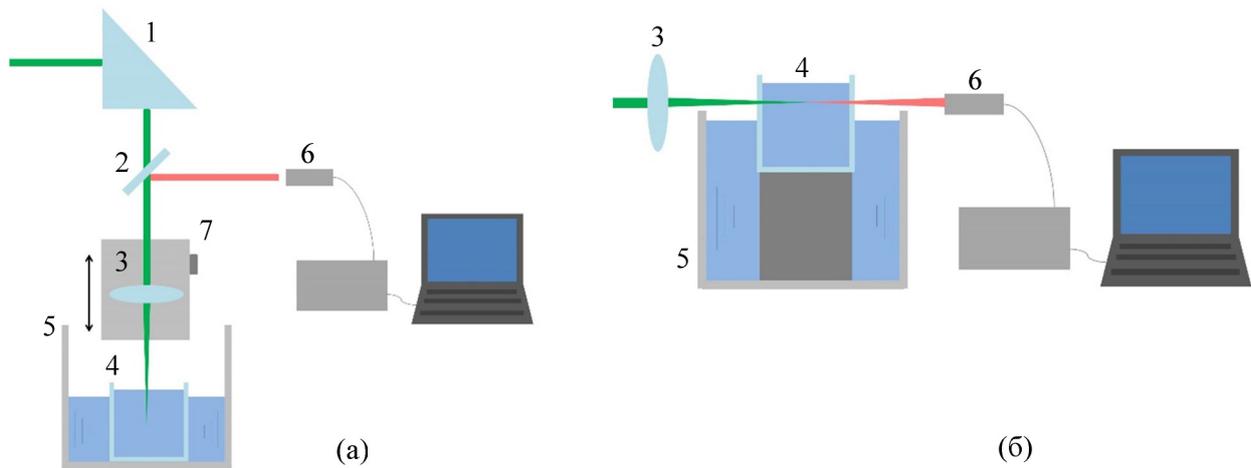


Рис. 1: Схемы эксперимента: (а) рассеяние назад, (б) рассеяние вперед. 1 – поворотная призма, 2 – стеклянная пластина, 3 – линза, 4 – кювета с образцом, 5 – ультразвуковая ванна, 6 – спектрометр (Ocean HDX) и ПК, 7 – платформа с микрометрической подвижкой.

водились для энергий накачки 0.55 мДж и 1.45 мДж. Первое значение энергии лазерного импульса находилось вблизи порога ВКР для данных условий возбуждения. Результаты эксперимента показаны на рис. 2. На графиках представлена зависимость относительной интенсивности ВКР “назад” от положения центра фокальной перетяжки относительно поверхности жидкости.

При определенном положении фокальной перетяжки вблизи поверхности жидкости наблюдается максимум эффективности преобразования ВКР. Влияние ультразвука на эффективность процесса ВКР “назад” при энергиях накачки вблизи порога возбуждения не существенно (рис. 2(а)). При увеличении энергии накачки включение ультразвука увеличивает эффективность ВКР-преобразования (рис. 2(б)). Для энергии накачки 1.45 мДж включение ультразвука приводит к увеличению интенсивности ВКР “назад” в полтора раза. Аналогичные измерения были проведены для тяжелой воды и этанола. На рис. 3 показаны результаты измерений для этих жидкостей, полученные при фокусировке излучения сверху через свободную границу жидкости (схема эксперимента на рис. 1(а)). Фокальная перетяжка находилась ниже свободной поверхности жидкости на 1.5 мм. В случае тяжелой воды ультразвуковое воздействие привело к увеличению интенсивности ВКР более чем в 2 раза. В этаноле, для первой стоксовой компоненты – в 15 раз и для второй стоксовой компоненты в 4 раза.

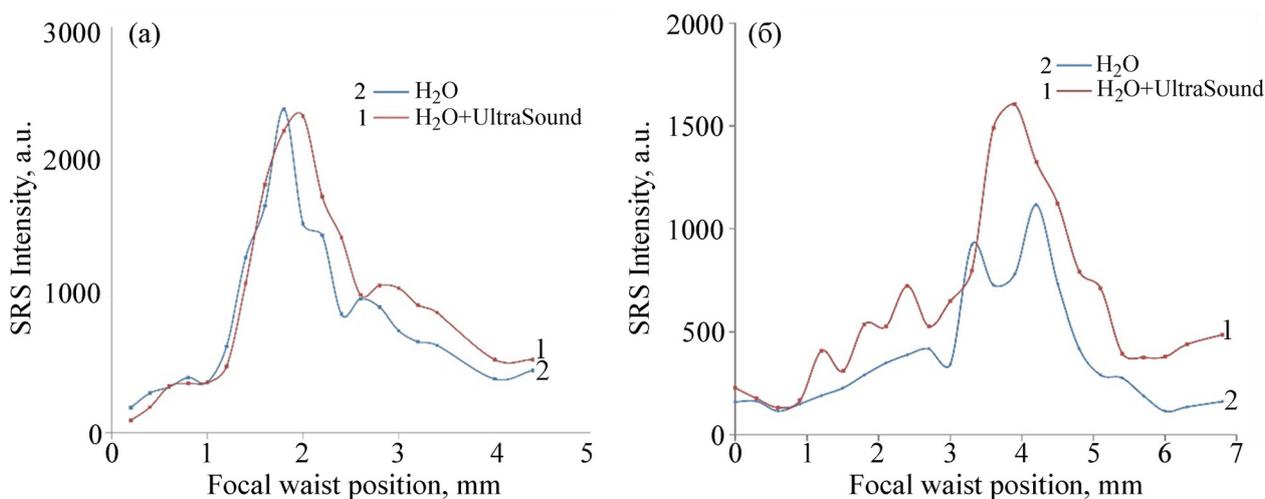


Рис. 2: Зависимость интенсивности ВКР в воде от положения фокальной перетяжки при выключенном и включенном ультразвуковом воздействии при энергии накачки 0.55 мДж (а) и 1.45 мДж (б). Цифры на оси абсцисс соответствуют расстоянию между центром фокальной перетяжки и поверхностью жидкости.

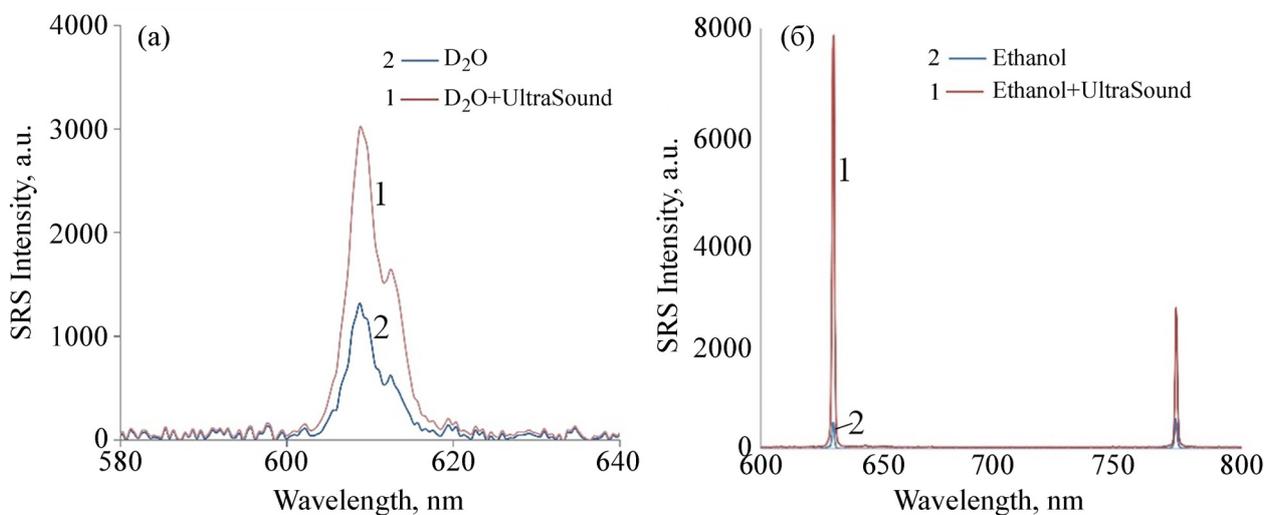


Рис. 3: Спектры ВКР при фокусировке излучения сверху через свободную поверхность жидкости при выключенном и включенном ультразвуковом воздействии; (а) в тяжелой воде (энергия накачки 10 мДж), (б) в спирте (энергия накачки 2 мДж).

На рис. 4 показано как меняется спектр ВКР, распространяющегося вперед попутно с накачкой, в воде при включении ультразвукового воздействия при фокусировке излучения через окно кюветы в объем жидкости (схема эксперимента на рис. 1(б)). В этом

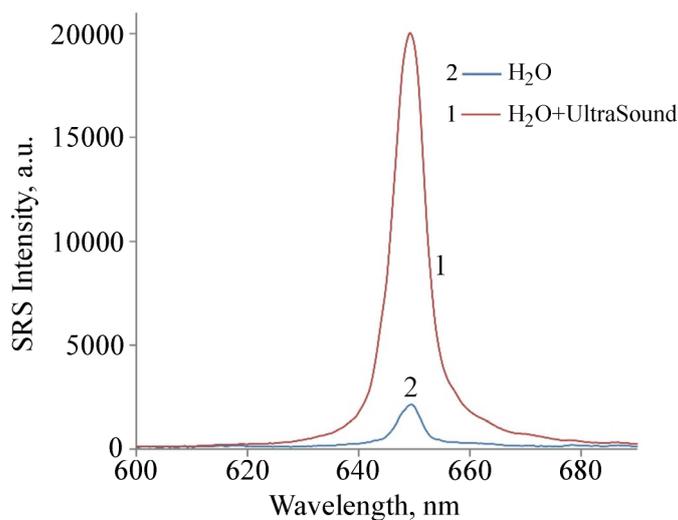


Рис. 4: Спектр ВКР в воде при фокусировке излучения через боковую стенку кюветы в глубь жидкости при выключенном и включенном ультразвуковом воздействии (энергия накачки 0.5 мДж).

случае длина кюветы составляла 5 сантиметров. Излучение фокусировалось в центр кюветы. Наблюдается увеличение интенсивности ВКР при включении ультразвука более чем на порядок.

На рис. 5 показано влияние ультразвука различной мощности на интенсивность ВКР в воде, когда фокальная перетяжка находится ниже свободной поверхности жидкости на 1.5 мм (схема эксперимента показана на рис. 1(а)). Регистрировалось ВКР “назад”. Как видно из приведенного графика, увеличение мощности ультразвука приводит к существенному увеличению интенсивности рассеянного излучения. Для данной геометрии возбуждения, максимальная эффективность преобразования в два раза выше при включении ультразвука, чем без ультразвукового воздействия. Также отметим, что увеличение интенсивности ультразвукового воздействия приводит к увеличению эффективности преобразования.

Таким образом, как видно из приведенных экспериментальных зависимостей, для всех исследованных комбинационно-активных жидкостей, включение ультразвука приводит к существенному увеличению эффективности ВКР как “вперед”, так и “назад”. Причем данное увеличение эффективности имеет место для двух экспериментальных схем (рис. 1(а), (б)). Экспериментально получено более чем десятикратное увеличение эффективности ВКР “вперед”. Так же продемонстрирована зависимость эффективности ВКР преобразования от интенсивности ультразвука.

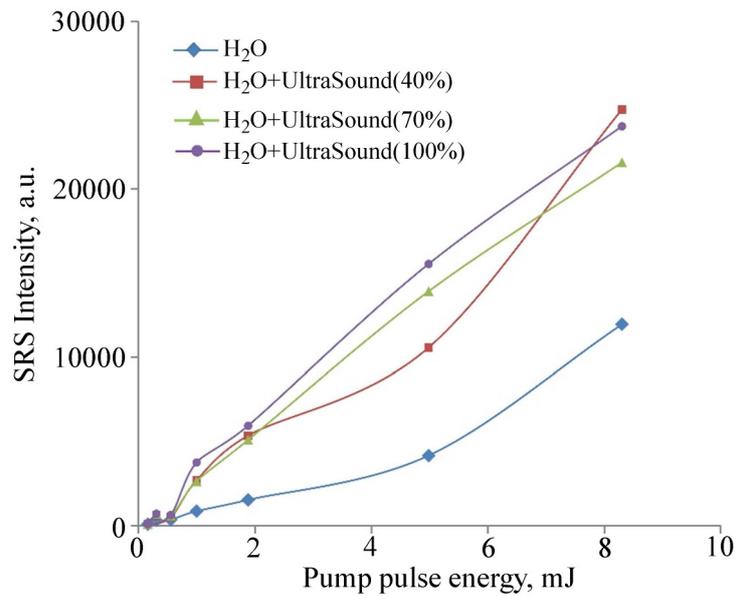


Рис. 5: Влияние ультразвука различной мощности (80 Вт, 140 Вт, 200 Вт) на интенсивность ВКР в воде, когда фокальная перетяжка находится ниже свободной поверхности жидкости на 1.5 мм.

Обсуждение. Как правило, при взаимодействии ультразвуковых волн с электромагнитным излучением рассматриваются эффекты, обусловленные дифракцией излучения на регулярной структуре, определяемой неоднородностями показателя преломления, вызванных действием ультразвука. Пространственный масштаб этих неоднородностей определяется частотой ультразвука. Она же определяет тип дифракции: Раман-Натовский или Брэгговский. Но при воздействии ультразвука на жидкости, как правило, возникает достаточно большое количество случайно пространственно распределенных фазовых неоднородностей. Причинами возникновения этих неоднородностей являются акустические течения вихревых потоков, возникающие под действием ультразвука, а также кавитация, представляющая собой физический процесс образования и коллапсирования пузырьков в жидкости. Акустическая кавитация по сути является физическим процессом, обеспечивающим трансформацию энергии звуковой волны низкой плотности в высокую плотность энергии, связанную с пульсациями и схлопыванием кавитационных пузырьков [11]. Помимо того, что сами пузырьки представляют собой оптические неоднородности, процесс их коллапсирования приводит к образованию ударных волн, также создающих случайно распределенные вариации показателя преломления активной среды. Совокупность данных процессов приводит к образова-

нию случайно распределенных фазовых неоднородностей, что, в свою очередь, может приводить к возникновению случайно распределенной обратной связи. Как известно, возникновение обратной связи различного типа в комбинационно-активных системах приводит к существенному понижению порога возбуждения и повышению эффективности ВКР. Возможность использования распределённой обратной связи для повышения эффективности процесса ВКР впервые была рассмотрена в [4]. Обратная связь иного типа, а именно, точечная обратная связь, была предложена в [6]. В этой работе были рассмотрены характеристики предлагаемого ВКР лазера, основанного на использовании такого типа обратной связи. В настоящее время благодаря результатам, полученным при исследовании волоконных лазеров с случайно распределённой обратной связью (РСОС) [12], интерес к проблеме использования РСОС для создания лазерных систем существенно увеличился. В волоконных лазерах со случайной распределенной обратной связью к генерации приводит рэлеевское рассеяние на субмикронных неоднородностях показателя преломления. Хотя рэлеевское рассеяние происходит во все стороны, часть излучения, рассеянного назад, попадает обратно в волокно и распространяется во встречном направлении. Несмотря на то, что отражение невелико (около 0.1%), но за счет распределенного в активной среде усиления достигается порог возникновения генерации. Эффект увеличения эффективности процесса ВКР в комбинационно-активных жидкостях при включении ультразвукового воздействия обусловлен возникновением распределенной случайной обратной связи из-за образования в жидкости фазовых неоднородностей (вариаций показателя преломления).

Заключение. В работе представлены экспериментальные данные, показывающие, что интенсивность ВКР в жидкостях (вода, тяжелая вода, этанол) при пикосекундном возбуждении существенно возрастает, если одновременно с лазерным возбуждением на комбинационно-активную среду оказывается ультразвуковое воздействие умеренной интенсивности (до 200 Вт). Эффект имеет место как для случая ВКР, распространяющегося попутно с накачкой, так и для ВКР, распространяющегося навстречу накачке. На примере этанола показано, что увеличение эффективности ВКР преобразования имеет место также для стоксовых компонент высшего порядка. Продемонстрировано более чем десятикратное увеличение интенсивности ВКР при включении ультразвукового воздействия на среду. Предположительный механизм наблюдаемого эффекта связан с образованием случайно распределённой обратной связи, причиной которой является образование неоднородностей в жидкости из-за воздействия ультразвукового возбуждения. Таким образом, в работе предложен и экспериментально реализован

достаточно простой способ существенного повышения эффективности процесса ВКР в комбинационно-активных жидкостях. Отметим, что эффект влияния случайно распределённой обратной связи на эффективность процесса вторичного излучения в жидких средах может иметь место не только для процесса вынужденного комбинационного рассеяния света, но и для других типов вынужденных рассеяний света, а также люминесценции.

Л И Т Е Р А Т У Р А

- [1] E. J. Woodbury, W. K. Ng Ruby, Laser operation in the Near IR Proc. IRE **50**, 2367 (1962).
- [2] R. R. Frontiera, A.-I. Henry, N. L. Gruenke, and R. P. Van Duyne, J. Phys. Chem. Lett. **2**(10), 1199 (2011.) DOI: 10.1021/jz200498z.
- [3] В. С. Горелик, В. В. Капаев, ЖЭТФ **150**, вып. 3 (9), 435 (2016). DOI: 10.7868/S0044451016090017.
- [4] С. А. Ахманов, Г. А. Ляхов, ЖЭТФ **66**, 96 (1974).
- [5] S. Loranger, R. Kashyap, Optics Letters **43**(23), 5705 (2018). DOI: 10.1364/OL.43.005705.
- [6] В. Н. Луговой, Письма в ЖЭТФ **20**(9), 625 (1974).
- [7] C. Wang, Y. Wang, X. Cao, et al., Optics Communications **501**, 127394 (2021).
- [8] А. И. Соколовская, Н. В. Чернега, Краткие сообщения по физике ФИАН № 3, 6 (1986).
- [9] N. Tcherniega, A. Sokolovskaia, A. D. Kudriavtseva, et al., Optics Communications **181**(1–3), 197 (2000).
- [10] С. М. Першин, А. И. Водчиц, И. А. Ходасевич и др., Квантовая электроника **52**(3), 283 (2022).
- [11] Г. Флинн, Физика акустической кавитации в жидкостях. *Физическая акустика*, Под ред. У. Мезона (М., Мир, 1967). Т. 1, Ч. Б. – С. 7 – 138.
- [12] S. K. Turitsyn, S. A. Babin, D. V. Churkin, et al., Physics reports **542**(2), 133 (2014). DOI: 10.1016/j.physrep.2014.02.011.

Поступила в редакцию 5 апреля 2023 г.

После доработки 27 апреля 2023 г.

Принята к публикации 28 апреля 2023 г.