

НОВЫЙ НЕЛИНЕЙНО-ОПТИЧЕСКИЙ ЭФФЕКТ: 20-КРАТНОЕ ЛОКАЛЬНОЕ ПОВЫШЕНИЕ ИНТЕНСИВНОСТИ В ПОЛЕ ОБРАТНОГО ВКР ПИКОСЕКУНДНОГО ИМПУЛЬСА В ТЯЖЁЛОЙ ВОДЕ

С. М. Першин¹, А. И. Водчиц², В. А. Орлович²,
М. Я. Гришин¹, И. А. Ходасевич²

Впервые, насколько нам известно, в ВКР-лазере на тяжёлой воде обнаружен новый нелинейно-оптический эффект: 20-кратное локальное повышение интенсивности в поле обратного ВКР до порога оптического пробоя ($\sim 40 \text{ ТВт/см}^2$) из-за керровского сжатия пучка в перетяжке при её перемещении из объёма к поверхности воды при неизменной энергии пикосекундных импульсов (57 пс, $\sim 2 \text{ мДж}$, 532 нм). Оптический пробой воды с выбросом капель по нормали к поверхности достигается в тонком слое при размещении фокальной плоскости лазерного пучка на глубине 1–3 мм. Вне этого слоя интенсивность излучения не превышала 2 ТВт/см^2 для возбуждения ВКР. Обнаруженная концентрация энергии в малом объёме указывает на высокую степень временной и пространственной локализации суммирования керровских нелинейно-оптических вкладов в показатель преломления и коэффициент двухфотонного поглощения, что приводит к локальному повышению интенсивности поля и достижению порога пробоя при энергии импульса в 20 раз ниже, чем при отсутствии подобного суммирования нелинейно-оптических вкладов.

Ключевые слова: пикосекундный ВКР-лазер на тяжёлой воде, обратное и прямое ВКР, самофокусировка, оптический пробой, ударная волна.

¹ ИОФ РАН, 119991 Россия, Москва, ул. Вавилова, 38; e-mail: pershin@kapella.gpi.ru.

² Институт физики им. Б. И. Степанова НАН, 220072 Республика Беларусь, Минск, Проспект Независимости, 68-2.

Введение. Известно, что ВКР-лазеры [1–4] достигают порога генерации благодаря распределённой обратной связи (РОС) [5, 6] не только в сфокусированном, но и параллельном пучке накачки [7]. Применение резонаторов с зеркалами при поперечной накачке комбинационно-активной среды [8, 9] или внутри резонатора накачки [10, 11] заметно снижает порог генерации и повышает КПД нелинейно-оптического преобразователя излучения накачки в компоненты ВКР. Особый интерес здесь вызывает новый ВКР-лазер [12, 13], а также лазер на основе явления вынужденного рассеяния Мандельштама–Бриллюэна (ВРМБ-лазер) [14] с индуцированным несимметричным резонатором “поверхность – РОС в среде”. Такой резонатор включается при сближении плоскости перетяжки сфокусированного пучка (фокальной плоскости) с открытой поверхностью образца при расположении пучка по нормали к поверхности. При этом зависимость порога ВКР от дистанции сближения перетяжки из объёма к поверхности имеет характерный N -образный вид. Увеличение пороговой интенсивности накачки I_p здесь обусловлено необходимостью обеспечения постоянства значения инкремента ВКР $G = 25$ в показателе экспоненты для достижения порога ВКР [3, 11]:

$$G = g \cdot I_p \cdot L, \quad (1)$$

где g – нелинейно-оптический коэффициент взаимодействия излучения лазера с веществом [1–4], I_p – интенсивность накачки и L – длина усиления в среде, которую принято считать равной длине каустики пучка накачки. При уменьшении длины усиления, когда верхняя часть каустики достигает поверхности и начинает перемещаться через поверхность в воздух, наблюдается рост порога вынужденного рассеяния. Далее, по мере сближения перетяжки с поверхностью и сокращения части каустики длиной L в среде значение порога (см. (1)) увеличивается до экстремума в N -образной зависимости перед “включением” резонатора [12, 13]. Существенно, что “включение” резонатора сопровождается снижением порога более чем на порядок. Так, в ВКР-лазере на воде [15] при накачке 15-пс импульсами второй гармоники Nd³⁺:YLF-лазера (527 нм) мы достигли снижения порога возбуждения ВКР в воде до 30 раз и в тяжелой воде до 20 раз.

Оставалось неясным, насколько критичным является отклонение пучка накачки от нормали к поверхности образца и его влияние на характеристики ВКР-лазера. Предварительные эксперименты с постоянной накачкой показали, что отклонение пучка от нормали к поверхности воды подчёркивает асимметрию ВКР вперёд-назад [16], вплоть до оптического пробоя с подавлением обратного ВКР (ОВКР) при перемещении перетяжки пучка к поверхности без увеличения энергии импульса накачки [17]. При этом пробой не влиял на возбуждение попутного ВКР (ПВКР) с N -образной зависимостью

порога ПВКР. Если обнаруженная особенность локального многократного повышения интенсивности пучка при сохранении энергии импульса накачки является закономерностью, то следует ожидать проявления этой особенности в других образцах. Целью данной работы являлись поиск и изучение обнаруженного явления в тяжелой воде, которая отличается большей плотностью и гомогенностью. Известно, что вариации рассеивающих свойств среды влияют на параметры распределённой обратной связи в процессах вынужденного рассеяния [5, 6]. Так, например, в гетерогенных средах (водных суспензиях наносфер) мы впервые осуществили генерацию компонент вынужденного рассеяния Мандельштама–Бриллюэна в направлении, попутном накачке [18].

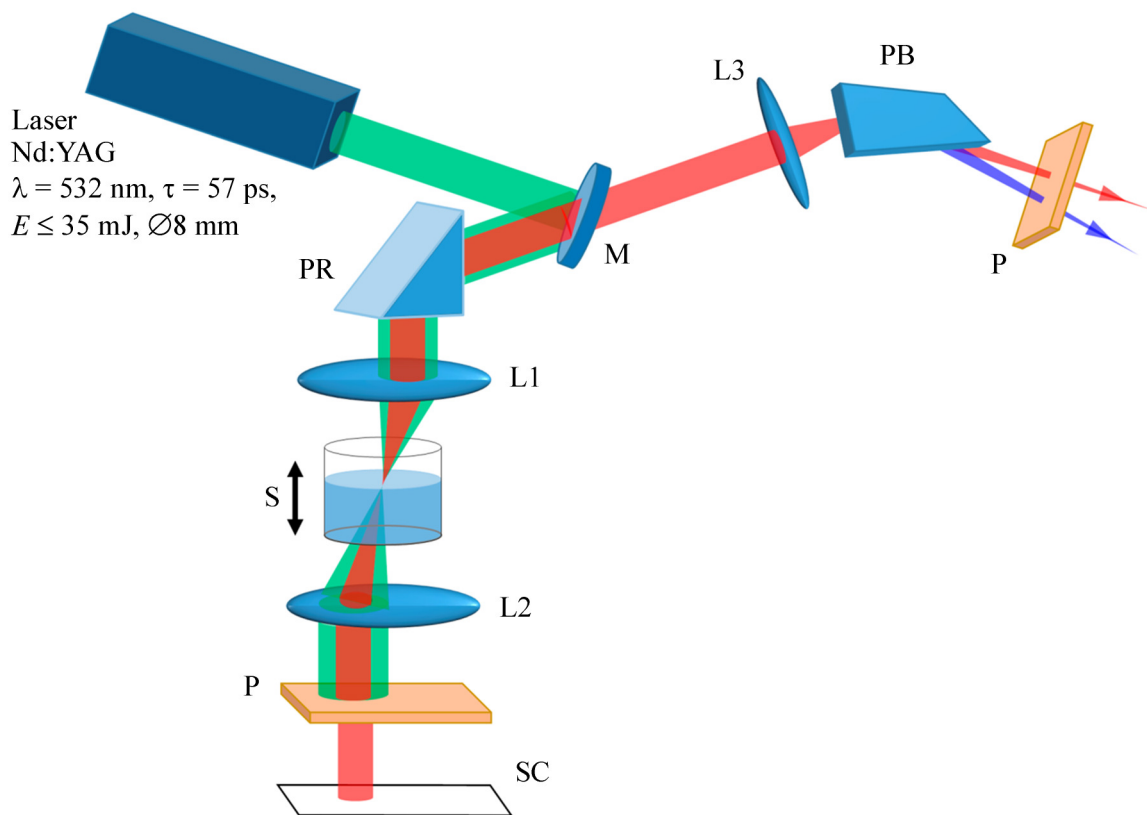


Рис. 1: Оптическая схема эксперимента: *Laser* – импульсный твердотельный лазер; *M* – дихроичное зеркало; *L1*, *L2*, *L3* – собирающие линзы; *PB* – призма Пеллин–Брока; *P* – оптические фильтры; *PR* – поворотная призма 90°; *S* – кювета с образцом; *SC* – экран.

Эксперимент. Оптическая схема эксперимента показана на рис. 1. Пучок излучения накачки ($\text{Nd}^{3+}:\text{YAG}$ лазер LS-2151 (LOTIS ТИ), 532 нм, 57 пс, до 15 мДж/импульс,

частота следования импульсов 15 Гц) отклоняли дихроичным зеркалом М на призму PR, которая направляла пучок вниз по вертикали на линзу L1 с фокусным расстоянием 83 мм. Линза фокусировала излучение накачки в образец по нормали к поверхности. Затем линзу сместили по горизонтали на 3 мм. Такое смещение составляло отклонение пучка накачки от нормали $\sim 2^\circ$ и обеспечивало разъюстировку резонатора, в котором поверхность воды выполняла роль зеркала с френелевским отражением $\sim 2\%$ [12, 13] при совмещении с плоскостью перетяжки пучка накачки. Заметим, что небольшое смещение линзы сопровождается добавлением к сферической аберрации линзы вклада комы, которым мы пренебрегаем в первом приближении.

Тяжёлую воду в кювете S (диаметр 20 мм и длина 75 мм с дном оптического качества) с открытой поверхностью размещали на столике для перемещения по вертикали с шагом 0.25 мм. Начальное положение кюветы было выбрано таким, чтобы фокальная плоскость (перетяжка) каустики пучка находилась на глубине 15 мм от поверхности воды и приближалась к поверхности при перемещении кюветы вниз.

После кюветы установили линзу L2 для коллимации пучков ПВКР и накачки. Оптические фильтры Р использовали для выделения излучения ПВКР. После фильтров пучок ПВКР попадал на белый экран SC (лист бумаги) для визуального наблюдения и измерения спектра либо на детектор для измерения энергии импульсов ПВКР. Пучок излучения ВКР в обратном направлении проходил через поворотное зеркало М с коэффициентом пропускания не менее 85–90% на длине волны 652 нм первой стоксовой компоненты. После зеркала устанавливали фокусирующую линзу L3, призму Пеллин–Брока 90-градусного отклонения и фильтр Р для выделения компоненты ОВКР, пучок которой направляли на измеритель энергии импульсов или на входную щель спектрометра.

Пучок накачки с диаметром ~ 6 мм и гауссовым распределением интенсивности по сечению имел расходимость ~ 0.4 – 0.6 мрад и линейную поляризацию в горизонтальной плоскости. В пучок накачки вводили аттенюатор из двух призм Глана для вариации энергии накачки в пределах 0.1–15 мДж. Диаметр пучка в фокальной плоскости ($2w_0$) составлял ~ 40 мкм. Тогда длину каустики или удвоенную длину Рэлея L_R рассчитывали по формуле:

$$2L_R = (2\pi \cdot w_0^2)/\lambda. \quad (2)$$

В нашем случае для длины волны накачки $\lambda = 0.532$ мкм длина каустики составила величину ~ 4.8 мм. Энергию импульсов накачки, ОВКР и ПВКР измеряли с помощью измерителя мощности ИМО-2Н. Спектры ВКР регистрировали с помощью мини-

спектрометра S100 (SOLAR LS) со спектральным разрешением $4\text{--}5\text{ см}^{-1}$ и оптическим волокном для ввода излучения. Измерения проводили при комнатной температуре.

Результаты и обсуждение. В первых опытах генерацию ВКР при перемещении каустики из глубины к поверхности тяжёлой воды наблюдали визуально по красному пятну стоксовой компоненты на экране (рис. 1) при энергии импульса накачки 3.1 мДж. Это значение на 10–20% превышало энергию импульса накачки 2.5–3 мДж в экстремуме N -образной зависимости порога ВКР в воде и тяжёлой воде, измеренной нами ранее [13] в аналогичной схеме эксперимента. Отметим, что интенсивность излучения в перетяжке пучка диаметром $\sim 40\text{ мкм}$ при энергии импульса 3 мДж составляла $\sim 3\text{ ТВт/см}^2$, что более чем на порядок ниже порога оптического пробоя воды $\sim 40\text{ ТВт/см}^2$ [4]. При этом значении энергии 57-пс импульса мощность излучения достигала величины около 50 МВт, что в ~ 25 раз превышает критическую мощность самофокусировки излучения второй гармоники $\text{Nd}^{3+}:\text{YAG}$ лазера $P_{cr} = 1.87\text{ МВт}$ [4].

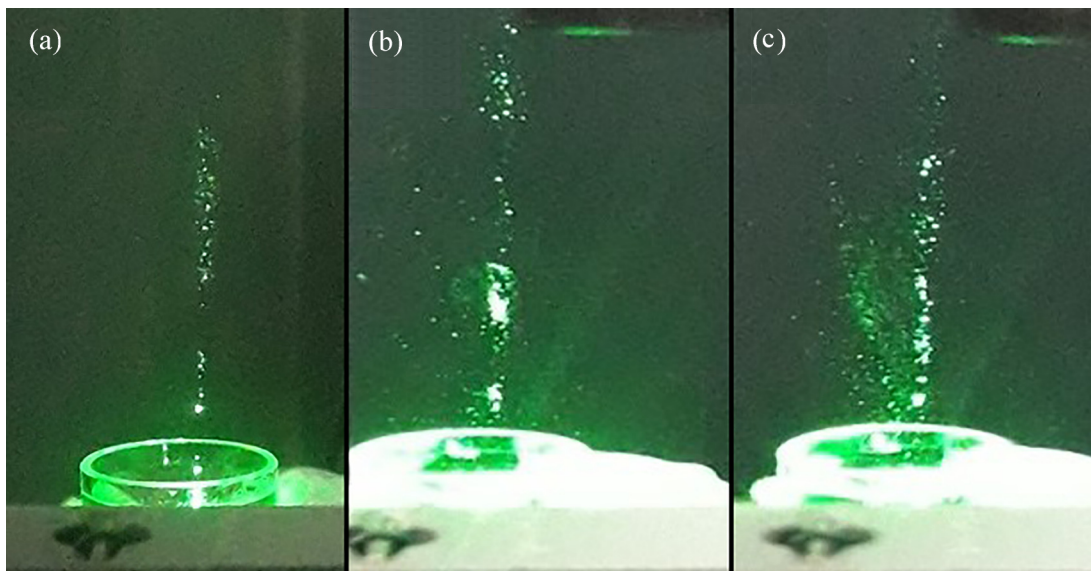


Рис. 2: Выброс капель при оптическом пробое тяжёлой воды в фокусе линзы при смещении перетяжки пучка к поверхности на глубину (a) 3 мм, (b) 2 мм и (c) 1 мм.

Однако, парадоксально, пороговая величина пробоя $\sim 40\text{ ТВт/см}^2$ была достигнута только перемещением перетяжки из объёма к поверхности без увеличения энергии накачки. Так, при приближении перетяжки к поверхности образца мы зарегистрировали оптический пробой в тонком слое на глубине $\sim 3\text{ мм}$. Пробой сопровождался характерным звуком ударной волны. Более того, фронт ударной волны при достижении поверхности приводил к отколу поверхности с выбросом капель, как это видно на рис. 2(a).

Далее мы наблюдали пробой при последующем приближении перетяжки к поверхности на глубину 2 и 1 мм, соответственно, (рис. 2(b) и (c)).

Физически ясно, что при сближении точки оптического пробоя (т. е. перетяжки пучка накачки) с поверхностью потери энергии ударной волны при распространении в среде будут снижаться, что приведёт к увеличению высоты подъёма капель и увеличению импульса отдачи [19] или тяги реактивного двигателя.

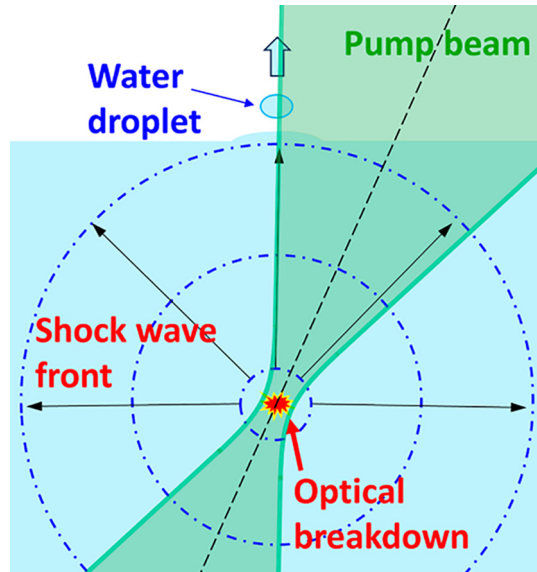


Рис. 3: Фрагмент схемы эксперимента, иллюстрирующий в увеличенном масштабе зону оптического пробоя с выбросом капель воды навстречу накачке на высоту до 80 мм. Отклонение пучка накачки от нормали $\sim 2^\circ$.

Заметим, что выброс капель происходит по нормали к поверхности, несмотря на наклон оси пучка накачки к поверхности, как видно на фрагменте схемы эксперимента (рис. 3). Этот факт подтверждает сферическую геометрию ударной волны, как было установлено ранее в работе [19], при оптическом пробое жидкости в фокусе пучка лазера, несмотря на протяжённую каустику длиной $2L_R$ (см. формулу (2)).

При этом траектория капель по нормали к поверхности не пересекается с наклонной осью пучка накачки. Ясно, что импульс отдачи от вылета капли будет создавать реактивную тягу кюветы с водой. Оценим в нашем случае из закона сохранения энергии скорость v вылета капли воды объёмом 1 мм^3 (массой $m = 1 \text{ мкг}$) на высоту $h = 80 \text{ мм}$:

$$mgh = mv^2/2. \quad (3)$$

Отсюда следует, что скорость капли составляет около 30 см/с.

Отметим ещё одну особенность обнаруженного явления: оптический пробой подавляет генерацию обратного ВКР. В то же время, пятно стоксовой компоненты попутного ВКР на экране после кюветы (см. рис. 1) регистрировали при каждом импульсе накачки. Отсюда следует, что попутное ВКР развивается на переднем фронте импульса накачки до оптического пробоя (см. [20]), который блокирует развитие обратного ВКР навстречу импульсу накачки, т. к. на оси пучка происходит локальное повышение интенсивности до достижения порога оптического пробоя воды (~ 40 ТВт/см²) [4]. Далее мы измерили зависимость пороговой энергии импульса накачки для попутного и обратного ВКР от перемещения перетяжки пучка из глубины к поверхности образца.

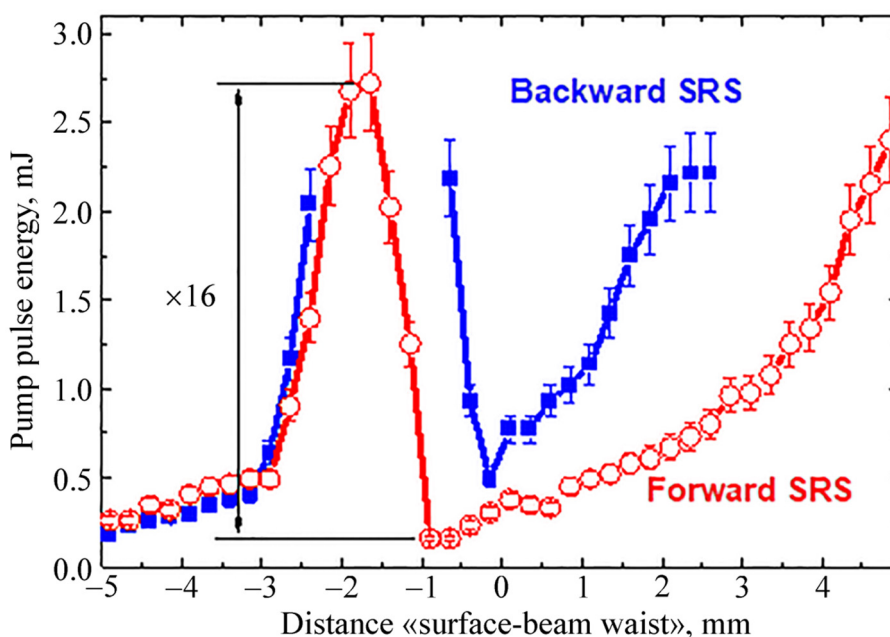


Рис. 4: Зависимость порога ОВКР (квадраты) и ПВКР (круги) от расстояния фокальной плоскости каустики пучка до поверхности тяжёлой воды.

На рис. 4 представлена зависимость значения порога попутного (круги) и обратного (квадраты) ВКР от расстояния между перетяжкой пучка и поверхностью при перемещении кюветы вниз по вертикали с шагом 0.25 мм. Из рисунка видно, что зарегистрированная зависимость имеет характерный *N*-образный вид для порога попутного ВКР (рис. 4, круги), который был выявлен нами ранее [12, 13] в эксперименте без отклонения пучка накачки от нормали к поверхности. Кроме того, обе зависимости имеют минимум порога ВКР: 0.16 и 0.49 мДж для ПВКР и ОВКР, соответственно, при перемещении перетяжки пучка в окрестности поверхности.

Наблюдаемое снижение (до 16 раз) порога попутного ВКР обусловлено “включением” поверхности в качестве сосредоточенного зеркала резонатора с френелевским коэффициентом отражения 2% для периферийной внеосевой части пучка накачки (см. рис. 3), которая входит в воду по нормали к поверхности и возбуждает ВКР с участием резонатора. При этом в зависимости порога обратного ВКР (рис. 4, квадраты) имеется разрыв в окрестности экстремума N -образной характеристики, когда перетяжка каустики пучка перемещается в тонком слое от 3 до 1 мм из-за развития пробоя и подавления обратного ВКР. Отметим высокую локализацию области пробоя в слое толщиной около 2 мм при длине каустики пучка 4.8 мм (см. выше). Особый интерес здесь вызывает резкий рост интенсивности излучения накачки и обратного ВКР на оси пучка с локализацией в плоскости перетяжки. Так, из рис. 4 видно, что порог пробоя (40 ТВт/см²) [4] достигается при энергии импульса накачки около 2 мДж, что соответствует мощности $P_0 \sim 30$ МВт и интенсивности ~ 2 ТВт/см². Отсюда следует, что достигнуто 15-кратное превышение мощности накачки над критической мощностью самофокусировки $P_{cr} \sim 2$ МВт [4]. Это указывает на сильно нелинейный режим взаимодействия излучения со средой [21] с доминирующим механизмом самофокусировки с керровским нелинейным коэффициентом n_2 .

Физически ясно, что 20-кратный рост интенсивности без увеличения энергии импульса накачки указывает на новый нелинейно-оптический эффект на основе аддитивной керровской самофокусировки. В нашем случае в плоскости перетяжки у поверхности одновременно суммируются вклады керровского нелинейного показателя преломления n_2 , индуцированные в полях накачки и стоксовой компоненты обратного ВКР. Кроме того, здесь следует добавить вклады от импульсов обращённой волны накачки [22] и обратного ВКР, отражённые от поверхности в сторону перетяжки. Отличительной особенностью этого суммирования, инициированного пикосекундным импульсом обратного ВКР, является высокая степень локализации и одновременная встреча всех импульсов в тонком слое у поверхности. Важно, что управляющим элементом обнаруженного процесса является плоскость перетяжки, перемещение которой обеспечивает пробой образца с энергией в 20 раз меньше той, которая необходима для пробоя вне этого слоя. Так, например, при наличии попутного ВКР, возбуждаемого в воде пикосекундным импульсом, но в отсутствие обратного ВКР порог оптического пробоя в объёме кюветы не был достигнут при превышении критической мощности самофокусировки до 30 раз [21].

Прикладной аспект здесь более чем очевиден. Например, низкоэнергетический оптический пробой с высокой эффективностью (малым энергопотреблением) позволяет воздействовать на вирусы в водной суспензии [23], а также проводить стерильную бесконтактную кавитационную обработку дистиллированной воды для увеличения скорости растворения почечных камней [24] и других применений, которые обсуждались в пионерских работах по лазерному пробую [25]. С другой стороны, достижимый перемещением плоскости перетяжки пучка порог пробоя (~ 40 ТВт/см²) в воде с выбросом капель по нормали к поверхности воды низкоэнергетическими импульсами, фактически, демонстрирует лазерный реактивный двигатель [26].

Заключение. Таким образом, впервые, насколько нам известно, в пикосекундном ВКР-лазере на тяжёлой воде с несимметричным резонатором у поверхности обнаружен новый нелинейно-оптический эффект – 20-кратный рост интенсивности излучения выше порога оптического пробоя без повышения энергии импульса накачки (57 пс, ~ 2 мДж, 532 нм, 15 Гц). Обнаруженный рост инициирован излучением обратного ВКР с высокой локализацией в плоскости перетяжки пучка. Выявлено, что пробой сопровождается ударной волной, которая формирует выброс капель с подъёмом до 80 мм по нормали к поверхности и обеспечивает импульс отдачи, как в лазерном реактивном двигателе Бункина–Прохорова [26].

Предложен и обсуждается механизм обнаруженного эффекта на основе самофокусировки и совокупного вклада нелинейно-оптического керровского показателя преломления, который достигает максимального значения при одновременной встрече в локализованном слое перетяжки всех импульсов: накачки и обратного ВКР, а также их частей, отражённых поверхностью в сторону перетяжки. Повторение в данной работе в тяжёлой воде сценария эффекта с характерными признаками, обнаруженными нами ранее [17] в воде, указывает на фундаментальный характер взаимодействия пикосекундных импульсов со средой вблизи поверхности и требует отдельного изучения. Достижение пороговой интенсивности пробоя воды и тяжёлой воды пикосекундными импульсами с генерацией ударной волны при энергии импульсов в 20 раз меньшей, чем требуется при фокусировке в объём образца, открывает новые перспективы низкоэнергетического, но высокоинтенсивного воздействия на среду.

Отдельный интерес здесь представляет повышение эффективности генерации антистоксовой компоненты по схеме 4-фотонных процессов смешения во встречных пучках высокой интенсивности [27]. Изучение эволюции спектров ВКР является предметом дальнейших работ.

Настоящее исследование выполнено в рамках совместных белорусско-российских исследований по проекту Ф23РНФ-040 Белорусского республиканского фонда фундаментальных исследований и гранту № 23-42-10019 Российского научного фонда.

Авторы выражают благодарность А. Воропинову за полезные обсуждения результатов работы.

Л И Т Е Р А Т У Р А

- [1] С. А. Ахманов, Р. В. Хохлов, *Проблемы нелинейной оптики (электромагнитные волны в нелинейных диспергирующих средах)* (АН СССР, Институт научной информации, Москва, 1964).
- [2] Y.-R. Shen, *Stimulated Raman Scattering*. In: Cardona M. (Ed.) *Light Scattering in Solids*. Topics in Applied Physics, Vol. 8 (Springer, Berlin, Heidelberg, 1975).
- [3] R. W. Boyd, *Nonlinear optics* (Academic Press, New York, 2020). DOI: 10.1016/C2015-0-05510-1.
- [4] B. Hafizi, J. P. Palastro, J. R. Peñano, et al., *J. Opt. Soc. Am. B* **33**(10), 2062 (2016). DOI: 10.1364/JOSAB.33.002062.
- [5] С. А. Ахманов, Г. А. Ляхов, *ЖЭТФ* **66**, 96 (1974).
- [6] G. A. Lyakhov, Yu. P. Svirko, *J. Mod. Optic.* **40**, 991 (1993). DOI: 10.1080/09500349314551071.
- [7] С. А. Ахманов, Б. В. Жданов, А. И. Ковригин, С. М. Першин, *Письма в ЖЭТФ* **15**, 266 (1972).
- [8] Zh. Bai, H. Yuan, Zh. Liu, et al., *Opt. Mater.* **75**, 626 (2018). DOI: 10.1016/j.optmat.2017.10.035.
- [9] Ю. И. Кызыласов, В. С. Старунов, *Письма в ЖЭТФ* **7**, 160 (1968).
- [10] Г. П. Джотян, Ю. Е. Дьяков, С. М. Першин и др., *Квант. Электр.* **4**, 1215 (1977). DOI: 10.1070/QE1977v007n06ABEH012874.
- [11] D. P. Tereshchenko, S. N. Smetanin, A. G. Papashvili, et al., *Crystals* **13**(4), 636 (2023). DOI: 10.3390/cryst13040636.
- [12] С. М. Першин, М. Я. Гришин, В. Н. Леднёв, П. А. Чижов, *Письма в ЖЭТФ* **109**, 447 (2019). DOI: 10.1134/S0370274X19070038.
- [13] S. M. Pershin, A. I. Vodchits, I. A. Khodasevich, et al., *Opt. Lett.* **45**(19), 5624 (2020). DOI: 10.1364/OL.402358.
- [14] С. М. Першин, А. Ф. Бункин, М. А. Давыдов и др., *Письма в ЖЭТФ* **112**, 437 (2020). DOI: 10.31857/S1234567820190027.

- [15] S. M. Pershin, M. Ya. Grishin, V. N. Lednev, et al., *Opt. Lett.* **44**(20), 5045 (2019). DOI: 10.1364/OL.44.005045.
- [16] М. А. Большов, Ю. И. Голяев, В. С. Днепровский, И. И. Нурминский, *ЖЭТФ* **57**, 346 (1970).
- [17] С. М. Першин, А. И. Водчиц, И. А. Ходасевич и др., *Квант. Электр.* **52**, 283 (2022). DOI: 10.1070/QEL18005.
- [18] V. S. Gorelik, A. F. Bunkin, M. A. Davydov, et al., *Appl. Phys. Lett.* **117**, 141101 (2020). DOI: 10.1063/5.0024816.
- [19] Y. Tagawa, S. Yamamoto, K. Hayasaka, M. Kameda, *J. Fluid Mech.* **808**, 5 (2016). DOI: 10.1017/jfm.2016.644.
- [20] H. Yui, Y. Yoneda, T. Kitamori, T. Sawada, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 4110 (1999). DOI: 10.1103/PhysRevLett.82.4110.
- [21] Y.-H. Chen, J. R. Peterson, L. A. Johnson, et al., *Opt. Lett.* **45**(15), 4344 (2020). DOI: 10.1364/OL.398153.
- [22] A. D. Kudryavtseva, A. I. Sokolovskaya, N. V. Tcherniega, L. I. Tikhonov, *Proc. SPIE 3733, ICONO '98: Nonlinear Optical Phenomena and Coherent Optics in Information Technologies*, (1999). DOI: 10.1117/12.340098.
- [23] А. Ф. Бункин, А. Н. Федоров, М. А. Давыдов и др., *Письма в ЖЭТФ* **115**, 528 (2022). DOI: 10.31857/S1234567822080109.
- [24] N. V. Gvozdev, E. V. Petrova, T. G. Chernevich, et al., *J. Cryst. Growth* **261**(4), 539 (2004). DOI: 10.1016/j.jcrysgro.2003.09.026.
- [25] Г. А. Аскарьян, А. М. Прохоров, Г. П. Шипуло, Г. Ф. Чантурия, *ЖЭТФ* **44**, 2180 (1963).
- [26] Ф. В. Бункин, А. М. Прохоров, *УФН* **119**, 425 (1976). DOI: 10.3367/UFNr.0119.197607b.0425.
- [27] S. M. Pershin, A. F. Bunkin, *Laser Phys.* **19**, 1410 (2009). DOI: 10.1134/S1054660X0907007X.

Поступила в редакцию 11 декабря 2023 г.

После доработки 19 января 2024 г.

Принята к публикации 22 января 2024 г.