

ОПТИКА И ЛАЗЕРНАЯ ФИЗИКА

УДК 535.375.55

**ДВУХЦВЕТНЫЙ ПИКОСЕКУНДНЫЙ ВКР-ЛАЗЕР
НА ВОДЕ С КРАТНЫМ СОКРАЩЕНИЕМ
ДЛИТЕЛЬНОСТИ ИМПУЛЬСА СТОКСОВОЙ
КОМПОНЕНТЫ В ПАРАЛЛЕЛЬНОМ ПУЧКЕ**

С. М. Першин¹, М. Я. Гришин¹, В. Н. Леднев¹, В. А. Орлович²,
В. А. Завозин¹, Е. В. Шашков¹, Г. А. Болдин^{1,3}

Впервые, насколько нам известно, в параллельном пучке накачки в кювете с дистиллированной водой длиной 30 см обнаружено 10-кратное сжатие импульса стоксовой компоненты вынужденного комбинационного рассеяния света (ВКР) 60 пс импульсов второй гармоники (540 нм) Nd^{3+} :YAP лазера. Обсуждается влияние опережения импульса стоксовой компоненты относительно импульса накачки из-за дисперсии групповых скоростей и большой величины красного смещения на коэффициент сокращения длительности импульса стоксовой компоненты.

Ключевые слова: вынужденное комбинационное рассеяние (ВКР), рамановский лазер на воде, порог ВКР, пикосекундные импульсы, компрессия импульса, коллимированный пучок.

Введение. Спектроскопия комбинационного рассеяния света (КР) является мощным инструментом в науке и технике для таких областей, как преобразование частот когерентного излучения [1, 2] и изучение структуры молекулярных колебаний в различных средах [3], а также в визуализации биологических объектов [4, 5]. Вода как широко распространенная среда с уникальными физико-химическими свойствами представляет

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.

³ НИЯУ «МИФИ», 115409 Россия, Москва, Каширское ш., 31.

особый интерес для изучения вынужденного комбинационного рассеяния (ВКР) из-за широкой (до 400 см^{-1}) спектральной полосы валентных колебаний ОН при синхронной накачке ВКР-лазера цугом лазерных импульсов на длине волны второй гармоники (532–540 нм).

Традиционно, эксперименты по ВКР в жидкостях проводят с использованием фокусированных лазерных пучков для достижения достаточного уровня плотности мощности, необходимого для преодоления порога ВКР [6–8]. Отдельное внимание уделяют исследованию коллоидных растворов в жидкостях, что связано с новыми нелинейно-оптическими явлениями для подобных сложных систем [9–11]. В недавней работе нашей группы [12] был обнаружен новый физический эффект – многократное снижение порога ВКР при фокусировке пучка вблизи границы вода/воздух. Однако в некоторых случаях возбуждение ВКР с фокусированным пучком не может быть получено из-за конкуренции процессов ВКР и оптического пробоя [13].

Для снижения вероятности оптического пробоя можно использовать накачку ВКР с помощью лазерных пучков с плоским волновым фронтом (параллельный пучок). В литературе есть только эпизодические работы, в которых наблюдали генерацию ВКР в параллельных (коллимированных) лазерных пучках. Например, в 1972 году Ахманов и соавторы [14] впервые наблюдали ВКР в жидком азоте при накачке параллельным пучком. Однако для других жидкостей (вода, спирт и др.) отсутствуют публикации по ВКР в такой схеме возбуждения.

В представленной работе было проведено исследование влияния длины кюветы с водой (длины усиления) с водой на порог ВКР, а также с помощью стрик-камеры измерена длительность импульса стоксовой компоненты ВКР, возбуждаемой коллимированным пучком пикосекундного неодимового лазера.

Эксперимент. Известно, что интенсивность излучения ВКР экспоненциально зависит от интенсивности накачки [12]:

$$I_{\text{SRS}} = I_0 e^{I_p g L}, \quad (1)$$

где I_{SRS} – интенсивность стоксового излучения ВКР, I_0 – интенсивность шума на стоксовой частоте, g – коэффициент усиления ВКР, а L – длина взаимодействия. Поэтому представляет интерес исследовать влияние длины усиления на величину порога ВКР в параллельных пучках. Для этого варьировали длину кюветы, заполненной дистиллированной водой. Также в работе провели прямые измерения величины изменения длительности ВКР-импульса относительно длительности импульса накачки.

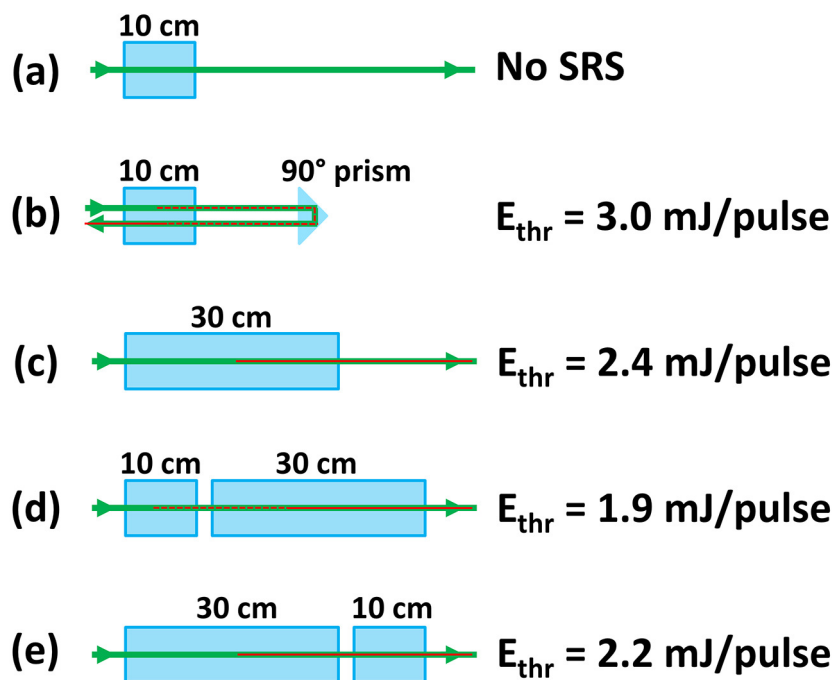


Рис. 1: Различные комбинации кювет (слева), заполненных водой, в которых коллимированным пучком пикосекундных импульсов неодимового лазера возбуждается ВКР, а также соответствующие значения порога ВКР (справа).

В работе объединили результаты экспериментов, полученные на двух установках, включающих в себя пикосекундные неодимовые лазеры с близкими параметрами. Первая серия экспериментов была посвящена изучению ВКР в воде, возбуждаемой параллельным лазерным пучком в наборе кювет, расположенных в различных комбинациях. Для накачки был использован Nd:YLF лазер с активно-пассивной синхронизацией мод, оснащённый кристаллом KDP для генерации второй гармоники (527 нм, 15 пс, частота повторения импульсов 5 Гц, ≤ 4 мДж/импульс). Параллельный лазерный пучок направляли на набор цилиндрических стеклянных кювет с входными/выходными окнами оптического качества (длина 10 см и 30 см). Кюветы заполняли дважды дистиллированной водой, а количество и порядок установки кювет комбинировали, как показано на рис. 1. Энергию лазерных импульсов варьировали от минимальной и до уровня, на котором регистрировали генерацию ВКР. Порог ВКР определяли как минимальную энергию импульса накачки, при которой регистрируется пятно первой стоксовой компоненты на белом экране (после фильтра из цветного стекла марки КС-10, установленного за выходным окном кюветы). Поскольку интенсивность стоксовой компонен-

ты ВКР экспоненциально зависит от накачки (см. уравнение (1)), точность измерения порога определяется главным образом нестабильностью энергии импульса накачки и свойствами образца.

В случае с 10-см кюветой при одном проходе коллимированного пучка генерацию ВКР не наблюдали даже при максимальной энергии импульса в 4 мДж (рис. 1(а)). Когда коллимированный лазерный пучок был возвращен в 10-см кювету с помощью 90° призмы, генерация ВКР была достигнута при энергии импульса 3 мДж (рис. 1(б)). Для случая кюветы длиной 30 см порог ВКР составил 2.4 мДж (рис. 1(с)), а при сочетании двух кювет, расположенных последовательно, порог ВКР составил 1.9 мДж и 2.2 мДж/импульс, соответственно, (рис. 1(д) и (е)). В такой комбинации первую кювету считали предусилителем (или генератором) ВКР, а вторую – усилителем. Таким образом, увеличение длины усиления снижает порог ВКР, а разница порога при различных вариантах установки кювет обусловлена потерями при отражении от границы раздела сред на выходном и входном окнах кювет.

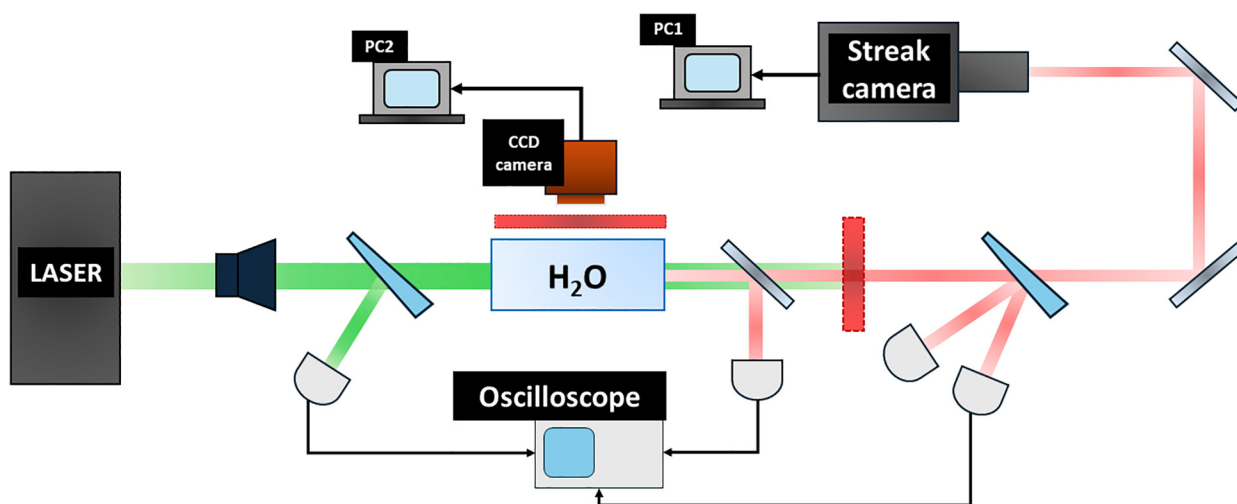


Рис. 2: Схема экспериментальной установки для изучения временных характеристик импульсов вынужденного комбинационного рассеяния (ВКР) света, возбуждаемых коллимированным лазерным пучком: *LASER* – пикосекундный лазер, *PC1* и *PC2* – персональные компьютеры, *CCD camera* – ПЗС камера, *Streak camera* – электронно-оптическая стрик-камера.

Во второй серии экспериментов измеряли пороги ВКР и длительность импульсов в 30-см кювете с дистиллированной водой. Схема установки представлена на рис. 2. Для возбуждения ВКР использовали лазер, состоящий из задающего генератора (1080 нм,

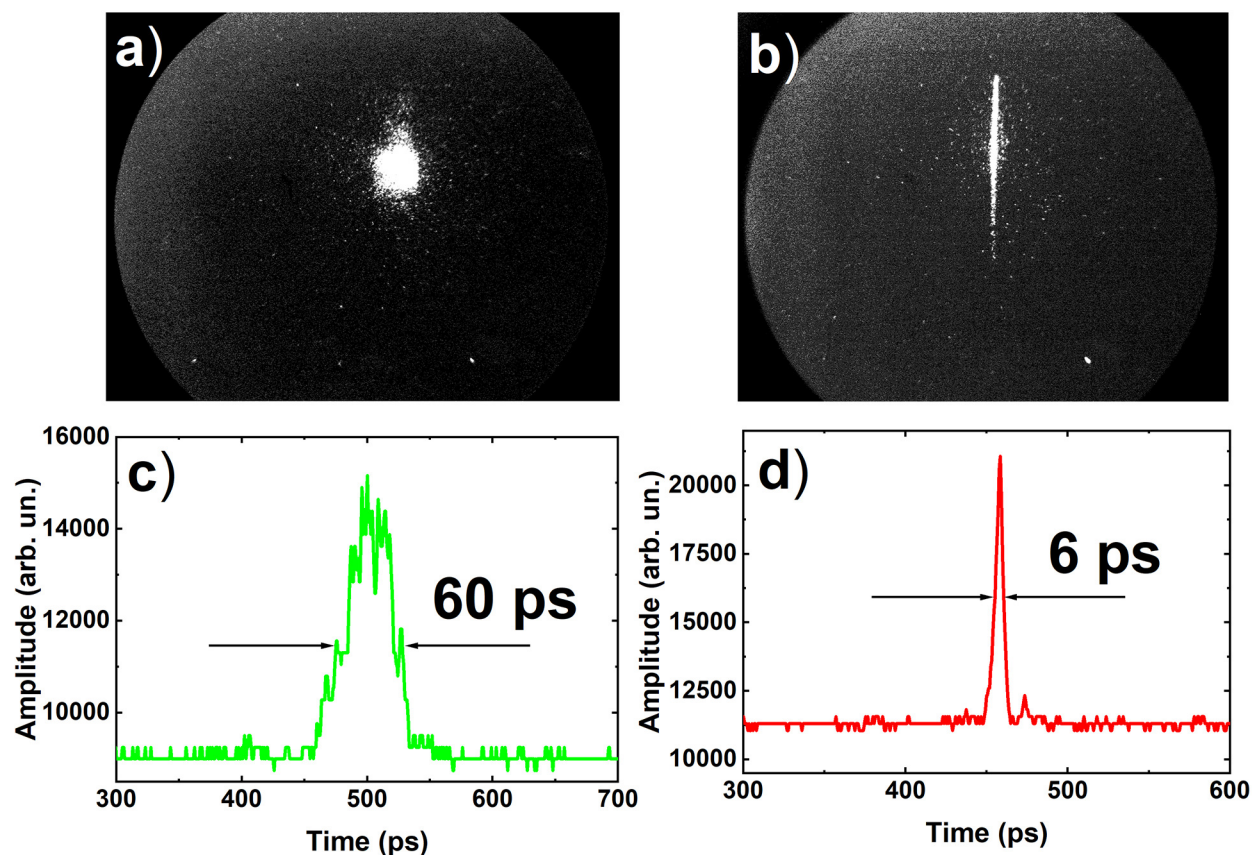


Рис. 3: Измерение длительности импульсов накачки и стоксовой компоненты ВКР: (а) изображение импульса накачки на люминесцентном экране стрик-камеры, (б) изображение стоксовой компоненты ВКР на люминесцентном экране стрик-камеры, (с) временной профиль импульса накачки, (д) временной профиль стоксовой компоненты ВКР.

60 пс, 0.3 Гц) и каскада из 4 усилителей. Лазерные импульсы были удвоены по частоте в кристалле KDP, обеспечивая энергию импульса до 2 мДж на длине волны 540 нм. С использованием CCD камеры Hamamatsu C8484-05G02 (CCD – charge coupled device, прибор с зарядовой связью) были получены изображения треков излучения ВКР вдоль кюветы в геометрии рассеяния 90° с использованием стеклянных светофильтров для выделения изображения треков, а также импульсов накачки и стоксовой компоненты на выходе кюветы. Спектральная ширина стоксовой компоненты ВКР меньше для полосы валентных ОН-колебаний по сравнению с шириной линии спонтанного комбинационного рассеяния света [16], поэтому применение стеклянных фильтров представляется целесообразным.

Эволюцию пучка ВКР вдоль кюветы регистрировали сбоку (под 90°). При этом наблюдали монотонный рост интенсивности сигнала ВКР от входного окна и вплоть до выходного окна кюветы. Измерение длительности импульсов накачки и стоксовой компоненты проводили с использованием стрик-камеры PS-1 S1 (разработана в Институте общей физики им. А. М. Прохорова Российской академии наук, Москва, Россия). На рис. 3 представлены изображения люминесцентного экрана стрик-камеры и соответствующие временные профили импульсов. Длительность импульса накачки (ширина на полувывсоте) составила 60 пс, а для ВКР-импульса длительность сократилась на порядок до 6 пс. Наблюдаемая компрессия длительности импульса ВКР обусловлена экспоненциальным законом генерации интенсивности ВКР с инкрементом ~ 24 [15]: $I_{\text{SRS}} = I_0 e^{I_p g L}$.

Расчеты несоответствия групповой скорости между стоксовым импульсом ВКР (~ 660 нм) и импульсом накачки (540 нм) показывают, что импульс ВКР должен опережать импульс накачки на ~ 11 пс при прохождении через 30 см образец в кювете, что и наблюдалось в эксперименте. Отметим, что такое запаздывание импульса накачки позволяет реализовать схему дополнительного усиления ВКР-компоненты в воде при её отражении навстречу импульсу накачки от зеркала, установленного за выходным окном кюветы.

Заключение. Разработан двухцветный пикосекундный ВКР-лазер на воде с многократной временной компрессией стоксова импульса и задержкой импульса накачки в коллимированном пучке. Проведенные эксперименты показывают, что, фактически, создан ВКР-лазер, состоящий из источника накачки (пикосекундный лазер) с коллимированным пучком, предусилителя и рабочей среды в виде набора кювет с водой. Варьируя длину и количество кювет, можно регулировать порог генерации такого ВКР-лазера, накачиваемого коллимированным пучком пикосекундных импульсов. Вторым результатом – компрессия ВКР-импульсов – позволяет проводить эксперименты “pump-probe” по изучению динамики водородных связей в воде [17], если использовать субпикосекундные длительности импульсов накачки. Зная, что ВКР-лазер может накачиваться фемтосекундными лазерными импульсами [18], можно добиться генерации chirпированных ВКР-импульсов с управляемым знаком chirпа и последующим сжатием до еще меньших длительностей, учитывая однородно-уширенную часть ОН-полосы валентных ОН колебаний.

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

Л И Т Е Р А Т У Р А

- [1] Г. М. Крочик, Ю. Г. Хронопуло, Квантовая электроника **2**, 1693 (1975). <https://doi.org/10.1070/QE1975v005n08ABEH011666>.
- [2] Y. Ganot, I. Bar, Appl. Phys. Lett. **107**, 131108 (2015). <https://doi.org/10.1063/1.4932118>.
- [3] M. Yoshizawa, M. Kurosawa, Phys. Rev. A **61**, 013808 (1999). <https://tohoku.repo.nii.ac.jp/record/4993/files/e013808.pdf>.
- [4] C. W. Freudiger, W. Min, B. G. Saar, et al., Science **322**, 1857 (2008). <https://doi.org/10.1126/science.1165758>.
- [5] C. H. Camp, M. T. Cicerone, Nat. Photonics **9**, 295 (2015). <https://doi.org/10.1038/nphoton.2015.60>.
- [6] R. C. Prince, R. R. Frontiera, E. O. Potma, Chemical reviews **117**, 5070 (2017). <https://doi.org/10.1021/acs.chemrev.6b00545>.
- [7] B. Hafizi, J. P. Palastro, J. R. Peñano, et al., Optics Letters **40**, 1556 (2015). <https://doi.org/10.1364/OL.40.001556>.
- [8] H. Yui, T. Tomai, M. Sawada, et al., Applied Physics Letters **99**, 091504 (2011). <https://doi.org/10.1063/1.3627161>.
- [9] V. S. Gorelik, N. V. Tcherniega, M. A. Schevchenko, et al., Spectrochimica Acta Part A: Molecular and Biomolecular Spectroscopy **237**, 118418 (2020). <https://doi.org/10.1016/j.saa.2020.118418>.
- [10] А. В. Скрабатун, А. А. Матрохин, А. Д. Кудрявцева и др., Краткие сообщения по физике ФИАН **50**(6), 29 (2023). <https://doi.org/10.3103/S106833562306009X>.
- [11] P. Filipczak, M. Pastorcak, T. Kardaś, et al., The Journal of Physical Chemistry C **125**, 1999 (2020). <https://doi.org/10.1021/acs.jpcc.0c06937>.
- [12] S. M. Pershin, M. Ya. Grishin, V. N. Lednev, et al., Opt. Lett. **44**, 5045 (2019). <https://doi.org/10.1364/OL.44.005045>.
- [13] С. М. Першин, А. И. Водчиц, В. А. Орлович и др., Краткие сообщения по физике ФИАН **51**(3), 3 (2024). DOI: 10.3103/S1068335623602169.

- [14] С. А. Ахманов, Б. В. Жданов, А. И. Ковригин, С. М. Першин, Письма в ЖЭТФ **15**, 266 (1972). http://jetpletters.ru/ps/1747/article_26546.pdf.
- [15] R.W. Boyd, *Nonlinear Optics* (Academic Press, New York, 2008).
- [16] И. А. Ходасевич, А. И. Водчиц, С. М. Першин и др., Письма в ЖЭТФ **119**, 94 (2024). <https://doi.org/10.31857/S1234567824020046>.
- [17] W. Sung, K. Inoue, S. Nihonyanagi, T. Tahara, Nat. Commun. **15**, 1258 (2024). <https://doi.org/10.1038/s41467-024-45388-8>.
- [18] P. A. Chizhov, M. Ya. Grishin, S. M. Pershin, et al., Opt. Lett. **46**, 2686 (2021). <https://doi.org/10.1364/OL.426104>.

Поступила в редакцию 6 декабря 2024 г.

После доработки 18 декабря 2024 г.

Принята к публикации 19 декабря 2024 г.