Письма в ЖЭТФ, том 109, вып. 7, с. 447 – 451 © 2019 г. 10 апреля

Аномальное снижение порога вынужденного комбинационного рассеяния вблизи поверхности жидкого азота

С. М. Першин[+1)], *М. Я. Гришин*[+*], *В. Н. Леднев*[+], *П. А. Чижов*[+]

[+]*Институт общей физики им. А. М. Прохорова РАН, 11991 Москва, Россия*

[*]*Московский физико-технический институт (государственный университет), 141701 Долгопрудный, Россия*

Поступила в редакцию 29 января 2019 г.
После переработки 29 января 2019 г.
Принята к публикации 7 февраля 2019 г.

Обнаружено аномально сильное (до 13 раз) снижение порога вынужденного комбинационного рассеяния 15 пс лазерных импульсов в жидком азоте при перемещении каустики пучка накачки из объема через свободную поверхность. Впервые зарегистрирована немонотонная N-образная зависимость порога вынужденного комбинационного рассеяния от расстояния перетяжки пучка до поверхности с минимальным значением порога при совмещении плоского фронта каустики пучка с поверхностью. Физический механизм обнаруженного явления обсуждается.

DOI: 10.1134/S0370274X19070038

Введение. Предметом настоящего Письма является изложение результатов экспериментального изучения нового явления аномально большого (~ 13 раз) снижения пороговой энергии вынужденного комбинационного рассеяния (ВКР) 15 пс импульсов второй гармоники (527 нм) Nd:YLF лазера в приповерхностном слое жидкого азота при перемещении каустики пучка вблизи поверхности.

Порогом ВКР в гомогенной среде принято считать [1, 2] значение энергии импульса, при котором происходит фазовый переход "хаос–порядок" спонтанных молекулярных движений (с равновероятным рассеянием в сферу) в когерентное состояние с формированием пучка когерентного излучения стоксовой компоненты (соосно пучку накачки). Согласно [1–5], частоту ω_s и интенсивность I_s стоксовой компоненты определяют следующими соотношениями:

$$\omega_s = \omega_p - \Omega, \tag{1}$$

$$I_s = I_n \exp(G), \tag{2}$$

где ω_p и Ω – частота накачки и молекулярных движений, I_n – интенсивность квантовых шумов на частоте стоксовой компоненты. Здесь инкремент нарастания в показателе экспоненты G является произведением ВКР-усиления g (которое пропорционально кубической нелинейности среды $\chi^{(3)}$), интенсивности излучения накачки I_p и длины усиления L:

$$G = gI_pL. \tag{3}$$

1)e-mail: pershin@kapella.gpi.ru

Заметим, что в случае возбуждения ВКР параллельными пучками лазера накачки длина L в (3) равна длине нелинейно-оптического образца. В случае фокусированных пучков накачки за длину усиления ВКР в режиме бегущей волны принято [3–6] считать удвоенную длину Рэлея (конфокальный параметр, расстояние от перетяжки каустики, на котором площадь сечения пучка возрастает в два раза по сравнению с площадью сечения в перетяжке).

При этом экспериментально установлено [4, 5], что порог ВКР (как в режиме бегущей волны [4], так и при размещении среды внутри резонатора лазера [5]) достигается при значениях инкремента $G \approx 25$, и последующее повышение накачки сопровождается экспоненциальным ростом интенсивности стоксовой компоненты в соответствии с условием (2). Однако в некоторых случаях ВКР наблюдалось нарушение соотношения (3). Так, например, в жидком азоте [7–9] экспоненциальный рост переходил в аномальный скачок стоксовой компоненты на 6–7 порядков величины. Позднее [10] механизм скачка был обоснован развитием ВКР-генерации с распределенной обратной связью. В другом случае [11] авторы зарегистрировали снижение почти на порядок порога ВКР пикосекундных импульсов в воде в порах глобулярных кристаллов типа опал и обосновали наблюдаемое явление увеличением интенсивности локального поля в окрестности наноразмерных глобул.

Недавно [6] при изучении температурной эволюции спектров комбинационного рассеяния в воде мы обратили внимание на аномальное снижение порога

ВКР 15 пс импульсов вблизи поверхности воды. Учитывая, что структурные комплексы воды могут перестраиваться у поверхности в нестационарных условиях накачки и влиять на порог ВКР, мы решили начать экспериментальное изучение обнаруженного явления с неполярной жидкости без водородных связей, а именно – с жидкого азота, что явилось предметом настоящей работы.

Эксперимент. Выбор жидкого азота обусловлен еще несколькими факторами, кроме упомянутых выше. Так, пионерские работы по мощным ВКР-лазерам на жидком азоте [3] показали, что в нем мало примесей, высока оптическая однородность, и поэтому высок порог оптического пробоя. Ранее [9] мы измерили коэффициент ВКР-усиления $g = 3.0 \times \times 10^{-2}$ см/МВт на длине волны 527 нм, большая величина которого обеспечивает порог ВКР ниже интенсивности оптического пробоя. Кроме того, изучение четырехволновых параметрических процессов генерации высших стоксовых компонент [12] позволило нам внести коррекцию значений показателя преломления жидкого азота в области 600–830 нм, в которой находится длина волны 605 нм первой стоксовой компоненты ВКР излучения накачки 527 нм в нашем случае (частота молекулярных колебаний $\Omega = 2326\,\text{см}^{-1}$). Отметим также, что в эксперименте из-за большого стоксова сдвига ($2326\,\text{см}^{-1}$) удобно выделять излучение первой стоксовой компоненты ВКР (605 нм) с помощью стеклянных оранжево-красных светофильтров (ОС-14 или КС-10) и защитных очков с такими стеклами.

В качестве накачки использовали излучение второй гармоники пикосекундного Nd:YLF лазера [13] с активно-пассивной синхронизацией мод (527 нм, $M^2 = 1.5$, 15 пс, до 5 мДж/имп., 5 Гц, диаметр пучка расширяли до ~ 8 мм). Пучок лазера (см. рис. 1) отклоняли вертикально вниз поворотной 90° призмой в сторону предметного столика, оборудованного вертикальной микрометрической подачей (максимальное смещение ± 20 мм с шагом 0.5 мм). На столике устанавливали стеклянный сосуд Дьюара с зеркальным покрытием (высота 270 мм, диаметр 55 мм) с жидким азотом. Дьюар заполняли жидким азотом так, чтобы поверхность азота находилась ниже края дьюара на 25–30 мм. Этот объем заполнялся холодными парами азота, которые блокировали контакт жидкости с воздухом и обеспечивали оптическое качество поверхности при отсутствии следов кипения.

Над дьюаром устанавливали собирающую линзу с фокусным расстоянием $F = 82$ мм так, чтобы каустика пучка находилась в объеме жидкого азота на глубине 30 мм, когда дьюар был перемещен в верхнее положение. Зависимость порога ВКР от расстояния каустики пучка до поверхности измеряли при перемещении образца вниз без изменения остальной геометрии эксперимента. Точное положение плоского фронта пучка на поверхности жидкого азота (расстояние до фокальной плоскости линзы в воздухе, h) контролировали на экране с отверстием (см. рис. 1) по моменту формирования параллельного пучка, отраженного поверхностью, после линзы в обратном направлении (как показано на вставке на рис. 1). Измерение энергии импульса лазера проводили цифровым пироэлектрическим приемником (PE50-DIF-C, Ophir Photonics), на который заводили часть пучка от делительной пластинки. Порог ВКР определяли, измеряя энергию лазерного импульса, при которой наблюдали появление стоксовой компоненты по оранжево-красной окраске объема жидкого азота в дьюаре. В каждом положении дьюара проводили пять параллельных измерений, затем вычисляли среднее значение пороговой энергии импульса и разброс от среднего.

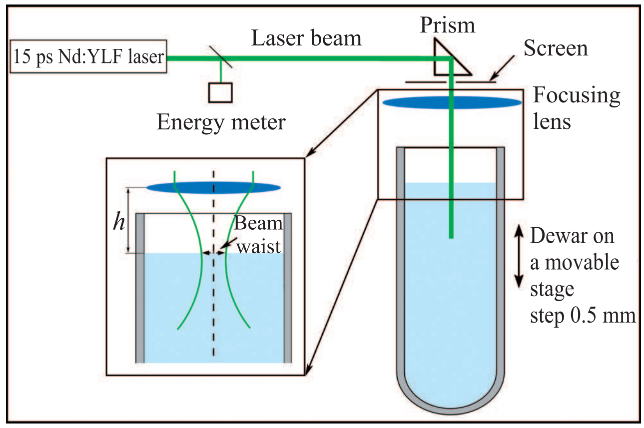

Рис. 1. (Цветной онлайн) Схема эксперимента по изучению аномального снижения порога ВКР 15 пс импульсов (527 нм) в жидком азоте при перемещении каустики пучка через открытую поверхность. На вставке – схема измерения расстояния линза–поверхность

Результаты и обсуждение. На рисунке 2 представлена зависимость пороговой энергии ВКР 15 пс импульсов в жидком азоте от расстояния h между поверхностью жидкости и линзой ($F = 82$ мм) при перемещении каустики пучка из объема к поверхности. Положение поверхности, в окрестности которой было обнаружено аномально большое снижение порога, отмечено стрелкой. Измерения зависимости порога ВКР в режиме бегущей волны (инкремент на длине усиления достигает величины 25, см. формулу (3)) начали, когда каустика пучка находилась в объеме жидкого азота ($h = 50$ мм). Порог ВКР при таком положении каустики и при ее смещении к поверхности на 25 мм (рис. 3a) оставался постоянной величиной ~ 130 мкДж. Далее, через 2 мм смещения дьюара вниз и сближения каустики пучка с поверхностью началось повышение порога ВКР (при $h = 77$ мм, см. рис. 2).

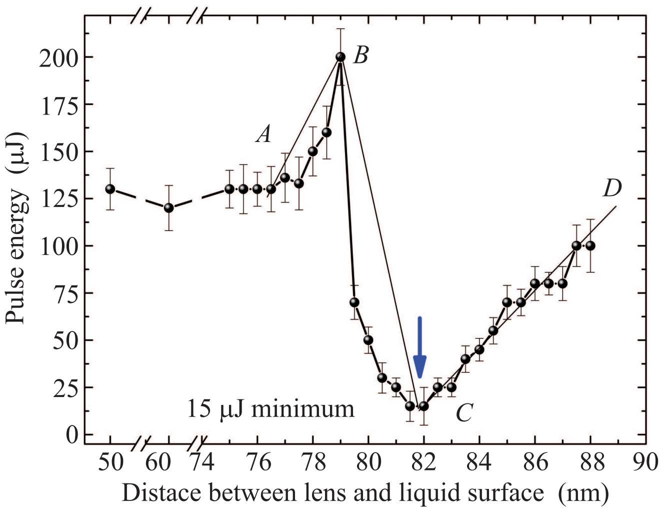

Рис. 2. (Цветной онлайн) Зависимость порога ВКР от расстояния между линзой и поверхностью. Отрезки прямых между точками $ABCD$ соединяют точки начала роста порога, максимального и минимального значения

Это повышение порога обусловлено уменьшением длины усиления ВКР L в режиме бегущей волны (см. (2) и (3)) из-за того, что часть каустики пучка начинает пересекать поверхность и выходить из объема, как показано схематично на рис. 3b. Отсюда следует, что в этой точке плоский фронт каустики (фокальная плоскость) погружен на ~ 6 мм (толщину слоя увеличиваем на ~ 1 мм из-за сферической аберрации линзы [14] и показателя преломления $n = 1.19$ жидкого азота [12]). Тогда точка начала повышения порога ВКР вблизи поверхности дает нам оценку длины усиления ВКР в режиме бегущей волны ~ 12 мм (удвоенная длина Рэлея, $2L_R$ на рис. 3).

Для удобства последующего анализа данных вариации порога ВКР вблизи поверхности мы соединили отрезками прямых линий точки $ABCD$ на рис. 2: A – начало повышения порога (~ 130 мкДж при $h = 77$ мм), B – максимальное значение порога (~ 200 мкДж при $h = 79$ мм), C – минимальное значение (~ 15 мкДж при $h = 82$ мм) и D – кратное повышение порога ВКР при удалении перетяжки от поверхности на длину Рэлея (см. рис. 3). Полученная N-образная зависимость имеет три этапа вариации порога ВКР: рост – кратное снижение – рост. На первом этапе видно повышение порога до ~ 200 мкДж, что соответствует сохранению равенства (3) при сокращении длины усиления (рис. 3b). Затем следует резкое (в 13 раз) снижение порога ВКР до минимального значения, несмотря на одновременное сокращение длины усиления, поскольку только половина каустики пучка осталась под поверхностью (рис. 3c). При дальнейшем перемещении (рис. 3d) второй половины каустики пучка из объема (третий этап на рис. 2) порог ВКР начинает линейно увеличиваться с градиентом ~ 16 мкДж/мм, вдвое меньшим, чем на первом этапе.

Обнаруженная аномалия указывает на изменение механизма ВКР бегущей волны и на ключевую роль поверхности в новом механизме. Наиболее вероятным здесь является многопроходный резонаторный механизм генерации с несимметричным резонатором в отличие от симметричного резонатора с распределенной обратной связью [10], как в случае скачка стоксовой компоненты ВКР в жидком азоте [7–9] или снижения порога генерации при вынужденном рассеянии Мандельштама–Бриллюэна в жидкости [15]. В нашем случае существенно, что плоская поверхность раздела жидкость–воздух является сосредоточенным элементом обратной связи и выполняет роль зеркала ВКР-генератора с несимметричным резонатором (по типу обратной связи).

Как видно из рис. 2, "включение зеркала" (наибольший градиент снижения порога) происходит после максимального значения порога (в точке B на рис. 2) и очередного сокращения длины усиления на 0.5 мм. Здесь суммируется вклад двух факторов: 1) уменьшение кривизны волнового фронта при преломлении на поверхности и вдоль каустики при приближении к ее перетяжке и 2) каналирование пучка вдоль оси и, соответственно, увеличение длины усиления из-за сферической аберрации линзы (удлинение цилиндрической части каустики, [14]). Заметим, что вероятность развития самофокусировки или филаментации пучка [14] мала, поскольку невозможно обеспечить превышение критической мощности самофокусировки на падающем участке ("BC" на рис. 2). При последующем сокращении длины усиления (части каустики пучка) в жидком азоте (см. рис. 2) порог ВКР монотонно снижается до минимального значения (~ 15 мкДж при $h = 82$ мм) при приближении плоского волнового фронта (перетяжки пучка) к поверхности жидкого азота (рис. 2, точка C, рис. 3c). Этот факт дополнительно указывает на резонаторный механизм снижения порога ВКР из-за уменьшения потерь при отражении от плоского зеркала (по сравнению с распределенной обрат-

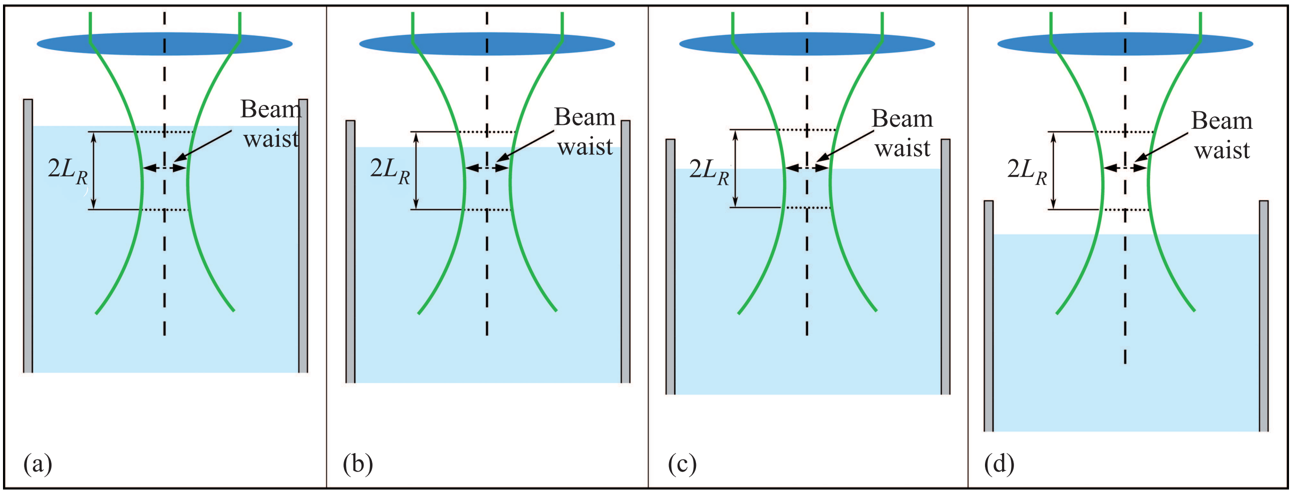

Рис. 3. (Цветной онлайн) Схема положения каустики пучка накачки (удвоенная длина Рэлея $2L_R$ или конфокальный параметр) относительно поверхности жидкого азота при перемещении дьюара вниз (без учета показателя преломления $n = 1.19$ жидкого азота [12] и смещения перетяжки [14] в объеме азота)

ной связью [10]) и увеличения числа проходов внутри несимметричного резонатора ВКР-лазера нового типа.

Несомненно, что обнаруженный новый резонаторный режим ВКР-генерации пикосекундных импульсов с минимальным порогом вблизи поверхности требует детального изучения. Снижение порога ВКР более, чем на порядок, вызывает особый интерес из-за возможности обеспечить многократное превышение накачки над порогом ВКР и получить одновременную генерацию стоксовой и антистоксовой компоненты [3, 12]. Такое бифотонное [16] излучение обеспечивает изучение корреляции флуктуаций интенсивности бифотонов при их одновременной генерации в несимметричном резонаторе ВКР-лазера. Наличие резонатора здесь вносит отличие от спонтанной параметрической генерации [17] запутанных квантовых состояний.

Выводы. Обнаружено аномальное (до 13 раз) снижение порога ВКР 15 пс импульсов вблизи поверхности жидкого азота. Выявлена N-образная зависимость порога ВКР (рост – снижение – рост) при перемещении каустики пучка накачки через свободную поверхность раздела вместо ожидаемого (см. формулу (3)) пропорционального роста при сокращении длины усиления. Ранее мы наблюдали схожую аномалию порога ВКР и для воды в предварительных экспериментах. Подобие обнаруженной аномалии в жидком азоте без водородных связей указывает на новое физическое явление – развитие ВКР излучения импульсных лазеров в жидкостях при фокусировке пучков накачки вблизи поверхности по специфическому механизму генерации. Несомненно, что предложенный механизм включения несимметричного резонатора (распределенной обратной связи в объеме и сосредоточенной обратной связи на плоской поверхности жидкого азота, зеркало) требует отдельного изучения для разработки ВКР-лазеров нового типа на конденсированных средах.

Работа выполнена при финансовой поддержке гранта Российского фонда фундаментальных исследований (РФФИ Бел_а) # 18-52-00038, полученного на международном конкурсе российско-белорусских проектов.

---

1. С. А. Ахманов, Р. В. Хохлов, *Проблемы нелинейной оптики: электромагнитные волны в нелинейных диспергирующих средах*, Институт научной информации АН СССР, М. (1964).
2. В. Т. Платоненко, Р. В. Хохлов, ЖЭТФ **19**, 1435 (1964).
3. А. З. Грасюк, В. Ф. Ефимков, И. Г. Зубарев, В. М. Мишин, В. Г. Смирнов, Письма в ЖЭТФ **8**, 474 (1968).
4. R. W. Boyd, *Nonlinear Optics*, Academic Press, Orlando (2008).
5. S. N. Smetanin, M. Jelinek, V. Kubeček, H. Jelinkova, and L. I. Ivleva, Appl. Phys. B **122**, 260 (2016).
6. S. M. Pershin, M. Ya. Grishin, V. N. Lednev, S. V. Garnov, V. V. Bukin, P. A. Chizhov, I. A. Khodasevich, and V. B. Oshurko, Laser Phys. Lett. **15**, 035701 (2018).
7. J. B. Grun, A. K. McQuillan, and B. P. Stoicheff, Phys. Rev. **180**, 179 (1969).

8. А. Д. Кудрявцева, А. И. Соколовская, М. М. Сущинский, ЖЭТФ **59**, 1556 (1970).
9. С. А. Ахманов, Б. В. Жданов, А. И. Ковригин, С. М. Першин, Письма в ЖЭТФ **15**, 266 (1972).
10. С. А. Ахманов, Г. А. Ляхов, ЖЭТФ **66**, 96 (1974).
11. V. S. Gorelik, A. D. Kudryavtseva, N. V. Tcherniega, A. I. Vodchits, and V. A. Orlovich, Journal of Russian Laser Research **34**, 50 (2013).
12. Б. В. Жданов, Л. Л. Кулюк, С. М. Першин, Квантовая электроника **3**, 1027 (1976).
13. A. A. Karnaukhov, V. B. Morozov, A. N. Olenin, and D. V. Yakovlev, J. Phys.: Conf. Ser. **414**, 012027 (2013).
14. D. Ganin, K. Lapshin, A. Obidin, and S. Vartapetov, Appl. Phys. A **123**, 378 (2017).
15. Г. А. Ляхов, Н. В. Суязов, Письма в ЖТФ **19**, 39 (1993).
16. В. С. Горелик, А. В. Скрабатун, В. А. Орлович, Ю. П. Войнов, А. И. Водчиц, А. Ю. Пятышев, Квантовая электроника **49**, 221 (2019).
17. Б. В. Жданов, В. В. Калитин, А. И. Ковригин, С. М. Першин, Письма в ЖТФ **1**, 847 (1975).