Письма в ЖЭТФ, том 112, вып. 7, с. 437 – 442 10 октября

Новый ВРМБ-лазер с индуцированным резонатором

С. М. Першин[1]*, А. Ф. Бункин, М. А. Давыдов, А. Н. Федоров, М. Я. Гришин*

Институт общей физики им. А. М. Прохорова РАН, 119991 Москва, Россия

Поступила в редакцию 1 сентября 2020 г.
После переработки 1 сентября 2020 г.
Принята к публикации 7 сентября 2020 г.

Впервые, насколько нам известно, при перемещении каустики фокусированного лазерного пучка из объема воды в воздух обнаружено парадоксальное снижение порога генерации высших стоксовых и антистоксовых компонент вынужденного рассеяния Мандельштама–Бриллюэна (ВРМБ) в воде. Обсуждается механизм генерации компонент вследствие четырехволнового смешения на встречных пучках при включении поверхности воды как зеркала индуцированного резонатора ВРМБ-лазера. Сделана оценка сверху коэффициента отражения (R) распределенной обратной связи при ВРМБ в воде $R \ll 0.02$.

DOI: 10.31857/S1234567820190027

Недавно [1, 2] было обнаружено, что порог вынужденного комбинационного рассеяния (ВКР) пикосекундных лазерных импульсов в жидкости испытывает аномально большие изменения (снижение до 14 раз в жидком азоте [1] и до 30 раз в воде [2]) при перемещении каустики пучка накачки через поверхность из объема в воздух. Было установлено, что зависимость порога от расстояния между перетяжкой пучка и поверхностью образца имеет характерный N-образный вид с постоянным значением при перемещении в объеме и увеличением в окрестности выхода каустики из жидкости. Рост порога I_{thr} интерпретировали укорачиванием длины усиления l для обеспечения постоянного [3–5] значения (~ 25) инкремента усиления G:

$$G = g \cdot I_{\mathrm{thr}} \cdot l, \tag{1}$$

где g - коэффициент ВКР-усиления. Принято считать [3–5], что длина усиления l – порядка длины каустики пучка или удвоенной длины Рэлея – L_R [6]:

$$l = 2 \cdot L_R = 2 \cdot (\pi \cdot w_0^2)/\lambda, \tag{2}$$

где w_0 – диаметр пучка в плоскости перетяжки каустики, λ – длина волны накачки. Затем порог достигает максимума и аномально быстро снижается (~ 30 раз в воде) до минимума при совпадении плоскости перетяжки пучка с поверхностью, когда половина каустики перемещается в воздух [2]. Заметим, что порог ВКР в объеме данных жидкостей отличался на порядок из-за физических свойств жидкостей: жидкий азот – простая неполярная жидкость с узкой линией в спектре комбинационного рассеяния и высоким значением g [4, 7]; вода, напротив – сильно ассоциированная полярная жидкость с аномально широкой полосой OH в спектре комбинационного рассеяния. При этом N-образный вид зависимости порога был симбатным. Обнаруженная особенность указывала на новую закономерность развития ВКР в конденсированных средах, в которой поверхность является ключевым фактором, по существу – зеркалом резонатора ВКР-лазера. Осталось неясным, проявляется ли эта особенность при вынужденном рассянии Мандельштама-Бриллюэна (ВРМБ). Соотношения (1) и (2), описывающие процесс ВКР, для ВРМБ имеют подобный вид [3–5], и это дает основание полагать, что развитие ВРМБ при перемещении каустики пучка накачки через поверхность воды не должно быть отражением тривиального сокращения длины усиления (2).

Целью настоящей работы являлось экспериментальное изучение физики этого явления.

Схема ВРМБ-спектрометра приведена на рис. 1. В качестве накачки использовали излучение второй гармоники импульсного одночастотного лазера на YAG : Nd^{3+} ($\lambda = 0.532$ мкм, TEM_{00}, $\tau \sim 10$ нс, $\delta\nu \sim 0.005\,\text{см}^{-1}$, $E \sim 3$ мДж/имп, нестабильность по энергии импульса – 5–7 %, частота повторения импульсов 1 Гц). Поворотным зеркалом пучок накачки направляли вертикально вниз по нормали на свободную поверхность бидистиллированной воды в стеклянной кювете. Высота столба воды составляла ~ 30 мм. Кювета была наклонена относительно вертикали на 3–5°, чтобы исключить влияние блика от дна кюветы. Пучок накачки фокусировали внутрь объема воды с помощью линзы с фокусным расстоянием $f = 30$ мм, которая обеспечивала диаметр пучка $w_0 \sim 4$ мкм в перетяжке каустики (длина каустики $l \sim 200$ мкм). Кювету перемещали вертикально

[1]e-mail: pershin@kapella.gpi.ru

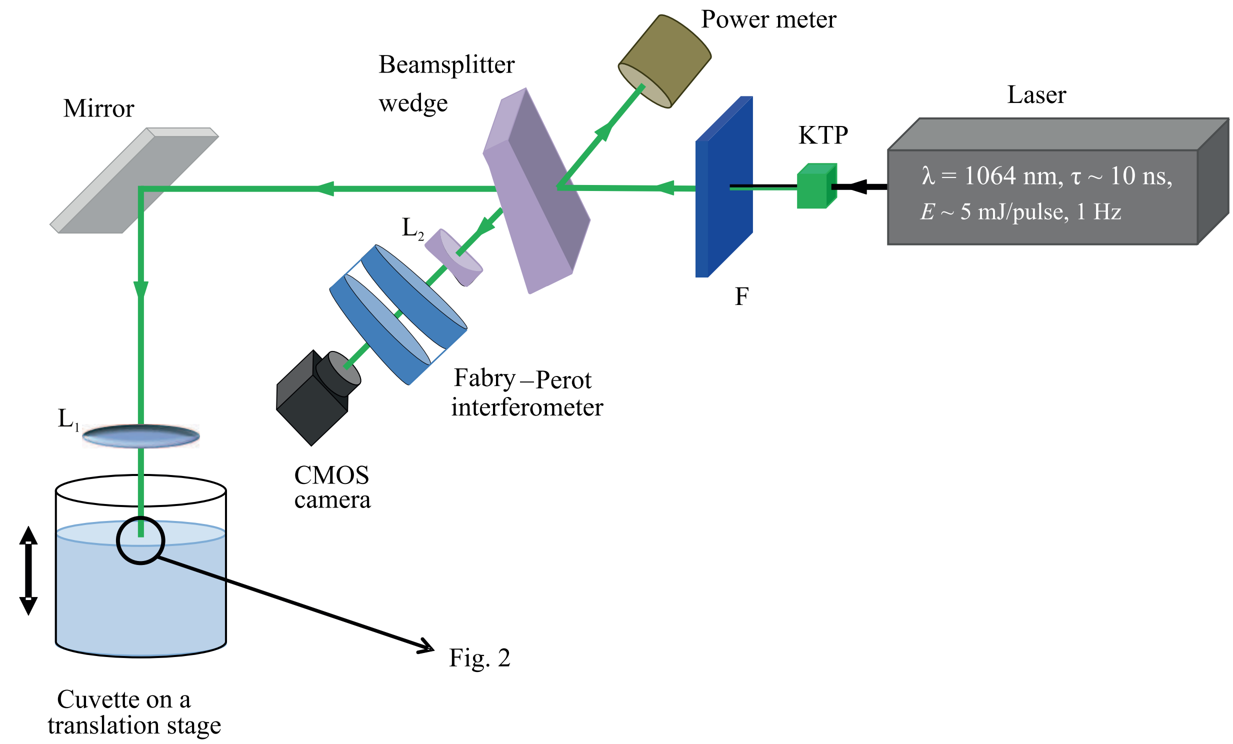

Рис. 1. (Цветной онлайн) Принципиальная схема эксперимента. Здесь: Laser – одночастотный импульсный YAG : Nd^{3+} лазер; KTP – кристалл для удвоения частоты лазерного излучения; F – светофильтр СЗС-22; Power meter – измеритель энергии лазера; Beamsplitter wedge – клиновидная делительная пластина; Fabry–Perot interferometer – интерферометр Фабри–Перо; CMOS camera – КМОП-фотокамера; Mirror – поворотное зеркало; L_1 – фокусирующая линза ($f = 30$ мм); L_2 – рассеивающая линза; Cuvette on a translation stage – кювета с водой на подвижном столике

с помощью микрометрического винта с шагом 5 мкм для изучения зависимости параметров ВРМБ от глубины погружения каустики пучка относительно поверхности.

Спектры ВРМБ анализировали с помощью интерферометров Фабри–Перо с областью дисперсии $\Delta\nu_1 = 0.625\,\text{см}^{-1}$ и $\Delta\nu_2 = 2.5\,\text{см}^{-1}$, регистрировали с помощью КМОП-камеры (Basler, acA1920-40um) за одну вспышку лазера и затем анализировали на компьютере в программной среде LabVIEW. Энергию накачки измеряли с помощью калориметра ИМО-2Н. Все измерения проводили при комнатной температуре.

На рисунке 2 схематично показан разрез каустики пучка накачки в кювете. Отмечены три характерных положения относительно поверхности воды: (a) – в объеме, (b) – граница каустики совпадает с поверхностью, (c) – часть верхней половины каустики в воздухе над поверхностью, при которых наблюдались ожидаемые и парадоксальные вариации параметров процесса ВРМБ.

При фокусировке пучка накачки внутрь объема воды (рис. 2a) порог ВРМБ был достигнут при энергии импульса ~ 0.38 мДж. Порог определяли визуально по появлению кольца стоксовой компоненты на спектрограмме. Образец спектрограммы ВРМБ и денситограммы вдоль сечения по радиусу колец представлены на рис. 3a и b, соответственно.

В этом опыте область дисперсии интерферометра Фабри–Перо была равна $\Delta\nu_1 = 0.625\,\text{см}^{-1}$, величина стоксова сдвига ВРМБ $\Delta\nu_s \sim 0.246\,\text{см}^{-1}$, что соответствует характеристической частоте (~ 7.4 ГГц) акустического фонона в воде [3–5, 8]. Отметим, что порог ВРМБ (~ 0.38 мДж) остается постоянным (с учетом флуктуации энергии накачки) при перемещении каустики пучка накачки в объеме воды. Более того, отсутствие высших компонент в спектре имеет место при почти десятикратном превышении энергии импульса накачки над порогом ВРМБ вплоть до оптического пробоя в воде при энергии импульса ~ 3 мДж. Отметим, что мощность этого импульса (0.3 МВт) существенно меньше критической мощности самофокусировки $P_{cr} = 1.87$ МВт для пучка второй гармоники лазера ($\lambda = 0.532$ мкм) в воде [8].

Далее, порог ВРМБ начинает возрастать при перемещении каустики пучка через поверхность воды

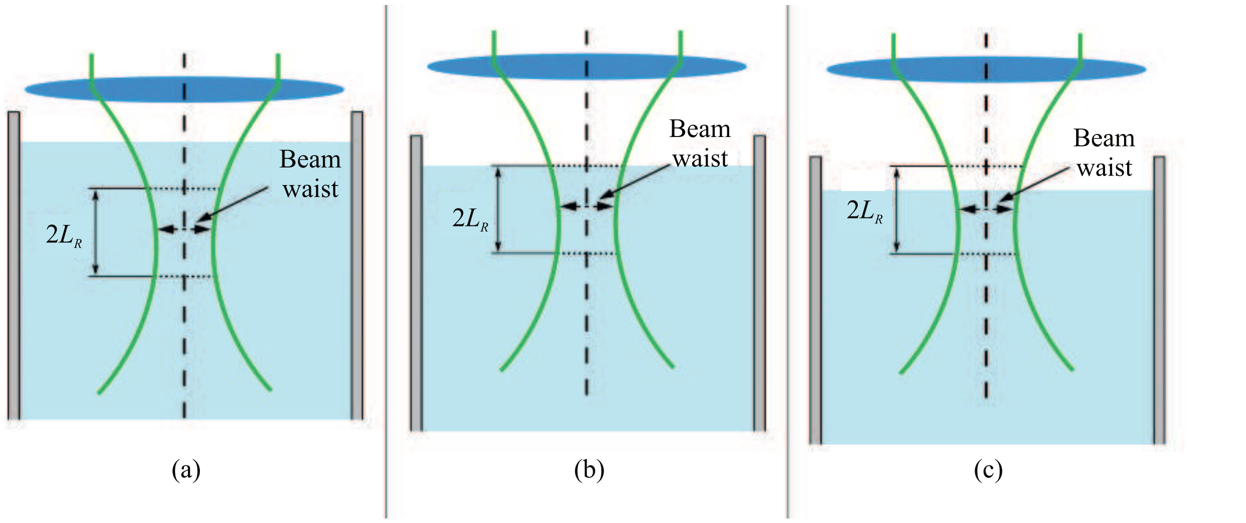

Рис. 2. (Цветной онлайн) Иллюстрация (масштаб не соблюден) положения каустики пучка накачки (длиной $2L_R$ (2)) относительно поверхности воды: (a) – в объеме, (b) – граница каустики у поверхности, (c) – часть верхней половины каустики в воздухе над поверхностью

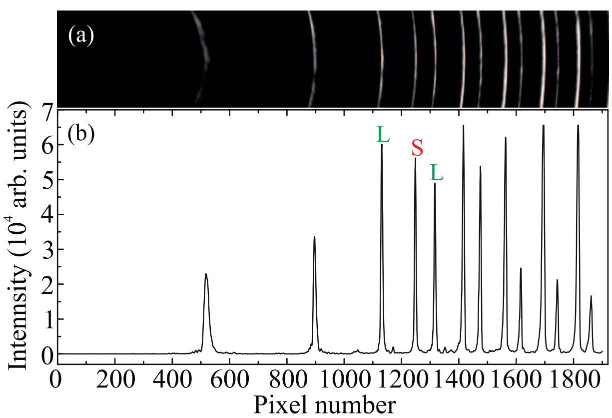

Рис. 3. (Цветной онлайн) Интерферограмма (a) и денситограмма (b) спектральных линий ВРМБ назад из объема воды при расположении перетяжки пучка на глубине ~ 10 мм. Здесь и далее L – линия накачки, s – линия стоксовой компоненты ВРМБ

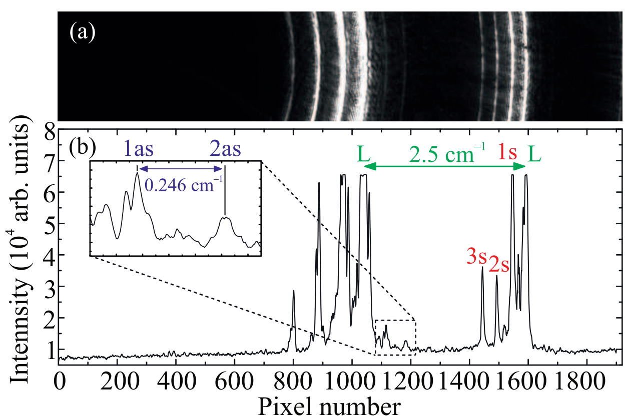

Рис. 4. (Цветной онлайн) Интерферограмма (a) ВРМБ назад при энергии накачки ~ 0.5 мДж; (b) – денситограмма спектральных линий по сечению интерферограммы (a) вдоль радиуса колец. Область дисперсии интерферометра Фабри–Перо $\Delta\nu_2 = 2.5\,\text{см}^{-1}$; величина сдвига между соседними линиями $\Delta\nu_s \sim 0.246\,\text{см}^{-1}$. Здесь 1s, 2s, 3s и 1as, 2as – стоксовы и антистоксовы линии ВРМБ с 3-кратным увеличением на вставке, соответственно.

(рис. 2b) подобно повышению порога ВКР в начале N-образной зависимости [1, 2]. Так, порог ВРМБ (I_{thr}) увеличился до ~ 0.5 мДж, когда около $\sim 30\,\%$ каустики пучка находилось в воздухе. Это ожидаемое тривиальное повышение порога согласуется с необходимостью сохранения постоянной величины произведения ($I_{\text{thr}} \cdot l$) в инкременте усиления (1) при сокращении длины усиления l (2). При этом, однако, неожиданно и нетривиально изменился спектр ВРМБ. Так, несмотря на сохранение величины инкремента $G \approx 25$ (1), спектр ВРМБ 5-кратно размножился до гребенки компонент (см. спектр и денситограмму на рис. 4a и b, соответственно).

Как видно из рис. 4, при фокусировке пучка накачки в приповерхностный слой воды спектр ВРМБ обогащается как высшими стоксовыми компонентами (второй и третьей), так и двумя антистоксовыми компонентами (см. вставку на рис. 4), которых не было при фокусировке в объем воды. Обнаруженное обогащение спектра особенно значимо по сравнению с генерацией только одной стоксовой компоненты ВРМБ в объеме воды (рис. 3) при почти 10-кратном превышении энергии импульса накачки над порогом ВРМБ (также инкремента (1) [1–5]). Это превышение, возможно, было бы бóльшим, но было ограничено оптическим пробоем при ~ 3 мДж. Отсюда следует, что порог (~ 0.5 мДж) генерации антистоксовых компонент ВРМБ при фокусировке в приповерхностный слой более, чем в 6 раз меньше энергии импульса, при которой высшие компоненты не удалось (как и ранее [9]) возбудить в объеме воды.

Последующее незначительное увеличение энергии импульса накачки до ~ 0.7 мДж подчеркивает обнаруженную особенность обогащения спектра ВРМБ заметным ростом интенсивностей линий высших компонент. Существенно, что интенсивность антистоксовых компонент возрастает нелинейно относительно стоксовых компонент, как видно из рис. 4 и 5. Фактически, мы впервые получили частотную "гребенку" Бриллюэна в воде как источник эквидистантных линий с неограниченным числом повторений импульсов накачки без опасности повреждения образца, поскольку жидкость восстанавливается даже после оптического пробоя.

Известно, что ранее [5, 10] генерацию частотной "гребенки" при ВРМБ получали в высокодобротном внешнем или связанном резонаторе, когда рубиновый лазер накачки служил усилителем компонент ВРМБ [11, 12]. Более того, в пионерских работах В. С. Старунова и И. Л. Фабелинского [12, 13] было обосновано, что антистоксова компонента ВРМБ является характеристическим признаком наличия резонатора. В резонаторе реализуется четырехволновое взаимодействие, поскольку первая стоксова компонента, отраженная зеркалом рубинового лазера, распространяется в кювете попутно накачке и играет ключевую роль: эта компонента создает встречную волну гиперзвука, на которой накачка рассеивается назад как антистоксова компонента с увеличением частоты на величину частоты акустического фонона [12, 13].

В нашем случае использование излучения второй гармоники ($\lambda = 532$ нм) в качестве накачки исключает влияние резонатора неодимового лазера на процесс ВРМБ. Тогда мы предположили, что поверхность воды включается как зеркало внешнего резонатора, где вторым зеркалом является распределенная обратная связь на решетке обращения волнового фронта [3–5]. Экспериментальную проверку сделанного допущения, дополнительно к факту генерации антистоксовых компонент (рис. 4 и 5), проводили выключением фактора "поверхность–зеркало" – отклонением пучка от нормали к поверхности посредством перемещения фокусирующей линзы поперек пучка накачки на 5–10 мкм в любую сторону. Отклонение пучка от нормали к поверхности сопровождалось срывом генерации высших стоксовых и антистоксовых компонент ВРМБ. Косвенным аргументом в поддержку этого предположения является начало 30-кратного снижения порога ВКР в воде вследствие включения поверхности как зеркала внешнего резонатора ВКР-лазера до совмещения плоскости перетяжки каустики пучка с поверхностью воды [1, 2]. При этом в обоих процессах (ВКР и ВРМБ) добротность такого резонатора была невысокой (2 % френелевского отражения зеркала-поверхности) по сравнению с высокодобротным внешним резонатором [5, 10, 11, 14, 15]. Выявленная совокупность признаков однозначно указывает на включение внешнего резонатора в процесс снижения порога генерации частотной "гребенки" ВРМБ с антистоксовыми компонентами при пересечении поверхности воды верхней частью каустики пучка.

Оставалось неясным, каким образом сферический фронт пучка накачки (рис. 5), а также и обращенных волн частотной гребенки ВРМБ [5],

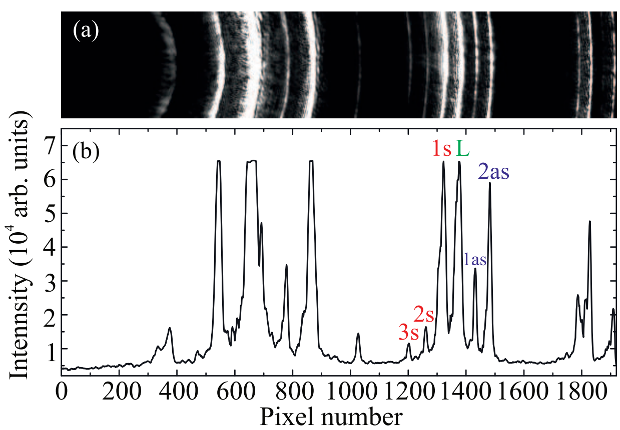

Рис. 5. (Цветной онлайн) Интерферограмма (a) ВРМБ и денситограмма (b) спектральных линий при энергии накачки ~ 0.7 мДж. Область дисперсии интерферометра Фабри–Перо $\Delta\nu_2 = 2.5\,\text{см}^{-1}$; величина сдвига между соседними линиями $\Delta\nu \sim 0.246\,\text{см}^{-1}$

уменьшает кривизну и приближается к плоскому фронту, когда перетяжка каустики еще находится под поверхностью (рис. 2c). Подобная ситуация наблюдалась нами в случае ВКР [1, 2]. Физически ясно, что геометрический фактор [6] уменьшения кривизны фронта пучка, отраженного поверхностью при перемещении каустики, усиливается керровской нелинейной линзой, распределенной в воде вдоль каустики. Известно [4, 5, 8], что керровская нелинейная добавка $n_2 \cdot (I_p + I_{sbsc})$ к показателю преломления n_0

воды аддитивно зависит от интенсивности накачки (I_p) и интенсивности (I_{sbsc}) излучения вынужденного рассеяния назад (ВКР, ВРМБ, вынужденное рассеяние Рэлея, Ми [4, 5, 8]) и модулирует показатель преломления (n) в поперечном сечении пучка вдоль каустики (3):

$$n(z) = n_0 + n_2 \cdot (I_p + I_{sbsc}). \quad (3)$$

Здесь мы не рассматриваем влияние огибающей импульса накачки, принимая во внимание большую длительность (~ 10 нс) по сравнению с длиной каустики-резонатора (~ 200 мкм) в квазистационарном приближении. Заметим также, что индуцированная линза корректирует расходимость пучка в обоих направлениях: из воды к поверхности и после отражения от поверхности в сторону перетяжки. При этом диаметр перетяжки в рассматриваемом резонаторе выполняет роль пространственного фильтра в виде мягкой аподизирующей диафрагмы. Отсюда следует, что многопараметрическая модуляция (3) формирует линзу переменной оптической силы вдоль каустики пучка, оптимальное значение которой подстраивается интенсивностью пучка к положению каустики. Более того, при заданном положении каустики (рис. 2c) незначительное увеличение накачки будет повышать эффективность ВРМБ (1) и значение интенсивности (I_{sbsc}) в (3), а также оптическую силу нелинейной керровской линзы из-за компрессии [4, 5] фронта импульса компонент ВРМБ (см. рис. 5 в [5]) вблизи поверхности, распространяющихся назад.

В нашем эксперименте этот сценарий особенно ярко и отчетливо подчеркивается скачком интенсивности (на порядок) антистоксовых компонент ВРМБ в воде при увеличении энергии импульса накачки на 40 % (с 0.5 до 0.7 мДж, см. рис. 4 и 5). Заметим также, что увеличение интенсивности накачки обеспечивает нелинейный рост добротности резонатора вследствие экспоненциального повышения коэффициента бриллюэновского отражения на решетке обращения волнового фронта до ~ 100 % при 10-кратном превышении порога ВРМБ ([4], стр. 444). В нашем случае ВРМБ в объеме воды такой коэффициент достигался при предпробойной энергии импульса накачки (~ 3 мДж). Однако, внешний резонатор не включался из-за низкого значения распределенной обратной связи (РОС) [4, 16] (другое зеркало резонатора) с коэффициентом отражения менее 2 %, когда наблюдалась генерация антистоксовых компонент. Отсюда следует оценка сверху коэффициента отражения РОС в воде, значение которого $R \ll 0.02$. Интересно отметить, что при повышении накачки до 0.7 мДж более заметной стала модуляция низкочастотного крыла линий в спектре ВРМБ (см. рис. 5) с частотой ~ 1 ГГц неясной пока природы.

Таким образом, впервые, насколько нам известно, обнаружено аномальное снижение порога (~ 0.5 мДж) генерации высших компонент ВРМБ в воде одновременно с сокращением длины каустики (длины усиления (1)) фокусированного пучка накачки при ее частичном перемещении через поверхностность по нормали к ней. Напротив, при отклонении пучка от нормали или при его фокусировке в объем воды, порог генерации высших компонент ВРМБ достигнут не был, вплоть до почти 10-кратного превышения порога ВРМБ (~ 0.38 мДж) до пробоя при энергии ~ 3 мДж. Полученные данные дают основание предположить, что поверхность включается как зеркало внешнего резонатора ВРМБ-лазера [15]. При этом керровская линза в каустике пучка, которая при оптимальном сочетании ряда параметров (сумме интенсивностей накачки и компонент ВРМБ, длины части каустики под поверхностью, длительности импульса накачки и степени компрессии фронта импульса компонент ВРМБ) уменьшает кривизну волнового фронта обращенных компонент ВРМБ и включает индуцированный внешний резонатор и, соответственно, генератор гребенки эквидистантных линий ВРМБ [5, 10]. Генерация антистоксовых компонент ВРМБ-лазера (рис. 4 и 5) однозначно указывает на механизм четырехволнового смешения на встречных пучках [11] внутри резонатора с 2 % отражением френелевского зеркала высокого оптического качества с предельно малой молекулярной шероховатостью плоской поверхности воды и другим зеркалом с обращением волнового фронта. При этом физика обращения волнового фронта [3–5, 8] указывает на нелинейный, экспоненциальный рост добротности резонатора из-за роста коэффициента отражения, еще одного параметра, управляющего обнаруженным явлением. Отсюда следует, что совокупность данных дает оценку сверху коэффициента отражения (R) распределенной обратной связи (РОС) в воде $R \ll 0.02$.

Прикладной аспект обнаруженного явления снижения порога генерации "гребенки" эквидистантных линий ВРМБ в классической схеме более очевиден. Фактически, нам удалось запустить новый ВРМБ-лазер с микрорезонатором (длина < 200 мкм), но без дополнительных элементов, с порогом возбуждения, существенно меньшим порога оптического пробоя, и без необратимого разрушения конденсированной нелинейной среды. Более того, в случае жидкости допустимо использование интенсивности накачки с предпробойными значениями, поскольку жидкость способна к восстановлению оптической однородности. Несомненно, что температурная перестройка частоты бриллюэновского сдвига [17] обеспечивает генерацию фазово-сопряженных би-фотонов [18] в бриллюэновской гребенке эквидистантных линий и допускает бигармоническую накачку ГГц-резонансов в оптически прозрачных средах, например, вирусов в водных растворах и суспензиях [19]. Особый интерес вызывает лидарный мониторинг деформации коры Земли в окрестностях вулкана [20] при бигармоническом зондировании вращательных переходов вулканических газов в видимом диапазоне, например, метана.

Работа была поддержана грантом Российского научного фонда # 19-19-00712 в части создания бигармонического лазера для лидарного мониторинга деформации коры Земли по вариации магматических газов, а также грантом Министерства науки и высшего образования Российской Федерации для крупных научных проектов в приоритетных областях научного и технологического развития (идентификатор субсидии 075-15-2020-774) в части бигармонической накачки ГГц резонансов для изучения дистанционного воздействия на вирус табачной мозаики.

1. С. М. Першин, М. Я. Гришин, В. Н. Леднев, П. А. Чижов, Письма в ЖЭТФ **109**(7), 447 (2019).
2. S. Pershin, M. Grishin, V. Lednev, P. Chizhov, and V. Orlovich, Opt. Lett. **44**(20), 5045 (2019).
3. Б. Я. Зельдович, Н. Ф. Пилипецкий, В. В. Шкунов, *Обращение волнового фронта*, Наука, М. (1985).
4. R. W. Boyd, *Nonlinear Optics*, 3rd edition, Academic Press, N.Y. (2008).
5. Zh. Bai, H. Yuan, Zh. Liu, P. Xu, Q. Gao, R. J. Williams, O. Kitzler, R. P. Mildren, Yu. Wang, and Zh. Lu, Opt. Mater. **75**, 626 (2018).
6. A. E. Siegman, *Lasers*, University Science Books, Mill Valley, California (1986).
7. С. А. Ахманов, Б. В. Жданов, А. И. Ковригин, С. М. Першин, Письма ЖЭТФ **15**, 266 (1972).
8. B. Hafizi, J. P. Palastro, J. R. Penano, T. G. Jones, L. A. Jonson, M. H. Helle, D. Kaganovich, Y. H. Chen, and A. B. Stamm, JOSA **33**(10), 2062 (2016).
9. O. Rahn, M. Maier, and W. Kaiser, Opt. Commun. **1**, 109 (1969).
10. P. Del'Haye, A. Schliesser, O. Arcizet, T. Wilken, R. Holzwarth, and T. J. Kippenberg, Nature **450**, 1214 (2007).
11. Ю. И. Кызыласов, В. С. Старунов, Письма в ЖЭТФ **7**, 160 (1968).
12. В. С. Старунов, ДАН СССР **179**(1), 65 (1968).
13. И. Г. Зайцев, Ю. И. Кызыласов, В. С. Старунов, И. Л. Фабелинский, Письма в ЖЭТФ **6**, 695 (1967).
14. М. А. Давыдов, Г. А. Ляхов, Е. Р. Сатыев, К. Ф. Шипилов, Известия АН СССР, серия физическая **53**(8), 1576 (1989).
15. В. Н. Луговой, В. Н. Стрельцов, ЖЭТФ **62**(4), 1312 (1972).
16. S. A. Akhmanov and G. A. Lyakhov, Sov. Phys. JETP **39**(1), 43 (1974).
17. I. Chaban, H. D. Shin, C. Klieber, R. Busselez, V. Gusev, K. A. Nelson, and T. Pezeril, Rev. Sci. Instrum. **88**, 074904 (2017).
18. V. S. Gorelik, A. V. Skrabatun, V. A. Orlovich, Yu. P. Voinov, A. I. Vodchits, and A. Y. Pyatyshev, Quantum Electron. **49**, 231 (2019).
19. M. V. Arkhipenko, A. F. Bunkin, M. A. Davydov, O. V. Karpova, V. B. Oshurko, S. M. Pershin, V. N. Strel'tsov, and A. N. Fedorov, JETP Lett. **109**(9), 578 (2019).
20. S. M. Pershin, M. Ya. Grishin, V. A. Zavozin, V. N. Lednev, V. A. Lukyanchenko, and V. S. Makarov, Laser Phys. Lett. **17**(2), 026003 (2020).