

УДК 535.374

Орлович В. А.<sup>1</sup>, Першин С. М.<sup>2</sup>, Водчиц А. И.<sup>1</sup>, Ходасевич И. А.<sup>1</sup>, Гришин М. Я.<sup>2</sup>

## ОСОБЕННОСТИ ПОПУТНОГО И ОБРАТНОГО ВЫНУЖДЕННОГО КОМБИНАЦИОННОГО РАССЕЙЯНИЯ В ВОДЕ ПРИ ВОЗБУЖДЕНИИ ИЗЛУЧЕНИЕМ ПИКОСЕКУНДНОГО ЛАЗЕРА

<sup>1</sup> Институт физики им. Б.И. Степанова НАН Беларуси, Минск, Беларусь

<sup>2</sup> Институт общей физики РАН, Москва, Россия

Экспериментально исследованы энергетические, спектральные и пространственные характеристики попутного и обратного вынужденного комбинационного рассеяния в воде при возбуждении излучением второй гармоники пикосекундного Nd:АИГ лазера.

Вода является важным компонентом биосферы. Молекулярная структура воды определяется строением ее молекул и формированием из них дальнего порядка, приводящего к образованию пространственно организованных структур. Важными методами анализа структуры воды являются спонтанное комбинационное рассеяние (СКР) и, в последнее время, вынужденное комбинационное рассеяние (ВКР) [1]. В экспериментах возможно наблюдение вынужденного рассеяния в попутном с распространением накачки направлении (попутное ВКР, ПВКР) и в обратном направлении (ОВКР). В большинстве работ, посвященных исследованию воды, использовалось ПВКР. Необходимо отметить, что зачастую ОВКР имеет ряд преимуществ по сравнению с ПВКР. В частности, при использовании ОВКР можно достигнуть больших эффективностей ВКР–преобразования, получить значительное сокращение длительности импульсов, наблюдать эффект обращения волнового фронта. Следует также отметить, что полоса СКР колебания  $A_1$ ,  $\nu=3450 \text{ см}^{-1}$  (валентное полносимметричное колебание), имеет аномально большую ширину, что позволяет надеяться использовать воду в качестве активной среды лазеров сверхкоротких импульсов. В последнее время актуальными стали исследования влияния границ раздела фаз (например, жидкость–плазма, жидкость–газ) на нелинейно-оптические эффекты, в том числе и на ВКР. В настоящей работе мы исследовали процессы ПВКР и ОВКР в воде вблизи границы раздела вода–воздух.

В экспериментах использовалось излучение второй гармоники пикосекундного ( $\approx 60 \text{ пс}$ ) Nd:АИГ лазера. Диаметр пучка накачки составлял  $\approx 8 \text{ мм}$ , а его расходимость не превышала  $0,6 \text{ мрад}$ . Пучок накачки фокусировался через или на открытую поверхность воды, находящейся в вертикально установленной кювете длиной  $75 \text{ мм}$ , линзой с фокусным расстоянием  $83 \text{ мм}$ . В области фокальной перетяжки, которая в приближении гауссова пучка имела диаметр  $\approx 40 \text{ мкм}$  и длину  $\approx 2 \text{ мм}$ , интенсивность лазерного излучения могла превышать несколько  $\text{ТВт/см}^2$ . Однако вплоть до значений  $\approx 5 \text{ ТВт/см}^2$  оптический пробой в воде не наблюдался. Кювета, заполненная дистиллированной водой, могла перемещаться микроподвижкой с точностью  $10 \text{ мкм}$  относительно фокусирующей линзы. В экспериментах измерялись энергетические, спектральные и пространственные характеристики всех потоков излучения.

На рисунке 1а приведены зависимости порога ПВКР и ОВКР от расстояния  $L$  фокальной плоскости каустики пучка до поверхности воды. Отрицательные значения  $L$  соответствуют нахождению плоскости каустики пучка внутри слоя воды и отсчитываются от ее поверхности.

Отметим, что для ПВКР эта зависимость имеет N-образный вид с минимальным значением порога возбуждения при совпадении положения фокальной плоскости с поверхностью воды. Ранее мы получали подобную зависимость при использовании для возбуждения ВКР в воде и тяжелой воде лазерных импульсов с длительностями  $\approx 15 \text{ пс}$  [2]. Причиной возникновения такой N-образной зависимости является влияние на порог ПВКР несимметричного резонатора, в качестве одного из зеркал которого выступает распределенная обратная связь (РОС), возникающая вследствие рассеяния излучения на оптических неоднородностях воды

[3, 4], а второго – поверхность воды с коэффициентом френелевского отражения  $\approx 2\%$ , который существенно выше, чем коэффициент световозвращения при РОС.

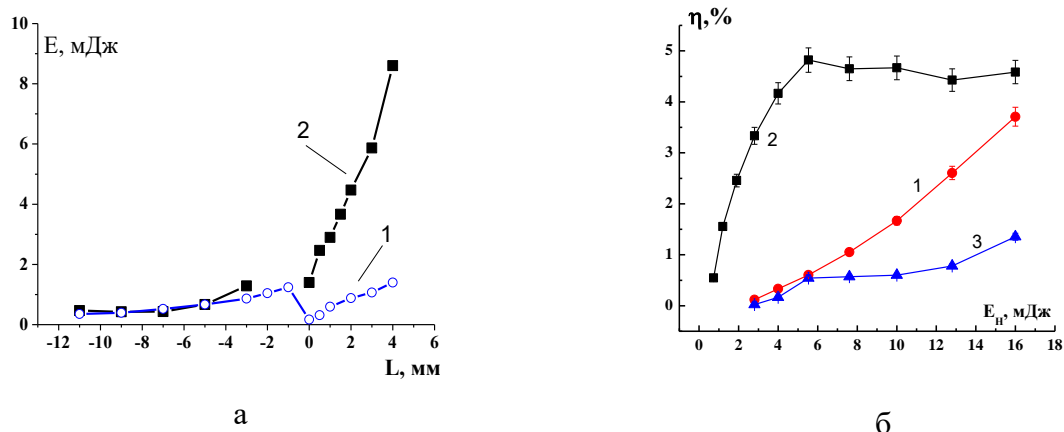


Рисунок 1 – Зависимости порога ПВКР (1) и ОВКР (2) от расстояния фокальной плоскости каустики пучка до поверхности воды (а) и эффективности ПВКР (1) и ОВКР (2) от энергии импульсов накачки (б), кривая 3 – эффективность ПВКР на границе раздела вода-воздух

Для ОВКР порог возбуждения при  $L$ , изменяющемся от  $-5$  до  $-11$  мм примерно соответствует порогу ПВКР, что объясняется динамикой взаимодействия обратно рассеянного излучения с набегающей неистощенной накачкой. В области  $L$  от  $-3$  до  $-1$  мм происходит срыв генерации ОВКР, при этом наблюдается разбрызгивание воды, что обусловлено доставкой энергии лазерного импульса высокой интенсивности в малый объем воды, ограниченный сверху ее поверхностью. Нарушение оптической однородности воды искажает пространственный профиль пучка накачки и блокирует развитие ОВКР вследствие малой толщины слоя воды ( $\approx 2,5$  мм), в котором развивается ОВКР. Затем, когда фокальная плоскость каустики пучка накачки и область максимальной ее интенсивности перемещаются на поверхность воды, прекращаются процессы возмущения воды и ОВКР появляется вновь. Как и для ПВКР, поддерживает развитие ОВКР в этом диапазоне  $L$  описанный выше несимметричный резонатор. На рисунке 1б приведены зависимости энергетической эффективности  $\eta$  ВКР-преобразования лазерного излучения в стоксово от энергии импульсов накачки  $E_H$ . Кривые 1 и 2 относятся к ОВКР и ПВКР при значении  $L = -12$  мм. Максимальное значение  $\eta \approx 5\%$  для ОВКР достигается при  $E_H \approx 5$  мДж. Отметим, что на рисунке 1б приведены технические значения эффективности ВКР-преобразования. Физические значения  $\eta$  (с учетом потерь на оптических элементах) выше в  $\approx 2,5$  раза.

Измерены поперечное распределение и спектры ПВКР вблизи порога возбуждения ПВКР в условиях, когда перетяжка лазерного пучка была расположена на поверхности воды. Возбуждалось излучение первой стоксовой и первой антистоксовой компонент. Структура обоих пучков состояла из осевой и кольцевой частей и включала в себя излучение с частотными сдвигами  $\approx 3000$  см $^{-1}$  и  $\approx 3430$  см $^{-1}$ . На рисунке 2 в качестве примера приведены нормированные спектры осевой и кольцевой частей пучка первой стоксовой компоненты. Видно, что излучение с частотным сдвигом  $3430$  см $^{-1}$  сконцентрировано преимущественно в осевой части пучка, а со сдвигом  $3000$  см $^{-1}$  в кольцевой. Аналогичная картина наблюдается и для антистоксовой компоненты с той только разницей, что генерация осевой части пучка была неустойчивой. Оценки, исходя из диаметров кольцевых структур излучения ПВКР, показали, что причиной их возникновения являются четырехфотонные параметрические процессы типа  $\vec{k}_H + \vec{k}_H = \vec{k}_S + \vec{k}_{as}$ , где  $\vec{k}_i$  – волновые вектора излучений накачки, стоксовой и антистоксовой компоненты. Следует отметить, что в спектрах спонтанного КР полосы со сдвигом  $\approx 3000$  см $^{-1}$  обусловлены ОН валентными колебаниями кластеров, содержащих 7-10 молекул H $_2$ O [5]. Как следует из [6], концентрация таких кластеров является наибольшей в слое 100 –

200 мкм вблизи поверхности воды. В наших экспериментах были реализованы условия, которые позволили впервые обнаружить проявление таких колебаний в спектрах ВКР.

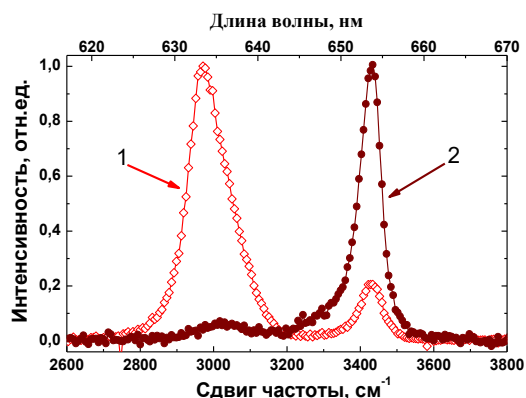


Рисунок 2 – Спектр стоксова излучения ПВКР в области 2800 – 3600 см<sup>-1</sup>. 1 – спектр кольцевой структуры, 2 – спектр осевого пучка.

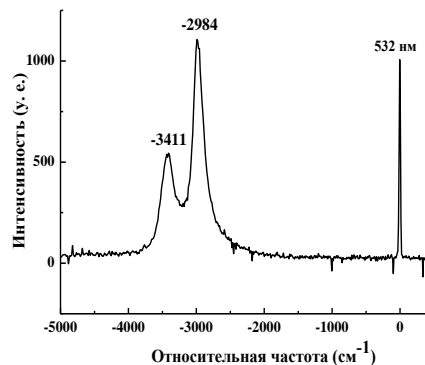


Рисунок 3 – Спектр антистоксовой компоненты ОВКР.

В спектре ОВКР также обнаружена генерация первой антистоксовой компоненты (рисунок 3). Наибольшей интенсивности она достигает при фокусировке возбуждающего излучения на поверхность раздела вода-воздух, имеет в спектре две полосы со сдвигами  $\approx 3411$  и  $2984$  см<sup>-1</sup> и генерируется в виде осевого пучка. Возможными причинами ее возникновения могут быть четырехфотонные параметрические процессы типа описанных выше, с учетом наличия в воде распространяющихся в обратном направлении потоков лазерного излучения, образующихся вследствие обратного рассеяния на оптических неоднородностях жидкости и бобстонах (пузырьки газа нанометрового размера), а также ОВКР на длине волны стоксова излучения (рисунок 2).

Работа выполнена при финансовой поддержке БРФФИ (проект Ф23-РНФ-040) и РНФ (грант №23-42-10019).

#### Список литературы

1. Pershin S.M., Grishin M.Ya., Lednev V.N., Chizhov P.A., Orlovich V.A. Asymmetrical-cavity picosecond Raman laser at the water–air interface // *Opt. Lett.* -2019 - Vol.44, No.20. -P. 5045-5048.
2. Pershin S.M., Vodchits A.I., Khodasevich I.A., Grishin M.Ya., Lednev V.N., Orlovich V.A., Chizhov P.A. Picosecond stimulated Raman scattering at 3000 and 3430 cm<sup>-1</sup> OH vibrations without optical breakdown // *Opt. Lett.* – 2020. - Vol.45, No.20. – P.5624-5627.
3. Ахманов С.А., Ляхов Т.А. Эффекты неоднородности оптической накачки в ВКР лазерах и в вынужденном рассеянии. Самовозбуждение за счет распределенной обратной связи // *ЖЭТФ* – 1974. - Т.66, №1. – С. 96 -108.
4. Апанасевич П.А., Афанасьев А.А., Грабчиков А.С., Корольков М.В., Орлович В.А. Зависимость пороговых и спектральных характеристик ВКР-лазера от периода пространственно-неоднородной накачки // *ЖПС* – 1982. – Т.36, №3. – С. 396-402.
5. Buck U., Husken F. Infrared Spectroscopy of Size-Selected Water and Methanol Clusters // *Chem Rev.* – 2000. - Vol.100, No.11. – P.3863 – 3890.
6. Pollack G.H. The Fourth Phase of Water: Beyond Solid, Liquids and Vapor. - Ebner and Sons Publisher, 2013. - 357 p.