## Эффективность прямого и обратного ВКР в тяжёлой воде в вертикальной схеме возбуждения

# А. И. Водчиц<sup>1)</sup>, В. А. Орлович<sup>1)</sup>, И. А. Ходасевич<sup>1)</sup>, К. Д. Траскевич<sup>1)</sup>, С. М. Першин<sup>2)</sup>, М. Я. Гришин<sup>2)</sup>

1) Институт физики им. Б. И. Степанова НАН Беларуси, Минск, Беларусь, e-mail: <u>a.vodchits@dragon.bas-net.by</u>
2) Институт общей физики им. А. М. Прохорова РАН, Москва, Россия, e-mail: <u>pershin@kapella.gpi.ru</u>

Исследовано вынужденное комбинационное рассеяние (ВКР) пикосекундных импульсов в тяжёлой воде в вертикальной схеме возбуждения. Измерены зависимости энергии импульсов первой стоксовой компоненты и эффективности ВКР от энергии импульсов накачки на длине волны 532 нм и глубины погружения фокальной перетяжки пучка в толщу воды. Обнаружена существенная зависимость эффективности ВКР-преобразования от глубины погружения.

*Ключевые слова:* вынужденное комбинационное рассеяние; пикосекундный лазерный импульс; тяжёлая вода; вертикальная схема возбуждения; эффективность рассеяния; глубина погружения фокальной перетяжки.

### Efficiency of the forward and backward SRS in heavy water in the vertical scheme of excitation

A. I. Vodchits<sup>1)</sup>, V. A. Orlovich<sup>1)</sup>, I. A. Khodasevich<sup>1)</sup>, K. D. Traskevich<sup>1)</sup>, S. M. Pershin<sup>2)</sup>, M. Ya. Grishin<sup>2)</sup>

<sup>1)</sup>B. I. Stepanov Institute of Physics of the National Academy of Sciences of Belarus, Minsk, Belarus,
e-mail: <u>a.vodchits@dragon.bas-net.by</u>

<sup>2)</sup>A. M. Prokhorov General Physics Institute of RAS, Moscow, Russia,
e-mail: <u>pershin@kapella.gpi.ru</u>

Stimulated Raman scattering (SRS) of picosecond pulses in heavy water is studied in the vertical scheme of excitation. The dependences of the first Stokes pulse energy and SRS efficiency on the pumping pulse energy at 532 nm and the immersion depth of the beam focal waist in the water volume have been measured. The substantial dependence of the SRS efficiency on the immersion depth is observed.

*Keywords:* stimulated Raman scattering; picosecond laser pulse; heavy water; the vertical scheme of excitation; scattering efficiency; the depth of immersion of the focal waist.

#### Введение

Вынужденное комбинационное рассеяние (ВКР) света является нелинейнооптическим процессом, который используется для преобразования частоты возбуждающего лазерного излучения в другие спектральные диапазоны и широко применяется в нелинейной оптике и лазерной спектроскопии [1]. В качестве комбинационно-активных сред для ВКР широко используются сжатые газы, нелинейные кристаллы и другие конденсированные среды, в том числе жидкости. Это позволяет создавать лазерные источники на новых длинах волн в широкой спектральной области (от ультрафиолетового диапазона спектра до ближнего инфракрасного).

Систематические исследования процесса ВКР в воде начались в конце 90-х годов прошлого столетия [2, 3]. Интерес к изучению нелинейно-оптических свойств и ВКР в воде не ослабевает и в настоящее время, однако лишь незначительное число работ посвящено изучению ВКР в тяжелой воде (D<sub>2</sub>O) [4–6]. Основная комбинационно-активная частота молекул тяжёлой воды составляют 2400 см<sup>-1</sup> (валентное полносимметричное колебание). Это позволяет в процессе ВКР смещать длину волны возбуждающего излучения на значительную величину. Так при накачке излучением на длине волны 532 нм (вторая гармоника Nd:YAG лазера) длина волны первой стоксовой компоненты находится вблизи 610 нм.

Также в последние годы интерес представляло исследование ВКР в воде пикосекундного лазерного излучения [7, 8], обеспечивающего высокие пиковые интенсивности импульсов и отсутствие конкурентного процесса нелинейнооптического преобразования, такого как вынужденное рассеяние Мандельштама-Бриллюэна [9]. Использование кювет открытого типа в схеме вертикального возбуждения позволило изучать процессы на границе раздела воздух-вода [5, 10, 11] и открыть новые закономерности процесса ВКР в зависимости от глубины погружения фокальной перетяжки возбуждающего пучка в толщу воды. Однако эти исследования были ограничены небольшими энергиями возбуждающих импульсов и незначительной толщиной до 15 мм возбуждаемого слоя воды. Поэтому представляло интерес методичное исследование процесса ВКР в широком диапазоне энергий импульсов лазерного излучения накачки и возбуждение глубоких слоев воды. В данной работе мы приводим результаты такого исследования для тяжёлой воды.

#### 1. Эксперимент и результаты

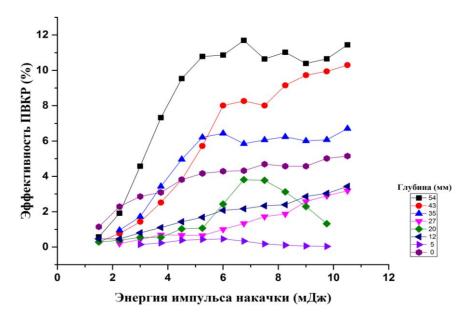
В случае вертикальной схемы возбуждения ВКР [10, 11] лазерный пучок направляется вертикально вниз вдоль специального рельса, на котором установлены все остальные оптические элементы. Пучок фокусируется линзой в кювету открытого типа с исследуемой жидкостью. Далее устанавливается коллимирующая линза и цветные оптические фильтры. Фокусирующая линза и кювета закрепляются в специальные держатели с микровинтами для перемещения этих элементов вдоль рельса (точность 10 мкм) с целью изменения положения фокальной перетяжки пучка по глубине в исследуемой жидкости и вблизи поверхности раздела жидкость-воздух.

Тяжёлая вода ( $D_2O$ , атомная доля D 99.8 %) содержалась в кварцевой кювете открытого типа (диаметр 20 мм, длина 75 мм), установленной вертикально в специальном держателе. Верхний торец кюветы является открытым, поверхность

воды находится на расстоянии примерно 2—3 мм от верхнего торца. Внизу кювета имеет кварцевое окошко. Для возбуждения ВКР использовались пикосекундные лазерные импульсы на длине волны 532 нм. Длительность импульсов составляла примерно 50—60 пс. Лазерный пучок фокусировался линзой с фокусным расстоянием 83 мм и входил в тяжёлую воду перпендикулярно ее поверхности. Перетяжка пучка погружалась в объем воды путем перемещения линзы и/или кюветы вдоль вертикальной оси и ее положение в объеме устанавливалось при минимальной энергии импульсов накачки 1 мДж. Пучок первой стоксовой компоненты прямого ВКР (ПВКР) выделялся с помощью фильтра ОС14. Пучок ВКР, проходящий в обратном направлении (ОВКР) через поворотное зеркало горизонтально, также выделялся фильтром ОС14.

Ниже представлены результаты измерений энергетической эффективности ПВКР и ОВКР (для первой стоксовой компоненте вблизи 610 нм) в зависимости от энергии импульсов накачки и глубины погружения фокальной перетяжки пучка накачки в толщу воды и вблизи поверхности раздела вода-воздух.

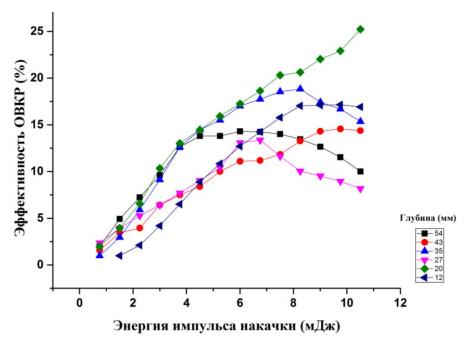
На рис. 1 приведены зависимости эффективности преобразования от энергии импульсов накачки для ПВКР. Видна существенная зависимость эффективности от глубины погружения фокальной перетяжки. Максимальная эффективность ПВКР (примерно 11 %) достигается на самой большой глубине 54 мм от поверхности раздела вода-воздух. При уменьшении глубины эффективность падает, однако, на поверхности раздела она увеличивается вновь. Это связано с резким падением порога ВКР на границе раздела вода-воздух [10, 11]. Отметим также, что эффективность ПВКР в тяжёлой воде существенно меньше по сравнению с лёгкой водой [12]. Это может быть связано с меньшим коэффициентом ВКР усиления тяжёлой воды по сравнению с лёгкой.



*Рис. 1.* Эффективность ПВКР в тяжёлой воде в зависимости от энергии импульсов накачки и глубины погружения фокальной перетяжки пучка

Хотя в настоящее время данных по этому параметру для тяжёлой воды нам найти не удалось, справедливость такого предположения подтверждается из сравнения зависимостей порогов ВКР для одинаковых условий возбуждения [13, 6].

На рис. 2 представлены аналогичные зависимости для ОВКР в тяжёлой воде. Видна также существенная зависимость эффективности ОВКР от глубины. Однако, с уменьшением глубины эффективность ОВКР увеличивается (по сравнению с ПВКР) и достигает максимальных значений (примерно 25 %) на глубине 20 мм. Это сравнимо с эффективностью ОВКР в лёгкой воде [12] (максимальные эффективности ОВКР в лёгкой воде достигаются на глубине 12 мм).



*Puc.* 2. Эффективность OBKP в тяжёлой воде в зависимости от энергии импульсов накачки и глубины погружения фокальной перетяжки пучка

Полученные результаты могут быть связаны с конкуренцией ПВКР и ОВКР [14, 15], зависящей от глубины погружения фокальной перетяжки в воду. Кроме того, известно, что в приповерхностном слое происходят изменения структуры воды [13], которые могут влиять на ВКР. Возможно, такие изменения могут происходить и в толще воды. Для выявления физических причин обнаруженной зависимости эффективности ПВКР и ОВКР в тяжёлой воде в вертикальной схеме возбуждения необходимы дальнейшие исследования.

#### Благодарности

Данные исследования выполнены при финансовой поддержке БРФФИ и РНФ (совместный белорусско-российский проект № Ф23РНФ-040 со стороны Беларуси и № 23-42-10019 со стороны России), а также задания 1.2 ГПНИ «Фотоника и электроника для инноваций».

#### Библиографические ссылки

- 1. Stimulated Raman scattering: from bulk to nano / R. C. Prince [et al.] // Chem. Rev. 2017. Vol. 117. P. 5070-5094.
- 2. Spectroscopic analysis of stimulated Raman scattering in the early stage of laser-induced breakdown in water / H. Yui [et al.] // Phys. Rev. Lett. 1999. Vol. 82, No. 20. P. 4110 4113.
- 3. Structural change of heavy water by laser-induced plasma generation / H. Yui [et al.] // Chem. Phys. Lett. 1999. Vol. 308. P. 437–440.
- 4. Shock compression-induced enhancement of stimulated Raman scattering in heavy water / C. Wang [et al.] // Opt. Communs. 2021. Vol. 501. 127394. 6 pp.
- 5. Highly efficient stimulated Raman scattering at the air-heavy water interface / Z. Dou [et al.] // Appl. Phys. Lett. 2024. Vol. 124. 101105. 6 pp.
- 6. Новый нелинейно-оптический эффект: 20-кратное локальное повышение интенсивности в поле обратного ВКР пикосекундного импульса в тяжёлой воде / С. М. Першин [и др.] // Краткие сообщения по физике ФИАН. 2024. № 3. С. 3–13.
- 7. Stimulated Raman scattering in light and heavy water under picosecond laser excitation / A. I. Vodchits [et al.] // Bulletin of the Lebedev Physics Institute. 2013. Vol. 40, No. 12. P. 329–334.
- 8. Multifrequency stimulated Raman scattering in light and heavy water / V. S. Gorelik [et al.] // J. Rus. Las. Res. 2015. Vol. 36, No. 6. P. 562–569.
- 9. Stimulated Raman and Brillouin scattering, nonlinear focusing, thermal blooming, and optical breakdown of a laser beam propagating in water / B. Hafizi [et al.] // J. Opt. Soc. Am. B. 2016. Vol. 33, No. 10. P. 2062–2072.
- 10. Asymmetrical-cavity picosecond Raman laser at the water-air interface / S. M. Pershin [et al.] // Opt. Lett. 2019. Vol. 44, No. 20. P. 5045–5048.
- 11. Picosecond stimulated Raman scattering at 3000 and 3430 cm<sup>-1</sup> OH vibrations without optical breakdown / S. M. Pershin [et al.] // Opt. Lett. 2020. Vol. 45, No. 19. P. 5624–5627.
- 12. A. I. Vodchits, V. A. Orlovich, I. A. Khodasevich, S. M. Pershin, M. Ya. Grishin. Efficiency of picosecond SRS in light water versus the depth of immersion of the focal waist of exciting radiation into it // Advances in Optics, Photonics, Spectroscopy, and Applications XIII: the proceedings of the 13<sup>th</sup> International Conference on Photonics and Applications (ICPA-13), Hanoi, Vietnam, 14-17 October, 2024 / Publishing House for Science and Technology; Editors: Nguyen Dai Hung [et al.]. Hanoi, 2024. P. 377–380.
- 13. Backward SRS suppression of picosecond pulses in water upon moving the pump beam caustic from the water volume through the surface / S. M. Pershin [et al.] // Quantum Electronics. 2022. Vol. 52, No. 3. P. 283–288.
- 14. О взаимодействии и конкуренции прямого и обратного рассеяний при ВКР / Ю. Е. Дьяков [и др.] // Квантовая электроника. 1982. Т. 9, № 6. С. 1258—1261.
- 15. Backward stimulated Raman scattering in water / N. Tcherniega [et al.] // Opt. Communs. 2000. Vol. 181. P. 197–205.