

# Кратное повышение эффективности пикосекундного ВКР в воде при возбуждении бесселевыми лазерными пучками

И. А. Ходасевич<sup>+</sup>, А. И. Водчиц<sup>+</sup>, С. М. Першин<sup>\*1)</sup>, В. А. Орлович<sup>+</sup>, М. Я. Гришин<sup>\*</sup>

<sup>+</sup>Государственное научное учреждение Институт физики имени Б. И. Степанова Национальной академии наук Беларуси, 220072 Минск, Беларусь

<sup>\*</sup>Институт общей физики им. А. М. Прохорова РАН, 11991 Москва, Россия

Поступила в редакцию 21 ноября 2023 г.

После переработки 1 декабря 2023 г.

Принята к публикации 4 декабря 2023 г.

Исследован процесс вынужденного комбинационного рассеяния (ВКР) в воде пикосекундных импульсов второй гармоники (60 пс, 532 нм) Nd<sup>3+</sup>:YAG лазера при фокусировке бесселевого пучка после конического концентратора с перемещением каустики пучка через открытую поверхность. Получена генерация двух стоксовых (650 и 836 нм) и антистоксовых (390 и 450 нм) компонент ВКР с осесимметричной и кольцевой структурой пучка в сечении. Обнаружено кратное уменьшение спектральной ширины полосы валентных ОН-колебаний молекул воды в первой стоксовой кольцевой компоненте попутного ВКР (до  $\sim 70 \text{ см}^{-1}$ , в сравнении с  $\sim 400 \text{ см}^{-1}$  для спонтанного комбинационного рассеяния). Впервые достигнуто 4-кратное увеличение эффективности преобразования энергии импульса накачки в первую стоксову компоненту попутного вынужденного комбинационного рассеяния при переходе от гауссовых к бесселевым пучкам.

DOI: 10.31857/S1234567824020046, EDN: ruklaw

**Введение.** В последние годы возрос интерес к исследованию процесса вынужденного комбинационного рассеяния (ВКР) в жидкостях [1], водных растворах химических соединений [2] и в воде [3–5]. Чаще всего в исследованиях для возбуждения ВКР в воде используют сфокусированные пучки пикосекундных импульсов с гауссовым поперечным распределением интенсивности в пучке. Выбор пикосекундной длительности импульсов накачки обусловлен малым коэффициентом усиления ВКР в воде ( $\sim 10^{-4} \text{ см/МВт}$  [6]), кроме того, при длительности импульсов менее 1 нс в воде не возникает конкурирующее с ВКР вынужденное рассеяние Мандельштама–Бриллюэна [6]. При этом порог возбуждения ВКР в воде достигается при интенсивности лазерного излучения  $\sim 0.5\text{--}1 \text{ ТВт/см}^2$  в перетяжке каустики фокусирующей линзы. В таких условиях при небольшом превышении порога возникают самофокусировка и оптический пробой [6].

С другой стороны, известно, что бесселевы лазерные пучки (БЛП), часто называемые “бездифракционными” [7, 8], так как поперечное распределение интенсивности в них инвариантно вдоль оси распространения, обладают такими уникальными свойствами, как высокая интенсивность на оси, а также

большая длина области “бездифракционного” распространения и устойчивость к амплитудным и фазовым аберрациям [7, 8].

Использование БЛП для возбуждения ВКР представляется перспективным, поскольку влияние указанных выше конкурирующих эффектов на процесс ВКР в воде может уменьшиться. При этом большая длина каустики ( $L$ ) с высокой интенсивностью пучка накачки ( $I_p$ ) будет заметно увеличивать инкремент  $G = I_p \cdot g \cdot L$  ВКР в экспоненте при умеренных значениях интенсивности  $I_p$  [1–5]:

$$I_{SRS} = \exp G = \exp(I_p \cdot g \cdot L), \quad (1)$$

где  $I_{SRS}$  – интенсивность компоненты ВКР;  $g$  – коэффициент усиления ВКР. Отсюда можно ожидать заметное улучшение выходных характеристик ВКР из-за увеличения длины усиления. Особый интерес вызывает повышение эффективности преобразования энергии накачки в излучение компонент ВКР. Экспериментальная проверка этого предположения являлась целью данной работы.

В настоящей работе впервые, насколько нам известно, выполнены комплексные экспериментальные исследования энергетических, пространственных и спектральных характеристик ВКР в воде в поле пикосекундных импульсов при накачке бесселевыми пучками.

<sup>1)</sup>e-mail: v.orlovich@dragon.bas-net.by; pershin@kapella.gpi.ru

**Эксперимент.** В экспериментах был использован Nd<sup>3+</sup>:YAG лазер LS-2151 (LOTIS ТП, Минск, Беларусь). Лазер генерировал импульсы на частоте второй гармоники (532 нм) с энергией до 20 мДж и длительностью  $\approx 60$  пс при частоте следования 15 Гц. Поперечное распределение излучения в пучке было близким к гауссовому при диаметре пучка 8–9 мм и его расходимости  $\approx 0.6$  мрад. Стабильность энергии выходных импульсов составляла около 3.5 %. Подробно оптическая схема эксперимента описана в работе [4].

Отличие от схемы, приведенной в [4], состояло в формировании БЛП с помощью аксикона [7, 8] с углом при основании 2°, а также собирающей линзы с фокусным расстоянием 120 мм, которую размещали на расстоянии 455 мм после аксикона. Это позволило сформировать каустику бездифракционного бесселева пучка длиной 20–25 мм. Бидистиллированную воду заливали в вертикально установленную цилиндрическую кювету диаметром 20 мм и длиной 75 мм. После аксикона и линзы пучок накачки с бесселевым поперечным профилем интенсивности отклоняли вертикально вниз и направляли в кювету через открытую поверхность воды. При этом середина области каустики БЛП находилась на глубине примерно  $l = 15$  мм от свободной поверхности воды.

Кювету перемещали по вертикали так, чтобы середина каустики БЛП достигала открытой поверхности воды. Для спектрального разделения преобразованного излучения использовали призму Пеллин–Брока и стеклянные светофильтры. Измерения спектров проводили миниспектрометром S100 с разрешением  $\approx 1$  нм (Солар LS, Минск, Беларусь) с волоконным вводом излучения. При этом другой торец волокна перемещали по диаметру изображения поперечного сечения пучка на экране. Энергию импульсов накачки и компонент ВКР измеряли с помощью детекторной головки PE25 и двухканального дисплея LaserStar (Ophir Optronics Ltd, Израиль). При этом измеритель устанавливали после собирающей линзы и стеклянного светофильтра КС11. Измерения проводили как для попутного ВКР (ПВКР), когда направление распространения возбуждающего и ВКР излучения совпадали, так и для обратного ВКР (ОВКР), когда излучение ВКР распространялось навстречу накачке. При суммировании данных по 45 повторных измерениям ошибка значения энергии импульсов не превышала 10 %. Для выделения ядра бесселевого пучка использовали диафрагму диаметром 5 мм перед детекторной головкой. При измерении энергии импульсов полного стока пучка головку измерителя энергии располагали после

собирающей линзы и фильтра таким образом, чтобы на чувствительную площадку детектора попадали обе составляющие (ядро и кольцо). При оценке выходной энергии импульсов ВКР-лазера учитывали потери на оптических элементах и в воде. Поперечное сечение пучков ВКР фотографировали на экране (белый лист бумаги) через соответствующие светофильтры.

Для сравнения характеристик ВКР при возбуждении излучением с гауссовым поперечным профилем пучка использовали собирающую линзу с фокусным расстоянием 83 мм [9].

**Результаты измерений и обсуждения.** Порог ВКР при фокусировке бесселевого пучка в объем воды достигали при энергии импульса накачки  $\leq 1$  мДж, кратно меньшей, чем при фокусировке пучка с гауссовым профилем (более 2 мДж). Повышение энергии импульсов накачки позволило выявить заметную асимметрию развития ВКР в направлении, попутном накачке, и обратном. Так, для попутного ВКР на валентном ОН-колебании водородосвязанных молекул H<sub>2</sub>O  $\nu_1(A_1) \approx 3440$  см<sup>-1</sup> было зарегистрировано излучение первой и второй стоковых и антистоковых компонент. Напротив, для обратного ВКР регистрировали излучение только первой стоковой компоненты.

На рисунке 1 приведены фотографии поперечных сечений пучков первой стоковой компоненты попутного ВКР при двух значениях энергии импульсов накачки  $E_p = 3.1$  мДж (панели (а), (с), (е)) и 3.5 мДж (панели (b), (d), (f)), а также для трех значений глубины погружения середины каустики БЛП, отсчитываемой от поверхности воды сверху вниз  $l = 0$ –5–10 мм, соответственно. Все изображения на рис. 1 были зарегистрированы с одинаковой экспозицией.

Из рисунка 1 видно, что при двух постоянных значениях энергии импульса и степени погружения: нижней половины ( $l = 0$  мм), 3/4 ( $l = 5$  мм) или всей ( $l = 10$  мм) каустики пучка под поверхность воды, наблюдается рост энергии ВКР из-за увеличения длины усиления ( $L$ ). Это заметно по росту освещенности промежутка между ядром и кольцом, а также самих колец. Отметим, что при выбранных параметрах аксикона и фокусирующей линзы сечение пучка попутного ВКР имеет вид центрального пятна (ядра) и кольца при всех значениях  $E_p$  и  $l$ . Такая структура пучка является характерной при ВКР, возбуждаемом бесселевыми пучками, как было зарегистрировано нами ранее [7] в сжатом водороде. По мере погружения середины каустики пучка в воду (рис. 1, сверху вниз), а также увеличения энергии импуль-

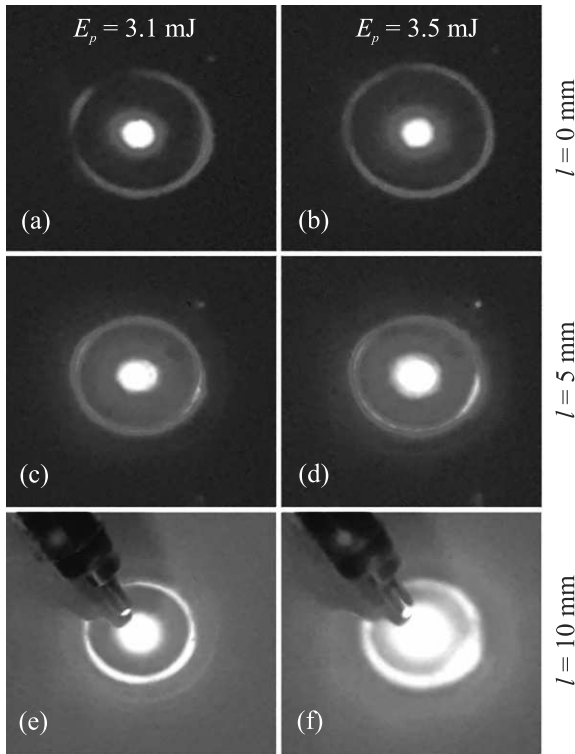


Рис. 1. (Цветной онлайн) Поперечное распределение излучения в пучке первой стоксовой компоненты ПВКР для двух значений энергии импульса накачки  $E_p = 3.1$  мДж (левая колонка) и  $E_p = 3.5$  мДж (правая колонка) при размещении середины каустики пучка накачки на разной глубине от поверхности сверху-вниз:  $l = (0-5-10)$  мм, соответственно

са накачки  $E_p$ , (левая и правая колонки) диаметр керна и яркость пучка стоксова излучения возрастали. Отметим при этом формирование второго кольца большего диаметра (рис. 1e, f), что отражает кольцевую структуру в сечении пучка накачки [7]. На рисунке 1e, f показано положение оптического волокна спектрометра для анализа спектров излучения компонент ВКР при перемещении торца по диаметру изображения.

На рисунке 2 приведена зависимость энергии импульсов  $E_{1s}$  первой стоксовой компоненты попутного ВКР от энергии накачки  $E_p$  с разной структурой сечения пучка. Кривая 1 (рис. 2, квадраты) отражает рост суммарной энергии всего пучка компоненты ВКР при возбуждении ВКР излучением накачки с бесселевым профилем пучка; кривая 2 (рис. 2, треугольники) – только для осевого пучка (керн), когда вклад излучения в виде кольца блокировали диафрагмой; кривая 3 (рис. 2, круги) – при возбуждении ВКР накачкой с гауссовым профилем пучка, сфокусированным в объем воды (фокусное расстояние линзы  $f = 83$  мм).

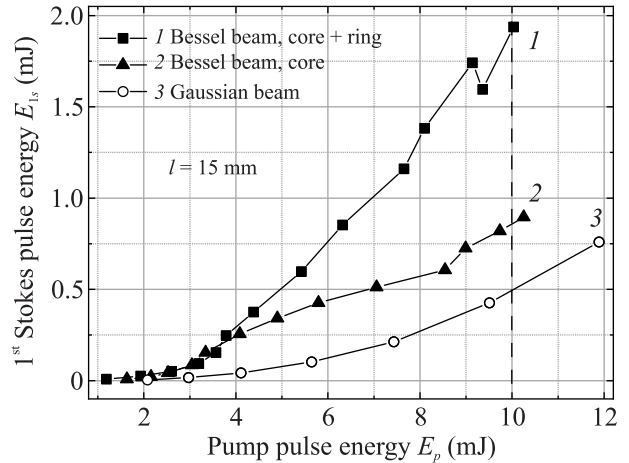


Рис. 2. Зависимость энергии импульсов первой стоксовой компоненты ПВКР в воде от энергии импульсов накачки при погружении середины каустики пучка накачки на глубину 15 мм: 1 – суммарная энергия стоксовой компоненты, в кольце и керне (квадраты); 2 – энергия только в керне (треугольники); 3 – энергия стоксовой компоненты при фокусировке пучка накачки с гауссовым профилем (круги). Вертикальная пунктирная линия показывает энергию накачки с 10-кратным превышением порога ВКР излучения импульсов с беселевым сечением пучка

Отметим, что при энергии накачки  $E_p = 10$  мДж с 10-кратным превышением над порогом ВКР импульсов с бесселевым профилем пучка был достигнут КПД преобразования в суммарную энергию излучения в кольце и керне стоксова пучка почти  $\eta \approx 20\%$  (рис. 2, кривая 1, квадраты). Существенно, что это значение КПД в 4 раза выше, чем КПД преобразования ВКР при накачке пучком с гауссовым профилем излучения (рис. 2, кривая 3, круги). При этом около половины суммарной энергии ( $\sim 8.5\%$ ) ВКР приходится на излучение осевой части пучка, керн, (рис. 2, кривая 2, треугольники). Другой важной особенностью ВКР импульсов с бесселевым профилем пучка является отсутствие тенденции к насыщению эффективности преобразования при энергии импульсов накачки с 10-кратным превышением над порогом ВКР (см. рис. 2, кривая 1, квадраты). Такая степенная зависимость дает основание полагать, что КПД ВКР-преобразователя может быть весьма высоким (более 10–20 %) при предпробойных интенсивностях излучения накачки. Более того, из рис. 2 видно, что в окрестности энергии накачки  $\sim 4$  мДж происходит перераспределение преобразования излучения накачки в кольцевую моду ВКР. Физический механизм этого процесса остается пока не установленным.

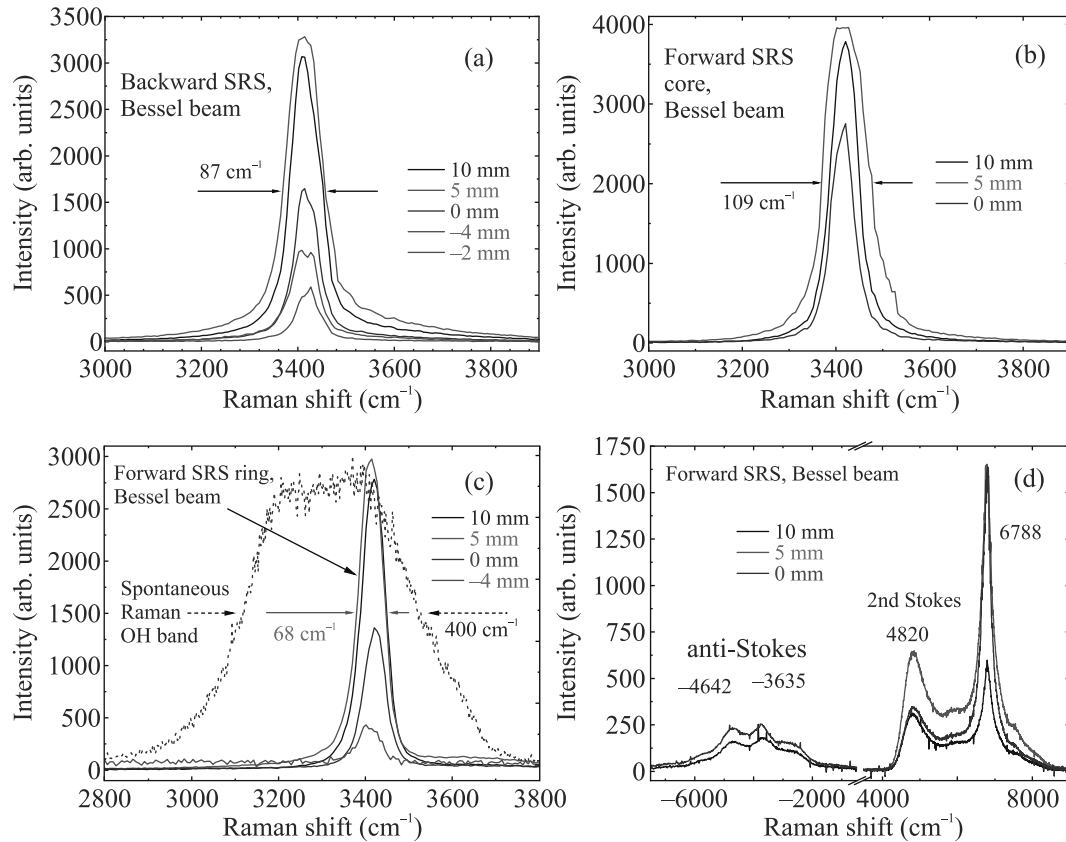


Рис. 3. (Цветной онлайн) Спектры ВКР при различных положениях середины каустики БЛП (Bessel beam) относительно поверхности воды: первые стоксовы компоненты: (a) – обратного ВКР (backward SRS); (b) – попутного ВКР (forward SRS) на оси пучка; (c) – попутного ВКР в кольце (forward SRS ring), а также контур ОН-полосы спонтанного КР (пунктир); (d) – антистоксова (anti-Stokes) и вторая стоксова (2nd Stokes) компоненты ПВКР на одной панели

Здесь также следует отметить, что вариация параметров БЛП комбинацией аксикона и линзы обеспечивает перераспределение энергии стоксова излучения между керном и кольцом, в том числе, с увеличением КПД генерации осевого пучка [9, 10]. Оценки показали, что расходимость стоксова излучения, сконцентрированного в керне, составляет величину меньше, чем 1 мрад. Подчеркнем, что такие ВКР-лазеры с водой [11], жидким азотом или сжатым водородом [7] в качестве ВКР-активной рабочей среды, обладающие большим стоксовым сдвигом частоты, высоким КПД и малой расходимостью генерируемого излучения, чрезвычайно востребованы для решения задач многоволнового лазерного зондирования на больших расстояниях. Так, например, многоволновое зондирование высокоорбитальных спутников пикосекундными импульсами обеспечивает измерение расстояния до 30000 км с точностью до 25 мм [12]. Достигнутая точность позволяет осуществлять мониторинг смещения материков и решать другие задачи, такие как дистанционный мониторинг парамет-

ров аэрозолей (дымовых шлейфов, пылевых бурь, смерчей и пр.) многоволновыми импульсными лидами, что стало возможным с использованием ВКР-лазеров [13].

На рисунке 3 приведены спектры ОВКР и ПВКР, измеренные при энергии импульсов накачки 3.1 мДж и перемещении каустики в кювете по глубине (параметр  $l$ ). Из приведенных на рис. 3 спектров следует, что в воде при использовании для накачки БЛП в наших условиях происходит возбуждение первой стоксовой компоненты ВКР только на валентном полисимметричном ОН-колебании с частотой  $\nu_1(A_1) \sim 3445 \text{ см}^{-1}$  без большого смещения внутри контура ОН-полосы спонтанного комбинационного рассеяния (КР) [14]. Обнаруженная стабильность спектра допускает конверсию излучения накачки (532 нм) пикосекундным ВКР-лазером с генерацией в узком спектральном диапазоне в окрестности 650 нм.

С другой стороны, увеличение энергии импульса накачки до превышения порога генерации второй стоксовой, а также антистоксовой компоненты

ВКР существенно расширяет спектральный диапазон преобразования излучения накачки (см. рис. 3d) благодаря большому сдвигу (в инфракрасную (ИК) область) на удвоенной основной частоте обертона  $6788\text{ см}^{-1}$ . Кроме того, дополнительные пики  $4642$  и  $4820\text{ см}^{-1}$  в спектре ВКР обусловлены рассеянием на составных частотах колебаний основного тона ( $3051$ ,  $3233$ ,  $3393$ ,  $3511$  и  $3628\text{ см}^{-1}$ ) и деформационных колебаний ( $1581$  и  $1641\text{ см}^{-1}$ ) [15]. Тогда полоса на  $4642\text{ см}^{-1}$  отражает суммарный сдвиг  $1581 + 3051 = 4632\text{ см}^{-1}$ , а полоса на  $3635\text{ см}^{-1}$  близка к моде с частотным сдвигом  $3628\text{ см}^{-1}$ . Тогда вторая стоксова компонента с частотным сдвигом  $6788\text{ см}^{-1}$  представляет собой обертон колебания  $3393\text{ см}^{-1}$ . Так, была получена генерация пикосекундного ВКР-лазера от ультрафиолетового (УФ) ( $390\text{ нм}$ , рис. 3d) до видимого ( $650\text{ нм}$ , рис. 3a–c) и ближнего ИК [16] ( $836\text{ нм}$ , рис. 3d, справа). Отметим, что огибающая спектральных линий первых стоксовых компонент ВКР близка к гауссовой. При этом отчетливо наблюдается кратное несимметричное сужение линий этих компонент ВКР без смещения центра огибающей. Максимальное сужение полос было зарегистрировано для кольцевой компоненты попутного ВКР при расположении середины каустики пучка на глубине  $5\text{ мм}$  под поверхностью воды (рис. 3c). Ширина ОН-полосы в данном случае составила  $\sim 70\text{ см}^{-1}$ , т.е. уменьшилась более чем в 5 раз по сравнению с шириной  $\sim 400\text{ см}^{-1}$  на полувысоте и  $\sim 700\text{ см}^{-1}$  у основания огибающей спектра ОН-полосы [14] спонтанного КР в воде (рис. 3c, пунктир).

Учитывая, что усиление компоненты ВКР происходит в поле накачки, следует ожидать проявления сужения линий обратного и прямого ВКР из-за экспоненциального усиления (см. формулу (1)). Кроме того, следует обратить внимание на немонотонную зависимость амплитуды линий ВКР от перемещения каустики из объема воды через поверхность в воздух (см. рис. 3). Так, максимальная амплитуда достигается при неполном погружении каустики (середины каустики на глубине  $5\text{ мм}$ ), тогда как при полном погружении каустики в воду (середины каустики на глубине  $10\text{ мм}$ ) все линии ВКР имеют меньшую амплитуду. Физика этого явления требует отдельного изучения с учетом вклада поверхности как сосредоточенного зеркала резонатора [17]. Напомним, что френелевский коэффициент отражения поверхности ( $\sim 2\%$ ) кратно превышает коэффициент световозвращения распределенной обратной связи при полном погружении каустики пучка под поверхность воды [18, 19]. Важно отметить, что управляющим фактором параметров ВКР (эффективность преоб-

разования и вариации спектров) здесь является перемещение каустики пучка вблизи границы раздела жидкость-воздух.

**Заключение.** Впервые, насколько нам известно, установлено, что возбуждение ВКР в воде фокусированным излучением пикосекундных импульсов второй гармоники  $\text{Nd}^{3+}:\text{YAG}$ -лазера с бесселевым профилем пучка ( $\sim 60\text{ пс}$ ,  $532\text{ нм}$ ) обеспечивает  $\sim 20\%$  КПД преобразования в первую стоксову компоненту с расходимостью осевой части пучка менее  $1\text{ мрад}$ . Достигнутое 4-кратное превышение эффективности ВКР-генератора по сравнению с возбуждением ВКР пучком с гауссовым профилем (рис. 2) указывает на новый режим конверсии энергии импульсов лазера в другой спектральный диапазон ( $\sim 650\text{ нм}$ ).

Обнаружено несимметричное и кратное (до  $\sim 70\text{ см}^{-1}$ ) сужение ОН-полосы первой стоксовой кольцевой компоненты попутного ВКР по сравнению с шириной ОН-полосы спонтанного КР в воде ( $\sim 400\text{ см}^{-1}$ ). Выявлена немонотонная зависимость амплитуды линий ВКР от перемещения каустики пучка из объема воды через поверхность в воздух. Так, максимальная амплитуда достигается при неполном погружении каустики, когда середина каустики расположена на глубине  $5\text{ мм}$ , а верхняя ее часть – в воздухе, над поверхностью воды. Отсюда следует, что перемещение каустики пучка вблизи поверхности среды является управляющим фактором параметров ВКР пикосекундных лазерных импульсов. Изучение обнаруженных особенностей ВКР в воде излучения пикосекундных импульсов с бесселевым профилем пучка накачки будет продолжено.

**Финансирование работы.** Настоящее исследование финансировалось в рамках совместных белорусско-российских грантов по проекту Ф23РНФ-040 Белорусского республиканского фонда фундаментальных исследований и гранту # 23-42-10019 Российского научного фонда.

**Конфликт интересов.** Авторы заявляют об отсутствии конфликта интересов.

1. A. Yu. Pyatyshev, A. V. Skrabatun, and A. I. Vodchits, *Laser Phys.* **31**, 095401 (2021).
2. Y. Ganot and I. Bar, *Appl. Phys. Lett.* **107**, 131108 (2015).
3. Z. Men, W. Fang, Z. Li, C. Sun, Z. Li, and X. Wang, *Opt. Lett.* **40**, 1434 (2015).
4. С. М. Першин, А. И. Водчиц, И. А. Ходасевич, В. А. Орлович, А. Д. Кудрявцева, Н. В. Чернега, *Квантовая электроника* **52**, 283 (2022).

5. H. Yui, T. Tomai, M. Sawada, and K. Terashima, *Appl. Phys. Lett.* **99**, 091504 (2011).
6. B. Hafizi, J. P. Palasttro, J. R. Penano, T. G. Jones, L. A. Johnson, M. H. Helle, D. Kaganovich, Y. H. Chen, and A. B. Stamm, *JOSA B* **33**, 2062 (2016).
7. R. V. Chulkov, P. A. Apanasevich, and V. A. Orlovich, *J. Opt.* **19**, 015503 (2017).
8. S. N. Khonina, N. L. Kazanskiy, S. V. Karpeev, and M. Ali Butt, *Micromachines* **11**, 997 (2020).
9. S. M. Pershin, M. Ya. Grishin, V. N. Lednev, P. A. Chizhov, and V. A. Orlovich, *Opt. Lett.* **44**(20), 5045 (2019).
10. R. V. Chulkov, A. S. Grabtchikov, D. N. Busko, P. A. Apanasevich, N. A. Khilo, and V. A. Orlovich, *JOSA B* **23**(6), 1109 (2006).
11. S. M. Pershin, A. I. Vodchits, I. A. Khodasevich, M. Ya. Grishin, V. N. Lednev, V. A. Orlovich, and P. A. Chizhov, *Opt. Lett.* **45**, 5624 (2020).
12. I. Prochazka, J. Kodet, J. Blazej, G. Kirchner, and F. Koidl, *Advances in Space Research* **54**, 755 (2014).
13. I. Veselovskii, N. Kasianik, M. Korenskii, Q. Hu, Ph. Goloub, T. Podvin, and D. Liu, *Atmos. Meas. Tech.* **16**, 2055 (2023).
14. Г. В. Венкин, Г. М. Крочик, Л. О. Кулюк, Д. И. Малеев, Ю. Г. Хронополо, *ЖЭТФ* **70**, 1674 (1976).
15. D. M. Carey and G. M. Korenowski, *J. Chem. Phys.* **108**, 2669 (1998).
16. D. E. Hare and C. M. Sorensen, *J. Chem. Phys.* **93**, 13 (1990).
17. S. M. Pershin, M. Ya. Grishin, V. N. Lednev, and P. A. Chizhov, *JETP Lett.* **109**, 437 (2019).
18. S. A. Akhmanov and G. A. Lyakhov, *Sov. Phys. JETP* **39**, 43 (1974).
19. С. А. Ахманов, Б. В. Жданов, А. И. Ковригин, С. М. Першин, *Письма в ЖЭТФ* **15**, 266 (1972).