

НЕЛИНЕЙНО-ОПТИЧЕСКИЕ ЯВЛЕНИЯ

Наблюдение вынужденного температурного рассеяния света при нестационарном взаимодействии лазерного импульса со средой

А.А.Гордеев, В.Ф.Ефимков, И.Г.Зубарев, С.И.Михайлов

Экспериментально исследовано вынужденное температурное рассеяние света коротких лазерных импульсов различной длительности. Показано, что наблюдаемый аномально большой антистоксов спектральный сдвиг ($\Omega \gg 1/(2\pi\tau)$), где τ – время релаксации температурной решетки) в отраженном сигнале зависит от длительности импульса накачки.

Ключевые слова: вынужденное температурное рассеяние света, большой антистоксов сдвиг.

Нестационарное взаимодействие лазерного импульса со средой имеет место тогда, когда длительность импульса τ_p оказывается сравнимой с временем релаксации записанной им в среде температурной решетки $\tau = 1/(\chi q^2)$, где χ – коэффициент температуропроводности среды, а q – волновой вектор решетки. В последнее время появилась серия работ [1–3], авторы которых утверждают, что они наблюдают новый вид вынужденного рассеяния света, названный ими вынужденным рассеянием Ми (ВРМ). Условия, при которых авторы наблюдают это рассеяние, совпадают с обычными условиями наблюдения вынужденного температурного рассеяния света (ВТР). В качестве основных аргументов в пользу того, что наблюдаемое ими рассеяние не есть ВТР, авторы [1–3] приводят следующие:

1. При ВТР широкополосной накачки с шириной линии $\Delta\omega_p \gg 1/\tau$ должен наблюдаться антистоксов частотный сдвиг рассеянной волны на величину $\Omega \approx \Delta\omega_p/2$.

2. При ВТР широкополосной накачки инкремент усиления антистоксовой компоненты рассеянной волны g (а значит, и пороговая мощность накачки) должен быть обратно пропорционален ширине линии накачки $\Delta\omega_p$, $g \sim 1/\Delta\omega_p$.

3. При ВТР света встречные волны с одинаковыми частотами не должны взаимодействовать, а в их экспериментах такое взаимодействие наблюдалось.

4. По наблюдениям авторов работ [1–3] спектр рассеянного излучения воспроизводит спектр накачки.

Выводы о выполнении первых двух условий авторы работ [1–3] позаимствовали у авторов работ [4, 5]. Первыми подобное ошибочное утверждение сделали авторы работы [4]. Они, по аналогии с классической линейной спектроскопией, заявили, что суммарный спектральный отклик данного процесса должен представлять собой свертку спектрального отклика ВТР и спектрального контура возбуждающего лазерного излучения. Тогда антистоксов сдвиг спектральной линии рассеянного излучения

при ВТР должен быть $\Omega \approx 1/2[\Delta\omega_p + 1/(\pi\tau)]$. И действительно, в первой экспериментальной работе по наблюдению ВТР излучения короткого лазерного импульса [5] авторы как бы подтвердили справедливость этой формулы.

Утверждение авторов работы [4] о наличии свертки в данном процессе было простым механическим перенесением этого представления из области линейной спектроскопии, где оно бесспорно справедливо. Однако в 1969 г. мы показали, что порог вынужденного комбинационного рассеяния света (ВКР) не зависит от ширины линии возбуждающего излучения в очень широких пределах [6]. Таким образом, процессы вынужденного рассеяния света не описываются сверткой соответствующих спектральных контуров, что затем было показано и в ряде других работ (см., напр., [7]). По нашему мнению, выводы работы [5] представляют собой результат случайного совпадения, поскольку наблюдаемый сдвиг линии сравним с разрешающей способностью использованного спектрально-прибора и поэтому определяется с большой ошибкой.

То что авторы работ [1–3] не видят никакого спектрального сдвига рассеянного излучения, объясняется очень просто. Они используют очень широкополосные лазерные источники и низкоразрешающую спектральную аппаратуру, поэтому в принципе не могут увидеть тот спектральный сдвиг, который имеет место в данном процессе. И действительно, проведенные нами эксперименты [8] в тех же условиях, что и в работах [1–3], но только с узкополосным лазерным источником с шириной линии $\Delta\omega_p \leq 1/\tau$ показали следующее. Мы наблюдали типичное ВТР излучения лазера, но с одной уникальной особенностью. Спектральный сдвиг компоненты рассеянного излучения Ω практически на порядок превышал то значение $1/\tau$, которое следует из стационарной теории. Мы показали, что экспериментально измеренное значение Ω составляет порядка 100 МГц, т.е. оно много больше, чем $1/(2\pi\tau) \approx 16$ МГц для использованного нами толуола и длины волны возбуждающего излучения 532 нм.

Что касается третьего аргумента авторов работ [1–3] – наблюдаемое ими рассеяние не ВТР, – то этот аргумент действительно справедлив, но только для стационарного режима взаимодействия волн. Как мы показали в работе [9], при ударном возбуждении среды встречными короткими лазерными импульсами с одинаковыми частотами они эффективно взаимодействуют даже на нелинейности

А.А.Гордеев, В.Ф.Ефимков, И.Г.Зубарев, С.И.Михайлов. Физический институт им. П.Н.Лебедева РАН, Россия, 119991 Москва, Ленинский просп., 53; e-mail: filimon@narod.ru

Поступила в редакцию 11 мая 2018 г., после доработки – 2 июля 2018 г.

Мандельштам–Бриллюэна. При этом частотный сдвиг рассеянной компоненты, имеющий существенное значение для этого процесса, при ВРМБ значительно превышает тот частотный сдвиг, который имеет место в процессе ВТР. Так что в нестационарном режиме встречные короткие лазерные импульсы даже с одинаковыми частотами прекрасно взаимодействуют при ВТР света.

Что же касается четвертого условия – спектр рассеянного излучения воспроизводит спектр накачки, – то оно на самом деле прямо опровергает наличие свертки в данном процессе. Свертка всегда приводит к искажению истинного контура линии, и поэтому в классической линейной спектроскопии получающийся в результате свертки контур является фойгтовским.

Как было сказано выше, в работе [8] мы наблюдали ВТР лазерного излучения с аномально большим антистоксовым частотным сдвигом рассеянной компоненты. Цель настоящей работы – выяснить физическую причину подобного явления. В той же работе [8] теоретически показано, что в случае квазистационарного рассеяния широкополосной накачки (когда $\Delta\omega_p \gg 1/(2\pi\tau)$) частотный сдвиг не зависит от ширины спектра накачки и равен таковому при монохроматической накачке. Здесь следует отметить, что в работе [10] авторы в стационарном режиме взаимодействия волн прописали контур линии усиления, обусловленной акустическими и температурными флуктуациями среды. Они получили прекрасное согласие со стационарной теорией, показав, что максимальное усиление внешнего сигнала при ВТР реализуется на антистоксовой частоте $\Omega = 1/(2\pi\tau) = \chi q^2/(2\pi)$. Существенное отличие условий нашего эксперимента в работе [8] от эксперимента в [10] состоит в том, что длительность использованного нами возбуждающего лазерного импульса τ_p сравнима с временем релаксации соответствующей температурной решетки $\tau = 1/(\chi q^2)$ для использованного нами толуола. Другими словами, в нашем случае процесс ВТР света происходит в существенно нестационарном режиме взаимодействия волн, а сам контур усиления несимметричен по спектру и имеет вид дисперсионной кривой. Именно в этом, по нашему мнению, физическая причина наблюдаемого нами аномального сдвига частоты рассеянной компоненты при ВТР излучения коротких лазерных импульсов.

Для проверки этой гипотезы мы экспериментально измерили частотный сдвиг рассеянной компоненты при ВТР света возбуждающих одночастотных лазерных импульсов различной длительности.

Схема экспериментальной установки представлена на рис.1. Здесь Р – излучение второй гармоники одномодового и одночастотного неодимового лазера с пассивной модуляцией добротности резонатора. Длительность лазерного импульса оставляла 40 нс. Преобразование частоты осуществлялось в кристалле дигидроарсената цезия (СДА) размером $10 \times 10 \times 40$ мм, помещенном в герметизированную капсулу с защитными стеклами. Использовался преобразователь из лазера ЛГИ-401. После прохождения через толстую стеклянную пластину 1 излучение Р фокусировалось линзой 2 в кювету 3 с активной средой, в качестве которой использовался чистый толуол. Фокусные расстояния линзы 2 составляли 3 или 15 см. Линза 4 с фокусным расстоянием $f = 5$ см располагалась софокусно с линзой 2. Форма импульса излучения накачки, прошедшего через кювету, регистрировалась фотодиодом 5, энергия измерялась калориметром 7. Энергия излучения на-

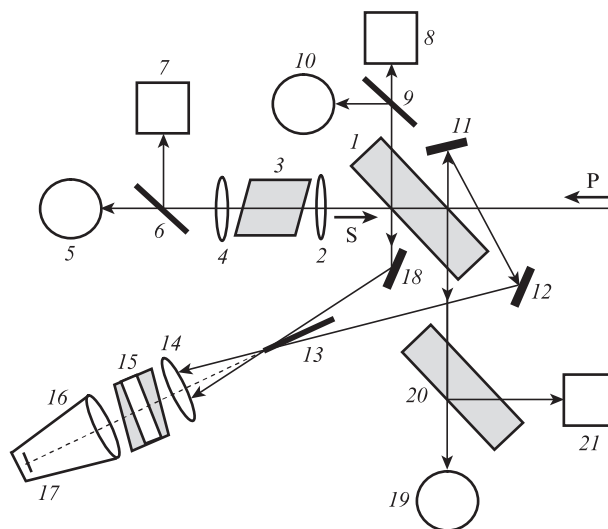


Рис.1. Принципиальная схема экспериментальной установки:

1, 20 – толстые стеклянные пластины; 2, 4, 14 – линзы; 3 – кювета с толуолом; 5, 10, 19 – фотодиоды; 6, 9 – тонкие стеклянные пластины; 7, 8, 21 – калориметры; 11, 12, 18 – плотные зеркала; 13 – экран; 15 – эталон Фабри–Перо; 16 – объектив; 17 – ПЗС-матрица.

качки Р измерялась калориметром 8, форма импульса регистрировалась фотодиодом 10. Энергия отраженного (рассеянного назад) излучения S измерялась калориметром 21, форма импульса – фотодиодом 19. Зеркалами 11, 12 и 18 излучение накачки Р и рассеянное излучение S направлялись на линзу 14 ($f = 35$ см), обрезаясь на половине своего сечения на краю непрозрачного тонкого экрана 13. Край экрана располагался в фокусе линзы 14. В таком спектральном устройстве, состоящем из экрана 13, линзы 14, эталона Фабри–Перо 15 (длина $d = 9$ см, область дисперсии $\Delta\nu = 1/(2d) = 0.0556 \text{ см}^{-1}$) и объектива 16 ($f = 43$ см), в фокусе последнего образовывалась спектральная картина, в одной половине которой располагался спектр (полукольца) излучения накачки, в другой – рассеянного излучения. Находящаяся в фокусе объектива 16 ПЗС-матрица 17 WinCamD-UCM (Data Ray) регистрировала спектральную картину, которая наблюдалась и измерялась на компьютере. Временные параметры импульсов регистрировались скоростными фотодиодами (S9055-01 с полосой пропускания 2 ГГц) на четырехканальном осциллографе GDS73504A (GW Instek) с полосой 500 МГц.

Чистый толуол не поглощает излучение второй гармоники неодимового лазера с длиной волны 532 нм, но имеет отличный от нуля коэффициент двухфотонного поглощения излучения с указанной длиной волны. В связи с этим в зависимости от условий возбуждения мы могли наблюдать либо вынужденное рассеяние Мандельштам–Бриллюэна (ВРМБ), либо вынужденное температурное рассеяние. При фокусировке возбуждающего излучения в кювету с активным веществом линзой с $f \geq 15$ см наблюдается ВРМБ. При фокусировке излучения накачки линзой с $f \approx 3-5$ см, когда в фокальной области интенсивность возбуждающего излучения становится столь большой, что основную роль начинает играть двухфотонное поглощение, наблюдается ВТР света.

В экспериментах мы использовали импульсы возбуждающего излучения двух различных форм и длительностей (рис.2). Первый импульс имел пологие фронты и длительность по полувысоте $\tau_p \approx 30$ нс. Такой импульс получается при преобразовании во вторую гармонику им-

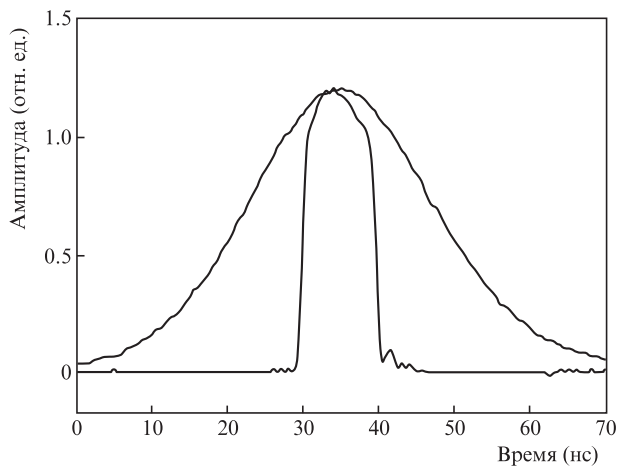


Рис.2. Форма импульсов накачки длительностью 30 и 10 нс.

пульса задающего генератора на неодимовом стекле длительностью ~ 40 нс. Второй импульс имел длительность $\tau_p \approx 10$ нс. Этот импульс вырезался из импульса задающего генератора с помощью электрооптического затвора Поккельса. Спектральный сдвиг антистоксовой компоненты рассеянного при ВТР излучения в наших условиях лишь незначительно превышал разрешающую способность использованного эталона Фабри–Перо. Поэтому для обработки интерферограмм была разработана специальная компьютерная программа, описание которой будет изложено в отдельной работе.

Результаты проведенных экспериментов представлены на рис.3. Верхний ряд относится к импульсу с длительностью $\tau_p \approx 30$ нс, а нижний – к импульсу с $\tau_p \approx 10$ нс. Отметим, что эксперименты проводились при четырехкратном превышении мощности возбуждающих импульсов порога наблюдаемого эффекта. Компьютерная обработка интерферограмм показала, что при длительности возбуждающего импульса $\tau_p \approx 30$ нс антистоксов сдвиг спектральной компоненты ВТР лазерного излучения $\Omega = 50 \pm 20$ МГц, а при длительности импульса $\tau_p \approx 10$ нс этот сдвиг $\Omega = 100 \pm 20$ МГц. Наличие второго максимума в спектре рассеянного излучения для импульсов накачки длительностью 10 нс объясняется, скорее всего, присутствием стоксовой компоненты ВРМБ, сдвиг которой много больше области дисперсии эталона Фабри–Перо.

Таким образом, результаты проведенных нами экспериментальных исследований показывают, что при ВТР излучения коротких одночастотных лазерных импульсов с длительностью, сравнимой с временем релаксации соответствующей температурной решетки, наблюдается аномально большой антистоксов спектральный сдвиг рассеянной компоненты лазерного излучения, который многократно превышает сдвиг, обусловленный спектральным

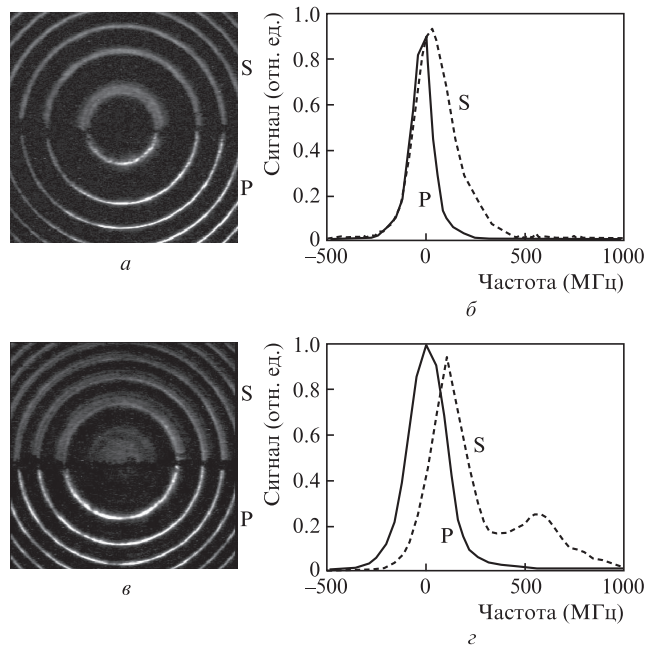


Рис.3. Типичные интерферограммы излучений накачки P и отраженного сигнала S (а, в), а также результаты компьютерной обработки интерферограмм (б, з) при длительности возбуждающего импульса 30 (а, б) и 10 нс (в, з). Ноль отсчета частоты на графиках соответствует максимуму спектрального распределения накачки. Результаты приведены для одного периода интерференционной картины.

откликом температурной решетки (16 МГц) для толуола, и зависит от длительности возбуждающего лазерного импульса.

1. He G., Yong K., Zhu J., Prasad P.N. *Phys. Rev. A*, **85**, 043839 (2012).
2. He G.S., Law W., Liu L., Zhang X., Prasad P.N. *Appl. Phys. Lett.*, **101**, 011110 (2012).
3. He G.S., Law W., Baev A., Liu S., Swihart M.T., Prasad P.N. *J. Chem. Phys.*, **138**, 024202 (2013).
4. Herman R.M., Gray M.A. *Phys. Rev.*, **161** (1), 374 (1967).
5. Rank D.H., Cho C.W., Foltz N.D., Wiggings T.A. *Phys. Rev. Lett.*, **19** (15), 828 (1967).
6. Бочаров В.В., Грасюк А.З., Зубарев И.Г., Муликов В.Ф. *ЖЭТФ*, **56** (2), 430 (1969) [*Sov. Phys. JETP*, **29** (2), 235 (1969)].
7. Джотян Г.П., Дьяков Ю.Е., Зубарев И.Г., Миронов А.Б., Михайлов С.И. *Квантовая электроника*, **4** (6), 1377 (1977) [*Sov. J. Quantum Electron.*, **7** (6), 783 (1977)].
8. Averyushkin A.S., Bulychev N.A., Efimkov V.F., Erokhin A.I., Kazaryan M.A., Mikhailov S.I., Saraeva I.N., Zubarev I.G. *Laser Phys.*, **27**, 055401 (2017).
9. Гордеев А.А., Ефимков В.Ф., Зубарев И.Г., Михайлов С.И. *Квантовая электроника*, **45** (10), 899 (2015) [*Quantum Electron.*, **45** (10), 899 (2015)].
10. Faris G.W., Gerken M., Jirauschek C., Hogan D.N., Chen Y. *Opt. Lett.*, **26** (23), 1894 (2001).