

МІНІСТЕРСТВО ОСВІТИ І НАУКИ УКРАЇНИ
КИЇВСЬКИЙ НАЦІОНАЛЬНИЙ УНІВЕРСИТЕТ
ІМЕНІ ТАРАСА ШЕВЧЕНКА

На правах рукопису

Іванісік Анатолій Іванович

УДК 535.375

ДИНАМІКА НЕЛІНІЙНО-ОПТИЧНИХ ПРОЦЕСІВ У КЕРІВСЬКИХ
РІДИНАХ

01.04.05 – оптика, лазерна фізика

Дисертація на здобуття наукового ступеня
доктора фізико-математичних наук

Науковий консультант:
Коротков Павло Андрійович,
доктор фізико-математичних наук,
професор

Київ – 2015

ЗМІСТ

ПЕРЕЛІК УМОВНИХ СКОРОЧЕНЬ	6
ВСТУП	11
РОЗДІЛ 1. ОГЛЯД ОСНОВНИХ ЕКСПЕРИМЕНТАЛЬНИХ ТА ТЕОРЕТИЧНИХ ДОСЛІДЖЕНЬ НЕЛІНІЙНО-ОПТИЧНИХ ПРОЦЕСІВ У КЕРІВСЬКИХ РІДИНАХ	
1.1. Вимушене комбінаційне розсіювання	25
1.2. Самофокусування	29
1.3. Фазова самомодуляція	30
1.4. Висновки до Розділу 1	32
РОЗДІЛ 2. ЗАГАЛЬНИЙ ОПИС ЕКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЇ УСТАНОВКИ ТА МЕТОДІВ ДОСЛІДЖЕНЬ	
2.1. Джерела збуджуючого випромінювання	33
2.2. Реєструючі прилади	38
2.3. Основні методи досліджень	40
2.4. Висновки до Розділу 2	45
РОЗДІЛ 3. ЕКСПЕРИМЕНТАЛЬНІ ТА ТЕОРЕТИЧНІ ДОСЛІДЖЕННЯ ЕФЕКТУ САМОФОКУСУВАННЯ	
3.1. Вплив групової швидкості на процес самофокусування у наносекундному діапазоні лазерних імпульсів	46
3.2. Загальні співвідношення для швидкості фокальної точки самофокусування	50
3.3. Теоретичні розрахунки стаціонарної залежності фокальної відстані від потужності лазерного випромінювання	54
3.4. Методика експерименту вимірювання фокальної відстані самофокусування	59
3.5. Результати експериментів вимірювання фокальної відстані самофокусування	64
3.6. Розрахунки швидкості, прискорення та потужності	78

випромінювання для фокальної точки самофокусування	
3.7. Експериментальні дослідження самофокусування у двокуветних схемах	88
3.8. Інтенсивність світла на осі лазерного променя та довжина фокальної області самофокусування	91
3.9. Оцінка енергетичної ефективності нелінійних оптичних процесів уподовж траси лазерного імпульсу	94
3.10. Висновки до Розділу 3	95
РОЗДІЛ 4. ВПЛИВ РУХУ ФОКАЛЬНОЇ ОБЛАСТІ САМОФОКУСУВАННЯ НА СПЕКТР ВИМУШЕНОГО КОМБІНАЦІЙНОГО РОЗСІЮВАННЯ	
4.1. Наближення заданої поляризації та частотно-кутовий розподіл енергії розсіяного випромінювання у віддаленій зоні для випадку широкосмугових спектрів	97
4.2. Наближення заданої поляризації та частотний розподіл енергії розсіяного випромінювання у ближній зоні для випадку широкосмугових спектрів	107
4.3. Загальні особливості формування спектрів випромінювання рухомих центрів нелінійної поляризації у ближній зоні	111
4.4. Деталізація особливостей формування спектрів випромінювання рухомих центрів нелінійної поляризації у ближній зоні	117
4.5. Частотно-кутові спектри антистоксового вимушеного комбінаційного розсіювання з фокальних областей самофокусування у віддаленій зоні	127
4.6. Висновки до Розділу 4	141
РОЗДІЛ 5. ФАЗОВА МОДУЛЯЦІЯ ЛАЗЕРНОГО ВИПРОМІНЮВАННЯ У САМОФОКУСУЮЧИХ СЕРЕДОВИЩАХ	
5.1. Теорія квазістаціонарної фазової самомодуляції лазерних імпульсів у керівських рідинах	143
5.2. Теоретичний аналіз спектрів випромінювання перехідного типу	154

на межі середовище-вакуум в умовах фазової самомодуляції світлового імпульсу за самофокусування

5.3. Експериментальне виявлення перехідного ефекту на межі середовища за фазової самомодуляції лазерних імпульсів наносекундного діапазону тривалостей 160

5.4. Енергетично-частотні характеристики випромінювання за перехідного ефекту в самофокуруючих середовищах 168

5.5. Формування надкоротких оптичних імпульсів унаслідок перехідного ефекту на межі самофокуруючого середовища 175

5.6. Фазова самомодуляція в шаруватих структурах 183

5.7. Висновки до Розділу 5 190

РОЗДІЛ 6. ВПЛИВ ФАЗОВОЇ САМОМОДУЛЯЦІЇ ЛАЗЕРНОГО ВИПРОМІНЮВАННЯ НА СПЕКТР АНТИСТОКСОВОГО ВИМУШЕНОГО КОМБІНАЦІЙНОГО РОЗСІЮВАННЯ

6.1. Вплив фазової самомодуляції імпульсів накачування на спектр антистоксового вимушеного комбінаційного розсіювання світла з фокальної ділянки 192

6.2. Спектральні закономірності антистоксового вимушеного комбінаційного розсіювання з околу фокальної точки за фазової самомодуляції 205

6.3. Фазомодульоване параметричне антистоксове вимушене комбінаційне розсіювання на виході з самофокуруючого середовища 217

6.4. Інтерпретація антистоксового вимушеного комбінаційного розсіювання черенковського типу 234

6.5. Висновки до Розділу 6 243

РОЗДІЛ 7. ВИМУШЕНЕ КОМБІНАЦІЙНЕ РОЗСІЮВАННЯ ЗА МІНІМАЛЬНОЇ ФОКУСНОЇ ВІДСТАНІ САМОФОКУСУВАННЯ ТА ВРАХУВАННЯ ДОДАТКОВИХ ФАКТОРІВ ВПЛИВУ НА СПЕКТР ВИПРОМІНЮВАННЯ

7.1. Вплив релаксаційних осциляцій інтенсивності лазерного 244

випромінювання на частотно-кутову структуру вимушеного комбінаційного розсіювання	
7.2. Взаємний вплив фазової модуляції та релаксаційних осциляцій інтенсивності на спектри вимушеного комбінаційного розсіювання	254
7.3. Ефект насичення інтенсивності вимушеного комбінаційного розсіювання	262
7.4. Асиметрія індикатриси вимушеного комбінаційного розсіювання світла в органічних самофокусуєчих рідинах	268
7.5. Генерація та підсилення субнаносекундних імпульсів вимушеного комбінаційного розсіювання у самофокусуєчих органічних речовинах	286
7.6. Залежність ефективності генерації стоксової компоненти вимушеного комбінаційного розсіювання від поглинання та спектрально складу випромінювання накачування	294
7.7. Вплив наночастинок благородних металів на ефективність вимушеного комбінаційного розсіювання	303
7.8. Висновки до Розділу 7	314
ВИСНОВКИ	316
СПИСОК ВИКОРИСТАНИХ ДЖЕРЕЛ	320

ПЕРЕЛІК УМОВНИХ СКОРОЧЕНЬ

ВКР – вимушене комбінаційне розсіювання;

ВРМБ – вимушене розсіювання Мандельштама - Брілюена;

ГКР – гігантське комбінаційне розсіювання;

КР – комбінаційне розсіювання;

СФ – самофокусування;

ФМ – фазова модуляція;

ФСМ – фазова саомодуляція;

a_0 – початковий радіус на рівні e^{-1} пучка лазерного випромінювання або його фрагменту на вході в самофокусує середовище;

a_f – радіус фокальної точки на рівні e^{-1} потужності лазерного випромінювання;

b – довжина області існування нелінійної поляризації на рівні 0,5 від максимальної амплітуди нелінійної поляризації у фокальній точці;

b_e – напівдовжина області існування нелінійної поляризації на рівні e^{-1} від максимальної амплітуди нелінійної поляризації у фокальній точці;

c – швидкість світла у вакуумі;

E_L – напруженість електричного поля лазерної хвилі;

E_L – енергії лазерного імпульсу;

G – коефіцієнт підсилення першої стоксової компоненти на комбінаційній частоті за інтенсивністю лазерного випромінювання;

i – уявна одиниця;

I_f – максимальна інтенсивність лазерного випромінювання у фокальній точці;

I_L – інтенсивність лазерного випромінювання;

$k, k\{\omega\}, k_\omega = n_\omega \omega / c$ – модуль хвильового вектора в середовищі на частоті ω ;

k_{0a} – модуль хвильового вектора антистоксової компоненти в середовищі без

- урахування наведених змін показника заломлення (на комбінаційній частоті);
- k_{0L} – модуль хвильового вектора лазерного випромінювання у середовищі без урахування наведених змін показника заломлення;
- k_{0s} – модуль хвильового вектора стоксової компоненти в середовищі без урахування наведених змін показника заломлення (на комбінаційній частоті);
- k_a – модуль хвильового вектора антистоксової компоненти вимушеного комбінаційного розсіювання у середовищі;
- k_{Lf} – модуль хвильового вектора лазерного випромінювання у фокальній точці з урахуванням самофокусування і фазової самомодуляції;
- k_{p0a} – модуль хвильового вектора антистоксової нелінійної поляризації за вимушеного комбінаційного розсіювання у середовищі без урахування наведених змін показника заломлення (на комбінаційній частоті);
- k_{vL} – модуль хвильового вектора лазерного випромінювання у вакуумі;
- L – довжина кювети (вхідна межа має координату $z = 0$);
- ℓ_f – довжина фокальної області на рівні 0,5 від максимальної інтенсивності лазерного випромінювання у фокальній точці;
- n_{0L} – показник заломлення лазерного випромінювання без урахування нелінійно-оптичних ефектів;
- n_2 – коефіцієнт нелінійної рефракції;
- n_ω – показник заломлення випромінювання на частоті ω без урахування нелінійно-оптичних ефектів;
- P_{0L} – максимальна миттєва потужність імпульсу лазерного випромінювання на вході у нелінійне оптичне середовище;
- P_{cr} – критична потужність самофокусування;
- P_L – миттєва потужність лазерного випромінювання;
- P_{Lf} – потужність лазерного випромінювання у фокальній точці;
- \tilde{P} – приведена (нормована) потужність лазерного випромінювання (P_L/P_{cr});

\tilde{P}_0 – приведена максимальна потужність імпульсу лазера (P_{0L}/P_{cr});

\tilde{P}_{Lf} – приведена (нормована) потужність лазерного випромінювання у фокальній точці (P_{Lf}/P_{cr});

$P^{(NL)}$ – нелінійна поляризація;

$P_0^{(NL)}$ – амплітуда нелінійної поляризації;

$P_{0\max}^{(NL)}$ – максимальна амплітуда нелінійної поляризації поблизу центру фокальної точки;

$P_\omega^{(NL)}$ – нелінійна поляризація на частоті ω ;

$W_{\text{пер}}$ – повна енергія випромінювання, яке виникає за перехідного ефекту;

$W_{\text{пер}}^{(v)}$ – частотна густина енергії випромінювання за перехідного ефекту;

$W_{z\theta}$ – просторово-кутова густина енергії розсіяного випромінювання вдовж осі z середовища;

W_θ – кутова густина енергії випромінювання;

W_ω – частотна густина енергії випромінювання;

$W_{\omega 0}$ – частотна густина енергії осьового ($\theta = 0$) випромінювання;

$W_{\omega s}$ – частотна густина енергії імпульсу розсіяного випромінювання для ближньої зони у розрахунку на одиницю площі s (інтеграл від I_ω за часом);

$W_{\omega x} \{z\}$ – частотно-просторова густина енергії випромінювання, розсіяного з точки z вдовж осі x ;

$W_{\omega z \theta}$ – частотно (ω)-просторово (z)-кутова (θ) густина енергії;

$W_{\omega \theta}$ – частотно-кутова густина енергії випромінювання;

$W_{\omega \theta}^{(a)}$ – частотно-кутова густина енергії антистоксової компоненти ВКР;

x, y – поперечні координати;

z – координата у напрямку поширення лазерного променя;

z_{fd} – фокальна відстань (дистанція) самофокусування;

z_{fp} – координата фокальної точки;

Γ – приріст $k_L \{z_{fp}\} - k_{0L}$ модуля хвильового вектора лазерного випромінювання у фокальній точці ($\Gamma = k_{vL} \tilde{P} \gamma$);

γ – приріст Δn_f показника заломлення у фокальній точці для приведеної (нормованої) потужності лазерного випромінювання $\tilde{P} = 1$;

Δk_L – приріст модуля хвильового вектора лазерного випромінювання внаслідок збільшення показника заломлення;

ΔL – відрізок траси проходження фокальної точки через кювету;

Δn_f – приріст показника заломлення в центрі фокальної області;

$\Delta \nu_{\text{пер}} = \Delta \omega_{\text{пер}} / (2\pi c)$ – максимальне зміщення миттєвої частоти в см^{-1} лазерного пучка в момент перетину фокальною точкою межі середовища;

$\Delta \omega_{\text{пер}} = \omega_{\text{пер}} - \omega_{0L}$ – максимальне зміщення миттєвої частоти лазерного пучка в момент перетину центральною частиною фокальної області межі середовища;

ε_0 – електрична стала;

θ – кут розсіювання відносно вісі z ;

λ_{0L} – початкова довжина хвилі лазерного випромінювання у середовищі;

λ_{vL} – довжина хвилі лазерного випромінювання у вакуумі;

μ_0 – магнітна стала;

τ_i – напівширина імпульсу лазерного випромінювання на рівні e^{-1} ;

τ_L – тривалість імпульсу лазерного випромінювання на половинному рівні;

T_{ro} – період релаксаційних осциляцій амплітуди нелінійної поляризації;

v_{gL} – групова швидкість лазерного імпульсу;

v_{fd} – швидкість зміни фокальної відстані самофокусування;

v_{fp} – швидкість фокальної точки самофокусування;

v_{p0a} – фазова швидкість хвилі нелінійної поляризації на частоті ω_{0a} ;

$v_{ph} \{ \omega_a \}$ – фазова швидкість антистоксового випромінювання ВКР;

ω_{0a} – циклічна частота антистоксового випромінювання без урахування фазової самомодуляції та руху фокальної області (комбінаційна частота);

ω_{0L} – циклічна частота лазерного випромінювання без урахування фазової самомодуляції;

ω_{0s} – циклічна частота стоксового випромінювання без урахування фазової самомодуляції та руху фокальної області (комбінаційна частота);

$\omega_{пер}$ – миттєва частота осьового лазерного випромінювання в момент перетину центральною частиною фокальної області межі середовища;

ω_a – циклічна частота антистоксового випромінювання;

ω_L – циклічна частота лазерного випромінювання;

ω_{Lf} – частота лазерного випромінювання у фокальній точці з урахуванням самофокусування і фазової самомодуляції;

$f \{ x \}$ – для вказування аргументу x функції f ;

$f |_{x=...}$, або $f \{ x = ... \}$ – для вказування значення функції f за аргументу x ;

$|f|$ – модуль функції f ;

$\langle f \rangle_x$ – усереднення функції f за змінною x ;

$f \rightarrow ...$ – тенденція зміни функції;

$f^{(...)}$ – для вказування додаткових індексів;

\mathbf{k} або \vec{k} – векторні величини (у даному випадку це є хвильовим вектором).

$\text{Max}[f]$ – максимальне значення функції f ;

$\text{Min}[f]$ – мінімальне значення функції f ;

$x \rightarrow ...$ – напрямок зміни аргументу функції або заміна аргументу функції;

\equiv – для вказування тотожності величин, зокрема, за введення нових позначень.

ВСТУП

У керівських середовищах процес самофокусування є динамічним процесом, оскільки залежить від миттєвої потужності імпульсів лазерного випромінювання [1]. Динаміка самофокусування породжує характерні особливості супутніх нелінійних процесів, зокрема, ВКР [2].

Переважає вважається, що сам ефект самофокусування, хоча і є цікавий з фізичної точки зору, проте не має перспектив практичного використання та відіграє негативну роль, оскільки ускладнює перебіг інших „корисних” нелінійно-оптичних процесів і знижує стійкість прозорих середовищ до інтенсивного лазерного випромінювання [3]. Нові дослідження показують можливість перегляду таких поглядів. Зокрема, подальшого розвитку набуває ідея самоканалювання потужних ультракоротких лазерних імпульсів [4, 5]. Досягнута інтенсивність $\sim 10^{19}$ Вт/см² у філаментах із радіусом ~ 500 нм та довжиною ~ 2 мм відкриває нові перспективи у створенні рентгенівських лазерів, імпульсних джерел швидких нейтронів та генерації магнітних полів більших 10 МГц [6]. Надзвичайно ефективним є використання самофокусування як методу синхронізації мод у лазерах для генерації ультракоротких імпульсів фемтосекундного діапазону [7]. Очевидно, що коло практичного використання явища самофокусування надалі зростатиме.

Можливості практичного використання ефекту самофокусування залежать від детального його пізнання. Подальші перспективи поглиблення знань про самофокусування відкрилися унаслідок розвитку техніки й методів досліджень та нових можливостей комп'ютерного експерименту. Так, чутливість частотно-кутових характеристик та інтенсивності ВКР до параметрів фокального об'єму дає змогу розглядати ВКР як метод дослідження самофокусування.

Нелінійні оптичні процеси, які в обмежених за довжиною середовищах виникають за великої потужності світлових променів, переважно реалізуються за використання імпульсних лазерів. Тривалість лазерних імпульсів змінюється від десятків наносекунд до десятків фемтосекунд. Тривалість імпульсів суттєво впливає на динаміку перебігу нелінійних оптичних процесів, оскільки протягом імпульсу змінюється як миттєва потужність випромінювання, так і розташування області наведеної нелінійної поляризації. Чим коротші імпульси, тим швидша

зміна їх миттєвої потужності на фронті та спаді.

Досить складним є питання впливу огинаючої імпульсу в наносекундному діапазоні у випадку середовищ, в яких виявляється ефект Кера. В таких середовищах внаслідок самофокусування зміна потужності світлового променя спричиняє зміни перетину лазерного пучка та веде до переміщення області максимальної інтенсивності світла. Ефективність нелінійних оптичних процесів зростає в областях самофокусування, де інтенсивність світла максимальна. Тож переміщується і область, в якій відбуваються нелінійні оптичні процеси. Така ситуація близька до випадку коротших імпульсів пікосекундного та фемтосекундного діапазонів, але має свої характерні особливості.

Область максимальної нелінійної поляризації середовища у випадку пікосекундних чи фемтосекундних імпульсів рухається майже з груповою швидкістю світла [8], а в наносекундному діапазоні зі швидкістю фокальної області самофокусування [1]. Швидкість фокальної області загалом може змінюватися протягом лазерного імпульсу від нульової поблизу вершини імпульсу до надсвітлової на фронтах. Більш того, змінюється і знак швидкості: від позитивного, якщо фокальна область рухається у напрямку поширення світлового променя, до негативного в протилежному випадку.

Нульова чи близька до нульової швидкість області максимальної нелінійної поляризації еквівалентна використанню звичайних лінз для будь-якої тривалості лазерних імпульсів. Проте, для великих швидкостей, а тим більше надсвітлових, виникає своєрідна ситуація, яку неможливо реалізувати в інших умовах чи іншими засобами. За надсвітлових швидкостей виникають певні аналогії з черенковським випромінюванням, особливо, якщо брати до уваги поперечну обмеженість фокальної області [9]. Тож, за збудження лазерними імпульсами наносекундної тривалості розширюється коло можливих реалізацій динаміки перебігу нелінійних оптичних процесів.

Резюмуючи наголосимо, незалежність швидкості переміщення області існування нелінійної поляризації середовища безпосередньо від групової та фазової швидкості світла є унікальною і реалізується саме в наносекундному діапазоні тривалостей лазерних імпульсів випромінювання. В зв'язку з цим є важливими теоретичні, а тим більш, експериментальні дослідження перебігу параметричних нелінійних оптичних процесів, які вимагають умов групового та фазового синхронізмів. У випадку змінної швидкості області існування

поляризації за самофокусування параметричні нелінійні оптичні процеси набувають динамічність, яка впливає на результуючий спектр розсіяного світла.

Раніше такі дослідження з вказаною постановкою питання системно не виконувалися, незважаючи на їх актуальність. Переважно вважалося, що область існування нелінійної поляризації є обмеженою у просторі та не рухається за фокусування звичайними лінзами або її швидкість наближається до групової швидкості збуджуючих імпульсів. Актуальність досліджень обумовлена тим, що на сьогодні технології досягли розвитку, коли групова швидкість світла на трасі може в принципі бути змінною величиною в структурованих середовищах, а форма імпульсів випромінювання є керованою.

Важливим є питання чи супроводжується рух області існування нелінійної поляризації за зміни фокальної відстані додатковою наведеною зміною фази поляризації. Можливі два полярні випадки, які підлягають аналізу в наближеннях „тонкої” та „товстої” лінзи.

У випадку „тонкої” лінзи, коли відбуваються часові зміни кривизни поверхонь лінзи, а її товщина є фіксованою і близькою до нульової, додаткові зміни фази поляризації відсутні. Тож, фаза нелінійної поляризації визначається лише фазою збуджуючого випромінювання та нелінійною сприйнятливістю, яка є комплексною величиною. Таку ситуацію досить складно реалізувати, але можливо, зокрема, використовуючи п'єзокерамічні елементи для зміни кривизни поверхонь лінзи або оптично керовані наведені лінзи під дією коротких світлових імпульсів із заданим поперечним розподілом інтенсивності.

Складнішою є ситуація використання явища самофокусування у керівських середовищах. У цьому випадку наводиться „товста” лінза і змінюється як її кривизна, так і товщина. Часова залежність товщини лінзи спричиняє додаткові зміни фази збуджуючого випромінювання і, як наслідок, фази нелінійної поляризації. Виникає фазова самомодуляція, а потому, і крос-модуляція. Зміни фази пов'язані зі зміною миттєвої інтенсивності збуджуючого випромінювання і виникають як на шляху до фокальної точки, так і на шляху від фокальної точки до вихідної межі середовища.

У загальному маємо складну ситуацію переміщення області нелінійної поляризації, додаткові зміни її фази та зміни фази розсіяного випромінювання. Така складність проблеми тривалий час стримувала її детальний аналіз, та не спонукала до практичних використань явища самофокусування.

Самодефокусування теж дає можливість впливу на перебіг нелінійних оптичних процесів, але є менш ефективним. Цікавими є можливості зменшення швидкості світлових імпульсів у фоторефрактивних середовищах [10].

Питання про швидкість фокальної області в керівських рідинах, фазу збуджуючого випромінювання у фокальній області та зміни фази розсіяного випромінювання теоретично можуть розглядатися незалежно, але пов'язані у кожній практичній реалізації.

Відомими керівськими середовищами, здатними до самофокусування, і які самі по собі є нелінійними оптичними середовищами, де виникають різні нелінійні процеси, є органічні рідини. Переважно це є „класичні” для ВКР органічні рідини починаючи з бензолу та його похідних. У цих рідинах виникає ВКР та вимушене розсіювання Мандельштама-Брілюена (ВРМБ) тощо. Параметричні компоненти ВКР особливо чутливі до умов самофокусування, внаслідок залежності від фази поляризації. Комбінаційні компоненти ВКР та компоненти ВРМБ є менш залежними, але їх інтенсивність та спектр теж залежать від самофокусування. Інші нелінійні процеси, такі як генерація гармонік тощо, внаслідок ізотропності рідини, загалом є неістотними.

Таким чином, необхідно концентрувати увагу на динаміці параметричних компонентах ВКР у керівських середовищах за дослідження впливу самофокусування і фазової самомодуляції. Антистоксова область спектра є експериментально простішою у дослідженні, оскільки вплив ефективніших стоксових комбінаційних процесів не заважає вимірюванням.

Актуальність теми. Необхідність виконання комплексних досліджень з наукової проблеми, яка стосується з'ясування фундаментальних фізичних механізмів і прикладних аспектів динаміки нелінійно-оптичних процесів у керівських рідинах, а саме, особливостей кутової структури та природи великих спектральних розширень ліній вимушеного комбінаційного розсіювання (ВКР) в умовах самофокусування і фазової самомодуляції збуджуючого лазерного випромінювання, зумовлена широким колом як існуючих, так і можливих у перспективі прикладних застосувань.

Насамперед, тема дисертаційної роботи є актуальною загалом, тому що попередні спроби вирішення вказаної наукової проблеми були недостатньо результативними, що стримувало подальший розвиток наукових засад як нелінійної оптики, так і квантової радіофізики, а також, практичне використання

ВКР у самофокусуємих середовищах і ефекту самофокусування для вдосконалення існуючих та створення новітніх технологій і приладів.

Відомо що, подальшого розвитку набуває ідея самоканалювання імпульсів лазерного випромінювання. На сьогодні досягнута інтенсивність $\sim 10^{19}$ Вт/см² у філаментах із радіусом ~ 1 мкм та довжиною ~ 2 мм відкриває нові перспективи створення рентгенівських лазерів та інших імпульсних джерел когерентного випромінювання. Достатньо ефективним є використання самофокусування як методу синхронізації мод у лазерах для генерації ультракоротких імпульсів фемтосекундного діапазону. Коло практичного використання явища самофокусування поступово розширюється, а можливості подальшого практичного використання цього ефекту залежать від деталізованого його аналітичного опису та супутніх фізичних процесів.

Високоєфективні ВКР-перетворювачі на основі самофокусуємих рідких середовищ (керівських рідин), подальшого розвитку яких стосується робота, становлять значний практичний інтерес з точки зору використання для керування формою оптичних імпульсів, їх спектрів, статистикою лазерного випромінювання, його просторовими розподілами.

Натепер, навіть у складних завданнях створення генераторів когерентного випромінювання на основі ВКР з довжиною хвилі $\lambda = 1,53$ мкм від неосновної лінії неодимового лазера з $\lambda = 1,34$ мкм у безпечному для очей людини діапазоні та такого, що припадає на ділянки прозорості атмосфери й оптоволокна, квантова ефективність перетворення у першу стоксову компоненту сягає близько 70 % у кристалах ВаWO₄. Перспективним напрямком використання ВКР стало пряме підсилення оптичних інформаційних сигналів на магістральних оптоволоконних лініях зв'язку. Це також визначає актуальність теми й необхідність детального вивчення усіх закономірностей процесу ВКР у різних середовищах.

Когерентна антистоксова раманівська спектроскопія та її практична реалізація у вигляді антистоксового ВКР дає змогу суттєво доповнювати інформацію про середовище, отриману традиційними спектроскопічними методами. Проте природа спектральних розширень антистоксових ліній ВКР в самофокусуємих органічних рідинах за великих рівнів збудження залишається неповністю з'ясованою. Роль механізму фазової модуляції, що супроводжує ефект самофокусування, у спектральних розширеннях антистоксових ліній є важливим

аспектом цієї проблеми. Тому виконані в роботі оцінки значимості фазової модуляції для формування спектрів антистоксового випромінювання можна розглядати як актуальний розвиток фізичних засад сучасних методів спектрального аналізу. Поставлена проблема є досить складною, оскільки вимагає врахування динаміки змін розташування та розмірів фокальної області.

Актуальність проблеми з точки зору розвитку технологій лазерної медицини та її технічного забезпечення полягає у пошуку нових вирішень ряду фізико-технічних проблем, зокрема: оптимізації специфічної дії інтенсивного світла на біологічні тканини в режимі лазерної фотоабляції завдяки покращенню оптичної якості випромінювання багатомодових лазерних джерел з одночасним переналаштуванням їх частоти та скороченням тривалості імпульсів; стимуляції у глибоко розташованих шарах біологічних тканин додаткового локального та селективного поглинання світла лазерних джерел видимого діапазону шляхом резонансного збудження молекулярних коливань заданої підсистеми під дією випромінювання двох довжин хвиль.

Робота має важливе значення для досягнення розуміння фізичних механізмів, відповідальних за асиметрію ВКР. Питання щодо природи асиметрії індикатриси ВКР відноситься до розряду фундаментальних.

Актуальність досліджень впливає також з того, що існуючі на сьогодні уявлення про фазову самомодуляцію лазерного випромінювання в керівських рідинах, яка супроводжує ефект самофокусування, та її вплив на ВКР-генерацію антистоксової компоненти носять лише якісний характер і не враховують повною мірою змін, які відбуваються у розташуванні фокальної області та її геометричних розмірах залежно від інтенсивності випромінювання.

У роботі розглядається актуальний аспект проблеми удосконалення ВКР-перетворювачів – „ефект абсолютного насичення”, який полягає у повному припиненні зростання або навіть зменшенні енергії стоксової компоненти, в яку перетворюється лазерне випромінювання, після досягнення деякого рівня, незважаючи на подальше збільшення енергії імпульсу накачки.

Актуальність теми є очевидною з точки зору дослідження випромінювання перехідного та черенковського типу в керівських рідинах, оскільки таке випромінювання може використовуватися для створення принципово нових джерел фазомодульованих надкоротких моноімпульсів когерентного

випромінювання або послідовності таких імпульсів. Підбором умов можна забезпечити коливний рух осередків нелінійної поляризації на межі середовищ, а отже, й ефективну трансформацію амплітудної модуляції світлових сигналів у відповідну спектрально-фазову модуляцію.

До того ж, актуальність роботи обумовлена необхідністю створення двочастотних джерел потужного когерентного випромінювання видимого діапазону з невеликим спектральним інтервалом. Випромінювання таких джерел на основі генерації різницевої частоти може бути трансформоване в терагерцовий діапазон електромагнітного випромінювання, яке все більше використовується в дослідженнях структурних і функціональних властивостей біологічних систем різної міри складності, медичній діагностиці, вивченні потенційно генотоксичних ефектів. Терагерцові сканери знаходять широке застосування для виявлення наркотиків і вибухонебезпечних матеріалів. Ускладненням на цьому шляху виступає саме проблема створення достатньо потужних джерел терагерцового діапазону.

Надзвичайно важливим є питання високої ефективності переналаштування лазерного випромінювання в антистоксову компоненту ВКР, що висвітлюється у роботі. Раніше повідомлялося про досягнення миттєвої квантової ефективності перетворення 60 % на обертальних рівнях у водні внаслідок швидкого перемикавання поляризації збуджуючого випромінювання CO₂-лазера. Послідовно вирішується питання створення ефективних антистоксових ВКР лазерів з одночастотним та двочастотним когерентним збудженням у зовнішньому резонаторі. У літературі зазначається можливість створення антистоксових ВКР-лазерів для вакуумного ультрафіолетового діапазону з довжинами хвиль $\lambda = 120 \div 200$ нм та квантовою ефективністю 73 ÷ 94 % у водні з додатковими тонкими шарами MgF₂.

Також мають актуальність інші відомі напрями застосування ВКР: покращення оптичної якості (очищення) лазерного випромінювання; когерентне зведення лазерних пучків або сумація лазерних імпульсів, зокрема, в мікроспектроскопії; компресія світлових імпульсів; генерація солітонів; обернення та корекція хвильового фронту; спектроскопія імпульсного збудження ВКР та оберненого комбінаційного розсіювання, когерентна антистоксова спектроскопія; оптична томографія для медицини.

Практичне використання явища самофокусування буде зростати, оскільки виявляються нові ідеї та методи їх реалізації. Зокрема, поєднання можливостей ВКР, як ефективного методу переналаштування частоти лазерного випромінювання, та можливостей самофокусування, як методу просторового сканування потужними згустками електромагнітного поля зі швидкістю, незалежною від швидкості світла (та навіть надсвітловою), дає змогу трансформувати імпульс лазерного випромінювання у довільну послідовність субімпульсів із заданими для кожного субімпульсу тривалістю та частотою.

Фазова самомодуляція лазерних імпульсів суттєво ускладнює перебіг супутніх нелінійних оптичних процесів у керівських середовищах, зокрема ВКР. Тож у певному розумінні, фазова самомодуляція виглядає як негативний для інженерної практики ефект. Проте, спостерігається тенденція до використання фазової самомодуляції для створення новітніх приладів. Зокрема, можливі наступні напрями застосування: компресія імпульсів, чирпування імпульсів, синхронізація мод, генерація солітонів.

Отже, на разі актуальною фізичною проблемою є дослідження фізичних закономірностей, які визначають динаміку різних оптичних процесів у керівських рідинах і, насамперед, особливості частотно-кутової структури та природи великих спектральних розширень ліній ВКР в умовах самофокусування і фазової самомодуляції лазерного випромінювання.

Зв'язок роботи з науковими програмами, планами, темами. Робота виконана відповідно до тематики досліджень, які проводились та проводяться на факультеті радіофізики, електроніки та комп'ютерних систем Київського національного університету імені Тараса Шевченка. Розпочиналася робота за виконання науково-дослідної роботи „Дослідження когерентних і нелінійних процесів взаємодії лазерного випромінювання з речовиною та їх використання в оптичному приладобудуванні і лазерних технологіях” у рамках Комплексної програми Київського університету та науково-дослідної роботи „Фізичні принципи нових медичних технологій, що базуються на застосуванні радіофізичної інтроскопії, спектрометрії, лазерного випромінювання” затвердженою Кабінетом міністрів України. Завершувалася робота в рамках пріоритетних фундаментальних науково-дослідних робіт: „Фізичні та інформаційні процеси у конденсованому середовищі та біологічних системах з великою кількістю зв'язків” (№11БФ052-03); „Дослідження ефектів взаємодії

електромагнітних та акустичних полів з впорядкованими, наноструктурованими та біологічними системами для створення новітніх технологій” (№11БФ052-04).

Мета та задачі дослідження. Метою роботи є вирішення актуальної наукової проблеми встановлення фізичних механізмів і закономірностей спектральних розширень лазерного та розсіяного випромінювання у керівських ВКР-активних рідинах, які обумовлені динамікою самофокусування. У роботі поглиблено досліджується самофокусування, ВКР, фазова самомодуляція, взаємозв'язок супутніх процесів та принципи їх практичного використання.

Для досягнення поставленої мети вирішувалися наступні задачі:

- удосконалення експериментальних засобів та методів реєстрації локальних параметрів фокальної області, зміни характеристик лазерного випромінювання і розсіяного світла вдовж осі керівського середовища;
- експериментальне та теоретичне дослідження ефекту самофокусування у керівських рідинах із урахуванням групової швидкості світла;
- експериментальне дослідження локальних спектрів фазомодульованого лазерного випромінювання за трасою зміщення фокальних областей;
- теоретичне пояснення дії перехідного ефекту на формування спектра лазерного випромінювання на вихідній межі керівського середовища;
- експериментальне дослідження частотно-просторово-кутових спектрів параметричних ВКР-компонент у керівських рідинах;
- визначення взаємозв'язку між швидкістю нелінійної поляризації, швидкістю фокальної точки самофокусування та частотним розширенням ліній ВКР із урахуванням фазової самомодуляції лазерного випромінювання;
- урахування впливу конкуренції параметричних та комбінаційних процесів на асиметрію розсіювання ВКР;
- пояснення дії релаксаційних осциляцій на частотно-кутову структуру спектрів антистоксової компоненти ВКР;
- теоретично-експериментальний аналіз нових методів генерації субнаносекундних імпульсів ВКР та їх підсилення за дії наносекундних лазерних імпульсів;
- підвищення квантової ефективності генерації стоксового ВКР на основі комбінованого багаточастотного збудження чи використання наночастинок благородних металів.

Об'єкт дослідження: фізичні процеси, що обумовлюють взаємний вплив самофокусування, фазової самомодуляції та вимушеного розсіювання лазерного випромінювання.

Предмет дослідження: керівські рідини (зокрема: толуол, ксилол, бромбензол, бензол, бромформ), умови синхронізму, ВКР, випромінювання перехідного та черенковського типу, асиметрія розсіювання.

Методи дослідження. Для експериментальних досліджень параметрів ВКР та самофокусування використовувалися загальновідомі класичні методи оптичної спектроскопії видимого діапазону та удосконалені або розроблені методи реєстрації частотно-кутових спектрів, просторово-кутових спектрів, частотно-просторових спектрів. Для теоретичних досліджень параметрів ВКР та самофокусування використовувалися аналітичні та числові методи розв'язку хвильового рівняння за наявності нелінійної поляризації та різного спектрального складу випромінювання.

Достовірність результатів забезпечується використанням удосконаленого експериментального обладнання та надійних оптичних експериментальних методів, обґрунтованістю запропонованих фізичних моделей досліджуваних процесів, коректністю виконаних теоретичних розрахунків, взаємоузгодженням теоретичних і експериментальних даних, отриманих із застосуванням різних незалежних експериментальних методик. Автором запропоновані удосконалені методи дослідження та комплексний підхід до їх використання.

Наукова новизна одержаних результатів. Новизна результатів дисертаційної роботи полягає в розробці фізичних основ поглибленого дослідження закономірностей динаміки нелінійно-оптичних процесів у керівських рідинах, у результатах експериментальних досліджень та в теоретичному поясненні отриманих закономірностей на аналітичному рівні.

У роботі вперше:

- Поєднано використання методів реєстрації частотних, кутових, частотно-кутових, просторово-кутових, частотно-просторових спектрів для встановлення фізичних механізмів і закономірностей, які визначають динаміку нелінійно-оптичних процесів у керівських рідинах.

- На основі експериментальних даних з урахуванням групової швидкості світла аналітично узагальнено результати щодо розташування, швидкості,

прискорення фокальної точки самофокусування та розподілів інтенсивності лазерного випромінювання в фокальній області для керівських рідин у наносекундному діапазоні тривалостей лазерних імпульсів.

- Доведено, що рух фокальної області в самофокусуєчих середовищах сам по собі впливає на частоту випромінювання параметричних компонент ВКР. Зміщення частоти антистоксових та вищих стоксових компонент відносно комбінаційного резонансу обумовлене необхідністю виконання умови амплітудно-фазового синхронізму, за якого фазове узгодження хвиль поля і нелінійної поляризації реалізується в околі максимальної амплітуди поляризації, що переміщується разом з фокальною областю.

- Експериментально виявлено, що за фазової самомодуляції лазерних імпульсів наносекундного діапазону внаслідок квазістаціонарного самофокусування саме перехідний ефект є відповідальним за породження нових спектральних компонент, зміщених до $\sim 100 \text{ см}^{-1}$ та переважно в стоксів бік відносно частоти збуджуючого лазерного випромінювання. З використанням теоретичного опису визначено часові та енергетичні характеристики випромінювання, що породжується внаслідок перехідного ефекту.

- Встановлено взаємний вплив швидкості руху фокальної точки та фазової самомодуляції на частотно-кутові спектри антистоксової компоненти ВКР. Пояснено утворення протяжних антистоксових частотно-кутових смуг ВКР. У випадку збігання швидкості фокальної точки самофокусування з фазовою швидкістю нелінійної поляризації на антистоксовій комбінаційній частоті та фазовою швидкістю розсіяного осьового випромінювання утворюються найінтенсивніші частотно-кутові смуги, які описуються співвідношеннями, характерними для черенковського випромінювання.

- Показано, що в режимі самофокусування збуджуючого випромінювання та релаксаційних часових коливань амплітуди нелінійної поляризації частотно-кутова структура параметричних компонент ВКР має свої особливості: максимум енергії випромінювання зміщується щодо комбінаційних частот, а відлаштування частоти залежить від кута розсіювання.

- Отримано експериментальні дані з часовою роздільністю та здійснено теоретичний опис асиметрії індикатриси стоксової компоненти ВКР під впливом стокс-антистоксових параметричних процесів.

Практичне значення одержаних результатів. Результати проведених досліджень визначають фізичні механізми, які зумовлюють спектральний склад лазерного випромінювання та ВКР у керівських рідинах з урахування динаміки фокальної ділянки самофокусування, а також, особливість взаємозв'язку параметрів лазерних імпульсів наносекундного діапазону з індикатрисою розсіювання світла. Робота має важливе наукове значення для розвитку фізичних засад нелінійної оптики, лазерної фізики та квантової радіофізики.

Результати роботи є основою прикладних застосувань та розвитку лазерних технологій. Практичне значення роботи полягає в наступному:

- Створення джерел надкоротких імпульсів когерентного випромінювання, побудованих на принципах вимушеного випромінювання черенковського типу та перехідного ефекту від згустків нелінійної поляризації;
- Побудова свіп-генераторів когерентного випромінювання з динамічною перебудовою частоти за зміни швидкості фокальної області самофокусування;
- Реалізація трансформерів імпульсів лазерного випромінювання у послідовність субімпульсів із заданими для кожного субімпульсу тривалістю та частотою на основі поєднання ВКР, як методу переналаштування частоти лазерного випромінювання, та самофокусування, як методу просторового сканування потужними згустками електромагнітного поля з довільною швидкістю (навіть надсвітлової);
- Удосконалення ВКР-лазерів з керованими характеристиками випромінювання (переналаштування частоти, покращення параметрів лазерного випромінювання);
- Розвиток спектроскопії ВКР, оберненого комбінаційного розсіювання та когерентної антистоксової спектроскопії;
- Розширення методів оптичної спектрометрії на частотно-кутово-просторові параметри.

Особистий внесок здобувача. Автором особисто створена базова експериментальна установка для виконання досліджень за темою дисертаційної роботи, здійснено апгрейд окремих реєструючих приладів, запропоновані та реалізовані методи просторової фільтрації кутових спектрів і реєстрації локальних частотно-кутових спектрів ВКР, розроблено фізичні моделі досліджуваних процесів та принципи теоретичних розрахунків.

Усі роботи за переліком публікацій у фахових виданнях [11 - 43] та збірниках матеріалів і тез доповідей наукових конференцій [44 - 84] автор виконав у співавторстві з науковим консультантом (Коротков П. А), а також, аспірантами та студентами кафедри, в яких він був науковим керівником. Усі дослідження проводилися на факультеті радіофізики, електроніки та комп'ютерних систем. Для консультацій та порівняльного аналізу залучалися провідні фахівці, зокрема, Понежа Г. В., з яким автор розпочинав дослідження.

Автор брав головну участь у деталізації задач у межах теми роботи та безпосередню участь у підготовці та проведенні всіх експериментальних і теоретичних досліджень, а також, в обробці, порівняльному аналізі та інтерпретації результатів, які покладено в основу дисертації.

Дисертанту належить основний творчий внесок у підготовку та написання наукових статей, опублікованих за темою дисертації. Зокрема, ним написані всі публікації, у яких відображено новизну результатів дисертації, а також здійснено наукове редагування перед поданням до друку. Роботи [11, 82, 84] опубліковані особисто автором.

Апробація результатів дисертації. Результати оприлюднено на конференціях [44 - 84]: XV-th International School-Seminar “Spectroscopy of Molecules and Crystals” (23 - 30 June, 2001, Chernihiv, Ukraine), XVI-th International School-Seminar “Spectroscopy of Molecules and Crystals” (25 May - 1 June, 2003, Sevastopol, Ukraine), III-rd International Young Scientists’ Conference on Applied Physics (18 - 20 June, 2003, Kyiv, Ukraine), V-th International Conference on Laser and Fiber-Optical Networks Modeling (19 - 20 September, 2003 Alushta, Ukraine), IV-th International Young Scientists Conference Problems of Optics & High Technology Material Science (23 - 26 October, 2003, Kyiv, Ukraine), 8-й Международный молодежный форум „Радиоэлектроника и молодежь в XXI веке” (13 - 15 апреля, 2004, Харьков, Украина), IV-th International Young Scientists’ Conference on Applied Physics (21 - 23 June, 2004, Kyiv, Ukraine), VI-th International Conference on Laser and Fiber-Optical Networks Modeling (6 - 9 September, 2004, Kharkiv, Ukraine), V-th International Young Scientists’ Conference on Applied Physics (20-22 June, 2005, Kyiv, Ukraine), VII-th International School-Seminar “Spectroscopy of Molecules and Crystals” (25 - 26 September, 2005, Sevastopol, Ukraine), VI-th International Young Scientist Conference Problems of Optics and High Tecnology Material Science (27 - 30 October, 2005, Kyiv, Ukraine), I-st International Conference "Electronics and Applied

Physics" (24 - 27 November, 2005, Kyiv, Ukraine), VI-th International Young Scientists' Conference on Applied Physics (14 - 16 June, 2006, Kyiv, Ukraine), II-nd International Conference "Electronics and Applied Physics" (11 - 14 October, 2006, Kyiv, Ukraine), VII-th International Young Scientists' Conference on Applied Physics (13 - 15 June, 2007, Kyiv, Ukraine), XVIII-th International School-Seminar "Spectroscopy of Molecules and Crystals" (20 - 27 September, 2007, Beregove, Crimea, Ukraine), VIII-th International Young Scientists' Conference on Applied Physics (11 - 13 June, 2008, Kyiv, Ukraine), IX-th International Young Scientists' Conference on Applied Physics (17 - 20 June, 2009, Kyiv, Ukraine), V-th International Conference "Electronics and Applied Physics" (21 - 24 October, 2009, Kyiv, Ukraine), X-th International Young Scientists' Conference on Applied Physics (16 - 19 June, 2010, Kyiv, Ukraine), VI-th International Conference "Electronics and Applied Physics" (20-23 October, 2010, Kyiv, Ukraine), XI-th International Young Scientists' Conference on Applied Physics (15 - 18 June, 2011, Kyiv, Ukraine), VII-th International Conference "Electronics and Applied Physics" (19 - 22 October, 2011, Kyiv, Ukraine), XX-th International School-Seminar of Galyna Puchkovska "Spectroscopy of Molecules and Crystals" (20 - 27 September, 2011, Beregove, Crimea, Ukraine), XII-th International Young Scientists' Conference on Applied Physics (23 - 26 May, 2012, Kyiv, Ukraine), VIII-the International Conference "Electronics and Applied Physics" (24 - 27 October, 2012, Kyiv, Ukraine), II-nd International Workshop "Nonlinear Photonics" (10 - 11 September, 2013, Sudak, Crimea, Ukraine), XXI-th Galyna Puchkovska International School-Seminar "Spectroscopy of Molecules and Crystals" (22 -29 Sept., 2013, Beregove, Crimea, Ukraine), IX-th International Conference "Electronics and Applied Physics" (23-26 October, 2013, Kyiv, Ukraine), XIV-th International Young Scientists' Conference on Applied Physics (11 - 14 June, 2014, Kyiv, Ukraine), X-th International Conference "Electronics and Applied Physics" (22 - 25 Oct., 2014, Kyiv, Ukraine).

Публікації. Результати дисертації опубліковані в 33 статтях у періодичних фахових виданнях [11 - 43] та 36 збірниках реферованих наукових праць і 5 тез доповідей конференцій [44 - 84].

Структура та обсяг дисертації. Робота складається з вступу, семи розділів основного тексту з 133 рисунками, висновків, списку використаних джерел із 202 найменувань. Повний обсяг дисертації складає 343 сторінки, з яких список умовних позначень займає 5 сторінок, а список використаних джерел 24 сторінки.

РОЗДІЛ 1

ОГЛЯД ОСНОВНИХ ЕКСПЕРИМЕНТАЛЬНИХ ТА ТЕОРЕТИЧНИХ
ДОСЛІДЖЕНЬ НЕЛІНІЙНО-ОПТИЧНИХ ПРОЦЕСІВ У КЕРІВСЬКИХ
РІДИНАХ

1.1. Вимушене комбінаційне розсіювання.

Вимушене комбінаційне розсіювання світла (також відоме як вимушене раманівське розсіювання) теоретично було передбачене ще у 1935 р. Плачеком Г. [85], який зауважив на принципову можливість вимувених (за своєю суттю) процесів у комбінаційному розсіюванні на коливальних молекулярних переходах. Надалі іншими авторами розглядалися питання можливих реалізацій ВКР навіть на ядерних переходах [86] для створення гамма-лазерів.

Експериментально ВКР світла уперше спостерігалось Woodbury E. J. та Ng W. K. у 1962 р. на коливальних рівнях нітробензолу [87], хоча не отримало жодної фізичної інтерпретації від авторів роботи.

З тих часів ВКР стало об'єктом систематичних наукових досліджень і набуло застосування у вирішенні широкого кола прикладних задач.

На основі ВКР значних успіхів досягнуто в ефективному дискретному та неперервному переналаштуванні частоти лазерного випромінювання. Зокрема, на основі експериментальних даних та теоретичного аналізу визначені умови перетворення з квантовою ефективністю на рівні 96% у зустрічну першу стоксову компоненту в стисненому водні [88].

Навіть у складних завданнях створення генераторів когерентного випромінювання на основі ВКР з $\lambda = 1,53$ мкм від неосновної лінії неодимового лазера з $\lambda = 1,34$ мкм у безпечному для очей людини діапазоні та такого, що припадає на ділянки прозорості атмосфери й оптоволокна, квантова ефективність перетворення у першу стоксову компоненту по відношенню до лазерного випромінювання сягає близько 70 % в кристалах $BaWO_4$ [89]. Обмеження ефективності обумовлене утворенням інших компонент ВКР, зокрема, другої стоксової компоненти.

У випадку обрахування ефективності генерації стоксової компоненти відносно енергії випромінювання напівпровідникових світлодіодів, як джерел збудження самого лазера (Nd:YVO_4), досягнуто енергетичну ефективність ВКР 44 % у BaWO_4 на довжині хвилі $\lambda = 1,54$ мкм [90].

З плином часу ефективність ВКР, як методу переналаштування частоти лише покращується.

Надзвичайно цікавим є питання високої ефективності переналаштування лазерного випромінювання в антистоксову компоненту ВКР. Повідомлялося про досягнення миттєвої квантової ефективності перетворення 60 % на оберतालних рівнях у водні внаслідок швидкого перемикання поляризації збуджуючого випромінювання CO_2 -лазера [91]. Послідовно вирішується питання створення ефективних антистоксових ВКР лазерів з одночастотним [92] та двочастотним когерентним збудженням [93] у зовнішньому резонаторі.

В одній з останніх праць [94] зазначається можливість створення антистоксових ВКР-лазерів для вакуумного ультрафіолетового діапазону з довжинами хвиль $\lambda = 120 \div 200$ нм та квантовою ефективністю $73 \div 94$ % у водні з додатковими тонкими шарами MgF_2 . Як збуджуюче джерело пропонується четверта гармоніка Ті-сапфір лазера з $\lambda = 210$ нм. Зауважимо, що довжина хвилі α -лінії Лаймана становить 121,6 нм, тож коротші хвилі на атомарних переходах практично є нереалізовними (хоча межа Лаймана складає 91,15 нм).

Також набули актуальності інші відомі напрями застосування ВКР: покращення оптичної якості (очищення) лазерного випромінювання [95, 96]; когерентне зведення лазерних пучків (beam combining) [97, 98] або сумація лазерних імпульсів (pulse combining) [99, 100], зокрема, в мікроспектроскопії [101]; компресія світлових імпульсів [102 - 104]; генерація солітонів [105, 106]; обернення та корекція хвильового фронту [107, 108]; спектроскопія імпульсного збудження ВКР та оберненого комбінаційного розсіювання, когерентна антистоксова спектроскопія [109 - 111]; оптична томографія для медицини [112 - 115].

Широке коло застосування ВКР вказує на важливість повного та детального дослідження закономірностей цього процесу в різних середовищах та умовах.

Оскільки для збудження ВКР використовуються інтенсивні лазерні пучки, то на розсіяння впливають інші нелінійно-оптичні процеси, зокрема, самофокусування у керівських середовищах [116].

Використання основ теорії ВКР [117 - 119] для опису експериментальних даних дає задовільні результати тільки у газах і деяких кристалічних середовищах із слабкою здатністю до самофокусування. Незважаючи на зусилля теоретично [120] чи на основі експериментальних досліджень [107] з'ясувати фізичні механізми, що обумовлюють характерну кутову структуру та великі спектральні розширення ліній ВКР у самофокусуєчих середовищах, бажаного результату досягти не удалося. Висновки, зроблені на основі проведених досліджень, були не завжди достатньо обґрунтованими та значною мірою суперечливими. Виявлені особливості процесу ВКР, що не дістали належного пояснення, назвали „аномаліями” ВКР [121].

Такий стан проблеми обумовлювався тим, що експериментальні дослідження частотно-кутової структури ВКР-випромінювання у самофокусуєчих середовищах в абсолютній більшості проводилися без достатньої часової та просторової роздільності, тому одержувана інформація була інтегральною впродовж збуджуючого лазерного імпульсу та уздовж осі нелінійного середовища, а отже, й траси руху фокальної області. Крім того, не був відпрацьований метод, який одночасно з частотними та кутовими спектрами давав би інформацію щодо потужності самофокусованого випромінювання, яка за непрямокутної форми лазерного імпульсу та ефекту дрібномасштабного самофокусування зазнає протягом тривалості імпульсу значних змін. Внаслідок цього експериментальна інформація у вигляді інтегральних кутових чи частотно-кутових спектрів не давала змоги робити остаточні висновки відносно тих чи інших фізичних механізмів формування аномальної частотно-кутової структури ВКР-випромінювання.

До того ж, за теоретичного аналізу кутової структури ігнорувалася можливість істотного виснаження збуджуючого випромінювання у фокальних областях самофокусування і внаслідок цього різкого скорочення ефективної довжини взаємодії хвиль, вплив конкуренції параметричних та комбінаційних процесів на частотно-кутову структуру вищих антистоксових компонент.

З іншого боку, за розгляду спектральних розширень ліній ВКР послідовно не враховувалося, що наведена нелінійна поляризація на комбінаційних частотах може мати надсвітлову швидкість і за самофокусування збуджуючого пучка створюються умови для широкосмугового випромінювання черенковського типу. Спроби врахувати надсвітлову швидкість нелінійної поляризації за ВКР носили загальний характер або поширювалися лише на кутову структуру [122].

Певний прогрес було досягнуто в роботах [123 - 126]. Авторами було розроблено основи методу просторової фільтрації кутових спектрів, який завдяки просторовій та часовій роздільній здатності є адекватним щодо вивчення ВКР під впливом самофокусування. За допомогою цього методу вперше було вирішено проблему прямих експериментальних досліджень локалізації розсіювання і зміни кутової структури ВКР-випромінювання уздовж осі нелінійно-оптичного середовища, а також визначення потужності самофокусованої частини збуджуючого лазерного пучка. Шляхом прямих експериментальних досліджень на прикладі толуолу було доведено, що в типових самофокусуєчих рідинах ВКР локалізоване в фокальних областях збуджуючого випромінювання, а розподіл інтенсивності розсіяного світла уздовж осі нелінійно-оптичного середовища безпосередньо зв'язаний з рухом цих областей. Встановлено, що на більшій частині траси руху фокальних областей, прилеглої до вихідної межі середовища, кути переважного розсіяння залишаються майже незмінними, але є тенденція до їх зменшення з наближенням до точки траси фокуса, яка відповідає вершині лазерного імпульсу, де розсіяння зазвичай дифузне.

У цих же роботах, на основі детального зіставлення експериментальних і

розрахункових даних було встановлено, що у самофокусуєчих середовищах вирішальну роль у формуванні індикатриси параметричних ВКР-компонент відіграє, насамперед, висока ефективність перетворення самофокусованого лазерного випромінювання у першу стоксову компоненту в фокальних областях, завдяки чому подовжній розмір області існування наведеної нелінійної поляризації істотно менший за розмір самої фокальної області.

Також, було виявлений та пояснений вплив конкуренції комбінаційних і параметричних ВКР-процесів на формування частотно-кутової структури вищих антистоксових компонент у самофокусуєчих рідинах. Невідомий раніше фізичний механізм цього впливу полягає у селективному за кутами оберненому комбінаційному розсіюванні, зумовленому просторовим розмежуванням дії комбінаційних і параметричних процесів. Дістали подальший розвиток уявлення про генерацію широкосмугового випромінювання черенковського типу у самофокусуєчих рідинах (толуол, бензол тощо) від хвиль нелінійної поляризації як одну з причин частотних розширень ліній ВКР. Уявлення були поширені на нелінійну поляризацію з частотою вищих антистоксових компонент. Доведено, що розбіжності з теорією в частотно-кутовій структурі випромінювання черенковського типу є наслідком наведених спотворень хвильового фронту лазерного пучка і збільшення показника заломлення в області сильного поля.

Проте в роботах [123 - 126] не враховувалася фазова самомодуляція та „групова” часова затримка у формуванні фокальної області самофокусування. Крім того, в цих роботах відсутній аналіз впливу перехідних процесів на межі середовища в момент її перетину фокальною областю.

1.2. Самофокусування.

Ефект самофокусування був передбачений теоретично Аскарьяном Г. А. Перша його робота [127] з цього питання опублікована в 1962 р. Пізніше автор отримав диплом на відкриття з пріоритетом від 1961 р. [128]. Проте, навіть уже в попередній до [127] роботі Аскарьяном Г. А. аналізувалося питання

черенковського та перехідного випромінювання від електромагнітних хвиль [129], що має тісний зв'язок з самофокусуванням.

Незадовго питання щодо ефекту самофокусування набуло актуальності насамперед саме в зв'язку з ВКР [130]. Були проведені дослідження, які одночасно стосувалися ВКР та самофокусування [131 - 133].

Проте розв'язання проблеми, що полягає у поясненні характерної кутової структури та великих спектральних розширень ліній ВКР у самофокусуєчих середовищах, стримувалося через недостатню проробленість теорії ефекту самофокусування [116], яка задовільно спрацьовує лише у передфокальній області і не описує розподілу поля у фокусі та за ним [1, 2].

Практичне використання явища самофокусування поступово зростає [4 - 7], оскільки виявляються нові ідеї та методи їх реалізації. Зокрема, поєднання можливостей ВКР, як ефективного методу перестроювання частоти лазерного випромінювання, та можливостей самофокусування, як методу просторового сканування потужними згустками електромагнітного поля зі швидкістю, близькою до швидкості світла, дає змогу трансформувати початковий імпульс лазерного випромінювання у довільну послідовність субімпульсів із заданими наперед для кожного субімпульсу тривалістю та частотою [134].

Подальший прогрес у практичному використанні ефекту самофокусування залежить від детального його пізнання. Чутливість частотно-кутових характеристик та інтенсивності ВКР-випромінювання до параметрів фокального об'єму дає змогу розглядати ВКР методом експериментального дослідження самофокусування. Отже, вивчення закономірностей процесу ВКР у самофокусуєчих середовищах є актуальним ще й тому, що одночасно сприяє розвиткові правильних уявлень щодо явища самофокусування.

1.3. Фазова саомодуляція.

У самофокусуєчих середовищах показник заломлення залежить від амплітуди електричного поля світлового випромінювання. За використання імпульсних лазерів показник заломлення змінюється з плином часу Тож,

випромінювання набуває дещо іншої фази для кожного фрагменту імпульсу лазерного випромінювання. Внаслідок цього відбувається модуляція фази випромінювання, яка виступає як самомодуляція.

Сама по собі фазова самомодуляція (self-phase modulation) не є фундаментальним фізичним ефектом. Тому неможливо конкретно вказати на автора відкриття цього процесу. Переважно зустрічаються посилання, як на пріоритетну за авторством, роботу Симідзу Ф. (Shimizu Fujio) [135] від 1967 р., в якій вперше продемонстрована фазова самомодуляція коротких лазерних імпульсів у керівських рідинах. Але уже в 1966 р. була опублікована, наприклад, робота Симода К. (Shimoda Koichi) [133], де теоретично розглядався вплив фазової самомодуляції на ВКР в умовах самофокусування. Це ще раз підтверджує наш погляд на те, що ВКР є ефективним спектроскопічним методом дослідження як самофокусування, так і фазової самомодуляції за встановленого взаємозв'язку цих процесів.

Фазова самомодуляція суттєво ускладнює перебіг супутніх нелінійних оптичних процесів у керівських середовищах, зокрема, ВКР. Тож у певному розумінні, фазова самомодуляція виглядає як негативний для інженерної практики ефект. Проте, спостерігається тенденція до використання фазової самомодуляції для створення новітніх приладів. Зокрема, в роботі [136] зазначені наступні напрями застосування: компресія імпульсів, чирпування імпульсів, синхронізація мод, генерація солітонів.

У нашій роботі аналізується вплив фазової самомодуляції на спектри ВКР у керівських рідинах за самофокусування. Особлива увага звернена на фазову самомодуляцію за перетину фокальною областю вихідної межі середовища та вперше досліджено такий перехідний ефект, який має певну аналогію з механізмом утворення перехідного випромінювання. Буде показано, що фазова самомодуляція поряд з надсвітловою швидкістю фокальної області спричиняє утворення ВКР-випромінювання черенковського типу за кутами розсіювання.

Більш детальні посилання надані у відповідних розділах дисертаційної роботи та містяться у списку використаних джерел.

1.4. Висновки до Розділу 1.

У розділі подано огляд основних експериментальних та теоретичних досліджень нелінійно-оптичних процесів у керівських рідинах: ВКР, самофокусування, фазова самомодуляція. Відмічено наступне.

– В попередніх роботах не враховувалися послідовно фазова самомодуляція та групова часова затримка світла у формуванні фокальної області самофокусування. Крім того, відсутній аналіз впливу перехідних процесів на межі середовища в момент її перетину фокальною областю.

– Розв'язання проблеми, що полягає у поясненні характерної кутової структури та великих спектральних розширень ліній ВКР у самофокусуєчих середовищах, стримувалося через недостатню проробленість теорії ефекту самофокусування, яка задовільно спрацьовує лише в межах передфокальної області й не описує розподілу поля у фокусі та за ним.

– Недослідженими залишилися питання стосовно того, що саме фазова самомодуляція поряд з надсвітловою швидкістю фокальної області спричиняє утворення ВКР-випромінювання черенковського типу за кутами розсіювання.

– Керівські рідини надають унікальні можливості створення генераторів когерентного випромінювання з керованими характеристиками за частотою та тривалістю.

РОДІЛ 2

ЗАГАЛЬНИЙ ОПИС ЕКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЇ УСТАНОВКИ ТА МЕТОДІВ ДОСЛІДЖЕНЬ

2.1. Джерела збуджуючого випромінювання

Для збудження ВКР за самофокусування в органічних рідинах використовувався імпульсний рубіновий лазер з пасивною або активною модуляцією добротності. Активний елемент лазера з кристала рубіну та сапфіровими кінцевиками мав діаметр 8 мм, довжину активної частини 120 мм, непаралельність граней 5 кут. сек. Масова доля тривалентного хрому в рубіні становила 0,019.

Оптичне накачування кристала здійснювалося двома послідовно з'єднаними ксеноновими імпульсними лампами ИНП-1200 у двоеліпсному полірованому освітлювачі з алюмінію. Освітлювач, лампи та кристал охолоджувались дистильованою водою. Резонатор лазера переважно утворювався заднім плоским дзеркалом з коефіцієнтом відбиття 99,5 % на довжині хвилі генерації лазера 694,3 мкм і вихідною гранню активного елемента, еквівалентною дзеркалу з коефіцієнтом відбиття 7,7 %. Довжина резонатора у цьому випадку становила 30 см. Для зменшення енергії оптичного накачування добротність резонатора збільшувалась за допомогою стопи з двох скляних плоско-паралельних пластин, що розташовувались поблизу вихідної грані активного елемента. Цим одночасно підвищувалась селективність резонатора. За активної модуляції добротності використовувалося вихідне дзеркало з коефіцієнтом відбиття 50 %.

Живлення імпульсних ламп ИНП-1200 здійснювалось від серійного блока МТ42 з ємністю зарядних конденсаторів 1000 мкФ та максимальною напругою 2000 В. Велика загальна потужність блока МТ42 (15 кВт) та інтенсивне охолодження лазерного випромінювача дозволяли працювати з частотою розрядних імпульсів більшою 1 Гц. Для проведення частини досліджень у режимі поодиноких імпульсів був розроблений та виготовлений компактний

блок живлення, схема якого подана на рис. 2.1.

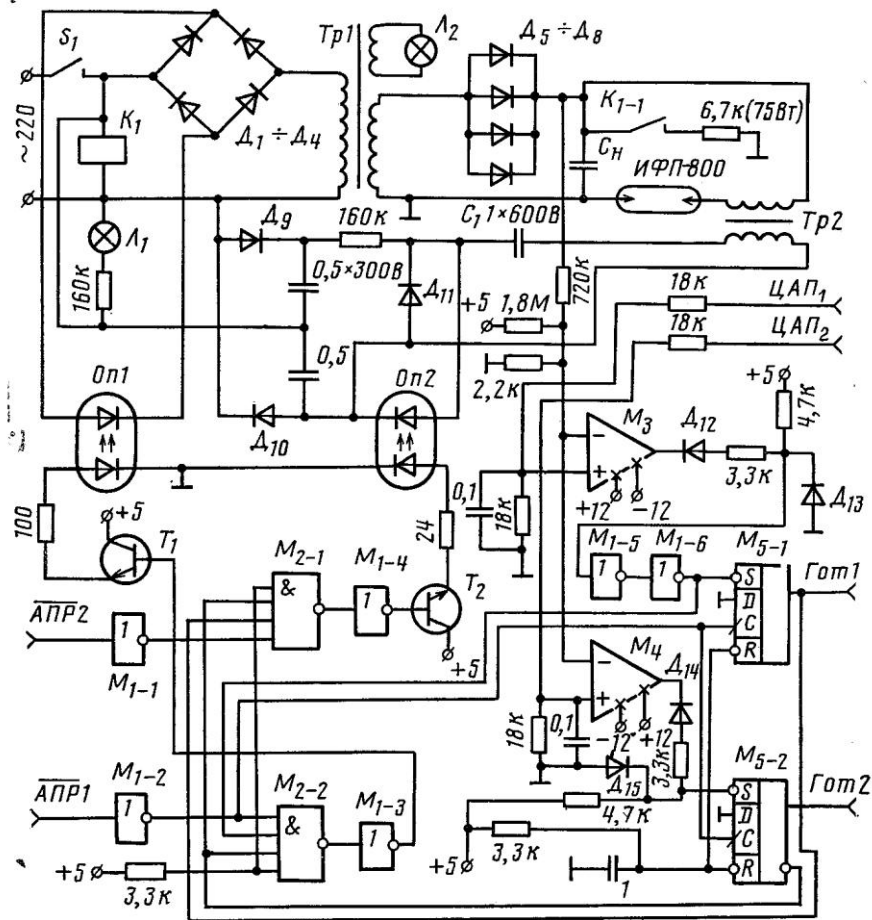


Рис. 2.1. Розроблена та використана схема блока живлення лазера з високим коефіцієнтом корисної дії.

Цей блок відрізняється від відомих аналогів (зокрема МТ42) високим коефіцієнтом корисної дії. Схема розробленого блока живлення лазера не містить додаткових баластних опорів, що поряд з використанням як комутуючих елементів оптронних тиристорів середньої потужності, ретельної оптимізації схеми підпалу і керування від комп'ютера дозволило різко зменшити його об'єм і масу. Розроблена програма керування блоком живлення дозволяла здійснювати заряд робочої ємності порціями з контролем проміжних значень напруги. Це забезпечувало програмне розвантаження заряджувального

трансформатора на початковій стадії заряду і більш жорсткий неперервний контроль за працездатністю блока. Зауважимо, що запропонований режим програмного розвантаження дає можливість використання заряджувального трансформатора меншої номінальної потужності без введення додаткових струмообмежуючих елементів.

Пасивна модуляція добротності резонатора здійснювалася затвором на фталоціаніні хлористого галію, розчиненому у хлорбензолі. Також застосовувалась активна модуляції добротності з використанням оригінальних схемних рішень.

Для керування пристроями активної модуляції добротності необхідні високовольтні імпульси з короткими фронтами. Враховуючи, що амплітуда імпульсів за значної апертури світлових променів може сягати значень більших за 10 кВ, а час наростання і стабільність запуску у випадку синхронізації є близькою 1 нс, задача їх формування є технічно непростою.

Іноді для формування імпульсів використовуються високовольтні комутатори з газовими розрядниками чи вакуумні іскрові реле. Прикладами таких пристроїв можуть слугувати модулятор МГИН-5 або блок живлення затвора БПЗ-2Л. Недоліком цих та аналогічних модуляторів є нестабільність запуску, яка сягає 30÷40 нс, тривалий час включення, невелика частота повторення імпульсів, неможливість ефективно керувати формою імпульсів, а також високий рівень електромагнітних завад, що створюються формуючими елементами.

Більшість із зазначених недоліків можна усунути використовуючи для формування імпульсів електронні лампи та транзистори, але як правило це веде до значних схемотехнічних ускладнень, оскільки саме керування електронними лампами у вихідних каскадах вимагає відповідних імпульсів значної амплітуди.

Нами розроблений [16] та використовувався у роботі простий формувач високовольтних імпульсів з амплітудою до 20 кВ і фронтом ~ 10 нс на основі імпульсного модуляторного тетрода типу ГМИ-83 та транзисторів типу КТ603А.

Принципова схема формувача і підключення до нього електрооптичного затвора МДЭ-2 для модуляції добротності резонатора лазера подана на рис. 2.2. В основу схеми покладена ідея швидкого управління потенціалом сітки модуляторного тетрода (що виконує функцію високовольтного ключа) за допомогою ланцюга з послідовно з'єднаних транзисторів, через які під дією запускаючого синхроімпульсу ініціюється лавинний розряд. Вибір саме такого управління потенціалом сітки тетрода обумовлений тим, що певні типи транзисторів у лавинному режимі дають змогу формувати імпульси з фронтом ~ 1 нс, великою швидкістю наростання (1 В за 1 пс) та нестабільністю запуску < 5 нс.

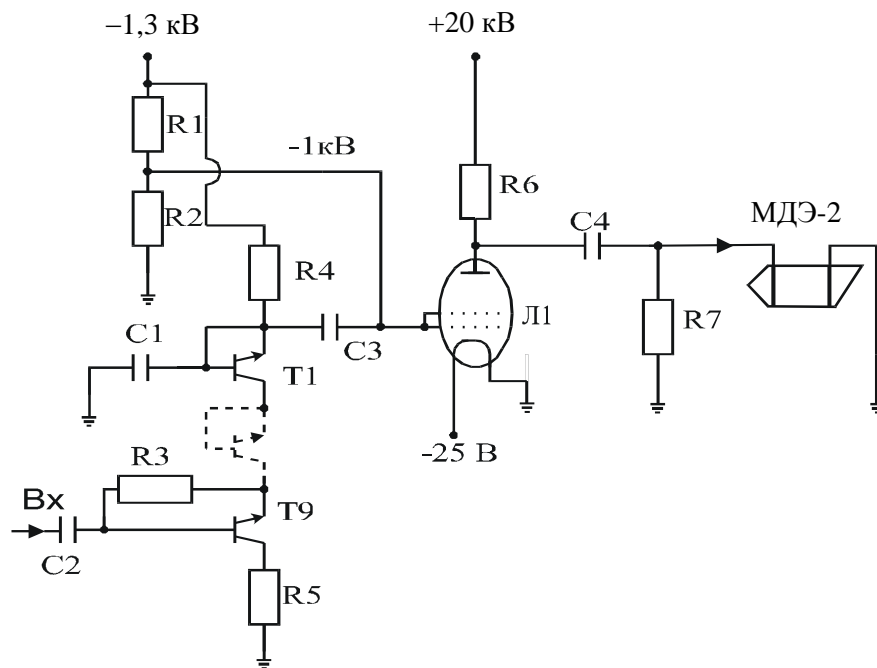


Рис. 2.2. Принципова схема формувача високовольтних імпульсів та підключення до нього електрооптичного затвора МДЭ-2 для активної модуляції добротності резонатора лазера.

Використовувалося 9 послідовно з'єднаних транзисторів Т1 - Т9 типу КТ603А (рис. 2.2). На них подається живлення близько -1,3 кВ, яке підбирається так, щоб лавинний розряд конденсатора С1 через транзистори

ініціювався лише під дією запускаючого імпульсу і не відбувався самостійно.

Запускаючий імпульс з амплітудою +5 В через конденсатор С2 проходить на базу транзистора Т9 і відкриває його (рис. 2.2). Це створює перенапруженість на транзисторах Т1 - Т8 і вони лавиноподібно переходять у токопровідний стан. Сітки тетрода Л1 знаходяться під потенціалом – 1 кВ, який знімається з подільовача R1, R2 (краще, якщо на другу сітку подається напруга від додаткового джерела живлення +1,25 кВ, але для спрощення схеми живлення використовувався поданий варіант). Коли відбувається розряд конденсатора С1 через транзистори, на сітки через прохідний конденсатор С3 подається імпульс з амплітудою близькою +1,3 кВ і їх потенціал змінюється в межах з -1 кВ до 300 В. Таким чином на аноді тетрода внаслідок зміни потенціалу сіток формується від'ємний перепад напруги з +20 кВ до значення близького 0 В і через прохідну ємність С4 цей імпульс від'ємної полярності подається на один з електродів електрооптичного затвора. Через певний час, що визначається резистором R6 потенціали анода і електрода затвора відновлюються.

Амплітуда імпульсів може змінюватися від 1,5 кВ до 20 кВ в залежності від вибраного живлення на аноді тетрода. Максимальна частота імпульсів становить 1 кГц.

Описаний формувач високовольтних імпульсів спільно з електрооптичним затвором МДЭ-2 використовується для модуляції добротності резонатора рубінового лазера. Оптимальна амплітуда імпульсу для вибраного затвора на довжині хвилі 0,6943 мкм становить 14 кВ. Для резонатора довжиною 40 см, утвореного 90⁰-призмою затвора і вихідним дзеркалом з коефіцієнтом відбиття 50%, тривалість імпульсів генерації лазера становить 30 нс, а нестабільність енергії імпульсів не перевищує 5%.

На наш погляд реалізована ідея та запропонована схема формувача високовольтних імпульсів, з урахуванням досвіду практичної роботи, є перспективними і навіть без суттєвих змін схема з успіхом може використовуватися для багатьох традиційних потреб лазерної техніки.

Спектральна ширина випромінювання лазера визначалася за допомогою інтерферометра Фабрі-Перо типу ИТ-51 з базою 40 мм і складала $\leq 0,01 \text{ см}^{-1}$. Тривалість імпульсу вимірювалась осцилографом С7-10Б за сигналом із фотоелектричного перетворювача ФК-2. Імпульс мав гладку дзвонувату форму та тривалість ≈ 20 нс. Енергія імпульсу випромінювання лазера контролювалась калориметричним вимірником ИКТ-1Н. Відхилення енергії від середнього значення $\approx 0,6$ Дж не перевищували 5%. Розбіжність лазерного випромінювання визначалась методом фокальної плями і становила ~ 5 кут. хв. У генерацію виходило одночасно декілька поперечних мод. Центральна частина пучка вирізалась діафрагмою з круглим отвором діаметром $2 \div 4$ мм (в окремих випадках – 1 мм). Через неї проходило $15 \div 60$ % випромінювання лазера, яке далі через світлофільтр КС-13 без підфокусування спрямовувалось у досліджуване середовище.

2.2. Реєструючі прилади.

Для отримання спектрів ВКР використовувався спектрограф, створений на основі камери УФ-90 з відносним отвором 1:25 та дифракційної ґратки, що мала 600 штрихів на міліметрі довжини. Обернена лінійна дисперсія спектрографа складала $1,33 \text{ нм/мм}$, а роздільна здатність $\sim 0,05 \text{ нм}$ в області спектра 630 нм.

За попередніх досліджень спектри реєструвалися на фотоплівку А-2 у касетній частині спектрографа. Зареєстровані спектри фотометрувалися на мікрофотометрі ИФО-451 або оброблялися вимірювальним мікроскопом типу МИР-12. Проте переважно для реєстрації одновимірних спектрів використовувався фотодіодний інтегральний багатоелементний перетворювач оптичних сигналів ЛФ1024-25/2 з організацією 1×1024 і відстанню між центрами елементів 25 мкм. Електронна схема керування фотодіодним перетворювачем, що спеціально була розроблена та виготовлена особисто автором дисертації, показано на рис. 2.3. Схему управління вирізняє незначний об'єм нестандартної апаратної частини, відсутність зовнішніх відносно

комп'ютера запам'ятовуючих пристроїв, висока надійність та стабільність технічних характеристик.

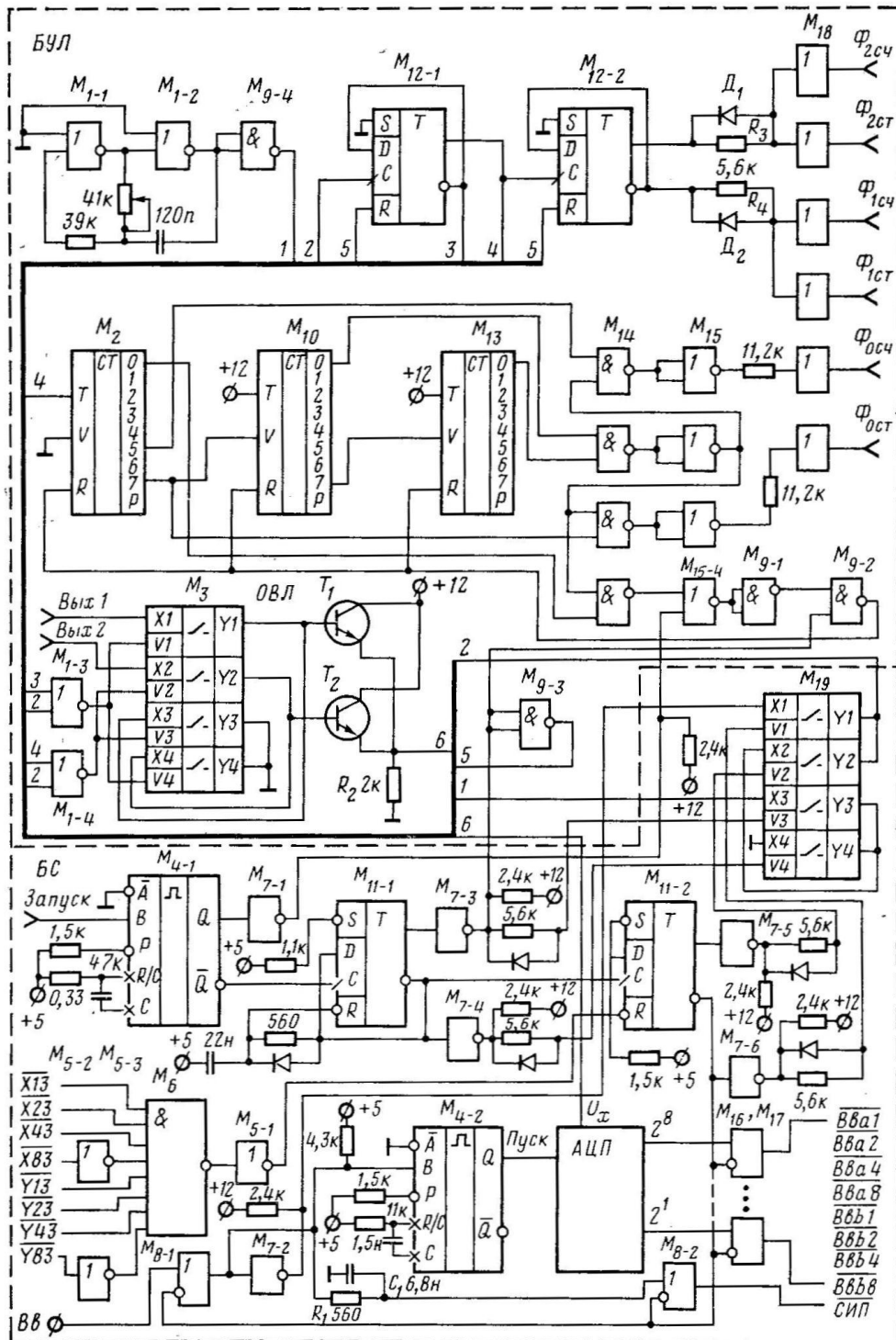


Рис. 2.3. Принципова схема керування фотодіодним перетворювачем.

Розроблене програмне забезпечення, крім різних режимів вводу

інформації, синхронізації з джерелом випромінювання, задання часу накопичення сигналу та віднімання темного сигналу, давало змогу в автоматичному режимі підсумовувати кадри для виділення слабких оптичних сигналів. Були повністю реалізовані усі функціональні можливості та технічні характеристики фотодіодного перетворювача ЛФ1024-25/2, включаючи програмний вихід на заданий фотодіодний елемент з неперервним стеженням за зміною у часі інтенсивності випромінювання, що попадає на нього. В порівнянні до фотоплівки висока лінійність характеристики світло-сигнал фотодіодного багатоеlementного перетворювача давала суттєві переваги.

Також для реєстрації двовимірних спектрів використовувався цифровий фотоапарат С-750UZ.

Енергія імпульсів випромінювання контролювалася калориметричними вимірниками ИМО-2Н або ИКТ-1Н.

Тривалість імпульсів вимірювалася осцилографом С7-10Б та вакуумним фотоелектричним перетворювачем ФК-2.

Спектральна ширина випромінювання лазера визначалася за допомогою інтерферометра Фабрі-Перо типу ИЗС-9 (ГОИ) зі змінними кільцями.

2.3. Основні методи досліджень.

Методи реєстрації „звичайних” оптичних спектрів є загальновідомими. Зазначимо лише, що для імпульсних джерел такі спектри відображають залежність частотної густини енергії W_{ω} випромінювання.

ВКР-випромінювання в самофокусуєчих середовищах має характерну складну індикатрису. Тому виникає необхідність реєстрації кутових спектрів густини W_{θ} енергії розсіяного випромінювання як залежність від кута розсіяння θ . Принципова оптична схема реєстрації кутових спектрів W_{θ} подана на рис. 2.4.

Кути розсіювання ВКР лежать у межах $\leq 5^{\circ}$. Тому для реєстрації кутових спектрів достатньо використати збиральну лінзу з фокусною відстанню f ,

розташовану на оптичній осі за розсіюючим середовищем. У фокальній площині лінзи формується кутовий спектр розсіяного випромінювання. Кут розсіяння θ пов'язаний з відстанню R до центру спектра та фокусною відстанню f і показником заломлення n середовища залежністю

$$\theta = \frac{1}{n} \operatorname{arctg}(R/f) \approx R/fn. \quad (2.1)$$

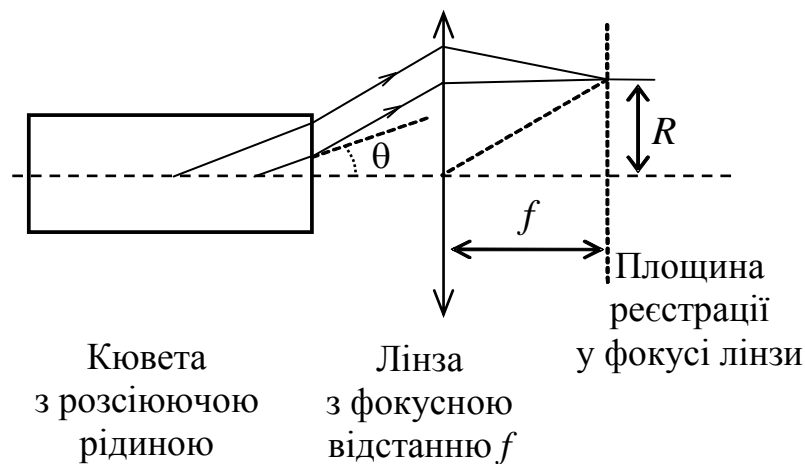


Рис. 2.4. Принципова схема реєстрації кутових спектрів W_θ розсіяного випромінювання.

Більш інформативним є метод реєстрації частотно-кутових спектрів густини $W_{\omega\theta}$ енергії розсіяного випромінювання, які відображають залежність густини енергії від частоти ω (або довжини хвилі λ) та кута розсіяння θ . Метод полягає у тому, що за допомогою збиральної лінзи на вхідній щілині спектрографа формується кутовий спектр розсіяного випромінювання, який далі розкладається за частотою (рис. 2.5). Спектрограф на основі камери УФ-90 з дифракційної ґраткою 600 штрихів/мм працював в автоколімаційному режимі.

Важливо, що у такій схемі розгортання розсіяного випромінювання відносно кута відбувається уздовж висоти вхідної щілини спектрографа, тоді як спектрограф розгортає випромінювання за довжинами хвиль у

перпендикулярному напрямі. Цим досягається однозначність аналізу спектрів. Такі спектри несуть досить повну інформацію про частотно-кутову структуру розсіяного випромінювання та дозволяють ефективно розділяти вклади різних фізичних механізмів у спектральні розширення ліній ВКР.

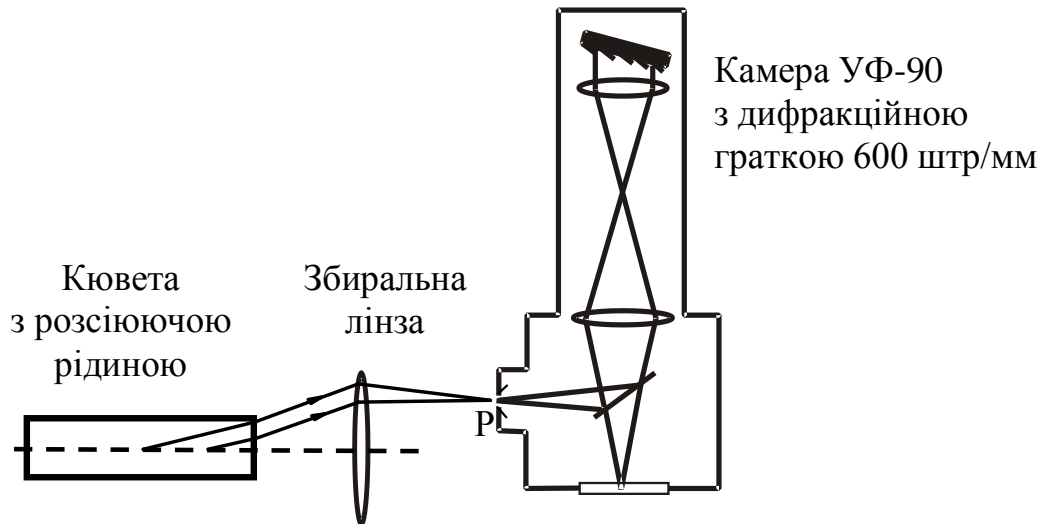


Рис. 2.5. Принципова схема реєстрації частотно-кутових спектрів $W_{\omega\theta}$ розсіяного випромінювання (кювета та лінза на рисунку розвернені на 90° відносно вісі, що проходить через точку проектування Р на щілині).

Досліджуючи ВКР у самофокусуєчих середовищах, важливо також визначати місцезнаходження фокальних областей, де розсіювання відбувається у різні частотно-кутові компоненти ВКР, та послідовність розсіювання у ці компоненти вздовж траєкторії руху фокусів. Для цього використовувався метод реєстрації просторово-кутових спектрів, за якого реєструється просторово-кутова густина енергії $W_{z\theta}$ вповдовж осі z розсіюючого середовища.

Принципова оптична схема методу реєстрації $W_{z\theta}$ (рис. 2.6), яка виконує функцію просторової фільтрації кутових спектрів (рис. 2.4), містила конфокальну систему лінз F_1 , F_2 . У спільній фокальній точці лінз розташований екран із двома паралельними щілинами, симетричними відносно оптичної вісі системи. Позиція кофокальної системи лінз та кювети

вибираються так, що площина реєстрації випромінювання є спряженою з площиною, яка знаходиться на невеликій відстані (~ 1 см) за кюветою. У площині реєстрації зазвичай розташовується матове скло, з якого може виконуватися візуальне або фотометричне спостереження.

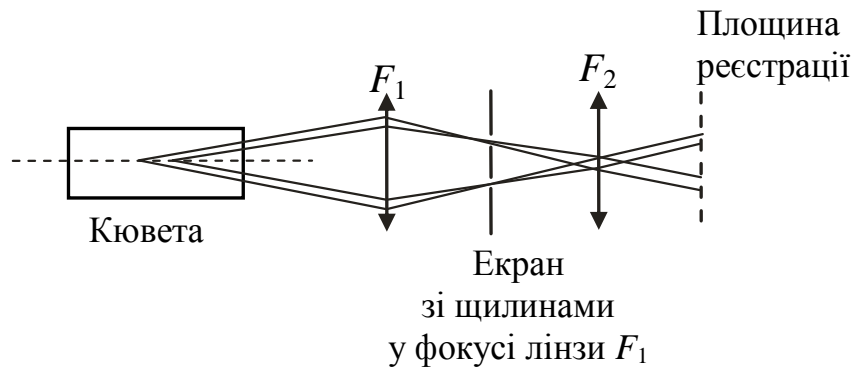


Рис. 2.6. Принципова схема методу реєстрації просторово-кутових спектрів густини енергії $W_{z\theta}$.

Ідея оптичної схеми полягає в тому, що на екрані зі щілинами лінзою F_1 формується кутовий спектр випромінювання, а щілини „вирізають” з нього лише певні ділянки, які відповідають заданому куту θ . Далі з випромінювання, яке пройшло екран зі щілинами, лінза F_2 відновлює в площині реєстрації розподіл інтенсивності, який створювався на виході кювети випромінюванням лише з цим кутом θ . У зареєстрованому спектрі змінювання кутів θ відбувається уздовж щілин, а координати z – за радіусом від центру спектра. Детальніші пояснення містяться у відповідних підрозділах, які відображають результати досліджень.

Просторово-кутові спектри типу $W_{z\theta}$ не відображають частотної залежності густини енергії розсіяного випромінювання. Додаткова інформація, щодо частоти отримувалася з використання світлофільтрів. У цьому випадку спектри мали характер $W_{z\theta} \{ \omega \}$.

Очевидно, що найбільш повну інформацію несуть частотно (ω) -

просторово (z)-кутові (θ) залежності $W_{\omega z\theta}$ густини енергії.

Проте одночасну фіксацію тривимірних залежностей $W_{\omega z\theta}$ у двовимірній площині реєстрації експериментально реалізувати неможливо. Тут є доступним лише потрійний набір комбінацій $W_{\omega\theta}$, $W_{\omega z}$, $W_{z\theta}$, який розширюється у випадку заміни z на одну з поперечних x, y координат, враховуючи симетрію розсіювання. Тому для комплексного виконання досліджень окрім методу реєстрації частотно-кутових спектрів $W_{\omega\theta}$ (рис. 2.5) та методу реєстрації просторово-кутових спектрів $W_{z\theta}$ (рис. 2.6) використовувався метод реєстрації частотно-просторових спектрів $W_{\omega x}\{z\}$, як доповнення до $W_{\omega\theta}$ і $W_{z\theta}$. Принципова оптична схема реєстрації $W_{\omega x}\{z\}$ подана на рис. 2.7.

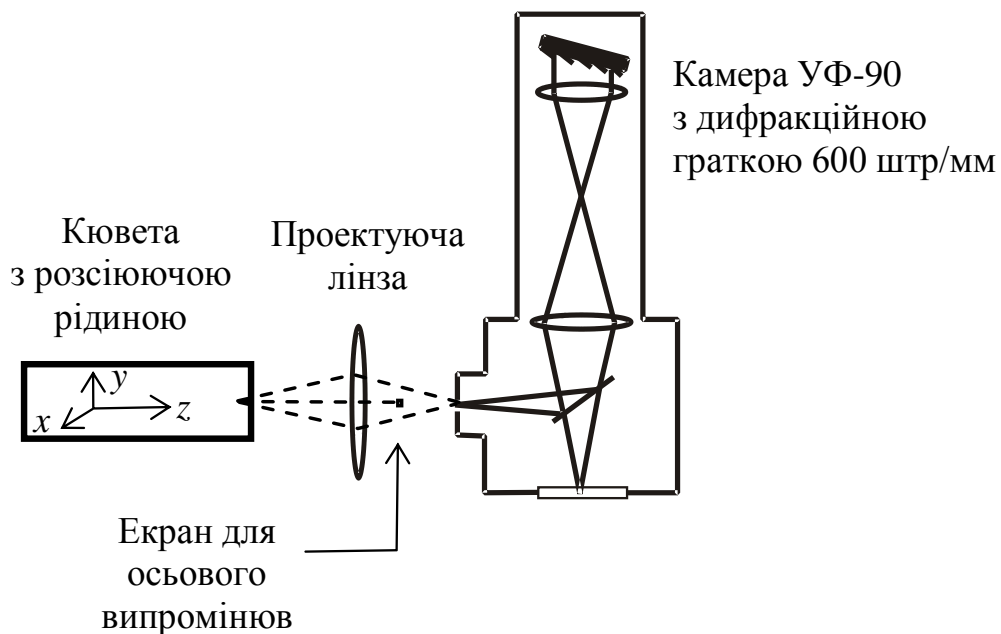


Рис. 2.7. Принципова схема методу реєстрації частотно-просторових спектрів густини енергії типу $W_{\omega x}\{z\}$.

У принциповій оптичній схемі для реєстрації $W_{\omega x}\{z\}$ на рис. 2.7 проектуюча лінза здійснює проекцію наперед вибраної поперечної площини розсіюючого середовища з координатою z на площину вхідної щілини

спектрографа. Вхідна щілина орієнтована за віссю x . У фокальній площині лінзи, де формується кутовий спектр розміщувався малорозмірний екран у позиції $x, y = 0$ для запобігання потрапляння надто інтенсивного осьового нерозсіяного (або несамофокусованого) випромінювання лазера та різних стоксових компонент ВКР до спектрографа та системи фотоелектричної реєстрації (власне, до спектрофотометра).

Загалом відмітимо, що практичні схеми експериментальних досліджень мали більш складний та комплексний характер і наведені у відповідних підрозділах роботи.

2.4. Висновки до Розділу 2.

Основні методи досліджень базувалися на реєстрації оптичних спектрів. Для імпульсних джерел такі спектри в класичному варіанті відображають залежність частотної (ω) густини енергії W_ω випромінювання. Очевидно, що найбільш повну інформацію несуть частотно (ω)-просторово (z)-кутові (θ) залежності $W_{\omega z \theta}$ густини енергії. Проте одночасну фіксацію тривимірних залежностей $W_{\omega z \theta}$ у двовимірній площині реєстрації експериментально реалізувати неможливо. Тому в роботі використано потрібний набір комбінацій $W_{\omega \theta}$, $W_{\omega z}$, $W_{z \theta}$, який розширювався у випадку заміни аксіальної координати z на одну з поперечних x, y координат. Загалом, для комплексного виконання досліджень застосовано методи реєстрації частотних W_ω спектрів, кутових W_θ спектрів, частотно-кутових спектрів $W_{\omega \theta}$, просторово-кутових $W_{z \theta}$ спектрів, частотно-просторових $W_{\omega x} \{z\}$ спектрів.

Основні наукові результати, що викладені у розділі:

– Застосовано комплексне використання методів реєстрації частотно-кутових, просторово-кутових, частотно-просторових спектрів. Вирішена проблема експериментальних досліджень динаміки нелінійно-оптичних процесів у керівських середовищах.

РОЗДІЛ 3

ЕКСПЕРИМЕНТАЛЬНІ ТА ТЕОРЕТИЧНІ ДОСЛІДЖЕННЯ ЕФЕКТУ САМОФОКУСУВАННЯ

3.1. Вплив групової швидкості на процес самофокусування у наносекундному діапазоні лазерних імпульсів.

Розташування фокальної області самофокусування залежить від потужності лазерного випромінювання на вході у керівське середовище [1]. У випадку неперервних лазерів, чим більша фіксована потужність $P_L = \text{const}$ лазера на вході у нелінійне оптичне середовище, тим меншу відстань проходить світло до фокальної точки (центру фокальної області) $z_{fp} \{P_L = \text{const}\} \equiv z_{fp}^{(st)}$ за віссю \mathbf{z} у напрямку лазерного променя (дужки $\{...\}$ використовуються для вказування аргументу функції).

Проте, для імпульсів випромінювання необхідно враховувати як поведінку $P_L \{t\}$ від часу t [1, 2, 5, 137], так і групову швидкість v_{gL} лазерного імпульсу [41]. Розташування фокальної точки z_{fp} у часі залежить від $P_L \{t\}$ і v_{gL} .

Розглянемо випадок, коли на вході в нелінійно-оптичне керівське середовище з координатою $z=0$ маємо миттєву потужність лазерного випромінювання, залежну від часу t , яка описується деякою функцією $P_L \{t, z=0\}$ з максимумом у момент $t=0$ (саме така „прив’язка” часу використовується надалі). Це, зокрема, може бути гаусів імпульс. Тоді маємо:

$$P_L \{t, z=0\} = P_L \{t=0, z=0\} \exp\left[-(t/\tau_i)^2\right] = P_{0L} \exp\left[-(t/\tau_i)^2\right], \quad (3.1)$$

де $P_L \{t=0, z=0\} \equiv P_{0L}$ – максимальна миттєва потужність лазерного імпульсу на вході у нелінійне оптичне середовище, а τ_i – тривалість імпульсу лазерного випромінювання на відповідному рівні (півширина на рівні e^{-1}).

На трасі проходження лазерного випромінювання через нелінійно-оптичне середовище з урахуванням групової швидкості імпульсу його потужність становить:

$$P_L \{t, z\} = P_L \left\{ t - z/v_{gL} \right\}. \quad (3.2)$$

Так, для гаусового імпульсу маємо:

$$P_L \{t, z\} = P_{0L} \exp \left[- \left(t - z/v_{gL} \right)^2 / \tau_i^2 \right]. \quad (3.3)$$

У момент t у фокальній точці z_{fp} потужність випромінювання $P_{Lf} \{t, z_{fp}\}$ наближено описується тією ж функціональною залежністю, що і $P_L \{t, z\}$, але уже з часовою затримкою z_{fp}/v_{gL} . Отже, потужність у фокальній точці становить $P_{Lf} \{t, z_{fp}\} = P_L \left\{ t - z_{fp}/v_{gL} \right\}$, внаслідок необхідної заміни аргументу $\{t - z/v_{gL}\}$ на $\{t - z_{fp}/v_{gL}\}$. Для гаусового імпульсу маємо:

$$P_{Lf} \{t, z_{fp}\} = P_{0L} \exp \left[- \left(t - z_{fp}/v_{gL} \right)^2 / \tau_i^2 \right]. \quad (3.4)$$

Така „корекція” P_{Lf} обумовлена часовою затримкою z_{fp}/v_{gL} проходження лазерного випромінювання до фокальної точки z_{fp} , розташування якої, у свою чергу, залежить від t . Врахування затримки z_{fp}/v_{gL} , яка очевидно не може бути замінена на z/v_{gL} , а тим більше на $z_{fp}/v_{gL} = 0$, суттєво впливає на обрахунок як потужності світла у фокальній точці, так і її швидкості. Усвідомлення такої обставини відбувалося не відразу навіть після досягнення розуміння впливу явища самофокусування на перебіг нелінійних оптичних

процесів, але на сьогодні є відомою [1].

Якщо використовуються надкороткі імпульси (пікосекундний чи фемтосекундний діапазон) то у фокальній точці потужність становить:

$$P_{Lf} \left\{ t - z_{fp} / v_{gL} \right\} \approx P_{Lf} \left\{ t - v_{gL} t / v_{gL} \right\} = P_{0L}, \quad (3.5)$$

оскільки $z_{fp} \approx v_{gL} t$.

Зовсім інша ситуація в наносекундному діапазоні тривалостей імпульсів лазерного випромінювання. На разі $z_{fp} \neq v_{gL} t$ і маємо, з точки зору аналітичного опису, складну залежність P_{Lf} від часу t у вигляді рекурентної залежності $P_{Lf} \left\{ t - z_{fp} \left\{ P_L \left\{ t - z_{fp} \{ \dots \} / v_{gL} \right\} \right\} / v_{gL} \right\}$, яка для гаусового профілю лазерного імпульсу випромінювання набуває вигляду:

$$P_{Lf} \{ t \} = P_{0L} \exp \left[- \left(t - z_{fp} \left\{ P_{0L} \exp \left[- \left(t - z_{fp} \{ \dots \} / v_{gL} \right)^2 / \tau_i^2 \right] \right\} / v_{gL} \right)^2 / \tau_i^2 \right]. \quad (3.6)$$

Звичайно, якщо цікавитися лише питанням про потужність лазерного випромінювання в позиції z , коли там розташована фокальна точка, то попередній вираз спрощується до

$$P_{Lf} \left\{ t_{fp}, z_{fp} = z \right\} = P_{0L} \exp \left[- \left(t_{fp} - z / v_{gL} \right)^2 / \tau_i^2 \right]. \quad (3.7)$$

Проте, необхідно додатково з'ясувати момент часу $t = t_{fp} \{ z \}$, в який фокальна точка має розташування z , що є окремим питанням (див. далі).

Для підсумку зазначимо, що у фокальній точці з координатою z_{fp} потужність лазерного випромінювання визначається саме виразом

$P_{Lf} = P_L \{t - z_{fp} / v_{gL}\}$. Виходячи з цього співвідношення та, припустимо, відомої аналітичної залежності

$$z_{fp} = z_{fp} \left\{ P_L \left\{ t - z_{fp} / v_{gL} \right\} \right\} = z_{fp} \left\{ P_{Lf} \right\} \quad (3.8)$$

можна отримати і аналітичний зв'язок $P_{Lf} \{z_{fp}\}$, але не від часу.

Ускладнення пов'язані з тим, що природно $v_{gL} \neq \infty$. Використання наближення $v_{gL} = \infty$ відразу дає

$$P_{Lf} \left\{ t - z_{fp} / v_{gL} \right\} \Big|_{v_{gL} \rightarrow \infty} \approx P_L \{t, z = 0\} \quad (3.9)$$

(використовується позначення $\Big|_{v_{gL} \rightarrow \infty}$ для конкретизації аргументу функції).

З іншого боку, в малопротяжних середовищах, але в яких все ж реалізується самофокусування, маємо $z_{fp} \rightarrow 0$, а тому

$$P_{Lf} \left\{ t - z_{fp} / v_{gL} \right\} \Big|_{z_{fp} \rightarrow 0} \approx P_L \{t, z = 0\}. \quad (3.10)$$

Проте, зазначені наближення, хоча і можуть бути застосовними для з'ясування деяких фізичних аспектів проблеми, є недостатніми для розрахунку спостережуваних спектрів розсіювання для наносекундних імпульсів у середовищах протяжністю $L \geq 0,1$ м. Така оцінка вмотивована співвідношенням $0,1 \text{ м} / v_{gL} \approx 0,1 \text{ м} / c = 1/3 \text{ нс}$ (де c – швидкість світла у вакуумі), що дає значення суттєво менші 1 нс, тож менші тривалості імпульсів у наносекундному діапазоні.

3.2. Загальні співвідношення для швидкості фокальної точки самофокусування.

За теоретичного опису самофокусування на основі рівнянь Максвелла розрахунки виконуються зазвичай для стаціонарної залежності $z_{fp}^{(st)} = z_{fp} \{P_L = \text{const}\}$, яка описує фокальну відстань без урахування скінченності $v_{gL} \neq \infty$. Експериментальні дослідження мають враховувати таку обставину опису явища самофокусування. Якщо потужність лазера на вході у середовище змінюється, то величина $z_{fp} \{P_L \{t, z=0\}, v_{gL} = \infty\} = z_{fp}^{(st)} \{t\} \equiv z_{fd} \{t\}$ є фокальною відстанню (дистанцією) самофокусування для кожного із фрагментів $P_L \{t, z=0\}$ імпульсів лазерного випромінювання. Проте, кожен із фрагментів лазерного імпульсу тратить певний час на досягнення „своїї” фокальної точки z_{fp} .

Незважаючи на такі ускладнення, залежність швидкості $v_{fp} = \partial z_{fp} / \partial t$ фокальної точки від часу підлягає аналітичному аналізу за відомої квазістаціонарної залежності $z_{fd} \{t\}$, яка не враховує скінченність групової швидкості v_{gL} та спричинену цим затримку z_{fp} / v_{gL} . Наразі формально маємо:

$$\begin{aligned} v_{fp} &= \partial z_{fp} / \partial t = \\ &= \left(\partial z_{fp} / \partial (t - z_{fp} / v_{gL}) \right) \cdot \left(\partial (t - z_{fp} / v_{gL}) / \partial t \right) = \\ &= \left(\partial z_{fp} \{P_L \{t - z_{fp} / v_{gL}\}\} / \partial (t - z_{fp} / v_{gL}) \right) \cdot (1 - v_{fp} / v_{gL}). \end{aligned} \quad (3.11)$$

Проте, є питання щодо величини $\partial z_{fp} \{P_L \{t - z_{fp} / v_{gL}\}\} / \partial (t - z_{fp} / v_{gL})$ за заміни змінної t на $t - z_{fp} / v_{gL}$.

Очевидно, що перехід до змінної $t - z_{fp} / v_{gL}$ дає похідну з корекцією часу на інтервал проходження шляху до точки z_{fp} . Іншими словами, величина

$\partial z_{fp} \left\{ P_L \left\{ t - z_{fp} / v_{gL} \right\} \right\} / \partial \left(t - z_{fp} / v_{gL} \right)$ являє собою швидкість зміни фокальної відстані за миттєвої потужності $P_L \left\{ t - z_{fp} / v_{gL} \right\}$ імпульсу на вхідній межі середовища:

$$\partial z_{fp} \left\{ P_L \left\{ t - z_{fp} / v_{gL} \right\} \right\} / \partial \left(t - z_{fp} / v_{gL} \right) = v_{fd}. \quad (3.12)$$

За введення позначення v_{fd} для швидкості зміни фокальної відстані з (3.11) та (3.12) маємо аналітичну залежність у вигляді формули:

$$\frac{1}{v_{fp}} = \frac{1}{v_{fd}} + \frac{1}{v_{gL}}, \quad (3.13)$$

яка пов'язує групову швидкість v_{gL} лазерного випромінювання, швидкість $v_{fp} \{t, z\}$ фокальної точки в момент t з координатою z та швидкість зміни $v_{fd} \left\{ t - z_{fp} / v_{gL}, z \right\}$ фокусної відстані у момент часу $t - z_{fp} / v_{gL}$, коли самофокусований фрагмент лазерного імпульсу перебував на вхідній межі.

Можливе і більш фізично зрозумілий вивід формули (3.13). Розглянемо швидкості v_{fp} і v_{fd} в околі координати z . Фокальна відстань z_{fd} рівна z в деякий момент $t_{fd} \{z\}$, а $z_{fp} = z$ в момент

$$t_{fp} \{z\} = t_{fd} \{z\} + z / v_{gL}. \quad (3.14)$$

із затримкою z / v_{gL} відносно $t_{fd} \{z\}$.

Далі, розглянемо зміщену координату $z + dz$ на нескінченно малу величину dz . Для цієї координати рівність $z_{fd} = z + dz$ виконується за часу $t_{fd} \{z + dz\} = t_{fd} \{z\} + dz / v_{fd}$, а рівність $z_{fp} = z + dz$ в момент

$$t_{fp} \{z + dz\} = t_{fd} \{z + dz\} + (z + dz) / v_{gL} = t_{fd} \{z\} + dz / v_{fd} + (z + dz) / v_{gL}. \quad (3.15)$$

За своїм змістом швидкість фокальної точки

$$v_{fp} = \frac{dz}{t_{fp}\{z+dz\} - t_{fp}\{z\}}. \quad (3.16)$$

Після підстановки (3.14) та (3.15) у (3.16) маємо:

$$v_{fp} = \frac{dz}{dz/v_{fd} + dz/v_{gL}}. \quad (3.17)$$

Після скорочення на dz в (3.17) отримуємо (3.13).

Вираз (3.13) можна подати в іншому вигляді

$$v_{fp} = \frac{v_{fd}v_{gL}}{v_{fd} + v_{gL}}. \quad (3.18)$$

Аналіз співвідношень (3.13) або (3.18) показує, що за наближення $v_{gL} = \infty$ виконується рівність $v_{fp} = v_{fd}$ – швидкість фокальної точки збігається з швидкістю зміни фокальної відстані. Звичайно, цього потрібно було очікувати за введених визначень величин v_{fp} та v_{fd} . З іншого боку, за достатньо швидких змін z_{fd} на фронті та спаді лазерного імпульсу швидкість v_{fd} набуває значень $v_{fd} \rightarrow \mp\infty$, відповідно, а тому отримуємо $v_{fp} \rightarrow v_{gL}$ (незалежно від знаку швидкості v_{fd}). Загалом, рівність $v_{fp} \approx v_{gL}$ характерна для надкоротких імпульсів, починаючи з пікосекундного діапазону, але це далеко не так для наносекундних імпульсів.

У наносекундному діапазоні на фронті імпульсу v_{fd} у протяжних середовищах може змінюватися у межах від $v_{fd} \rightarrow -\infty$ до 0 на крилі та вершині імпульсу, відповідно. У цьому випадку швидкість фокальної точки v_{fp} пробігає значення від $v_{fp}|_{v_{fd} \rightarrow -\infty} \approx v_{gL}$ до $v_{fp}|_{v_{fd} \approx -v_{gL}} \rightarrow +\infty$. За $v_{fd} = -v_{gL}$ швидкість

фокальної точки міняє знак, а потому змінюється від $v_{fp}|_{v_{fd} \approx -v_{gL}} \rightarrow -\infty$ до $v_{fp}|_{v_{fd}=0} = 0$. На спаді лазерного імпульсу швидкість фокальної відстані v_{fd} збільшується від 0 до $+\infty$, що веде до зростання швидкості фокальної точки v_{fp} від $v_{fp}|_{v_{fd}=0} = 0$ до $v_{fp}|_{v_{fd} \rightarrow \infty} \approx v_{gL}$. Детальніше поведінка $v_{fp}\{v_{fd}\}$ наведена на рис. 3.1.

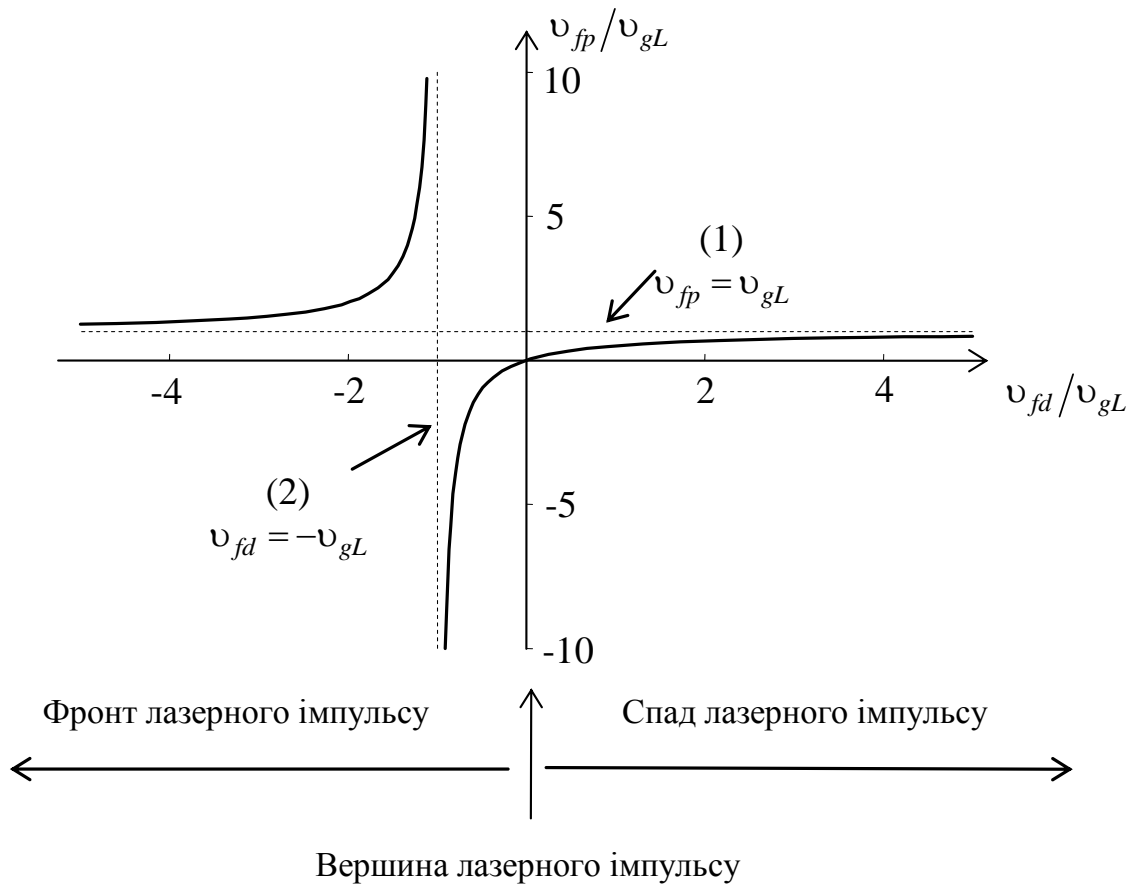


Рис. 3.1. Залежність швидкості v_{fp} фокальної точки від швидкості v_{fd} зміни фокусної відстані самофокусування. Обидві швидкості нормовані на групову швидкість v_{gL} лазерного випромінювання. Швидкість v_{fd} є від'ємною на фронті лазерного імпульсу, нульовою на його вершині і додатною на спаді імпульсу. Показані асимптоти: 1) у випадку $v_{fd} \rightarrow \mp\infty$ швидкість $v_{fp} \rightarrow v_{gL}$; 2) в околі $v_{fd} = -v_{gL}$ швидкість $v_{fp} \rightarrow \pm\infty$.

Отже на фронті та спаді лазерного імпульсу маємо широкий діапазон швидкостей фокальної точки. Така ситуація очевидно є динамічною і накладає свої особливості на перебіг нелінійних оптичних процесів у самофокусуємих середовищах.

3.3. Теоретичні розрахунки стаціонарної залежності фокальної відстані від потужності лазерного випромінювання.

Кількісний опис потужності світла у фокальній області та швидкості фокальної точки самофокусування не можливий без з'ясування залежності стаціонарної фокальної відстані від потужності світла на вході у нелінійне оптичне середовище:

$$z_{fp} \{P_L = \text{const}\} = z_{fp}^{(st)} = z_{fd} \quad (3.19)$$

Відомо, що процес самофокусування поляризованого лазерного пучка в ізотропній, однорідній, непоглинаючій керівській рідині описується нелінійним хвильовим рівнянням [1], яке слідує з рівнянь Максвелла:

$$\Delta E_L - \varepsilon_0 \mu_0 \frac{\partial^2}{\partial t^2} \left[\left(n_{0L} + n_2 \cdot \langle |E_L|^2 \rangle_t \right)^2 E_L \right] = 0 \quad (3.20)$$

(дужки $\langle \dots \rangle_t$ використовуються для визначення середнього значення за часом t , $||$ – модуль комплексної величини). У цьому рівнянні $E_L = E_{0L} \{x, y, z\} \exp[-(\omega_{0L}t - k_{0L}z)]$ – напруженість електричного поля лазерної хвилі, яка поширюється уздовж осі \mathbf{z} та має деякий поперечний розподіл амплітуди і фази E_{0L} за ортогональними координатами x, y ; ω_{0L} – циклічна частота лазерного випромінювання на вході до нелінійного середовища; $k_{0L} = \omega_{0L} n_{0L} \sqrt{\varepsilon_0 \mu_0} = \omega_{0L} / (c/n_{0L})$ – модуль хвильового вектора

лазерного випромінювання у середовищі без урахування самофокусування, $n_2 \cdot \langle |E_L|^2 \rangle_t$ – наведена стаціонарним світловим полем зміна показника заломлення з усередненням за часом у діапазоні $2\pi/\omega_{0L} \ll t \ll \tau_i$, μ_0 і ε_0 – магнітна й електрична сталі, n_{0L} – „лінійний” показник заломлення лазерного випромінювання у середовищі на частоті ω_{0L} , n_2 – коефіцієнт нелінійної рефракції, який вважається мало залежним від частоти випромінювання в областях далеких від поглинання. Вплив фазової самомодуляції на самофокусування у даних розрахунках не враховується.

У випадку радіально-симетричного, лінійно-поляризованого пучка вираз (3.20) у наближенні повільно змінних амплітуд зводиться до нелінійного рівняння Шредінгера:

$$i2k_{0L} \frac{\partial E_{0L}\{r, z\}}{\partial z} + \frac{1}{r} \frac{\partial E_{0L}\{r, z\}}{\partial r} + \frac{\partial^2 E_{0L}\{r, z\}}{\partial r^2} + \frac{k_{0L}^2 n_2}{n_{0L}} |E_{0L}\{r, z\}|^2 E_{0L}\{r, z\} = 0, \quad (3.21)$$

де $r = \sqrt{x^2 + y^2}$ – радіальна координата.

Поле пучка на вході в нелінійно оптичне середовище в площині $z=0$ вважатимемо рівнофазним, із розподілом амплітуди $E_{0L}|_{z=0} = A \exp[-r^2/2a_0^2]$, де $\sqrt{2}a_0$ – півширина розподілу на рівні $1/e$, $A = E_{0L}\{r=0, z=0\}$ – максимальне значення амплітуди поля на вході у середовище.

У рівнянні (3.21) можна нормувати функцію $E_{0L}\{r, z\}$ та змінні r, z : $E_{0L}^* = (n_2/n_{0L})^{1/2} k_{0L} a_0 E_{0L}$, $z^* = z/2k_{0L} a_0^2$, $r^* = r/a_0$. Це дає змогу кінцеві розв'язки рівняння зробити незалежними від параметрів середовища, довжини хвилі випромінювання та діаметра перерізу вхідного пучка. В результаті такого нормування рівняння (3.21) набуває вигляду:

$$i \frac{\partial E_{0L}^*}{\partial z^*} + \frac{\partial^2 E_{0L}^*}{\partial r^{*2}} + \frac{1}{r^*} \frac{\partial E_{0L}^*}{\partial r^*} + |E_{0L}^*|^2 E_{0L}^* = 0, \quad (3.22)$$

з початковими умовами для вибраного пучка:

$$E_{0L}^* \Big|_{z^*=0, z=0} = A^* \exp\left[-\frac{r^{*2}}{2}\right], \quad E_{0L}^* \Big|_{r^* \rightarrow \infty, r \rightarrow \infty} = 0, \quad (3.23)$$

де $A^* = \sqrt{n_2/n_{0L}} k_{0L} a_0 A$ – нормоване максимальне значення амплітуди поля на вході у середовище.

Величину A^* можна виразити через приведену потужність. Так, інтенсивність I_{0L} на осі вхідного пучка пов'язана з амплітудою поля співвідношенням: $A^2 = 2c\mu_0 I_{0L}/n_{0L}$. У свою чергу, інтенсивність I_{0L} визначається потужністю P_L пучка: $I_{0L} = P_L/\pi a_0^2 = \tilde{P}P_{cr}/\pi a_0^2$, де $\tilde{P} = P_L/P_{cr}$ – приведена потужність, тобто, коефіцієнт перевищення потужності пучка критичного значення P_{cr} . Наближене значення P_{cr} для гаусового пучка з плоским фазовим фронтом за існуючими даними [1] становить: $P_{cr} \approx \pi(1,22\lambda_{vL})^2/(32\mu_0 n_2 c)$, де $\lambda_{vL} = 2\pi n_{0L} k_{0L}^{-1}$ – довжина хвилі лазерного випромінювання у вакуумі. За наведених співвідношень маємо:

$$A^* = \eta\sqrt{\tilde{P}} \approx 0,61\pi\sqrt{\tilde{P}}. \quad (3.24)$$

Для уточнення значення коефіцієнта $\eta \approx 0,61\pi$ в (3.24), а отже й критичну потужність P_{cr} самофокусування, з якою він пов'язаний, диференційне рівняння (3.22) розв'язувалося чисельно для різних η та \tilde{P} . Критерієм знаходження точного значення коефіцієнта η слугувало утворення фокальної точки на достатньо великій відстані, яка асимптотично прямувала до ∞ , за умови $\tilde{P} = 1$. У результаті встановлено:

$$\eta \approx 0,62\pi, \quad (3.25)$$

а для критичної потужності самофокусування маємо:

$$P_{cr} \square \frac{\pi(1,22\lambda_{vL})^2}{31\mu_0 n_2 c}. \quad (3.26)$$

Використовуючи рівняння (3.22) та відомий коефіцієнт η (3.25), можна розрахувати фокальну відстань, де інтенсивність випромінювання в самофокусуєчому середовищі набуває максимального значення. За потужностях вхідного променя більших, ніж критична величина, залежність від \tilde{P} нормованої координата z_{fd}^* точки, де інтенсивність випромінювання на вісі \mathbf{z} нескінченно зростає, зображена на рис. 3.2. На рис. 3.2 указані розраховані з деяким інтервалом значення $z_{fd}^* \{ \tilde{P} \}$. Через точки проведена інтерполяційна крива, яка визначає фокальну відстань самофокусування. Крива в абсолютних величинах описується формулою:

$$z_{fd} = \frac{0,38k_{0L}a_0^2}{\sqrt{(\sqrt{\tilde{P}} - 0,77)^2 - 0,053}}, \quad (3.27)$$

яка помітно відрізняється з формулою Марбургера [138] і на яку наполягають автори роботи [139] з використанням уявлень геометричної оптики.

Розрахунки показали, що в інтервалі $0,27 \leq \tilde{P} < 1$ інтенсивність випромінювання на вісі \mathbf{z} також може зростати до двох разів. Утворюється „слабкий” фокус з координатою $z_{fd}^{(w)}$, де інтенсивність випромінювання, набувши деякого обмеженого максимального значення, в подальшому зменшується. Ці розв’язки за дискретних значень \tilde{P} й інтерпольована за ними залежність наведені на рис. 3.3. Указана залежність описується формулою:

$$z_{fd}^{(w)} \square 2k_{0L}a_0^2 \left(\left(0,069 - 0,095\sqrt[4]{\tilde{P}} \right)^2 / \left(\sqrt[4]{\tilde{P}} - 1,24 \right)^2 - 0,058 \right)^{1/4}. \quad (3.28)$$

За подальшого зменшення потужності до значень $\tilde{P} < 0,27$ пучок внаслідок некомпенсованої дифракції відразу розходить.

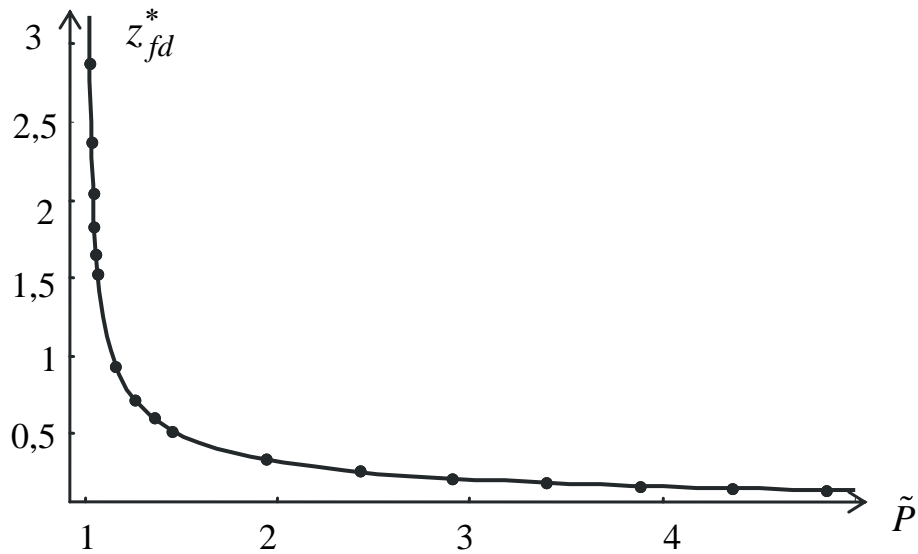


Рис. 3.2. Залежність нормованої довжини фокальної відстані z_{fd}^* від приведеної стаціонарної потужності випромінювання $\tilde{P} > 1$.

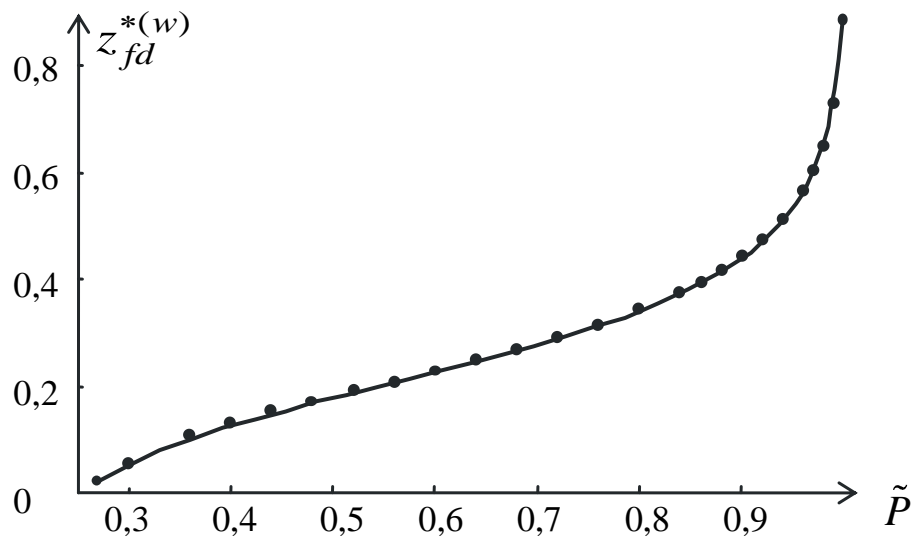


Рис. 3.3. Залежність нормованої фокальної відстані $z_{fd}^{*(w)}$ для „слабкого” фокуса від приведеної потужності випромінювання у діапазоні $0,27 \leq \tilde{P} < 1$.

3.4. Методика експерименту вимірювання фокальної відстані самофокусування

Спрощена схема експериментальної установки для вимірювання фокальної відстані самофокусування у керівських рідинах подана на рис. 3.4. Використовувався рубіновий лазер з пасивною модуляцією добротності. Лазер випромінював імпульси на довжині хвилі $\lambda_{vL}=0,6943$ мкм з енергією 0,5 Дж та тривалістю $\tau_L=20$ нс на половинному рівні інтенсивності. У перетині пучок лазера був неоднорідний, тому діафрагмою з діаметром 4 мм виділявся центральний фрагмент пучка. Випромінювання лазера за потреби ослаблювалося каліброваними світлофільтрами та без фокусування спрямовувалося в кювету, наповнену різними рідинами (толуол, бензол, орто-ксилол, бромформ тощо) довжиною $L=25$ см або 40 см, яка розташовувалася на відстані 30 см від лазера.

Промінь рубінового лазера самофокусувався у кюветі та збуджував у своїх фокальних областях ВКР. Самофокусування мало дрібномасштабний характер унаслідок неоднорідності променя навіть після використання діафрагми. Випромінювання антистоксових компонент ВКР відокремлювалося світлофільтром СЗС-23 та реєструвалося за методом просторової фільтрації кутових спектрів [140, 141].

Оптична схема для реалізації методу просторової фільтрації кутових спектрів містила кофокальну систему лінз F_1 , F_2 (рис. 3.4) з фокусними відстанями 25 см. У спільній фокальній площині лінз знаходиться екран із двома паралельними щілинами, розташованими симетрично відносно його центру. Центр екрана лежить на оптичній осі системи. Позиція кофокальної системи лінз та кювети вибираються так, що площина реєстрації випромінювання, де розташовується матове скло, є спряженою з площиною, яка знаходиться на невеликій відстані (~ 1 см) за кюветою. Розсіяне матовим склом ВКР реєструється цифровою фотокамерою.

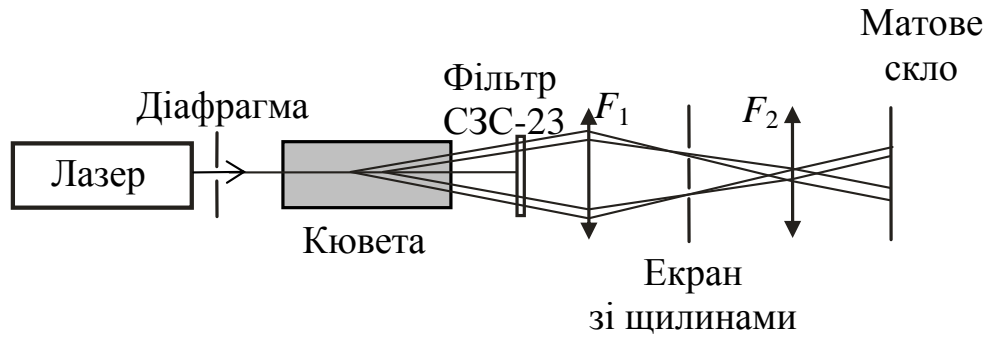


Рис. 3.4. Схема експериментальної установки для визначення фокальної відстані самофокусування.

Ідея оптичної схеми полягає в тому, що у кожній певній площині, яка містить усю оптичну вісь системи, на матове скло в площині реєстрації потрапляє ВКР-випромінювання, розсіяне у кюветі лише під визначеним кутом. Це досягається тим, що на екрані зі щілинами лінзою F_1 формується кутовий спектр випромінювання, а щілини „вирізують” з нього лише певні ділянки, які відповідають заданому куту. Далі з випромінювання, яке пройшло екран зі щілинами, лінза F_2 відновлює на матовому склі розподіл інтенсивності, який створювався на виході кювети випромінюванням лише з цим кутом. Визначеність кутів випромінювання дає змогу з використанням зареєстрованого розподілу інтенсивності розрахувати розташування областей, де відбувається розсіяння під цими кутами.

Зміна площини, в якій лежать промені та оптична вісь, за вибраної геометрії щілин на екрані веде до зміни кутів випромінювання, яке реєструється. Отже, отримується двовимірний розподіл інтенсивності – просторово-кутовий спектр, який несе інформацію про локалізацію на трасі проходження лазерного променя різних кутових компонент ВКР. Із зареєстрованого спектра можна визначити розташування фокальної точки самофокусування у момент максимальної миттєвої потужності лазерного імпульсу. Для цього необхідно врахувати, що в цей момент фокусна відстань самофокусування є мінімальною, а інтенсивність набуває максимального значення.

За допомогою рис. 3.5 пояснюються математичні співвідношення, які лежать в основі методу просторової фільтрації кутових спектрів. У спільній фокальній площині лінз F_1 , F_2 розташована діафрагма 3 з двома щілинами. Її фронтальний вигляд подано на рис. 3.5 окремо у позиції (3). Діафрагма має дві щілини шириною Δb , розташовані симетрично відносно точки O , що лежить на спільній оптичній осі усіх елементів. Відстань b між точкою O та щілинами є заданою. Діафрагма 3 та лінзи 2, 4 утворюють телескопічний просторовий фільтр. Розсіяне ВКР-випромінювання, що покидає кювету 1 довжиною L , після телескопічного просторового фільтра реєструється у площині 5, де розташоване матове скло, на цифрову фотокамеру. Позиції кофокальної системи лінз та кювети вибираються так, що площина 5 є спряженою з площиною, яка знаходиться на відстані $\ell_0 \geq 0$ за кюветою.

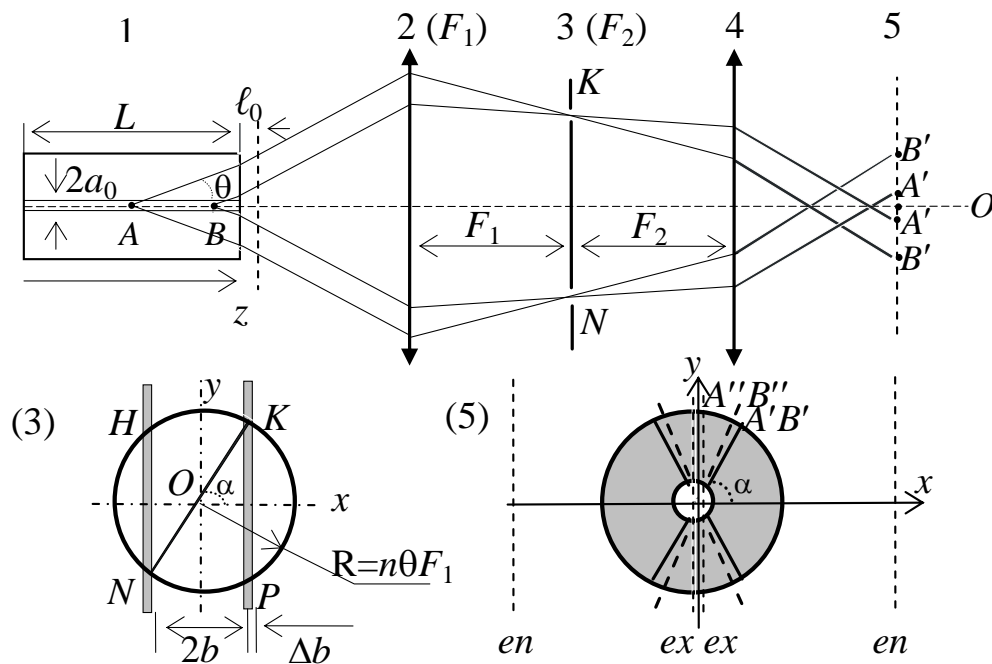


Рис. 3.5. Пояснення до оптичної схеми реалізації методу просторової фільтрації кутових спектрів.

Якщо на відрізку AB траси проходження лазерного випромінювання через кювету з ВКР-активною рідиною відбувається розсіяння уздовж конічної поверхні з кутом розхилу 2θ , то на діафрагмі 3 у фокальній площині лінзи 2 сформується кутовий спектр у вигляді кола з радіусом $R = nF_1\theta$, де n – показник заломлення рідини у кюветі (залежність n від довжини хвилі в оптичному діапазоні наразі немає значення, оскільки умова фазового та групового синхронізмів практично не впливає на ефект самофокусування).

За відсутності діафрагми 3 у площині 5 утвориться кільце у масштабі $M = F_2/F_1$ до кільця, що може спостерігатись на екрані, розташованому на відстані ℓ_0 за кюветою. На рис. 3.5 у позиції (5) це кільце затушоване. Але через діафрагму проходить лише частина випромінювання, та що попадає у точки K, P, N, H , і тому у площині 5 випромінювання буде реєструватись лише у вузьких секторах (для вибраної форми щілин – у чотирьох секторах), які зображені на рис. 3.5 у вигляді відрізків $A'B'$ прямих ліній.

Таким чином, відрізок траси AB відображується у площині 5 відрізком $A'B'$, довжина якого однозначно пов'язана з довжиною відрізка траси AB , відстань $A'O$ до осі – з місцезнаходженням області розсіювання, а азимутальний кут α – з кутом розсіювання θ .

У площині 5 введемо координати Oxy , як показано на рис. 3.5. Положення точок на трасі будемо задавати через їх відстань z_i до вхідного вікна кювети. Тоді положення z_i окремої точки на трасі можна виразити через абсцису x_i зареєстрованого її відображення:

$$z_i = L - n(F_1|x_i|/(bM) - \ell_0), \quad (3.29)$$

а кут θ розсіяння через азимутальний кут α :

$$\theta = b/(nF_1 \cos \alpha). \quad (3.30)$$

Важливо, що відображення різних точок траси, які лежать на оптичній осі, не перекриваються, і z_i та x_i однозначно пов'язані лінійною залежністю (3.29). Абсциса x_i відображення точки z_i траси не залежить від кута θ розсіяння, отже точка, в якій розсіяння ізотропне, відобразиться у площині 5 прямою вертикальною лінією. Оскільки щілин дві, то ліній буде дві – симетричних відносно точки O . На рис. 3.5 у площині (5) зображені вертикальні лінії, що відповідають точкам ізотропного розсіяння, розташованим безпосередньо біля вхідного та вихідного вікон кювети (позначено en (entrance) та ex (exit), відповідно). Ці лінії визначають межі можливої зміни x_i , коли z_i пробігає значення $0 \div L$ у межах кювети. Їх можна одержати, встановлюючи матове скло почергово біля входу та виходу кювети, що на практиці спрощує розмічування та аналіз зареєстрованих відображень.

Азимутальний кут α не залежить від z_i та x_i і однозначно пов'язаний з кутом розсіяння θ . Збільшення кута θ веде до збільшення кута α : $\cos \alpha \approx 1/\theta$. Для ілюстрації на рис. 3.5 у площині 5 наведено відображення відрізка траси AB у випадку розсіяння під кутом $\theta' > \theta$. Це відображення позначене $A''B''$. Отже, у площині 5 уздовж вертикальної лінії, що перетинає вісь абсцис у точці x_i , реєструється кутовий спектр випромінювання з точки z_i . Зауважимо, що мінімальний кут θ_{\min} випромінювання, яке може бути зареєстроване, відповідає азимутальному куту $\alpha = 0$ і визначається величиною b : $\theta_{\min} \approx b/nf_1$ ($\sin \theta \approx \theta$).

Оскільки у площині 5 реєструється інтенсивність розсіяного випромінювання у залежності від просторового положення точки та кута розсіяння, то можна назвати зареєстровану картину просторово-кутовим спектром. Аналогічно тому, як частотно-кутові спектри внаслідок більшої інформативності, ніж звичайні оптичні спектри, дають змогу робити висновки про істотність тих чи інших механізмів частотних розширень ліній ВКР, так і просторово-кутові спектри завдяки більшій інформативності, ніж кутові спектри, дозволяють ідентифікувати внесок різних фізичних механізмів у формування кутової структури розсіяного випромінювання. Суттєвою

перевагою методу є можливість визначення потужності самофокусованої частини випромінювання.

Параметри оптичної схеми становили: $\ell_0 = 4$ см; $b = 7,25$ або $5,1$ мм; $\Delta b = 0,5$ мм. Аналізувалася структура випромінювання першої, другої та третьої антистоксових компонент. Поглинання випромінювання лазера, що пройшло через кювету, а також селекція компонент ВКР здійснювалися світлофільтрами.

У завершення зупинимось на роздільній здатності методу. Зі співвідношення (3.30) випливає, що відносна невизначеність кутів розсіяного випромінювання залежить від ширини щілин: $\delta\theta/\theta = \Delta b/b$. При $\Delta b \sim 0,5$ мм та $b \sim 10$ мм відносна невизначеність кутів, що у даному випадку характеризує кутову роздільну здатність, складає $\delta\theta/\theta \sim 0,05$. Вона може бути зменшена за рахунок звуження щілин у декілька разів, але це погіршує світлосилу та при певних Δb викликає появу паразитної інтерференційної структури.

З виразу (3.29) випливає, що невизначеність положення точки на трасі теж залежить від параметрів діафрагми: $\delta z_i/z_i \sim \Delta b/b \approx 0,05$. Проте більш істотним виявляється вплив на просторову роздільність початкового радіуса a_0 збуджуючого пучка, особливо для малих кутів розсіяння. З геометричних міркувань випливає, що $\delta z_i \approx 2a_0/\theta$. Задля досягнення високої просторової роздільної здатності необхідно використовувати вузькі пучки та реєструвати розсіяне випромінювання під великими кутами.

3.5. Результати експериментів вимірювання фокальної відстані самофокусування.

На рис. 3.6 показані просторово-кутові спектри антистоксового ВКР у толуолі з кювети довжиною 25 см за ослаблення потужності лазерного випромінювання з коефіцієнтом від 0,29 до 1 (1 відповідає максимальній потужності використовуваного лазера). Окремо наведені спектри розсіювання допоміжного He-Ne-лазера за матовим склом на вході (en) та виході (ex) з кювети. Ширина щілин Δb за використання методу просторової фільтрації

кутових спектрів становила 0,5 мм, а відстань між щілинами – $2b = 20$ мм.

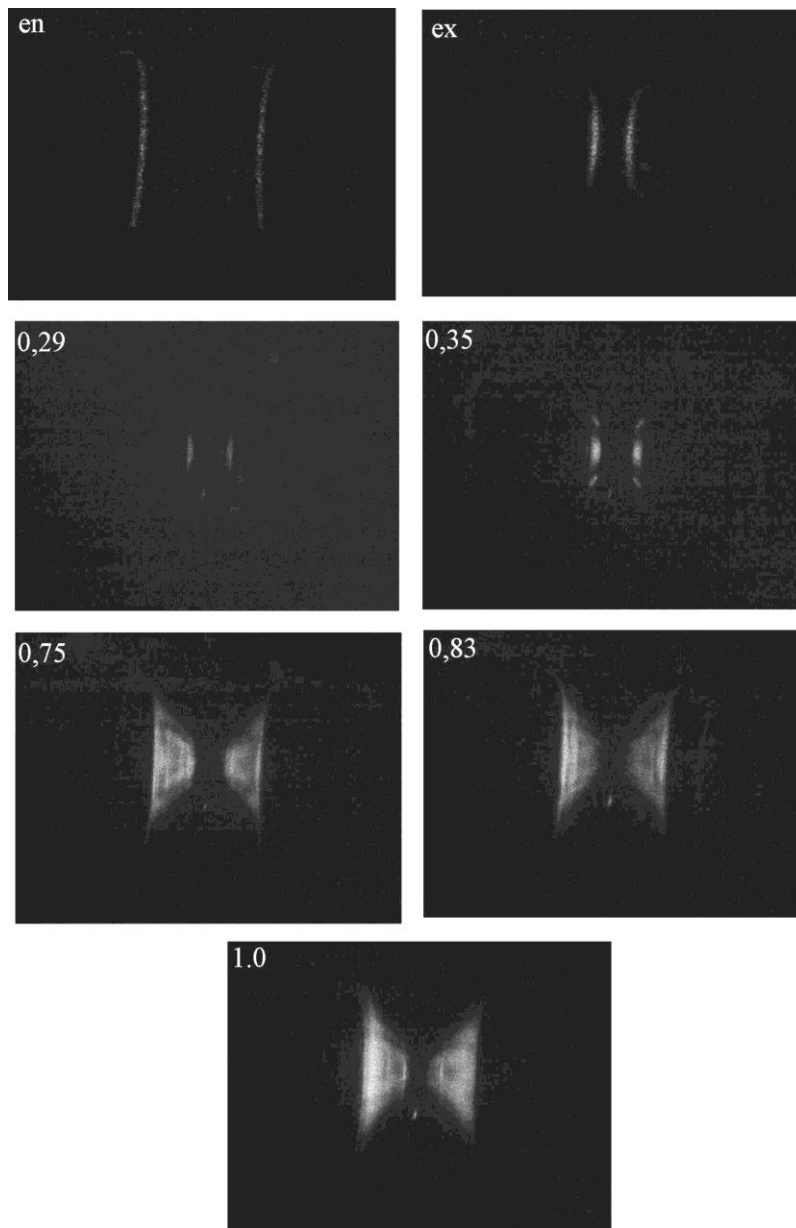


Рис. 3.6. Просторово-кутові спектри антистоксового ВКР у кюветі з толуолом довжиною 25 см за ослаблення потужності лазерного випромінювання з коефіцієнтом від 0,29 до 1 (1 відповідає максимальній потужності використовуваного лазера). Окремо наведені спектри розсіювання He-Ne-лазера за матовим склом на вході (en) та виході (ex) з кювети.

За збільшення потужності лазерного випромінювання спостерігається подовження ділянки траси розсіювання вглиб кювети від виходу з неї.

Розсіювання у антистоксові компоненти не спостерігається на деякій вхідній частині кювети, де фокальна область не утворюється внаслідок існування мінімальної фокальної відстані самофокусування, пов'язаної з максимальним перевищенням критичної потужності. Також, зі збільшенням потужності лазера змінюється кутова структура антистоксового ВКР. Для мінімальних потужностей лазерного випромінювання кути переважного випромінювання є визначеними, а за збільшення потужності випромінювання спостерігається значне кутове розширення усіх антистоксових компонент.

Дослідження також виконувалися для інших середовищ, зокрема, для орто-ксилолу, бромформу та бензолу. На рис. 3.7 та рис. 3.8 наведені зразки просторово-кутових спектрів антистоксового ВКР розсіяння у орто-ксилолі та бромформі. Параметри системи реєстрації такі ж, як для толуолу на рис. 3.6. У бромформі відбувалось деяке поглинання на довжині хвилі λ_{vL} лазерного випромінювання, тому просторово-кутові спектри мають свої особливості, які не вкладаються у загальну залежність. Ці спектри мають невиражену кутову структуру.

На рис. 3.9 подані просторово-кутові спектри антистоксового ВКР у бензолі. Оскільки в кюветі довжиною 25 см ВКР не спостерігалось, довжина кювети була збільшена до 40 см. Відстань між щілинами $2b$ була зменшена до 14,5 мм, оскільки менша відстань дає змогу реєструвати спектри біля виходу з кювети на порозі самофокусування. Загалом, це ускладнює порівняльний аналіз просторово-кутових спектрів різних рідин на якісному рівні, але не впливає на кількісний аналіз щодо розташування фокальної точки.

Зазначимо, що зміни параметрів схеми реєстрації за обчислень ураховуються виходячи з „реперних” спектрів розсіювання матовим склом на вході (e_n) та виході (e_x) кювети допоміжного He-Ne-лазера. Тому, зміни ℓ_0 (див. рис. 3.5), довжини кювети, відстані $2b$ між щілинами діафрагми, не впливають на кінцевий результат.

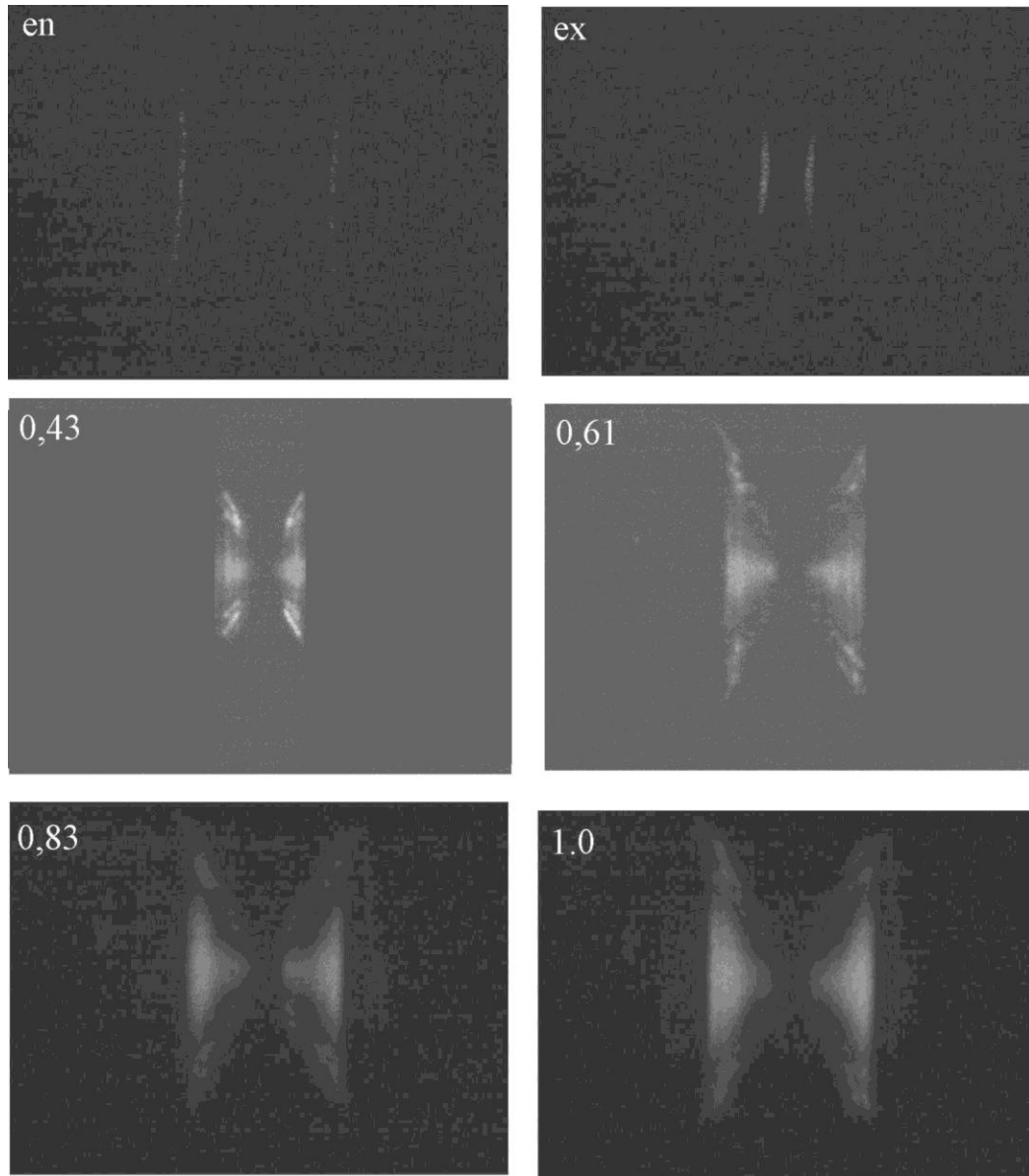


Рис. 3.7. Просторово-кутові спектри антистоксового ВКР у орто-ксилолі (довжина кювети 25 см) за ослаблення потужності лазерного випромінювання з коефіцієнтами 0,43, 0,61, 0,83 та 1 (1 відповідає максимальній потужності використовуваного лазера). Наведені спектри розсіювання He-Ne-лазера за матовим склом на вході (en) та виході (ex) з кювети.

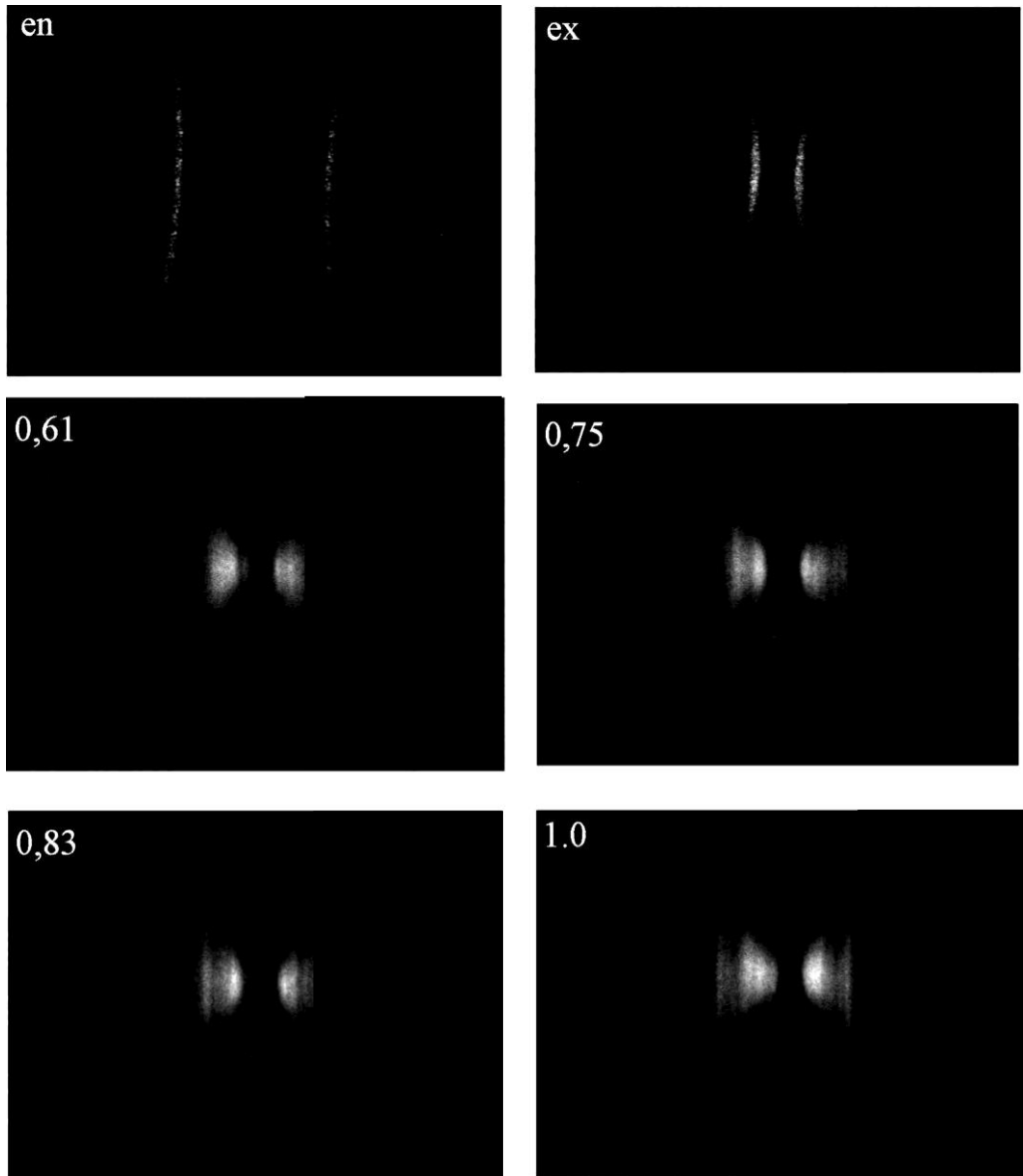


Рис. 3.8. Просторово-кутові спектри антистоксового ВКР у бромформі (довжина кювети 25 см) за ослаблення потужності лазерного випромінювання з коефіцієнтом від 0,61 до 1 (1 відповідає максимальній потужності використовуваного лазера). Також наведені спектри розсіювання He-Ne-лазера за матовим склом на вході (en) та виході (ex) з кювети.

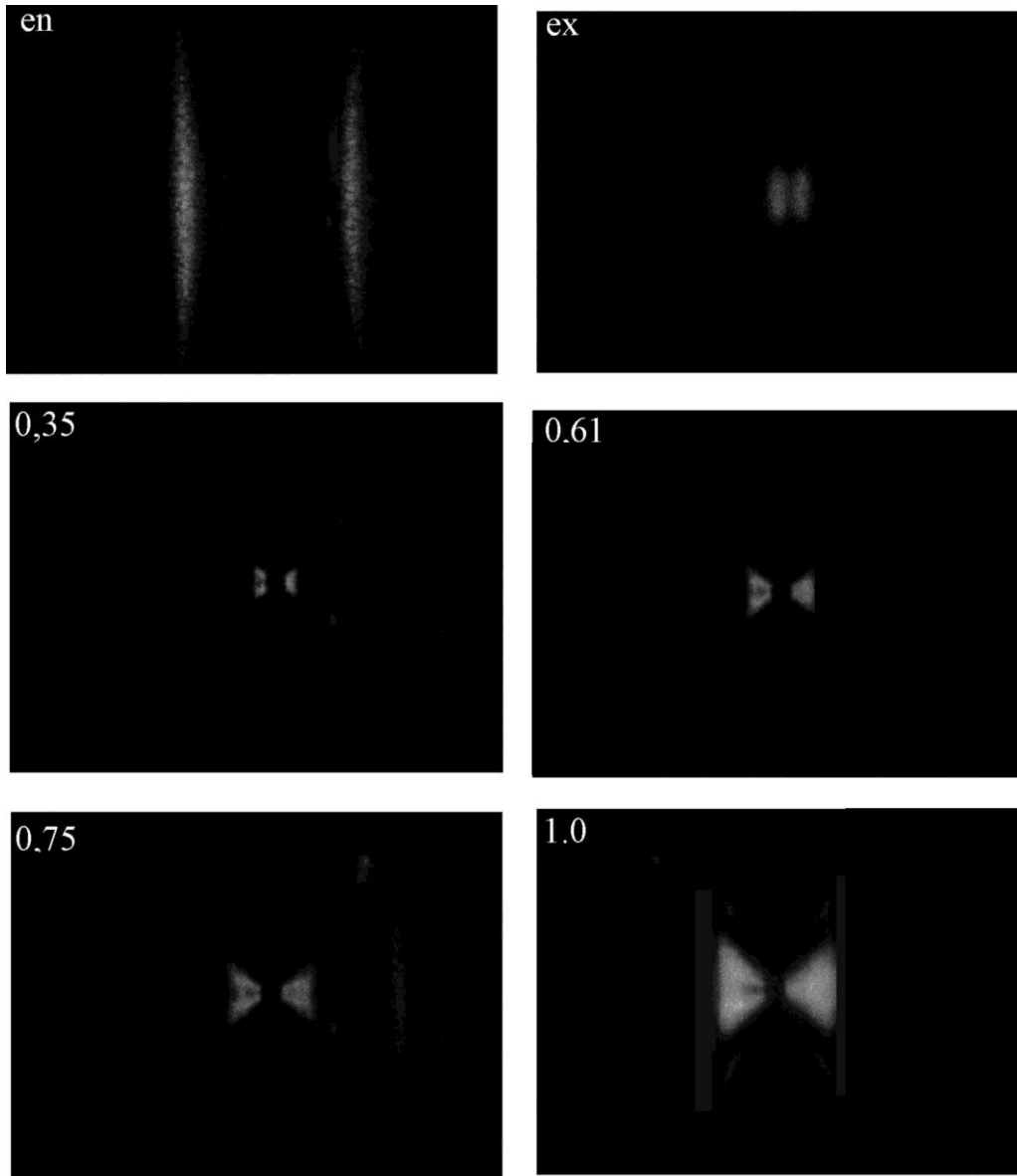


Рис. 3.9. Просторово-кутові спектри антистоксового ВКР у кюветі з бензолом довжиною 40 см за ослаблення потужності лазерного випромінювання з коефіцієнтом від 0,35 до 1 (1 відповідає максимальній потужності використовуваного лазера). Наведені спектри розсіювання He-Ne-лазера за матовим склом на вході (en) та виході (ex) з кювети.

Виміри проводилися з усереднення за ~ 10 спектрами та з градацією зміни потужності лазерного випромінювання $\sim 10\%$ за допомогою стандартного

набору світлофільтрів із вказаним паспортним пропусканням. Пропускання світлофільтрів на довжині хвилі лазерного випромінювання перевірялося на спектрофотометрі. Незначна похибка вимірювань у межах 5 % виникала внаслідок сферичних аберацій кофокальної системи лінз 2, 4 (див. рис. 3.5), але за потреби враховувалася виходячи з кривизни реперних спектрів розсіювання He-Ne- лазера.

Навіть якісно на рис. 3.6 – рис. 3.9 помітні суттєві зміни самофокусуєчих властивостей досліджуваних рідин та вплив цих властивостей на перебіг антистоксового ВКР та ВКР загалом. Очевидно, що досліджувані рідини мають різні пороги самофокусування, тобто, притаманну їм критичну потужність самофокусування. За порогових значень потужності лазерного випромінювання, коли фокальна область самофокусування розташовується поблизу вихідної межі кювети, для всіх рідин кутова структура випромінювання є більш виразною – існують кути переважного розсіювання в антистоксові компоненти. За збільшення потужності лазерного випромінювання ділянка кювети, де спостерігається антистоксове ВКР, подовжується вглиб кювети від вихідної межі, а кутова структура стає менш виразною, а потому взагалі „дифузною”.

Принциповим є те, що за збільшення потужності лазерного випромінювання виразна кутова структура зникає навіть на виході з кювети, де потужність самофокусованого лазерного випромінювання близька до мінімальних значень. Очевидно, що існує певна залежність від швидкості руху фокальної області самофокусування. Швидкість фокальної області загалом є великою, саме, коли фокальна точка розташована на виході з кювети. Тож, збільшення швидкості фокальної області може сама по собі призводити до розширення кутових спектрів. Далі буде показано, що вплив фазової самомодуляції лазерного випромінювання визначається саме швидкістю фокальної точки.

З використанням допоміжних спектрів розсіювання He-Ne-лазера за матовим склом на вході (en) та виході (ex) з кювети виконувалася розмітка за

трасою проходження лазерного випромінювання через кювету та визначалася мінімальна фокусна відстань самофокусування (максимальна відстань самофокусування збігається з довжиною кювети). На рис. 3.10 наведений просторово-кутовий спектр антистоксового ВКР в орто-ксилолі. Збудження відбувалося в кюветі довжиною $L=25$ см. Спектр є майже симетричним, оскільки використовуються екран із двома паралельними щілинами, розташованими симетрично відносно його центру. В деяких випадках спостерігалася незначна асиметрія. Ширина спектра однозначно пов'язана з мінімальною фокальною відстанню самофокусування $\text{Min}[z_{fd}] = \text{Min}[z_{fp}]$, а висота – з кутовою структурою випромінювання.

Для орто-ксилолу на рис. 3.10 указані точки де розпочинається ($z=0$) та закінчується ($L=25$ см) кювета. Легко з'ясувати, де відбувалося ВКР, а отже, де перебувала фокальна точка протягом лазерного імпульсу та яка мінімальна довжина фокальної відстані самофокусування лазерного випромінювання.

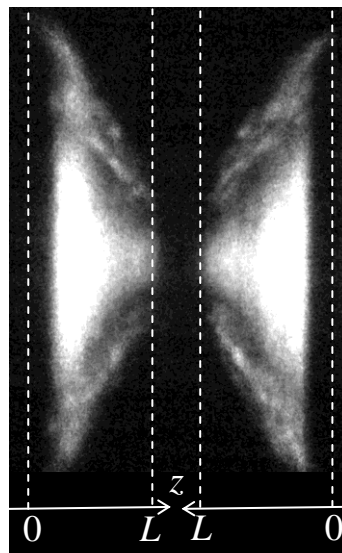


Рис. 3.10. Просторово-кутовий спектр антистоксового ВКР в орто-ксилолі за максимальної енергії імпульсів лазерного випромінювання.

Можна виконати повну розмітку частотно-кутових спектрів ВКР з

урахуванням кутів розсіювання. Для прикладу, на рис. 3.11 наведений просторово-кутовий спектр антистоксового ВКР у толуолі з розміткою за кутами θ та координатою z уздовж кювети, який кількісно показує залежність кутової структури розсіяного випромінювання від точки розташування фокальної точки протягом лазерного імпульсу.

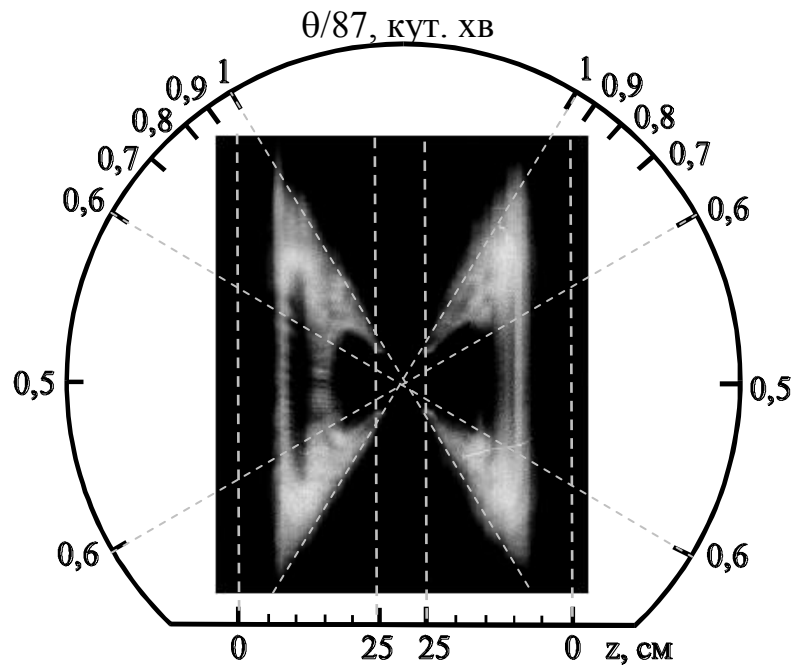


Рис. 3.11. Просторово-кутовий спектр антистоксового ВКР в толуолі з розміткою за координатою точки розсіювання та кутами.

На горизонтальній осі на рис. 3.11 відкладена відстань z від вхідного вікна кювети, а по колу – кут розсіяння θ у відношенні до кута $87,4$ кут.хв., який відповідає теоретичному куту переважного розсіювання першої антистоксової компоненти ВКР у толуолі в умовах необмеженої за довжиною фокальної області з діаметром перетину близьким до нульового.

Виявилось, що на частині траси, прилеглої до вихідної межі кювети, кути переважного випромінювання є мало змінними. Спостерігається тенденція до їх зменшення з наближенням до точки стояння фокуса, яка відповідає

$\text{Min}[z_{fd}] = \text{Min}[z_{fp}]$. За мінімальної відстані самофокусування спостерігається безструктурне за кутами розсіяння.

На рис. 3.12 наведені узагальнені результати досліджень для толуолу. Точками нанесені експериментально визначені мінімальні (ті, що відповідають вершині лазерного імпульсу) довжини самофокусування $\text{Min}[z_{fd}]$ для різних приведених потужностей \tilde{P}_0 . Суцільними лініями на рис. 3.12 наведені функції $z_{fd}\{\tilde{P}_0 > 1\}$ та $z_{fd}^{(w)}\{0,27 \leq \tilde{P}_0 < 1\}$ за формулами (3.27) та (3.28), в яких замість стаціонарної приведеної потужності використовується максимальна приведена потужність $\tilde{P}_0 = P_{0L}/P_{cr}$, що відповідає вершині імпульсу лазерного випромінювання.

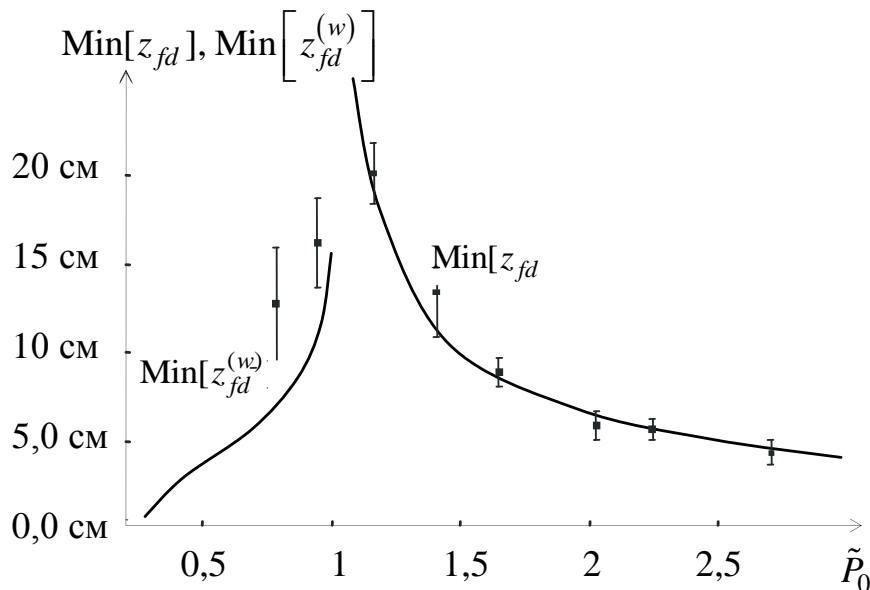


Рис. 3.12. Порівняння теоретичних і експериментальних даних для толуолу: точки – експеримент, суцільні лінії – функції $z_{fd}\{\tilde{P}_0 > 1\}$ та $z_{fd}^{(w)}\{0,27 \leq \tilde{P}_0 < 1\}$ за формулами (3.27) та (3.28), які відповідають мінімальним відстаням самофокусування на вершині імпульсу ($\text{Max}[\tilde{P}_0] = 2,7$; $a_0 = 88$ мкм).

Зауважимо, що величина \tilde{P}_0 з деяким коефіцієнтом прямо пропорційна енергії імпульсу (яка контролювалася в експерименті) але невідома, оскільки невідомим є сам коефіцієнт. Невизначеність коефіцієнта обумовлена дрібномасштабним самофокусуванням – незалежним самофокусуванням різних фрагментів пучка внаслідок його неоднорідності. Тому максимальне значення $\text{Max}[\tilde{P}_0] = \text{Max}[P_{0L}]/P_{cr}$, яке відповідає неослабленому лазерному імпульсу з енергією 0,5 Дж, є параметром, що підлягає визначенню.

Окрім максимального значення $\text{Max}[\tilde{P}_0]$ для побудови графіків функцій використовувалася ще один невідомий параметр – початковий радіус a_0 окремих фрагментів пучка, які самофокусуються незалежно. Корисливою зміною параметрів $\text{Max}[\tilde{P}_0]$ та a_0 досягнуто задовільне (у межах похибки експерименту) узгодження теоретичних і експериментальних даних в інтервалі $\tilde{P}_0 > 1$. Значення параметрів, за яких дані збігаються для толуолу, становлять: $\text{Max}[\tilde{P}_0] = 2,7$ та $a_0 = 88$ мкм.

На відрізку $0,27 \leq \tilde{P}_0 < 1$ узгодженість результатів за тих же параметрів гірша. Очевидною обставиною, яка призводить до цього, є делокалізованість процесу ВКР при $\tilde{P}_0 < 1$ унаслідок відсутності чітко окресленої області з високою потужністю розсіяного випромінювання. В інтервалі потужностей $0,75 \leq \tilde{P}_0 < 1$ антистоксове ВКР спостерігалось лише для третини імпульсів, а при $\tilde{P}_0 < 0,75$ було відсутнім.

Зазначимо, що просторово-кутові спектри дають змогу визначати нормовану потужність \tilde{P} лазерного випромінювання, що попадає у фокальну область, та початковий радіус самофокусованої частини пучка навіть за двома спектрами. Для цього два спектри мають отримуватися за відомого співвідношення $j = P_{0L}^{(2)}/P_{0L}^{(1)}$, яке задається встановленими світлофільтрами перед кюветою. Далі використовується система двох рівнянь на основі (3.27) з двома невідомими параметрами, записаних для $\text{Min}[z_{fd}]$ від $\tilde{P}_0 \Big|_{P_{0L}^{(1)}}$, a_0 та

$$\tilde{P}_0 \Big|_{P_{0L}^{(2)}} = j \tilde{P}_0 \Big|_{P_{0L}^{(1)}}, a_0.$$

Розв'язок вказаної системи рівнянь можна отримати навіть аналітично. Такий розв'язок є особливо простий, якщо в (3.27) відкинути другий член у знаменнику, що можливо за умови значного ($\geq 1,3$) перевищення критичної потужності. Тоді одержуємо:

$$\tilde{P}_0 \{P_{0L}^{(1)}\} = \left[0,77 \left(\frac{\text{Min} [z_{fd} \{P_{0L}^{(1)}\}]}{\text{Min} [z_{fd} \{P_{0L}^{(2)}\}]} - 1 \right) / \left(\frac{\text{Min} [z_{fd} \{P_{0L}^{(1)}\}]}{\text{Min} [z_{fd} \{P_{0L}^{(2)}\}]} - \sqrt{j} \right) \right]^2. \quad (3.31)$$

Після цього з використанням $\tilde{P}_0 \{P_{0L}^{(1)}\}$ знаходимо a_0 :

$$a_0 = \left[\text{Min} [z_{fd} \{P_{0L}^{(1)}\}] \frac{\sqrt{\tilde{P}_0 \{P_{0L}^{(1)}\} - 0,77}}{0,38k_{0L}} \right]^{1/2}. \quad (3.32)$$

Знаючи a_0 та розв'язавши рівняння (3.27) відносно \tilde{P} , можна розрахувати миттєве значення потужності \tilde{P} самофокусованого випромінювання для довільного положення z_{fd} фокальної відстані уздовж її траси, а потому перейти до залежності від z_{fp} . Якщо ж є відомим абсолютне значення величини критичної потужності P_{cr} самофокусування, яке визначається n_2 та може бути розраховане, то легко перейти до абсолютного значення потужності самофокусованого випромінювання.

Для побудови залежності $\text{Min} [z_{fd} \{\tilde{P}_0\}]$ на рис. 3.12 використано більше, ніж два спектри, що суттєво покращує точність визначення параметрів самофокусування (не гірше 5 %).

На рис. 3.13 подані результати для орто-ксилолу за нормованої критичної

потужності $\tilde{P}_0 > 1$. Значення параметрів, за яких дані збігаються для ортоксилулу, становлять: $\text{Max}[\tilde{P}_0] = \text{Max}[P_{0L}]/P_{cr} = 4,0$ та $a_0 = 125$ мкм. З цих параметрів зі всією очевидністю випливає принциповий висновок про можливість попадання у фокальну область потужності лазерного випромінювання, яка перевищує $2P_{cr}$. Такі реалізації самофокусування до цих експериментів були дискусійними.

З іншого боку, чітка монотонність зміни $\text{Min}[z_{fd}]$ від \tilde{P}_0 рис. 3.13 вказує на визначеність a_0 , що узгоджується з попереднім висновком, та вказує на можливість керування параметрами області самофокусування за допомогою поперечного розподілу інтенсивності лазерного променя.

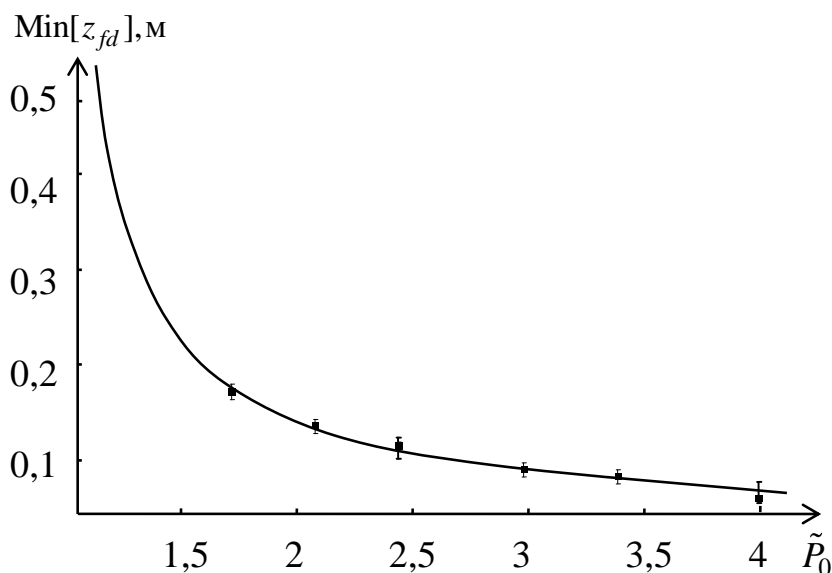


Рис. 3.13. Порівняння теоретичних і експериментальних даних для ортоксилулу: точки — експеримент, суцільна лінія — функція $z_{fd} \{ \tilde{P}_0 > 1 \}$ за формулою (3.27), яка відповідає мінімальній відстані самофокусування на вершині лазерного імпульсу за поступового його ослаблення світлофільтрами ($\text{Max}[\tilde{P}_0] = 4,0$; $a_0 = 125$ мкм).

Аналогічні результати подані на рис. 3.14 для бромоборму, а на рис. 3.15

для бензолу. У бензолі маємо атипові залежності спектрів розсіювання. У кюветі довжиною 25 см ВКР було відсутнім, а отже, і самофокусування не відбувалося. Натомість, у кюветі довжиною 40 см на рис. 3.15 мінімальна фокусна відстань становить 12 см за ослаблення лазерного випромінювання з коефіцієнтом 0,83. Це може спричинятися взаємовпливом самофокусування і ВКР. У бензолі перетин комбінаційного розсіяння є найбільшим серед досліджуваних середовищ, а коефіцієнт нелінійної рефракції мінімальним.

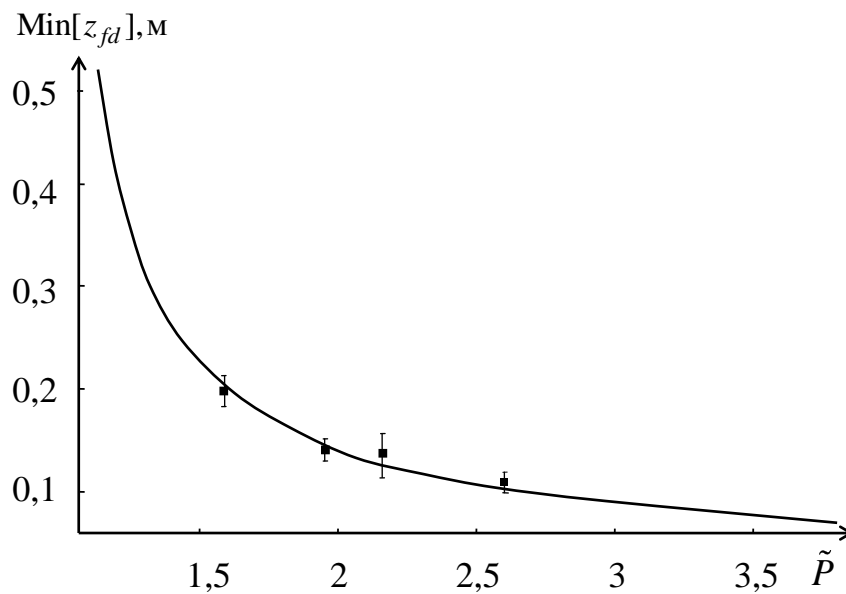


Рис. 3.14. Порівняння теоретичних і експериментальних даних для бромформу: точки – експеримент, суцільна лінія – функція $z_{fd} \{ \tilde{P}_0 > 1 \}$ за формулою (3.27) з параметрами $\text{Max}[\tilde{P}_0] = 2,6$, $a_0 = 125$ мкм.

Співставленням максимальних значень \tilde{P}_0 для різних рідин встановлено, що в орто-ксилолі коефіцієнт нелінійної рефракції n_2 у 1,48 разів більший, ніж у толуолі (для орто-ксилолу $\text{Max}[\tilde{P}_0] = 4,0$, для толуолу $\text{Max}[\tilde{P}_0] = 2,7$), а в бромформі – у 0,96 разів менший (для бромформу $\text{Max}[\tilde{P}_0] = 2,6$).

Що до бензолу, то в ньому коефіцієнт нелінійної рефракції n_2 є мінімальним серед досліджуваних рідин та щонайменше у два рази меншим,

ніж у толуолі. Так, у толуолі ВКР реєструвалося навіть у кюветі довжиною 12,5 см, а для бензолу розсіювання спостерігалось лише за збільшення довжини кювети з 25 см до 40 см. У той же, за збільшення довжини кювети до 40 см мінімальна фокуса відстань у бензолі зменшувалася до ~ 15 см.

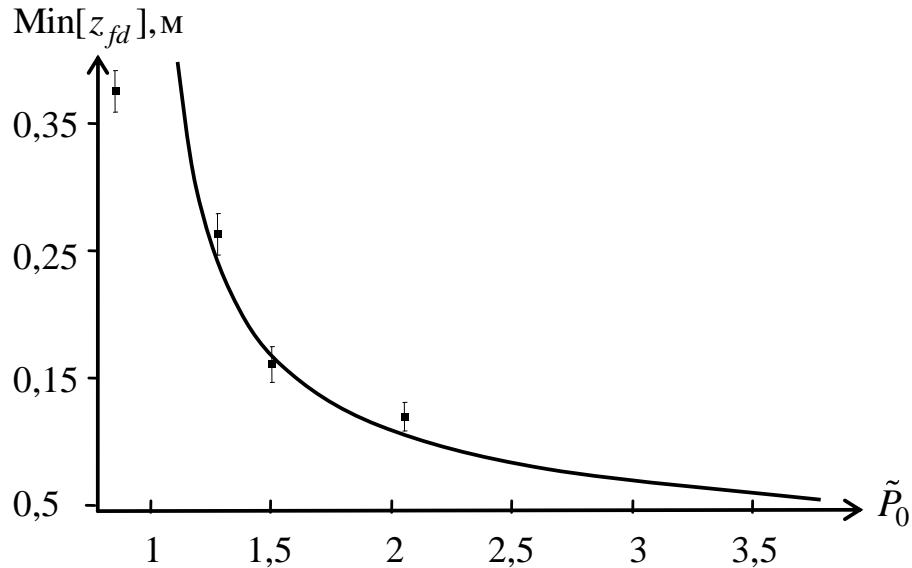


Рис. 3.15. Порівняння теоретичних і експериментальних даних для бензолу: точки – експеримент, суцільна лінія – функція $z_{fd} \{ \tilde{P}_0 > 1 \}$ за формулою (3.27) з параметрами $\text{Max}[\tilde{P}_0] = 2,5$, $a_0 = 110$ мкм.

3.6. Розрахунки швидкості, прискорення та потужності випромінювання для фокальної точки самофокусування.

Якщо відомою є теоретична стаціонарна залежність фокальної відстані z_{fd} від перевищення \tilde{P} критичної потужності (3.27), що узгоджується з наведеними експериментальними дослідженнями, то можна розрахувати швидкість v_{fp} фокальної точки за дії лазерних імпульсів у діапазоні наносекундної тривалості.

Типові залежності для координат $z_{fd} \{ t \}$, $z_{fp} \{ t \}$ та добутку $v_{gL} t$ за

проходження наносекундного лазерного імпульсу рубінового лазера ($\lambda_{vL} = 0,6943$ мкм) через кювету з толуолом подані на рис. 3.16. Вважалося, що імпульс (або субімпульс) лазера з модулем хвильового вектора $k_{0L} = 134887$ см⁻¹ (у середовищі) має гаусів профіль зі сталою часу $\tau_i = 1$ нс. Інші параметри становили: $\tilde{P}_0 = P_{0L}/P_{cr} = 3,6$; $a_0 = 113$ мкм; $v_{gL} = 0,65662c$. Момент часу $t = 0$ відповідає вершині лазерного імпульсу в точці $z = 0$ на вході у кювету.

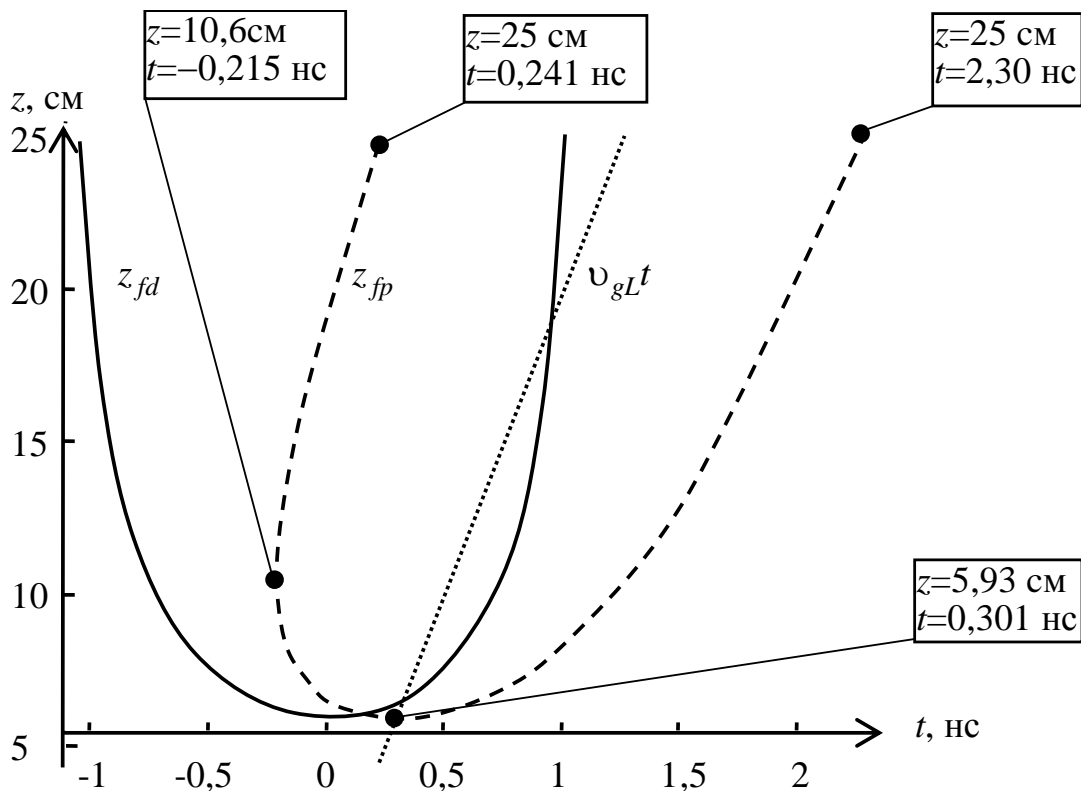


Рис. 3.16. Довжина фокальної відстані (дистанції) z_{fd} (суцільна крива), розташування фокальної точки z_{fp} (штрихова крива) та вершини імпульсу $v_{gL}t$ (пунктирна лінія) в координатах $z\{t\}$ у толуолі за імпульсу рубінового лазера з параметрами: $\tau_i = 1$ нс; $\tilde{P}_0 = 3,6$; $a_0 = 113$ мкм. Жирними крапками з виносками вказані характерні точки для z_{fp} .

Зауважимо, що величини $z_{fd}\{t\}$ та $z_{fp}\{t\}$ пов'язані співвідношенням

$z_{fp}\{t\} = z_{fd}\{t - z_{fd}/v_{gL}\}$, яке не має аналітичного розв'язку, а тому підлягали числовому аналізу. Відмінність між $z_{fd}\{t\}$ та $z_{fp}\{t\}$ (див. рис. 3.16) зростає протягом часу. Лише за наближення $v_{gL} = \infty$ обидві залежності збігаються, а $v_{gL}t$ утворює вертикальну лінію за $t = 0$.

За тих же умов, що використані для побудови графіків на рис. 3.16, числовими методами можна розрахувати обернену до $z_{fp}\{t\}$ залежність, тобто $t\{z = z_{fp}\}$. Результат розрахунків подано на рис. 3.17. Вони дають змогу визначити момент часу, коли фокальна точка має певну координату z , зокрема, момент часу розташування фокальної точки на вихідній межі нелінійного середовища з довжиною L , де $z = z_{fp} = L$. Наведена залежність дає розуміння поведінки швидкості та прискорення фокальної точки у фіксованій координаті.

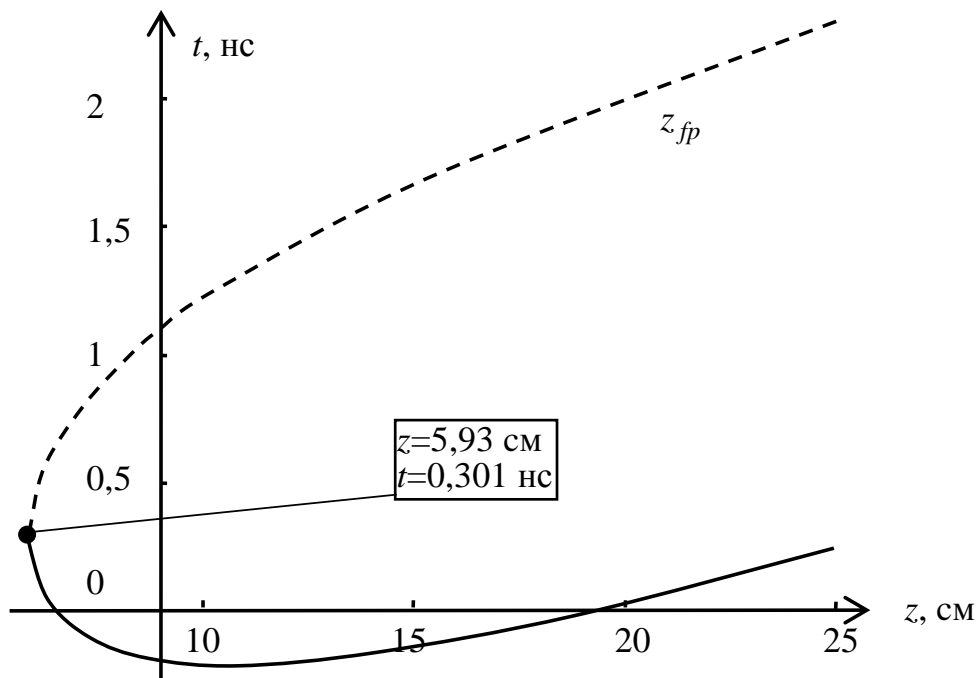


Рис. 3.17. Розташування фокальної точки z_{fp} для толуолу в координатах $t\{z\}$ за імпульсу рубінового лазера з параметрами: $\tau_i=1$ нс; $\tilde{P}_0=3,6$; $a_0=113$ мкм (суцільна крива – фронт імпульсу, штрихова крива – спад імпульсу).

Як проміжний крок аналізу на рис. 3.18 показана залежність від часу нормованої швидкості v_{fp}/v_{gL} фокальної точки для толуолу в координатах $v_{fp}\{t\}$ у межах $L \leq 25$ см. На фронті імпульсу в момент $t = -0,215$ нс спостерігається сингулярність $v_{fp} = \pm\infty$. Окрім цього, на обох крилах імпульсу швидкість фокальної точки асимптотично наближається до v_{gL} .

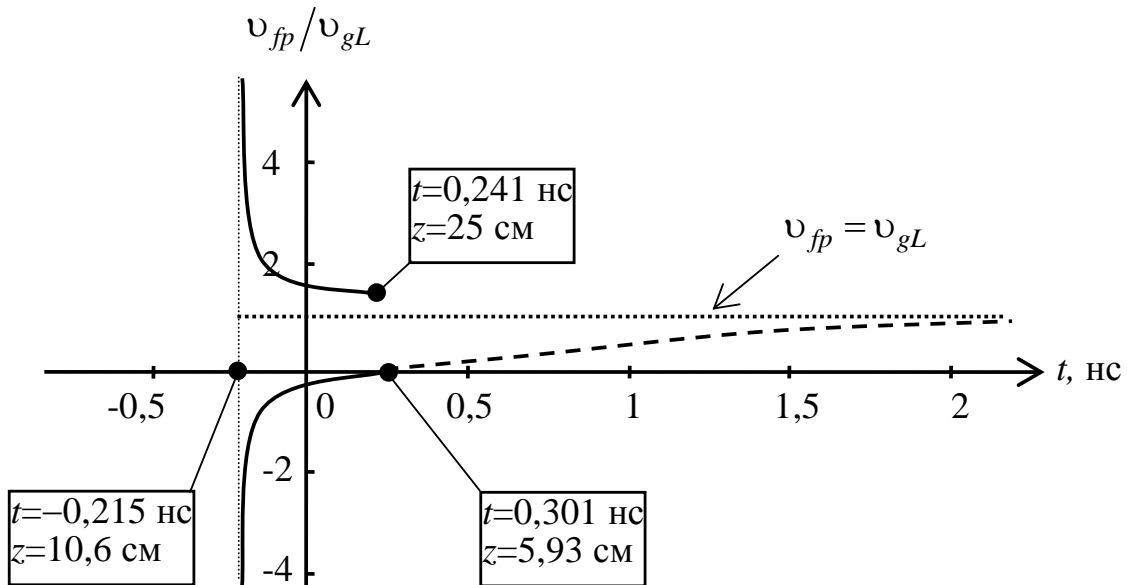


Рис. 3.18. Нормована швидкість v_{fp}/v_{gL} фокальної точки для толуолу в координатах $v_{fp}\{t\}$ за імпульсу рубінового лазера з параметрами: $\tau_i = 1$ нс; $\tilde{P}_0 = 3,6$; $a_0 = 113$ мкм (суцільна крива – фронт імпульсу, штрихова крива – спад імпульсу, довжина кювети – 25 см).

Параметри розсіяного випромінювання з фокальної області в експерименті визначаються у залежності від координати уздовж кювети. Тому, попри важливість часових залежностей (рис. 3.18), необхідно визначити поведінку $v_{fp}\{z\}$ від координати z . Результат розрахунків для $v_{fp}\{z\}$ подано на рис. 3.19, які легко інтерпретуються з використанням рис. 3.17.

Загалом, спостерігаються незначні відхилення швидкості фокальної точки від групової швидкості світла навіть на виході короткої кювети з довжиною

25 см. На фронті лазерного імпульсу маємо перевищення v_{fp} відносно групової швидкості на $v_{fp}/v_{gL}|_{z=25\text{ см}} \approx 1,16$, а на спаді зниження до 0,88. Проте, такі відхилення є принципово важливими, оскільки можуть суттєво впливати на фазову самомодуляцію та перебіг параметричних процесів.

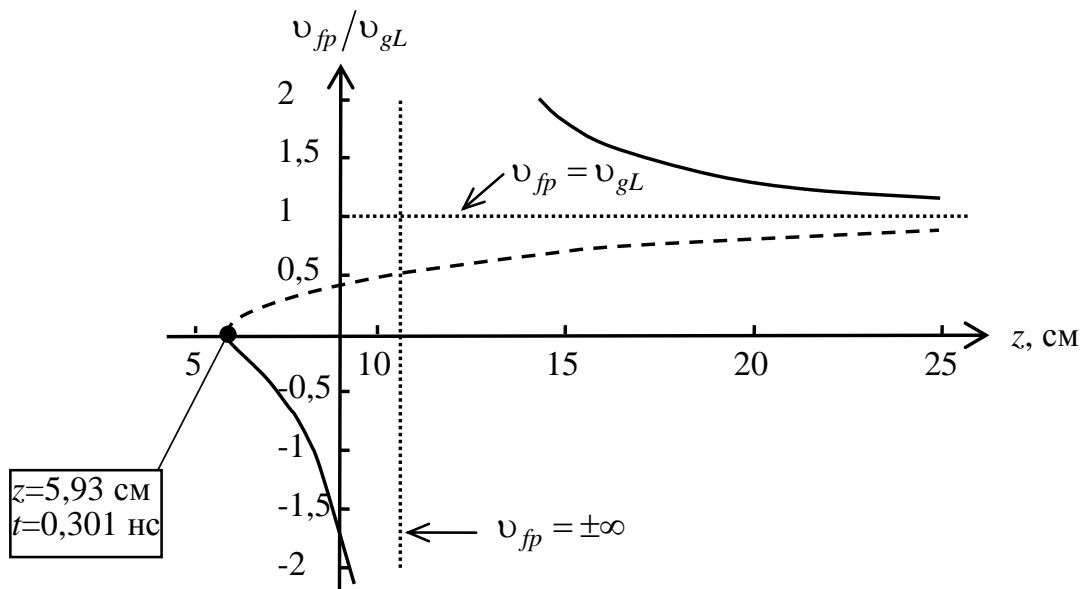


Рис. 3.19. Нормована швидкість v_{fp}/v_{gL} фокальної точки для толуолу в координатах $v_{fp}\{z\}$ за імпульсу лазера з параметрами: $\tau_i=1$ нс; $\tilde{P}_0=3,6$; $a_0=113$ мкм (суцільна крива – фронт, штрихова крива – спад імпульсу).

Для довготривалої реалізації умов фазового та групового синхронізмів не менш важливим є прискорення руху фокальної області. Саме на ділянках траси руху фокальної області з незначним прискорення може утворюватися виразна частотно-кутова структура розсіяного випромінювання зі значною потужністю. У зв'язку з цим наводимо дані щодо прискорення a_{fp} фокальної точки як у координатах $a_{fp}\{t\}$ на рис. 3.20, так і координатах $a_{fp}\{z\}$ на рис. 3.21.

За визначених попередньо умов та параметрів мінімальні прискорення фокальної точки реалізуються в координаті її зупинки на вершині імпульсу та на виході з кювети. Так, за координати $z=5,93$ см зупинки фокальної точки

нормоване прискорення $a_{fp}/v_{gL} = 0,531 \text{ нс}^{-1}$, а на виході кювети за $L = z = 25 \text{ см}$ становить $-0,396 \text{ нс}^{-1}$ та $+0,177 \text{ нс}^{-1}$ (відповідно на фронті та спаді імпульсу). Нульові прискорення не спостерігаються навіть на вершині імпульсу.

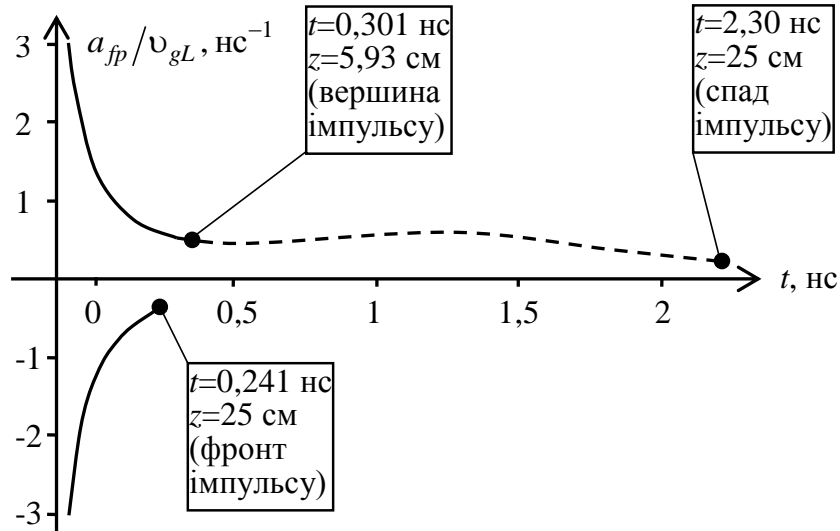


Рис. 3.20. Нормоване прискорення a_{fp}/v_{gL} фокальної точки для толуолу за імпульсу з параметрами: $\tau_i=1 \text{ нс}$; $\tilde{P}_0=3,6$; $a_0=113 \text{ мкм}$ (суцільна крива – фронт, штрихова крива – спад імпульсу, довжина кювети – 25 см).

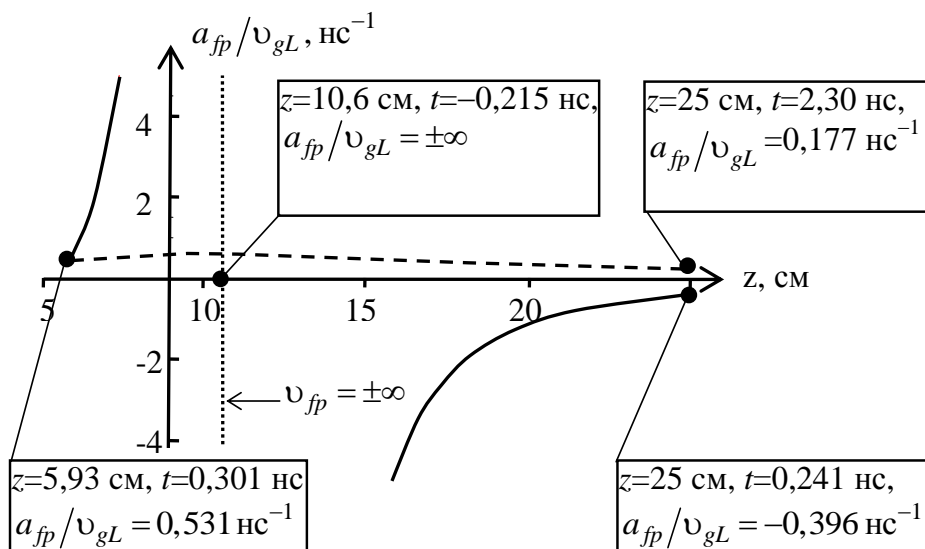


Рис. 3.21. Нормоване прискорення a_{fp}/v_{gL} фокальної точки для толуолу в координатах $a_{fp}\{z\}$ для імпульсу з параметрами: $\tau_i=1 \text{ нс}$; $\tilde{P}_0=3,6$; $a_0=113 \text{ мкм}$ (суцільна крива – фронт імпульсу, штрихова крива – спад імпульсу).

Уже зазначалося (див. п. 3.1), що потужність світла $P_{Lf} \{t, z\}$ у фокальній точці можна розрахувати тільки чисельно за відомої залежності $z_{fd} \{P_L\}$. Аналітично можна подати лише залежність $P_{Lf} \{z\}$, що є оберненою функцією до $z_{fd} \{P_L\}$. Така залежність на основі (3.27) має вигляд:

$$\tilde{P}_{Lf} \equiv \frac{P_{Lf}}{P_{cr}} = \left(\sqrt{\left(\frac{0,38k_0L a_0^2}{z} \right)^2 + 0,053 + 0,77} \right)^2 \quad (3.33)$$

Для толуолу у випадку гаусового лазерного імпульсу з параметрами $\tau_i=1$ нс; $\tilde{P}_0=3,6$; $a_0=113$ мкм функція $\tilde{P}_{Lf} \{z\}$ (3.33) подана на рис. 3.22.

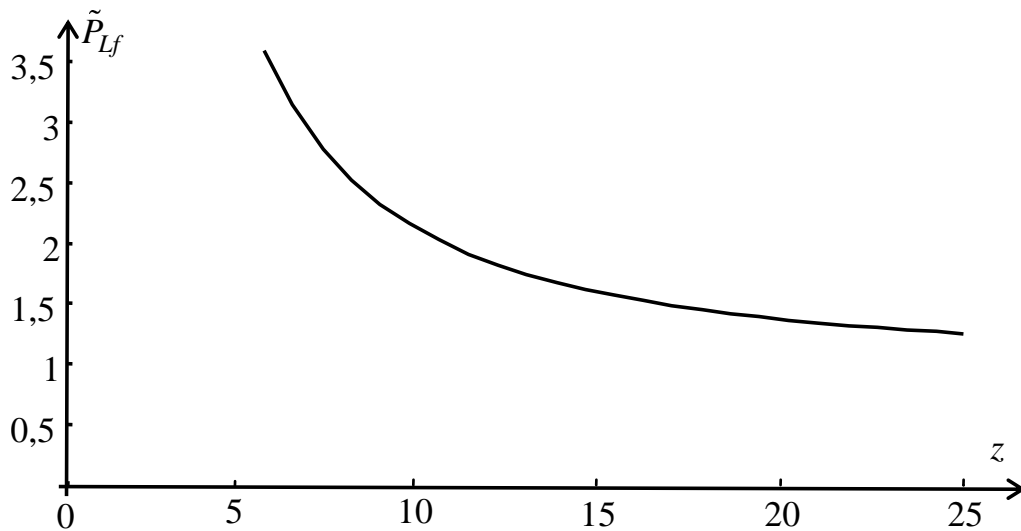


Рис. 3.22. Нормована залежність $\tilde{P}_{Lf} \{z\}$ для толуолу у випадку гаусового лазерного імпульсу з параметрами $\tau_i=1$ нс; $\tilde{P}_0=3,6$; $a_0=113$ мкм.

Загалом, спостерігається монотонно спадаюча залежність P_{Lf} за зростання z . Найповільніше P_{Lf} від z змінюється на виході кювети, але там зростає швидкість фокальної точки.

На рис. 3.22 відсутня інформація стосовно часової залежності P_{Lf} . Додаткову інформацію можна отримати, якщо подати тривимірний графік $P_{Lf}\{t, z\}$. Побудова такого графіку спрощується для гаусових лазерних імпульсів, оскільки залежність (3.27) має аналітичний розв'язок відносно t :

$$t = z/v_{gL} \pm \tau_i \sqrt{2 \ln \left[\frac{\sqrt{P_{0L}/P_{cr}}}{\left(\sqrt{\left(0,38k_{0L}a_0^2/z\right)^2 + 0,053 + 0,77} \right)} \right]}, \quad (3.34)$$

де знак „-” відповідає фронту імпульсу, а „+” – спаду імпульсу.

Навіть за відомої залежності (3.34) необхідно використовувати параметричне подання графіка $(z, t\{z\}, P_{Lf}\{z\})$. Один із графіків подано на рис. 3.23.

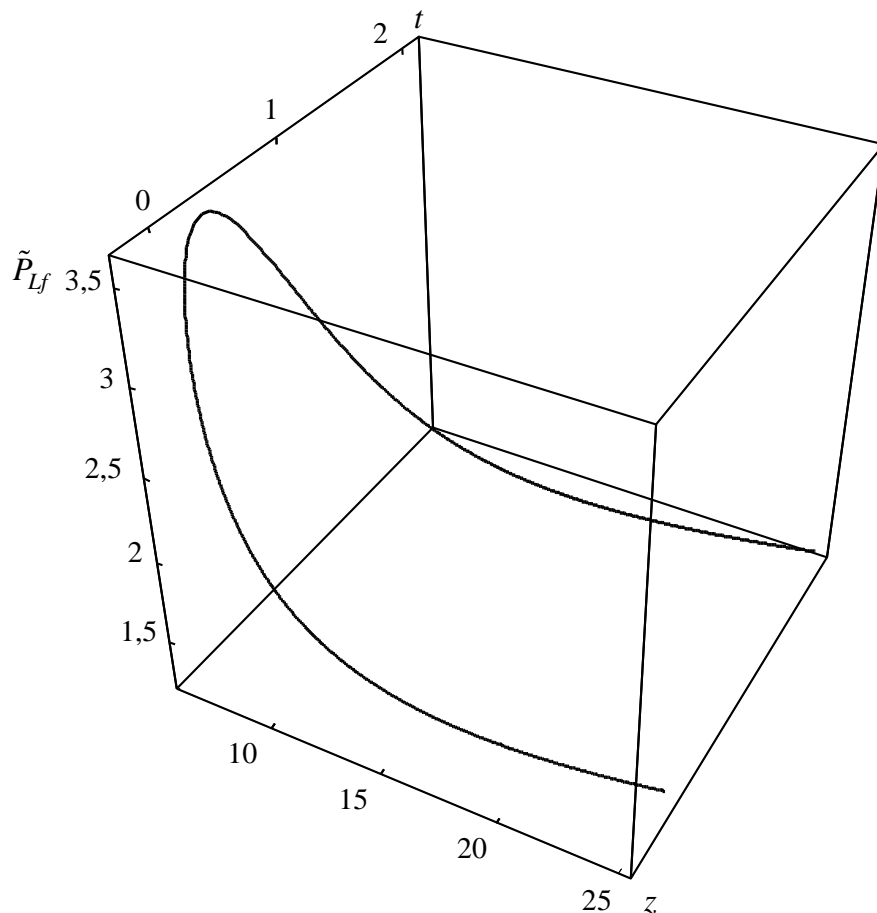


Рис. 3.23. Нормована залежність \tilde{P}_{Lf} у координатах $\{z, t, P_{Lf}\}$ для толуолу за збудження гаусовим імпульсом з параметрами: $\tau_i=1$ нс; $\tilde{P}_0=3,6$; $a_0=113$ мкм.

На рис. 3.23 залежність $P_{Lf} \{t, z\}$ має два подібні спадаючі „крила” за координатою z , аналогічні графіку поданому на рис. 3.22. „Крило” за меншого часу t відповідає фронту лазерного імпульсу, а за більшого – спаду імпульсу.

На фронті імпульсу утворюються дві фокальні точки з різними значеннями \tilde{P}_{Lf} . Для наочного відображення цього ефекту доцільно побудувати двовимірну параметричну залежність у вигляді графіка з точками $(t\{z\}, P_{Lf}\{z\})$, яка на основі чисельних розрахунків подана на рис. 3.24.

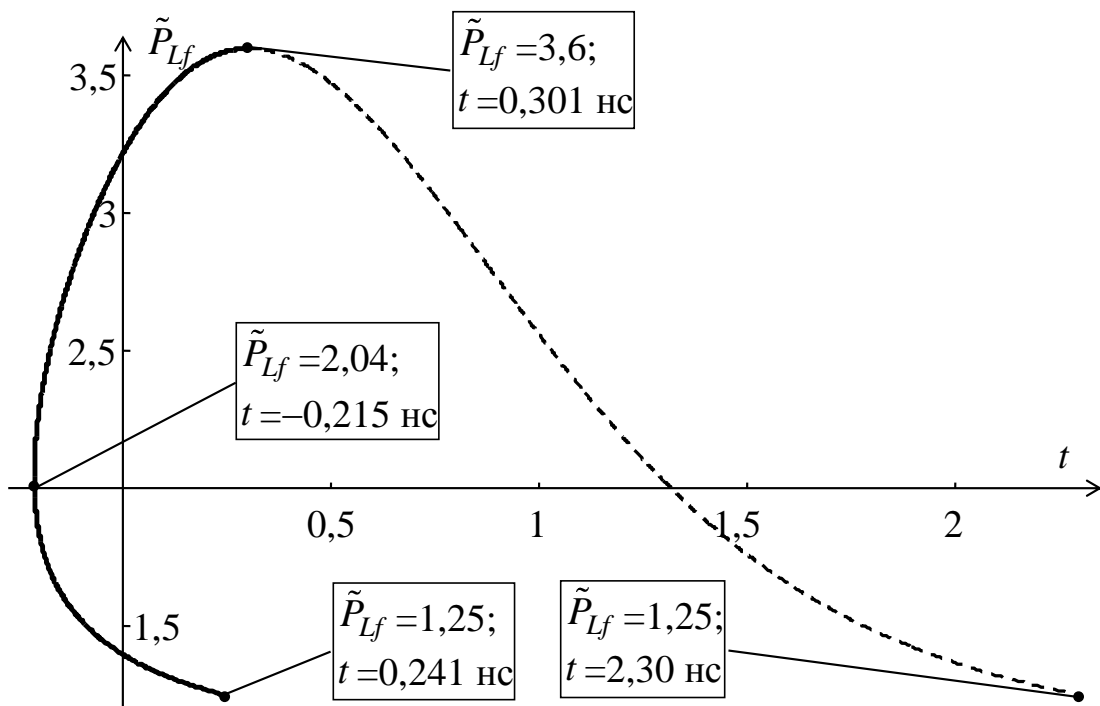


Рис. 3.24. Нормована залежність \tilde{P}_{Lf} у координатах $\{t, P_{Lf}\}$ для толуолу за збудження гаусовим імпульсом з параметрами: $\tau_i = 1$ нс; $\tilde{P}_0 = 3,6$; $a_0 = 113$ мкм (суцільна крива – фронт імпульсу, штрихова крива – спад імпульсу).

На рис. 3.24 за довжини кювети з толуолом $L = 25$ см розрахункове мінімальне значення \tilde{P}_{Lf} на вихідній межі середовища становить 1,25, яке на фронті імпульсу досягається в момент 0,241 нс, а на спаді – за часу 2,30 нс. Максимальному значенню потужності 3,6 відповідає $t = 0,301$ нс. У межах

інтервалу $t = -0,215 \div 0,301$ нс існування фокальна точка на фронті імпульсу потужність світла у ній має складну поведінку. Це обумовлено існуванням двох фокальних точок одночасно.

На фронті імпульсу фокус за трасою проходження імпульсу з'являється в момент $-0,215$ нс. В цей момент потужність світла в фокальній області становить $\tilde{P}_{Lf} = 2,04$, тобто, є близькою до подвійного перевищення критичної потужності самофокусування. Навіть у випадку зміни максимальної потужності \tilde{P}_0 у межах $2,8 \div 4,0$ діапазон \tilde{P}_{Lf} у фокальній області за її появи залишається в межах $1,9 \div 2,1$ (для обрахунків використовувалася формула (3.27)).

Поведінку \tilde{P}_{Lf} поблизу моменту $t = -0,215$ нс появи фокальної точки показано на рис. 3.25 у координатах $\{t, \tilde{P}_{Lf}\}$ за меж $\tilde{P}_{Lf} = 1,8 \div 2,34$.

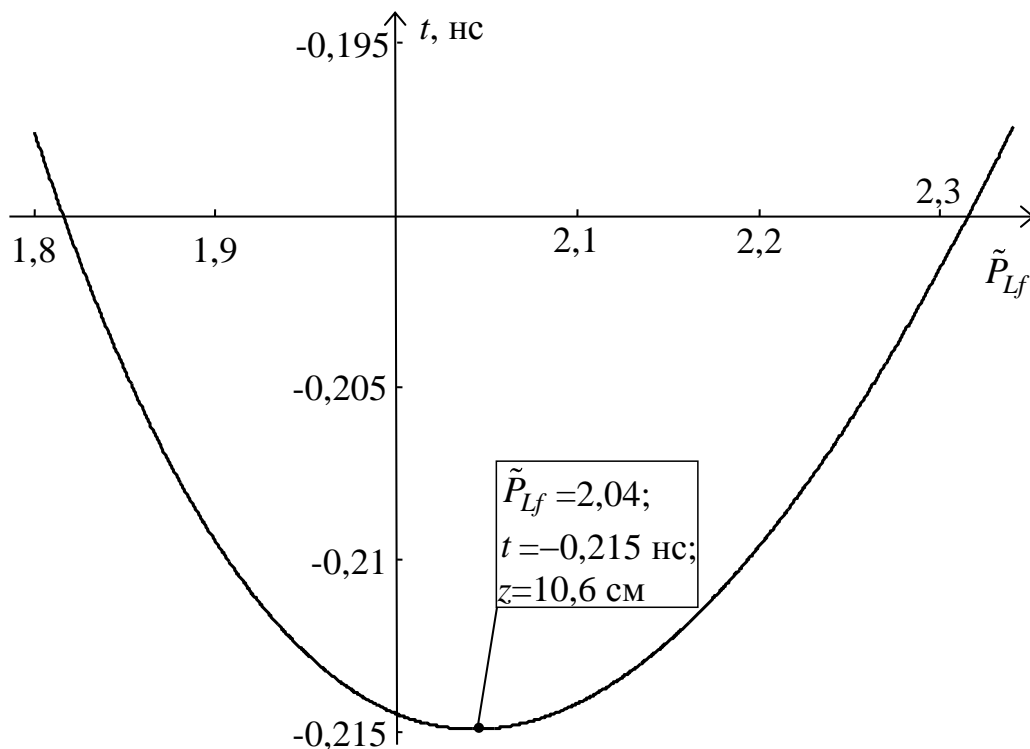


Рис. 3.25. Нормована залежність $\tilde{P}_{Lf}(t)$ для толуолу поблизу моменту $t = -0,215$ нс появи фокальної точки за збудження гаусовим лазерним імпульсом з параметрами: $\tau_i = 1$ нс; $\tilde{P}_0 = 3,6$; $a_0 = 113$ мкм.

В момент $t = -0,215$ нс у точці $z = 10,6$ см утворюється дві фокальні області. Одна з них рухається до виходу кювети, що супроводжується зменшенням \tilde{P}_{Lf} (див. рис. 3.23), а інша рухається до вхідної межі зі зростанням \tilde{P}_{Lf} .

3.7. Експериментальні дослідження самофокусування у двокюветних схемах.

Уже зазначалося, що поєднання можливостей ВКР, як ефективного методу перебудови частоти лазерного випромінювання, та ефекту самофокусування, як методу просторового сканування потужними згустками електромагнітного поля зі швидкістю, близькою і більшою швидкості світла, дозволяє трансформувати початковий імпульс лазерного випромінювання у довільну послідовність субімпульсів з заданими наперед для кожного субімпульсу тривалістю та частотою. Для цього потрібно лише пропустити імпульс випромінювання лазера через зразок, складений з поперечних шарів різних ВКР-активних самофокуруючих матеріалів заданої товщини. У найпростішому випадку, якщо тонкий шар ВКР-активного матеріалу розташувати в сильно фокусуєчому середовищі (наприклад, кальцит CaCO_3 у сірковуглеці CS_2), то можна одночасно з перестроюванням частоти скоротити тривалість імпульсу за один прохід у $10^2 \div 10^3$ разів.

Тому з практичної точки зору цікавими є двокюветні схеми, в яких перша кювета забезпечує утворення фокальної області з параметрами недосяжними для звичайних лінз (далі показано, що протяжність фокальної області самофокусування хоча є обмеженою, але значно перевищує ту ж довжину за використання звичайних скляних лінз). Тоді у другій кюветі може генеруватися ВКР навіть у середовищі з незначним перетином комбінаційного розсіювання, але необхідним для ефективної трансформації частоти та часових параметрів лазерного випромінювання.

Перш за все постає питання, за якої відстані ΔL між двома кюветами втрачаються переваги фокусування керівськими середовищами, а власне, як

зростання відстані ΔL між різними середовищами порушує утворення фокальної області самофокусування.

На рис. 3.26 наведені просторово-кутові спектри для двох кювет з толуолом. Перша кювета мала довжину $L_1=25$ см, а друга - $L_2=12,5$ см. На рис. 3.26 показані межі кювет L_1 та L_2 . Відстань між кюветами на рис. 3.26 (а) була нульовою, але проміжок між середовищами становив $\Delta L=4$ мм за рахунок товщин вікон кювет. Просторово-кутовий спектр на рис. 3.26 (б) показує зміни антистоксового ВКР і самофокусування на трасі проходження лазерного імпульсу в комбінованому середовищі за умови відстані між середовищами $\Delta L=4$ см та використання фільтра між кюветами з пропусканням $T=35\%$.

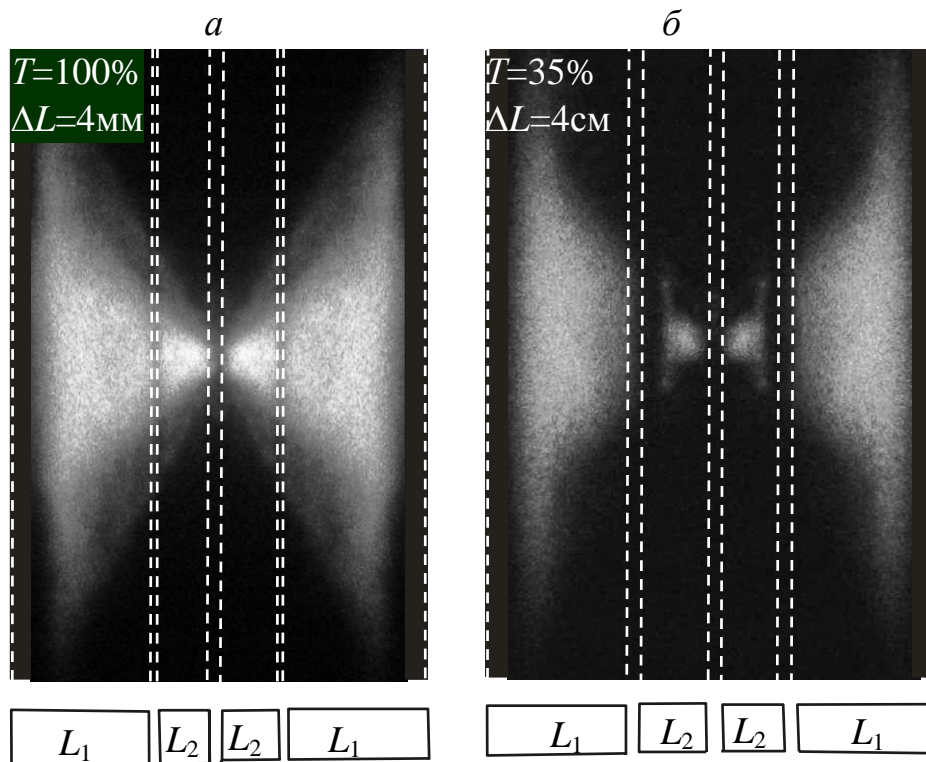


Рис. 3.26. Просторово-кутові спектри за використання двох кювет з толуолом довжиною $L_1=25$ см та $L_2=12,5$ см (показані межі кювет): а) відстань між середовищами $\Delta L=4$ мм; б) $\Delta L=4$ см, пропускання фільтра між кюветами $T=35\%$.

Якісно рис. 3.26 демонструє, що за збільшення відстані ΔL між середовищами та ослаблення лазерного випромінювання на вході в друге

середовище зростає відстань ΔF між ділянками траси самофокусованого лазерного випромінювання на межі кювет. На виході з першої кювети самофокусування зберігається до її вихідної межі, але з'являється ділянка траси на вході в другу кювету, де антистоксове ВКР і самофокусування не утворюється.

Числові залежності відстані $\Delta F \{ \Delta L, T \}$, де антистоксове ВКР між двома середовищами не спостерігалось, від відстані ΔL між двома середовищами та пропускання T послаблюючого фільтра між кюветами наведені на рис. 3.27 та рис. 3.28.

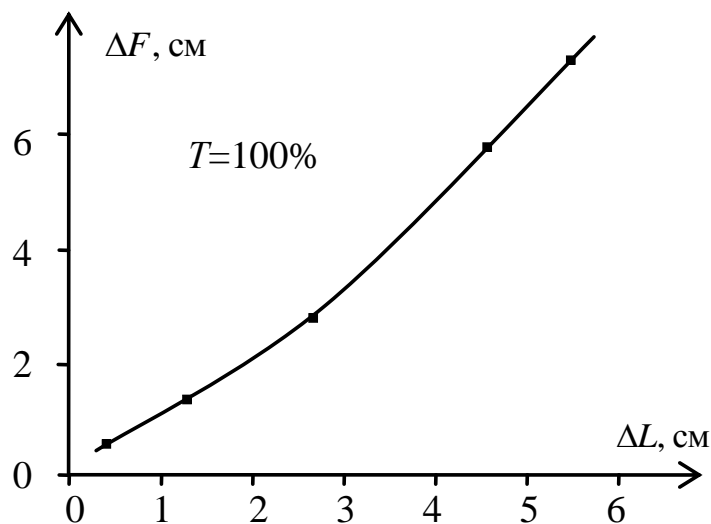


Рис. 3.27. Залежність довжини $\Delta F \{ \Delta L, T = 100\% \}$ ділянки траси відсутності антистоксового ВКР за умови $T = 100\%$ (без послаблюючого фільтра між кюветами).

Залежність $\Delta F \{ \Delta L, T = 100\% \}$ за умови $T = 100\%$ на рис. 3.27 показує монотонне зростання ΔF за збільшення ΔL . У діапазоні досліджуваних змін $\Delta L = 0,4 \div 5,3$ см не спостерігається помітного перебільшення ΔF над ΔL , але відбувається прискорене наростання ΔF у залежності від ΔL за $\Delta L \geq 3$ см. Це дає оцінку довжин утворюваної фокальної області після першої кювети на рівні 3 см.

Залежність $\Delta F \{ \Delta L, T = 35\% \}$ за умови $T = 35\%$ на рис. 3.28 на відміну від $\Delta F \{ \Delta L, T = 100\% \}$ на рис. 3.27 показує більш, ніж двократне, перебільшення ΔF над ΔL , якщо ΔL наближається або перевищує 1 см.

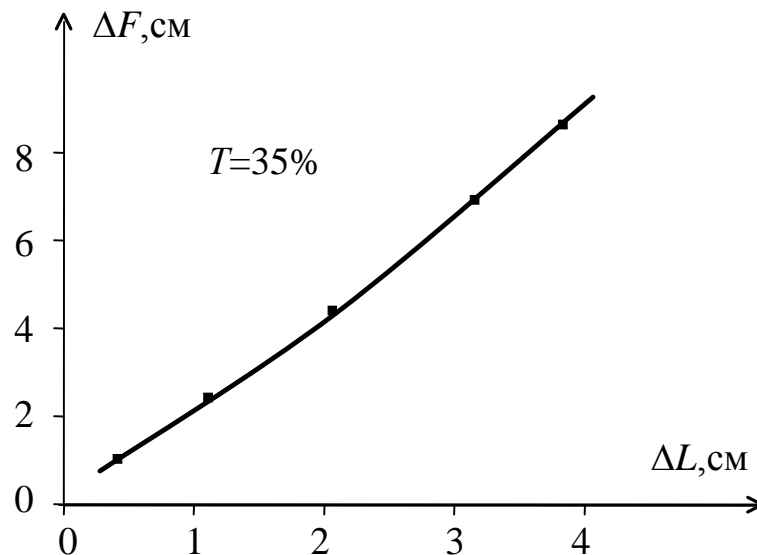


Рис. 3.28. Залежність довжини $\Delta F \{ \Delta L, T = 35\% \}$ ділянки траси без самофокусування за введення нейтрального світлофільтра з пропусканням $T = 35\%$ між кюветами.

3.8. Інтенсивність світла на осі лазерного променя та довжина фокальної області самофокусування.

Уже було отримано (див. підр. 3.3), що у випадку самофокусування гаусового світлового пучка з плоским фазовим фронтом фокальна дистанція визначається виразом (3.27):

$$z_{fd} = \frac{0,38k_0L a_0^2}{\sqrt{(\sqrt{\tilde{P}} - 0,77)^2 - 0,053}}.$$

За тією ж методикою чисельними методами встановлено, що інтенсивність на осі пучка $I \{ z \}$ у передфокальній області можна наближено виразити формулою:

$$\frac{I\{z\}}{I\{z=0\}} = \left(1 - \frac{z}{z_{fd}}\right)^{-\frac{\mu}{2}} \quad (3.35)$$

де $I\{z=0\}$ – інтенсивність на осі пучка в точці $z=0$ (координата z відраховується від вхідної межі середовища). Параметр μ у (3.35) залежить від приведеної потужності \tilde{P} лазерного променя. З точністю 3% в інтервалі $\tilde{P}=1,2\div 12$ виконується співвідношення:

$$\mu = 1 + \frac{1}{\tilde{P}} + \frac{\pi}{\sqrt{\tilde{P}}}. \quad (3.36)$$

Згідно з даними експериментальних досліджень, проведених Шеном [1], внаслідок самофокусування пучок стискується лише до деякого граничного значення радіуса a_f у перерізі, характерного для кожного конкретного середовища. Цей мінімальний радіус пучка (у відповідності з роботою [1]) будемо вважати незалежним від \tilde{P} і рівним радіусу фокальної області.

За подовжній розмір фокальної області ℓ_f приймемо подвоєну відстань від точки z_{fd} , де інтенсивність лазерного випромінювання сягає максимального значення $I_f \equiv I\{z_f\} = P_L / (\pi a_f^2)$, до точки z , у якій інтенсивність за формулою (3.35) дорівнює $I_f/2$. Тоді, враховуючи, що $I\{z=0\} = P_L / (\pi a_0^2)$, шляхом алгебричних перетворень для довжини фокальної області отримуємо:

$$\ell_f \approx z_{fd} \left(\sqrt{2} a_f / a_0 \right)^{4/\mu}. \quad (3.37)$$

У (3.37) z_{fd} є функцією \tilde{P} . Отже, величина ℓ_f змінюється протягом дії на середовище лазерного імпульсу. Якщо відомо діапазон зміни потужності \tilde{P} і початковий радіус пучка a_0 , які визначаються експериментальними умовами,

то використовуючи (3.35), (3.36), (3.37) можна розрахувати зміну довжини фокальної області уздовж траси її руху.

У наших експериментальних умовах (типових для дослідження ВКР) за енергії $E_L=0,6$ Дж імпульсу рубінового лазера пробіг найінтенсивнішої фокальної області дрібномасштабного самофокусування у толуолі від виходу кювети довжиною 25 см ($z_{fd}=25$ см) до точки повороту ($z_{fd}=6$ см) супроводжувався зміною у фокусі миттєвої потужності збуджуючого випромінювання у межах $\tilde{P}=1,3 \div 3,6$, а початковий радіус відповідної частини пучка лазера становив $a_0=110$ мкм. Використовуючи для толуолу значення $a_f=5$ мкм отримуємо, що за таких умов довжина фокальної області змінюється в інтервалі $\ell_f=1,18 \div 19,6$ мм (рис. 3.29).

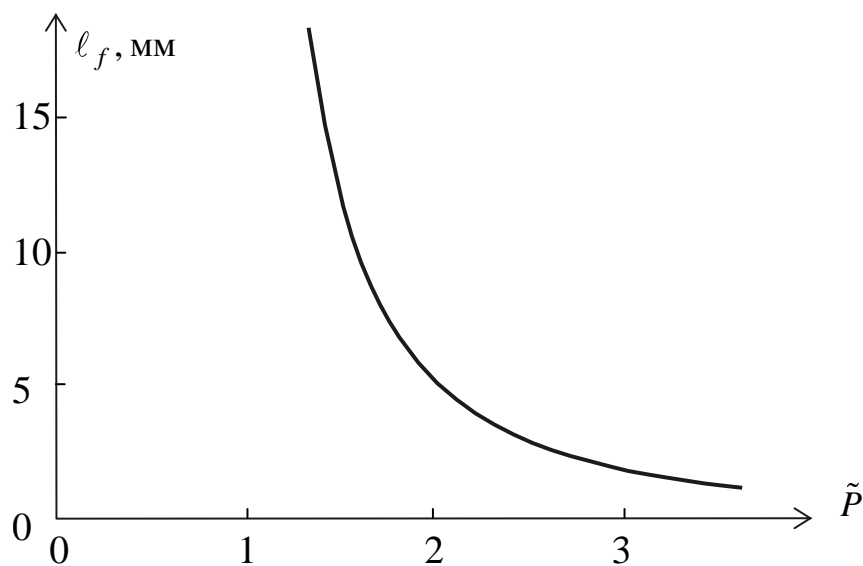


Рис. 3.29. Залежність довжини ℓ_f фокальної області від миттєвої потужності \tilde{P} світлового пучка.

Зауважимо, що довжина фокальної області суттєво змінюється уздовж траси руху фокуса – зменшення \tilde{P} тільки у 2,8 рази веде до збільшення довжини фокальної області у 17 рази. Найбільша довжина фокальної області

реалізується за мінімальної потужності лазерного імпульсу, тобто, на виході середовища із заданою довжиною L . Така обставина може спричиняти вирівнювання енергетичної ефективності нелінійних оптичних процесів за трасою руху фокальної області. Дійсно, зменшення часу перебування фокальної області внаслідок її швидкого руху у деякій точці z поблизу вихідної межі середовища може компенсуватися збільшенням її довжини.

3.9. Оцінка енергетичної ефективності нелінійних оптичних процесів уповодж траси лазерного імпульсу.

Можна напівкількісно оцінити енергетичну ефективність (E_{ef}) нелінійних оптичних процесів від координати z як залежність

$$E_{ef} \{z\} \propto \tilde{P}_{Lf} \frac{\ell_f}{v_{fp}}. \quad (3.38)$$

У (3.38) враховано, що енергетична ефективність пропорційна добутку потужності випромінювання у фокальній точці на частку з діленням ℓ_f та дільником v_{fp} . Указана частка визначає тривалість нелінійного оптичного процесу.

Для толуолу з використанням формул (3.13), (3.27), (3.33), (3.34), (3.36), (3.37) за збудження гаусовим імпульсом рубінового лазера з параметрами $\tau_i=1$ нс, $\tilde{P}_0=3,6$, $a_0=113$ мкм, $a_f=5$ мкм отримуємо залежності $E_{ef} \{z\}$, що подані на рис. 3.30 для фронту та спаду лазерного імпульсу. В даному розрахунку фазова самомодуляція збуджуючого та розсіяного випромінювання не враховувалися.

З наведених на рис. 3.30 залежностей випливає, що енергетична ефективність нелінійних процесів суттєво зростає поблизу вхідної межі середовища, де швидкість фокальної області наближається до нульової (у точці зупинки фокальної області). Формула (3.38) формально дає нескінченне зростання тому, що не враховує прискорення фокальної точки. Врахування

прискорення не викликає ускладнень оскільки прискорення розраховувалося у підр. 3.6. Прискорення фокальної точки обмежує енергетичну ефективність у точці зупинки фокальної області до скінченної величини.

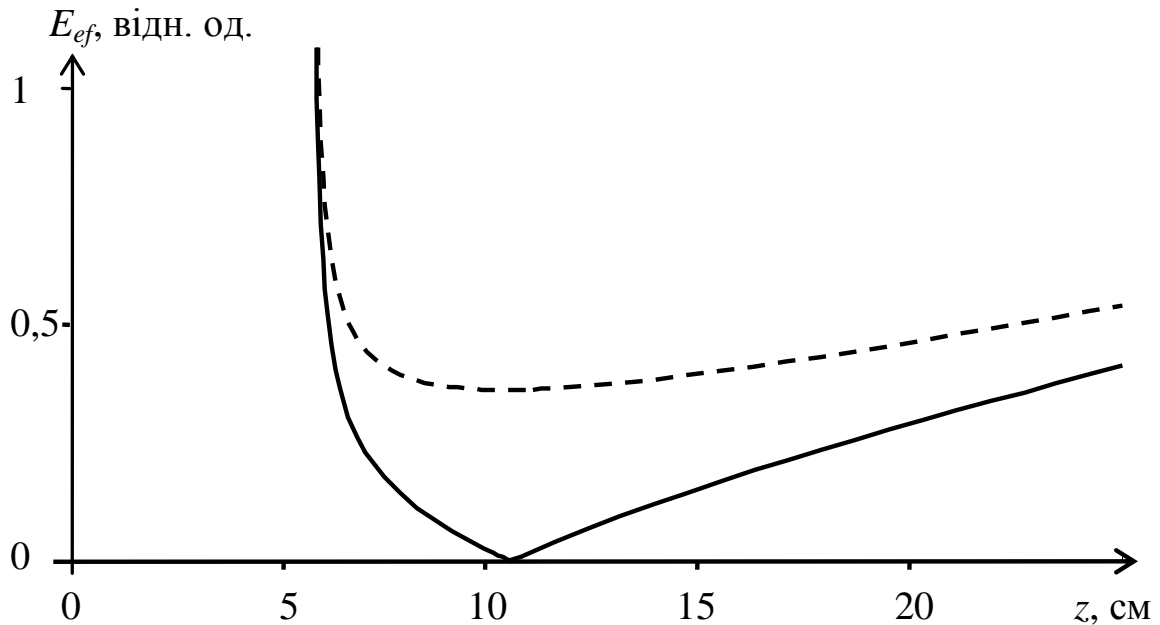


Рис. 3.30. Нормована енергетична ефективність (E_{ef}) нелінійних оптичних процесів від координати z за імпульсу рубінового лазера з параметрами: $\tau_i=1$ нс; $\tilde{P}_0=3,6$; $a_0=113$ мкм (суцільна крива – фронт імпульсу, штрихова крива – спад імпульсу).

Більше цікавим є зростання енергетичної ефективності поблизу вихідної межі, де швидкість фокальної області є близькою до групової швидкості світла.

Мінімальна ефективність є очікуваною у середині середовища, оскільки там швидкість фокальної області є максимальною, а на фронті імпульсу взагалі є суттєво надсвітловою.

3.10. Висновки до Розділу 3.

У розділі наведені експериментальні та теоретичні дослідження ефекту самофокусування: аналіз впливу групової швидкості на процес самофокусування у наносекундному діапазоні лазерних імпульсів; виведення

загальних співвідношень для швидкості фокальної точки самофокусування; теоретичні розрахунки залежності фокальної відстані від потужності лазерного випромінювання; опис методики експерименту вимірювання фокальної відстані; результати експериментів вимірювання фокальної відстані самофокусування; розрахунки швидкості, прискорення та потужності випромінювання для фокальної точки; експериментальні дослідження ефекту самофокусування у двокюветних схемах; розрахунки інтенсивності світла на осі лазерного променя; оцінка енергетичної ефективності нелінійних процесів уподовж траси лазерного імпульсу.

Серед важливих результатів розділу є, зокрема, такі.

Узагальнено існуючі теоретичні та експериментальні результати, що стосуються розташування, швидкості та прискорення фокальної точки самофокусування лазерного випромінювання в керівських рідинах у наносекундному діапазоні тривалостей лазерних імпульсів.

Врахований вплив групової швидкості лазерних імпульсів. Показано, що швидкість фокальної точки змінюється від $-\infty$ до $+\infty$ у безінерційному середовищі. Проте, на виході кювети швидкість фокальної точки близька до групової швидкості світла (дещо перевищує групову швидкість на фронті імпульсу та менша на спаді). За мінімальної відстані самофокусування швидкість фокальної точки є нульовою. Прискорення фокальної точки на виході довгих кювет може бути практично відсутнім, але за мінімальної фокальної відстані набуває фіксованого позитивного значення.

Результати досліджень дають змогу прогнозувати ефективність ВКР за трасою проходження лазерного випромінювання через керівське середовище.

Основні результати розділу опубліковано автором у роботах [5, 24, 41, 80].

РОЗДІЛ 4

ВПЛИВ РУХУ ФОКАЛЬНОЇ ОБЛАСТІ САМОФОКУСУВАННЯ НА СПЕКТР
ВИМУШЕНОГО КОМБІНАЦІЙНОГО РОЗСІЮВАННЯ

4.1. Наближення заданої поляризації та частотно-кутовий розподіл енергії розсіяного випромінювання у віддаленій зоні для випадку широкосмугових спектрів.

Наближення заданої поляризації [117] є найпростішим для аналітичного аналізу нелінійних оптичних процесів. Проте в усталеній формі це наближення з успіхом використовується лише для монохроматичних спектральних компонент і не торкається питання кутового розподілу розсіяного випромінювання. Тож, коректний опис ВКР в умовах самофокусування вимагає деяких уточнень за вказаного наближення.

Для діелектричного та немагнітного ізотропного середовища, у якому відсутні вільні заряди, рівняння Максвелла в системі одиниць вимірювання СІ можна подати у вигляді:

$$\begin{aligned} \nabla \times \vec{H} &= \frac{\partial(\epsilon_0 \vec{E} + \vec{P})}{\partial t}; & \nabla \times \vec{E} &= -\mu_0 \frac{\partial \vec{H}}{\partial t}; \\ \nabla \cdot \vec{E} &= 0; & \nabla \cdot \vec{H} &= 0, \end{aligned} \quad (4.1)$$

де μ_0 – магнітна стала, ϵ_0 – електрична стала, $\nabla = \vec{i} \partial/\partial x + \vec{j} \partial/\partial y + \vec{k} \partial/\partial z$ – оператор набла (оператор Гамільтона) у декартевій системі координат x, y, z з ортами $\vec{i}, \vec{j}, \vec{k}$, $\nabla \times$ – rot, $\nabla \cdot$ – div. Для запису (4.1) використане подання електричної індукції $\vec{D} = \epsilon_0 \vec{E} + \vec{P}$ та магнітної індукції $\vec{B} = \mu_0 \vec{H}$.

У систему чотирьох рівнянь (4.1) входять лише три невідомі функції: \vec{E} – напруженість електричного поля, \vec{H} – напруженість магнітного поля та \vec{P} – поляризація середовища. Тому, у подальшому останнє рівняння може не розглядатися. Третє рівняння є лише допоміжним, оскільки поляризація

середовища визначається напруженістю електричного поля. Загалом, маємо зосередити увагу на першому та другому рівняннях системи (4.1) у вказаних середовищах.

Перейдемо в першому та другому рівнянні системи (4.1) до спектральних компонент полів випромінювання за допомогою фур'є-перетворення. У другому рівнянні перетворення Фур'є

$$\int_{-\infty}^{\infty} (\nabla \times \vec{E}) e^{i\omega t} dt = -\mu_0 \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\partial \vec{H}}{\partial t} e^{i\omega t} dt$$

для монохроматичних компонентів полів \vec{E}_ω та \vec{H}_ω дає залежність

$$\nabla \times \vec{E}_\omega = i\omega\mu_0 \vec{H}_\omega. \quad (4.2)$$

За отримання (4.2) враховані співвідношення

$$\int_{-\infty}^{\infty} (\nabla \times \vec{E}) e^{i\omega t} dt = \nabla \times \int_{-\infty}^{\infty} \vec{E} e^{i\omega t} dt = \nabla \times \vec{E}_\omega,$$

$$\int_{-\infty}^{\infty} \frac{\partial \vec{H}}{\partial t} e^{i\omega t} dt = \vec{H} e^{i\omega t} \Big|_{t=-\infty}^{t=\infty} - \int_{-\infty}^{\infty} \vec{H} i\omega e^{i\omega t} dt = -i\omega \vec{H}_\omega,$$

у яких використане правило комутації незалежних операторів, почленне інтегрування та умова

$$\vec{H} \{t = \infty\} = 0, \quad \vec{H} \{t = -\infty\} = 0,$$

для імпульсів лазерного випромінювання.

Деяко складнішим є виконання перетворення Фур'є у першому рівнянні

системи (4.1). У правій частині рівняння $\nabla \times \vec{H} = \partial(\varepsilon_0 \vec{E} + \vec{P})/\partial t$ розкладемо поляризацію середовища на лінійну $\vec{P}^{(L)}$ та нелінійну $\vec{P}^{(NL)}$ за полем \vec{E} складові частини

$$\varepsilon_0 \vec{E} + \vec{P} = \varepsilon_0 \vec{E} + \vec{P}^{(L)} + \vec{P}^{(NL)} = \varepsilon_0 \varepsilon \vec{E} + \vec{P}^{(NL)},$$

де ε – діелектрична проникність середовища. Тож розглядуване рівняння набуває вигляду:

$$\nabla \times \vec{H} = \partial(\varepsilon_0 \varepsilon \vec{E} + \vec{P}^{(NL)})/\partial t. \quad (4.3)$$

Перетворення Фур'є лівої частини рівняння (4.3) відразу дає

$$\int_{-\infty}^{\infty} (\nabla \times \vec{H}) e^{i\omega t} dt = \nabla \times \int_{-\infty}^{\infty} \vec{H} e^{i\omega t} dt = \nabla \times \vec{H}_\omega$$

унаслідок комутації незалежних операторів. Для правої частини маємо

$$\begin{aligned} & \int_{-\infty}^{\infty} \left(\partial(\varepsilon_0 \varepsilon \vec{E} + \vec{P}^{(NL)})/\partial t \right) e^{i\omega t} dt = \\ & = (\varepsilon_0 \varepsilon \vec{E} + \vec{P}^{(NL)}) e^{i\omega t} \Big|_{t=-\infty}^{t=\infty} - \int_{-\infty}^{\infty} (\varepsilon_0 \varepsilon \vec{E} + \vec{P}^{(NL)}) i\omega e^{i\omega t} dt = \\ & = 0 - \int_{-\infty}^{\infty} (\varepsilon_0 \varepsilon \vec{E} + \vec{P}^{(NL)}) i\omega e^{i\omega t} dt = \\ & = -i\omega (\varepsilon_0 \varepsilon_\omega \vec{E}_\omega + \vec{P}_\omega^{(NL)}), \end{aligned}$$

де враховане правило почленного інтегрування, умови

$$\begin{aligned}\vec{E}\{t = \infty\} &= 0, \quad \vec{E}\{t = -\infty\} = 0, \\ \vec{P}^{(NL)}\{t = \infty\} &= 0, \quad \vec{P}^{(NL)}\{t = -\infty\} = 0\end{aligned}$$

та незначні зміни діелектричної проникності середовища в області прозорості в межах спектральної ширини лазерного імпульсу або розсіяних компонент.

Виходячи з наведених викладок, початкова система рівнянь (4.1) для спектральних компонент набуває вигляду:

$$\begin{aligned}\nabla \times \vec{H}_\omega &= -i\omega \left(\varepsilon_0 \varepsilon_\omega \vec{E}_\omega + \vec{P}_\omega^{(NL)} \right), \\ \nabla \times \vec{E}_\omega &= i\omega \mu_0 \vec{H}_\omega\end{aligned}\tag{4.4}$$

до якої допоміжною умовою є очевидна рівність $\nabla \cdot \vec{E}_\omega = 0$.

Окремо зауважимо, що введення ε_ω через перетворення Фур'є

$$\int_{-\infty}^{\infty} \varepsilon \vec{E} e^{i\omega t} dt = \varepsilon_\omega \vec{E}_\omega$$

незначних змін діелектричної проникності середовища в області прозорості в межах спектральної ширини лазерного імпульсу або розсіяних компонент і не вносить додаткових похибок. Таке твердження ґрунтується на заміні

$$\varepsilon \vec{E} \rightarrow \int_0^\infty \varepsilon\{t'\} \vec{E}\{t-t'\} dt'$$

внаслідок принципу причинності (індукція електричного поля у даний момент залежить лише від напруженості поля у попередні моменти часу) та використанні теореми Бореля стосовно перетворення Фур'є для згортки функцій [142].

Виконання додаткової операції $\nabla \times$ над лівою та правою частинами другого рівняння в (4.4) з урахуванням першого рівняння дає

$$\begin{aligned}\nabla \times (\nabla \times \vec{E}_\omega) &= i\omega \mu_0 \nabla \times \vec{H}_\omega = i\omega \mu_0 \left[-i\omega \left(\varepsilon_0 \varepsilon_\omega \vec{E}_\omega + \vec{P}_\omega^{(NL)} \right) \right] = \\ &= \omega^2 \left(\varepsilon_0 \mu_0 \varepsilon_\omega \vec{E}_\omega + \mu_0 \vec{P}_\omega^{(NL)} \right).\end{aligned}\tag{4.5}$$

Можна суттєво спростити рівняння (4.5), якщо врахувати співвідношення між операторами [142]

$$\nabla \times (\nabla \times) = \nabla (\nabla \cdot) - \nabla \cdot (\nabla)$$

та умову $\nabla \cdot \vec{E}_\omega = 0$.

Тоді рівняння (4.5) набуває вигляду

$$\Delta \vec{E}_\omega = -\omega^2 \left(\epsilon_0 \mu_0 \epsilon_\omega \vec{E}_\omega + \mu_0 \vec{P}_\omega^{(NL)} \right), \quad (4.6)$$

де $\Delta = \nabla \cdot (\nabla) = \nabla^2 = \partial^2 / \partial x^2 + \partial^2 / \partial y^2 + \partial^2 / \partial z^2$ – оператор Лапласа.

Рівняння (4.6) є хвильовим рівнянням з урахуванням нелінійної поляризації середовища на заданій частоті ω . Фактично, в цьому рівнянні акумульована вся інформація, яку містять рівняння Максвела (4.1) для однорідних діелектричних ізотропних немагнітних середовищ.

Якщо знехтувати відбиттям світла на межі нелінійного середовища, то рівняння (4.6) у віддаленій зоні має наближений розв'язок [143]

$$E_\omega \{R\} = \frac{\omega^2}{4\pi\epsilon_0 c^2 R} \exp[i\vec{k}_\omega \vec{R}] \int_V \exp[-i\vec{k}_\omega \vec{r}] \Pi \vec{P}_\omega^{(NL)} \{ \vec{r} \} d^3 r, \quad (4.7)$$

що легко перевірити підстановкою в (4.6). У (4.7) використані позначення: R – модуль вектора, який єднає деяку точку, що є умовним центром координат у середині області з об'ємом V існування нелінійної поляризації, з віддаленою точкою спостереження; \vec{r} – радіус-вектор у об'ємі V ; $k_\omega = \sqrt{\epsilon_\omega} \omega / c = n_\omega \omega / c$ – модуль хвильового вектора розсіяного випромінювання на частоті ω за показника заломлення $n_\omega = n\{\omega\}$ у непоглинаючому середовищі; Π – оператор проектування на площину, що перпендикулярна до \vec{R} ; $\vec{k}_\omega \approx k_\omega \vec{R}$ за умови $R \gg r$. Допоміжні пояснення щодо введених позначень дає рис. 4.1.

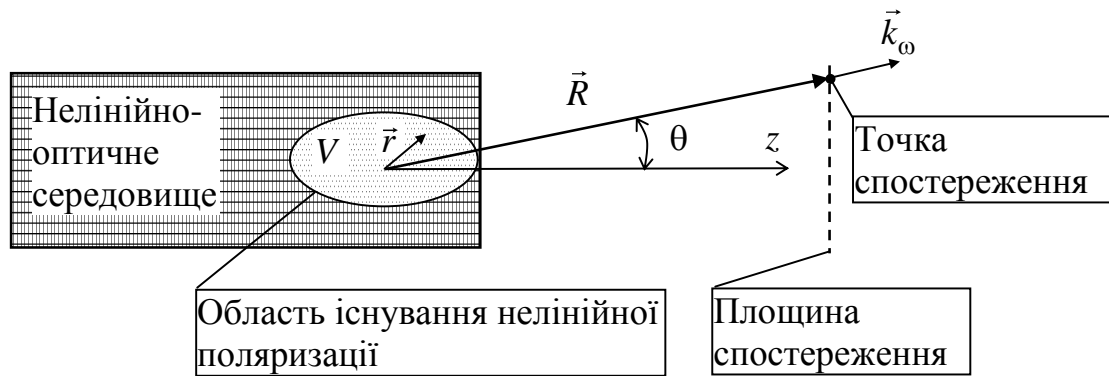


Рис. 4.1. Допоміжні пояснення щодо введених позначень у формулі (4.7).

Використовуючи вираз (4.7), який визначає зв'язок між фур'є-компонентами поля розсіяного світла та сторонньою нелінійною поляризацією, можна знайти спектрально-кутову $(\omega - \theta)$ енергію $W_{\omega\theta}$ розсіяного випромінювання. Саме ця величина переважно реєструється у випадку коротких збуджуючих лазерних імпульсів та у виконаних нами експериментальних дослідженнях. Проте необхідно не забувати, що $\omega = 2\pi\nu$. Тому $d\omega = 2\pi d\nu$ і, відповідно, $W_{\omega\theta} = 2\pi W_{\nu\theta}$.

Для розрахунку $W_{\omega\theta}$ врахуємо, що об'ємна густина електромагнітного поля становить

$$\tilde{\rho} = \frac{1}{2}(\epsilon_0 \epsilon E^2 + \mu_0 \mu H^2). \quad (4.8)$$

Обидва доданки в (4.8) є рівними:

$$\epsilon_0 \epsilon E^2 = \mu_0 \mu H^2.$$

Тож маємо вираз

$$\tilde{\rho} = \epsilon_0 \epsilon E^2 \left[\text{Дж/м}^3 \right], \quad (4.9)$$

де поле $E = \text{Re} \left[E_0 e^{-i\omega t} \right]$ подано до виконання усереднення за період коливань (після усереднення матимемо звичайне співвідношення: $\tilde{\rho} = \varepsilon_0 \varepsilon E_0^2 / 2$).

Поле у напрямку $\vec{R} \square \vec{k}_\omega$ спостереження рухається зі швидкістю c / n_ω . Тож, через поверхню $R^2 d\omega$ у площині спостереження (віддаленій на R) в елементарному тілесному куті $d\omega$ [ср] (який відраховується від центру області існування поляризації) за елементарний відрізок часу dt проходить енергія:

$$\tilde{\rho} \cdot R^2 d\omega \cdot \frac{c}{n_\omega} dt \left[\frac{\text{Дж}}{\text{ср}} \right]. \quad (4.10)$$

За весь час спостереження протягом збуджуючого лазерного імпульсу з використанням (4.9), (4.10) отримаємо енергію

$$\int_{t=-\infty}^{t=\infty} \tilde{\rho} \cdot R^2 d\omega \cdot \frac{c}{n_\omega} dt = R^2 \frac{c}{n_\omega} d\omega \int_{t=-\infty}^{t=\infty} \varepsilon_0 \varepsilon E^2 dt \approx \varepsilon_0 c n_\omega R^2 d\omega \int_{t=-\infty}^{t=\infty} E^2 dt. \quad (4.11)$$

Далі врахуємо співвідношення для перетворення Фур'є імпульсів

$$\int_{-\infty}^{\infty} E^2 dt = 2 \int_0^{\infty} E_\omega^2 \frac{d\omega}{2\pi}, \quad (4.12)$$

яке у поєднанні з (4.11) дає

$$\int_{t=-\infty}^{t=\infty} \tilde{\rho} \cdot R^2 d\omega \cdot \frac{c}{n_\omega} dt = \frac{\varepsilon_0 c n_\omega R^2}{\pi} d\omega \int_0^{\infty} E_\omega^2 d\omega. \quad (4.13)$$

З останнього співвідношення маємо, що повна (за весь час спостереження) енергія випромінювання в інтервалі частот $d\omega$ та тілесному куті $d\omega$ (з орієнтацією під кутом θ відносно осі z) становить (для порівняння див. [144])

$$W_{\omega\theta} = \frac{\varepsilon_0 c n_\omega R^2}{\pi} E_\omega^2. \quad (4.14)$$

Далі, використовуюючи (4.7) та вище введене перетворення $\bar{P}_\omega^{(NL)} = \int_{-\infty}^{\infty} \bar{P}^{(NL)} e^{i\omega t} dt$ остаточно отримуємо:

$$\begin{aligned} W_{\omega\theta} &= \frac{\varepsilon_0 c n_\omega R^2}{\pi} \left| \frac{\omega^2}{4\pi\varepsilon_0 c^2 R} \exp[i\vec{k}_\omega \vec{R}] \int_V \exp[-i\vec{k}_\omega \vec{r}] \Pi \bar{P}_\omega^{(NL)} \{\vec{r}\} d^3 r \right|^2 = \\ &= \frac{n_\omega \omega^4}{16\pi^3 \varepsilon_0 c^3} \left| \int_V d^3 r \int_{-\infty}^{+\infty} dt \Pi \bar{P}^{(NL)} \{t, \vec{r}\} \exp[i(\omega t - \vec{k}_\omega \vec{r})] \right|^2. \end{aligned} \quad (4.15)$$

Зазначимо, за умови, що всі хвилі поляризовані однаково, а кути розсіювання θ є незначні (декілька градусів), у (4.15) можна знехтувати оператором проектування Π .

Отже, за відомого просторово-часового розподілу $P^{(NL)} \{t, \vec{r}\}$ нелінійної поляризації нескладно розрахувати спектр розсіяного випромінювання. Тому найбільша складність полягає саме в адекватному заданні цього розподілу.

У подальшому буде звертатись увага на випадок надсвітлових швидкостей руху області існування нелінійної поляризації у самофокусуєчих середовищах, коли з'являються аналогії з випромінюванням Вавілова-Черенкова (надалі – черенковське випромінювання). Тому розглянемо можливість застосування отриманого виразу (4.15) для опису спектрально-кутової густини енергії черенковського випромінювання, яка є відомою [145], з метою перевірки його вірності та універсальності. Звичайно, мова не йде про нелінійну поляризацію, але ж принциповим є те, що поляризація „стороння” – тобто наведена джерелом незалежним від самого спостережуваного електромагнітного поля.

Густину ρ заряду елементарної частинки (приміром електрона), що рухається вдовж осі z зі швидкістю v , можна подати у вигляді:

$$\rho = q\delta\{x\}\delta\{y\}\delta\{z-tv\}, \quad (4.16)$$

де q – заряд частинки, $\delta\{\dots\}$ – дельта функція Дірака. Використовуючи закон збереження заряду у вигляді $\partial j / \partial z = -\partial \rho / \partial t$, для густини струму j можемо отримати її значення j_z уздовж осі z :

$$j_z = -\int \frac{\partial \rho}{\partial t} dz = qv\delta\{x\}\delta\{y\}\delta\{z-tv\}. \quad (4.17)$$

З іншого боку $j_z = \partial P_z / \partial t$, де P_z – поляризація, яка орієнтована за віссю z . Тож, для поляризації маємо вираз:

$$P_z = \int j_z dt = -q\delta\{x\}\delta\{y\}[U\{z-tv\} + \text{const}], \quad (4.18)$$

де U – одинична ступінчата функція (функція Хевісайда), а постійний доданок з урахуванням симетрії становить $-0,5$. Інші компоненти поляризації (P_x, P_y) відсутні.

Після підстановки (4.18) в (4.15) та інтегрування за часом маємо Фур'є компоненти поляризації:

$$P_{z\omega} = \int_{-\infty}^{+\infty} P_z \exp(i\omega t) dt = \frac{iq}{2\pi\omega} \exp\left(\frac{i\omega z}{v}\right). \quad (4.19)$$

Наступний крок полягає у інтегруванні в (4.15) за просторовими координатами. Проте, насамперед необхідно врахувати наявність оператора проектування в (4.15), оскільки для черенковського випромінювання поляризація має іншу орієнтацію („горизонтальну”, а не „вертикальну”), а саме випромінювання може поширюється під великими кутами. Для розглядуваного

випадку $\Pi \vec{P} = P_z \sin^2 \theta$, де θ – кут між віссю z і напрямком поширення випромінювання, тобто кут між віссю z і \vec{k} . Крім цього подамо скалярний добуток $\vec{k}\vec{r}$ у вигляді $\vec{k}\vec{r} = k_x x + k_y y + k_z z$, де k_x, k_y, k_z – проекції хвильового вектора на відповідні осі, зокрема, $k_z = |\vec{k}| \cos \theta$.

Після інтегрування за просторовими координатами у (4.15) маємо спектрально-кутову густину енергії випромінювання з відрізка траси довжиною L :

$$\begin{aligned} W_{\omega\theta} &= \frac{n_\omega \omega^4}{16\pi^3 \varepsilon_0 c^3} \frac{q^2 L^2}{\omega^2} \operatorname{sinc}^2 \left[\frac{L}{2} \left(k_z - \frac{\omega}{v} \right) \right] \sin^2 \theta = \\ &= \frac{n_\omega \omega^2 q^2 L^2}{16\pi^3 \varepsilon_0 c^3} \operatorname{sinc}^2 \left[\frac{\omega L n_\omega}{2c} \left(\cos \theta - \frac{1}{\beta n_\omega} \right) \right] \sin^2 \theta \end{aligned} \quad (4.20)$$

де $\beta = v/c < 1$.

Для отримання спектральної густини енергії W_ω випромінювання маємо виконати інтегрування за кутами:

$$W_\omega = \int_0^\pi 2\pi \sin(\theta) W_{\omega\theta} d\theta. \quad (4.21)$$

Розв'язок такої задача зводиться до використання інтеграла Дірихле. За умови великих L та $\beta n_\omega > 1$ для W_ω матимемо:

$$W_\omega = \frac{\omega q^2 L}{4\pi \varepsilon_0 c^2} \left(1 - \frac{1}{(\beta n_\omega)^2} \right). \quad (4.22)$$

Тож, сумарна енергія випромінювання за всіма частотами становитиме:

$$W = \frac{q^2 L}{4\pi\epsilon_0 c^2} \int_{\beta n_\omega} \omega \left(1 - \frac{1}{(\beta n_\omega)^2} \right) d\omega, \quad (4.23)$$

що є загальновідомим результатом [145], а тому підтверджує вірність (4.15).

Доречи, вираз (4.20) вказує на те, що максимальна частотно-кутова енергія $W_{\omega\theta}$ черенковського випромінювання на заданій частоті ω має спостерігатися під кутом

$$\theta = \arccos \left[\frac{\omega/k_\omega}{v} \right] = \arccos \left[\frac{v_{ph} \{ \omega \}}{v} \right], \quad (4.24)$$

де $v_{ph} \{ \omega \}$ – фазова швидкість світла в середовищі на частоті ω .

4.2. Наближення заданої поляризації та частотний розподіл енергії розсіяного випромінювання у ближній зоні для випадку ширококутових спектрів.

Важливі характеристики розсіяного випромінювання внаслідок нелінійних оптичних процесів з'ясовуються у ближній зоні. Використання наближення заданої поляризації у цьому випадку дає часові (тривалість імпульсу, огинаюча імпульсу тощо) та спектральні (розподіл енергії у спектрі, зсув максимуму) характеристики. Тож, розглянемо наближення заданої поляризації у ближній зоні для випадку ширококутових спектрів.

З метою обмеження математичних викладок повернемося до попереднього результату (4.6) у дещо зміненому вигляді:

$$\Delta \vec{E}_\omega = -\omega^2 \epsilon_0 \mu_0 \epsilon_\omega \vec{E}_\omega - \omega^2 \mu_0 \vec{P}_\omega^{(NL)}. \quad (4.25)$$

Формула (4.25) є дійсною як для віддаленої, так і ближньої зони. Виконаємо

обернене перетворення Фур'є $(2\pi)^{-1} \int_{-\infty}^{+\infty} (...) e^{-i\omega t}$ над усіма членами рівняння для випадку плоских поляризованих хвиль у ізотропному середовищі ($\partial(...)/\partial x = 0$, $\partial(...)/\partial y = 0$, векторність величин не враховуємо). Коефіцієнт $1/(2\pi)$ міститься в усіх членах, тож ним нехтуємо.

Обернене перетворення над ΔE_ω у (4.25) дає ΔE , яке у наближенні повільно змінних амплітуд (неврахування члену з другою похідною $\partial^2 E_0 / \partial z^2$ від амплітуди) зводиться до

$$\frac{\partial^2 E}{\partial z^2} \approx -E_0 k_0^2 e^{-i(\omega_0 t - k_0 z)} + 2ik_0 \frac{\partial E_0}{\partial z} e^{-i(\omega_0 t - k_0 z)}, \quad (4.26)$$

де поле E розглядається у наближеному вигляді – $E = E_0 \{z, t\} e^{-i(\omega_0 t - k_0 z)}$, E_0 – амплітуда поля, ω_0 – центральна частота, k_0 – модуль хвильового вектора поля у середовищі на частоті ω_0 .

Для перетворення над наступним членом $\omega^2 \varepsilon_0 \mu_0 \varepsilon_\omega E_\omega$ у (4.25) врахуємо, що $\omega^2 \varepsilon_0 \mu_0 \varepsilon_\omega = k_\omega^2 \approx \left(k_0 + \frac{\partial k}{\partial \omega} \Big|_{\omega=\omega_0} (\omega - \omega_0) \right)^2$, де похідна $\frac{\partial k}{\partial \omega} \Big|_{\omega=\omega_0} = \frac{1}{v_{g0}}$ є оберненою величиною до групової швидкості v_{g0} випромінювання на частоті ω_0 . Наближене значення квадрату модуля хвильового вектора у середовищі становить $k_\omega^2 \approx k_0^2 + 2k_0 \frac{1}{v_{g0}} (\omega - \omega_0)$. Тож, маємо:

$$\omega^2 \varepsilon_0 \mu_0 \varepsilon_\omega \approx k_0^2 + 2k_0 \frac{1}{v_{g0}} (\omega - \omega_0). \quad (4.27)$$

Відповідно, обернене перетворення Фур'є над другим членом $\omega^2 \varepsilon_0 \mu_0 \varepsilon_\omega E_\omega$ у (4.25) з використанням очевидного співвідношення

$$\int_{-\infty}^{+\infty} \omega E_{\omega} e^{-i\omega t} = \frac{1}{-i} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\partial (E_{\omega} e^{-i\omega t})}{\partial t} d\omega = i \frac{\partial E}{\partial t}$$

дає:

$$\int_{-\infty}^{+\infty} \left(k_0^2 + 2k_0 \frac{1}{v_{g0}} (\omega - \omega_0) \right) E_{\omega} e^{-i\omega t} = k_0^2 E - 2k_0 \frac{1}{v_{g0}} \omega_0 E + 2ik_0 \frac{1}{v_{g0}} \frac{\partial E}{\partial t}. \quad (4.28)$$

За використання подання поля $E = E_0 \{z, t\} e^{-i(\omega_0 t - k_0 z)}$ у (4.28) маємо підставити

$$\frac{\partial E}{\partial t} = \left(\frac{\partial E_0}{\partial t} - i\omega_0 E_0 \right) e^{-i(\omega_0 t - k_0 z)}.$$

Залишається лише питання стосовно останнього члена $\omega^2 \mu_0 \vec{P}_{\omega}^{(NL)}$ у (4.25).

Для цього члена вірним є наступне перетворення:

$$\int_{-\infty}^{\infty} \omega^2 \mu_0 \vec{P}_{\omega}^{(NL)} e^{-i\omega t} d\omega = -\mu_0 \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\partial^2 (P_{\omega}^{(NL)} e^{-i\omega t})}{\partial t^2} d\omega = -\mu_0 \frac{\partial^2 P^{(NL)}}{\partial t^2} \approx -\mu_0 \omega_0^2 P^{(NL)}. \quad (4.29)$$

Після підстановки (4.26), (4.28), (4.29) у (4.25) та відповідних скорочень остаточно отримуємо рівняння для амплітуди поля у ближній зоні (система СІ):

$$\frac{\partial E_0}{\partial z} + \frac{1}{v_{g0}} \frac{\partial E_0}{\partial t} = i \frac{\omega_0^2}{2k_0 \epsilon_0 c^2} P^{(NL)} e^{-i(k_0 z - \omega_0 t)}. \quad (4.30)$$

Розглянемо можливі розв'язки рівняння (4.30). Припустимо, що на вході у середовище поле $E \{z=0\}$ з частотою ω_0 відсутнє, а нелінійну поляризації, яка

є джерелом цього поля можна наближено подати у вигляді:

$$P^{(NL)}\{t, z\} = P_0^{(NL)} F\left\{t - z/v_{fp}\right\} e^{-i(\omega_0 t - k_{p0} z)}, \quad (4.31)$$

де $P_0^{(NL)}$ – максимальна амплітуда поляризації в області її існування, $F\left\{t - z/v_{fp}\right\}$ – функція просторово-часового розподілу амплітуди поляризації, огинаюча якої переміщується зі швидкістю v_{fp} фокальної області самофокусування, k_{p0} – модуль хвильового вектора нелінійної поляризації на частоті ω_0 . У цьому випадку маємо загальний розв'язок рівняння (4.30) у вигляді:

$$E_0\{t, z\} = i \frac{\omega_0^2}{2k_0 \epsilon_0 c^2} P_0^{(NL)} \int_0^z F\left\{t - \frac{z}{v_{g0}} + \left(\frac{1}{v_{g0}} - \frac{1}{v_{fp}}\right) \xi\right\} \exp[-i(k_0 - k_{p0}) \xi] d\xi. \quad (4.32)$$

Якщо виконати перетворення Фур'є над електричним полем утвореної хвилі з амплітудою, визначеною розв'язком (4.32), то для квадрату модуля спектральних компонент імпульсу випромінювання у точці z матимемо:

$$|E_\omega|^2 = \frac{\omega_0^4 z^2 P_0^{(NL)2}}{4k_0^2 \epsilon_0^2 c^4} |F_\omega\{\omega - \omega_0\}|^2 \sin^2 \left[\left[\left(\frac{1}{v_{g0}} - \frac{1}{v_{fp}} \right) (\omega - \omega_0) + (k_0 - k_{p0}) \right] \frac{z}{2} \right], \quad (4.33)$$

де $F_\omega\{\omega - \omega_0\} = \int_{-\infty}^{\infty} F\{t\} e^{i(\omega - \omega_0)t} dt$ – фур'є-компоненти просторово-часового розподілу амплітуди поляризації, який вважається незмінним упродовж координати z .

Квадрат модуля спектральних компонент імпульсу випромінювання (4.33) у свою чергу визначає частотну густину $W_{\omega s}$ енергії імпульсу випромінювання у розрахунку на одиницю площі s за весь час спостереження у ближній зоні.

Оскільки $\int_{-\infty}^{\infty} E^2 dt = 2 \int_0^{\infty} E_{\omega}^2 \frac{d\omega}{2\pi}$, а інтенсивність випромінювання $I = \frac{c}{n} \cdot \epsilon \epsilon_0 E^2$ за дійсного подання поля, то:

$$W_{\omega s} = \frac{n \epsilon_0 c}{\pi} |E_{\omega}|^2, \quad (4.34)$$

де $|E_{\omega}|^2$ визначається виразом (4.33).

Таким чином, наведений розгляд дає змогу аналізувати як часові параметри утворених нелінійною поляризацією імпульсів, так і їх спектрально-енергетичні характеристики у межах вказаних наближень.

4.3. Загальні особливості формування спектрів випромінювання рухомих центрів нелінійної поляризації у ближній зоні.

Як зазначалося, у самофокусуємих середовищах фокальні області є тими ділянками траси лазерного пучка, де нелінійно-оптичні процеси відбуваються найефективніше, а амплітуда наведеної нелінійної поляризації максимальна. Якщо таке середовище збуджується імпульсним лазером, то внаслідок залежності відстані самофокусування від миттєвої потужності випромінювання фокальні точки рухаються. Швидкість їх руху визначається похідними за часом від миттєвої потужності випромінювання і може перевищувати навіть швидкість світла. Таким чином, у середовищі з'являються рухомі згустки нелінійної поляризації. Рух цих згустків нелінійної поляризації навіть з надсвітловою швидкістю не суперечить спеціальній теорії відносності, оскільки точка фокуса в різні моменти часу утворюється внаслідок самофокусування інших ділянок вхідного імпульсу.

Не торкаючись окремо питання надсвітлових швидкостей, з'ясуємо чи впливає безпосередньо рух фокальних областей у самофокусуємих середовищах на спектр випромінювання, яке генерується в цих областях внаслідок параметричних нелінійно-оптичних процесів. Для конкретності

розглянемо генерацію першої антистоксової компоненти ВКР у керівських рідинах в умовах квазістаціонарного самофокусування (наносекундний діапазон тривалостей імпульсу).

Для того, щоб максимально спростити математичні викладки, обмежимося на цьому кроці одномірним наближенням або, іншими словами, наближенням плоских хвиль. Воно вірно описує основні закономірності багатьох явищ у випадку слабо розбіжного світлового пучка і зразків з достатньо малою довжиною. Для нелінійно-оптичних процесів, що відбуваються в фокальних областях самофокусування, таке наближення є, на перший погляд, малоприматним. Але якщо цікавитися лише відносними інтенсивностями у спектрі випромінювання з фокальних областей і тільки того випромінювання, що поширюється уздовж осі, яка співпадає з напрямком збуджуючого пучка, то за умови, що функція просторового розподілу нелінійної поляризації у фокальній області розщеплюється на незалежні функції від поздовжньої і поперечних координат, таке наближення є цілком прийнятним. Це впливає з того факту, що поле випромінювання у віддаленій зоні пропорційне фур'є-образу сторонньої поляризації (4.15).

Розв'язок хвильового рівняння для поля антистоксової компоненти будемо шукати у вигляді:

$$E\{t, z\} = E_0\{t, z\} \exp[-i(\omega_{0a}t - k_{0a}z)], \quad (4.35)$$

де $\omega_{0a} = 2\omega_{0L} - \omega_{0s}$; $k_{0a} = \omega_{0a}n\{\omega = \omega_{0a}\}/c$; ω_{0L} , ω_{0s} – частоти лазерної та стоксової хвиль; c – швидкість світла; $n\{\omega = \omega_{0a}\}$ – показник заломлення на комбінаційній антистоксовій частоті ω_{0a} ; t – час; z – поздовжня координата. Підстановка (4.35) у хвильове рівняння згідно методу повільно змінних амплітуд, коли можна одночасно знехтувати другою похідною амплітуди $E_0\{t, z\}$ за координатою та другою похідною за часом (перше наближення теорії дисперсії), веде до рівняння повністю аналогічному (4.30). Для

розглядуваного випадку будемо мати:

$$\left(\frac{\partial}{\partial z} + \frac{1}{v_{g0a}} \frac{\partial}{\partial t} \right) E_0 \{t, z\} = -i \frac{2\pi}{k_{0a} c^2} \exp[-i(k_{0a}z - \omega_{0a}t)] \frac{\partial^2}{\partial t^2} P^{(NL)} \{t, z\}, \quad (4.36)$$

де $P^{(NL)} \{z, t\}$ – поляризація, наведена під дією лазерної та стоксової хвиль; v_{g0a} – групова швидкість світла на частоті ω_{0a} . У випадку, коли параметр хвильової нестационарності $T/\tau \ll 1$, де T – період оптичних коливань, а τ – час, за який фокальна область пробігає фіксовану точку (іншими словами, тривалість імпульсу поляризації), можна в (4.36) скористатися стандартним наближенням $\partial^2 P^{(NL)} \{t, z\} / \partial t^2 \approx -\omega_{0a}^2 P^{(NL)} \{t, z\}$.

Поляризацію, що є джерелом антистоксової компоненти, подамо у вигляді:

$$P^{(NL)} \{t, z\} = P_0^{(NL)} F \left\{ t - z/v_{fp} \right\} \exp \left[-i \left(\omega_{0a} t - k_{p0a} z \right) \right], \quad (4.37)$$

де F – функція просторово-часового розподілу амплітуди поляризації; v_{fp} – швидкість руху фокальної області (вважаємо сталою на обмеженій ділянці); $k_{p0a} = 2k_{0L} - k_{0s}$ – модуль хвильового вектора поляризації, який визначається модулями хвильових векторів лазерної (k_{0L}) та стоксової (k_{0s}) хвиль.

За таких конкретизацій, використовуючи викладене у підрозділі 4.2 (див. (4.33), (4.34)), для спектральної густини W_{ω_s} енергії випромінювання у розрахунку на одиницю площі маємо

$$W_{\omega_s} = \frac{n\omega_{0a}^4 z^2 P_0^{(NL)2}}{4\pi\epsilon_0 k_{0a}^2 c^3} |F_{\omega}|^2 \operatorname{sinc}^2 \left[\left(\left(\frac{1}{v_{g0a}} - \frac{1}{v_{fp}} \right) (\omega_a - \omega_{0a}) + (k_{0a} - k_{p0a}) \right) \frac{z}{2} \right], \quad (4.38)$$

де $F_{\omega} = \int_{-\infty}^{\infty} F \{t\} \exp[i(\omega_a - \omega_{0a})t] dt$ – фур'є-спектр функції просторово-часового

розподілу амплітуди поляризації для фіксованої координати z , а ω_a – змінна частота в спектрі антистоксової компоненти. Отже, якщо фокальна область пробігає ділянку траси довжиною ΔL зі сталою швидкістю v_{fp} , то спектр осьового випромінювання антистоксової компоненти побіжного ВКР, що генерується на цій ділянці, описується виразом (4.38), де необхідно покласти $z = \Delta L$, а швидкість фокальної області – додатною, коли фокальна область рухається від лазера, і від’ємною у протилежному випадку.

Вираз (4.38) показує, що частотна залежність інтенсивності антистоксової компоненти ВКР переважно визначається добутком двох функцій частоти. Перша функція F_ω у разі гладкого (гаусового, лоренцевого тощо) просторово-часового розподілу амплітуди поляризації має максимум на комбінаційній частоті ω_{ao} та ширину $\delta\omega \sim v_{fp}/\ell_f$, де ℓ_f – довжина фокальної області. У наносекундному діапазоні тривалостей збуджуючого лазерного імпульсу $\delta\omega$ може складати в обернених сантиметрах декілька одиниць (якщо $\ell_f \sim 0,5$ мм, $v_{fp} \sim c/n$), що є значно більше за ширину спектра самого лазерного випромінювання і відповідає лазерним імпульсам тривалістю декілька пікосекунд.

Друга функція $G = \text{sinc}^2 \left[\left(\left(\frac{1}{v_{g0a}} - \frac{1}{v_{fp}} \right) (\omega_a - \omega_{0a}) + (k_{0a} - k_{p0a}) \right) \frac{\Delta L}{2} \right]$ має максимум на деякій частоті ω_a , що не обов’язково збігається з комбінаційною частотою ω_{a0} . Вона набуває максимального значення на частоті ω_{a0} лише у двох випадках: за умови фазового синхронізму, коли $\Delta k \equiv (k_{0a} - k_{p0a}) = 0$, та за умови $v_{fp} = 0$. У разі $\left(\frac{1}{v_{g0a}} - \frac{1}{v_{fp}} \right) = 0$, що еквівалентно виконанню умови групового синхронізму, відомого з теорії параметричної взаємодії надкоротких світлових імпульсів, функція G набуває вигляду $\text{sinc}^2(\Delta k \Delta L/2)$, характерного для стаціонарних параметричних процесів, і не залежить від частоти. Спектр антистоксової компоненти у цьому випадку визначається функцією F_ω з

максимумом на частоті ω_{0a} . Але загалом, оскільки розташування максимуму функції G не збігається з частотою ω_{0a} , у спектрі антистоксової компоненти в самофокусуєчих середовищах може спостерігатися деяке максимальне відлаштування

$$\Delta\omega \equiv \omega_a - \omega_{0a} = -\frac{k_{0a} - k_{p0a}}{1/v_{g0a} - 1/v_{fp}} \quad (4.39)$$

частотного максимуму від комбінаційної частоти, за якої функція $G = 1$.

Як можна було очікувати, функція G є аналогічною тій, що описує спектр випромінювання у випадку подвоєння частоти [8, 146] та інших параметричних процесів [147] за дії надкоротких світлових імпульсів. Різниця лише у тому, що замість групової швидкості збуджуючого світлового імпульсу маємо швидкість фокальної області.

Для того щоб зрозуміти суть фізичного механізму, який веде до відлаштування частоти, виконаємо деякі перетворення над аргументом функції G :

$$\begin{aligned} & \left[\left(\frac{1}{v_{g0a}} - \frac{1}{v_{fp}} \right) (\omega_a - \omega_{0a}) + (k_{0a} - k_{p0a}) \right] \frac{\Delta L}{2} \approx \\ & \approx \left[\frac{dk}{d\omega} \Big|_{\omega=\omega_{0a}} (\omega_a - \omega_{0a}) + k_{0a} - k_{p0a} - \frac{\omega_a - \omega_{0a}}{v_{fp}} \right] \frac{\Delta L}{2} = \\ & = \left[(k_a - k_{p0a}) - \frac{(\omega_a - \omega_{0a})}{v_{fp}} \right] \frac{\Delta L}{2}, \end{aligned}$$

де k_a – модуль хвильового вектора поля з частотою ω_a . Отже, умова $G = 1$, яка визначає відлаштування частоти за відсутності групового синхронізму, дає:

$$\frac{\omega_a - \omega_{0a}}{k_a - k_{p0a}} = v_{fp}. \quad (4.40)$$

Зауважимо, що вираз (4.40) визначають відлаштування частоти у неявному

вигляді, оскільки k_a є функцією частоти.

Проаналізуємо вираз (4.40). До знака рівності в (4.40) стоїть величина, яка має зміст групової швидкості двох хвиль: електромагнітної хвилі з частотою ω_a і хвилі поляризації з частотою ω_{0a} . Отже, це та швидкість, з якою рухається точка, в якій зазначені дві хвилі мають фіксовану різницю фаз. Для того, щоб хвиля поляризації передавала енергію електромагнітній хвилі, ця різниця фаз, як відомо, має становити $\pi/2$. Оптимальні умови для генерації хвилі з частотою ω_a складаються, якщо точка, в якій зберігається різниця фаз $\pi/2$, весь час збігається з максимумом просторово-часового розподілу амплітуди поляризації, що рухається з швидкістю v_{fp} (стоїть після знака рівності).

Отже, умова (4.40) є умовою синхронного з фокальною областю руху області синфазності поляризації і генерованої хвилі. Саме у цьому полягає суть фізичного механізму, який веде до відлаштування частоти антистоксової компоненти від комбінаційної частоти за руху фокальної області. Такий результат вказує на наступні закономірності, що перераховані далі за текстом.

1. За самофокусування та відсутності фазового синхронізму частота осьових складових параметричних компонент ВКР, зокрема першої антистоксової компоненти, залежить від швидкості руху фокальної області.

2. Залежність частоти параметричних ВКР компонент від швидкості руху фокальної області пов'язана з специфічною умовою синхронізму, що є результатом впливу факторів групового і фазового синхронізму. Суть цієї умови полягає в синхронному з фокальною областю русі області синфазності поляризації і генерованої хвилі.

3. Оскільки швидкість та напрямок руху фокальної області змінюється протягом лазерного імпульсу, то одночасно буде мінятися величина та знак частотного відлаштування параметричних компонент ВКР від комбінаційних частот.

4. Обмеження на спектр антистоксової компоненти, що накладаються частотним спектром $F_{\omega}\{\Delta\omega\}$ просторово-часового розподілу амплітуди

поляризації в фокальній області, мають призводити до пригнічення генерації осьової складової параметричних компонент ВКР на тих ділянках траси лазерного пучка, де швидкість фокальної області відповідає значним частотним відлаштуванням $\Delta\omega \approx \nu_{fp}/\ell_f$.

4.4. Деталізація особливостей формування спектрів випромінювання рухомих центрів нелінійної поляризації у ближній зоні.

Розглянемо результати розрахунків частоти та спектральної ширини антистоксової компоненти вимушеного комбінаційного розсіювання у толуолі в залежності від швидкості руху фокальної області самофокусованого збуджуючого випромінювання. Така задача є важливою для інтерпретації ВКР-спектрів та, загалом, для розуміння принципів нелінійних хвильових взаємодій в оптиці і радіофізиці.

Було з'ясовано (4.38), що за відсутності фазового і групового синхронізму, частота параметричних компонент ВКР безпосередньо залежить від швидкості руху фокальних областей. Це є результатом взаємного компенсування на певній частоті, яка не збігається з комбінаційною частотою, фазового і групового несинхронізмів. На цій частоті виконується умова синхронізму (загальніша по відношенню до умов фазового і групового синхронізму), суть якої полягає у синхронному з фокальною областю (зі згустком нелінійної поляризації) русі області синфазності поляризації і генерованої хвилі.

З огляду на те, що механізм відстройки частоти параметричних компонент ВКР від комбінаційних частот у залежності від швидкості фокальної області є певною мірою несподіваним, уявляються важливими розрахунки для величини відстройки частоти в конкретних самофокусуєчих середовищах. Розрахунки виконаємо для першої антистоксової компоненти ВКР в толуолі – типовому представнику ВКР активних самофокусуєчих рідин.

Якщо фокальна область пробігає ділянку ВКР-активного середовища довжиною ΔL зі сталою швидкістю ν_{fp} (додатною, коли рух відбувається у

напрямі збуджуючого пучка), то в ближній зоні частотна густина W_{ω_s} енергії осьового випромінювання антистоксової компоненти побіжного ВКР, що генерується на цій ділянці, у одновимірному наближенні заданої поляризації та лінійної дисперсії описується бля ближньої зони виразом (4.38).

У розрахунках використовувалася дисперсійна формула Зельмеєра для показника n заломлення світла [148]:

$$n = A + B / (1 - Cv^2), \quad (4.41)$$

де A , B , C – числові коефіцієнти; $\nu = \omega / (2\pi c)$ – частота в обернених сантиметрах (c – швидкість світла у вакуумі). Для толуолу значення коефіцієнтів визначалися методом найменшого кута відхилення [149] і є такими [150]: $A=1,23633$; $B=0,23895$; $C=2,89027 \cdot 10^{-10} \text{ см}^2$.

У разі збудження ВКР у толуолі рубіновим лазером, частота випромінювання якого $\nu_{0L} = \omega_{0L} / (2\pi c) = 14403 \text{ см}^{-1}$, антистоксова комбінаційна частота становить $\nu_{0a} = \omega_{0a} / (2\pi c) = 15407 \text{ см}^{-1}$ (молекулярне коливання з частотою 1004 см^{-1}), модуль хвильового вектора $k_{0a} = 2\pi n \nu_{0a} = 144518,2 \text{ см}^{-1}$, а групова швидкість $\nu_{g0a} = 0,65331 c$. Поляризація, що наведена в результаті взаємодії побіжних лазерної та стоксової (частота $\nu_{0s} = \nu_{0L} - 1004 \text{ см}^{-1}$) хвиль, має модуль хвильового вектора $k_{p0a} = 2k_{0L} - k_{0s} = 144471,7 \text{ см}^{-1}$, а отже, осьова неузгодженість модулів хвильових векторів поляризації і антистоксової компоненти на частоті ν_{0a} складає $k_{0a} - k_{p0a} = 46,5 \text{ см}^{-1}$.

Використовуючи наведені значення для ν_{0a} , $k_{0a} - k_{p0a}$, ν_{g0a} та формулу (4.38), можна знайти положення максимуму у спектрі антистоксової компоненти в залежності від швидкості ν_{fp} фокальної області, коли частотна залежність квадрату модуля перетворення Фур'є функції просторово-часового розподілу поляризації $|F_{\omega}|^2$ не враховується, а спектр антистоксової

компоненти формується переважно під впливом умов синхронізму, дія яких описується функцією $G = \text{sinc}^2 \left[\left(\left(\frac{1}{v_{g0a}} - \frac{1}{v_{fp}} \right) (\omega_a - \omega_{0a}) + (k_{0a} - k_{p0a}) \right) \frac{\Delta L}{2} \right]$. Фізично це відповідає випадку, коли довжина фокальної області (згустку поляризації) є дуже малою (критерій малості буде отриманий нижче). Розгляд спочатку такої ідеалізованої ситуації є виправданим, оскільки саме умови синхронізму ведуть до відлаштування частоти антистоксової компоненти від комбінаційної частоти, а функція $|F_\omega|^2$ є лише обмежуючим фактором.

За вказаних умов частота $\omega_{\text{max}}^{(\text{sync})}$ розташування максимуму у спектрі антистоксової компоненти визначається положенням максимуму функції G , яка вимагає виконання умови амплітудно-фазового синхронізму, і задовольняє рівняння $G = 1$. Звідси, для відлаштування частоти $\Delta\omega^{(\text{sync})} = \omega_{\text{max}}^{(\text{sync})} - \omega_{0a}$ отримуємо:

$$\Delta\omega^{(\text{sync})} = -\frac{k_{0a} - k_{p0a}}{1/v_{g0a} - 1/v_{fp}}. \quad (4.42)$$

Відповідний графік для $\Delta\nu^{(\text{sync})} = \Delta\omega^{(\text{sync})} / (2\pi c)$ поданий на рис. 4.2.

Для від'ємних значень v_{fp} , коли фокальна область рухається назустріч лазерному променю, відлаштування $\Delta\nu^{(\text{sync})}$ частоти також від'ємне та зі збільшенням $|v_{fp}|$ монотонно наростає від 0 для $v_{fp} = 0$ до $\Delta\nu^{(\text{sync})} = -v_{g0a} (k_{0a} - k_{p0a}) / (2\pi c) = -4,8 \text{ см}^{-1}$, коли $|v_{fp}|$ необмежено наростає. Для додатних значень v_{fp} відлаштування частоти на відрізку $v_{fp} = [0, v_{g0a})$ є позитивним і швидко наростає від 0 до $+\infty$, а далі, коли $v_{fp} > v_{g0a}$, відлаштування частоти міняє знак і асимптотично зменшується від $-\infty$ до $-4,8 \text{ см}^{-1}$.

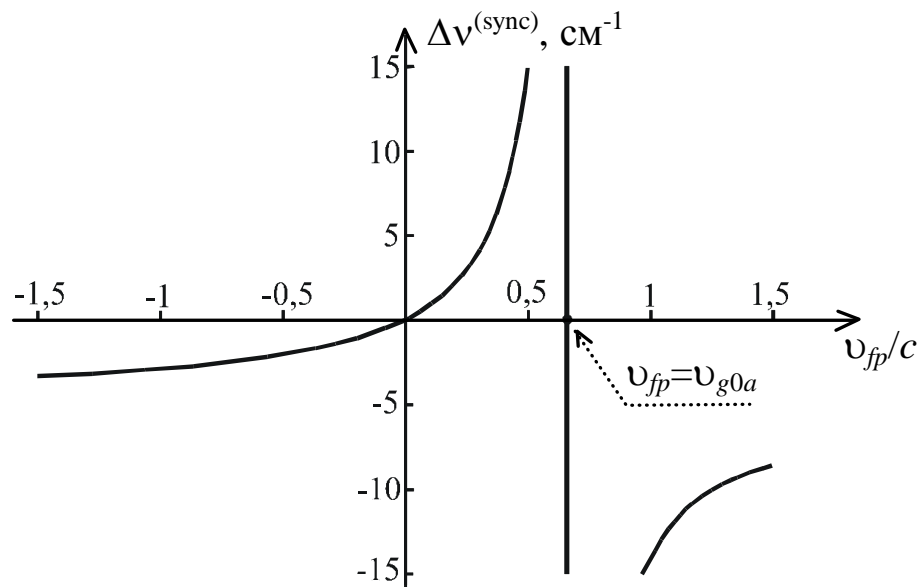


Рис. 4.2. Залежність відлаштування частоти $\Delta v^{(\text{sync})}$ від нормованої швидкості v_{fp} фокальної області для випадку, коли спектр антистоксової компоненти формується переважно під впливом умов синхронізму.

Для швидкості $v_{fp} = v_{g0a}$, тобто за виконання умови групового синхронізму, відстройка частоти є невизначеною, оскільки за нульового групового несинхронізму фазовий несинхронізм не може бути компенсованим.

В околі точки $v_{fp} = v_{g0a}$, де відстройка частоти велика, більш точна поведінка $\Delta v^{(\text{sync})}$ може бути з'ясована, якщо відійти від наближення лінійної дисперсії, тобто врахувати, що в (4.42) групова швидкість світла залежить від частоти. Не наводячи в деталях відповідні розрахунки, зазначимо лише, що на інтервалі $v_{fp} = (0,6486c \div v_{g0a} \div 0,6579c)$ не існує для толуолу такого значення $\Delta v^{(\text{sync})}$, для якого $G = 1$. Крім цього, з наближенням v_{fp} до меж зазначеного інтервалу частотна відстройка не зростає нескінченно, а досягає фіксованих значень $1297,5 \text{ см}^{-1}$ і $-1416,1 \text{ см}^{-1}$ відповідно на нижній і верхній межі. Що ж до похибки розрахунків у наближенні лінійної дисперсії за формулою (4.42), то для $\Delta v^{(\text{sync})} < 100 \text{ см}^{-1}$ вона не перевищує 0,3 %.

Поведінка $\Delta v^{(\text{sync})}$ в залежності від швидкості фокальної області має

просту фізичну інтерпретацію, що ілюструється на рис. 4.3 за допомогою діаграми Еренфеста [151].

На рис. 4.3 у координатах λ (довжина хвилі в середовищі) та v_{ph} (фазова швидкість світла в середовищі) наведений фрагмент функції $v_{ph}\{\lambda\}$, а також нанесена точка P , що відповідає фазовій швидкості $v_{ph}^{(p0a)} = \omega_{0a} / k_{p0a}$ поляризації та довжині хвилі $\lambda_{p0a} = 2\pi / k_{p0a}$ поляризації. Внаслідок того що у толуолі $k_{p0a} \neq k_{0a}$, точка P не лежить на кривій $v_{ph}\{\lambda\}$. Фазова швидкість поляризації перевищує фазову швидкість світла з частотою ω_{0a} , оскільки $k_{p0a} < k_{0a}$. Також, на осі ординат нанесена точка v_{fp} швидкості фокальної області. Продовження лінії, яка з'єднує точки P та v_{fp} , перетинає криву $v_{ph}\{\lambda\}$ в точці X . Проекція точки X на вісь абсцис дає довжину хвилі λ_{max} , що відповідає розташуванню максимуму в спектрі антистоксової компоненти для заданої швидкості фокальної області. В точці X "групова" швидкість хвилі поляризації й електромагнітної хвилі з довжиною λ_{max} збігається з v_{fp} . Зазначимо, в наближенні лінійного закону дисперсії крива $v_{ph}\{\lambda\}$ переходить у пряму лінію, яка перетинає вісь ординат у точці $v_{ph} = v_{g0a}$.

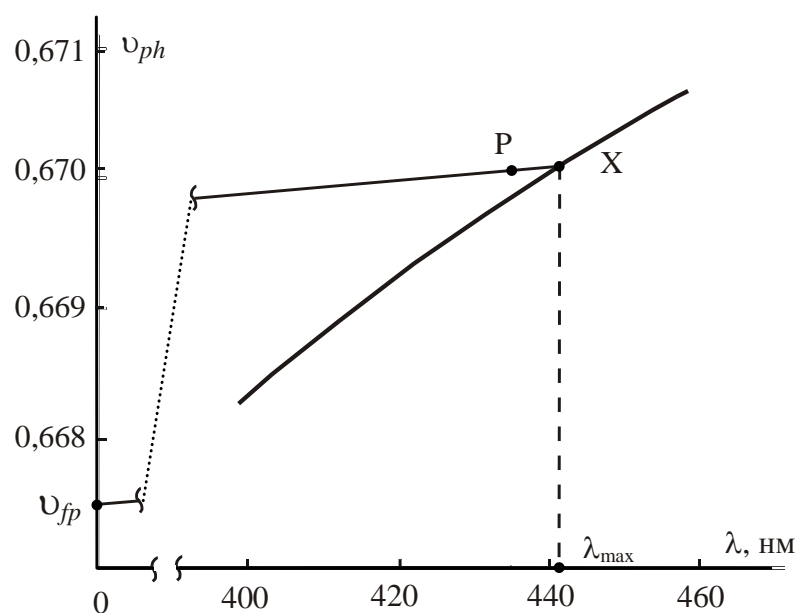


Рис. 4.3. Діаграма Еренфеста для толуолу з розривом на ділянці $\lambda \leq 390$ нм.

Не менш важливою, ніж відлаштування частоти, характеристикою спектра антистоксової компоненти є його ширина. Якщо спектр антистоксової компоненти, як це вважалося у випадку знаходження $\Delta\omega^{(\text{sync})}$, формується переважно під впливом умов синхронізму, то ширина $\delta\omega^{(\text{sync})}$ спектра антистоксової компоненти на половинному рівні становить:

$$\delta\omega^{(\text{sync})} = 5,56 / \left(\Delta L \left| v_{g0a}^{-1} - v_{fp}^{-1} \right| \right). \quad (4.43)$$

Тож, з урахуванням (4.42) знаходимо відношення ширини спектра до відлаштування частоти:

$$\delta\omega^{(\text{sync})} / \Delta\omega^{(\text{sync})} = 5,56 / \left(\Delta L (k_{0a} - k_{p0a}) \right). \quad (4.44)$$

Отже, ширина спектра (4.43) визначається довжиною ΔL ділянки, яку пробігає фокальна область, і неузгодженістю швидкостей v_{g0a} та v_{fp} , тобто мірою групового несинхронізму. В той же час, відношення ширини спектра до відлаштування частоти (4.44) у наближенні лінійної дисперсії не залежить від швидкості фокальної області і для толуолу складає 0,12 для $\Delta L = 1$ см,. Таким чином, навіть на досить коротких ділянках ΔL траси фокальної області формується спектр антистоксової компоненти, у якому відлаштування від комбінаційної частоти, значно перевищує його ширину, а тому, легко може спостерігатися експериментально.

Уже розраховані ширина $\delta\omega^{(\text{sync})}$ спектра антистоксової компоненти та частотне відлаштування $\Delta\omega^{(\text{sync})}$ відносяться до випадку, коли спектр антистоксової компоненти формується переважно під впливом умов синхронізму, дія яких описується функцією $G = \text{sinc}^2 \left[\left(\left(1/v_{g0a} - 1/v_{fp} \right) (\omega_a - \omega_{0a}) + (k_{0a} - k_{p0a}) \right) \Delta L / 2 \right]$. Надалі врахуємо обмежуючий фактор, пов'язаний з функцією F_ω . Ця функція характеризує частотний спектр самої поляризації, ширина якого залежить від довжини фокальної області та швидкості її руху (збуджуюче випромінювання та

стоксова компонента вважаються монохроматичними).

Для числових оцінок виберемо гаусовий розподіл амплітуди нелінійної поляризації у фокальній області. Тоді функція $F\{t\}$ має вигляд:

$$F\{t\} = \exp\left[-4\ln 2 \frac{t^2}{(b/v_{fp})^2}\right], \quad (4.45)$$

де b – довжина на рівні $0,5P_0^{(NL)}$ згустку поляризації, який може бути значно коротшим довжини самої фокальної області ℓ_f . Використовуючи (4.45), знаходимо:

$$|F_\omega|^2 = \frac{8\pi \ln 2}{\delta\omega^{(F)2}} \exp\left[-4\ln 2 \frac{(\omega_{0a} - \omega_a)^2}{\delta\omega^{(F)2}}\right], \quad (4.46)$$

де

$$\delta\omega^{(F)} = 4\sqrt{2} \ln 2 \cdot \left| \frac{v_{fp}}{b} \right| \quad (4.47)$$

– ширина спектра поляризації на половинному рівні. Величину b можна оцінити в 0,1 см. Для такого значення b та $v_{fp} \approx c$ одержимо, що $b/v_{fp} = 3,3$ пс, а $\delta\nu^{(F)} = \delta\omega^{(F)}/(2\pi c) = 6,24$ см⁻¹.

Аби отримати аналітичні вирази для частотної відстройки $\Delta\omega$ і ширини $\delta\omega$ спектра антистоксової компоненти з урахуванням скінченності ширини спектра поляризації, що описується гаусовою функцією (4.46), наближено подамо функцію G теж у вигляді гаусової функції з шириною $\delta\omega^{(\text{sync})}$ та максимумом, зсунутим на $\Delta\omega^{(\text{sync})}$ відносно частоти ω_{0a} :

$$G = \text{sinc}^2 \left[\left(\left(\frac{1}{v_{g0a}} - \frac{1}{v_{fp}} \right) (\omega_a - \omega_{0a}) + (k_{0a} - k_{p0a}) \right) \frac{\Delta L}{2} \right] \approx$$

$$\approx \exp \left[-4 \ln 2 \frac{\left(\omega_{0a} + \Delta\omega^{(\text{sync})} - \omega \right)^2}{\delta\omega^{(\text{sync})2}} \right]. \quad (4.48)$$

Таке наближення в межах $\omega_a - \omega_{0a} = \pm 0,5\delta\omega^{(\text{sync})}$ дає похибку $< 1\%$, а загалом $< 5\%$ від максимального значення $G=1$. Легко переконатися, що результуючий контур для $W_{\omega_s} \propto G|F_{\omega}|^2$ тоді буде теж гаусовим із відлаштуванням частоти

$$\Delta\omega = \frac{\Delta\omega^{(\text{sync})}}{\left(\frac{\delta\omega^{(\text{sync})}}{\delta\omega^{(F)}} \right)^2 + 1} \quad (4.49)$$

та шириною на половинному рівні

$$\delta\omega = \frac{\delta\omega^{(\text{sync})}}{\sqrt{\left(\frac{\delta\omega^{(\text{sync})}}{\delta\omega^{(F)}} \right)^2 + 1}}. \quad (4.50)$$

Очевидно, що $\Delta\omega$ і $\delta\omega$ не відрізняються за величиною від $\Delta\omega^{(\text{sync})}$ і $\delta\omega^{(\text{sync})}$, якщо $\delta\omega^{(F)} \gg \delta\omega^{(\text{sync})}$. Звідси, використовуючи (4.43), (4.47), одержимо критерій, за виконання якого відлаштування частоти та ширина спектра антистоксової компоненти формуються переважно під впливом умов синхронізму:

$$b \ll 0,7\Delta L \frac{|v_{fp} - v_{g0a}|}{v_{g0a}}. \quad (4.51)$$

На рис. 4.4 поданий графік залежності відлаштування частоти $\Delta\nu = \Delta\omega/(2\pi c)$, ширини спектра $\delta\nu = \delta\omega/(2\pi c)$ антистоксової компоненти та ширини спектра $\delta\nu^{(F)} = \delta\omega^{(F)}/(2\pi c)$ поляризації від швидкості фокальної області у випадку, коли $\Delta L=1$ см, $b=0,1$ см. За таких умов відлаштування частоти становить $-20 \text{ см}^{-1} < \Delta\nu < 15 \text{ см}^{-1}$.

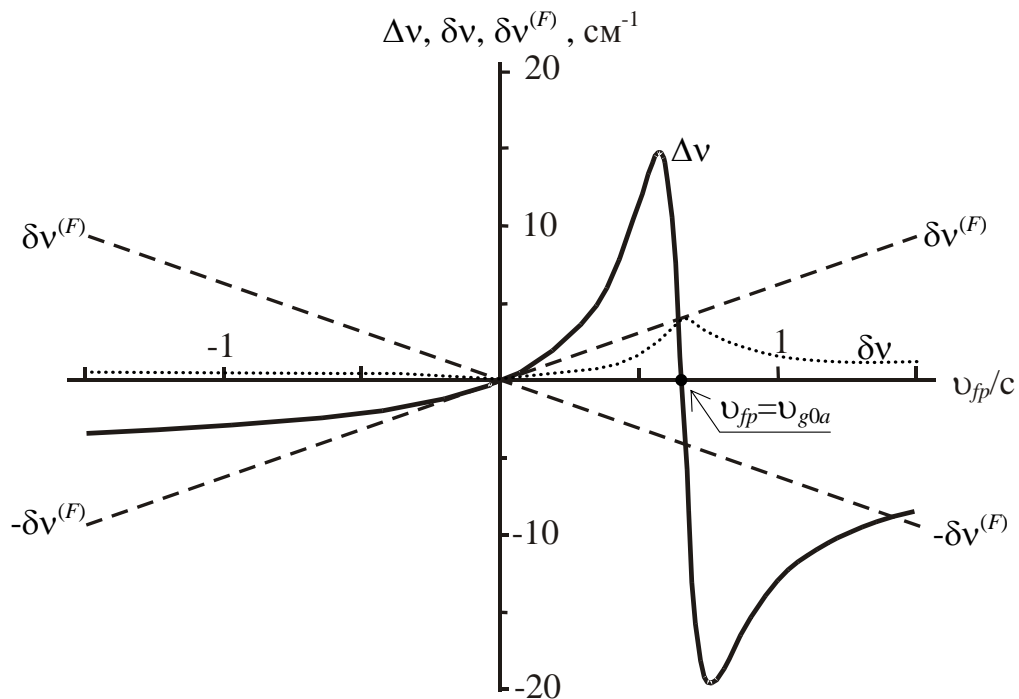


Рис. 4.4. Залежність відстройка $\Delta\nu$ частоти та ширини $\delta\nu$ спектра антистоксової компоненти ВКР, а також ширини спектра поляризації $\delta\nu^{(F)}$ від нормованої швидкості фокальної області v_{fp} у толуолі: $\Delta L=1$ см, $b=0,1$ см.

Звернемо увагу на те, що саме в околі $v_{fp} = v_{g0a}$ спостерігаються суттєві зміни $\Delta\nu$ та $\delta\nu$. У самій точці $v_{fp} = v_{g0a}$, де виконується умова групового синхронізму маємо нульове зміщення частоти і максимальну ширину спектра. Нульове зміщення та мінімальна ширина спектра реалізуються за умови $v_{fp} = 0$, оскільки наразі нелінійна поляризація є монохроматичною і стаціонарною.

Експериментальна ситуація, коли фокальна область пробігає деяку коротку ділянку ВКР-активного самофокусуєчого середовища ΔL з приблизно сталою швидкістю, може бути реалізована за двокюветною схемою. Від форми збуджуючого імпульсу та довжини першої кювети залежатиме швидкість руху фокальної області у другій кюветі з довжиною ΔL . Між першою і другою кюветою необхідно розташувати оптичний фільтр, який відтинатиме випромінювання антистоксової компоненти з першої кювети. Така схема придатна для неперервного переналаштування частоти антистоксової компоненти в межах $>|\pm 10| \text{ см}^{-1}$.

Що ж до однокюветного експерименту, то фокальна область протягом лазерного імпульсу може пробігати відстань у декілька десятків сантиметрів, але її швидкість буде весь час змінюватися й інтегральний за часом спектр антистоксової компоненти матиме складний вигляд. Проте, виходячи з отриманих у цьому підрозділі результатів, неважко зробити висновок, що інтегральний спектр осьової складової антистоксової компоненти буде несиметричним і матиме значно інтенсивніше стоксове крило протяжністю до $1 \div 3 \text{ см}^{-1}$ лише внаслідок руху фокальної області. Це пояснюється тим, що, по-перше, додатні миттєві відстройки частоти антистоксової компоненти реалізуються лише в інтервалі швидкостей $0 < \nu_{fp} < \nu_{g0a}$ (рис. 4.4), а для всіх інших швидкостей є від'ємними. По-друге, на значній частині інтервалу $0 < \nu_{fp} < \nu_{g0a}$, що відповідає додатним відлаштуванням частоти, вони є надто великими ($\Delta\omega > \delta\omega^{(F)}$) і це веде до пригнічення генерації антистоксової компоненти. Такий висновок якісно узгоджується з експериментальними даними за помірних інтенсивностей збуджуючого лазерного випромінювання, коли інші механізми спектральних розширень параметричних компонент ВКР є ще неістотними. Необхідно також додатково враховувати, що випромінювання антистоксової компоненти на комбінаційній частоті, яке генерується за $\nu_{fp} \approx 0$ і $\nu_{fp} \approx \nu_{g0a}$ бере участь в оберненому комбінаційному розсіюванні, а тому ефективно „самопоглинається” [152].

4.5. Частотно-кутові спектри антистоксового вимушеного комбінаційного розсіювання з фокальних областей самофокусування у віддаленій зоні.

Розглянемо повний частотно-кутовий спектр антистоксової компоненти ВКР у віддаленій зоні для випадку, коли фокальна область рухається впродовж лазерного імпульсу. Врахуємо зміни швидкості фокальної області на фронті та спаді лазерного імпульсу наносекундної тривалості. За фіксованої швидкості фокальної області результати для ближньої зони наведені вище.

Будемо вважати, що всі хвилі поляризовані однаково, а кути розсіювання θ незначні. Тоді вираз (4.15) для $W_{\omega\theta}$ спрощується:

$$W_{\omega\theta} = \frac{n_{\omega}\omega^4}{16\pi^3\epsilon_0c^3} \left| \int_V d^3r \int_{-\infty}^{+\infty} P^{(NL)}\{t, \vec{r}\} \exp[i(\omega t - \vec{k}_{\omega}\vec{r})] dt \right|^2. \quad (4.52)$$

Амплітуда $P_0^{(NL)}$ поляризації досягає максимального $P_{0\max}^{(NL)}$ значення в деякій точці фокальної області. Будемо вважати, що ця точка є центром фокальної області з координатою z_{fp} , яка визначається довжиною самофокусування.

Введемо функції $F_z = F_z\{z - z_{fp}\}$, $F_{\perp} = F_{\perp}\{r_{\perp}\}$ повздожнього та поперечного розподілу амплітуди поляризації, де $r_{\perp} = \sqrt{x^2 + y^2}$ – відстань від осі z . У відповідності з цими розподілами амплітуда поляризації становить:

$$P_0^{(NL)} = P_{0\max}^{(NL)} F_z\{z - z_{fp}\} F_{\perp}\{r_{\perp}\}, \quad (4.53)$$

де $P_{0\max}^{(NL)}$, z_{fp} і вид самих функцій F_z , F_{\perp} у загальному випадку залежить від часу. Наше припущення у цій частині полягає лише в тому, що є можливим розклад функції розподілу поляризації на добуток двох функцій, які окремо

залежать від $z - z_{fp}$ та r_{\perp} . Це не має принципового значення та носить характер несуттєвого спрощення. Більш важливим є визначення фази поляризації.

Комбінаційна частота ω_{0a} хвилі поляризації, джерела антистоксової компоненти, визначається частотою ω_{0L} лазерного випромінювання та ω_{0s} стоксової компоненти, яка генерується у фокальній області за комбінаційним механізмом: $\omega_{0a} = 2\omega_{0L} - \omega_{0s}$.

Припускаючи, що лазерне випромінювання та випромінювання стоксової компоненти мають хвильові вектори \vec{k}_{0L} і \vec{k}_{0s} , які збігаються за напрямком й орієнтовані вдовж осі z , подамо хвильовий вектор поляризації як $\vec{k}_{p0a} = 2\vec{k}_{0L} - \vec{k}_{0s}$ з модулем $k_{p0a} = 2k_{0L} - k_{0s}$. Нехтуючи неповною когерентністю лазерної і стоксової хвилі, фазовою само модуляцією, невраховуючи інерційність нелінійного середовища та припускаючи достатньо високий рівень зворотного зв'язку за стоксовою компонентою, фазу поляризації запишемо у вигляді:

$$\varphi_{ap} = \omega_{0a}t - k_{p0a}z = (2\omega_{0L} - \omega_{0s})t - (2k_{0L} - k_{0s})z. \quad (4.54)$$

Тоді з урахуванням (4.53) наведена поляризація буде мати вигляд:

$$P^{(NL)}\{t, \vec{r}\} = P_{0\max}^{(NL)} F_z\{z - z_{fp}\} F_{\perp}\{r_{\perp}\} \exp\left[-i\left((2\omega_{0L} - \omega_{0s})t - (2k_{0L} - k_{0s})z\right)\right]. \quad (4.55)$$

Найпростіший аналітичний вираз для частотно-кутової густини енергії $W_{\omega\theta}$ антистоксового випромінювання можна отримати, якщо фокальна область рухається рівномірно зі швидкістю v_{fp} (додатною за руху від лазера), максимальна амплітуда поляризації фіксована, а функції $F_{\perp}\{r_{\perp}\}$, $F_z\{z - z_{fp}\}$ є гаусовими з незмінними у часі напівширинами a_f та b_e на рівні e^{-1} .

Тоді, підставляючи (4.55) в (4.52), з урахуванням залежності $z_{fp} = v_{fp}t$

найдемо частотно-кутову густину енергію антистоксового випромінювання, яка утворюється на ділянці з довжиною ΔL :

$$W_{\omega\theta} = \frac{\omega^4 a_f^4 b_e^2 n_{0a}}{16\pi\epsilon_0 c^3 v_{fp}^2} \left(P_{0\max}^{(NL)}\right)^2 \Delta L^2 \exp\left[-\frac{1}{2}\left(\Delta k_{\perp}^2 a_f^2 + \Delta\omega^2 \frac{b_e^2}{v_{fp}^2}\right)\right] \text{sinc}^2\left[\frac{\Delta L}{2}\left(\frac{\Delta\omega}{v_{fp}} - \Delta k_{\square}\right)\right], \quad (4.56)$$

де $\Delta\omega = (\omega - \omega_{0a})$ – зміщення (відлаштування) частоти антистоксової компоненти, $\Delta k_{\perp} = k_{\omega} \sin\theta$ і $\Delta k_{\square} = k_{\omega} \cos\theta - k_{p0a}$ – поперечне та поздовжнє неузгодження хвильових векторів випромінювання антистоксової компоненти з деякою частотою ω і поляризації із заданою частотою ω_{0a} .

Аби виявити аналогію з параметричними процесами за дії ультракоротких імпульсів та порівняти вираз (4.56) для дальнього поля з (4.38), який отриманий для ближнього поля, зробимо підстановку $\theta = 0$ в (4.56). Наразі з урахуванням введених позначень $\Delta\omega = (\omega - \omega_{0a})$, $\Delta k_{\perp} = k_{\omega} \sin\theta$ та $\Delta k_{\square} = k_{\omega} \cos\theta - k_{p0a}$, де ω і k_{ω} відповідають ω_a і k_a , маємо:

$$W_{\omega\theta} = \frac{\omega^4 a_f^4 b_e^2 n_{0a}}{16\pi\epsilon_0 c^3 v_{fp}^2} P_{0\max}^{(NL)2} \Delta L^2 \times \exp\left[-\frac{1}{2}(\omega_a - \omega_{0a})^2 \frac{b_e^2}{v_{fp}^2}\right] \text{sinc}^2\left[\frac{\Delta L}{2}\left(\frac{(\omega_a - \omega_{0a})}{v_{fp}} - (k_a - k_{p0a})\right)\right]. \quad (4.57)$$

Уже було показано (підрозд. 4.3), що в наближенні лінійної дисперсії

$$(k_a - k_{p0a}) - (\omega_a - \omega_{0a})/v_{fp} \approx (1/v_{g0a} - 1/v_{fp})(\omega_a - \omega_{0a}) + (k_{0a} - k_{p0a}).$$

Тож очевидно, що результат (4.57) для віддаленої зони в принципі узгоджується з результатом (4.38) для ближньої зони. Різниця лише у коефіцієнтах, оскільки величини $W_{\omega\theta}$ і $W_{\omega s}$ мають відмінні розмірності.

Експонента у виразі (4.57) є нормованим фур'є-перетворенням функції

просторово-часового розподілу амплітуди поляризації і описує частотний спектр поляризації. Його напівширина $\delta\omega^{(F_e)} = \sqrt{2}|\upsilon_{fp}/b_e|$ на рівні e^{-1} визначається довжиною b_e та швидкістю υ_{fp} фокальної точки ($\delta\omega^{(F_e)} \ll \delta\omega^{(F)}$, див. (4.47)). У випадку $b_e = 0,5$ мм і $\upsilon_{fp} = c/2$ маємо $\delta\omega^{(F_e)}/(2\pi c) = 2,3$ см⁻¹. Проте необхідно звернути увагу на те, що за перевищення ширина спектра поляризації ширини лінії комбінаційного розсіювання суттєвим стає врахування скінченності часу локального відгуку середовища, тобто його інерційності. Це необхідно мати на увазі за визначення $P_{0\max}^{(NL)}$ та області застосовності використаного наближення (4.55).

За рівності аргументу функції sinc у (4.57) нулю енергія випромінювання на відповідній зміщеній частоті пропорційна ΔL^2 (навіть якщо $\Delta L \ll b_e$), що характерно для параметричних процесів за надкоротких імпульсів, коли виконуються умови фазового та групового синхронізмів. У даному випадку умова синхронізму, який можна назвати амплітудно-фазовим синхронізмом, набуває вигляду:

$$\upsilon_{fp} = \frac{\Delta\omega}{\Delta k} = \frac{\omega_a - \omega_{0a}}{k_a - k_{p0a}}. \quad (4.58)$$

Така форма запису дає змогу остаточно сформулювати фізичний зміст цієї умови синхронізму. Він полягає у вимозі синхронного з фокальною областю (згустком поляризації) руху точки синфазності поляризації та генерованої хвилі. Це твердження стає очевидним, якщо звернути увагу на те, що в правій частині (4.58) стоїть „групова” швидкість генерованої хвилі та хвилі поляризації. Зокрема, якщо швидкість фокальної області та фазова швидкість поляризації збігаються ($\upsilon_{fp} = \omega_{0a}/k_{p0a}$), таку ж фазову швидкість має і генерована вдовж осі z хвиля ($\omega_a/k_a = \omega_{0a}/k_{p0a}$).

Як впливає з попереднього, у наближенні лінійної дисперсії умова

амплітудно-фазового синхронізму (4.58) зводиться до рівності:

$$\left(\frac{1}{v_{g0a}} - \frac{1}{v_{fp}} \right) (\omega_a - \omega_{0a}) + (k_{0a} - k_{p0a}) = 0, \quad (4.59)$$

де $(1/v_{g0a} - 1/v_{fp})$ – неузгодженість групової швидкості v_{g0a} світла на незміщеній частоті ω_{0a} та швидкості v_{fp} фокальної точки самофокусування; $(k_{0a} - k_{p0a})$ – неузгодженість хвильових векторів випромінювання і поляризації на частоті ω_{0a} . Саме в такому вигляді умова (4.58) фігурує в теорії подвоєння частоти надкоротких імпульсів, лише з тою різницею, що під v_{fp} необхідно розуміти групову швидкість лазерного імпульсу, а індекс a віднести до другої гармоніки. На відмінність від (4.58) вираз (4.59) не дає чіткого уявлення про причину зміщення частоти антистоксової компоненти (або другої гармоніки), але є зручним для розрахунків. З нього формально випливає, що на зміщеній частоті неузгодженість хвильових векторів (фазовий несинхронізм) компенсується неузгодженістю групової швидкості антистоксової компоненти та швидкості фокальної області (груповим несинхронізмом).

Звичайно, на розташування максимуму в спектрі антистоксової компоненти впливає не тільки умова амплітудно-фазового синхронізму, але і у відповідності з (4.57) частотний спектр поляризації. Зміщення $\Delta\omega \equiv \Delta\omega_{\max}$ розташування максимуму відносно ω_{0a} загалом менше, ніж те яку вимагає умова амплітудно-фазового синхронізму (рис. 4.4). Проте, якщо $b_e \ll \Delta L |v_{fp} - v_{g0a}| / v_{g0a}$, то саме амплітудно-фазовий синхронізм визначає зміщення частоти осьової антистоксової компоненти.

Для толуолу маємо $k_{0a} - k_{p0a} = 46,5 \text{ см}^{-1}$ та $v_{g0a} / c = 0,65331$ за збудження ВКР рубіновим лазером. Тож розрахунок на основі (4.59) показує, що додатне зміщення $(\omega_a - \omega_{0a})$ частоти реалізується тільки в інтервалі швидкостей

$0 < v_{fp} < v_{g0a}$. Для усіх інших швидкостей зміщення від'ємне та за необмеженого наростання швидкості $v_{fp} \rightarrow \pm\infty$ асимптотично наближається до значення $(\omega_a - \omega_{0a}) / (2\pi c) = -v_{g0a} (k_{0a} - k_{p0a}) / (2\pi c) = -4,8 \text{ см}^{-1}$.

Розташування максимуму в спектрі розсіяного випромінювання антистоксової компоненти залежить від кута розсіювання θ . Нескладно переконатися, що у відповідності з (4.56) на частотно-кутових спектрах (у координатах $\{\omega, \theta\}$) мають спостерігатися дуги, симетричні відносно лінії $\theta = 0$. Лінію $\theta = 0$ вказані дуги перетинають на частоті ω_a , яка визначається швидкістю фокальної області та розмірами a_f, b_e згустку поляризації.

У випадку $a_f \rightarrow 0, b_e \rightarrow 0$ або $\Delta L \rightarrow \infty$ матимемо дуги $\theta\{\omega\}$, які для толуолу наведені на рис. 4.5.

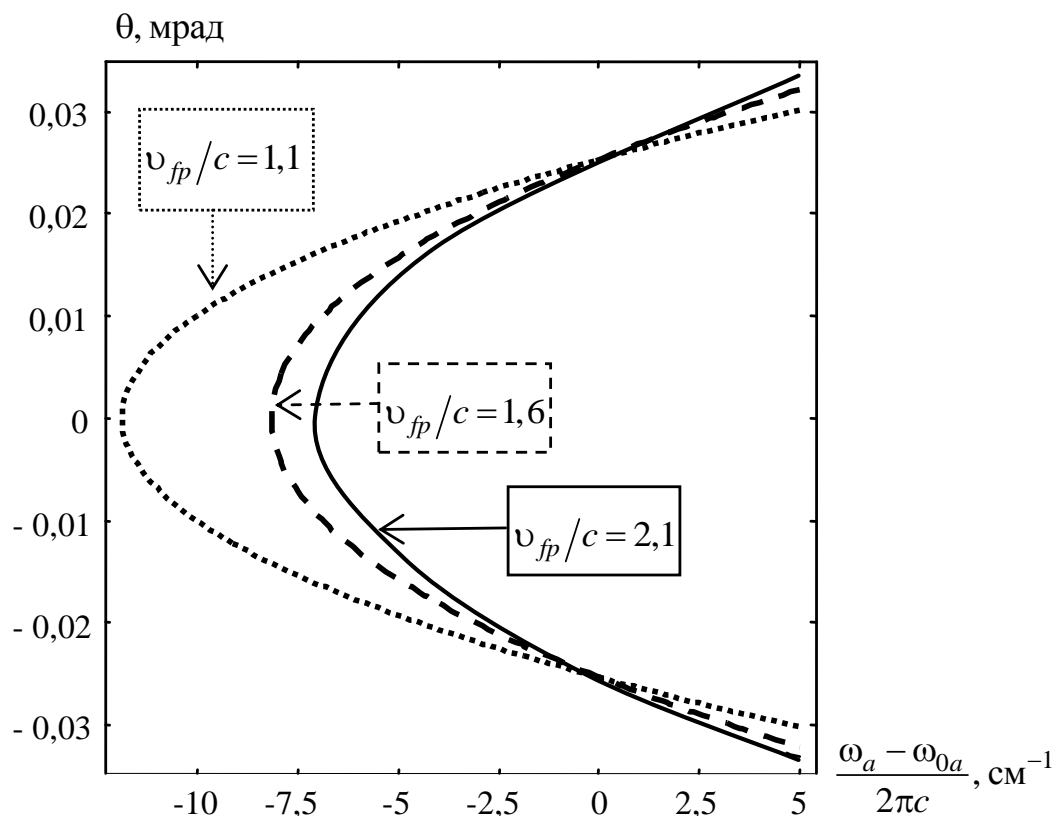


Рис. 4.5. Залежність кута θ переважного розсіювання у толуолі від частоти для різних швидкостей v_{fp} фокальної області у випадку $a_f \rightarrow 0, b_e \rightarrow 0$ або $\Delta L \rightarrow \infty$.

Проте на формування спектрів суттєво впливають реальні значення a_f , b_e , ΔL , оскільки спектр поляризації обмежений та виявляє себе поперечна неузгодженість Δk_{\perp} хвильових векторів. Зокрема, поперечна неузгодженість Δk_{\perp} модифікує умову амплітудно-фазового синхронізму. Частотно-кутовий спектр антистоксового випромінювання у толуолі з урахуванням Δk_{\perp} наведено на рис. 4.6 для швидкості $v_{fp}/c = 1,1$ та $a_f = 5$ мкм, $\Delta L = 1$ см, $b_e \rightarrow 0$.

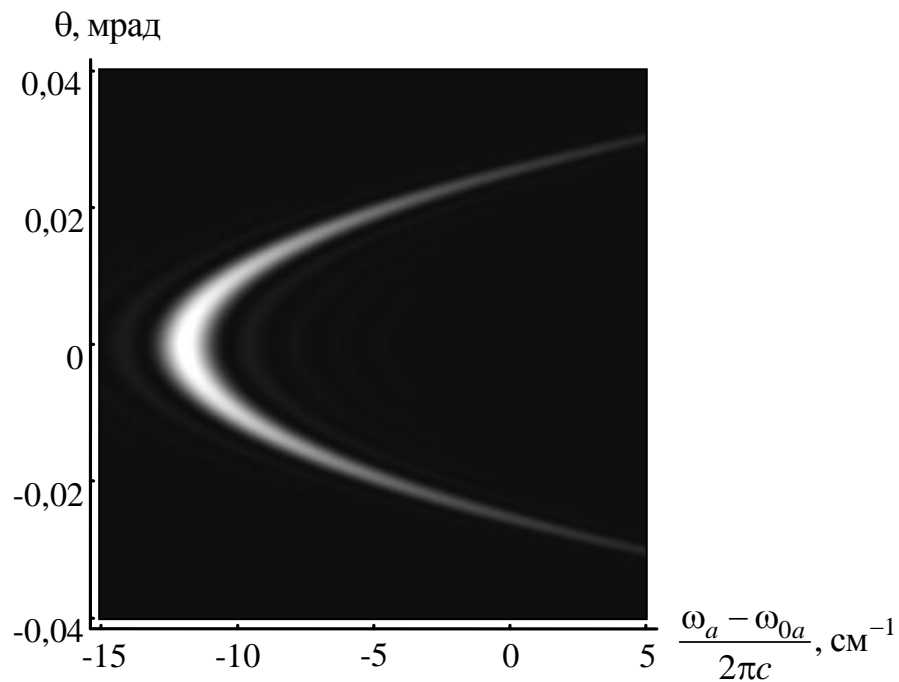


Рис. 4.6. Частотно-кутовий спектр антистоксового випромінювання у толуолі для швидкості $v_{fp}/c = 1,1$ та $a_f = 5$ мкм, $\Delta L = 1$ см, $b_e \rightarrow 0$.

Зі збільшенням b_e починає впливати обмеженість ширини спектра поляризації. Для випадку $v_{fp}/c = 1,1$, $a_f = 5$ мкм, $\Delta L = 1$ см, $b_e = 0,5$ мм спектр набуває вигляду, який показано на рис. 4.7.

Загалом, спектри суттєво трансформуються за варіації параметрів v_{fp} , a_f , b_e , ΔL . Спектри на рис. 4.5, рис. 4.6, рис. 4.7 демонструють лише основний

характер процесу утворення спектрів. Самі ж параметри можуть змінюватися протягом лазерного імпульсу. Перед усім, змінюється швидкість фокальної області, яка взагалі може міняти свій знак на фронті та спаді імпульсу. Крім цього, на порядок величини змінюється b_e . За цих умов унеможливується використання довжини ΔL (як параметру), де швидкість фокальної області є фіксованою. Найвизначенішою є величина $a_f = 5$ мкм, якщо мова йде про толуол.

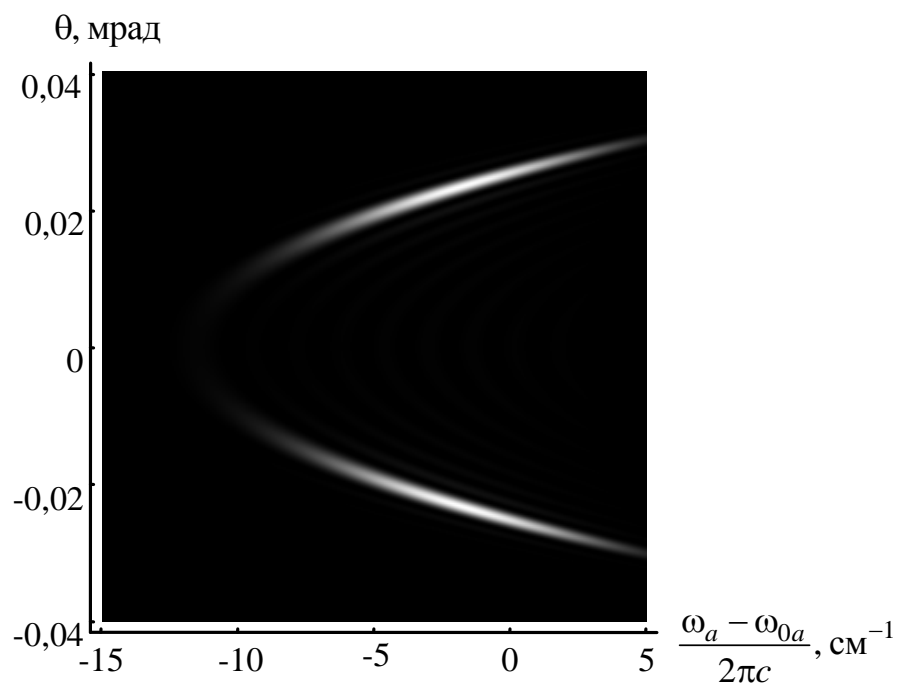


Рис. 4.7. Частотно-кутовий спектр антистоксового випромінювання у толуолі для швидкості $v_{fp}/c = 1,1$ та $a_f = 5$ мкм, $\Delta L = 1$ см, $b_e = 0,5$ мм.

З метою розрахунку загального спектра антистоксової компоненти за збудження лазерним імпульсом використаємо основний вираз (4.52) та визначимо залежність довжини b_e області існування нелінійної поляризації на антистоксовій частоті від миттєвої потужності лазерного випромінювання. Наперед зазначимо, що b_e може значно відрізнятись від довжини ℓ_f

фокальної області внаслідок виснаження лазерного випромінювання за перетворення у стоксову компоненту. Тож необхідні деякі уточнення.

Загалом, у рідинах наведена кубічна нелінійна поляризація $P^{(NL)}$ на антистоксовій частоті визначається виразом:

$$P^{(NL)} = \chi^{(3)} E_L^2 E_s^* , \quad (4.60)$$

де $\chi^{(3)}$ – кубічна нелінійна сприйнятливість, E_L і E_s – напруженість полів лазерної та стоксової хвиль.

Найбільший внесок в антистоксову хвилю дають ті області, де амплітуда поляризації максимальна. Це області з максимальним добутком $|E_L^2 E_s^*|$, а також, з максимальним добутком $I_L^2 I_s$ відповідних інтенсивностей.

Будемо вважати, що для фокальної області поблизу точки $z = z_{fp}$ густина фотонів збуджуючого випромінювання за відсутності перетворення у стоксову компоненту залишається постійною уздовж осі z . Це досить точне наближення для ділянки, яка тягнеться від точки z , де інтенсивність випромінювання дорівнює I_f , що визначена за формулою (3.35), до симетричної точки відносно центру фокальної області. Довжина ℓ'_f цієї області знаходиться аналогічно довжині ℓ_f (3.37). Розрахунки дають: $\ell'_f = z_{fd} (a_f/a_0)^{4/\mu}$.

За такого наближення, якщо враховувати генерацію тільки першої стоксової компоненти у напрямку осі z , для області довжиною ℓ'_f можна записати:

$$I_f / \hbar\omega_{0L} = I_L / \hbar\omega_{0L} + I_s / \hbar\omega_{0s} , \quad (4.61)$$

що є умовою збереження густини потоку фотонів за стоксового ВКР.

У випадку виконання співвідношення (4.61) інтенсивності I_L , I_s плоских хвиль будуть залежати від координати z' всередині області довжиною ℓ'_f за відомими формулами, що є розв'язками системи скорочених хвильових рівнянь [143]:

$$\begin{aligned} I_L &= I_{L,0} \frac{1 + \omega_{0s} I_{L,0} / (\omega_{0L} I_{s,0})}{\exp(I_f G z') + \omega_{0s} I_{L,0} / (\omega_{0L} I_{s,0})}, \\ I_s &= I_{s,0} \frac{1 + \omega_{0L} I_{s,0} / (\omega_{0s} I_{L,0})}{\exp(-I_f G z') + \omega_{0L} I_{s,0} / (\omega_{0s} I_{L,0})}, \end{aligned} \quad (4.62)$$

де $I_{L,0}$ і $I_{s,0}$ – інтенсивності лазерної і стоксової хвиль у довільній початковій точці ($z' = 0$) з області довжиною ℓ'_f , а G – коефіцієнт комбінаційного підсилення стоксової компоненти за інтенсивністю лазерного випромінювання.

У (4.62) за початкову виберемо точку, де досягається 33%-не перетворення: $I_{L,0} = \frac{2}{3} I_f$, $I_{s,0} = \frac{\omega_s}{3\omega_L} I_f$. З урахуванням (4.61), легко показати, що у цій точці добуток $I_L^2 I_s$ сягає максимального значення. Введемо безрозмірну координату $\tilde{z} = G I_f z'$. Тоді, використовуючи (4.62), отримуємо:

$$F\{\tilde{z}\}^2 = I_L^2 I_s = \frac{2\omega_{0s} I_f^3}{\omega_{0L} (\exp(-\tilde{z}) + 0,5)(\exp \tilde{z} + 2)^2}, \quad (4.63)$$

де F є наразі ненормованою функцією подовжнього розподілу амплітуди кубічної нелінійної поляризації на антистоксовій частоті.

На рис. 4.8 подані графіки нормованої функції F/F_{\max} (суцільна лінія) та, для порівняння, гаусової функції (штрихована лінія) з тією самою шириною на рівні $1/e$. Функція подовжнього розподілу нелінійної поляризації на антистоксовій частоті несиметрична. Найбільші відхилення від експоненціального розподілу спостерігаються на крилі, що відповідає першій

частині фокальної області ($\tilde{z} < -3$), та на половинному рівні ($F/F_{\max} = 0,5$) за точкою 33 %-ного перетворення збуджуючого випромінювання у стоксову компоненту ($\tilde{z} \approx 2,5$).

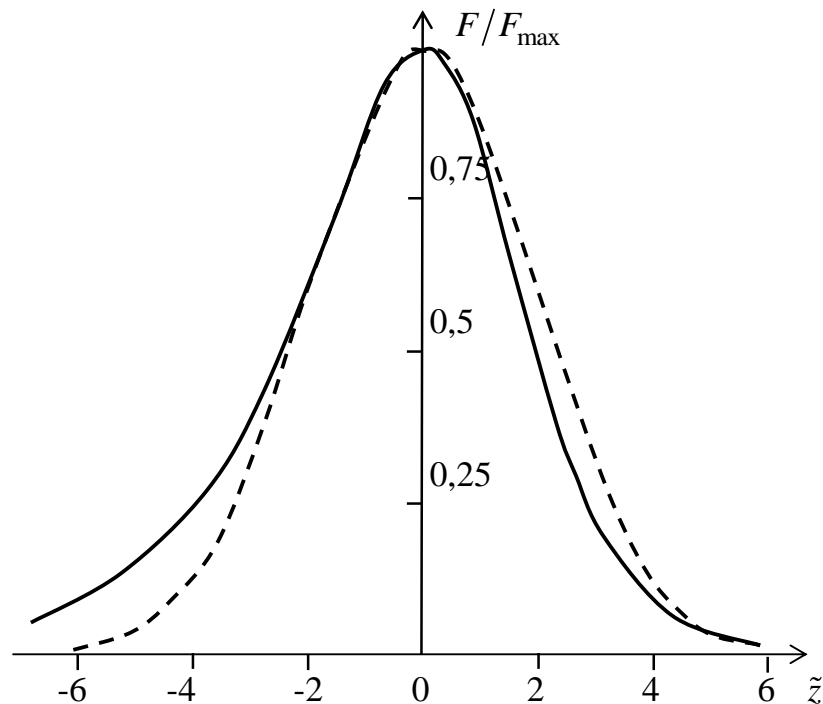


Рис. 4.8. Графіки нормованої функції $F\{\tilde{z}\}/F_{\max}$ (суцільна лінія) та гаусової функції (штрихована лінія) з однаковими ширинами на рівні $1/e$.

Ширина $\Delta\tilde{z}$ на рівні $1/e$ функції подовжнього розподілу нелінійної поляризації у фокальній області за самофокусування дорівнює $\Delta\tilde{z} = 5,55$. Повертаючись від \tilde{z} до z' , отримуємо, що довжина $\Delta z = \Delta z'$ області існування нелінійної поляризації $P^{(NL)}$ на рівні $1/e$ становить $\Delta z = \Delta\tilde{z}/(GI_f)$. Остаточно, у припущенні гаусового поперечного розподілу з напівшириною a_f на рівні $1/e$ маємо

$$\Delta z = 2b_e = 5,55 \pi a_f^2 / P_L G. \quad (4.64)$$

Для толуолу, в якому $P_{cr} = 25$ кВт, $G = 1,17 \times 10^{-6}$ см/кВт, $a_f = 5$ мкм, за наших експериментальних умов, коли потужність P_L у фокусі змінювалася протягом імпульсу від $1,3P_{cr}$ до $3,6P_{cr}$, використовуючи (4.64), отримуємо, що величина $\Delta z = 2b_e$ змінювалася від 1,14 мм до 0,41 мм. Звернемо увагу на те, що довжина області існування нелінійної поляризації $2b_e$ на антистоксовій частоті виявляється значно меншою довжини фокальної області ℓ_f (3.37, Рис. 3.29), особливо для невеликих значень P_L . Так, для $\tilde{P} = 1,3$ відношення $\ell_f / (2b_e) = 17,2$. Крім цього, істотно, що $2b_e$ змінюється уздовж траси руху фокальної області значно менше, ніж ℓ_f . У той час, як ℓ_f змінюється у 16,6 рази, $2b_e$ змінюється у 2,8 рази – обернено пропорційно до P_L .

Тож, маємо достатню інформацію для розрахунку повного спектра антистоксової компоненти на основі виразу (4.52) з урахуванням змін, які відбуваються внаслідок руху фокальної області.

На рис. 4.9 показана усереднена за інтервалом $0,1 \text{ см}^{-1}$ нормована частотно-кутова густина $W_{\omega\theta} \{ \theta = 0 \} / W_{\omega\theta, \max} \{ \theta = 0 \}$ енергії осьового випромінювання антистоксової компоненти ВКР, яка генерується у кюветі з толуолом довжиною $L = 25$ см.

Числовий розрахунок виконувався для гаусового імпульсу лазерного випромінювання з тривалістю 10 нс на половинному рівні інтенсивності та піковою потужністю, рівною двом критичним потужностям самофокусування. Критична потужність самофокусування для толуолу вважалася рівною $P_{cr} = 25$ кВт, початковий радіус пучка – $a_0 = 113$ мкм. Розташування фокальної точки задавалось формулою (3.27) для z_{fd} . Звичайно, координата фокальної дистанції z_{fd} відрізняється від координати z_{fp} фокальної точки. Але за умови, що групова швидкість v_{gL} лазерного імпульсу значно перевищує швидкість v_{fd} зміни фокальної відстані самофокусування, таке наближення є цілком придатним. Це наближення для вказаної довжини кювети, тривалості імпульсу

та пікової потужності лазерного імпульсу повністю виконується.

Мінімальна фокальна відстань для вказаних умов складала $z_{fd,\min} = 11,25$ см. Ураховувалося, що $P^{(NL)} = \chi^{(3)} E_L^2 E_s^*$, тож маємо $P_{0\max}^{(NL)} \propto P_{Lf}^{3/2}$.

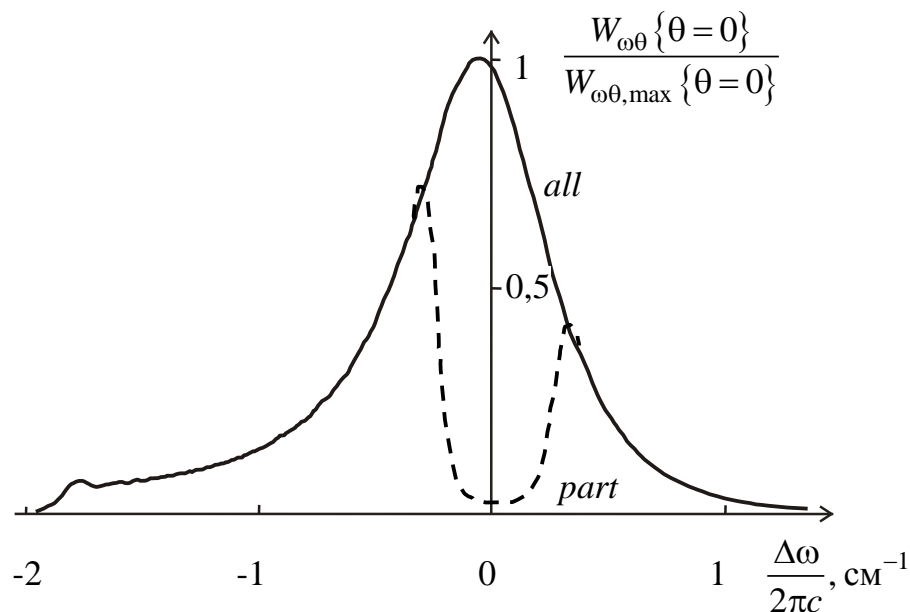


Рис. 4.9. Спектр антистоксової компоненти ВКР у толуолі ($L=25$ см, $z_{fd,\min} = 11,25$ см): *all* – $z = 0 \div 25$ см; *part* – $z = 11,75 \div 25$ см

Спектр випромінювання антистоксової компоненти, яке реєструється зі всієї кювети у межах $z = 0 \div 25$ см (на рис. 4.9 позначений як *all*) асиметричний: інтенсивність довгохвильового крила, що відповідає руху фокальної області у бік лазера, більша. Це є наслідком того, що умова амплітудно-фазового синхронізму за руху фокальної області від лазера виконується для частот (рис. 4.2, рис. 4.4), які практично відсутні у спектрі поляризації. За аномальної дисперсії середовища, за якої $k_{0a} - k_{p0a} < 0$ (для толуолу $k_{0a} - k_{p0a} = 46,5 \text{ см}^{-1}$) асиметрія мала б протилежний знак.

Також на рис. 4.9 показаний спектр осьового випромінювання антистоксової компоненти, позначений як *part*, що генерується на ділянці

кувети $z = 11,75 \div 25$ см. На крилах обидва спектра (*all* та *part*) мають однакову інтенсивність. У спектрі *part* практично відсутня складова антистоксової компоненти в околі комбінаційної частоти ω_{0a} . Тож, частоти в околі ω_{0a} генеруються лише поблизу точки зупинки фокальної точки з координатою $z_{fd,\min} = 11,25$ см.

У зв'язку з цим звернемо увагу на те, що фокальна область поблизу точки $z_{fd,\min} = 11,25$ см (яка відповідає максимальній інтенсивності лазерного випромінювання) знаходиться тривалий час. Це може призводити до пригнічення генерації антистоксової компоненти в околі $z_{fd,\min}$ внаслідок оптичного пробою (деструкції) середовища або вимушеного розсіювання Мандельштама-Брілюена. В означеному випадку спектри типу *part* на рис. 4.9 мають спостерігатися експериментально, що відповідає проведеним дослідженням в описаних вище умовах.

Загалом відмітимо, що в умовах самофокусування за неузгодженості хвильових векторів взаємодіючих хвиль частота антистоксової компоненти ВКР (й інших параметричних компонент) безпосередньо залежить від швидкості z_{fp} руху фокальної точки самофокусування. Це є наслідком того, що на деякій частоті $\omega_a \{v_{fp}\}$, зміщеній відносно комбінаційної частоти ω_{0a} , неузгодженість хвильових векторів компенсується за рахунок неузгодженості групової швидкості антистоксової компоненти та швидкості фокальної області. На цій частоті виконується умова амплітудно-фазового синхронізму, що є узагальненою умовою для нестационарних параметричних процесів. Виконання умови амплітудно-фазового синхронізму забезпечує синфазність генерованої хвилі з нелінійною поляризацією середовища на відмінних частотах в околі місцезнаходження максимальної амплітуди поляризації. Якщо координата максимальної амплітуди поляризації поблизу центру фокальної точки зміщується у просторі, то узгоджено до неї має рухатися точка синфазності генерованої хвилі з поляризацією, а це за наявності неузгодженості хвильових

векторів $k_a \neq k_{p0a}$ виявляється можливим, коли $\omega_a \neq \omega_{0a}$.

Оскільки швидкість і напрямок руху фокальної точки змінюються протягом лазерного імпульсу, то одночасно змінюється величина і знак зміщення частоти антистоксової компоненти.

Вигляд розрахованих спектрів випромінювання антистоксової компоненти узгоджується із загальновідомими експериментальними даними, які загалом свідчать, що параметричні компоненти ВКР в умовах самофокусування мають розширення у довгохвильовий бік. Проте, розглянутий механізм тільки частково може бути відповідальним за спостережувані спектральні розширення, оскільки вони є переважно значно більшими, особливо за багатократного перевищення критичної потужності самофокусування збуджуючого випромінювання.

Загалом є очевидною необхідність урахування руху фокальної області самофокусування на формування спектрів параметричних компонент ВКР за описаним фізичним механізмом, оскільки він сам по собі породжує багаточастотну взаємодію. До того ж, незважаючи на те, що енергія випромінювання за значного зміщення частоти у довгохвильовий бік є незначною у загальному балансі енергій, його миттєва інтенсивність, з урахування тривалості генерації, може бути порівнянною з інтенсивністю випромінювання на комбінаційній частоті.

Додатково вкажемо на те, що відомі погляди на механізми частотних розширень параметричних компонент ВКР (див. наприклад [153 - 155]) не враховують рух фокальної області самофокусування.

4.6. Висновки до Розділу 4.

У розділі теоретично описується вплив руху фокальної області самофокусування на спектр параметричних компонент ВКР: уточнено наближення заданої поляризації та частотно-кутовий розподіл енергії розсіяного випромінювання у віддаленій зоні для випадку широкосмугових спектрів; аналізовано застосування наближення заданої поляризації та

частотний розподіл енергії розсіяного випромінювання у ближній зоні для випадку широкосмугових спектрів; викрито загальні особливості формування спектрів випромінювання рухомих центрів нелінійної поляризації у ближній зоні; наведена деталізація особливостей формування спектрів випромінювання рухомих центрів нелінійної поляризації у ближній зоні; здійснено розрахунок частотно-кутових спектрів антистоксового ВКР з фокальних областей самофокусування у віддаленій зоні.

Доведено, що рух фокальної області в самофокусуєчих рідких середовищах безпосередньо впливає на частоту випромінювання параметричних компонент ВКР. Зміщення частоти антистоксової компоненти відносно комбінаційної частоти обумовлено умовою амплітудно-фазового синхронізму, за якої фазове узгодження хвиль поля і нелінійної поляризації реалізується в околі максимальної амплітуди поляризації, що переміщується разом з фокальною областю. Отримано аналітичні вирази, що описують частотно-кутову густину енергії антистоксової компоненти ВКР за рівномірного руху фокальної області, з використанням модельних уявлень про розподіл амплітуди та фази наведеної у фокальній області нелінійної поляризації. Числовими методами розраховано спектри антистоксової компоненти для типових експериментальних умов збудження ВКР гігантськими імпульсами. Результати розрахунків збігаються з експериментальними даними в тому, що параметричні компоненти ВКР в умовах самофокусування збуджуючого випромінювання розширені переважно в довгохвильовий (стоксів) бік.

Основні результати розділу опубліковано автором у роботах [11, 12, 15, 18, 41].

РОЗДІЛ 5

ФАЗОВА МОДУЛЯЦІЯ ЛАЗЕРНОГО ВИПРОМІНЮВАННЯ У
САМОФОКУСУЮЧИХ СЕРЕДОВИЩАХ

5.1. Теорія квазістаціонарної фазової саомодуляції лазерних імпульсів у керівських рідинах.

Фазова модуляція лазерного випромінювання, що супроводжує ефект самофокусування у керівських рідинах (тобто в тих, у яких спостерігається оптичний ефект Кера) вивчалася та теоретично досліджувалася на протязі тривалого часу [1, 8, 156]. Важливість цього питання обумовлена тим, що в типових експериментальних умовах у керівських рідинах поріг самофокусування лазерного випромінювання нижчий порогу інших нелінійно-оптичних процесів (ВКР, ВРМБ тощо), а тому фазова саомодуляція лазерного випромінювання може суттєво впливати на перебіг та ефективність цих процесів [123]. Проте існуючі на сьогодні уявлення про фазову саомодуляцію лазерного випромінювання в керівських рідинах, що супроводжує ефект самофокусування, носять лише загальний якісний характер і не враховують повною мірою змін, які відбуваються у розташуванні фокальної області та її геометричних розмірах залежно від інтенсивності випромінювання [133].

Зазначимо, мова йде насамперед про фазову саомодуляцію в умовах квазістаціонарного самофокусування, тобто такого, яке реалізується для імпульсів випромінювання з тривалістю $\tau_i \geq 1$ нс, що значно перевищує сталу часу ~ 1 пс оптичного високочастотного ефекту Кера в рідинах.

Як не дивно, але теорія фазової саомодуляції в умовах нестаціонарного самофокусування ($\tau_i \leq 1$ нс) розвинена краще [8]. Це пов'язане з тим, що надкороткі імпульси після входження у керівське середовище в процесі самофокусування просторово стискаються і надалі поперечний розподіл інтенсивності поля уздовж імпульсу залишається постійним (без урахування дисперсійного розпливання імпульсу). Такий імпульс поширюється у вигляді „горна” [8] і після переходу до системи координат, що супроводжує імпульс,

задача набуває стаціонарності (стаціонарний режим нелінійного поширення імпульсу). Вважається, що фазова самомодуляція надкоротких імпульсів у керівських середовищах причетна до генерації пікосекундного спектрального континууму шириною в тисячі см^{-1} [157, 158].

Напротывагу, за квазістаціонарного самофокусування, коли кожен часовий фрагмент імпульсу в першому наближенні самофокусується незалежно від інших і наведена добавка до показника заломлення визначається виходячи з стаціонарних умов, необхідно враховувати нестаціонарність пов'язану зі змінами, які відбуваються у положенні фокальної області та просторовому розподілі поля у фокальній області в умовах зміни миттєвої потужності імпульсу. Перехід до супроводжуючої системи координат у даному випадку не веде до спрощення задачі.

У випадку квазістаціонарного самофокусування проблема ускладнюється ще і внаслідок відсутності достовірних експериментальних даних та теоретичних розрахунків щодо розподілу поля у центрі фокальній області та після неї. Теорія задовільно спрацьовує лише на передфокальній ділянці траси [159]. У центрі фокальної області врахування лише ефектів дифракції та нелінійної рефракції веде до необмеженого наростання амплітуди поля [116]. Питання про те, який універсальний фізичний механізм відповідальний за мінімально можливий радіус фокальної області, залишається без остаточної відповіді, навіть незважаючи на відновлення актуальності проблеми в зв'язку з інтенсивним розвитком відкритих лазерних систем „подвійного” використання. Відсутність відповіді на це питання автоматично обмежує можливості теоретичного опису поведінки лазерного пучка після фокальної області.

Як наслідок, існуючі модельні уявлення про квазістаціонарну фазову самомодуляцію, що супроводжує ефект самофокусування зводяться:

а) з одного боку, до ігнорування змін у розташуванні та геометричних розмірах фокальної області в рамках моделі самоканалювання лазерних імпульсів у стаціонарному каналі [133];

б) з іншого, до перебільшення ролі руху (зміни розташування) фокальної

області з метою акцентування уваги на ефекті квазі-синхронного руху фокальної області та розсіяного випромінювання [1].

Важливо, що в обох указаних випадках автори досліджень притримуються однакового якісного висновку про гладку дзвонувату форму функції додаткової затримки фази з одним максимумом (який припадає на вершину лазерного імпульсу) і відповідного такій функції спектра лазерного імпульсу на виході з керівського середовища, що має (без урахування інерційності орієнтації молекул та статистичного розподілу параметрів фокальних областей в умовах дрібномасштабного самофокусування) дві найінтенсивніші симетричні компоненти з частотним зсувом $\Delta\nu \sim \pm 100 \text{ см}^{-1}$. Спектральна енергія цих компонент у вказаних випадках суттєво перевищує спектральну енергію випромінювання з частотою, що збігається з частотою лазерного випромінювання на вході в керівське середовище ($\Delta\nu = 0$). Різниця лише в тому, що у першому випадку тривалість імпульсів вибирається 10 пс (надто мала), а в іншому становить ~ 1 нс.

Розглянемо більш реалістичну модель фазової модуляції в умовах квазістаціонарного самофокусування.

Для розрахунку затримки фази $\Delta\phi$ імпульсу з потужністю $P_L\{t\}$ у самофокусуєчому середовищі довжиною L використаємо такі вищенаведені результати досліджень:

1. У керівському середовищі з показником заломлення n_L , що залежить від амплітуди E_{0L} напруженості електричного поля лазерної хвилі за формулою $n_L = n_{0L} + n_2 E_{0L}^2$, критична потужність P_{cr} самофокусування, перебільшення якої викликає фокусування, для гаусового пучка з плоским фазовим фронтом в системі одиниць СІ становить (3.26):

$$P_{cr} \approx \frac{\pi(1,22\lambda_{vL})^2}{31\mu_0 n_2 c}, \quad (5.1)$$

де λ_{vL} – довжина хвилі випромінювання лазера у вакуумі, c – швидкість світла у вакуумі, n_2 – коефіцієнт нелінійної рефракції (похідна величина від константи Керра), $\mu_0=4\pi \cdot 10^{-7}$ Гн/м – магнітна стала.

2. Якщо потужність $P_L\{t\}$ пучка перевищує P_{cr} , то виникає фокальна область, дистанція якої z_{fd} відносно вхідної межі середовища з координатою $z=0$ визначається виразом (3.27):

$$z_{fd} = \frac{0,38k_{0L}a_0^2}{\sqrt{(\sqrt{\tilde{P}} - 0,77)^2 - 0,053}}, \quad (5.2)$$

де k_{0L} – модуль хвильового вектора лазерного випромінювання у середовищі без урахування наведених змін показника заломлення, $\tilde{P}=P_L/P_{cr}$ – приведена (нормована) потужність лазерного випромінювання, a_0 – початковий радіус на рівні e^{-1} лазерного пучка (або його частини у випадку дрібномасштабного самофокусування).

3. Залежність інтенсивності $I_L\{z\}$ на осі пучка від координати z у передфокальній області можна наближено виразити формулою (3.35):

$$\frac{I_L\{z\}}{I_L\{z=0\}} = \left(1 - \frac{z}{z_{fd}}\right)^{-\frac{\mu}{2}}, \quad (5.3)$$

де параметр μ залежить від приведеної потужності \tilde{P} лазерного променя. Для параметра μ з точністю 3% в інтервалі $\tilde{P}=1,2 \div 12$ виконується співвідношення (3.36):

$$\mu = 1 + \frac{1}{\tilde{P}} + \frac{\pi}{\sqrt{\tilde{P}}}. \quad (5.4)$$

Відповідно змінюється квадрат радіуса пучка a_z^2 за віссю z :

$$a_z^2 = a_0^2 \frac{I_L \{z=0\}}{I_L \{z\}} = a_0^2 \left(1 - \frac{z}{z_{fd}}\right)^{\frac{\mu}{2}}. \quad (5.5)$$

4. Згідно з даними експериментальних досліджень, внаслідок самофокусування пучок стискується лише до деякого граничного значення радіуса a_f у перерізі, характерного для кожного конкретного середовища. Цей мінімальний радіус пучка будемо вважати незалежним від \tilde{P} і рівним радіусу фокальної області в фокальній точці.

Поводження пучка за фокальною областю є малодослідженим. Використаємо наближення, що після фокальної області пучок розбігається з приблизно сталою швидкістю – з тією ж, з якою він сходився безпосередньо перед фокальною областю. Таке припущення є логічно виправданим, оскільки у фокальній області пучок зазнає втрат внаслідок нелінійних процесів розсіяння і ефект самофокусування після фокальної точки перестає відігравати помітну роль.

З урахуванням вищевикладеного залежність квадрата радіуса пучка a_z для довільної координати z у середовищі можна апроксимувати функцією:

$$a_z^2 = \left(a_0^2 - a_f^2\right) \left|1 - \left(z/z_{fd}\right)^2\right|^{\mu/2} + a_f^2 = \\ = \left(a_0^2 - a_f^2\right) \left|1 - \left(\frac{z \sqrt{\left(\sqrt{\tilde{P}} - 0,77\right)^2 - 0,053}}{0,38k_{0L}a_0^2}\right)^2\right|^{\left(1 + \frac{1}{\tilde{P}} + \frac{\pi}{\sqrt{\tilde{P}}}\right)/2} + a_f^2, \quad (5.6)$$

яка у випадку $z = 0$ дає значення $a_z = a_0$, а в фокальній точці $z = z_{fd}$ – значення

a_f та повністю враховує зміни a_z вповдовж траси лазерного променя.

Знаючи як змінюється перетин пучка у процесі його поширення (5.6) вповдовж кювети та враховуючи співвідношення $I_L \{z, x = 0, y = 0\} \approx \tilde{P} P_{cr} / (\pi a_z^2)$, $E_{0L}^2 = 2c\mu_0 I_L / n_{0L}$, $\Delta n = n_2 E_{0L}^2$, де $\Delta n = n_L - n_{0L}$ – нелінійна добавка до показника заломлення, можна розрахувати додаткову затримку фази $\Delta\varphi \{t, z = L\}$ на виході з керівського середовища довжиною L , що спричиняється нелінійною рефракцією:

$$\Delta\varphi \{t, z = L\} = k_{vL} \int_0^L \Delta n \{z, t\} dz \approx k_{vL} \tilde{P} \{t\} \frac{(1, 22\lambda_{vL})^2}{16n_{0L}} \int_0^L \frac{1}{a_z^2} dz. \quad (5.7)$$

Звернемо увагу на те, що $\Delta\varphi$ не залежить у явному вигляді від n_2 чи P_{cr} , а визначається насамперед приведеною потужністю $\tilde{P} = P_L / P_{cr}$ лазерного випромінювання (див. також (5.6) для a_z). Отже, вираз (5.7) має універсальний характер і може використовуватися для різних середовищ за конкретизації параметрів a_0, a_f та задання функції $\tilde{P} \{t\}$.

Фазова самомодуляція лазерного імпульсу веде до відповідної частотної модуляції. Відстройка миттєвої частоти $\Delta\nu = \nu_L - \nu_{0L}$ на виході з середовища в обернених сантиметрах становить

$$\Delta\nu = -\frac{1}{2\pi c} \frac{\partial(\Delta\varphi \{t, z = L\})}{\partial t} \quad (5.8)$$

за використання значення швидкості світла $c = 3 \cdot 10^{10}$ см/с.

Спектральна густини енергії $W_{\omega 0}$ осьового випромінювання лазерного імпульсу на виході з середовища визначається перетворенням Фур'є:

$$W_{\omega 0}\{\Delta v, t\} \propto \left| \int_{-\infty}^{\infty} \sqrt{\tilde{P}\{t\}} \exp[i(2\pi c \cdot \Delta v \cdot t + \Delta\varphi)] dz \right|^2. \quad (5.9)$$

Для пояснення на рис. 5.1 подано тривимірний графік затримки фази $\Delta\varphi\{z, t\}$ гаусового імпульсу з напівшириною $\tau_i = 1$ нс на рівні e^{-1} у довільній точці z середовища (довжина середовища $L=0,3$ м) та для параметрів $\tilde{P}=3,6$, $a_0=113$ мкм, $a_f=5$ мкм, $n_{0L}=1,49$, що відповідають типовим умовам фазової самомодуляції в толуолі імпульсів випромінювання з довжиною хвилі лазера $\lambda_{vL}=0,69$ мкм. Графік побудовано з урахуванням групового запізнення z/v_{gL} лазерного імпульсу, тому він несиметричний відносно лінії $t=0$.

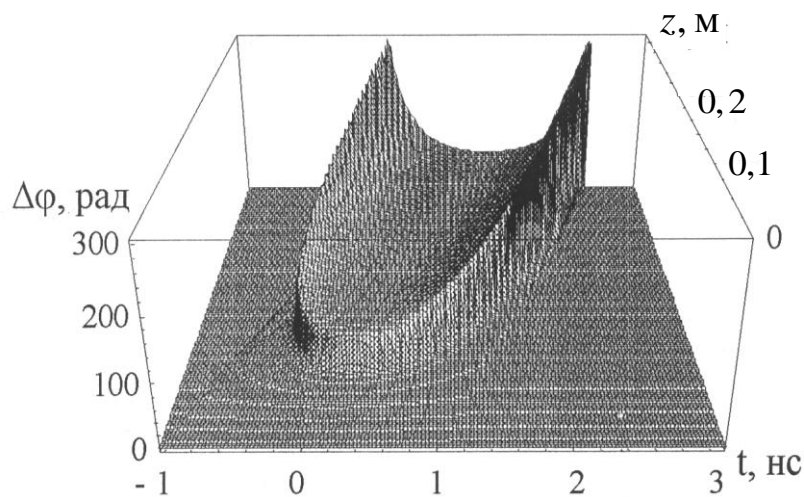


Рис. 5.1. Затримка фази $\Delta\varphi\{z, t\}$ за імпульсу рубінового лазера з параметрами: $\tau_i = 1$ нс; $\tilde{P}=3,6$; $a_0=113$ мкм; $a_f=5$ мкм; $n_{0L}=1,49$; $v_{gL} = 0,65662c$.

Окремо на рис. 5.2 показана функція, що описує додаткову затримку фази $\Delta\varphi\{z=L, t\}$ лазерного імпульсу на виході з середовища довжиною $L=0,3$ м. Використані параметри, що і на рис. 5.1, але для фіксованої координати $z=L$ та без урахування групового запізнення L/v_{gL} за часом.

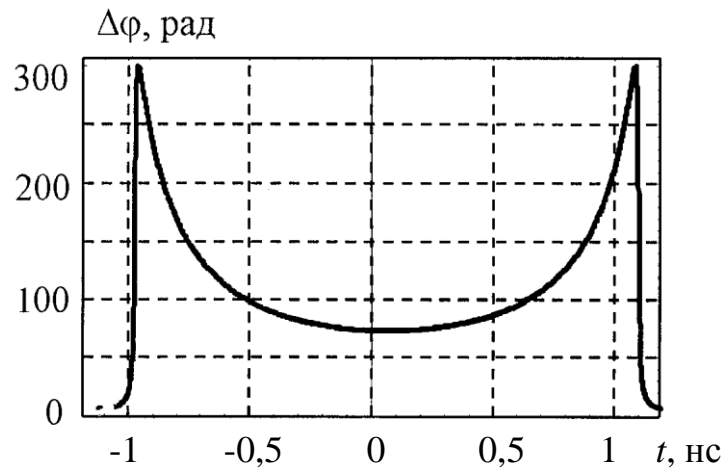


Рис. 5.2. Функція $\Delta\varphi\{t, z=L\}$ додаткової затримки фази на виході з середовища довжиною $L=0,3$ м: $\tilde{P}=3,6$; $\tau_i=1$ нс; $a_0=113$ мкм; $a_f=5$ мкм; $n_{0L}=1,49$; $\lambda_{vL}=0,69$ мкм; групове запізнення $L/v_{gL}=1,523$ нс не враховано.

Затримці фази імпульсу на виході середовища, зображеній на рис. 5.2, відповідає відлаштування миттєвої частоти та спектр, що подані на рис. 5.3 та рис. 5.4, рис. 5.5. Спектр розраховувався за формулою (5.9), у якій межі інтегрування відповідали інтервалу часу, на якому $\tilde{P} \geq 1$. Тобто, це спектр частини імпульсу, для якої самофокусування відіграло помітну роль.

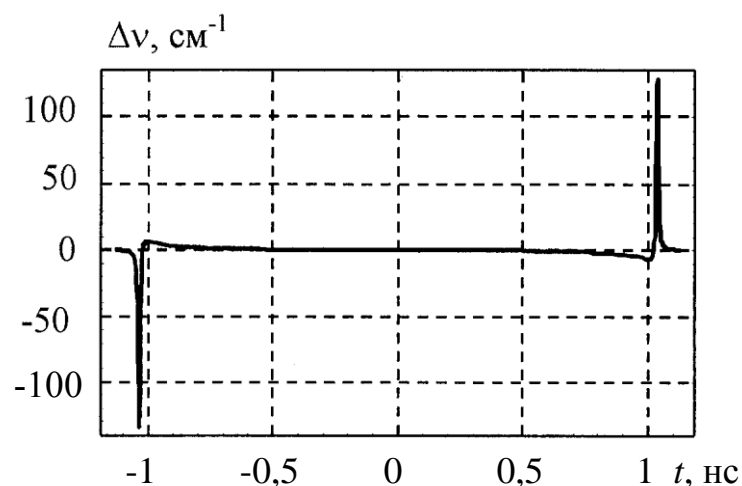
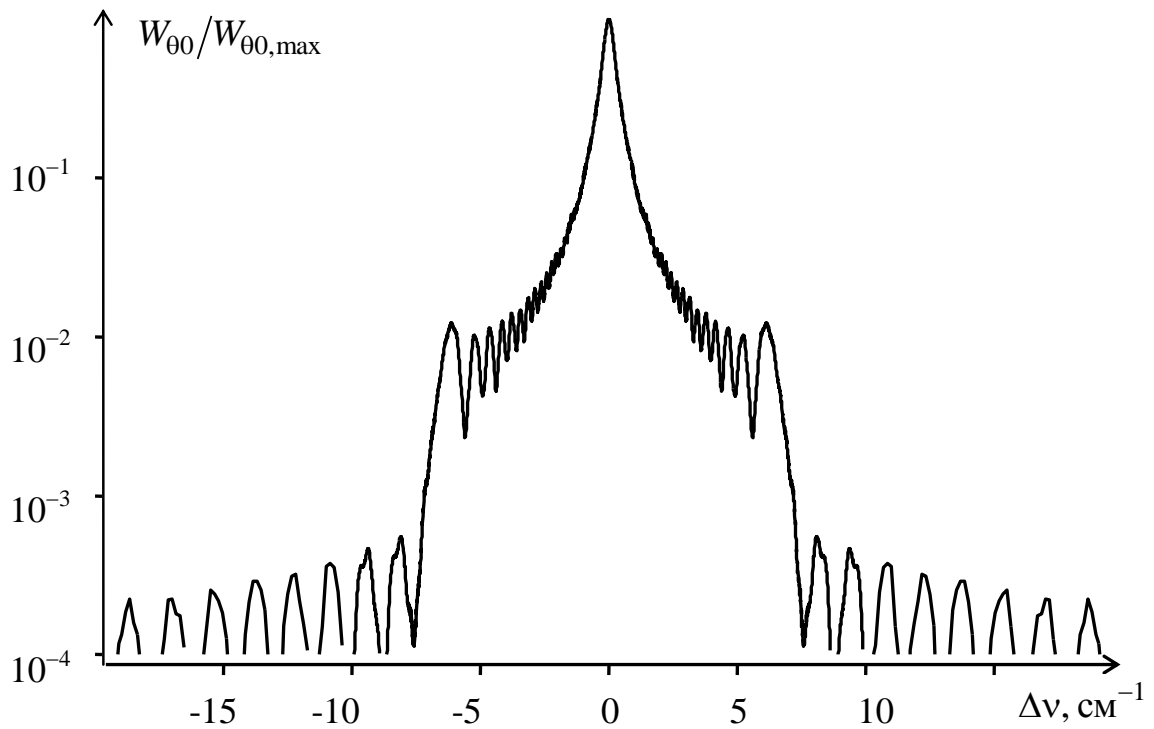
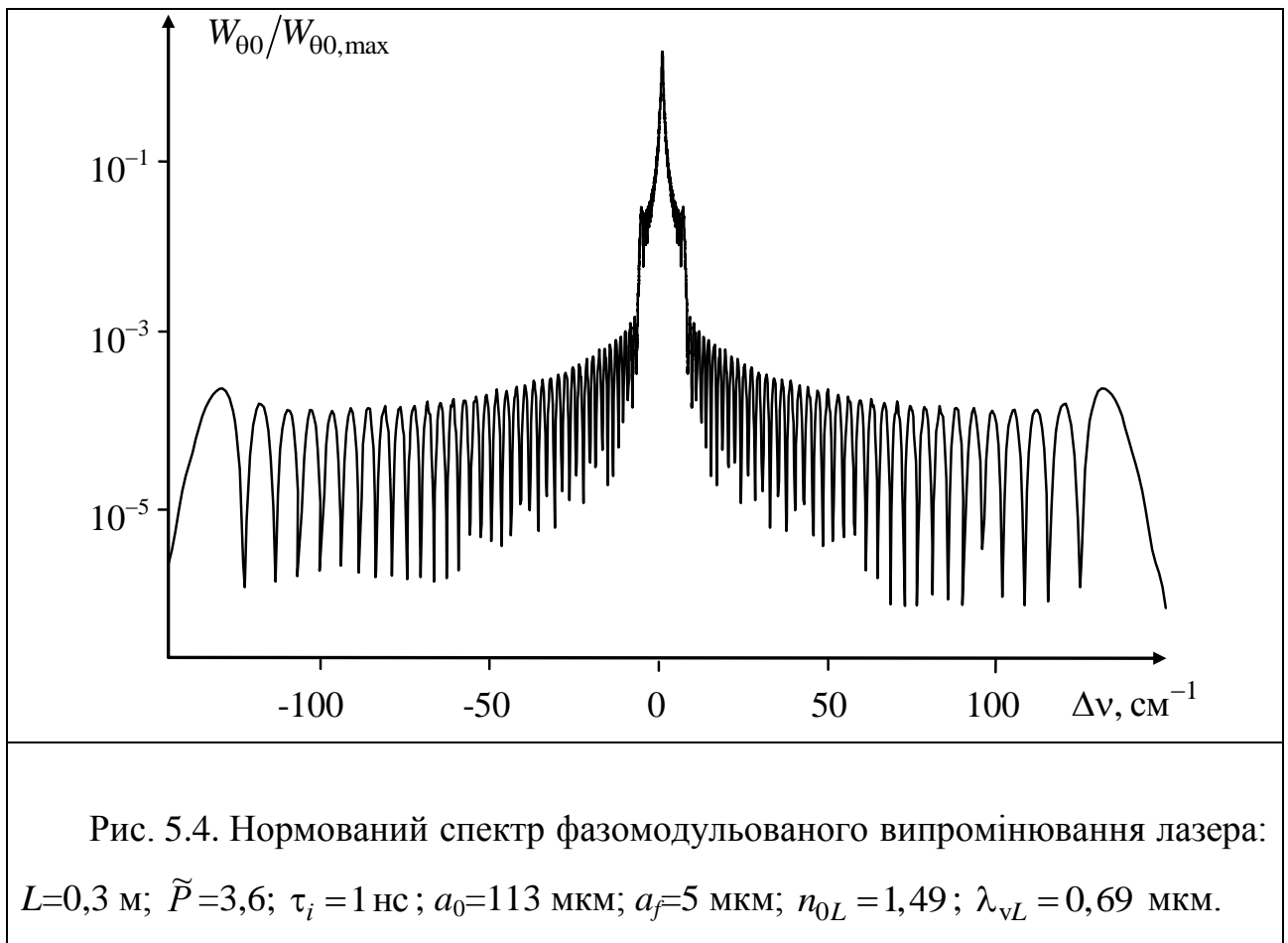


Рис. 5.3. Відлаштування миттєвої частоти лазерного випромінювання: $L=0,3$ м; $\tilde{P}=3,6$; $\tau_i=1$ нс; $a_0=113$ мкм; $a_f=5$ мкм, $n_{0L}=1,49$; $\lambda_{vL}=0,69$ мкм.



Аналізуючи наведені результати, вкажемо на те, що нами запропонована аналітична функція розподілу $I\{z, x=0, y=0\} \approx \tilde{P}P_{cr}/(\pi a_z^2)$ інтенсивності випромінювання уздовж траси проходження лазерного імпульсу через середовище (де a_z^2 описується (5.6)), яка враховує зміни, що відбуваються у розташуванні фокальної області та її геометричних розмірах залежно від інтенсивності випромінювання. З використанням зазначеної аналітичної функції можна розрахувати додаткову затримку фази лазерного випромінювання як уздовж траси імпульсу, так і на виході середовища.

Виявляється, що додаткова затримка фази самофокусованого випромінювання у центрі фокальної області не залежить від константи Керра і в кожен момент лінійно пропорційна фокальній відстані. Відповідно цьому на виході з середовища функція, що описує додаткову затримку фази лазерного імпульсу, у загальному випадку має два максимуми. Максимуми функції затримки $\Delta\varphi$ фази відповідають моментам на фронті і спаді лазерного імпульсу, коли фокальна область розташована поблизу межі керівського середовища.

Це знаходиться у протиріччі з традиційними уявленням про гладку дзвонувату форму функції додаткової затримки фази з одним максимумом, який припадає на вершину лазерного імпульсу [1]. В загальному випадку функція додаткової затримки фази для імпульсу лазерного випромінювання, що пройшло через середовище та самофокусовувалося, в момент, який відповідає вершині імпульсу, має мінімальне значення. Основним фактором, який спричиняє таку поведінку фази, є те, що найбільшому значенню миттєвої потужності лазерного випромінювання відповідає мінімальна фокусна відстань та довжина фокальної області.

Загалом, відлаштування миттєвої частоти лазерного випромінювання, що спричинена додатковою затримкою фази, може змінюватися у широких межах протягом лазерного імпульсу і має чотири локальних максимуми.

Два найбільші максимуми $\Delta\nu$, що сягають у вище зазначених умовах

$\sim \pm 135 \text{см}^{-1}$ (рис. 5.3), пов'язані з перетином фокальною областю межі середовища і реалізуються у результаті швидкої зміни довжини тієї частини фокальної області, яка розташована у середовищі. На фронті лазерного імпульсу за перетину фокальною областю межі середовища відслаштування миттєвої частоти лазерного випромінювання від'ємне, а на спаді – додатне.

Інші два максимуми відлаштування миттєвої частоти лазерного випромінювання, що сягають $\sim \pm 10 \text{см}^{-1}$ (на фронті і спаді імпульсу, відповідно), реалізуються в моменти, коли фокальна область перебуває уже повністю в середовищі, поблизу його межі. Ці максимуми обумовлені відносно швидким скороченням довжини фокальної області саме поблизу межі середовища та зміною знака відлаштування частоти після перетину фокальною областю межі середовища.

Отримані повні спектри лазерного випромінювання, що пройшло через керівське середовище заданої довжини та самофокусувалося, показують їх складний характер з великою кількістю осциляцій (рис. 5.4, рис. 5.5). Можна зазначити, що для типових експериментальних умов, спектр лазерного випромінювання містить основну компоненту (рис. 5.5), що співпадає з початковою частотою ν_{0L} . Ширина цієї компоненти для наносекундних імпульсів становить $\sim 1 \text{см}^{-1}$, а спектральна густина енергії, що їй відповідає, на декілька порядків перевищує густина енергії в інших ділянках спектра.

На ділянці частот, виникнення яких обумовлене перетином фокальною областю межі середовища, спектральна густина енергії випромінювання може сягати $\sim 1\%$ від максимального значення лише за певних, спеціально підібраних експериментальних умовах, а в загальному випадку становить лише $0,01 \div 0,001\%$.

Що ж стосується частот поблизу $\sim 10 \text{см}^{-1}$, які генеруються на фронті та спаді лазерного імпульсу внаслідок швидкого скороченням довжини фокальної області поблизу межі середовища, то спектральна густина енергії на цій ділянці спектра може навіть за типових експериментальних умов перевищувати $\sim 1\%$

від максимального значення для основної компоненти.

Ефект групового запізнення, незважаючи на те, що він має суттєве значення для розрахунку швидкості руху фокальної області та її розташування, не впливає на спостережуваний спектр самого лазерного випромінювання.

Додаткові аргументи до наведеного аналізу надаються далі за текстом.

5.2. Теоретичний аналіз спектрів випромінювання перехідного типу на межі середовище-вакуум в умовах фазової самомодуляції світлового імпульсу за самофокусування.

З'ясуємо вплив руху області максимальної поляризації у випадку виродження частот та оцінимо його кількісні характеристики. Оскільки найсуттєвіші спектральні зсуви та розширення випромінювання спостерігаються в момент перетину згустком поляризації фізичної межі середовищ, можна провести аналогію з відомим ефектом перехідного випромінювання [160], незважаючи на те, що у даному випадку ефект у загальних рисах можна описати в термінах фазової самомодуляції.

Для спрощення задачі розглядатимемо нелінійний згусток поляризації у формі вісесиметричної фігури, орієнтованої уздовж напрямку руху (вісь z) з ефективною довжиною ℓ_f (конфокальний параметр) та з центром у точці z_{fd} . Згусток утворюється внаслідок ефекту квазістаціонарного самофокусування лазерної хвилі з частотою ω_{0L} , коли миттєва потужність P_L перевищує критичну потужність P_{cr} самофокусування, і рухається зі швидкістю v_{fd} зміни фокальної відстані самофокусування. Групове запізнення у даному випадку є неістотним.

Приріст показника заломлення в центрі згустку поляризації позначимо як Δn_f . Хвиля, що утворює згусток поляризації, проходить через нього та на виході з середовища набуває додаткової фазової затримки $\Delta\phi \approx k_{vL} \Delta n_f \ell_f$. Якщо затримка залежить від часу t , то миттєва частота випромінювання відрізнятиметься від ω_{0L} на величину $\Delta\omega = \omega_L - \omega_{0L} = -\partial(\Delta\phi)/\partial t$.

Ставлячи за мету визначити спектр лише осьового випромінювання, будемо використовувати одномірне наближення, тобто наближення плоских хвиль. За умови, що функція просторового розподілу амплітуди та фази нелінійної поляризації у фокальній області розщеплюється на незалежні функції від поздовжньої і поперечних координат, таке наближення є цілком прийнятним. Це впливає з того факту, що поле випромінювання у віддаленій зоні пропорційне фур'є-образу сторонньої поляризації.

Очевидно, що додатковий набіг фази залежить від багатьох параметрів. В умовах самофокусування, коли миттєва потужність лазерного імпульсу швидко змінюється, потрібно враховувати зміну в часі: приросту показника заломлення Δn_f , ефективної довжини фокальної області ℓ_f , її розташування z_{fd} , швидкості v_{fd} , а крім того, фазового набігу на перед- та після-фокальних ділянках траси пучка в середовищі. Відповісти ж на питання, який саме фактор впливає найсуттєвіше, без додаткового аналізу задачі неможливо. Нашою метою є розгляд ситуації, коли фокальна область перетинає межу середовище-вакуум, а реально, межу керівське середовище-повітря.

Використавши модель квазістаціонарного самофокусування для чисельного обрахування додаткового фазового набігу хвилі, розвинену в розд. 5.1, та залежність радіуса пучка a_z від координати z , яка з цієї моделі впливає, в точці z_{fd} маємо:

$$\Delta\varphi\{t, z = z_{fd}\} = k_{vL} \int_0^{z_{fd}} \Delta n\{z, t\} dz \approx k_{vL} \tilde{P}\{t\} \frac{(1, 22\lambda_{vL})^2}{16n_{0L}} \int_0^{z_{fd}} \frac{1}{a_z^2} dz \approx k_{vL} \beta z_{fd}. \quad (5.10)$$

У (5.10) величина β практично не залежить від приведеної миттєвої потужності \tilde{P} і чисельно апроксимується виразом

$$\beta = \frac{0,28}{n_{0L}} \left(\frac{1, 22\lambda_{vL}}{a_0} \right)^2 \left(\frac{a_0}{a_f} \right)^{2/3}, \quad (5.11)$$

у якому фігурують радіус a_0 пучка на вході в середовище та радіус a_f пучка в центрі фокальної області.

Для отримання виразу (5.11) враховувалося, що інтеграл типу $\int_0^{z_{fd}} \frac{1}{a_z^2} dz$ у (5.10) за параметра $\mu = 1 + \frac{1}{\tilde{P}} + \frac{\pi}{\sqrt{\tilde{P}}} = 3$, коли $\tilde{P} \approx 3$, обчислюється аналітично.

Отриманий аналітичний вираз дає функціональну залежність для β від параметрів, яка надалі перевірялася чисельними розрахунками та уточнювалася з урахуванням змін \tilde{P} . Це нарешті показало, що β практично не залежить від потужності \tilde{P} .

На відстані $\delta z = z - z_{fd}$ від центра фокальної області, якщо її вважати циліндричною (а таке допущення тим точніше виконується, чим ближче z знаходиться до точки z_{fd}), додатковий фазовий набіг становить:

$$\Delta\phi\{t, z = z_{fd} + \delta z\} = \Delta\phi\{t, z = z_{fd}\} + k_{vL} \Delta n_f \delta z. \quad (5.12)$$

У керівському середовищі з показником заломлення, приріст якого залежить від амплітудного значення E_{0L} напруженості електричного поля лазерної хвилі за формулою $\Delta n = n_2 E_{0L}^2$, а критична потужність становить

$P_{cr} \approx \frac{\pi(1,22\lambda_{vL})^2}{31\mu_0 n_2 c}$ (див. 3.26) маємо приріст показника заломлення в центрі фокальної області

$$\begin{aligned} \Delta n_f = n_2 E_{0L}^2 \{z = z_{fd}\} &= n_2 \cdot \frac{2I_f}{\epsilon_0 c n_{0L}} = n_2 \cdot \frac{2c\mu_0 \cdot I_f}{n_{0L}} \approx n_2 \cdot \frac{2c\mu_0 \cdot \tilde{P} P_{cr} / (\pi a_f^2)}{n_{0L}} = \\ &= n_2 \cdot \frac{2c\mu_0 \cdot \tilde{P} \frac{\pi(1,22\lambda_{vL})^2}{31\mu_0 n_2 c} / (\pi a_f^2)}{n_{0L}} \approx \frac{\tilde{P}}{16n_{0L}} \left(\frac{1,22\lambda_{vL}}{a_f} \right)^2. \end{aligned} \quad (5.13)$$

Вводячи позначення

$$\gamma \equiv \frac{1}{16n_{0L}} \left(\frac{1,22\lambda_{vL}}{a_f} \right)^2 \quad (5.14)$$

та використовуючи (5.10), (5.12), для додаткового фазового набігу в околі центра фокальної області отримуємо

$$\Delta\varphi\{z_{fd} + \delta z\} = k_{vL} (\beta z_{fd} + \gamma \tilde{P} \delta z). \quad (5.15)$$

Отже, внаслідок перехідного ефекту в момент перетину центральною частиною фокальної області межі середовища з координатою $z=L$ миттєва частота $\omega_{\text{пер}}$ осьового лазерного випромінювання на виході з середовища становитиме (в даному випадку за визначенням $\delta z = L - z_{fd}$)

$$\omega_{\text{пер}} = \omega_{0L} - \frac{\delta(\Delta\varphi)}{\partial t} = \omega_{0L} - \frac{\omega_{0L}}{c} \left[\beta v_{fd} + \gamma \delta z \frac{d\tilde{P}}{dt} - \gamma v_{fd} \tilde{P} \right]. \quad (5.16)$$

Не всі члени в квадратних дужках у формулі (5.16) є однаково вагомими. Порівнюючи перший та третій члени можемо сказати, що останній член суттєво більший, оскільки $\tilde{P} > 1$ і $\gamma \gg \beta$, адже як слідує з означень, величина γ це приріст показника заломлення у центральній частині фокальної області, а β – усереднений приріст показника заломлення на ділянці траси між вхідною межею середовища і центром фокальної області. Що стосується другого члена, то для безпосереднього околу центра фокальної області $\delta z = L - z_{fd} \rightarrow 0$, а тому, цим членом у нашому випадку також можна знехтувати. Внаслідок таких спрощень за перехідного ефекту маємо частоту

$$\omega_{\text{пер}} \approx \omega_{0L} + \omega_{0L} \gamma \tilde{P} \frac{v_{fd}}{c}. \quad (5.17)$$

Повну енергію $W_{\text{пер}}$ випромінювання перехідного типу, що виникає за перехідного ефекту, можна оцінити виходячи з добутку миттєвої потужності P_L лазера на час ℓ_f / v_{fd} , за який фокальна область перетинає межу середовища:

$$W_{\text{пер}} \approx P_L \frac{\ell_f}{v_{fd}} = \tilde{P} \cdot P_{cr} \cdot \frac{\ell_f}{v_{fd}}. \quad (5.18)$$

Зауважимо, що на значення $\omega_{\text{пер}}$, $W_{\text{пер}}$ істотно впливає довжина середовища, оскільки величини v_{fd} , ℓ_f , \tilde{P} , що фігурують в (5.17) та (5.18), обраховуються в момент перетину фокальною областю межі середовища. Окрім того, $\omega_{\text{пер}}$ та $W_{\text{пер}}$ залежать від параметрів середовища та початкового радіусу вхідного лазерного пучка.

Наведемо розрахункові характеристики „перехідного” випромінювання з фокальної області на межі середовища для реальних експериментальних умов.

З використанням (5.17) на рис. 5.6 для різних довжин L кювети подана залежність відлаштування $\Delta\omega_{\text{пер}} = \omega_{\text{пер}} - \omega_{0L}$ миттєвої частоти лазерного випромінювання для гаусового імпульсу з напівшириною $\tau=1$ нс на рівні e^{-1} від приведеної максимальної потужності $\tilde{P}_0 = P_{0L}/P_{cr}$ імпульсу лазерного випромінювання. Вибрані типові експериментальні параметри: $a_0 \approx 0,1$ мм (за дрібномасштабного самофокусування); $a_f = 5$ мкм; $n_{0L} = 1,49$; $\lambda_{vL} = 0,69$ мкм; $\omega_{0L} = 2,7 \cdot 10^{15}$ рад/с; $n_2 = 3,33 \cdot 10^{-21} \text{ м}^2/\text{В}^2$ (толуол). Відлаштування миттєвої частоти монотонно збільшується зі зростанням \tilde{P}_0 і L , що насамперед обумовлено зростанням $v_{fd} \{L\}$ на межі середовища.

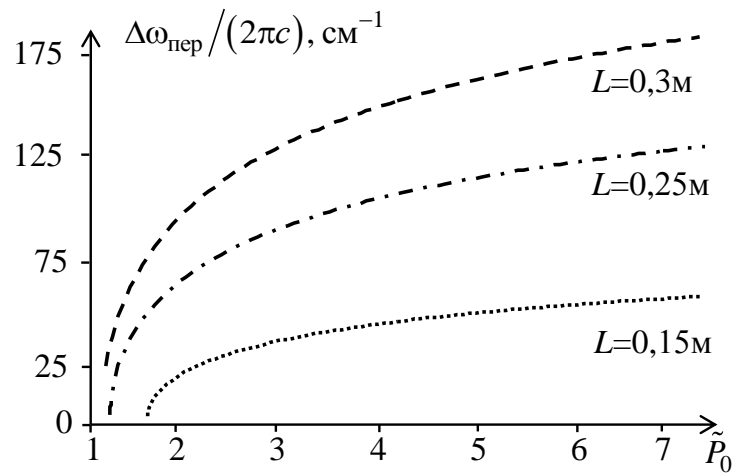


Рис. 5.6. Залежність відлаштування миттєвої частоти лазерного випромінювання внаслідок перехідного ефекту від максимальної миттєвої потужності для різних довжин кювети: $L=0,3$ м, $L=0,25$ м, $L=0,15$ м.

На рис. 5.7 наведені результати розрахунків відлаштування миттєвої частоти випромінювання перехідного типу за зміни початкового радіуса пучка та потужності $\tilde{P}_0=3,6$. Інші параметри ті ж, що і на рис. 5.6. Зі зменшенням a_0 та збільшенням довжини середовища частотний зсув збільшується.

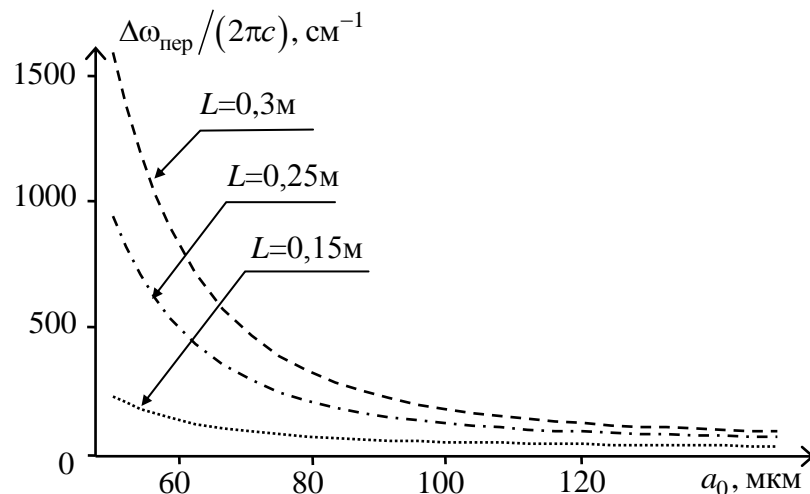


Рис. 5.7. Залежність відлаштування миттєвої частоти випромінювання перехідного типу від вхідного радіуса a_0 пучка за фіксованого значення $\tilde{P}_0=3,6$ для різних довжин кювети: $L=0,3$ м, $L=0,25$ м, $L=0,15$ м.

Зазначимо, що залежності на рис. 5.6 та рис. 5.7 побудовані з використанням (5.17). Похибка не перевищує 5% від $\Delta\omega_{\text{пер}}$, розрахованого за формулою (5.16).

Для використаних параметрів за умови, що довжина z_{fd} фокальної дистанції для максимальної миттєвої потужності знаходиться достатньо далеко від межі середовища, енергія „перехідного” випромінювання складає величину $\sim 0,5\%$ від загальної енергії імпульсу (5.18).

Загалом, можна відмітити наступне.

Перехідний процес на межі самофокусуєчих середовищ відіграє важливу роль у фазовій модуляції лазерного випромінювання та забезпечує значні частотні зсуви.

З урахуванням неоднорідності реальних середовищ, що еквівалентне наявності великої кількості меж, перехідний ефект внаслідок швидкого руху згустків нелінійної поляризації є одним із вагомих факторів, які необхідно враховувати в процесах розповсюдження потужних імпульсів лазерного випромінювання та розробці нелінійно-оптичних методів переналаштування частоти.

Ефект випромінювання (розсіювання) перехідного типу на межі самофокусуєче середовище-повітря може використовуватися для створення принципово нових джерел фазомодульованих надкоротких моноімпульсів когерентного випромінювання або послідовності (цугу) таких імпульсів.

Підбором умов можна забезпечити коливний рух згустків нелінійної поляризації на межі середовищ, а отже, ефективну трансформацію амплітудної модуляції світлових сигналів у відповідну фазову модуляцію.

5.3. Експериментальне виявлення перехідного ефекту на межі середовища за фазової самомодуляції лазерних імпульсів наносекундного діапазону тривалостей.

У розд. 5.2 були наведені теоретичне дослідження перехідного ефекту за

фазової самомодуляції лазерних імпульсів наносекундного діапазону внаслідок квазістаціонарного самофокусування. Ефект полягає у тому, що самофокусований лазерний промінь утворює в керівській рідині локалізовану ділянку з іншим показником заломлення. Ця ділянка, що збігається з фокальною областю пучка, відповідно до миттєвої потужності лазерного імпульсу швидко рухається, міняє свої розміри й показник заломлення. Випромінювання, утворивши ділянку, саме ж проходить через неї, тож, зазнає фазової модуляції, оскільки параметри ділянки та її розташування змінюються. Проте протягом руху ділянки в об'ємі середовища зміни фази незначні та повільні й не призводять до суттєвого зміщення частоти випромінювання. Інша справа, коли фокальна область перетинає вихідну межу середовища й ділянка з іншим показником заломлення з'являється (на фронті імпульсу) або зникає (на спаді імпульсу). В цей момент унаслідок великої (навіть надсвітлової) швидкості фокальної області довжина її ділянки в середовищі стрімко змінюється, що веде до генерації нових спектральних компонент.

Спектральні компоненти, що породжуються у результаті передбаченого ефекту, можна назвати „випромінюванням перехідного типу”, оскільки існує певна аналогія з класичним перехідним випромінюванням від рівномірно рухаючихся зарядів у неоднорідному середовищі або через його межу. Істотна відмінність полягає в тому, що в даному випадку мова йде про рух через межу середовища згустку нелінійної поляризації.

Наведемо дані щодо експериментального виявлення перехідного ефекту та порівняння його характеристик із теоретичними оцінками. Схема експериментальної установки подана на рис. 5.8.

Наразі використовувався рубіновий лазер з активним елементом діаметром 8 мм, резонатором довжиною 34 см і пасивною модуляцією добротності (фталоціанін хлористого галію розчинений у хлорбензолі), що випромінював світлові імпульси на довжині хвилі $\lambda_{vL}=0,6943$ мкм з енергією 0,5 Дж та тривалістю 30 нс на половинному рівні інтенсивності.

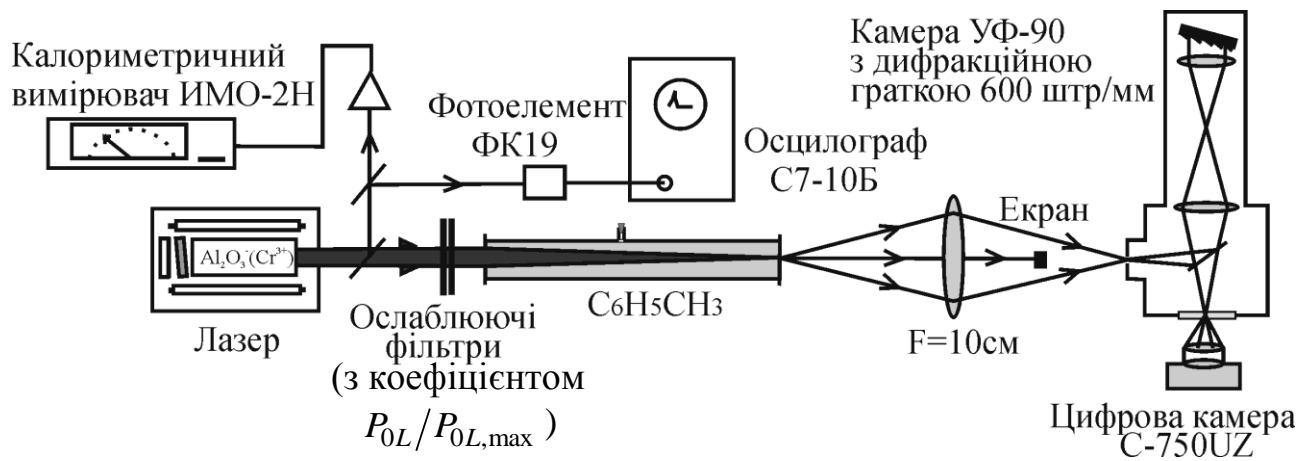


Рис. 5.8. Схема експериментальної установки.

Середньоквадратичний розкид енергії імпульсів складав 5%. Форма імпульсів (на осцилографі С7-10Б із смугою пропускання після лінії затримки 650 МГц) була гладкою, але містила незначні осциляції з періодом ~ 2 нс. У перетині пучок лазера був неоднорідний, з великою кількістю ($\sim 10^2$) максимумів та мінімумів інтенсивності. За діафрагмою 0,4 мм на шляху пучка, яка виділяла фрагмент хвильового фронту імпульсу, на осцилограмах спостерігалися глибокі (до 50% від амплітуди) осциляції із усередненим періодом 7 нс.

Ширина спектра генерації лазера вимірювалася за допомогою інтерферометра Фабрі-Перо типу ИЗС-9 (№2426) з товщиною кільця 30 мм та різкістю ~ 20 . На рис. 5.9 наведено фрагмент центральної частини інтерферограми, зареєстрованої за об'єктивом з фокусною віддаллю 60 см.

Ширина спектра на половинному рівні становила $0,01 \text{ см}^{-1}$, що не перевищує спектральну відстань між двома сусідніми поздовжніми модами. Проте спостерігалася малоінтенсивна бокова поздовжня мода на відстані $\delta\nu_M = 0,0156 \text{ см}^{-1}$ від центральної моди. За такого модового складу огинаюча імпульсу може містити осциляції з періодом $T = 1/(\delta\nu_M c) = 2,14$ нс, де c – швидкість світла в см/с.

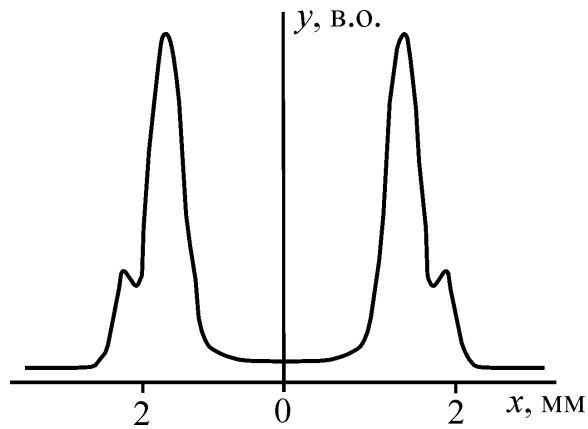


Рис. 5.9. Фрагмент інтерферограми: за віссю x відкладено радіус інтерференційних кілець, а вповодж y – спектрально-поверхнева густина енергії випромінювання лазера у відносних одиницях.

Випромінювання лазера за потреби ослаблювалося каліброваними світлофільтрами та спрямовувалося в кювету з толуолом довжиною $L=25$ см або $L=12,5$ см, що розташовувалася на відстані ~ 1 м від лазера. Вихідна межа кювети проектувалася у масштабі 1:1 лінзою з фокусною віддаллю $F=10$ см на вхідну щілину спектрографа на базі камери УФ-90 із дифракційною ґраткою 600 штр/мм. Обернена лінійна дисперсія спектрографа становила 1,33 нм/мм, а апертурний кут, що визначається відносним отвором останнього – 70 кут. хв. У фокусі проектуючої лінзи перпендикулярно щілині спектрографа розташовувався екран у вигляді смужки шириною 2,5 мм для поглинання надто інтенсивного осьового випромінювання в межах кутів ± 43 кут. хв. Утворені за такою методикою просторово-частотні спектри реєструвалися цифровою камерою С-750UZ із поверхні матового скла, розташованого в касетній частині спектрографа. Ширина вхідної щілини спектрографа зазвичай становила 100 мкм, що обмежувало спектральну роздільність величиною 0,13 нм. Проте більш суттєве обмеження обумовлювалося використанням матового скла – на рівні 0,2 нм. Цей же фактор призводив до просторової роздільності ~ 150 мкм.

Типові фотографії просторово-частотного спектра в області довжини хвилі лазерного випромінювання показані на рис. 5.10.

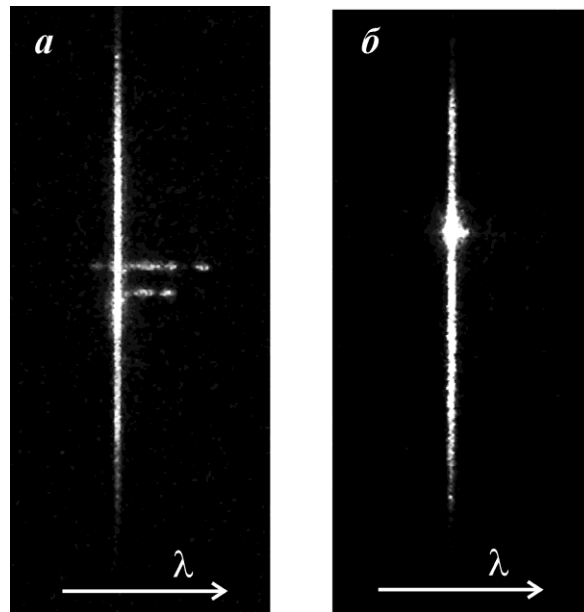


Рис. 5.10. Спектральні розширення лазерного випромінювання: потужність імпульсу $P_{0L}=0,75 P_{0L,\max}$ (а) та $P_{0L}=0,52 P_{0L,\max}$ (б); довжина кювети – $L=25$ см; стрілками вказаний напрямок зростання довжини хвилі λ .

На рис. 5.10 максимальна потужність лазера P_{0L} після послаблюючих фільтрів становила 75% (а) та 52% (б) від максимальної потужності $P_{0L,\max}$, а довжина кювети – 25 см. На рис. 5.10 у вигляді довгої вертикальної лінії спостерігається зображення щілини спектрографа на довжині хвилі $\lambda_{\nu L}=0,6943$ мкм. Від цієї лінії відходять горизонтальні смуги, які відповідають спектральним розширенням лазерного випромінювання з локальних ділянок пучка – фокальних областей, що виникають внаслідок дрібномасштабного самофокусування та перетинають вихідне вікно кювети. На рис. 5.10,а максимальне розширення $\Delta\omega_{\text{пер}}/(2\pi c)$ складає 53 см^{-1} у стоксів бік і 13 см^{-1} в антистоксів бік (верхня смужка), а на рис. 5.10,б – 6 см^{-1} лише у стоксів бік. Переважне розширення спектрів у стоксів бік було характерною ознакою всіх отриманих спектрів за різних потужностей лазерного випромінювання.

Різний вигляд спектрів на рис. 5.10,а та рис. 5.10,б відображає загальну тенденцію: зменшення потужності лазерного імпульсу супроводжується

зменшенням спектральних розширень та збільшенням яскравості зображення фокальних областей на частоті випромінювання лазера. На порозі самофокусування спостерігалися лише яскраві зображення фокальної області на частоті випромінювання лазера та були відсутні спектральні розширення. Поряд з іншими результатами це свідчить про тісний зв'язок величини розширень із швидкістю перетинання фокальною областю межі середовища. Адже на порозі самофокусування (залежного від довжини кювети) фокальна область утворюється та зникає на межі кювети, маючи нульову швидкість.

Зменшення довжини кювети від $L=25$ см до $L=12,5$ см вело до зменшення максимальних спектральних розширень у випадку $P_{0L,\max}$ від 74 см^{-1} до 18 см^{-1} (середні значення). Важливо зазначити, що меншій довжині кювети відповідає менша швидкість фокальної області на виході кювети та більша миттєва потужність лазера у цей момент. Тому очевидним є, що швидкість перетинання фокальною областю межі повітря-керівська рідина має істотніше значення, ніж миттєва потужність лазера у цей момент.

У випадку проектування на вхідну щілину спектрографа глибоких зрізів кювети на відстані до 12 см від вихідного вікна, спектри носили дифузний характер (рис. 5.11, відстань 11,25 см) і не містили типових для виходу з кювети частотних розширень. Це теж підтверджувало зв'язок останніх з перехідним ефектом за фазової самомодуляції лазерного випромінювання.

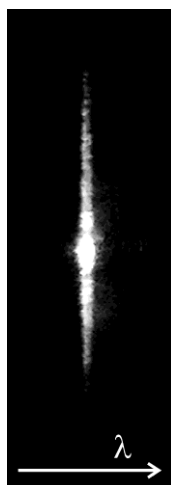


Рис. 5.11. Спектр зареєстрований із глибини кювети.

На рис. 5.12 подані узагальнені результати досліджень залежності максимального частотного розширення $\Delta\nu_{\text{пер}} = \Delta\omega_{\text{пер}}/(2\pi c)$ у стоксів бік від нормованої потужності \tilde{P}_0 та довжини L кювети.

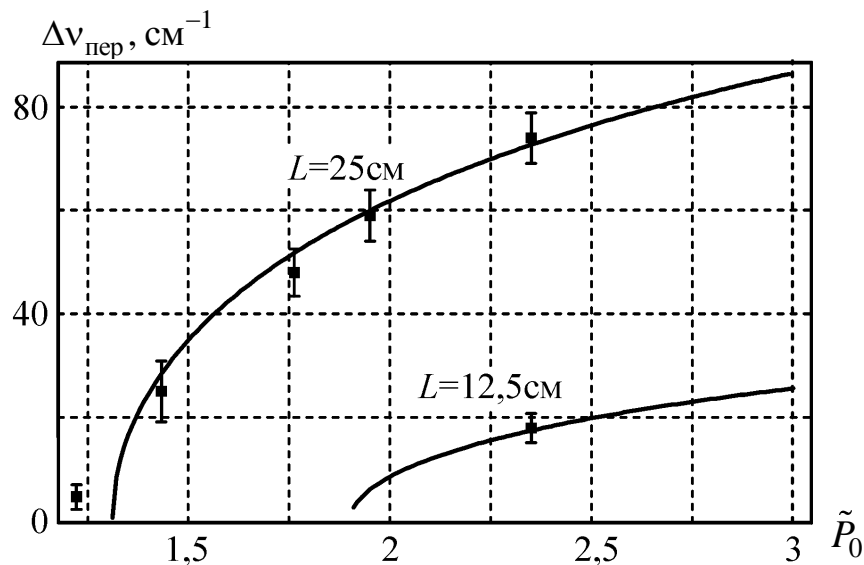


Рис. 5.12. Порівняння даних експерименту (□) для стоксового значення $\Delta\nu_{\text{пер}} = \Delta\omega_{\text{пер}}/(2\pi c)$ з теоретичними розрахунками (суцільна лінія) залежно від нормованої потужності \tilde{P}_0 та довжини кювети L .

На рис. 5.12 нанесені точки середніх значень $\Delta\nu_{\text{пер}}$ та вказані середньоквадратичні відхилення (стандартна похибка) для них.

У реалізованих експериментальних умовах за великих потужностей і довжин кювети в кожному спектрі спостерігалось до 10 фокальних областей та відповідних локальних спектрів різної протяжності (внаслідок зменшення потужності за віддалення від центру пучка). Процедура попереднього відбору даних полягала у визначенні в кожному спектрі розташування крайнього максимуму на стоксовій межі спектра для фокальної області, з якої надходило випромінювання з найбільшим частотним розширенням. За подальшого усередненні нульові результати відкидалися, якщо такі були для низьких значень \tilde{P}_0 . Це обумовлено ймовірністю непотрапляння жодної фокальної

області, яка перетнула вихідне вікно кювети, в межі поверхні, що проектувалася на вхідну щілину спектрографа.

Теоретичний розрахунок (рис. 5.12, суцільні лінії) виконувався для імпульсів гаусової форми. Для осьового випромінювання визначався додатковий набіг фази $\Delta\varphi$ на виході з кювети для тієї частини пучка, що утворила окремий фокус. Далі розраховувалася миттєва частота випромінювання в момент перетинання фокальною областю межі повітря-толуол.

Задовільне кількісне узгодження експериментальних даних та теоретичних розрахунків досягнуте за таких параметрів:

- 1) тривалість імпульсу випромінювання на рівні $1/e - 2\tau_i = 2$ нс;
- 2) діаметр фрагменту пучка на вході в кювету, що самофокусувався, – $2a_0 = 225$ мкм (на рівні $1/e$);
- 3) максимальне перевищення потужності фрагмента пучка над критичною на вершині імпульсу – $\tilde{P}_0 = 2,35$.

Такі параметри є реальними за наявності у лазерному випромінюванні побічної повздовжньої моди та неоднорідності пучка в перетині.

Деяке незбігання теоретичних та експериментальних результатів за найменших значень \tilde{P}_0 можна пояснити тим, що в основу розрахунків покладені формули, точність яких зростає лише за умови $\tilde{P}_0 \geq 1,1$. Крім того, розрахунок виконувався для осьового випромінювання, а реєструвалося випромінювання у діапазоні $\pm(43 \div 70)$ кут. хв.

Зазначимо, що такого ж рівня узгодженості експериментальних даних та теоретичних розрахунків можна досягти і за інших параметрів у межах їх корельованої зміни, що не перевищують 20%. Зокрема, можна використати параметри: $2\tau_i = 1,7$ нс, $2a_0 = 260$ мкм, $\tilde{P}_0 = 2,65$.

Серед інших експериментальних результатів важливим є спостереження просторово-частотних спектрів антистоксової компоненти ВКР. На відміну від лазерного випромінювання спектри антистоксової компоненти з фокальних

областей містили значні частотні розширення (декілька сотень см^{-1} у стоксів бік), навіть за проектування на щілину спектрографа глибоких зрізів кювети.

Отримані експериментальні дані доводять, що при фазовій самомодуляції лазерних імпульсів наносекундного діапазону внаслідок квазістаціонарного самофокусування перехідний ефект є відповідальним за породження нових спектральних компонент, зміщених до 100 см^{-1} та переважно в стоксів бік відносно частоти збуджуючого випромінювання.

Основними доказами на користь безпосереднього зв'язку перехідного ефекту із зареєстрованими спектральними розширеннями є:

а) зменшення потужності лазера супроводжувалося зменшенням спектральних розширень та суттєвим збільшенням яскравості зображення фокальних областей на частоті випромінювання лазера;

б) зменшення довжини кювети вело до зменшення максимальних спектральних розширень;

в) у випадку проектування на вхідну щілину спектрографа глибоких зрізів кювети, спектри не містили частотних розширень лазерної компоненти;

г) задовільне кількісне узгодження експериментальних даних та теоретичних розрахунків;

д) відсутність тісної кореляції між спектральними розширеннями лазерної та антистоксової компонент.

Несиметричність розширень лазерної компоненти внаслідок перехідного ефекту пов'язана, на наш погляд, з інерційністю ефекту Кера та виснаженням лазерного випромінювання у процесі ВКР під час зворотного перетинання фокальною областю межі кювети на спаді імпульсу.

5.4. Енергетично-частотні характеристики випромінювання за перехідного ефекту в самофокуруючих середовищах.

Перехідний ефект, який виникає внаслідок фазової самомодуляції лазерних імпульсів за самофокусування у керівських рідинах, уже частково описаний у попередніх підрозділах. Важливість питання обумовлена необхідністю

подальшого розвитку наукових засад нелінійної оптики та квантової електроніки, перспективами практичного використання фазової само модуляції та самофокусування для удосконалення існуючих і створення нових технологій та приладів (наприклад, принципово нових джерел фазомодульованих надкоротких моноімпульсів когерентного випромінювання або послідовності таких імпульсів) і тим, що в типових умовах у керівських рідинах самофокусування визначає поріг та суттєво впливає на ефективність інших нелінійно-оптичних процесів.

Подальшою метою є розширення експериментальних даних стосовно перехідного ефекту в самофокуруючих середовищах та встановлення рівня їх узгодженості з наведеними теоретичними уявленнями. Зосередимо увагу на частотно-енергетичних характеристиках спектрів випромінювання, зумовленого перехідним ефектом, та їх взаємозв'язку з довжиною самофокусууючого середовища.

Для цих досліджень використовувалася схема експериментальної установки, що зображена на рис. 5.8. Типовий частотно-просторовий спектр $W_{\omega x} \{z = L\}$ для толуолу наведений на рис. 5.13. У зареєстрованому спектрі спостерігається лазерна компонента (праворуч) та перша антистоксова компонента ВКР (ліворуч). Відстань між компонентами становить 1004 см^{-1} . У лазерній компоненті виявляються спектральні розширення в декількох областях за поперечною координатою. Ці спектральні розширення зумовлені перехідним ефектом за дрібномасштабного самофокусування.



Рис. 5.13. Спектр $W_{\omega x} \{z = L\}$ випромінювання лазера й антистоксової компоненти, що зареєстрований з площини вихідної межі кювети з толуолом.

Основними енергетично-частотними характеристиками випромінювання, зумовленого перехідним ефектом, є максимальне зміщення миттєвої частоти лазерного пучка та повна енергія "перехідного" випромінювання. Максимальне зміщення миттєвої частоти на основі (5.17) становить (в см^{-1}):

$$\Delta\nu_{\text{пер}} = \Delta\omega_{\text{пер}} / (2\pi c) = \frac{\omega_{0L}}{2\pi c} \gamma \tilde{P} \frac{v_{fd}}{c} = \frac{k_{vL}}{2\pi c} \gamma \tilde{P} v_{fd}. \quad (5.19)$$

Повна енергія випромінювання перехідного типу згідно (5.18) має значення:

$$W_{\text{пер}} = \tilde{P} P_{cr} \frac{\ell_f}{v_{fd}}. \quad (5.20)$$

Спектральну густину енергії випромінювання, яке виникає внаслідок перехідного ефекту, можна оцінити, виходячи зі співвідношення:

$$W_{\text{пер}}^{(\nu)} = \frac{W_{\text{пер}}}{\Delta\nu_{\text{пер}}}. \quad (5.21)$$

Підстановка (5.19) та (5.20) в (5.21) веде до виразу:

$$W_{\text{пер}}^{(\nu)} = \frac{2\pi c P_{cr} \ell_f}{k_{vL} \gamma v_{fd}^2}. \quad (5.22)$$

Важливою характеристикою, з точки зору порівняння теоретичних та експериментальних даних, є добуток енергії (5.20) на максимальне зміщення частоти (5.19)

$$W_{\text{пер}} \Delta\nu_{\text{пер}} = \frac{k_{vL} \gamma \ell_f}{2\pi c} P_{cr} \tilde{P}^2, \quad (5.23)$$

оскільки суттєво залежить від потужності \tilde{P} , але не залежить від ν_{fd} .

Для виконання обчислень за формулами (5.19), (5.20), (5.22) та (5.23) необхідно \tilde{P} , ℓ_f , ν_{fd} визначати для моменту часу, коли фокальна дистанція збігається з фізичною межею середовища. Враховувалась гаусоподібна форма імпульсу лазера: $\tilde{P} = \tilde{P}_0 \exp(-t^2 / \tau_i^2)$. Розрахунки виконані для толуолу за параметрів: $\tau_i = 2$ нс, $a_0 = 113$ мкм; $a_f = 5$ мкм; $n_{0L} = 1,49$; $\lambda_{vL} = 0,69$ мкм; $P_{cr} = 25$ кВт.

На рис. 5.14 подана теоретична залежність (5.19) максимального зміщення $\Delta\nu_{пер}$ миттєвої частоти лазерного випромінювання від довжини L середовища для різних приведених потужностей \tilde{P}_0 лазера. Точками на рис. 5.14 нанесені експериментальні дані та вказані середньоквадратичні похибки вимірів. Використовувалися кювети з толуолом різної довжини (12,5 см; 25 см; 30 см, 40 см), а лазерне випромінювання ослаблялося світлофільтрами ($1,26 P_{cr}$; $1,59 P_{cr}$; $1,81 P_{cr}$; $2,17 P_{cr}$; $2,9 P_{cr}$; $3,6 P_{cr}$). Величина зміщення миттєвої частоти збільшується зі збільшенням L та \tilde{P}_0 , оскільки за збільшення цих параметрів зростає ν_{fd} .

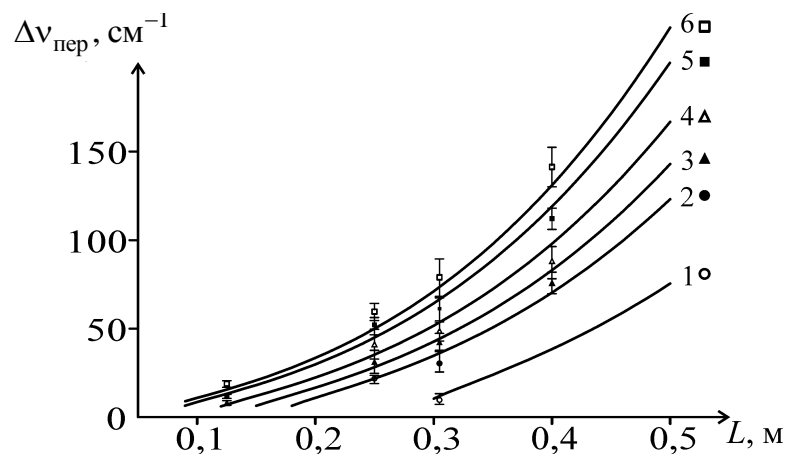


Рис. 5.14. Теоретичні й експериментальні залежності зміщення частоти $\Delta\nu_{пер}$ від довжини L кювети з толуолом для різних потужностей \tilde{P}_0 : 1 – $\tilde{P}_0 = 1,26$; 2 – $\tilde{P}_0 = 1,59$; 3 – $\tilde{P}_0 = 1,81$; 4 – $\tilde{P}_0 = 2,17$; 5 – $\tilde{P}_0 = 2,9$; 6 – $\tilde{P}_0 = 3,6$.

Теоретична залежність (5.20) повної енергії перехідного випромінювання $W_{\text{пер}}$ від L для різних \tilde{P}_0 наведена на рис. 5.15 у логарифмічному масштабі. Величина $W_{\text{пер}}$ зменшується за збільшення L та \tilde{P}_0 , що обумовлено зменшенням часу ℓ_f / v_{fd} перетину фокальною областю вихідної межі (незважаючи на зростання \tilde{P}_0 , що мало б вести до збільшення $W_{\text{пер}}$).

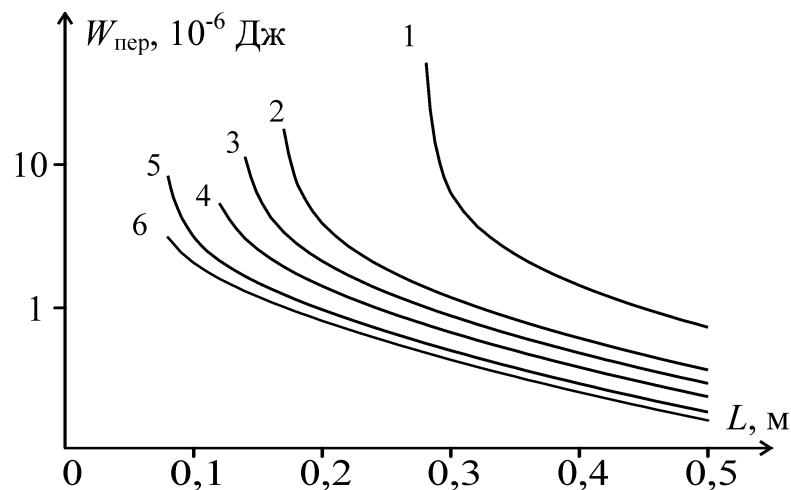


Рис. 5.15. Теоретична залежність енергії випромінювання $W_{\text{пер}}$ від довжини кювети L для різних максимальних приведених потужностей: 1 – $\tilde{P}_0=1,26$; 2 – $\tilde{P}_0=1,59$; 3 – $\tilde{P}_0=1,81$; 4 – $\tilde{P}_0=2,17$; 5 – $\tilde{P}_0=2,9$; 6 – $\tilde{P}_0=3,6$.

Сума величин сигналів із кожного елемента зображення спектра випромінювання, яке виникає внаслідок перехідного ефекту, пропорційна енергії цього випромінювання. Відповідна обробка спектрів дала змогу порівняти функціональні залежності теоретичних і експериментальних даних.

На рис. 5.16 наведена теоретична залежність $W_{\text{пер}}$ від L для потужності $\tilde{P}_0 = 3,6$ та експериментальні дані, які були отримані за тих же умов.

На рис. 5.17 подана залежність (5.22) густини енергії $W_{\text{пер}}^{(v)} \{L, \tilde{P}_0\}$

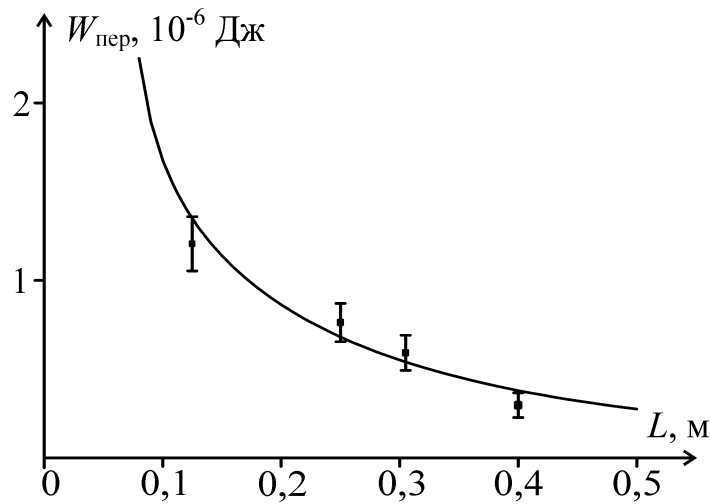


Рис. 5.16. Порівняння теоретичних та експериментальних даних залежності енергії $W_{\text{пер}}$ від довжини L кювети для $\tilde{P}_0 = 3,6$.

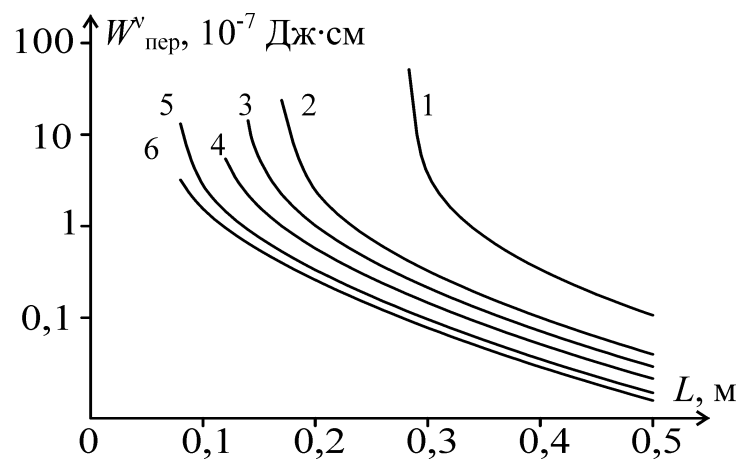


Рис. 5.17. Залежність густини енергії $W_{\text{пер}}^{(v)}$ від довжини L кювети для різних потужностей: 1 – $\tilde{P}_0 = 1,26$; 2 – $\tilde{P}_0 = 1,59$; 3 – $\tilde{P}_0 = 1,81$; 4 – $\tilde{P}_0 = 2,17$; 5 – $\tilde{P}_0 = 2,9$; 6 – $\tilde{P}_0 = 3,6$.

Величина $W_{\text{пер}}^{(v)}$ зменшується зі збільшенням L та \tilde{P}_0 , оскільки зростає v_{fd} . Густина енергії $W_{\text{пер}}^{(v)} \propto v_{fd}^{-2}$ і змінюється швидше за повну енергію $W_{\text{пер}} \propto v_{fd}^{-1}$.

На рис. 5.18 наведена теоретична залежність $W_{\text{пер}}^{(v)}$ для $\tilde{P}_0 = 3,6$ та експериментальні дані, отримані за тих же умов, що і теоретична крива.

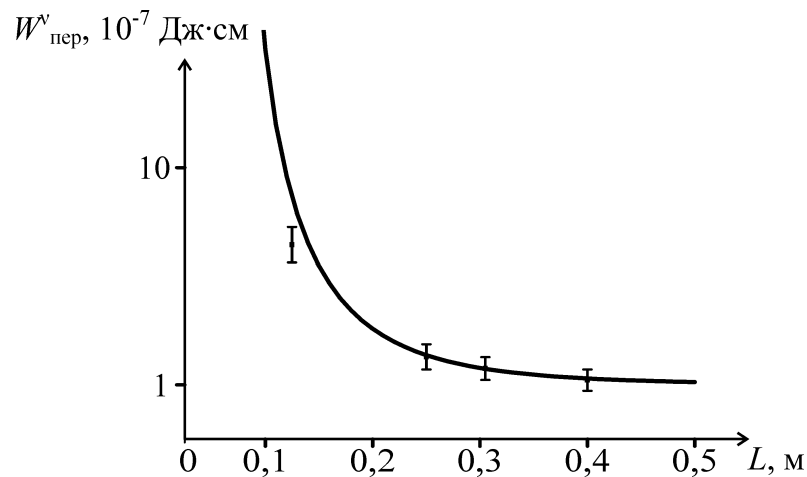


Рис. 5.18. Порівняння теоретичної та експериментальної залежностей густини енергії $W_{\text{пер}}^v$ від довжини кювети L для $\tilde{P}_0 = 3,6$.

Аналіз формули (5.23) показує, що добуток $W_{\text{пер}}\Delta v_{\text{пер}}$ не залежить від v_{fd} . Виявляється, що

$$W_{\text{пер}}\Delta v_{\text{пер}} \sim L(a_f/a_0)^{\mu/4} \tilde{P}^2. \quad (5.24)$$

Залежність $W_{\text{пер}}\Delta v_{\text{пер}}$ від L є близькою до лінійної, оскільки множник $(a_f/a_0)^{\mu/4} \tilde{P}^2$ у (5.24) майже не змінюється зі збільшенням L . Графік залежності (5.23) з нанесеними експериментальними точками зображений на рис. 5.19.

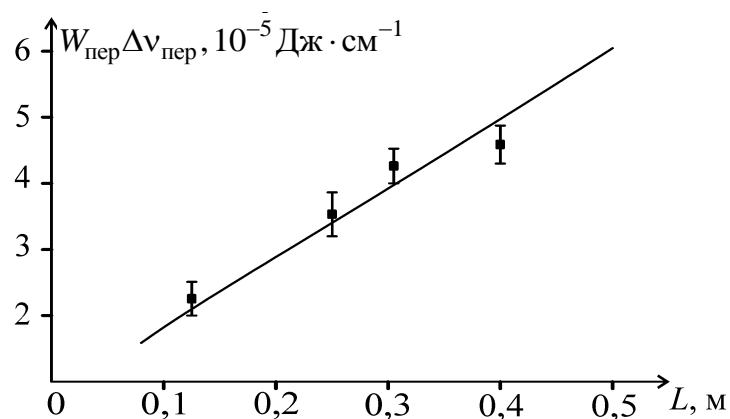


Рис. 5.19. Порівняння теоретичних та експериментальних даних для залежності добутку $W_{\text{пер}}\Delta v_{\text{пер}}$ від довжини L кювети.

Можна зробити висновки.

На основі експериментальних досліджень залежності величини спектральних розширень лазерного випромінювання, які виникають внаслідок перехідного ефекту (випромінювання перехідного типу), від довжини кювети для заданих миттєвих потужностей імпульсу встановлено, що величина спектральних розширень сягає $\sim 150 \text{ см}^{-1}$ у довгих кюветах. Ці дані задовільно узгоджуються з теоретичними розрахунками.

Експериментальні дані та теоретичні розрахунки доводять, що повна енергія випромінювання перехідного типу може становити $\sim 10^{-5}$ Дж. З'ясована залежність величини повної енергії випромінювання перехідного типу від довжини кювети для заданих приведених миттєвих потужностей.

Спектральна густина енергії випромінювання перехідного типу швидко зменшується зі зростанням довжини кювети, як і передбачено теоретично.

Визначальною величиною для частотних та енергетичних характеристик випромінювання перехідного типу є швидкість фокальної області.

Експериментально встановлено, що добуток енергії випромінювання перехідного типу на величину спектрального розширення пропорційний довжині кювети. Це переконливо доводить достовірність розробленої фізичної моделі явища.

5.5. Формування надкоротких оптичних імпульсів унаслідок перехідного ефекту на межі самофокусуєчого середовища

В експериментальній оптиці генератори надкоротких імпульсів когерентного випромінювання посідають чільне місце, оскільки дають можливість прямих досліджень швидкоплинних процесів, вивчення нестационарних явищ у нелінійній оптиці, безпосереднього визначення сталих часу релаксації багатоатомарних систем у молекулярній фотофізиці, фотохімії, фотобіології. Необхідно зауважити, що мова йде насамперед про колімовані пучки з високою просторовою когерентністю, а отже, й направленістю, які можна фокусувати в об'ємі з розмірами порядку довжини хвилі.

Проблема створення генераторів надкоротких імпульсів когерентного випромінювання може вирішуватися багатьма шляхами, приміром, через використання пікосекундних лазерів із подальшою компресією імпульсів [146], у процесі генерації вищих стоксових [161] чи антистоксових компонент ВКР тощо. Кожен із методів має певні недоліки та складності реалізації, а тому актуальним залишається пошук нових фізичних підходів до вирішення поставленої задачі.

Одним із шляхів вирішення проблеми є використання перехідного ефекту на межі самофокусуєчого середовища. Розглянемо тривалість і амплітуду надкоротких імпульсів або цугу таких імпульсів, що утворюються на основі перехідного ефекту за випадку амплітудно модульованої накачки.

Унаслідок збільшення показника заломлення у самофокусуєчому середовищі відбувається затримка фази лазерного випромінювання. Вона залежить від потужності P_L лазерного випромінювання, а отже, часу t та координати z . Затримки фази $\Delta\varphi\{t, z = L\}$ на виході із середовища довжиною L описується (5.7), де вважається, що самофокусуєче середовище розташоване на відріжку $z = 0 \div L$, а пучок на вході є колімованим.

Для часової залежності $\Delta\varphi\{t\}$ вирішальне значення має рух фокальної точки внаслідок зміни $P_L\{t\}$, оскільки від $P_L\{t\}$ залежить фокальна дистанція z_{fd} , довжина ℓ_f фокальної області, швидкість зміни v_{fd} фокальної дистанції. Найшвидші перепади $\Delta\varphi\{t\}$ реалізуються протягом перетину фокальною точкою межі самофокусуєчого середовища, що власне й отримало назву перехідного ефекту.

На рис. 5.20 подана залежність затримки фази $\Delta\varphi\{t, z = L\}$ для амплітудно-модульованого лазерного випромінювання, заданого у вигляді осциляцій, що описуються виразом

$$\tilde{P}\{t\} = \tilde{P}_0 \left(1 - 2\kappa \sin^2 \frac{\pi t}{T}\right) \quad (5.25)$$

з коефіцієнтом амплітудної модуляції $\kappa = 0,2$, періодом модуляції $T = 2$ нс та максимальним значенням приведеної миттєвої потужності $\tilde{P}_0 = 1,7$. Інші параметри становили: $L = 0,3$ м; $n_{0L} = 1,49052$; $\lambda_{vL} = 0,6943$ мкм; $a_0 = 113$ мкм; $a_f = 5$ мкм. У моменти часу, коли $\tilde{P} = 1,23$ і фокальна область перетинає межу середовища, реалізуються найшвидші зміни $\Delta\varphi\{t\}$, яким на рис. 5.20 відповідають майже вертикальні відрізки кривих.

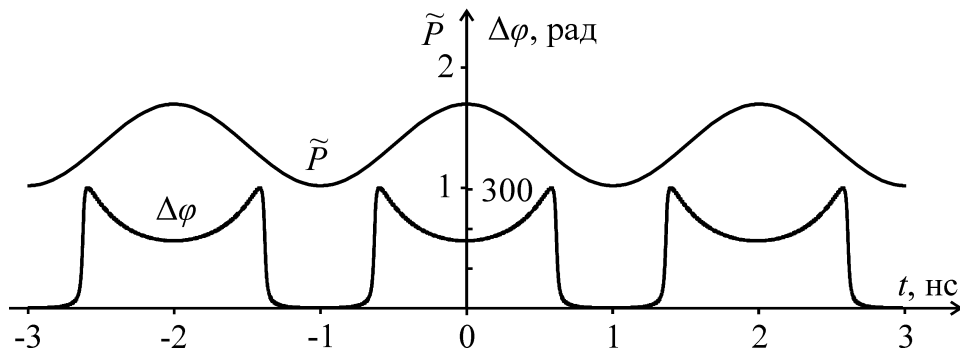


Рис. 5.20. Часова залежність потужності випромінювання \tilde{P} та затримки фази $\Delta\varphi$: $\kappa = 0,2$; $L = 0,3$ м; $T = 2$ нс; $\tilde{P}_0 = 1,7$.

Фазова самомодуляція випромінювання веде до відповідної частотної модуляції, а отже, до розширення спектра. Амплітуди E_j членів ряду Фур'є для електричного поля E_L випромінювання на виході із середовища з точністю до постійного коефіцієнта пропорційності η між E_L та $\sqrt{\tilde{P}}$ можна розрахувати, з використанням відомого виразу для періодичних функцій:

$$E_j = \eta \frac{1}{T} \int_{-T/2}^{T/2} \sqrt{\tilde{P}(t)} \exp[-i(\omega_{0L}t - \Delta\varphi)] \exp[ij\Omega t] dt, \quad (5.26)$$

де ω_{0L} – циклічна частота випромінювання на вході в середовище; i – уявна одиниця; $j = -\infty \div \infty$ – ціле число (номер гармоніки); $\Omega = 2\pi/T$ – циклічна частота амплітудної модуляції.

Для періоду $T = 2$ нс частота амплітудної модуляції в обернених сантиметрах становить $\Omega/(2\pi c) = 1/(cT) = 1/60 \text{ см}^{-1}$, де c – швидкість світла. Тож частоті, приміром, рубінового лазера $\omega_{0L}/(2\pi c) = 14403 \text{ см}^{-1}$ відповідає гармоніка з номером $j_0 = \omega_{0L}/\Omega = 864180$. За значного віддалення j від цього значення, а тим паче, для від’ємних j амплітуди E_j згідно леми осциляцій прямують до нуля. Крім цього, внаслідок інерційності самофокусування розширення спектра лазера на практиці реалізується переважно в стоксовий бік, тому амплітуди E_j розраховувалися лише в діапазоні $0 \ll j < j_0$.

На рис. 5.21 подано стоксовий фрагмент спектра для $|E_j|^2$ на виході середовища за тих же умов, для яких розраховувалася $\Delta\varphi$ на рис. 5.20. Частота $\Delta\nu$ в см^{-1} пов’язана з j співвідношенням: $\Delta\nu = \Delta j \Omega / (2\pi c)$, де $\Delta j = j - j_0$. Зображений спектр формується на ділянці руху фокальної точки поблизу межі середовища, де слід очікувати формування надкоротких імпульсів. Останній пік у спектрі, який позначений сірим кольором на рис. 5.21, утворюється безпосередньо у момент перетину фокальною точкою межі середовища. Максимальний стоксовий зсув становить $\Delta\nu_s = -58,3 \text{ см}^{-1}$.

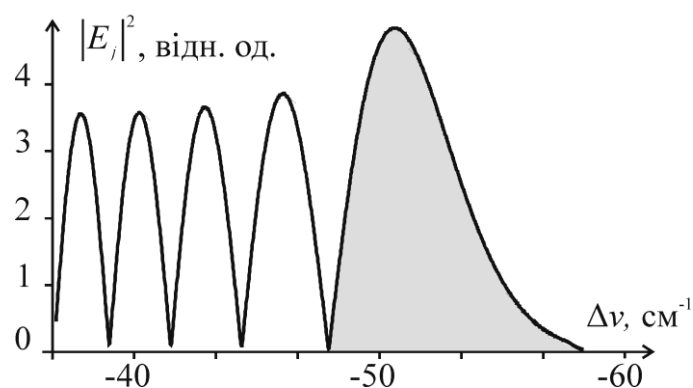


Рис. 5.21. Стоксовий фрагмент спектра випромінювання на виході з середовища: $\kappa = 0,2$; $L = 0,3$ м; $T = 2$ нс; $\tilde{P}_0 = 1,7$. Максимальний стоксовий зсув становить $\Delta\nu_s = -58,3 \text{ см}^{-1}$.

За допомогою оптичних фільтрів, спектральних приладів або оптичної системи збору випромінювання з деякої ділянки траси фокальної точки можна виділити фрагменти спектра та „відновити” імпульс, але уже із заданим спектральним складом. Потужність $\tilde{P}_{\text{відн.}}\{t\}$ випромінювання з таким спектральним складом після зворотного перетворення Фур’є має амплітудно-часові характеристики, які можна визначити, просумувавши члени ряду Фур’є:

$$\tilde{P}_{\text{відн.}}\{t\} = \left| \frac{1}{\eta} \sum_j E_j \exp[-ij\Omega t] \right|^2 = \left| \frac{1}{\eta} \sum_{\Delta j} E_j \exp[-i\Delta j\Omega t] \right|^2. \quad (5.27)$$

Результати розрахунків для амплітуди $\tilde{P}_{0, \text{відн.}}$ імпульсів та їх тривалості $\tau_{\text{відн.}}$ на піввисоті подані на рис. 5.22 як залежність від $\Delta\nu = (j - j_0)\Omega / (2\pi c)$. Використаний різний підхід до виділення ділянки спектра „відновленого” імпульсу $\tilde{P}_{\text{відн.}}\{t\}$: рис. 5.22, а – виділення спектральних фрагментів $(\Delta\nu - \delta\nu / 2) \div (\Delta\nu + \delta\nu / 2)$ із фіксованою шириною $\delta\nu = 6 \text{ см}^{-1}$ і розташованих в околі $\Delta\nu$; рис. 5.22, б – поступове нарощування ширини $\delta\nu = |\Delta\nu - \Delta\nu_s|$ виділеної ділянки, коли одна з меж $\Delta\nu_s$ є крайньою стоксовою компонентою спектра (максимальний стоксовий зсув), а інша зміщується до значення $\Delta\nu$, вказаного на осі абсцис. Розрахунки виконувалися для умов, що відповідають спектру $|E_j|^2$ на рис. 5.21 з $\Delta\nu_s = -58,3 \text{ см}^{-1}$.

Аналіз рис. 5.22 вказує на суттєві переваги другого варіанту виділення спектральних ділянок для формування надкоротких імпульсів. У першому випадку досягається максимальне значення амплітуди $\text{Max}[\tilde{P}_{0, \text{відн.}}] \approx 0,23$ (за $\Delta\nu = -49,8 \text{ см}^{-1}$) і мінімальна тривалість $\text{Min}[\tau_{\text{відн.}}] \approx 18 \text{ пс}$ (за $\Delta\nu = -50,3 \text{ см}^{-1}$) на різних частотах $\Delta\nu$. У другому випадку маємо $\text{Max}[\tilde{P}_{0, \text{відн.}}] \approx 1,98$ (за $\Delta\nu = -47,9 \text{ см}^{-1}$), що перевищує потужність $\tilde{P} = 1,23$, коли фокальна точка

розташована на межі середовища, і навіть максимальну миттєву потужність $\tilde{P}_0 = 1,7$ вхідного випромінювання. Тривалість імпульсу у другому варіанті становить $\text{Min}[\tau_{\text{відн.}}] \approx 4,53$ пс (теж на частоті $\Delta\nu = -47,9$ см^{-1}).

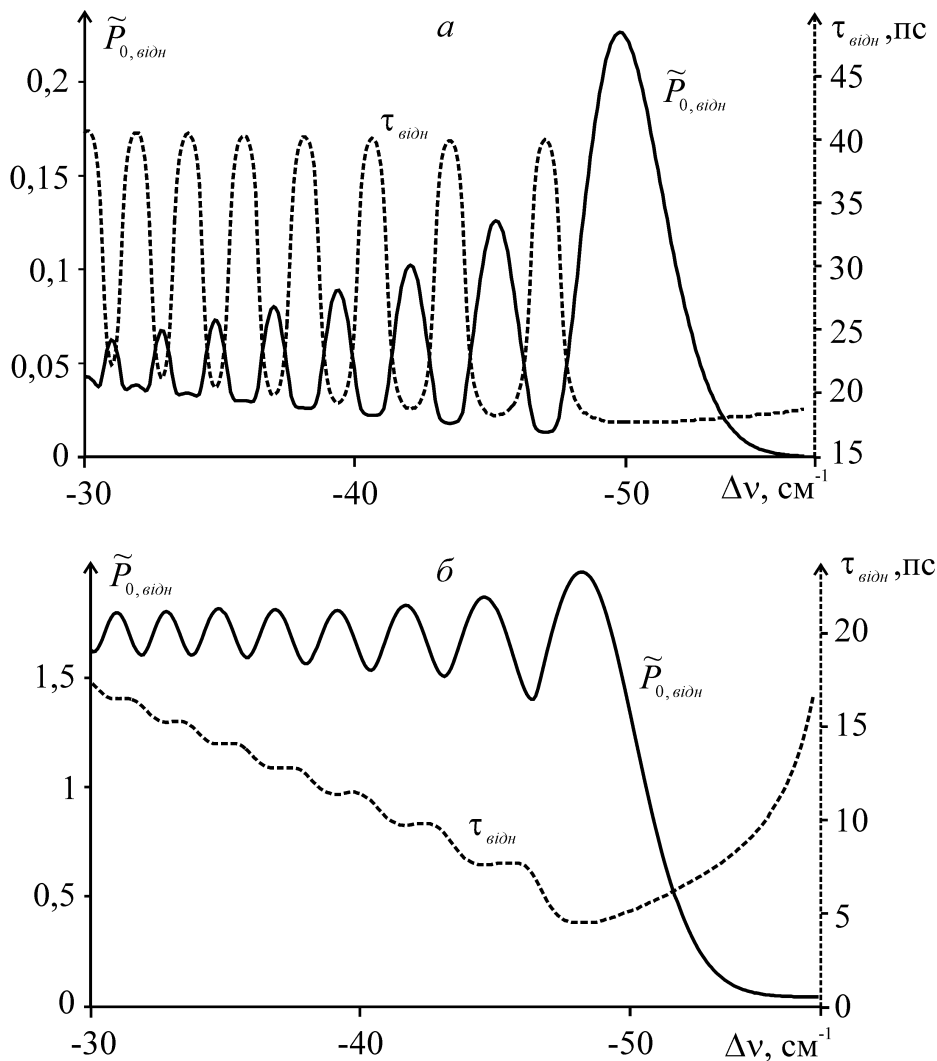


Рис. 5.22. Залежність амплітуди $\tilde{P}_{0, \text{відн}}$ і тривалості $\tau_{\text{відн}}$ імпульсів від виділеного фрагменту спектра $(\Delta\nu - \delta\nu/2) \div (\Delta\nu + \delta\nu/2)$ з фіксованою шириною $\delta\nu = 6$ см^{-1} (а) та від розташування межі $\Delta\nu$ виділеної ділянки $\Delta\nu_s \div \Delta\nu$ з шириною $\delta\nu = |\Delta\nu - \Delta\nu_s|$ (б): $\kappa = 0,2$; $L = 0,3$ м; $T = 2$ нс; $\tilde{P}_0 = 1,7$; $\Delta\nu_s = -58,3$ см^{-1} .

Указане значення $\Delta\nu = -47,9 \text{ см}^{-1}$ у другому варіанті (рис. 5.22,б) відповідає виділеній ділянці спектра від $-47,9 \text{ см}^{-1}$ до $-58,3 \text{ см}^{-1}$, тобто, останньому піку зі стоксового боку на спектрі поданому на рис. 5.21. Цей пік на рис. 5.21 позначений сірим кольором.

Додаткові результати розрахунків показують, що максимальна амплітуда відновлених імпульсів з останнього піку зі стоксового боку спектра випромінювання залишається постійною на рівні $\text{Max}[\tilde{P}_{0, \text{відн.}}] \approx 1,98$ для коефіцієнта амплітудної модуляції κ в межах $0,15 \div 0,3$. У той же час $\text{Min}[\tau_{\text{відн.}}]$ помітно зменшується зі зростанням κ (рис. 5.23). Так, якщо для $\kappa = 0,15$ тривалість $\text{Min}[\tau_{\text{відн.}}]$ становить $10,0 \text{ пс}$, то для $\kappa = 0,3$ маємо $\text{Min}[\tau_{\text{відн.}}] = 2,77 \text{ пс}$.

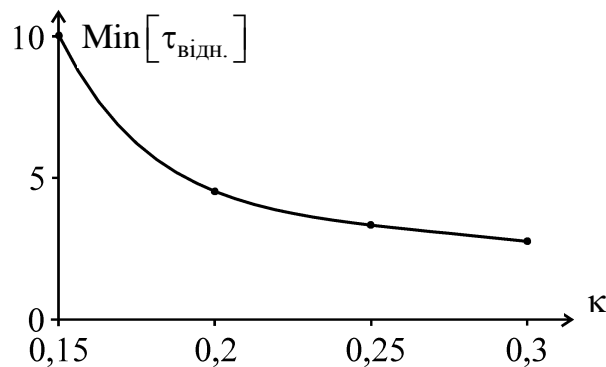


Рис. 5.23. Залежність мінімальної тривалості $\text{Min}[\tau_{\text{відн.}}]$ імпульсів випромінювання перехідного типу від коефіцієнта κ модуляції: $L = 0,3 \text{ м}$; $T = 2 \text{ нс}$; $\tilde{P}_0 = 1,7$.

Імпульси, які формуються на межі керівського середовища внаслідок перехідного ефекту за виділення останньому піку зі стоксового боку спектра, мають наближено гаусову форму огинаючої (рис. 5.24). Деяка відмінність спостерігається лише на віддалених “крилах” зформованого імпульсу.

Зауважимо на тому, що центральна частота $\Delta v_{\text{ц}}$ імпульсів і їх спектральна напівширина $\delta v_{\text{имп}}$ суттєво залежить від κ (рис. 5.25). Спостерігається збільшення $\Delta v_{\text{ц}}$ та $\delta v_{\text{имп}}$ зі зростанням коефіцієнта модуляції. Проте відношення $\Delta v_{\text{ц}}/\delta v_{\text{имп}}$ центральної частоти до спектральної напівширини відновлених імпульсів слабо залежить від κ .

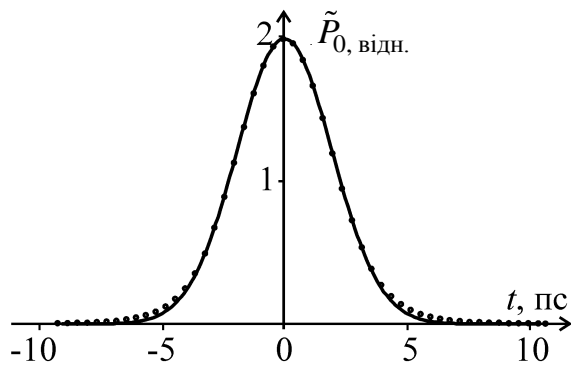


Рис. 5.24. Розрахована (•) огибаюча імпульсу та її апроксимація (—) гаусовою функцією ($\kappa = 0,2$; $L = 0,3$ м; $T = 2$ нс; $\tilde{P}_0 = 1,7$).

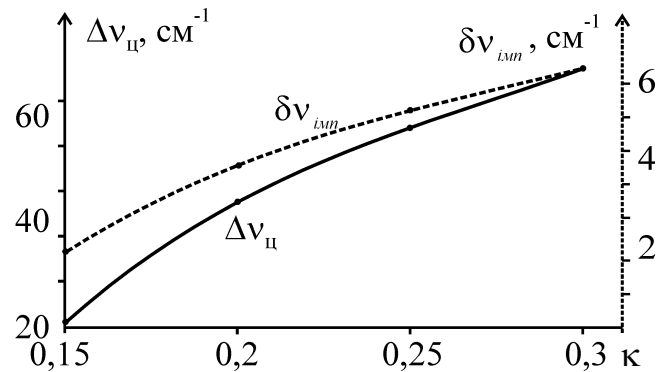


Рис. 5.25. Розраховані (•) та апроксимовані (—) залежності центральної частоти $\Delta v_{\text{ц}}$ і напівширини $\delta v_{\text{имп}}$ спектра імпульсів від κ .

Загалом, результати моделювання перехідного ефекту у випадку амплітудно модульованих імпульсів вказують на те, що на вихідній межі самофокусуємого середовища формуються надкороткі імпульси з тривалістю ~ 1 пс і амплітудою, яка перевищує потужність вхідного випромінювання.

Як із точки зору параметрів імпульсів, так і практичної реалізації методу оптимальним є виділення частини спектра фазово модульованого випромінювання, що відповідає останньому піку зі стоксового боку спектра. Оскільки ця частина спектра формується в момент перетину фокальною областю межі середовища, то її можна виділити, використавши оптичну систему збору випромінювання, що сфокусована на межу середовища.

Підбором періоду амплітудної модуляції, коефіцієнта модуляції, довжини середовища, максимальної потужності вхідного випромінювання, вхідного діаметра пучка, самофокусуємого середовища можна в широких межах змінювати тривалість, частоту та період повторення імпульсів.

Фізичним обмеженням мінімальної тривалості імпульсів є інерційність ефектів, що ведуть до самофокусування. Для оптичного ефекту Кера у рідинах стала часу не перевищує 1 пс [1].

5.6. Фазова самомодуляція в шаруватих структурах.

Уже зазначалося, що поєднання можливостей ВКР, як ефективного методу переналаштування частоти лазерного випромінювання, та можливостей самофокусування, як методу просторового сканування потужними згустками електромагнітного поля з різними швидкостями, дозволяє трансформувати початковий імпульс лазерного випромінювання у довільну послідовність субімпульсів із заданими наперед для кожного субімпульсу тривалістю та частотою. Для цього потрібно лише пропустити імпульс випромінювання лазера через зразок, складений з поперечних шарів різних ВКР-активних самофокусуємих матеріалів заданої товщини. Проте на шляху практичної реалізації такої ідеї постають важливі фізичні питання стосовно фазової модуляції лазерного випромінювання. Проаналізуємо саме це фізичне питання.

За основу візьмемо випадок тонкого непоглинаючого шару, який знаходиться в самофокусуємому середовищі. Припустимо, що цей шар не має наведеної світловим полем зміни Δn , а його лінійний показник заломлення збігається з показником n_{0L} заломлення ВКР-активного середовища. На практиці таку ситуацію можна реалізувати за допомогою кювети з нелінійною самофокусуємою речовиною, в якій знаходиться тонка оптична перегородка зі скла. За таких умов ефект самофокусування в керівському середовищі проходить без втрат у неактивному шарі.

Для розрахунку фазового набігу $\Delta\phi$ гаусового імпульсу з напівшириною імпульсу τ_i на рівні e^{-1} та з приведеною потужністю $\tilde{P}\{t\}$ використаємо (5.7).

У даному випадку (5.7) трансформується у вираз:

$$\Delta\varphi\{t, z = L\} \approx k_{vL} \tilde{P}\{t\} \frac{(1,22\lambda_{vL})^2}{16n_{0L}} \left(\int_0^{L_\ell} \frac{1}{a_z^2} dz + \int_{L_\ell+\ell}^L \frac{1}{a_z^2} dz \right), \quad (5.28)$$

де L_ℓ – відстань між вхідним вікном кювети і тонким шаром лінійно-оптичної речовини товщиною ℓ . Для розрахунку за формулою (5.28) припускається прямолінійність поширення променів крізь тонкий шар неактивного середовища, а отже, величина ℓ повинна бути сумірною з геометричними розмірами фокальної області ℓ_f , яка, наприклад, для початкового радіуса вхідного променя $a_0 = 113$ мкм, мінімального радіусу променя у фокальній області $a_f = 5$ мкм і довжини хвилі $\lambda_{0L} = 0,69$ мкм, змінюється від 14 мм до 0,7 мм, якщо \tilde{P} пробігає значення $\tilde{P} = 1,3 \div 3,6$.

Фазова модуляція веде до відповідної частотної модуляції. Миттєва відстройка частоти (в обернених сантиметрах) визначається виразом (5.8).

У розд. 5.2 показано, що на межі середовище-повітря під час її перетинання згустком поляризації виникає випромінювання перехідного типу на частоті, яка зміщена відносно частоти збуджуючого лазерного випромінювання. Проте „перехідне” випромінювання має незначну ($\sim 0,5\%$) спектральну густину в порівнянні зі спектральною густиною вхідного імпульсу. Для підвищення спектральної густини перехідного випромінювання необхідно, щоб воно відбувалось в моменти часу, які відповідають якомога більшій миттєвій потужності імпульсу лазера. Отже, прошарок з іншої речовини повинен знаходитись поблизу точки повороту фокальної області для збільшення „перекачки” енергії лазерного випромінювання у перехідне.

Фазовий зсув та миттєві частоти, що виникають під час самомодуляції лазерного імпульсу в керівській рідині (толуол) довжиною $L = 30$ см, в якій поблизу точки повороту фокальної області ($\text{Min}[z_{fd}] \approx 6$ см) знаходиться тонкий шар неактивної речовини ($\ell = 3$ мм, $L_\ell = 7$ см), подані на рис. 5.26 і

рис. 5.27. Додатковий набіг фази має два локальних мінімуми, які відповідають моменту проходження фокальної області крізь тонкий шар неактивного середовища. Зі збільшенням товщини прошарку ℓ та відстані L_ℓ ширина та глибина мінімумів збільшується. Інші частини залежності на рис. 5.26 мають ідентичний вигляд до додаткового фазового набігу, що відбувається при самофокусуванні в однорідному (без прошарку) середовищі (рис. 5.2).

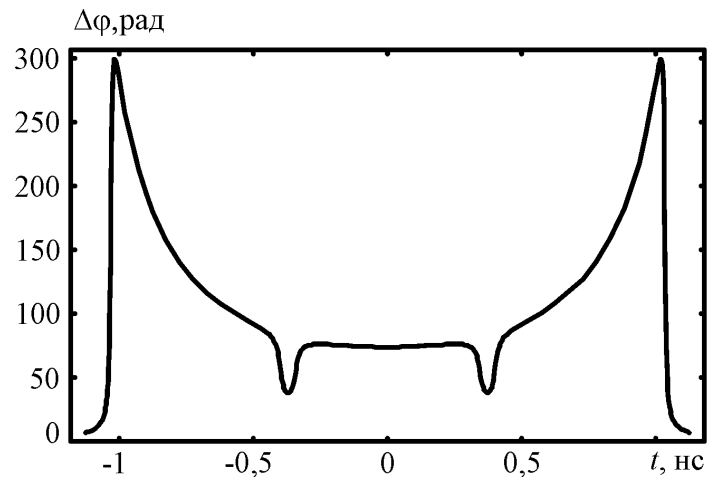


Рис. 5.26. Фазовий набіг у випадку розмежування середовища непоглинаючим прошарком ($L=30$ см; $L_\ell=7$ см; $\ell=3$ мм; $\tau_i=1$ нс; $\tilde{P}_0=3,6$).

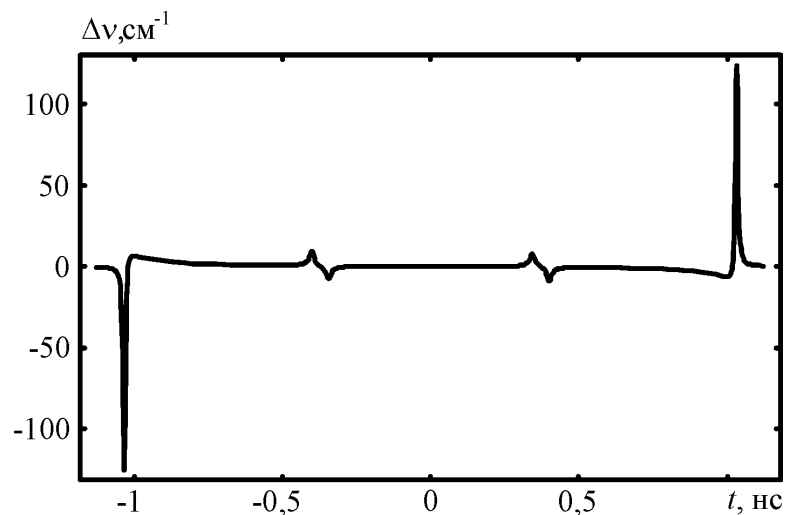


Рис. 5.27. Зміщення миттєвої частоти на виході з середовища, розділеного тонким прозорим шаром ($L=30$ см; $L_\ell=7$ см; $\ell=3$ мм; $\tau_i=1$ нс; $\tilde{P}_0=3,6$).

За рахунок шаруватості активної речовини з'являються додаткові миттєві частоти. На рис .5.27 вони мають асиметричну структуру, обумовлену різною швидкістю фокальної області на межах шару. Енергія з ділянок спектра поблизу центральної компоненти, які пов'язані із самомодуляцією лазерного імпульсу в об'ємі середовищі, переходить в частотні компоненти „перехідного” випромінювання за рахунок близького знаходження шару до точки повороту $\text{Min}[z_{fd}]$.

Розглянемо інший крайній випадок. Нехай в самофокусуєчому середовищі знаходиться нескінченно тонка перегородка з певним коефіцієнтом втрат ξ . За проходження променів у процесі самофокусування крізь перегородку імпульс лазера втрачає частку енергії $\xi = 1 - (\tilde{P}_\ell / \tilde{P})$, де $\tilde{P}\{t\}$ і $\tilde{P}_\ell\{t\}$ – приведені потужності випромінювання до та після перегородки. Необхідно враховувати вплив втрати енергії імпульсу на процес самофокусування.

Внаслідок того, що при квазістаціонарному самофокуванні лазерний промінь проходить крізь перегородку з різними (залежно від часу) кутами сходження та витрачає частину енергії, пучок фокусується в іншому місці, ніж у випадку відсутності поглинаючої перегородки. За нашими розрахунками залежність квадрату радіуса пучка a_z^2 від координати z , з урахуванням ненульової похідної $(da_z/dz)|_{z=L_\ell}$ на перегородці можна наближено виразити формулою:

$$a_z = \sqrt{a_\ell^2 \left[\left(1 + \frac{da_z}{dz} \Big|_{z=L_\ell} \cdot \frac{z}{a_\ell} \right)^2 - \frac{z^2}{\gamma_\ell^2 a_\ell^4} \right]^{\mu_\ell/2} + a_f^2}, \quad (5.29)$$

де $a_\ell \equiv a_z\{z=L_\ell\}$ – радіус пучка на перегородці, a_f – мінімальний радіус пучка в центрі фокальної області. В (5.29) параметри γ_ℓ і μ_ℓ залежать від миттєвої потужності $\tilde{P}_\ell\{t\}$:

$$\gamma_\ell = \frac{0,38k_{0L}}{\sqrt{(\sqrt{\tilde{P}_\ell} - 0,77)^2 - 0,053}}, \quad (5.30)$$

$$\mu_\ell = 1 + \frac{1}{\tilde{P}_\ell} + \frac{\pi}{\sqrt{\tilde{P}_\ell}}. \quad (5.31)$$

На рис. 5.28 і рис. 5.29 наведені залежності фазового набігу і миттєвої частоти, якщо перегородка знаходиться на відстані $L_\ell = 7$ см від початку кювети та має коефіцієнт втрат $\xi = 0,73$.

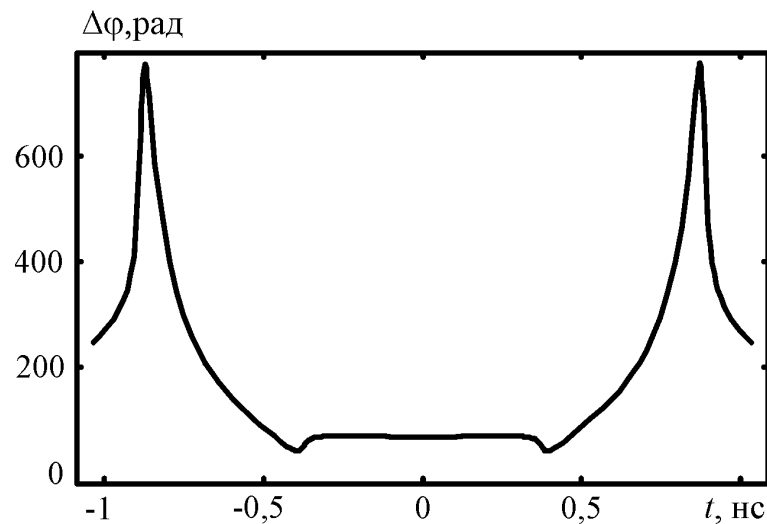


Рис. 5.28. Фазовий набіг на виході з середовища для випадку тонкої поглинаючої перегородки ($L = 30$ см; $L_\ell = 7$ см; $\tau_i = 1$ нс; $\tilde{P}_0 = 3,6$; $\xi = 0,73$; $\ell = 0$).

Графік для фазової затримки має два виразні максимуми та мінімуми (мінімум, що відповідає $t = 0$ практично непомітний). Кут $(da_z/dz)|_{z=L_\ell}$, з яким промінь проходить крізь перегородку змінюється у часі та визначає подальший його хід. Коли фокальна область знаходиться поблизу перегородки, кут збіжності або розбіжності $|(da_z/dz)|_{z=L_\ell}$ на ній, достатньо великий, що викликає швидке розходження пучка після перегородки. Це обумовлює мінімуми на графіку фазового набігу, асиметрія яких пов'язана з поглинанням

енергії лазерного імпульсу на перегородці. Зменшення кута $(da_z/dz)|_{z=L_\ell}$ на перегородці веде до послаблення самофокусування променя, а отже, до збільшення геометричних розмірів фокальної області, що пояснює наявність максимумів на графіку фазового набігу, темп зростання яких більший, ніж у випадку відсутності поглинаючої перегородки.

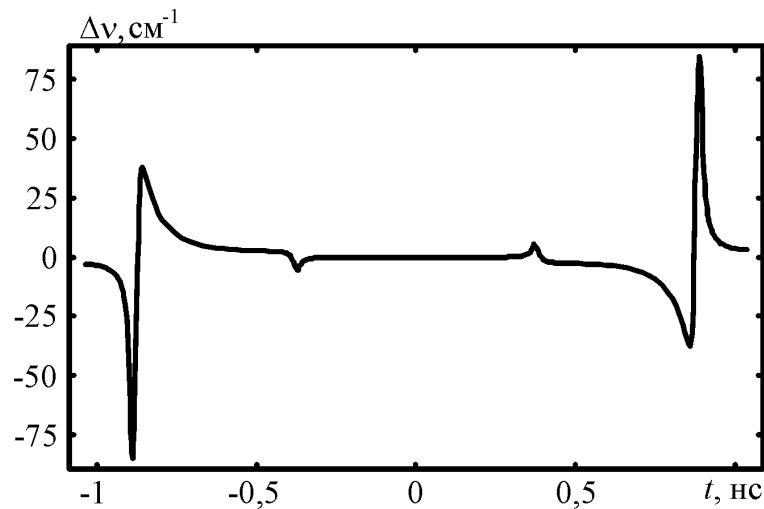


Рис. 5.29. Зміщення миттєвої частоти лазерного випромінювання на виході кювети для випадку розмежування середовища тонкою поглинаючою перегородкою ($L=30$ см; $L_\ell=7$ см; $\tau_i=1$ нс; $\tilde{P}_0=3,6$; $\xi=0,73$; $\ell=0$).

Велика швидкість фокальної області за перегородкою веде до сильної частотної самомодуляції в об'ємі середовища. Це дає більші частотні зсуви ($\mp 45\text{см}^{-1}$), порівняно з випадком відсутності перегородки ($\mp 10\text{см}^{-1}$). Внаслідок того, що $\tilde{P}_\ell(t) < \tilde{P}(t)$, частотні зсуви, які відповідають перехідному випромінюванню на межі середовище-вакуум, мають меншу величину ($\pm 95\text{см}^{-1}$), на відміну від умов, коли перегородка відсутня ($\pm 140\text{см}^{-1}$). На самій перегородці виникають незначні частотні зсуви $\pm \lambda 10\text{см}^{-1}$.

Самофокусування лазерного променя за умови існування в самофокусуєчому середовищі локальних неоднорідностей може бути описане на основі поєднанням двох вище розглянутих моделей.

Прикладом може бути локальна неоднорідність типу “бульбашки”, що у найпростішому випадку знаходиться на вісі траси лазерного пучка та має розміри, сумірні з геометричними розмірами фокальної області, але менші, ніж радіус пучка на вході в середовище. Пучок зазнає втрат під час проходження крізь неоднорідність. Втрати тим більші, чим ближче до неоднорідності знаходиться фокальна область. Наступить момент, коли локальна неоднорідність опиниться в околі фокальної області. Тоді фокальна область на короткий відрізок часу зникає.

Для узагальнення вкажемо наступне.

Випромінювання перехідного типу внаслідок фазової самомодуляції породжується на оптично-однорідних прошарках, що містяться в об’ємі самофокусуєчого середовища, аналогічно тому, як це випромінювання виникає на фізичній межі середовища. Загалом, частотні зсуви „перехідного” випромінювання з прошарків виявляються суттєво меншими частотних зсувів перехідного випромінювання з фізичної межі середовища. Проте прослідкується загальна тенденція до зростання енергії випромінювання приблизно обернено пропорційно величині частотного зсуву. Враховуючи, що кількість прошарків може бути значною, вірним буде стверджувати, що введення прошарків значно полегшує експериментальне виявлення „перехідного” випромінювання. Якоюсь мірою напрошується аналогія з перехідним випромінюванням в структурах типу „пінопласт”, які використовуються для збільшення потужностей перехідного та черенковського випромінювання у відповідних лічильниках частинок.

Фізичний механізм виникнення „перехідного” випромінювання на прозорих несамофокусуєчих шарах встановленої товщини та на нескінченно тонких поглинаючих шарах відрізняються лише в деталях. У першому випадку випромінювання породжується внаслідок виходу та входу фокальної області в самофокусуєче середовище, що розділене прозорим несамофокусуєчим прошарком. У другому випадку – внаслідок зміни довжини фокальної області за перетину поглинаючого нескінченно тонкого шару. В загальному випадку на

практиці оптично-однорідні прошарки поєднують властивості обох типів розглянутих структур, що ускладнює розрахунок спектрів. Проте інтерпретація спектрів з урахуванням отриманих результатів не викликає ускладнень.

Окрему групу неоднорідностей, що ведуть до генерації інтенсивного перехідного випромінювання внаслідок фазової модуляції складають неоднорідності типу розсіюючої або поглинаючої бульбашки з розмірами ~ 10 мкм, близькими до діаметра фокальної області. Такі неоднорідності можуть виникати природним шляхом. Незважаючи на відносно маленькі розміри неоднорідностей (це забезпечує достатню оптичну якість середовища, за якого можливий процес самофокусування) їх роль у генерації випромінювання перехідного типу виявляється дуже суттєвою. Адже короточасні зриви утворення фокальної області аналогічні перетину фокальної області межі середовища.

5.7. Висновки до Розділу 5.

У розділі наведені результати досліджень фазової модуляції лазерного випромінювання у самофокусуєчих середовищах: розвинено теорію квазістаціонарної фазової самомодуляції лазерних імпульсів у керівських рідинах; теоретично аналізовано спектри випромінювання перехідного типу на межі середовища в умовах фазової самомодуляції світлового імпульсу за самофокусування; викладено експериментальні дані стосовно перехідного ефекту на межі середовища за фазової самомодуляції лазерних імпульсів наносекундного діапазону тривалостей; досліджено енергетично-частотні характеристики випромінювання за перехідного ефекту в самофокусуєчих середовищах; показано можливість формування надкоротких оптичних імпульсів унаслідок перехідного ефекту на межі самофокусуєчого середовища; здійснено кількісний аналіз процесу фазової самомодуляції в шаруватих структурах.

Експериментально виявлено, що за фазової самомодуляції лазерних імпульсів наносекундного діапазону внаслідок квазістаціонарного

самофокусування саме перехідний ефект є відповідальним за породження нових спектральних компонент, зміщених до сотень обернених сантиметрів та переважно в стоксів бік відносно частоти збуджуючого лазерного випромінювання. Перехідний ефект полягає в тому, що за перетину фокальною областю вихідної межі середовища з'являються максимально зміщені спектральні компоненти. Незважаючи на можливе суттєве частотне розширення лазерних імпульсів за самофокусування, найбільша спектральна густина енергії припадає на незміщену частоту. За використання теоретичного опису та розрахунків визначено часові та енергетичні характеристики випромінювання, що породжується внаслідок перехідного ефекту. Досягнуто задовільне узгодження з експериментальними даними.

Основні результати розділу опубліковано автором у роботах [9, 10, 12, 13, 15, 17, 18].

РОЗДІЛ 6

ВПЛИВ ФАЗОВОЇ САМОМОДУЛЯЦІЇ ЛАЗЕРНОГО ВИПРОМІНЮВАННЯ
НА СПЕКТР АНТИСТОКСОВОГО ВИМУШЕНОГО КОМБІНАЦІЙНОГО
РОЗСІЮВАННЯ

6.1. Вплив фазової самомодуляції імпульсів накачування на спектр антистоксового вимушеного комбінаційного розсіювання світла з фокальної ділянки.

Попередні наші дослідження дають розуміння загальних особливостей ВКР в умовах квазістаціонарного самофокусування імпульсів накачування. Зокрема, на основі прямих експериментальних даних доведено, що у багатьох рідинах поріг ВКР, у типових експериментальних умовах, обумовлений порогом самофокусування лазерного випромінювання. У таких випадках ВКР виникає лише в невеликих фокальних ділянках. Розміри фокальних ділянок змінюються протягом імпульсу, відповідно видозмінюється і кутова структура випромінювання параметричних компонент ВКР. Крім цього, на спектрі ВКР суттєво позначається рух фокальної ділянки. З урахуванням руху фокальної ділянки закономірності частотних розширень параметричних компонент ВКР описуються умовою амплітудно-фазового синхронізму (Розд. 4).

Все ж, недостатньо розкритим є важливе питання впливу фазової самомодуляції лазерного випромінювання на частотно-кутову структуру ВКР-випромінювання.

Наведені розрахунки й експериментальні дані стосовно фазової самомодуляції лазерного випромінювання та перехідного ефекту (Розд. 5) помітно розширюють можливості врахування впливу самофокусування на частотно-кутову структуру ВКР.

Проаналізуємо аналітично вплив швидкості фокальної області разом з фазовою самомодуляцією на формування частотно-кутової структури випромінювання антистоксової компоненти ВКР у фокальній точці, коли вона знаходиться поблизу межі середовища і зміни фази на виході з фокальної точки

є незначними. Це наближення виконується, коли кути переважного розсіювання в антистоксову компоненту ВКР забезпечують „швидкий” вихід випромінювання з фокальної точки або зміни показника заломлення після фокальної точки є незначними внаслідок „розпаду” фокальної точки, зумовленим втратами лазерного випромінювання на багатофотонні процеси, зміною заселення коливальних рівнів та генерацію вищих за першу параметричних компонент ВКР.

Джерелом випромінювання антистоксової компоненти ВКР є хвиля $P_a^{(NL)}\{t, \vec{r}\}$ нелінійної поляризації середовища. Інтенсивність антистоксової компоненти залежить як від просторово-часового (\vec{r}, t) розподілу амплітуди, так і фази цієї хвилі, оскільки необхідним є фазове узгодження з полем антистоксового випромінювання. У наближенні заданої поляризації частотно-кутова густина енергії $W_{\omega\theta}^{(a)}$ антистоксової компоненти у дальньому полі для невеликих кутів розсіяння θ (у межах 0,1 рад) визначається формулою (4.52), яка у даному випадку набуває вигляду:

$$W_{\omega\theta}^{(a)} = \frac{n_a \omega_a^4}{16\pi^3 \varepsilon_0 c^3} \left| \int_0^L dz \int_{-\infty}^{+\infty} dx \int_{-\infty}^{+\infty} dy \int_{-\infty}^{+\infty} dt \cdot P_a^{(NL)}\{t, \vec{r}\} \exp[i(\omega_a t - \vec{k}_a \vec{r})] \right|^2. \quad (6.1)$$

де \vec{k}_a – хвильовий вектора випромінювання антистоксової компоненти з модулем $k_a = n_a \omega_a / c$ на частоті ω_a , $n_a = n\{\omega_a\}$ – показник заломлення, L – довжина середовища, де існує нелінійна поляризація.

Для того, щоб виконати інтегрування в (6.1) та отримати аналітичну апроксимацію виразу (6.1), необхідно конкретизувати умови задачі та зробити певні припущення стосовно просторово-часової залежності $P_a^{(NL)}\{t, \vec{r}\}$ в умовах фазової само модуляції. Крім того, в даному випадку важливо розрізнити фокальну відстань z_{fd} від координати z_{fp} фокальної точки та швидкість v_{fd} зміни фокальної відстані від швидкості v_{fp} фокальної точки.

Вважатимемо, що без урахування ефекту фазової самомодуляції лінійно поляризоване збуджуюче лазерне випромінювання з хвильовим вектором \vec{k}_{0L} у середовищі і частотою ω_{0L} поширюється вздовж осі z . У тому ж напрямі поширюється і збуджена лазером стоксова комбінаційна компонента ВКР з хвильовим вектором \vec{k}_{0s} і частотою ω_{0s} . Ці дві хвилі породжують кубічну поляризацію середовища на антистоксовій комбінаційній частоті $\omega_{0a} = 2\omega_{0L} - \omega_{0s}$ з хвильовим вектором $\vec{k}_{p0a} = 2\vec{k}_{0L} - \vec{k}_{0s}$. Оскільки \vec{k}_{0L} і \vec{k}_{0s} мають однаковий напрямок, то вектор \vec{k}_{p0a} теж спрямований уздовж осі z і його модуль $k_{p0a} = 2k_{0L} - k_{0s}$.

Внаслідок збільшення Δn показника заломлення у самофокусуєчому середовищі відбувається затримка фази $\Delta\varphi$ лазерного випромінювання (див. (5.7)). Вона залежить від інтенсивності випромінювання, а отже, часу t і координати z :

$$\Delta\varphi\{t, z\} \approx k_{vL} \tilde{P}\{t\} \frac{(1,22\lambda_{vL})^2}{16n_{0L}} \int_0^z \frac{1}{a_z^2} dz. \quad (6.2)$$

Ця затримка фази $\Delta\varphi$ лазерного випромінювання переноситься на стоксову компоненту. Тому фазу φ_{pa} поляризації $P_a^{(NL)} = P_0^{(NL)} \exp(-i\varphi_{pa})$ середовища на антистоксовій частоті без урахування постійних членів можна наближено подати через фази лазерної (φ_L) та стоксової (φ_s) хвиль у вигляді:

$$\varphi_{pa} = 2\varphi_L - \varphi_s = 2(\omega_{0L}t - k_{0L}z - \Delta\varphi) - (\omega_{0s}t - k_{0s}z - \Delta\varphi) = \omega_{0a}t - k_{p0a}z - \Delta\varphi. \quad (6.3)$$

Найбільший вклад у випромінювання антистоксової компоненти вносить поляризація $P_a^{(NL)}$ в околі центра z_{fp} фокальної ділянки (фокальної точки), де амплітуда поляризації набуває максимального значення. Тож важливо

визначити $\Delta\varphi$ саме на цій ділянці.

На рис. 6.1 у площині осей z, t схематично показана часова залежність координати фокальної точки z_{fp} . Вважалося, що миттєва потужність лазерного імпульсу на вході у середовище змінюється за законом $P_L = P_{0L} \exp[-t^2 / \tau_i^2]$, досягаючи максимуму в момент $t = 0$.

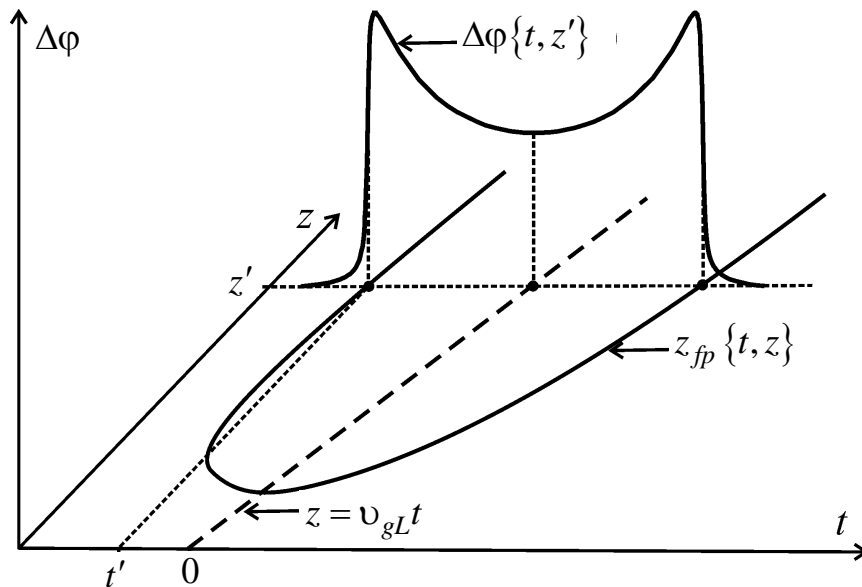


Рис. 6.1. Часова залежність координати фокальної точки $z_{fp}\{t\}$ та затримки фази $\Delta\varphi\{t, z = z'\}$ у деякій точці z' . Вказано час t' , коли фокальна точка має координату $z_{fp} = z'$ на фронті лазерного імпульсу.

Залежність $z_{fp}\{t\}$ на рис. 6.1 описується формулою, що аналогічна (3.27 та 5.2) для z_{fd} :

$$z_{fp}\{t\} = \frac{0,38k_{0L}a_0^2}{\sqrt{\left(\sqrt{\tilde{P}_0} \exp[-(t - z_{fp}/v_{gL})^2 / \tau_i^2] - 0,77\right)^2 - 0,053}}. \quad (6.4)$$

Звичайно (див. розд. 3), певне ускладнення за розрахунку залежності $z_{fp}\{t\}$

виникає внаслідок необхідності враховувати час z_{fp} / v_{gL} , який затрачується світлом з груповою швидкістю v_{gL} (на частоті ω_{0L}) для проходження відстані від $z=0$ до $z=z_{fp}$. Тож, у (6.4) потужність теж є функцією z_{fp} : $\tilde{P} = (P_{0L} / P_{cr}) \exp[-(t - z_{fp} / v_{gL})^2 / \tau_i^2]$. Аналітично (див. 3.34) можна отримати лише обернену залежність $t\{z_{fp}\}$:

$$t = \frac{z_{fp}}{v_{gL}} \pm \tau_i \sqrt{2 \ln \left[\frac{\sqrt{\tilde{P}_0}}{\sqrt{(0,38k_{0L}a_0^2 / z_{fp})^2 + 0,053 + 0,77}} \right]}, \quad (6.5)$$

яка використана для побудови графіка $z_{fp}\{t\}$ на рис. 6.1.

Окрім розташування фокальної точки, суттєве значення має її швидкість v_{fp} . Виходячи з (3.13), маємо співвідношення між швидкостями v_{fp} та v_{fd} :

$$v_{fp} = \frac{v_{fd}v_{gL}}{v_{fd} + v_{gL}}, \quad (6.6)$$

Аналіз показує, що на виході кювети з довжиною $L \sim 0,5$ м для імпульсів тривалістю $\tau_i \sim 1$ нс за потужності P_{0L} , яка перевищує декілька критичних потужностей P_{cr} , $|v_{fd}| \gg |v_{gL}|$, а тому: $v_{fp} \approx v_{gL}$. Тож, за таких умов v_{fp} є майже постійною.

На рис. 6.1 також показана часова залежність затримки фази $\Delta\varphi(t, z')$ для фіксованого значення $z = z'$. Вказана функція являє собою двогорбу криву. З урахуванням запізнення світла її центральний мінімум припадає на час $t = z' / v_{gL}$.

За введення коефіцієнтів B та Γ затримка фази для моменту t' (коли фокальна точка має координату $z_{fp} = z'$) становить

$$\Delta\varphi\left\{t = \frac{z'}{v_{gL}}, z = z'\right\} = Bz', \quad (6.7)$$

а її зміни в околі точки $(t = z'/v_{gL}, z = z')$ наближено описуються рівнянням:

$$\Delta\varphi\{t, z\} = Bz_{fd}\left\{t \rightarrow t - \frac{z}{v_{gL}}\right\} + \Gamma\left[z - z_{fd}\left\{t \rightarrow t - \frac{z}{v_{gL}}\right\}\right], \quad (6.8)$$

де позначення $z_{fd}\{t \rightarrow t - z/v_{gL}\}$ вказує на зміни (коригування) аргументу функції z_{fd} . Зазначимо, що $z_{fd}\{t \rightarrow t - z_{fd}/v_{gL}\} = z_{fp}\{t\}$.

Коефіцієнт B у (6.7) та (6.8) не залежить від приведеної миттєвої потужності \tilde{P} (див. 5.11):

$$B = k_{vL}\beta \approx 0,28k_{0L}\left(\frac{1,22\lambda_{0L}}{a_0}\right)^2\left(\frac{a_0}{a_f}\right)^{2/3}, \quad (6.9)$$

де $\lambda_{0L} = 2\pi/k_{0L}$ – довжина хвилі випромінювання лазера у середовищі.

Величина коефіцієнта Γ у (6.8) визначається виразом (див. 5.14):

$$\Gamma = k_{vL}\tilde{P}\gamma \approx \frac{1}{16}k_{0L}\tilde{P}\left(\frac{1,22\lambda_{0L}}{a_f}\right)^2. \quad (6.10)$$

Формула (6.8) показує, що у фокальній точці з координатами (z', t') на рис. 6.1, коли там розташована фокальна точка, перші похідні затримки фази становлять:

$$\left. \frac{\partial \varphi}{\partial t} \right|_{z', t'} = (B - \Gamma) v_{fd}, \quad \left. \frac{\partial \varphi}{\partial z} \right|_{z', t'} = B - (B - \Gamma) \frac{v_{fd}}{v_{fp}}. \quad (6.11)$$

Використовуючи перші похідні (6.11) і лінійну апроксимацію для $\Delta\varphi\{t, z\}$, в околі фокальної точки з точністю до постійних доданків маємо:

$$\Delta\varphi = (B - \Gamma) v_{fd} t + \left(B - (B - \Gamma) \frac{v_{fd}}{v_{fp}} \right) z. \quad (6.12)$$

За своєю фізичною суттю коефіцієнт Γ в (6.12) є приростом $k_L\{z_{fp}\} - k_{0L}$ модуля хвильового вектора лазерного випромінювання у фокальній точці, а B є усередненим приростом на трасі проходження випромінювання до фокальної точки. Тож $\Gamma \gg B$ і можна виконати подальше спрощення в (6.12):

$$\Delta\varphi \approx -\Gamma v_{fd} t + \Gamma \frac{v_{fd}}{v_{fp}} z. \quad (6.13)$$

Амплітуда $P_0^{(NL)}$ поляризації $P_a^{(NL)}$ досягає максимального значення у деякій точці фокальної ділянки. Припустимо, що ця точка збігається з фокальною точкою, а розподіл амплітуди є гаусовим з напівшириною b_e на рівні e^{-1} упродовж осі z і напівшириною a_f за x та y :

$$P_0^{(NL)} = P_{0,\max}^{(NL)} \exp \left[-\frac{x^2 + y^2}{a_f^2} - \frac{(z - z_{fp})^2}{b_e^2} \right]. \quad (6.14)$$

Зауважимо, що лише швидкий спад амплітуди поляризації упродовж осі z за віддалення від точки z_{fp} дає змогу використовувати лінійну апроксимацію

(6.13) для затримки фази, оскільки значна похибка визначення фази поляризації нівелюється її малою амплітудою зі зростанням різниці $z - z_{fp}$.

Спектрально-кутову густину енергії $W_{\omega\theta}^{(a)}$ антистоксової компоненти можна аналітично розрахувати, зокрема, у випадку рівномірного руху фокальної точки на обмеженому відрізку траси з довжиною ΔL . У цьому випадку $z_{fp} = v_{fp}t$ й інтегрування (6.1) на відрізку $z = -\Delta L/2 \div \Delta L/2$ з використанням розподілу амплітуди поляризації (6.14), фази φ_{pa} (6.3), затримки фази $\Delta\varphi$ (6.13) дає:

$$W_{\omega\theta}^{(a)} = \frac{n_a \omega_a^4 a_f^4 b_e^2 \Delta L^2}{16 \epsilon_0 v_{fp}^2 c^3} P_{0,\max}^{(NL)2} \exp \left[-\frac{1}{2} \left(\Delta k_{\perp}^2 a_f^2 + (\Delta\omega - \Gamma v_{fd})^2 \frac{b_e^2}{v_{fp}^2} \right) \right] \times \quad (6.15)$$

$$\times \text{sinc}^2 \left[\frac{\Delta L}{2} \left(\frac{\Delta\omega}{v_{fp}} - \Delta k_{\parallel} \right) \right],$$

де $\Delta\omega = (\omega_a - \omega_{0a})$ – зміщення частоти антистоксової компоненти, $\Delta k_{\perp} = k_a \sin \theta$ і $\Delta k_{\parallel} = k_a \cos \theta - k_{p0a}$ – поперечна та повздовжня неузгодженість хвильових векторів випромінювання антистоксової компоненти з частотою ω_a і поляризації з частотою ω_{0a} .

Вираз (6.15) показує, що частотно-кутова густина енергії антистоксової компоненти визначається трьома обставинами за наведеним нижче списком.

1. Впливає поперечна неузгодженість хвильових векторів випромінювання та поляризації, оскільки $W_{\omega\theta}^{(a)} \sim \exp[-0,5\Delta k_{\perp}^2 a_f^2]$. Суттєвість цього впливу залежить від радіуса a_f фокальної області та кута θ розсіювання. Формально маємо, що у випадку осьового розсіювання за $\theta = 0$ частотно-кутова густина енергії антистоксової компоненти $W_{\omega\theta}^{(a)}$ могла б набувати максимального значення. Але потрібно враховувати, що існує зв'язок між поперечною Δk_{\perp} та

повздовжньою Δk_{\parallel} неузгодженість хвильових векторів антистоксової компоненти з частотою ω_a . Зі зменшенням Δk_{\perp} зростає Δk_{\parallel} , оскільки:

$$\begin{aligned} \Delta k_{\parallel} &= k_a \cos \theta - k_{p0a} = k_a \sqrt{1 - \sin^2 \theta} - k_{p0a} = k_a \sqrt{1 - \left(\frac{\Delta k_{\perp}}{k_a}\right)^2} - k_{p0a} = \\ &= \sqrt{k_a^2 - \Delta k_{\perp}^2} - k_{p0a}. \end{aligned} \quad (6.16)$$

Тож, вплив Δk_{\perp} не обмежується членом $\exp[-0,5\Delta k_{\perp}^2 a_f^2]$ і максимум енергії загалом не припадає на кут $\theta = 0$.

2. Фазова самомодуляція сама по собі зсуває спектр антистоксової компоненти на величину $\Gamma \nu_{fd} \equiv \Delta \omega^{(sh)}$, а часова локальна нестационарність розширює його $\propto \nu_{fp} / b_e$. Тому $W_{\omega\theta}^{(a)} \sim \exp[-0,5(\Delta \omega - \Gamma \nu_{fd})^2 b_e^2 / \nu_{fp}^2]$, що має давати збільшення $W_{\omega\theta}^{(a)}$ на ділянці спектра, де $\Delta \omega \approx \Gamma \nu_{fd}$.

3. Енергія антистоксової компоненти залежить від виконання умови амплітудно-фазового синхронізму – умови синхронного руху фокальної області та точки синфазності поляризації з генерованою хвилею. Ця умова виконується, якщо $\Delta \omega = \Delta k_{\parallel} \nu_{fp} \equiv \Delta \omega^{(sync)}$, і тоді $W_{\omega\theta}^{(a)} \sim \Delta L^2$. У протилежному випадку, $W_{\omega\theta}^{(a)} \sim \Delta L^2 \text{sinc}^2 \left[0,5\Delta L(\Delta \omega / \nu_{fp} - \Delta k_{\parallel}) \right]$.

Для невеликих кутів $\theta \rightarrow 0$, для яких поперечною неузгодженістю Δk_{\perp} хвильових векторів можна знехтувати, ефективність утворення антистоксової компоненти визначається двома останніми обставинами: зсувом частоти поляризації й умовою амплітудно-фазового синхронізму. Для цього випадку, поклавши $\Delta k_{\perp} = 0$ в (6.16), у наближенні лінійної дисперсії маємо:

$$\Delta k_{\parallel} = k_a - k_{p0a} = (k_a - k_{0a}) + (k_{0a} - k_{p0a}) = \left. \frac{dk}{d\omega} \right|_{\omega_{0a}} \Delta \omega + \Delta k_{ap} = \frac{\Delta \omega}{\nu_{g0a}} + \Delta k_{ap}, \quad (6.17)$$

де $\Delta k_{ap} = k_{0a} - k_{p0a}$ – неузгодженість хвильових векторів поляризації і випромінювання на антистоксовій комбінаційній частоті ω_{0a} , v_{g0a} – групова швидкість світла на цій частоті. Вираз (6.17) для Δk_{\parallel} і співвідношення між швидкостями (6.6) дають змогу записати у зручному для аналізу вигляді умову амплітудно-фазового синхронізму (див. для порівняння (4.42)) –

$$\Delta\omega^{(\text{sync})} = \Delta k_{\parallel} v_{fp} = \left(\frac{1}{v_{ga}} \Delta\omega \Big|_{\Delta\omega = \Delta\omega^{(\text{sync})}} + \Delta k_{ap} \right) v_{fp} = \frac{\Delta k_{ap}}{v_{fp}^{-1} - v_{g0a}^{-1}} \quad (6.18)$$

і зсув спектра поляризації –

$$\Delta\omega^{(\text{sh})} = \Gamma v_{fd} = \frac{\Gamma}{v_{fp}^{-1} - v_{gL}^{-1}}. \quad (6.19)$$

Найефективнішою генерація антистоксової компоненти буде у випадку рівності $\Delta\omega^{(\text{sync})} = \Delta\omega^{(\text{sh})}$. Тоді амплітудно-фазовий синхронізм виконується саме на частоті, для якої амплітуди фур'є-компонент поляризації з урахуванням фазової само модуляції є максимальними.

На рис. 6.2 показані залежності $\Delta\omega^{(\text{sync})}$ і $\Delta\omega^{(\text{sh})}$ від v_{fp} та v_{fd} у випадку $\Delta k_{\perp} = 0$ (тобто, $\theta = 0$), що розраховані для толуолу під дією рубінового лазера з використанням (6.18), (6.19). Числові значення параметрів становили: $\lambda_{0L} = 0,6943/1,49052$ мкм, $a_f = 5$ мкм, $a_0 = 113$ мкм, $v_{gL} = 1,96987 \cdot 10^8$ м/с, $v_{g0a} = 1,95992 \cdot 10^8$ м/с, $\Delta k_{ap} = 46,5$ см⁻¹, $\tilde{P} = 1,5$. За даних параметрів спостерігається значне відхилення від рівності $\Delta\omega^{(\text{sh})} = \Delta\omega^{(\text{sync})}$, що може призводити до пригнічення генерації антистоксової компоненти, особливо для великих значень v_{fd} , які характерні для довгих кювет.

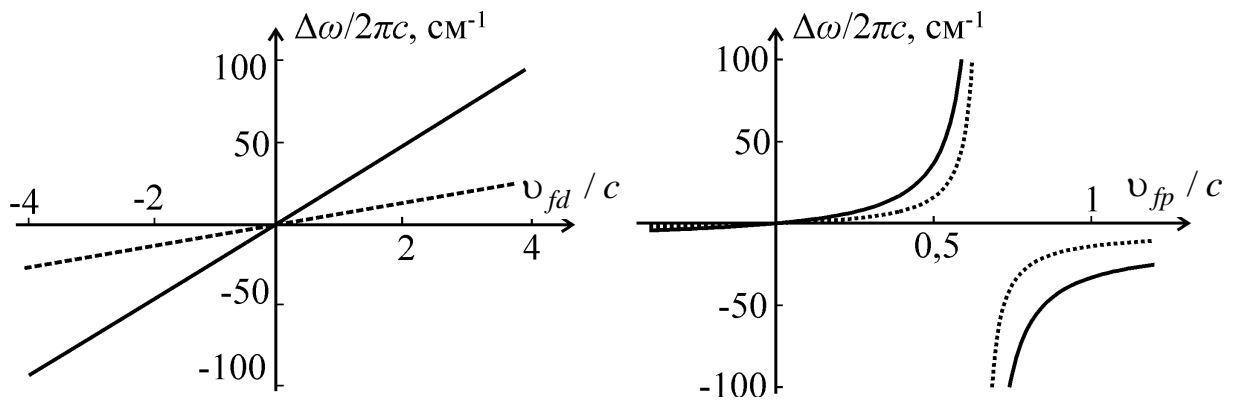


Рис. 6.2. Залежності $\Delta\omega^{(\text{sh})}$ (суцільні лінії) і $\Delta\omega^{(\text{sync})}$ (пунктирні лінії) від v_{fd} та v_{fp} у випадку осьового розсіювання з $\Delta k_{\perp} = 0$. Використане лінійне подання дисперсії n_{ω} разом з формулами (6.18), (6.19), які йому відповідають.

Використовуючи (6.18) і (6.19), можна показати, що в наближенні лінійної дисперсії рівність $\Delta\omega^{(\text{sh})} = \Delta\omega^{(\text{sync})}$ буде виконуватися на рис. 6.2, якщо

$$\Gamma = \frac{k_{0a} - k_{p0a}}{1 + v_{fd}(v_{gL}^{-1} - v_{g0a}^{-1})}. \quad (6.20)$$

Групові швидкості v_{gL} і v_{g0a} в (6.20) відрізняються не суттєво. Наприклад, для толуолу за збудження рубіновим лазером різниця $v_{gL}^{-1} - v_{g0a}^{-1} \approx -2,6 \cdot 10^{-11}$ с/м. Навіть за умови, коли $v_{fd} = 5$ с, маємо $v_{fd}(v_{gL}^{-1} - v_{g0a}^{-1}) = 0,04$. Тож, вимога (6.20) достатньо точно виконується на межі середовища, якщо

$$\Gamma = \Delta k_{ap} = k_{0a} - k_{p0a}. \quad (6.21)$$

Рівність (6.21) з урахуванням (6.10) накладає обмеження на радіус a_f фокальної області, за якого можлива ефективна генерація осьової антистоксової компоненти:

$$a_f = 1,22 \sqrt{\frac{\pi \lambda_{0L} \tilde{P}}{8 \Delta k_{ap}}}. \quad (6.22)$$

Так, за тих же значень параметрів (окрім a_f), які використані для побудови графіків на рис. 6.2, для узгодження $\Delta\omega^{(sh)} = \Delta\omega^{(sync)}$ необхідно мати $a_f = 9,4$ мкм.

Для невеликих швидкостей v_{fd} у певних межах допустимі відхилення від оптимального значення a_f , оскільки різниця між $\Delta\omega^{(sh)} \rightarrow 0$ та $\Delta\omega^{(sync)} \rightarrow 0$ зменшується (див. рис. 6.2).

На рис. 6.3 подана частотно-кутова структура випромінювання антистоксової компоненти, яка розрахована за формулою (6.15) для різних кутів θ . Параметри для розрахунку були ті ж, що і для рис. 6.2.

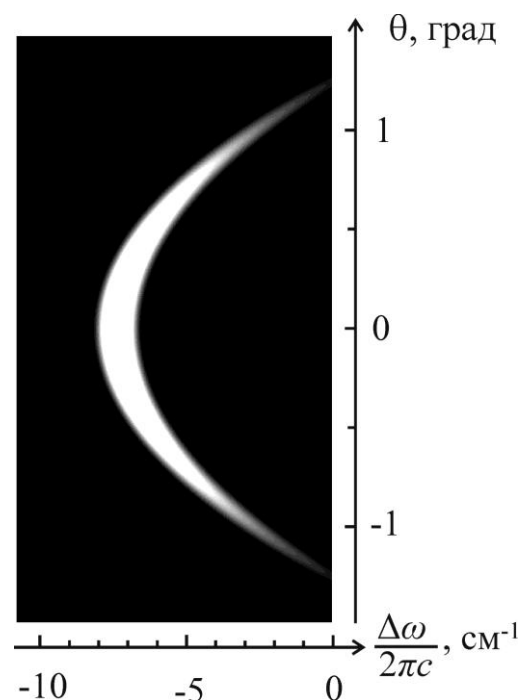


Рис. 6.3. Частотно-кутова структура антистоксової компоненти, що розрахована з використанням (6.15): $v_{fd} = -c$, $b_e = 0,25$ мм, $\Delta L = 1$ см.

Додаткові параметри для побудови рис. 6.3 становили: $v_{fd} = -c$ ($v_{fp} = 1,9123c$), $b_e = 0,25$ мм, $\Delta L = 1$ см. Вибрана від'ємна швидкість v_{fd} відповідає фронту лазерного імпульсу, для якого інерційність зміни показника заломлення n можна не враховувати. За таких умов формується частотно-кутова дуга зі стоксовим осьовим зсувом частоти біля $-7,4$ см^{-1} і кутами приблизно в межах ± 87 кут. хв. (у середовищі).

У реальній ситуації швидкість фокальної області змінюється за складним законом. Крім цього, внаслідок фазової самомодуляції спектр поляризації, як і для перехідного ефекту, містить значну кількість додаткових компонент, які лінійна апроксимація для $\Delta\varphi\{t, z\}$ (6.12) не дає змогу врахувати. Тож для розрахунку частотно-кутової структури необхідно використовувати загальну формулу (6.1) з використанням (6.2) для $\Delta\varphi$. Результати обчислень подані на рис. 6.4.

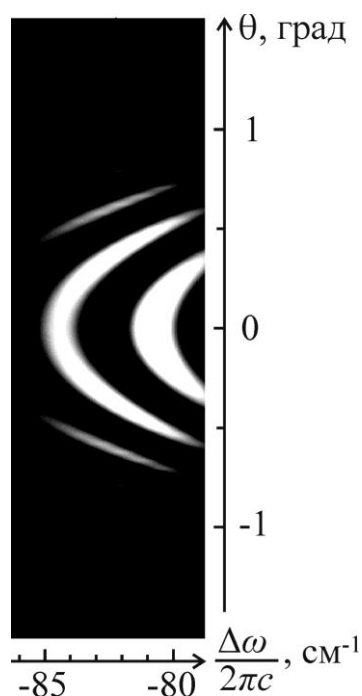


Рис. 6.4. Фрагмент чисельно розрахованої частотно-кутової структури випромінювання антистоксової компоненти на виході кювети з толуолом довжиною $L = 25$ см.

Поданий на рис. 6.4 частотно-кутовий спектр випромінювання антистоксової компоненти у толуолі відповідає кюветі з довжиною $L=25$ см. Вважалося, що комбінаційний зсув частоти у толуолі $(\omega_{0a} - \omega_{0L}) / 2\pi c = 1004 \text{ см}^{-1}$, випромінювання збирається лише з ділянки траси $z=24 \div 25$ см, а $\tilde{P}_0 = 3$, $\tau_i = 1$ нс, $a_f = 5$ мкм, $a_0 = 0,1$ мм. На рис. 6.4 спостерігаються вкладені дуги зі значними стоксовими зсувами частоти, які є порівнянними з різницею частот $\omega_{0a} - \omega_{0L}$.

Загалом, проведений аналіз і розрахунки доводять, що фазова самомодуляція лазерного випромінювання може суттєво впливати на частотно-кутову структуру випромінювання параметричної антистоксової компоненти ВКР у самофокусуєчих рідинах. За певних експериментальних умов можливе утворення вкладених частотно кутових дуг зі значним зміщенням частоти осьового випромінювання відносно комбінаційного резонансу. Зміщення частоти є порівнянними з самим комбінаційним зсувом. Частотно-кутова густина енергії випромінювання антистоксової компоненти визначається поперечною та поздовжньою неузгодженістю хвильових векторів поляризації середовища і випромінювання, миттєвим зсувом частоти поляризації та необхідністю виконання умови амплітудно-фазового синхронізму.

Результати розрахунків якісно узгоджуються з відомими експериментальними даними, а тому пояснюють природу великих частотних розширень параметричних компонент ВКР у самофокусуєчих середовищах.

6.2. Спектральні закономірності антистоксового вимушеного комбінаційного розсіювання з околу фокальної точки за фазової самомодуляції.

У підр. 6.1 наведений аналіз і розрахунки, які показують, що фазова самомодуляція імпульсів лазерного випромінювання в умовах самофокусування суттєво впливає на частотно-кутову структуру випромінювання параметричної антистоксової компоненти ВКР. За певних експериментальних умов при збудженні ВКР наносекундними імпульсами

можливе утворення вкладених частотно-кутових дуг зі значним зміщенням частоти осьового випромінювання відносно комбінаційного резонансу. Зміщення частоти за порядком величини наближаються до частоти комбінаційно-активного молекулярного коливання.

Частотно-кутова густина енергії випромінювання антистоксової компоненти визначається трьома основними факторами: поперечна та повздожня неузгодженість хвильових векторів нелінійної поляризації середовища і випромінювання; зсув частоти поляризації; умова амплітудно-фазового синхронізму.

Проаналізуємо детальніше спектральні закономірності осьового антистоксового ВКР – насамперед, вплив швидкості руху фокальної точки самофокусованого збуджуючого пучка світла на спектральний склад та енергію антистоксового випромінювання. Тестовим об'єктом виберемо толуол за збудження рубіновим лазером.

Осьову спектрально-кутову густину енергії $W_{\omega\theta}^{(a)} \{ \theta = 0 \}$ антистоксової компоненти у випадку рівномірного руху фокальної точки зі швидкістю v_{fp} на деякому відрізку траси довжиною ΔL та гаусового розподілу амплітуди поляризації з напівшириною b_e за віссю z і поперечною напівшириною a_f на рівні e^{-1} подамо у вигляді (див. 6.15):

$$W_{\omega\theta}^{(a)} \{ \theta = 0 \} = \frac{n_a \omega_a^4 a_f^4 b_e^2 \Delta L^2}{16 \epsilon_0 v_{fp}^2 c^3} P_{0,\max}^{(NL)2} F_1 F_2, \quad (6.23)$$

де

$$F_1 = \exp \left[-\frac{1}{2} \left((\omega_a - \omega_{0a}) - \Gamma v_{fd} \right)^2 \frac{b_e^2}{v_{fp}^2} \right],$$

$$F_2 = \text{sinc}^2 \left[\frac{\Delta L}{2} \left(\frac{(\omega_a - \omega_{0a})}{v_{fp}} - (k_a - k_{p0a}) \right) \right].$$

Для розрахунків за формулою (6.23) необхідно знати залежність показника заломлення від частоти, оскільки $k_a = n_a \omega_a / c$, $k_{p0a} = [2n_{0L} \omega_{0L} - n_{0s} \omega_{0s}] / c$, $v_{gL} = d\omega / dk \Big|_{\omega_{0L}}$, де $\omega_{0s} = (\omega_{0L} - \Omega)$, $\Omega / (2\pi c) = 1004 \text{ см}^{-1}$ – частота молекулярних коливань у толуолі, $\omega_{0L} / (2\pi c) = 14403 \text{ см}^{-1}$ – частота рубінового лазера. Для визначення n_ω у даному випадку використовувалася дисперсійна формула Зельмеєра (яка враховує також нелінійність дисперсії)

$$n_\omega = A + B / (1 - Cv^2) \quad (6.24)$$

з коефіцієнтами $A = 1,23633$; $B = 0,23895$; $C = 2,89027 \cdot 10^{-10} \text{ см}^2$ [150], де $v = \omega / (2\pi c)$ – частота в обернених сантиметрах.

Виконанню умови амплітудно-фазового синхронізму в (6.23) відповідає рівність нулю аргументу функції F_2 . Тож можна очікувати значної густини енергії лише для частоти ω_a , коли

$$\frac{(\omega_a - \omega_{0a})}{v_{fp}} - (k_a - k_{p0a}) = 0 \quad (6.25)$$

і за якої функція $F_2 \approx \text{sinc}[\dots]$ набуває значення 1, та в безпосередньому околі цієї точки.

На рис. 6.5 показана залежність F_2 від $\Delta\omega = (\omega_a - \omega_{0a})$ та швидкості в інтервалі $v_{fp} = (0,657 \div 0,660)c$. Умова (6.25) у випадку заданої швидкості фокальної точки виконується лише для певних частотних зміщень $\Delta\omega = \Delta\omega^{(\text{sync})}$.

Існує проміжок швидкостей $(0,64858 \div 0,65790)c$, на якому рівняння (6.25) не має дійсних розв'язків, а отже, пригнічується випромінювання антистоксової компоненти. Це ілюструється залежністю зміщення частоти $\Delta\omega^{(\text{sync})}$ синхронізму від швидкості руху фокальної точки на рис. 6.6.

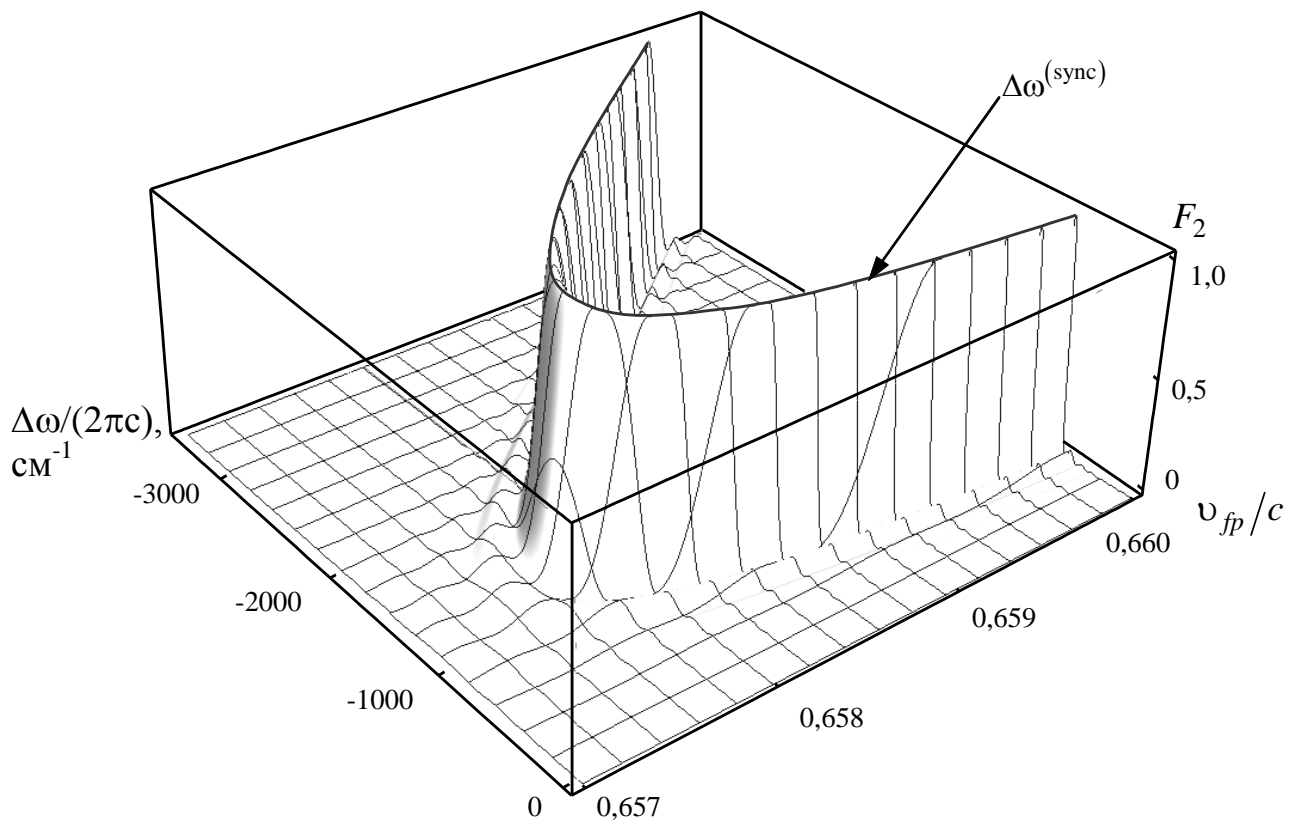


Рис. 6.5. Залежність $F_2 = \text{sinc}^2 \left[\frac{\Delta L}{2} \left(\frac{\omega_a - \omega_{0a}}{v_{fp}} - (k_a - k_{p0a}) \right) \right]$ від зміщення частоти $\Delta\omega/(2\pi c) = (\omega_a - \omega_{0a})/(2\pi c)$ в обернених сантиметрах та нормованої швидкості v_{fp}/c фокальної точки.

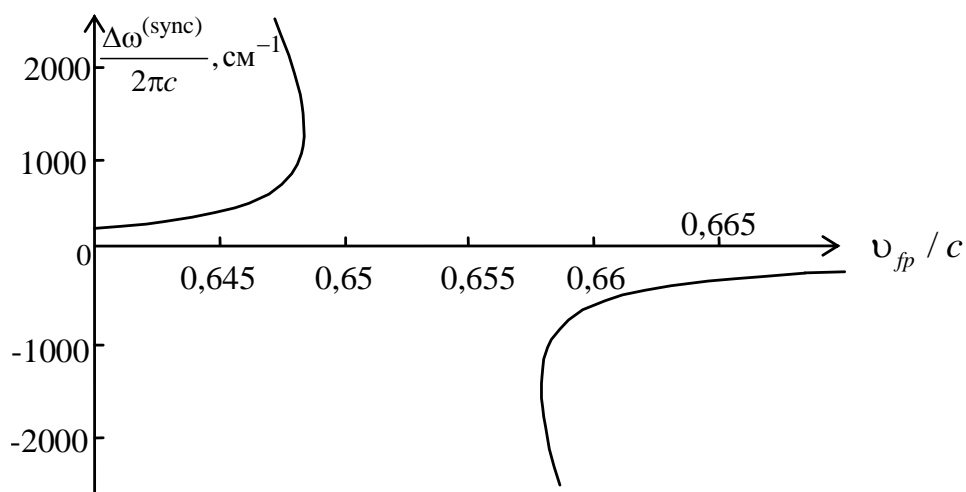


Рис. 6.6. Залежність частоти синхронізму $\Delta\omega^{(\text{sync})}/(2\pi c)$ від швидкості фокальної точки v_{fp}/c (для n_ω використана формула Зельмєсра (6.24)).

У випадку $v_{fp}/c=0,64858$ зміщення $\Delta\omega^{(\text{sync})}/(2\pi c)=1298 \text{ см}^{-1}$, а для $v_{fp}/c=0,65790$ маємо $\Delta\omega^{(\text{sync})}/(2\pi c)=-1416 \text{ см}^{-1}$ (рис. 6.6).

Для деяких значень швидкості існують два розв'язки зміщення частоти $\Delta\omega^{(\text{sync})}$. На рис. 6.6 цим швидкостям відповідають „петлі” графіків вказаних залежностей, що є помітним для великих значень частотного зміщення синхронізму – більше 1000 см^{-1} . За $v_{fp} \rightarrow \pm\infty$ зміщення $\Delta\omega^{(\text{sync})}$ асимптотично прямує до $\mp 4,8 \text{ см}^{-1}$. Для $v_{fp} = 0$ завжди маємо нульове значення $\Delta\omega^{(\text{sync})}$.

Зсув частоти поляризації внаслідок фазової самомодуляції $\Delta\omega^{(\text{sh})} = \Gamma v_{fd}$, який в (6.23) входить у показник степені експоненти функції F_1 , загалом не збігається з $\Delta\omega^{(\text{sync})}$, а тому може не реалізуватися одночасно умова $F_1(\Delta\omega) = F_2(\Delta\omega) = 1$, що забезпечує максимальне значення $W_{\omega\theta}^{(a)}$.

Порівняння зміщення частоти $\Delta\omega^{(\text{sync})}$ синхронізму та зсуву частоти $\Delta\omega^{(\text{sh})}$ поляризації наведено на рис. 6.7. Значення Γ становило $37,8 \text{ см}^{-1}$, що відповідає $\tilde{P}=1,1$, $a_f = 8,9 \text{ мкм}$. За такого Γ в області, вказаній на графіку, перетинання кривих для $\Delta\omega^{(\text{sh})}$ і $\Delta\omega^{(\text{sync})}$ реалізується в точці $\{v_{fp}/c=0,670, \Delta\omega/(2\pi c)=-198,5 \text{ см}^{-1}\}$. Крім цього перетинання завжди реалізується збігання частот у точці $\{0,0\}$. Формально, внаслідок неоднозначності функції $\Delta\omega^{(\text{sync})}$ (рис. 6.6) у даному випадку існує ще одна точка $\{v_{fp}/c=0,658, \Delta\omega/(2\pi c)=-1831,5 \text{ см}^{-1}\}$, проте такі частоти в спектрі антистоксової компоненти експериментально не спостерігаються, оскільки фазова самомодуляція збуджуючого випромінювання не може забезпечити відповідних частотних зсувів.

Навіть незначні зміни Γ суттєво впливають на розташування точок, в яких $\Delta\omega^{(\text{sh})} = \Delta\omega^{(\text{sync})}$.

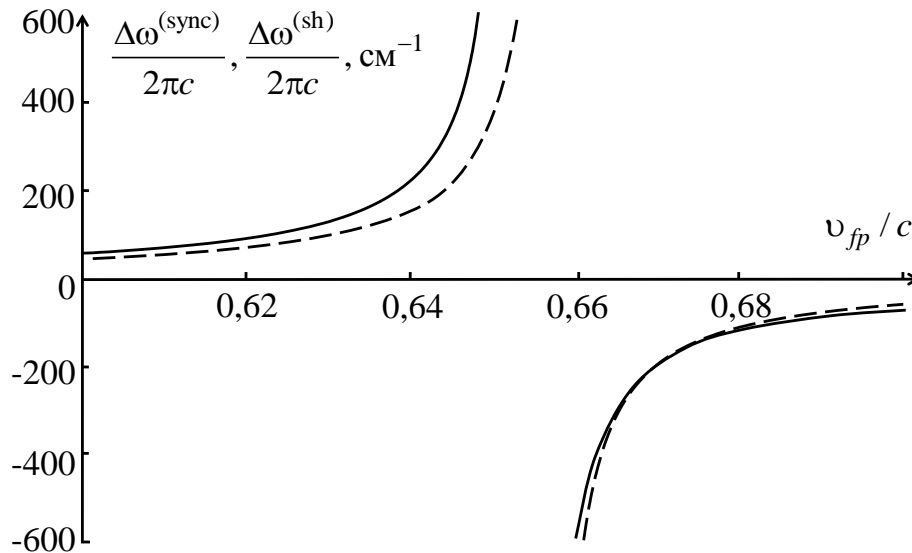


Рис. 6.7. Залежність зміщення $\Delta\omega^{(\text{sync})}$ частоти синхронізму (—) та зсуву $\Delta\omega^{(\text{sh})}$ частоти поляризації (---) від швидкості v_{fp} руху фокальної точки (для n_ω використана формула Зельмеєра (6.24)).

Спектральний склад та інтегральна за частотою енергія антистоксового випромінювання визначаються не лише значеннями $\Delta\omega^{(\text{sh})}$, $\Delta\omega^{(\text{sync})}$, для яких $F_1=1$ і $F_2=1$, відповідно, а й спектральною шириною F_1 та F_2 . Рівняння $F_1(\Delta\omega) = e^{-1}$ для напівширини спектра поляризації на рівні e^{-1} має розв'язок $\Delta\omega = \Delta\omega^{(\text{sh})} \pm \sqrt{2}v_{fp}/b_e$. Тож, напівширина спектра поляризації на рівні e^{-1} становить

$$\delta\omega^{(\text{sh})} = \sqrt{2} \left| v_{fp}/b_e \right|. \quad (6.26)$$

Для функції F_2 аналітичного розв'язку рівняння $F_2(\Delta\omega) = e^{-1}$ не існує, проте наближено відповідну напівширину можна виразити з використанням $\Delta k_{ap} = k_{0a} - k_{p0a}$, яка для толуолу становить $46,5 \text{ см}^{-1}$, і через

$\Delta\omega^{(\text{sync})} = \Delta k_{ap} / (\nu_{fp}^{-1} - \nu_{g0a}^{-1})$ (див. 6.18 за лінійної дисперсії) у вигляді:

$$\delta\omega^{(\text{sync})} = \left| \Delta\omega^{(\text{sync})} \right| \frac{5,56}{2\sqrt{\ln 2} \Delta L \Delta k_{ap}}. \quad (6.27)$$

На рис. 6.8 наведено порівняння для точно розрахованої напівширини $\delta\omega^{(\text{sync})}$ та з використанням (6.27) у випадку $\Delta L = 1$ см. Для вказаної довжини $\delta\omega^{(\text{sync})} = 0,072 \left| \Delta\omega^{(\text{sync})} \right|$ відповідно до (6.27), а похибка не перевищує 3%, коли $\left| \Delta\omega^{(\text{sync})} \right| / (2\pi c) \leq 200 \text{ см}^{-1}$ (див. рис. 6.7). Основна складова похибки пов'язана з наближенням лінійної дисперсії для $\Delta\omega^{(\text{sync})}$ (6.18). Якщо використовувати точне значення $k_a = n_a \omega_a / c$ за формулою Зельмеєра (6.24) для обрахунку $\Delta\omega^{(\text{sync})}$ (рис. 6.7), то похибка складає лише 0,5%.

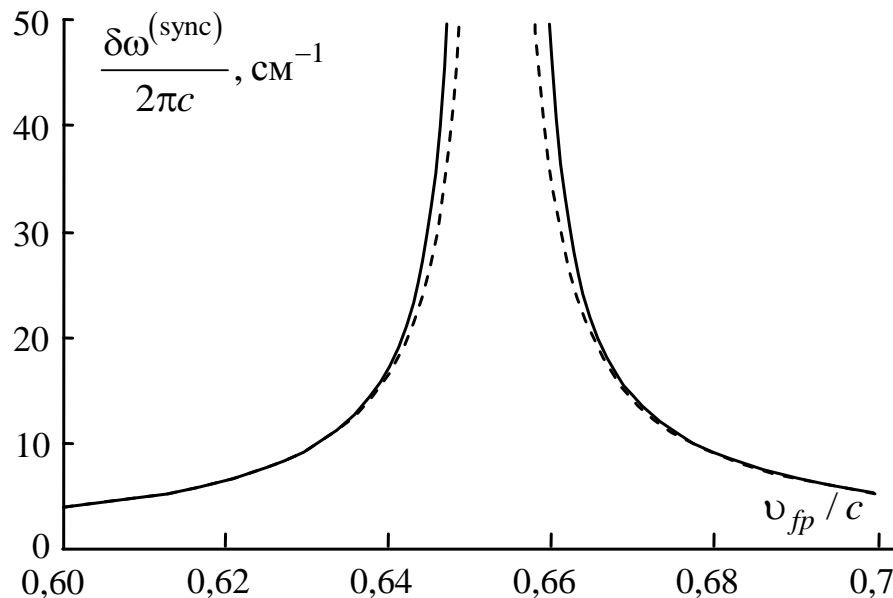


Рис. 6.8. Залежність ширини синхронізму $\delta\omega^{(\text{sync})}$ в обернених сантиметрах від нормованої швидкості ν_{fp} / c фокальної точки: — точний чисельний розрахунок, - - - аналітичне наближення за формулами (6.27), (6.18).

Для заключного аналітичного аналізу спектра та енергії випромінювання антистоксової компоненти функцію F_2 можна наближено подати у вигляді гаусової функції

$$F_2 = \exp \left[- \left(\frac{\Delta\omega - \Delta\omega^{(\text{sync})}}{\delta\omega^{(\text{sync})}} \right)^2 \right], \quad (6.28)$$

з напівшириною $\delta\omega^{(\text{sync})}$ та максимумом у точці $\Delta\omega = \Delta\omega^{(\text{sync})}$. Відносна похибка такого наближення в межах $\Delta\omega = \Delta\omega^{(\text{sync})} \pm \delta\omega^{(\text{sync})}$ становить 0,013, а загалом не перевищує 0,047. У результаті добуток $F_1 F_2$ в (6.23) набуває вигляду гаусової функції:

$$F_1 F_2 = F_{\max} \exp \left[\left(\frac{\Delta\omega - \Delta\omega_{\max}}{\delta\omega_{\max}} \right)^2 \right] \quad (6.29)$$

з напівшириною

$$\delta\omega_{\max} = \frac{\delta\omega^{(\text{sync})} \delta\omega^{(\text{sh})}}{\sqrt{(\delta\omega^{(\text{sync})})^2 + (\delta\omega^{(\text{sh})})^2}},$$

максимумом у точці

$$\Delta\omega = \Delta\omega_{\max} = \frac{(\delta\omega^{(\text{sh})})^2 \Delta\omega^{(\text{sync})} + (\delta\omega^{(\text{sync})})^2 \Delta\omega^{(\text{sh})}}{(\delta\omega^{(\text{sync})})^2 + (\delta\omega^{(\text{sh})})^2}$$

та амплітудним значенням

$$F_{\max} = \exp \left[- \left(\frac{\Delta\omega^{(\text{sync})}}{\delta\omega^{(\text{sync})}} \right)^2 - \left(\frac{\Delta\omega^{(\text{sh})}}{\delta\omega^{(\text{sh})}} \right)^2 + \left(\frac{\Delta\omega_{\max}}{\delta\omega_{\max}} \right)^2 \right].$$

Кутова густина енергії випромінювання $W_{\theta}^{(a)}$ за кута $\theta = 0$ у межах $\Delta\omega \ll \delta\omega_{\max}$ знаходиться шляхом інтегрування за частотою:

$$W_{\theta}^{(a)} \{ \theta = 0 \} \sim \int_{-\infty}^{\infty} F_{\max} \exp \left(\frac{\Delta\omega - \Delta\omega_{\max}}{\delta\omega_{\max}} \right)^2 d\omega = \sqrt{\pi} F_{\max} \delta\omega_{\max}. \quad (6.30)$$

Тож окрім множників в (6.23) перед $F_1 F_2$ (таких як ν_{fp}^{-2} та ω_a^4) енергія визначається напівшириною $\delta\omega_{\max}$ спектра антистоксового випромінювання і коефіцієнтом F_{\max} .

У випадку оптимального значення $\Gamma_{\text{opt}} \{ \nu_{fd} \}$ абсолютного приросту модуля хвильового вектора збуджуючого випромінювання у центрі фокальної області, який у лінійному наближенні дисперсії у околі частоти антистоксового випромінювання становить (див. 6.20)

$$\Gamma_{\text{opt}} = \frac{\Delta k_{ap}}{1 + \nu_{fd} (\nu_{gL}^{-1} - \nu_{g0a}^{-1})}, \quad (6.31)$$

забезпечується виконання умови $\Delta\omega^{(\text{sh})} = \Delta\omega^{(\text{sync})}$, а отже і максимальне значення коефіцієнта $F_{\max} = 1$ в (6.30).

Щодо величини $\delta\omega_{\max}$ в (6.30), то вона теж сягає максимального значення за певної швидкості фокальної точки ν_{fp} (яка однозначно пов'язана (6.6) зі швидкістю зміни фокальної відстані ν_{fd}). Ця швидкість ν_{fp} знаходиться з рівняння $\partial(\delta\omega_{\max}) / \partial\nu_{fp} = 0$, яке має аналітичний розв'язок

$$v_{fp} = \left(1 + \frac{5,575b_e^2}{\Delta L^2} \right) v_{g0a}. \quad (6.32)$$

Приміром, за параметрів $b_e = 0,1$ см та $\Delta L = 1$ см максимальна ширина спектра $\delta\omega_{\max}$ відповідає швидкості $v_{fp} = 0,68973c$ (рис. 6.9). Максимальна ж енергія з урахуванням коригуючого множника v_{fp}^{-2} та нехтуванням зміною ω_a^4 в (6.23) має локальний екстремум для дещо меншої швидкості $v_{fp} = 0,61155c$. Зі зменшенням v_{fp} до нуля енергія монотонно прямує до нескінченності, оскільки час існування фокальної області нескінченно зростає.

Величина $F_1 F_2 / v_{fp}$, яка пропорційна середній потужності випромінювання (але не піковій) незалежно від b_e та ΔL має глобальний максимум поблизу швидкості $v_{fp} = v_{g0a}$.

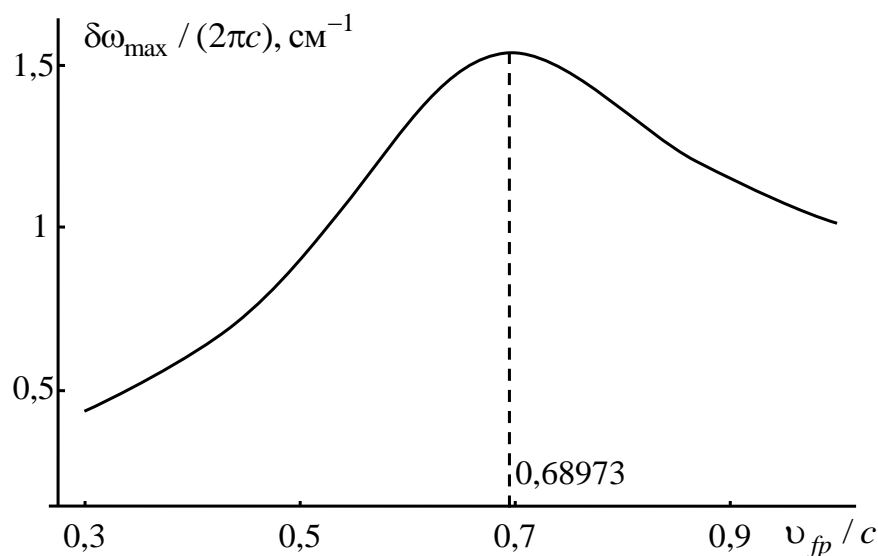


Рис. 6.9. Залежність ширини спектра $\delta\omega_{\max}$ осьового випромінювання антистоксової компоненти від швидкості v_{fp} фокальної області ($b_e = 0,1$ см, $\Delta L = 1$ см).

У випадку довільного фіксованого Γ , яке визначається виразом (6.10),

максимум енергії випромінювання в області $v_{fp} > v_{g0a}$, в якій реалізуються від'ємні $\Delta\omega_{\max}$, припадає на швидкість фокальної області, яка зі зростанням Γ теж зростає. Відповідну залежність для випадку $b_e = 0,1$ см, $\Delta L = 1$ см показано на рис. 6.10. Нескінченно великим v_{fp} відповідає асимптотичне значення $\Gamma = \Delta k_{ap} v_{g0a} / v_{gL} = 46,26$ см⁻¹. Якщо Γ прямує до нуля, то максимум енергії випромінювання припадає на швидкість фокальної точки $v_{fp} = v_{g0a}$.

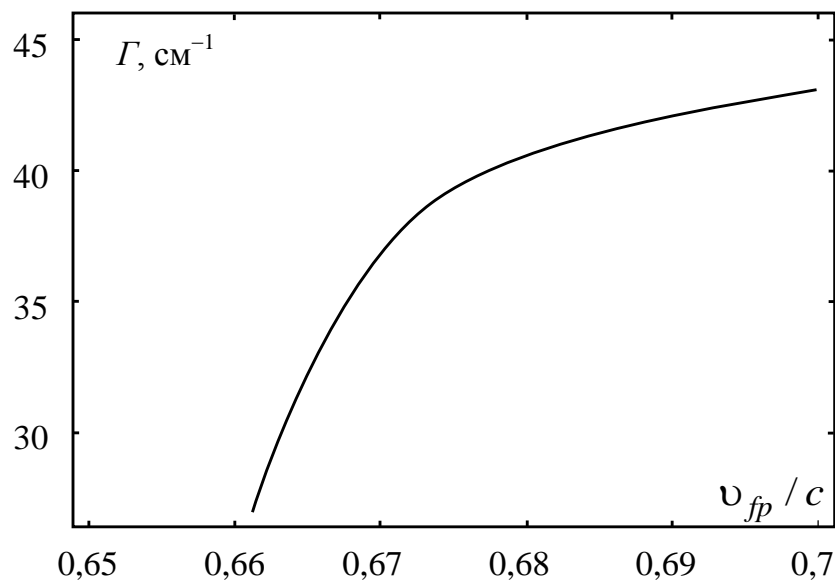


Рис. 6.10. Зв'язок між Γ та швидкістю v_{fp} , на яку припадає максимум енергії випромінювання.

Залежність енергії випромінювання від швидкості фокальної області для деяких фіксованих значень Γ показано на рис. 6.11.

Загалом, зазначимо, що енергія осьового антистоксового випромінювання суттєво залежить від швидкості фокальної області. У випадку, коли зміна показника заломлення у фокальній області дає абсолютний приріст Γ модуля хвильового вектора, який забезпечує виконання умови фазового синхронізму для довільної швидкості (еквівалентно умові рівності зміщення $\Delta\omega^{(\text{sync})}$ частоти синхронізму та зсуву $\Delta\omega^{(\text{sh})}$ частоти поляризації), існує локальний максимум

енергії, що припадає на швидкість фокальної області, яка залежить від співвідношення довжини b_e фокальної області до довжиною ΔL відрізка траси, яку область пробігає.

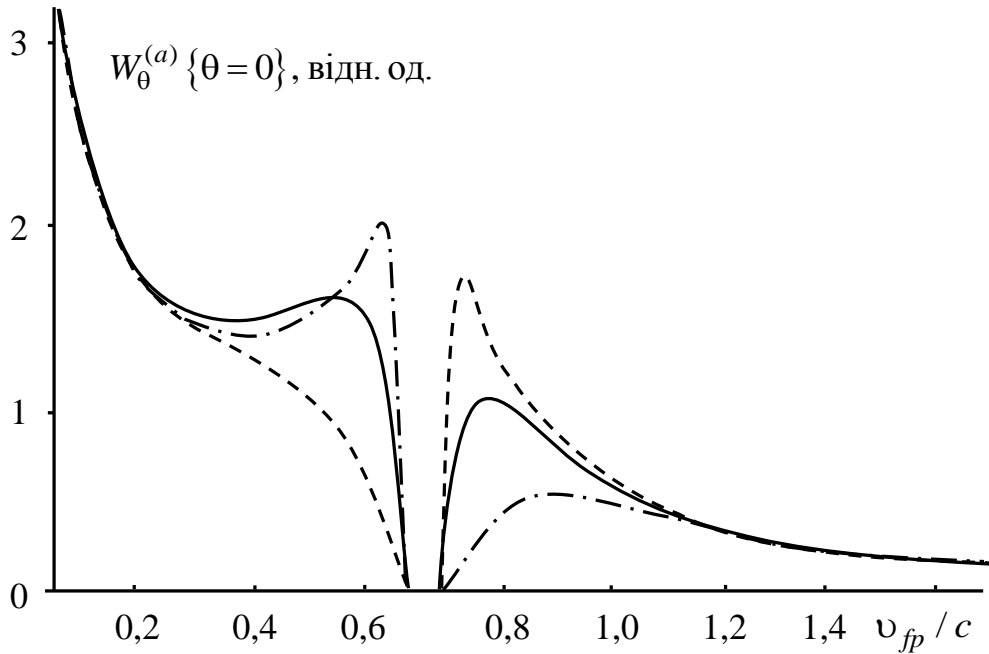


Рис. 6.11. Залежність енергії випромінювання від швидкості руху фокальної точки: --- $\Gamma=43,5$; — $\Gamma=46,5$; - · - · - $\Gamma=49,5$.

У зазначеному випадку потужність випромінювання максимальна за умови рівності швидкості v_{fp} фокальної області і групової швидкості світла v_{ga} на частоті антистоксового випромінювання. Оскільки для ширини синхронізму і ширини спектра поляризації виконується співвідношення $\delta\omega^{(\text{sync})} > \delta\omega^{(\text{sh})}$ то центральна частота лінії антистоксового випромінювання приблизно збігається з частотою поляризації ($\Delta\omega_{\text{max}} \approx \Delta\omega^{(\text{sh})}$).

У разі фіксованого значення абсолютного приросту Γ модуля хвильового вектора локальний максимум енергії випромінювання з'являється в околі тієї швидкості фокальної області, для якої зміщення $\Delta\omega^{(\text{sync})}$ частоти синхронізму і зсуву $\Delta\omega^{(\text{sh})}$ частоти поляризації збігаються.

6.3. Фазомодульоване параметричне антистоксове вимушене комбінаційне розсіювання на виході з самофокусуєчого середовища.

Дослідимо вплив руху фокальної області самофокусування на параметричне антистоксове ВКР з урахуванням фазової самомодуляції лазерного випромінювання і фазової модуляції випромінювання антистоксової компоненти, яка утворюється в околі фокальної точки та поширюється до межі середовища (до спостерігача) за змінного в часі та просторі показника заломлення.

Підкреслимо, що фазова модуляція випромінювання антистоксової компоненти у даному випадку не є самомодуляцією, оскільки основний вплив визначається змінами показника заломлення, спричиненого збуджуючим випромінюванням. Окрім цього, необхідно розрізняти зміни фази на шляху до фокальної точки та після неї. Зміни фази лазерного променя на шляху до фокальної точки ведуть до випромінювання перехідного типу (див. розд. 5).

Важливість питання обумовлена тим, що непоясненим залишився фізичний механізм утворення некомбінаційних частот конусного випромінювання антистоксової компоненти черенковського типу та їх зв'язок зі швидкістю фокальної точки і фазовою самомодуляцією лазерного випромінювання (власне, фазова самомодуляція до цього не розглядалася). Раніше [124] було лише показано, що частотно-кутовий спектр експериментально спостережуваного широкосмугового конусного випромінювання антистоксової компоненти формально задовільно описується умовою черенковського випромінювання $\cos \theta \{ \omega_a \} = v_{ph} \{ \omega_a \} / v_{p0a}$, в якій $v_{ph} \{ \omega_a \}$ – фазова швидкість антистоксового випромінювання ВКР, а замість швидкості зарядженої частинки фігурує фазова швидкість $v_{p0a} = \omega_{0a} / k_{p0a}$ хвилі нелінійної поляризації середовища на частоті ω_{0a} . Загалом, на можливість використання уявлень про випромінювання черенковського типу щодо ВКР зверталася увага в багатьох роботах [9, 120, 154, 162, 163, 164].

Для розрахунку частотно-кутова густина енергії $W_{\omega\theta}^{(a)}$ антистоксової компоненти ВКР використаємо (6.1), але уточнимо подання $P_a^{(NL)}\{t, \vec{r}\}$. Фізичний зміст (6.1) полягає у розкладанні нелінійної поляризації в кожній точці простору на неперервну за частотою сукупність монохроматичних точкових джерел випромінювання з подальшим сумовуванням поля випромінювання від цих джерел за просторовими координатами з урахуванням фази самих джерел і фази поля випромінювання, яке надходить у точку спостереження. Власне, необхідне уточнення фази поля антистоксового випромінювання, яке надходить у точку спостереження з фокальної області та набуває додаткової затримки $\Delta\varphi_a$ на виході з фокальної області на шляху до межі середовища.

Затримка $\Delta\varphi$ фази лазерного випромінювання уже розглядалася, але для узагальнення та уніфікації методики визначення $\Delta\varphi$ і $\Delta\varphi_a$ введемо додаткове позначення $\Delta\varphi \equiv \Delta\varphi_L$ та дещо інше подання $\Delta\varphi_L$, з акцентом на зміни, які відбуваються впродовж шляху проходження лазерного випромінювання через самофокусуюче середовище у часі:

$$\Delta\varphi_L\{t, z\} = \int_0^z \Delta k_L\{t, \zeta\} d\zeta. \quad (6.33)$$

де $\Delta k_L\{t, \zeta\}$ – зміна модуля хвильового вектора лазерного випромінювання, ζ – поточна координата інтегрування на шляху між вхідною межею середовища і точкою z , в якій розглядається фаза.

Затримку $\Delta\varphi_L\{t, z\}$ можна розрахувати достатньо точно, що і було зроблено в розд. 5. У даному випадку для приросту $\Delta k_L\{t, \zeta\}$ модуля хвильового вектора лазерного випромінювання внаслідок збільшення показника заломлення в кожній проміжній точці ζ на шляху $0 \div z$ використаємо наближення:

$$\Delta k_L(t, \zeta) = \Gamma \exp \left[-\frac{\left(\zeta - v_{fp} \left(t - \frac{z - \zeta}{v_{gL}} \right) \right)^2}{b_e^2} \right], \quad (6.34)$$

де Γ – максимальний приріст Δk_L в центрі фокальної області (у фокальній точці), v_{fp} – швидкість фокальної точки з координатою $z_{fp} = v_{fp}t$, v_{gL} – групова швидкість світла на частоті лазерного випромінювання, b_e – напівдовжина фокальної області на рівні e^{-1} відносно максимального значення Γ . Власне, використовуємо наближення, що швидкість v_{fp} є сталою і $z_{fp} \{t=0\} = 0$. В дійсності, така ситуація може реалізуватися лише на обмеженій ділянці ΔL поблизу виходу з самофокусуєчого середовища довжиною L та початкового відліку часу, за якого $z_{fp} \{t=0\} = L - \Delta L$.

Вираз (6.34) відображає ту ситуацію, що деякий часовий фрагмент лазерного імпульсу, який в момент t перебуває в точці z , був у проміжній точці ζ в момент $t' = t - (z - \zeta)/v_{gL}$. У цей момент координата фокальної точки становила $z'_{fp} = v_{fp}t' = v_{fp} \left(t - (z - \zeta)/v_{gL} \right)$. Відповідно, відстань між фрагментом лазерного імпульсу і фокальною точкою була $\zeta - z'_{fp} = \zeta - v_{fp} \left(t - (z - \zeta)/v_{gL} \right)$. Це за гаусового розподілу показника заломлення у фокальній області пропорційному $\exp \left[-\left((\zeta - z'_{fp})/b_e \right)^2 \right]$ дає шуканий вираз (6.34) для $\Delta k_L(t, \zeta)$.

Фокальна область утворюється поблизу вихідної межі середовища. За умови $\Delta L \ll b_e$ маємо $\Delta k_L(t, \zeta) \approx 0$ під інтегралом у виразі (6.33) поблизу вхідної межі. А враховуючи гаусів розподіл зміни показника заломлення відносно фокальної точки, без всяких застережень можемо в (6.33) нижню межу інтегрування замінити на $-\infty$, що у подальшому надає змогу для виконання

аналітичних розрахунків.

Процес ВКР переважно відбувається у центрі фокальної області самофокусування. Тому важливою є поведінка фази збуджуючого лазерного випромінювання саме в фокальній точці. Для фокальної точки підстановка $z = v_{fp}t$ або $t = z/v_{fp}$ у (6.34) та використання (6.34) в (6.33) з нижньою межею інтегрування $-\infty$ дає:

$$\Delta\varphi_L \left\{ t, z = v_{fp}t = z_{fp} \right\} = \frac{\sqrt{\pi}}{2} b_e \Gamma \left| \frac{1}{1 - v_{fp}/v_{gL}} \right|, \quad (6.35)$$

$$\left. \frac{\partial(\Delta\varphi_L)}{\partial t} \right|_{z=v_{fp}t=z_{fp}} = -\Gamma \frac{v_{fp}}{1 - v_{fp}/v_{gL}} = -\Gamma v_{fd}, \quad (6.36)$$

$$\left. \frac{\partial(\Delta\varphi_L)}{\partial z} \right|_{z=v_{fp}t=z_{fp}} = \Gamma \frac{1}{1 - v_{fp}/v_{gL}} = \Gamma \frac{v_{fd}}{v_{fp}}. \quad (6.37)$$

Зауважимо, що в (6.36) та (6.37) введена швидкість v_{fd} зміни фокальної відстані (6.6) лише для порівняння з аналогічним виразом (6.11) для відповідних похідних. Очевидно, що є повне узгодження за умови $\Gamma \ll B$. Окрім цього, можна подати вираз (6.35) з використанням (6.37) у вигляді

$$\Delta\varphi_L \left\{ t, z = v_{fp}t = z_{fp} \right\} = \frac{\sqrt{\pi}}{2} b_e \left. \frac{\partial(\Delta\varphi_L)}{\partial z} \right|_{z=v_{fp}t=z_{fp}},$$

що в порівнянні з (6.7) є логічним, якщо мати на увазі зміни фази лазерного випромінювання на шляху до фокальної точки, проте, є наближенням.

Отже, з урахуванням самофокусування і фазової самомодуляції у фокальній точці частота ω_{Lf} та модуль k_{Lf} хвильового вектора лазерного

випромінювання внаслідок зміни $\Delta\varphi_L$ фази φ_L лазерного випромінювання становлять:

$$\omega_{Lf} = \left. \frac{\partial(\varphi_L)}{\partial t} \right|_{z=\nu_{fp}t} = \left. \frac{\partial(\omega_{0L}t - k_{0L}z - \Delta\varphi_L)}{\partial t} \right|_{z=\nu_{fp}t} = \omega_{0L} + \Gamma \frac{\nu_{fp}}{1 - \nu_{fp}/\nu_{gL}}, \quad (6.38)$$

$$k_{Lf} = - \left. \frac{\partial(\varphi_L)}{\partial z} \right|_{z=\nu_{fp}t} = k_{0L} + \Gamma \frac{1}{1 - \nu_{fp}/\nu_{gL}}. \quad (6.39)$$

В околі фокальної точки, використовуючи (6.35), перші похідні (6.36), (6.37) і лінійну апроксимацію для фазової затримки лазерного випромінювання маємо:

$$\begin{aligned} \Delta\varphi_L \{t, z\} &= \Delta\varphi_L \{t, z = \nu_{fp}t = z_{fp}\} + \\ &+ \left. \frac{\partial(\Delta\varphi_L)}{\partial t} \right|_{z=\nu_{fp}t=z_{fp}} (t - z_{fp}/\nu_{fp}) + \left. \frac{\partial(\Delta\varphi_L)}{\partial z} \right|_{z=\nu_{fp}t=z_{fp}} (z - z_{fp}) = \quad (6.40) \\ &= \frac{\sqrt{\pi}}{2} b_e \Gamma \left[\frac{1}{1 - \nu_{fp}/\nu_{gL}} - \Gamma \frac{\nu_{fp}}{1 - \nu_{fp}/\nu_{gL}} t + \Gamma \frac{1}{1 - \nu_{fp}/\nu_{gL}} z \right], \end{aligned}$$

де враховано, що $\left(- \frac{z_{fp}}{\nu_{fp}} \left. \frac{\partial(\Delta\varphi_L)}{\partial t} \right|_{z=\nu_{fp}t=z_{fp}} - z_{fp} \left. \frac{\partial(\Delta\varphi_L)}{\partial z} \right|_{z=\nu_{fp}t=z_{fp}} \right) = 0$ за тих же співвідношень (6.36), (6.37).

Фазова самомодуляція лазерного випромінювання переноситься на фазу φ_s стоксової компоненти. Тому фазу φ_{ap} нелінійної поляризації $P_a^{(NL)}$ середовища на антистоксовій частоті можна подати у вигляді:

$$\varphi_{ap} = 2\varphi_L - \varphi_s = 2(\omega_{0L}t - k_{0L}z - \Delta\varphi_L) - (\omega_{0s}t - k_{0s}z - \Delta\varphi_L) = \omega_{0a}t - k_{p0a}z - \Delta\varphi_L.$$

Проте необхідно враховувати, що між фокальною точкою та вихідною межею середовища також є зміна показника заломлення. Випромінені поляризацією у фокальній області антистоксові хвилі на частоті ω_a змінюють свою фазу на деяку величину $\Delta\varphi_a\{t, z\}$, яка залежить від координати випромінюючого джерела z та часу t .

Аналогічно до того, як було отримано $\Delta\varphi_L\{t, z\}$, для $\Delta\varphi_a\{t, z\}$ у випадку осевого випромінювання під кутом $\theta = 0$ можна записати (див. (6.33), (6.34)):

$$\Delta\varphi_a\{t, z\} = \int_z^L \Delta k_a\{t, \zeta\} d\zeta,$$

$$\Delta k_a\{t, \zeta\} = \Gamma \exp \left[- \left(\zeta - v_{fp} \left(t - \frac{z - \zeta}{v_{ph}\{\omega_a\}} \right) \right)^2 / b_e^2 \right]. \quad (6.41)$$

Відмінність полягає в тому, що замість групової швидкості v_{gL} світла на частоті лазера, з якою рухався часовий фрагмент лазерного імпульсу, фігурує фазова швидкість $v_{ph}\{\omega_a\}$ випромінених хвиль на частоті ω_a та змінні межі інтегрування. Вирази (6.41) враховують, що деякий фазовий фронт, який в момент t вийшов з точки z , буде в проміжній точці ζ , яка розташована на шляху від z до вихідної межі середовища з координатою L , в момент $t'' = t + (\zeta - z)/v_{ph}\{\omega_a\}$. У цей момент координата фокальної точки становитиме $z_{fp}\{t''\} = v_{fp}t'' = v_{fp} \left(t + (\zeta - z)/v_{ph}\{\omega_a\} \right)$. Відстань між вказаним фазовим фронтом і фокальною точкою буде $\zeta - z_{fp}\{t''\} = \zeta - v_{fp} \left(t + (\zeta - z)/v_{ph}\{\omega_a\} \right) = \zeta - v_{fp} \left(t - (z - \zeta)/v_{ph}\{\omega_a\} \right)$. Ця відстань визначає показник заломлення у точці ζ , а отже, приріст модуля хвильового вектора антистоксового випромінювання відповідно до розподілу $\Gamma \exp \left[- \left((\zeta - z_{fp})/b_e \right)^2 \right]$. Тут нехтуємо дисперсією зміни показника заломлення

та вважаємо, що $\Gamma = k_L \{z_{fp}\} - k_{0L} \approx k_a \{z_{fp}\} - k_{0a}$.

Для джерела антистоксового випромінювання у фокальній точці, де амплітуда поляризації максимальна, фазова затримка $\Delta\varphi_a$ (6.41) після підстановки $z = z_{fp}$ та $t = z_{fp}/v_{fp}$ набуває вигляду:

$$\begin{aligned} \Delta\varphi_a|_{z=z_{fp}, t=z_{fp}/v_{fp}} &= \Gamma \int_{z_{fp}}^L \exp \left[- \left(\zeta - v_{fp} \left(\frac{z_{fp}}{v_{fp}} - \frac{z_{fp} - \zeta}{v_{ph} \{ \omega_a \}} \right) \right)^2 / b_e^2 \right] d\zeta = \\ &= \Gamma \int_{z_{fp}}^L \exp \left[- \frac{(\zeta - z_{fp})^2}{b_e^2} \left(1 - \frac{v_{fp}}{v_{ph} \{ \omega_a \}} \right)^2 \right] d\zeta . \end{aligned} \quad (6.42)$$

Вираз (6.42) показує, що $\Delta\varphi_a$ залежить від координати фокальної точки і має певну особливість для швидкостей $v_{fp} \approx v_{ph} \{ \omega_a \}$, за яких фазова модуляція антистоксової компоненти ВКР є найбільш істотною.

Для розгляду поведінки $\Delta\varphi_a$ в області значень $v_{fp} \approx v_{ph} \{ \omega_a \}$ можна використати розклад експоненти типу $\exp[-x^2] \approx 1 - x^2$ під інтегралом у (6.42) й отримати аналітичний вираз для затримки фази $\Delta\varphi_a$ з околу фокальної точки:

$$\begin{aligned} \Delta\varphi_a|_{t=z_{fp}/v_{fp}, v_{fp} \approx v_{ph}} &= \Gamma_f \left[(L - z_{fp}) - \right. \\ &\left. - (L - z_{fp})^3 \left(1 - v_{fp}/v_{ph} \{ \omega_a \} \right)^2 / 3b_e^2 \right]. \end{aligned} \quad (6.43)$$

За аналогічних припущень для похідних маємо:

$$\left. \frac{\partial(\Delta\varphi_a)}{\partial t} \right|_{\substack{t=z_{fp}/v_{fp} \\ v_{fp} \approx v_{ph}}} = \frac{\Gamma v_{fp}}{b_e^2} (L - z_{fp})^2 \left(1 - \frac{v_{fp}}{v_{ph} \{ \omega_a \}} \right), \quad (6.44)$$

$$\left. \frac{\partial(\Delta\varphi_a)}{\partial z} \right|_{\substack{t=z_{fp}/v_{fp} \\ v_{fp} \approx v_{ph}}} = -\Gamma \left[1 + \frac{v_{fp}}{v_{ph} \{\omega_a\} b_e^2} (L - z_{fp})^2 \left(1 - \frac{v_{fp}}{v_{ph} \{\omega_a\}} \right) \right]. \quad (6.45)$$

В околі фокальної точки для координати $z - z_{fp} \rightarrow 0$ за часу $t - z_{fp}/v_{fp} \rightarrow 0$, використовуючи перші похідні (6.44), (6.45), лінійну апроксимацію та нехтуючи членами пропорційними $(1 - v_{fp}/v_{ph} \{\omega_a\})^2$, фазову затримку $\Delta\varphi_a$ можна подати у вигляді:

$$\begin{aligned} \Delta\varphi_a \Big|_{t=z_{fp}/v_{fp} \rightarrow 0, z-z_{fp} \rightarrow 0} = & \Gamma \left[L + \left(v_{fp} \frac{(L-z)^2 (1 - v_{fp}/v_{ph} \{\omega_a\})}{b_e^2} \right) t - \right. \\ & \left. - \left(1 + \frac{v_{fp}}{v_{ph} \{\omega_a\}} \frac{(L-z)^2 (1 - v_{fp}/v_{ph} \{\omega_a\})}{b_e^2} \right) z \right]. \end{aligned} \quad (6.46)$$

З точністю до постійних членів ефективна фаза φ_{ap} нелінійної поляризації з урахуванням обох фазових затримок $\Delta\varphi_L$, $\Delta\varphi_a$ і корекцією $k_{p0a} \rightarrow k_{p0a} + \Gamma$ (збільшення модулів хвильових векторів k_L і k_s у фокальній точці внаслідок самофокусування, але без фазової модуляції) набуває виду

$$\begin{aligned} \varphi_{ap} = & \omega_{0a} t - k_{p0a} z - \Delta\varphi_L - \Delta\varphi_a = \\ = & \left(\omega_{0a} + \frac{\Gamma v_{fp}}{1 - v_{fp}/v_{gL}} - \Gamma v_{fp} \frac{(L-z)^2 (1 - v_{fp}/v_{ph} \{\omega_a\})}{b_e^2} \right) t - \\ & - \left(k_{p0a} + \frac{\Gamma}{1 - v_{fp}/v_{gL}} - \Gamma \frac{v_{fp}}{v_{ph} \{\omega_a\}} \frac{(L-z)^2 (1 - v_{fp}/v_{ph} \{\omega_a\})}{b_e^2} \right) z. \end{aligned} \quad (6.47)$$

Припустимо, що антистоксова поляризація $P_a^{(NL)} \{t, \vec{r}\}$ досягає

максимального значення $P_{0a,\max}^{(NL)}$ у фокальній точці, а розподіл амплітуди є гаусовим із напівшириною b_e на рівні e^{-1} упродовж вісі z і напівшириною a_f за x та y . Тоді з урахуванням фази (6.47)

$$P_a^{(NL)}\{t, \vec{r}\} = P_{0a,\max}^{(NL)} \exp(-i\varphi_{ap}) \exp\left[-\frac{x^2 + y^2}{a_f^2} - \frac{(z - v_{fp}t)^2}{b_e^2}\right]. \quad (6.48)$$

Спад амплітуди поляризації за віссю z на віддалі від точки z_{fp} дає змогу використовувати лінійну апроксимацію (6.47) для фази φ_{ap} , оскільки похибка у визначенні фази поляризації нівелюється малою амплітудою поляризації.

Підставляючи (6.48) та (6.47) в (6.1), після аналітичного інтегрування за змінними t, x, y для кута $\theta = 0$ отримуємо вираз, у якому необхідно виконати чисельне інтегрування лише впродовж z :

$$W_{\omega\theta}^{(a)}\{\theta = 0\} \equiv W_{\omega 0}^{(a)} = \frac{n_a \omega_a^4 a_f^4 b_e^2}{8\varepsilon_0 v_{fp}^2 c^3} P_{0a,\max}^{(NL)} \left| \int_{L-\Delta L}^L \exp\left[-\frac{b_e^2}{4v_{fp}^2} \times \right. \right. \\ \times \left(\omega_a - \omega_{0a} - \frac{\Gamma v_{fp}}{1 - v_{fp}/v_{gL}} + \frac{\Gamma v_{fp}}{b_e^2} (L-z)^2 \left(1 - \frac{v_{fp}}{v_{ph}\{\omega_a\}}\right) \right)^2 \\ \left. \left. - i \left[k_a - k_{p0a} - \frac{\omega_a - \omega_{0a}}{v_{fp}} - \frac{\Gamma}{b_e^2} (L-z)^2 \left(1 - \frac{v_{fp}}{v_{ph}\{\omega_a\}}\right) \right] z \right] dz \right|^2. \quad (6.49)$$

Перед тим, як виконувати подальші чисельні розрахунки з використанням (6.49), зробимо попередній аналіз цієї формули з метою порівняння з попередніми результатами (розд. 6.1 та розд. 6.2).

У випадку $(L-z) \rightarrow 0$ (тобто, поблизу вихідної межі середовища) або $v_{fp} \approx v_{ph}\{\omega_a\}$ вираз (6.49) набуває вигляду:

$$W_{\omega 0}^{(a)} = \frac{n_a \omega_a^4 a_f^4 b_e^2}{8 \epsilon_0 v_{fp}^2 c^3} P_{0a, \max}^{(NL) 2} \times \left| \int_{L-\Delta L}^L \exp \left[-\frac{b_e^2}{4 v_{fp}^2} \left(\omega_a - \omega_{0a} - \frac{\Gamma v_{fp}}{1 - v_{fp}/v_{gL}} \right)^2 - i \left(k_a - k_{p0a} - \frac{\omega_a - \omega_{0a}}{v_{fp}} \right) z \right] dz \right|^2,$$

який після інтегрування за координатою z та знаходження $|\dots|^2$ дає

$$W_{\omega 0}^{(a)} = \frac{n_a \omega_a^4 a_f^4 b_e^2 \Delta L^2}{16 \epsilon_0 v_{fp}^2 c^3} P_{0, \max}^{(NL) 2} \exp \left[-\frac{1}{2} \left(\omega_a - \omega_{0a} - \frac{\Gamma v_{fp}}{1 - v_{fp}/v_{gL}} \right)^2 \frac{b_e^2}{v_{fp}^2} \right] \times \times \text{sinc}^2 \left[\frac{\Delta L}{2} \left(k_a - k_{p0a} - \frac{\omega_a - \omega_{0a}}{v_{fp}} \right) \right],$$

що повністю узгоджується з (6.15) для кута розсіювання $\theta = 0$.

Опис розсіювання антистоксової компоненти з кутами $\theta \neq 0$ вимагає додаткових уточнень. Повернемося до виразів (6.41) та використаємо рис. 6.12.

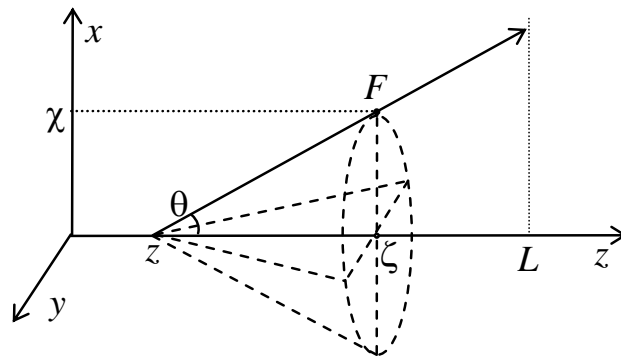


Рис. 6.12. Розповсюдження розсіяного випромінювання з точки z до межі середовища (на рис. пояснюються введені позначення у тексті).

Нехай розсіяне конусне випромінювання в аксіальній площині $y = 0, x, z$, в якій розташована вхідна щілина реєструючого спектрографа,

розповсюджується з точки z під кутом θ (рис. 6.12). Припустимо, що деякий фазовий фронт хвилі вийшов із точки z у момент часу t . В точці F фазовий фронт набуває позовжньої координати ζ і є віддаленим від осі z на $\chi = (\zeta - z) \operatorname{tg} \theta$, а від точки z на $\sqrt{(\zeta - z)^2 + \chi^2}$. Тому в точку ζ антистоксова хвиля надходить за часу

$$t + \sqrt{(\zeta - z)^2 + \chi^2} / v_{ph} \{ \omega_a \} = t + (\zeta - z) / (v_{ph} \{ \omega_a \} \cos \theta).$$

Фокальна точка в цей момент займе координату $v_{fp} \left(t + (\zeta - z) / (v_{ph} \{ \omega_a \} \cos \theta) \right)$. Відстань між фронтом і фокальною точкою становитиме $\zeta - v_{fp} \left(t + (\zeta - z) / (v_{ph} \{ \omega_a \} \cos \theta) \right)$ за віссю z і $(\zeta - z) \operatorname{tg} \theta$ вподовж осі x . Таким чином, збільшення модуля хвильового вектора в точці F (рис. 6.12) набуває значення

$$\Delta k_a \{ t, \zeta \} = \Gamma \exp \left[- \left(\frac{(\zeta - z) \operatorname{tg} \theta}{a_f} \right)^2 - \left(\frac{\zeta - v_{fp} \left(t + \frac{\zeta - z}{v_{ph} \{ \omega_a \} \cos \theta} \right)}{b_e} \right)^2 \right]. \quad (6.50)$$

Для обрахунку затримки $\Delta \varphi_a \{ t, z \}$ фази приріст модуля хвильового вектора $\Delta k_a \{ t, \zeta \}$ антистоксової компоненти (6.50) маємо інтегрувати (див. 6.41) за ζ у межах $z \div L$. Проте, використання (6.50) без додаткових наближень суттєво ускладнює процедуру отримання апроксимаційного аналітичного виразу $\Delta \varphi_a \{ t, z \}$ для $\theta \neq 0$, аналогічного (6.46).

Прийнятним спрощенням є наступне подання $\Delta \varphi_a \{ t, z \}$ для джерел з максимальною амплітудою коливань у фокальній точці:

$$\Delta\varphi_a \Big|_{z=z_{fp}, t=z_{fp}/v_{fp}} = \Gamma \int_{z_{fp}}^{L_{z\theta}} \exp \left[-\frac{(\zeta - z_{fp})^2}{b_e^2} \left(1 - \frac{v_{fp}}{v_{ph} \{\omega_a\} \cos \theta} \right)^2 \right] d\zeta, \quad (6.51)$$

де у порівнянні з (6.42) замінено $v_{ph} \{\omega_a\}$ на $v_{ph} \{\omega_a\} \cos \theta$ і верхню межу L інтегрування на мінімальне значення $L_{z\theta} = \text{Min} \left[L; z + a_f \sqrt{\pi} / (2 \sin \theta) \right]$ з двох вказаних величин. Зауважимо, що промінь, виходячи з точки z під кутом θ , набуває поперечної координати $x = a_f$ у точці $z + a_f / \text{tg} \theta \approx z + a_f / \sin \theta$, де покидає область, у якій зміни показника заломлення внаслідок самофокусування є суттєвими.

Можливість використання (6.51) перевірялася чисельними розрахунками. З фізичної точки зору вираз (6.51) є наслідком заміни гаусового розподілу Δk_a за віссю x на ступінчастий розподіл у фокальній площині $z = z_{fp}$

$$\Delta k_a \{ |x| = 0 \div a_f \} = \Gamma, \quad \Delta k_a \{ |x| > a_f \} = 0$$

зі збереженням результуючого значення $\Delta\varphi_a \Big|_{t=z_{fp}/v_{fp}}$ для хвиль, які розповсюджуються з фокальної точки за співвідношення швидкостей $v_{fp} / v_{ph} \{\omega_a\} \approx 1$. Використано корегуючий коефіцієнт для a_f : $a_f \rightarrow a_f \sqrt{\pi} / 2$.

Оскільки, формально вираз (6.51) ідентичний отриманому раніше виразу (6.42) після замін $L \rightarrow L_{z\theta}$, $v_{ph} \{\omega_a\} \rightarrow v_{ph} \{\omega_a\} \cos \theta$, то такі підстановки дають змогу подальшого використання також результатів (6.46), (6.47) у випадку $\theta \neq 0$ і $v_{fp} \approx v_{ph} \{\omega_a\}$.

Для опису частотно-кутової структури антистоксової компоненти важливим є врахування фази хвиль утворюваних у межах всієї фокальної області. Обмежимося урахуванням змін Δn у фокальній площині, де амплітуда

нелінійної поляризації є максимальною. За такого наближення у попередніх виразах необхідно виконати заміну

$$\Gamma \rightarrow \Gamma \exp\left(-\frac{x^2 + y^2}{a_f^2}\right).$$

Крім цього, для кутів $\theta \neq 0$ в (6.1) маємо врахувати, що $\vec{k}_a \vec{r} = \Delta k_{\perp} x + (\Delta k_{\parallel} + k_{p0a}) z$, де $\Delta k_{\perp} = k_a \sin \theta$ і $\Delta k_{\parallel} = k_a \cos \theta - k_{p0a}$. Після всіх уточнень і перед подальшим чисельним інтегруванням за x та y вираз для частотно-кутової густини енергії $W_{\omega\theta}^{(a)}$ набуває вигляду

$$\begin{aligned} W_{\omega\theta}^{(a)} = & \frac{n_a \omega_a^4 b_e^2 P_{0a,\max}^{(NL)2}}{16\pi^2 \varepsilon_0 v_{fp}^2 c^3} \left| \int_0^{\infty} dx \int_0^{\infty} dy \int_{L-\Delta L}^L \exp\left[-\frac{x^2 + y^2}{a_f^2} - ik_{\perp} x - \frac{b_e^2}{4v_{fp}^2} \times \right. \right. \\ & \times \left. \left(\omega_a - \omega_{0a} - \frac{\Gamma v_{fp}}{1 - v_{fp}/v_{ga}} + \frac{\Gamma v_{fp}}{b_e^2} (L_{z\theta} - z)^2 \left(1 - \frac{v_{fp}}{v_{ph}\{\omega_a\} \cos \theta}\right) \right)^2 - \right. \\ & \left. \left. - i \left(\Delta k_{\parallel} - \frac{\omega_a - \omega_{0a}}{v_{fp}} - \frac{\Gamma}{b_e^2} (L_{z\theta} - z)^2 \left(1 - \frac{v_{fp}}{v_{ph}\{\omega_a\} \cos \theta}\right)^2 \right) z \right] dz \right|^2. \end{aligned} \quad (6.52)$$

Розрахунки виконувалися для ВКР у толуолі з комбінаційним зсувом антистоксової компоненти $(\omega_{0a} - \omega_{0L})/2\pi c = 1004 \text{ см}^{-1}$. Використані дані про залежність $n_{\omega} \equiv n\{\omega\}$ згідно (6.24). Вважалося, що $a_f = 5 \text{ мкм}$. Значення Γ вибиралось оптимальним (Γ_{opt}), яке залежить від v_{fp} (див. (6.20), (6.31)):

$$\Gamma_{\text{opt}} = \frac{k_{0a} - k_{p0a}}{1 + v_{fd}(v_{gL}^{-1} - v_{g0a}^{-1})} = \frac{k_{0a} - k_{p0a}}{1 - (1 - v_{gL}/v_{g0a})/(1 - v_{gL}/v_{fp})}. \quad (6.53)$$

Для Γ_{opt} (6.53) у наближенні лінійної дисперсії виконується узгодження $\Delta\omega^{(\text{sh})} = \Delta\omega^{(\text{sync})}$, тож забезпечується максимальна ефективність генерації антистоксової компоненти. Для толуолу типове значення $\Gamma_{\text{opt}} \approx k_{0a} - k_{p0a} = 46 \text{ см}^{-1}$.

На рис. 6.13 подано залежність пікової за частотою ω_a густини енергії $W_{\omega 0, \text{max}}^{(a)}$ осьового антистоксового випромінювання, отриманої на основі (6.49), від швидкості фокальної області для $b_e = 0,1 \text{ см}$ та різних значень ΔL : а) $\Delta L = 1 \text{ см}$, б) $\Delta L = 2 \text{ см}$, в) $\Delta L = 3 \text{ см}$.

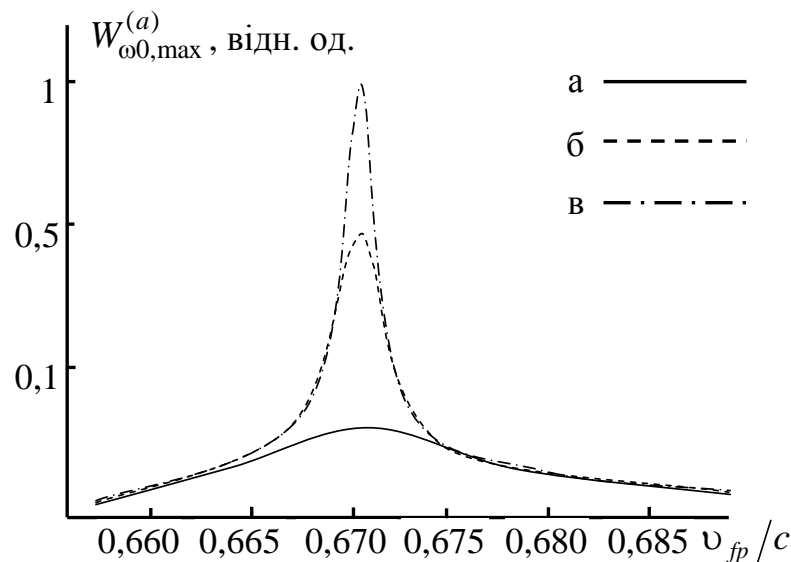


Рис. 6.13. Залежність пікової густини енергії випромінювання осьової антистоксової компоненти від нормованої швидкості v_{fp}/c руху фокальної області для $b_e = 0,1 \text{ см}$ та різних значень ΔL : а) $\Delta L = 1 \text{ см}$, б) $\Delta L = 2 \text{ см}$, в) $\Delta L = 3 \text{ см}$.

Густину енергії на рис. 6.13 наведено у відносних одиницях. Максимум $W_{\omega 0, \text{max}}^{(a)}$ за швидкістю фокальної області припадає на $v_{fp} = 0,67c$. Навіть невеликі відхилення від цієї швидкості призводять до суттєвого зменшення

густини енергії. У випадку зростання довжини ΔL ділянки самофокусуємого середовища, яку пробігає фокальна область, спостерігається звуження діапазону допустимих швидкостей.

Швидкість v_{fp} фокальної області визначає також частотне розташування піку енергії антистоксового випромінювання у спектрі. На рис. 6.14 показана залежність величини пікової густини енергії (у безрозмірних одиницях) від частотного зсуву $(\omega_a - \omega_{0a}) / 2\pi c$ відносно комбінаційної антистоксової частоти ω_{0a} , який визначається v_{fp} .

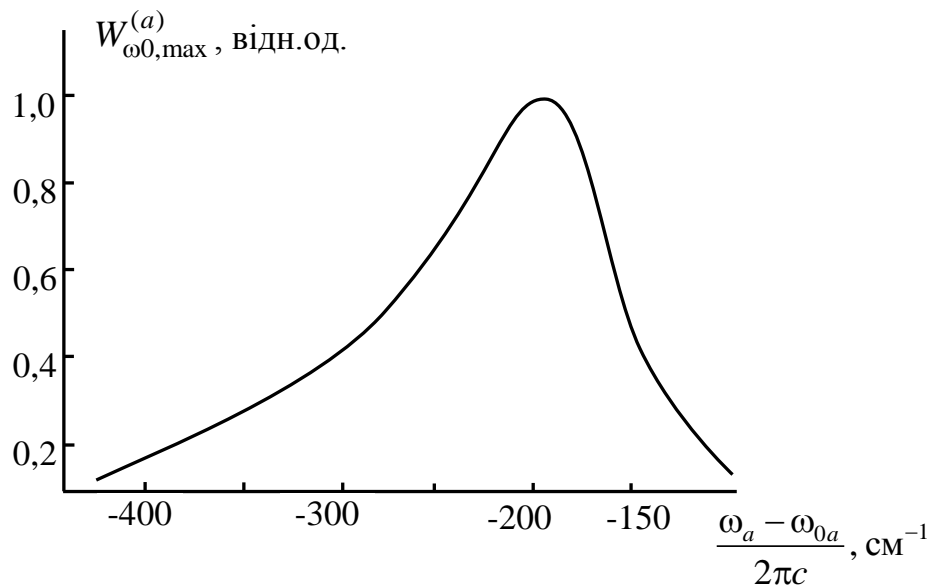


Рис. 6.14. Залежність пікової густини $W_{\omega_{0,max}}^{(a)}$ енергії випромінювання осьової антистоксової компоненти від частотного зсуву $(\omega_a - \omega_{0a}) / 2\pi c$ для $b_e = 0,1$ см та $\Delta L = 1$ см.

Максимальне значення пікової густини енергії $W_{\omega_{0,max}}^{(a)}$ на рис. 6.14 спостерігається на частоті ω_a випромінювання антистоксової компоненти, фазова швидкість якого збігається зі швидкістю фокальної області та початковою фазовою швидкістю ω_{0a} / k_{p0a} поляризації на вході у середовище:

$$(\omega_a - \omega_{0a}) / 2\pi c = -197 \text{ см}^{-1}, v_{ph} \{ \omega_a \} = \omega_{0a} / k_{p0a} = v_{fp} = 0,67c.$$

На рис. 6.15 зображено залежність повної ширини $\Delta\omega_{1/2}$ спектра антистоксової компоненти на рівні 0,5 від швидкості руху фокальної області за значень $L=1$ см та $b_e=0,1$ см. Мінімальна ширина спектра реалізується у випадку $v_{fp}=0,67c$ і складає близько $2,5$ см^{-1} .

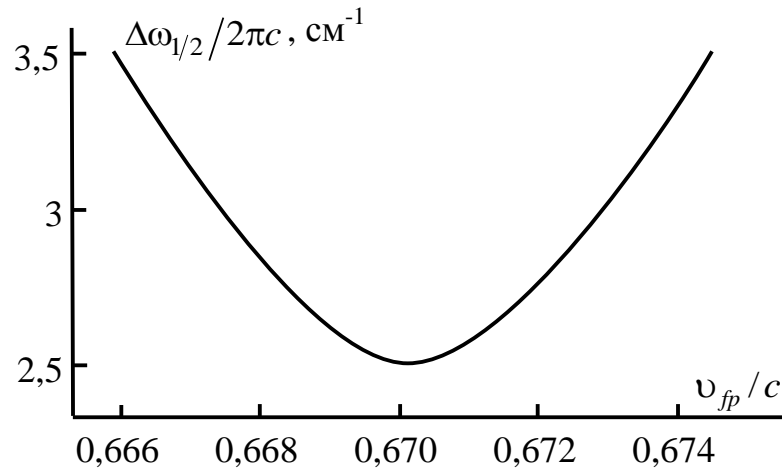


Рис. 6.15. Залежність ширини спектра $\Delta\omega_{1/2}/2\pi c$ випромінювання антистоксової компоненти (на напіввисоті) від нормованої швидкості v_{fp}/c руху фокальної області ($b_e=0,1$ см, $\Delta L=1$ см).

Для швидкості $v_{fp}=0,67c$ спектр $W_{\omega 0}^{(a)}$ осьової антистоксової компоненти подано на рис. 6.16. Максимум енергії $W_{\omega 0, \max}^{(a)}$ припадає на частоту $(\omega_a - \omega_{0a}) / 2\pi c = -197$ см^{-1} .

Наведені залежності отримано з використанням виразу (6.49) для осьового випромінювання. Повний частотно-кутовий розподіл $W_{\omega \theta}^{(a)}$ енергії випромінювання антистоксової компоненти описується виразом (6.52). Для швидкості $v_{fp}=0,67c$ та $b_e=0,1$ см, $\Delta L=1$ см розташування розрахованої частотно-кутової смуги $W_{\omega \theta, \max}^{(a)} \{ \theta, \omega_a \}$ подано на рис. 6.17 (суцільна лінія). Для порівняння наведена експериментальна залежність (пунктирна лінія). Теоретична крива простягається до -197 см^{-1} в стоксів бік, а експериментальна

має максимальний зсув частоти: -235 см^{-1} . За кутами для теоретичних та експериментальних залежностей маємо діапазон змін ± 86 кут.хв. і ± 71 кут.хв., відповідно.

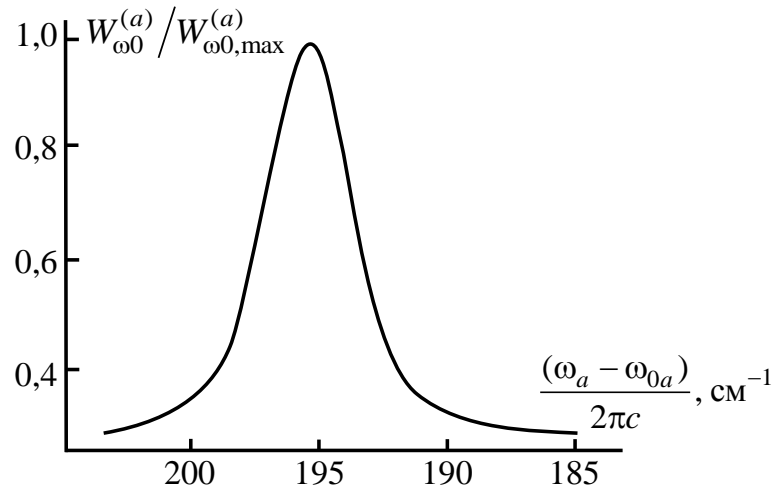


Рис. 6.16. Спектр випромінювання $W_{\omega_0}^{(a)}$ осьової антистоксової компоненти за швидкості $v_{fp} = 0,67c$ ($b_e = 0,1 \text{ см}$, $\Delta L = 1 \text{ см}$).

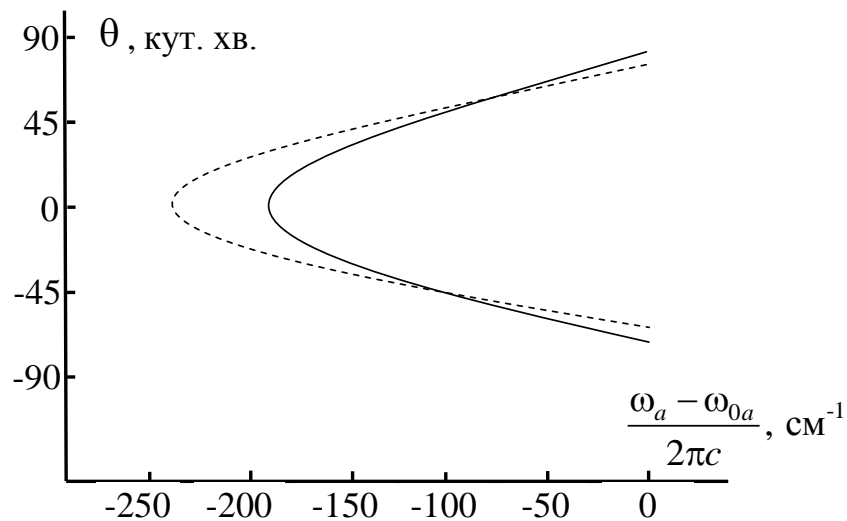


Рис. 6.17. Частотно-кутові смуги $W_{\omega_0, \max}^{(a)} \{ \theta, \omega_a \}$ випромінювання антистоксової компоненти: суцільна лінія – теоретична ($v_{fp} = 0,67c$, $b_e = 0,1 \text{ см}$, $\Delta L = 1 \text{ см}$); пунктирна лінія – експериментальна смуга.

Кутові зрізи теоретичного розподілу $W_{\omega\theta}^{(a)}\{\theta\}$ для деяких частотних зсувів ω_a показано на рис. 6.18, які демонструють кутове розширення антистоксового випромінювання.

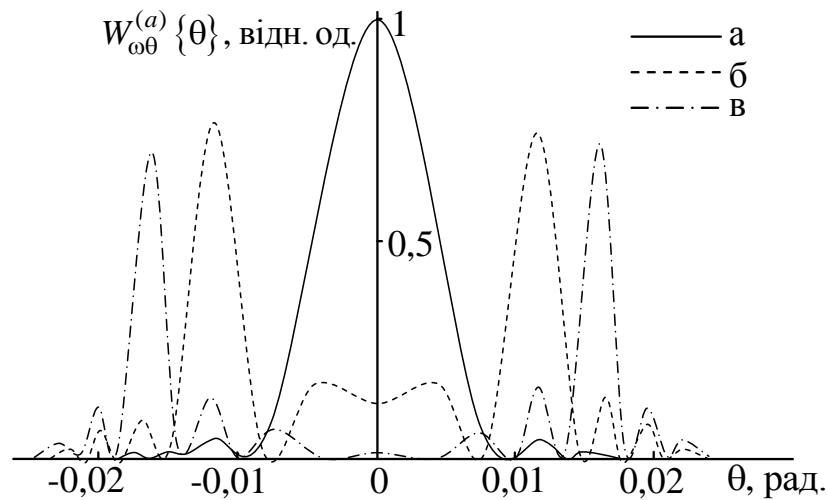


Рис. 6.18. Кутові залежності густини енергії $W_{\omega\theta}^{(a)}\{\theta\}$ випромінювання антистоксової компоненти у випадку $v_{fp} = 0,67c$, $b_e = 0,1$ см, $\Delta L = 1$ см для частотних зсувів $(\omega_a - \omega_{0a}) / 2\pi c$: а) -197 см $^{-1}$, б) -150 см $^{-1}$, в) -110 см $^{-1}$.

6.4. Інтерпретація антистоксового вимушеного комбінаційного розсіювання черенковського типу.

Дослідження доводять, що частотно-кутова густина енергії антистоксової компоненти ВКР, енергія фотонів якої перевищує енергію фотонів збуджуючого випромінювання, істотно залежить від швидкості руху фокальної точки самофокусування у ВКР-активних керівських рідинах. За певних умов формується з високою ефективністю частотно-кутова індикатриса випромінювання черенковського типу (рис. 6.17). Індикатриса теоретично описується співвідношенням: $\cos\theta\{\omega_a\} \approx v_{ph}\{\omega_a\}/v_{p0a}$, де $v_{p0a} = \omega_{0a}/k_{p0a}$ – фазова швидкість хвилі нелінійної поляризації середовища на частоті ω_{0a} .

На рис. 6.19 подано залежність $\theta = \arccos\left[\frac{v_{ph}\{\omega_a\}}{v_{p0a}}\right]$ для толуолу, в якому $v_{p0a} = 0,670062c \approx 0,67c$. Наведена залежність ідентична до зображеного на рис. 6.17 результату теоретичного розрахунку, отриманого з урахуванням фазової самомодуляції лазерного випромінювання на шляху до фокальної точки та фазової модуляції антистоксового випромінювання на виході з фокальної області. Але наголосимо, функція $\arccos\left[\frac{v_{ph}\{\omega_a\}}{v_{p0a}}\right]$ ніяким чином не враховує самофокусування та фазову модуляцію. Тож необхідні додаткового пояснення.

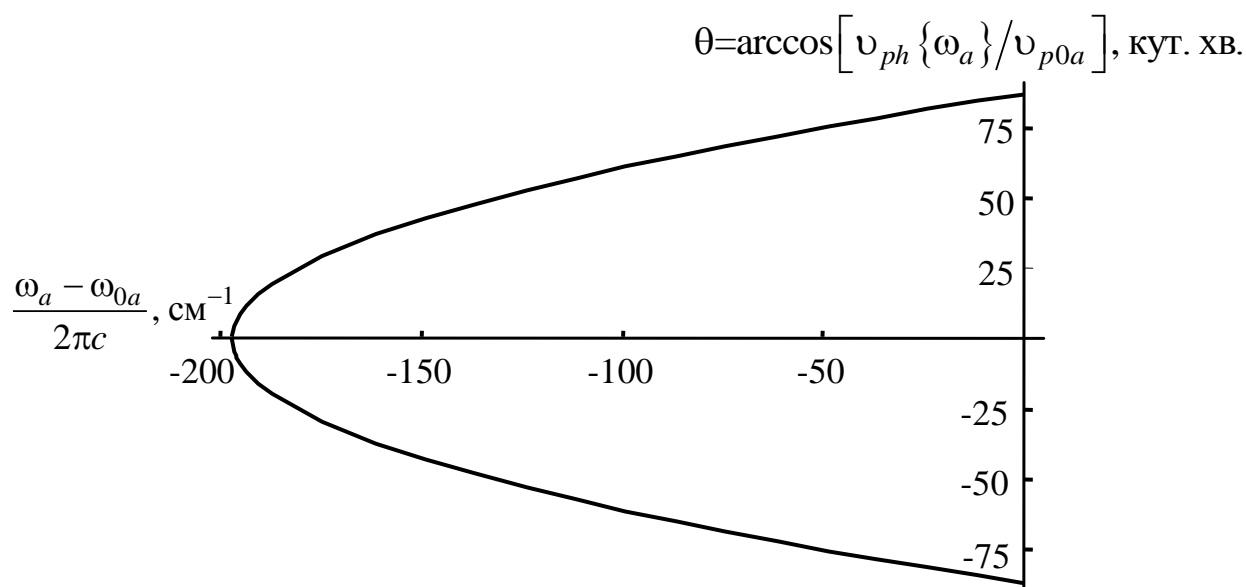


Рис. 6.19. Залежність функції $\theta = \arccos\left[\frac{v_{ph}\{\omega_a\}}{v_{p0a}}\right]$ для толуолу від $(\omega_a - \omega_{0a}) / 2\pi c$ в антистоксовій області.

Ситуація, яку ми розглянули на прикладі толуолу для першої антистоксової компоненти, є типовою для інших самофокусуєчих рідин, зокрема, для бензолу, бромбензолу, орто-ксилолу [122]. Більш того, аналогічна ситуація виникає з вищими антистоксовими компонентами [124].

Зазначимо, що індикатриса та енергія власне черенковського випромінювання повністю описуються з використанням (6.1) або у більш

загальному випадку з використанням (4.15). Деталі опису містяться в розд. 4.1.

Перейдемо до інтерпретації отриманих результатів. Важливими у формуванні частотно-кутової індикатриси антистоксової компоненти є, насамперед, дві обставини за наведеним нижче списком.

1. Фазова самомодуляція збуджуючого лазерного випромінювання веде до утворення антистоксової нелінійної поляризації середовища з частотою та фазовою швидкістю, що зміщені відносно таких же параметрів у випадку відсутності самофокусування. За врахування цього фактора спектр антистоксової компоненти описано в розд. 6.1 та 6.2.

2. За деяких швидкостей v_{fp} фокальної точки та її розташування не менш істотною є і фазова модуляція самої антистоксової компоненти на шляху від фокальної області до межі середовища. Оптична довжина цього шляху залежить від часу, фазової швидкості антистоксової компоненти та швидкості фокальної точки. Всяка зміна у часі оптичного шляху викликає ефект Доплера. Альтернативним та більш прийнятним у даному випадку є врахування змін оптичного шляху на основі ефекту фазової модуляції.

Пояснення взаємного впливу вказаних факторів можливе з використанням діаграми Еренфеста [151] в осях з довжинами хвиль λ (у середовищі) та фазових швидкостей $v_{ph}\{\lambda\}$ цих хвиль. Розгляд діаграми Еренфеста виявляє основні закономірності утворення широкосмугового випромінювання антистоксової компоненти ВКР в самофокуруючих середовищах. На рис. 6.20 діаграма побудована на прикладі толуолу, в якому $(\omega_{0a} - \omega_{0L}) / 2\pi c = 1004 \text{ см}^{-1}$, для кута $\theta = 0$ (осьове розсіювання).

Без урахування зміни показника заломлення поляризація антистоксової компоненти займає на діаграмі координати $P_0\{\lambda = \lambda_{p0a}, v_{ph} = v_{p0a}\}$, які становлять: $\lambda_{p0a} = 2\pi / k_{p0a} \approx 434,9 \text{ нм}$, $v_{p0a} = \omega_{0a} / k_{p0a} \approx 0,6701c$. Внаслідок дисперсії показника заломлення координати P_0 не належать дисперсійній кривій D вільних електромагнітних хвиль у середовищі, яка описується функцією $v_{ph}\{\lambda\}$. Фазова швидкість v_{p0a} поляризації перевищує швидкість

вільних електромагнітних хвиль з такою ж довжиною хвилі або частотою:

$$v_{ph} \left\{ \lambda = \lambda_{p0a} = 2\pi/k_{p0a} = 434,9 \text{ нм} \right\} = 0,669852, \quad v_{ph} \left\{ \omega_{0a} \right\} = 0,669846. \quad \text{Тож}$$

швидкість v_{p0a} є надсвітловою для даного середовища.

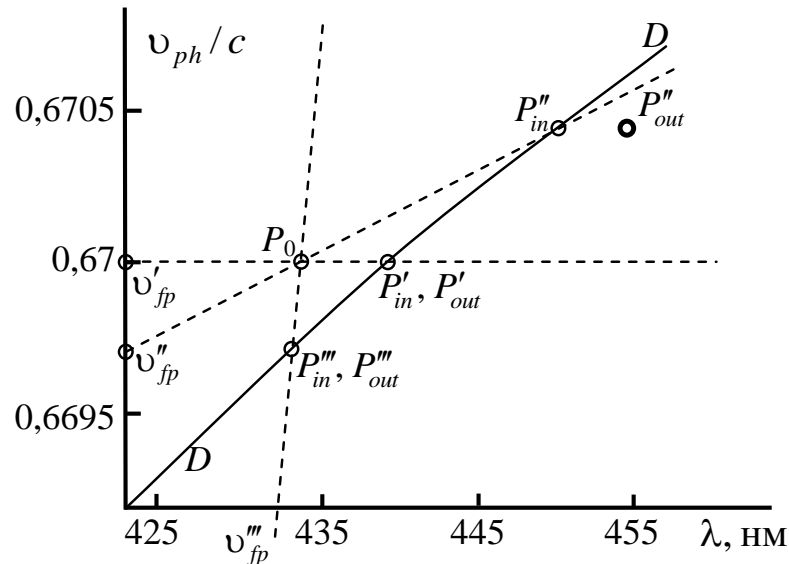


Рис. 6.20. Діаграма Еренфеста для толуолу ($\theta = 0, \Gamma = \Gamma_{opt}$).

Часові зміни оптичного шляху лазерного випромінювання на шляху до фокальної точки самофокусування викликають фазову самомодуляцію, а тому змінюють частоту, довжину хвилі та фазову швидкість утвореної нелінійної поляризації у фокальній точці. З урахуванням фазової самомодуляції лазерного випромінювання на шляху до фокальної точки нелінійна поляризація антистоксової компоненти набуває нових координат на рис. 6.20.

Нові координати поляризації в центрі фокальної точки для вибраних на діаграмі швидкостей $v'_{fp} = v_{p0a}$, $v''_{fp} = 0,985v_{p0a}$, $v'''_{fp} \rightarrow 0$ фокальної точки мають значення, які відповідають точкам P'_{in} , P''_{in} , P'''_{in} з індексом *in* (input). Вказані координати визначаються швидкістю фокальної точки та наведеною в ній зміною Δn_f показником заломлення, що пов'язаний з $\Gamma = k_L \{z_{fp}\} - k_{0L} = \tilde{P}\gamma k_{vL} = \Delta n_f k_{vL}$. Для всіх точок $P_{in} \{\lambda, v_{ph}\}$ з використанням (6.47) маємо деяке, залежне від Γ , значення координат

$$P_{in} \{ \lambda, \nu_{ph} \} = P_{in} \left\{ \frac{2\pi}{k_{p0a} + \frac{\Gamma}{1 - \nu_{fp}/\nu_{gL}}}, \frac{\omega_{0a} + \frac{\Gamma \nu_{fp}}{1 - \nu_{fp}/\nu_{gL}}}{k_{p0a} + \frac{\Gamma}{1 - \nu_{fp}/\nu_{gL}}} \right\}, \quad (6.54)$$

які можна розрахувати. Проте, насамперед зробимо загальний аналіз без конкретизації значень ν_{fp} і Γ .

З урахуванням лише фазової самомодуляції лазерного випромінювання на шляху до фокальної точки (на це вказує індекс in) координати поляризацій P'_{in} , P''_{in} , P'''_{in} за зміни Γ та заданого значення ν_{fp} зміщуються на діаграмі, але залишаються на лініях, що з'єднують точки $\nu_{ph} = \nu'_{fp}$ на осі ν_{ph} з P_0 , $\nu_{ph} = \nu''_{fp}$ з P_0 та $\nu_{ph} = \nu'''_{fp}$ з P_0 , відповідно. Це обумовлено тим, що зміна частоти $\delta\omega_{in} = \omega_a - \omega_{0a} = \Gamma \nu_{fp} / (1 - \nu_{fp}/\nu_{gL})$ антистоксової поляризації і модуля $\delta k_{in} = k_{pa} - k_{p0a} = \Gamma / (1 - \nu_{fp}/\nu_g)$ її хвильового вектора внаслідок фазової самомодуляції лазерного випромінювання на шляху до фокальної точки пов'язані співвідношенням $\delta\omega_{in} / \delta k_{in} = \nu_{fp}$. Таке співвідношення вказує на сталість групової швидкості різних хвиль антистоксової поляризації за зміни Γ та збігання її з ν_{fp} . Сама ж групова швидкість двох хвиль на діаграмі визначається як перетин лінії, що сполучає координати хвиль з віссю ν_{ph} .

Збільшення Γ віддаляє точки P'_{in} , P''_{in} , P'''_{in} від P_0 . За нульового Γ маємо збігання координат точок: $P'_{in} = P''_{in} = P'''_{in} = P_0$.

Для оптимальних значень Γ_{opt} (6.53) координати P'_{in} , P''_{in} , P'''_{in} розташовуються на дисперсійній кривій D (рис. 6.20). У цьому випадку виконуються як загальна умова амплітудно-фазового синхронізму (швидкість фокальної точки, де амплітуда поляризації максимальна, збігається зі взаємною груповою швидкістю хвилі поляризації і вільної електромагнітної хвилі), так і умова фазового синхронізму (узгодженість фазової швидкості хвилі поляризації

та фазової швидкості антистоксової хвилі, що мають однакові частоти).

Якщо $\Gamma\{a_f, \dots\} \neq \Gamma_{opt}$, то точка, що відповідає поляризації, не лежить на дисперсійній кривій і виконується лише умова амплітудно-фазового синхронізму для антистоксової хвилі, що відповідає координаті перетину січних прямих ліній (лінії, що з'єднують точки $v_{ph} = v'_{fp}$ на осі v_{ph} з P_0 , $v_{ph} = v''_{fp}$ з P_0 та $v_{ph} = v'''_{fp}$ з P_0 .) з дисперсійною кривою.

Особливості спостерігаються для швидкості $v'_{fp} = v_{p0a}$. Для цієї швидкості за довільних Γ виконується як амплітудно-фазовий синхронізм для антистоксової хвилі, яка відповідає координаті перетину січної прямої лінії, що з'єднує точку $v_{ph} = v'_{fp}$ на осі v_{ph} з P_0 , з дисперсійною кривою, так і рівність фазових швидкостей поляризації з антистоксовою хвилею, незважаючи на відмінність їх частот (фазовий синхронізм не виконується).

Урахування фазової само модуляції на виході (на це вказує індекс *out*) з фокальної області змінює ситуацію, але в залежності від швидкості v_{fp} . Для швидкостей $v'_{fp} = v_{p0a}$, $v'''_{fp} \rightarrow 0$ відповідні координати поляризацій P'_{out} , P'''_{out} на діаграмі залишаються незмінними. Для інших швидкостей v_{fp} , а на рис. 6.20 це $v''_{fp} = 0,985v_{p0a}$, координата поляризації P''_{out} залежать від розташування $z = v''_{fp}t$ фокальної точки відносно межі L середовища (6.47).

Рух фокальної точки веде до зміщення P''_{out} приблизно паралельно осі λ . Це обумовлено тим, що додаткове зміщення спостережуваної частоти антистоксової поляризації (6.47)

$$\delta\omega_{out} = -\Gamma v_{fp} \frac{(L-z)^2 (1 - v_{fp}/v_{ph} \{\omega_a\})}{b_e^2}, \quad (6.55)$$

та її модуля хвильового вектора

$$\delta k_{out} = -\Gamma \frac{v_{fp}}{v_{ph}\{\omega_a\}} \frac{(L-z)^2 (1 - v_{fp}/v_{ph}\{\omega_a\})}{b_e^2}, \quad (6.56)$$

внаслідок фазової модуляції на шляху від фокальної точки до межі середовища пов'язані груповим співвідношенням $\delta\omega_{out} / \delta k_{out} = v_{ph}\{\omega_a\}$, у якому зміщення на діаграмі $\delta\omega_{out} \neq 0$ і $\delta k_{out} \neq 0$. На рис. 6.20 координати P''_{out} нанесені для $\Delta L = 5$ см, $b_e = 0,25$ мм, і оптимального значення $\Gamma = 27,5$ см⁻¹.

Зауважимо, в дійсності частота та модуль хвильового вектора нелінійної поляризація у фокальній точці не залежить від фазової модуляції вільних електромагнітних хвиль на шляху до межі середовища. Подана інтерпретація базується на розгляді спостережуваних властивостей поляризації на виході з середовища. Альтернативний опис полягає в урахуванні тих же змін $\delta\omega_{out}$, δk_{out} для вільних електромагнітних хвиль, але з протилежним знаком, тобто помноженими на „-”. У будь-якому випадку маємо зміщення за віссю λ на діаграмі (рис. 6.20) для точки P''_{out} .

Зміщення $P''_{out} \propto (L-z)^2$ за зміни розташування фокальної точки унеможливають ефективну ап-конверсію в антистоксову компоненту та формування виражених піків частотно-кутової густини енергії $W_{\omega\theta}^{(a)}$. У цьому випадку не забезпечується фазове узгодження електромагнітних хвиль в площині реєстрації з різних ділянок траси фокальної точки. Для v''_{fp} не виконується навіть амплітудно-фазовий синхронізм, а тим паче умови фазового та групового синхронізмів на всьому шляху фокальної точки самофокусування.

У діапазоні, де швидкість v_{fp} є близькою до фазової швидкості світла у середовищі, спостерігається максимум (рис. 6.16) для швидкості $v_{fp} = v_{p0a}$ фокальної точки, рівній фазовій швидкості світла на частоті нелінійної поляризації у фокальній точці і фазовій швидкості самої поляризації.

У цьому випадку фазова самомодуляція лазерного випромінювання, яке

попадає у фокальну точку, зміщує частоту нелінійної поляризації, але не впливає на її фазову швидкість – фазова швидкість поляризації залишається такою ж, як і за відсутності самофокусування. З іншого боку, фазова самомодуляція антистоксової компоненти на виході з фокальної області не впливає ні на частоту, ні на фазову швидкість випромінювання.

Максимальна густина енергії осьового випромінювання антистоксової компоненти припадає на частоту, яка визначається умовою, подібною до умови виникнення черенковського випромінювання: рівність фазової швидкості електромагнітної хвилі на частоті ω_a і фазової швидкості поляризації на антистоксовій комбінаційній частоті ω_{0a} . Для толуолу зміщення частоти становить $(\omega_a \{ \theta = 0 \} - \omega_{0a}) / (2\pi c) = -197 \text{ см}^{-1}$.

Для кутів $\theta \neq 0$ у випадку $v_{fp} = v_{p0a}$ частотно-кутові смуги антистоксової компоненти описуються співвідношенням (рис. 6.19)

$$\cos \theta \{ \omega_a \} \approx v_{ph} \{ \omega_a \} / v_{p0a},$$

яке у наближенні $\cos \theta \approx 1 - \theta^2/2$ дає параболи

$$\omega_a \{ \theta \} - \omega_{0a} \approx (\omega_a \{ \theta = 0 \} - \omega_{0a}) (1 - \theta^2 / \theta^2 \{ \omega_{0a} \}).$$

За вказаного співвідношення виконується амплітудно-фазовий синхронізм для довільних змін показника заломлення у фокальній області. Для оптимальних значень $\Gamma_{\text{opt}} \{ x, y, z \}$ приросту Δk_L забезпечується рівність проєкцій хвильових векторів поляризації та хвилі антистоксової компоненти на повздовжню вісь, що є важливим в умовах поперечної обмеженості області існування нелінійної поляризації за самофокусування.

Теоретичні результати узгоджуються з експериментальними даними. Наявність відмінностей обумовлена змінами ефективного хвильового вектора сфокусованої лазерної хвилі у фокальній точці, які залежать від конфокального параметра навіть у випадку застосування звичайних лінз.

Коротко резюмуючи, визначимо можливість аналогій між індикатрисами антистоксової компоненти ВКР в умовах самофокусування і черенковським випромінюванням.

Частотно-кутова густина енергії обох процесів описується (6.1) і вони відбуваються за суттєвої поперечної обмеженості області існування поляризації.

Для ефекту Вавілова-Черенкова джерелом випромінювання є поляризація (об'ємна густина дипольного моменту), яка обумовлена зміною розташування вільного електрона або іншої зарядженої частинки із зарядом q зі швидкістю v_q . Поляризація середовища за опису ефекту Вавілова-Черенкова не враховується. Внаслідок руху частинки спектральна компонента поляризації $P_\omega = \int_{-\infty}^{\infty} P(t, \mathbf{r}) \exp[i\omega t] dt$ з частотою ω має на осі z модуль хвильового вектора ω/v_q та фазову швидкість $\omega/(\omega/v_q) = v_q$, оскільки (4.19):

$$P_\omega \{z, x = 0, y = 0\} = iq/(2\pi\omega) \exp(i\omega z/v_q).$$

З іншого боку, джерелом випромінювання антистоксової компоненти є нелінійна поляризація середовища у фокальній області. У випадку $v_{fp} = v_{p0a} = \omega_{0a}/k_{p0a}$ спектральні компоненти антистоксової поляризації з частотою $\omega = \omega_a$ з фокальної точки описуються виразом (див. (6.52))

$$P_\omega = \int_{-\infty}^{\infty} P_a^{(NL)} \{t, \vec{r}\} \exp[i\omega t] dt \square \exp \left[-\frac{b_e^2}{4v_{fp}^2} \left(\omega - \omega_{0a} - \frac{\Gamma v_{fp}}{1 - v_{fp}/v_{gL}} \right)^2 \right] \times \\ \times \exp \left[i \left((\omega - \omega_{0a})/v_{fp} + k_{p0a} \right) z \right].$$

Цей вираз показує, що модуль хвильового вектора спектральних компонент поляризації у випадку $v_{fp} = v_{p0a} = \omega_{0a}/k_{p0a}$ становить ω/v_{p0a} , а їх фазова швидкість набуває значення $\omega/((\omega - \omega_{0a})/v_{fp} + k_{p0a}) = v_{p0a}$.

Тому за суттєвої поперечної обмеженості області існування поляризації для антистоксової компоненти ВКР маємо $\cos \theta\{\omega\} = v_{ph}\{\omega\}/v_{p0a}$, а для черенковського випромінювання: $\cos \theta\{\omega\} = v_{ph}\{\omega\}/v_q$

6.5. Висновки до Розділу 6.

У розділі подані результати досліджень впливу фазової самомодуляції лазерного випромінювання на спектр антистоксового ВКР: розглянено вплив фазової самомодуляції імпульсів накачування на спектр антистоксового ВКР світла з фокальної ділянки; описано спектральні закономірності антистоксового ВКР з околу фокальної точки за фазової самомодуляції; розроблено теоретичну модель і здійснено розрахунки та порівняльний аналіз із експериментальними даними стосовно фазомодульованого параметричного антистоксового ВКР на виході з самофокусуєчого середовища; інтерпретовано утворення антистоксового ВКР черенковського типу.

Основні результати, що наведені в розділі, стосуються взаємного впливу швидкості руху фокальної точки самофокусування та фазової самомодуляції на частотно-кутові спектри параметричної антистоксової компоненти ВКР.

Пояснено утворення протяжних антистоксових частотно-кутових смуг ВКР. У випадку збігання швидкості фокальної точки з фазовою швидкістю нелінійної поляризації на антистоксовій комбінаційній частоті та фазовою швидкістю розсіяного осьового випромінювання утворюються найінтенсивніші частотно-кутові смуги, які описуються співвідношеннями, характерними для черенковського випромінювання. Зокрема, за збудження наносекундними лазерними імпульсами в толуолі такі смуги сягають довжини близько 200 см^{-1} відносно комбінаційної антистоксової частоти у стоксів бік.

Основні результати розділу опубліковані в роботах [16, 21, 24, 25, 27].

РОЗДІЛ 7

ВИМУШЕНЕ КОМБІНАЦІЙНЕ РОЗСІЮВАННЯ ЗА МІНІМАЛЬНОЇ
ФОКУСНОЇ ВІДСТАНІ САМОФОКУСУВАННЯ ТА ВРАХУВАННЯ
ДОДАТКОВИХ ФАКТОРІВ ВПЛИВУ НА СПЕКТР ВИПРОМІНЮВАННЯ

7.1. Вплив релаксаційних осциляцій інтенсивності лазерного випромінювання на частотно-кутову структуру вимушеного комбінаційного розсіювання.

Насамперед зазначимо, що значну частину часу фокальна область самофокусування розташована поблизу мінімальної фокусної дистанції (точки зупинки фокальної точки) на вершині лазерного імпульсу. Відносно велика тривалість цього часу внаслідок малої швидкості фокальної області та максимальна амплітуда збуджуючої хвилі ведуть до переважного впливу на спектри ВКР саме цієї ділянки траси проходження лазерного імпульсу через самофокусує середовище. Зокрема, суттєво можуть впливати на спектр ВКР релаксаційні осциляції амплітуди нелінійної поляризації [165, 166].

У своїх дослідженнях даної проблеми ми виходили з того, що експериментальний поріг ВКР у самофокусує рідинах переважно визначається порогом самофокусування збуджуючого випромінювання. Якщо поріг самофокусування перевищено у 2÷3 рази, то у випадку світлових імпульсів тривалістю 1÷10 нс і довжини кювети ~10 см фокальна область з'являється спочатку біля вихідної межі середовища. Зростання миттєвої потужності на фронті лазерного імпульсу супроводжується рухом фокальної області у напрямку вхідної межі, тобто до лазера. За максимальної потужності фокус зупиняється на мінімальній відстані від вхідної межі (точка зупинки) і на спаді лазерного імпульсу фокус рухається у зворотному напрямку.

У фокальній області, яка за типових умов має радіус ~10 мкм та довжину ~1 мм, досягаються екстремально великі інтенсивності (~10 ГВт/см²) збуджуючого випромінювання, достатні для ефективного розсіяння у першу стоксову компоненту за комбінаційним механізмом. Надалі присутність у

фокальній області двох хвиль – лазерної та першої стоксової компоненти, внаслідок параметричного процесу викликає генерацію першої антистоксової компоненти. Послідовно в генерацію виходять і вищі комбінаційні та параметричні компоненти ВКР.

Амплітуда наведеної нелінійної поляризації, що є стороннім джерелом параметричних компонент, сягає максимального значення у фокальній області. Внаслідок руху фокальної області переміщується і область максимальної амплітуди поляризації. Як показано в розд. 5, це обумовлює відлаштування частоти ($\sim 10 \text{ см}^{-1}$) параметричних компонент від комбінаційних частот. Відлаштування відбувається у бік частоти, що задовольняє умову амплітудно-фазового синхронізму: умову синхронного з фокальною областю руху області синфазності поляризації та хвилі, яка генерується.

Проте значну частину часу, що припадає на вершину лазерного імпульсу, фокальна область має швидкість близьку до нуля. Зсув частоти за згаданим механізмом у цей час, коли фокальна область перебуває в околі точки зупинки, є незначною порівняно до відстройки частоти за іншими механізмами. На перший план, на наш погляд, може вийти механізм, пов'язаний з релаксаційними осциляціями амплітуди нелінійної поляризації.

У фокальній області розвивається не тільки ВКР у напрямку збуджуючого пучка, але й розсіяння у стоксову компоненту ВКР, що розповсюджується у зворотному напрямку. До того ж, якщо фокальна область рухається повільно або взагалі нерухома, як у точці зупинки, то, окрім стоксової хвилі ВКР у зворотному напрямку може генеруватися і стоксова хвиля вимушеного розсіяння Мандельштама-Брилюена, яке потребує тривалішого часу для розвитку, ніж ВКР. Розсіяне у зворотному напрямку випромінювання зустрічається зі збуджуючим пучком лазера і підсилюється, що сприяє ефективному виснаженню збуджуючого випромінювання. Внаслідок виснаження збуджуючого випромінювання припиняється самофокусування, а зрив останнього, в свою чергу, зупиняє розсіяння в області фокальної точки. Через певний час, протягом якого розсіяне раніше випромінювання у

зворотному напрямку залишить кювету, знову досягається поріг самофокусування і процес повторюється.

Період T_{ro} осциляцій інтенсивності стоксової компоненти визначається часом, необхідним, щоб світло пройшло відстань від вхідної межі середовища до фокальної області і назад: $T_{ro} \approx 2z_{fd}n/c$, де z_{fd} – фокальна дистанція самофокусування (у даному випадку це мінімальна дистанція); c – швидкість світла у вакуумі; n – показник заломлення світла в середовищі. Для $z_{fd}=10$ см та $n=1,5$ маємо період осциляцій $T_{ro} \approx 1$ нс.

Одночасно з інтенсивністю стоксової компоненти осцилюватиме з періодом T_{ro} й амплітуда наведеної у фокальній області нелінійної поляризації, що є стороннім джерелом параметричних компонент ВКР. Можна припустити, що у кожній осциляції наростання амплітуди поляризації відбувається за час τ_g інерційності розвитку ВКР, який становить ~ 1 пс. Спад амплітуди поляризації відбувається за час τ_d проходження світла фокальної області, але не менший, ніж тривалість поздовжньої релаксації комбінаційно-активного переходу. Для довжини фокальної області $b=1$ мм і $n=1,5$ знаходимо, що $\tau_d \approx bn/c=5$ пс. Таким чином, можна очікувати, що час τ_{ro} існування поляризації у кожній із осциляцій за порядком величини перебуває у межах $1 \div 10$ пс для типових ВКР-активних самофокусуємих рідин і є значно меншим періоду T_{ro} осциляцій. Це дає змогу обмежитися розрахунком частотно-кутової структури спектрів параметричних компонент ВКР для одного субімпульсу збуджуючого випромінювання, що самофокусується. Періодичність осциляцій веде лише до додаткової субструктури спектрів у масштабі $1/T_{ro} \square 1/\tau_{ro}$, яку експериментально спостерігати важко, оскільки $1/(2\pi c T_{ro}) \sim 0,01$ см⁻¹.

Для спрощення розрахунків будемо виходити з того, що всі хвилі поляризовані однаково та нелінійну поляризацію $P_{\omega_0}^{(NL)}$, яка є стороннім джерелом певної параметричної компоненти з частотою ω_0 та хвильовим

вектором \vec{k}_{p0} , у фокальній області можна подати у вигляді:

$$P_{\omega_0}^{(NL)} = P_{0\max}^{(NL)} F_t \{t\} F_{\perp} \{r_{\perp}\} F_z \{z - z_{fd}\} \exp[-i(\omega_0 t - \vec{k}_{p0} \vec{r})], \quad (7.1)$$

де $P_{0\max}^{(NL)}$ – максимальна амплітуда поляризації у фокальній області; $F_t \{t\}$ – функція, що описує часову зміну амплітуди поляризації внаслідок релаксаційних осциляцій; $F_{\perp} \{r_{\perp}\}$ – функція поперечного розподілу амплітуди поляризації, значення якої визначається відстанню r_{\perp} від осі z ; $F_z \{z - z_{fd}\}$ – функція поздовжнього розподілу амплітуди поляризації, аргументом якої є відстань $(z - z_{fd})$ від центру фокальної області; ω_0 – частота (комбінаційна) поляризації, а \vec{k}_{p0} – її хвильовий вектор.

Наші розрахунки будуть дійсні коли: 1) просторово часовий розподіл амплітуди поляризації є симетричним відносно осі z і розкладається на множники, які окремо залежать від t , r_{\perp} , $(z - z_{fd})$; 2) фазовий фронт хвилі поляризації у фокусі є близьким до плоского; 3) немонахроматичність поляризації пов'язана лише з релаксаційними осциляціями її амплітуди.

Зі врахуванням (7.1) та (4.15) для частотно-кутової густини енергії розсіяного випромінювання маємо вираз

$$W_{\omega\theta} = \frac{n_{\omega} \omega^4}{16\pi^3 \epsilon_0 c^3} \times \left| \int_V d^3 r \int_{-\infty}^{+\infty} dt P_{0\max}^{(NL)} F_t \{t\} F_{\perp} \{r_{\perp}\} F_z \{z - z_{fd}\} \exp[-i(\omega_0 t - \vec{k}_{p0} \vec{r})] \exp[i(\omega t - \vec{k}_{\omega} \vec{r})] \right|^2. \quad (7.2)$$

Величину $W_{\omega\theta}$ можна розрахувати після конкретизації параметричного процесу і функцій $F_t \{t\}$, $F_{\perp} \{r_{\perp}\}$, $F_z \{z - z_{fd}\}$ у режимі самофокусування збуджуючого

випромінювання та релаксаційних осциляцій амплітуди нелінійної поляризації.

У випадку гаусових функцій $F_t\{t\}$, $F_\perp\{r_\perp\}$, $F_z\{z - z_{fd}\}$ з напівширинами τ_{ro} , a_f , b_e на рівні e^{-1} , з використанням (7.2) знаходимо, що частотно-кутова густина енергії випромінювання параметричних компонент описується виразом:

$$W_{\omega\theta} = \frac{\pi\omega^4 n_\omega}{16\epsilon_0 c^3} \left(P_{0\max}^{(NL)}\right)^2 \tau_{ro}^2 a_f^4 b_e^2 \exp\left[-0,5\left(\Delta k_\perp^2 a_f^2 + \Delta k_\parallel^2 b_e^2 + \Delta\omega^2 \tau_{ro}^2\right)\right], \quad (7.3)$$

де $\Delta k_\parallel = k\{\omega\} \cos\theta - k_{p0}$ і $\Delta k_\perp = k\{\omega\} \sin\theta$ – проекції різниці векторів $\vec{k}\{\omega\} - \vec{k}_{p0}$ на вісь z та перпендикулярну до неї вісь, тобто поздовжня і поперечна неузгодженість хвильових векторів $\vec{k}\{\omega\}$ випромінювання параметричної компоненти та \vec{k}_{p0} поляризації; θ – кут розсіяння, що визначається кутом між вектором $\vec{k}\{\omega\}$ і віссю z , уздовж якої орієнтований хвильовий вектор поляризації.

Найоптимальніші умови складаються для генерації випромінювання з відлаштуванням частоти $\Delta\omega = \omega - \omega_0$, для якої сума

$$\Delta k_\perp^2 a_f^2 + \Delta k_\parallel^2 b_e^2 + \Delta\omega^2 \tau_{ro}^2$$

в (7.3) набуває мінімального, а $W_{\omega\theta}$ – максимального значення. Розв'язавши задачу знаходження екстремуму неважко переконатися, що у наближенні лінійної дисперсії та за звичайних умов, коли $a_f \ll b_e$, $|k\{\omega\} - k_{p0}| \ll k\{\omega\}$, максимум густини енергії $W_{\omega\theta}$ зміщується відносно комбінаційної частоти ω_0 на величину

$$\Delta\omega_{\max} \{ \text{Max}[W_{\omega\theta}], \theta \} \equiv \omega_{\max} \{ \text{Max}[W_{\omega\theta}], \theta \} - \omega_0 = -\frac{v_{g0}\Delta k_0}{1 + \left(\frac{\tau_{ro}v_{g0}}{b_e} \right)^2} \left(1 - \frac{\theta^2}{\theta_0^2} \right), \quad (7.4)$$

де v_{g0} – групова швидкість світла з частотою ω_0 ; $\Delta k_0 = k\{\omega_0\} - k_{p0}$ – неузгодженість модулів хвильових векторів на комбінаційній частоті ω_0 ; $\theta_0 = \sqrt{2\Delta k_0 / k\{\omega_0\}}$ – кут розсіяння, для якого $\Delta k_{\parallel}\{\omega_0\} = 0$ (умовно кажучи – черенковський кут на комбінаційній частоті).

У середовищах з нормальною дисперсією показника заломлення світла в області прозорості маємо $\Delta k_0 > 0$, а тому максимум густини енергії у спектрі осьового ($\theta = 0$) випромінювання параметричних компонент зміщується відносно комбінаційних частот в низькочастотний бік на величину, що залежить (7.4) від τ_{ro} та b_e . Як уже зазначалося, можна очікувати, що в умовах релаксаційних коливань спад амплітуди поляризації відбувається за час проходження світлом фокальної області, а отже виконується співвідношення $\tau_{ro}v_{g0}/b_e \approx 1$. Внаслідок цього для гаусових функцій $F_t\{t\}$, $F_{\perp}\{r_{\perp}\}$, $F_z\{z - z_{fd}\}$ відповідно до (7.4) маємо

$$\Delta\omega_{\max} \{ \theta = 0 \} \approx -v_{g0}\Delta k_0/2. \quad (7.5)$$

Проте, якщо функція, що описує часову зміну амплітуди поляризації внаслідок релаксаційних осциляцій, дає значно ширший спектр частот поляризації, ніж гаусова функція $F_t\{t\}$, то зміщення максимуму густини енергії у спектрі осьового випромінювання параметричних компонент може сягати граничного значення (за $\tau_{ro} \rightarrow 0$ в (7.4))

$$\Delta\omega_{\max} \{ \theta = 0 \} \approx -v_{g0} \Delta k_0. \quad (7.6)$$

Зміщення максимуму густини $W_{\omega\theta}$ енергії залежить від кута розсіювання (7.4). Частотно-кутові спектри параметричних компонент мають вигляд параболічних дуг, симетричних відносно лінії $\theta = 0$ та звернених вершиною у низькочастотний бік. Використовуючи (7.4) одержуємо рівняння, що описує ці дуги:

$$\omega_{\max} \{ \theta \} = \omega_0 + \Delta\omega_{\max} \{ \theta = 0 \} \left(1 - \frac{\theta^2}{\theta_0^2} \right) \quad (7.7)$$

Нескладно переконатися, що коли $\Delta\omega_{\max} \{ \theta = 0 \}$ в (7.7) сягає граничного значення (7.6), то дуги (7.7) задовольняють умову $\Delta k_{\parallel} = k \{ \omega \} \cos \theta - k_{p0} = 0$. Тобто, проекція $k \{ \omega \} \cos \theta$ на вісь z хвильового вектора $k \{ \omega \}$ випромінювання з частотою $\omega_{\max} \{ \theta \}$, яка лежить на дузі (7.7), для усіх кутів розсіювання збігається з модулем хвильового вектора k_{p0} поляризації. Для осьового випромінювання $k \{ \omega_{\max} \{ \theta = 0 \} \} = k_{p0}$. Таким чином, за певного кута θ найефективніше генерується випромінювання, для якого виконується умова поздовжнього (у випадку $a_f \square b_e$) узгодження хвильових векторів (рис. 7.1). Суттєво, що це узгодження досягається у результаті відстройки частоти параметричної компоненти від частоти ω_0 поляризації – частоти комбінаційного резонансу. Отже, фазовий синхронізм хвиль поляризації та поля відповідної параметричної компоненти ВКР реалізується лише на проміжку часу $\Delta t \square 1/\Delta\omega_{\max}$. Проте такого короткочасного фазового синхронізму достатньо для ефективної генерації параметричних компонент ВКР, якщо час існування поляризації $\tau_{ro} < 1/\Delta\omega_{\max}$.

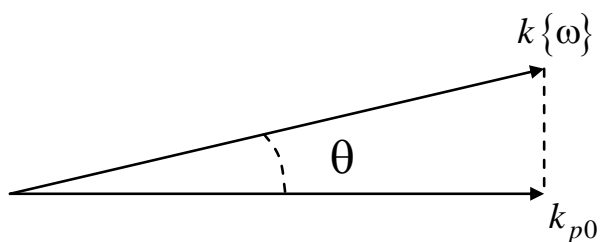


Рис. 7.1. Поздовжнє узгодження хвильових векторів поляризації та розсіяного випромінювання за кутом θ .

Для прикладу на рис. 7.2 та рис. 7.3 подані розраховані за формулою (7.3) нормовані частотно-кутові спектри першої антистоксової ($k_{p0} = k_{p0a} = 2k_{0L} - k_{0s}$, $\omega_0 = \omega_{0a} = 2\omega_{0L} - \omega_{0s}$) та другої стоксової компоненти ($k_{p0} = 2k_{0s} - k_{0L}$, $\omega_0 = 2\omega_{0s} - \omega_{0L}$) у толуолі при збудженні ВКР рубіновим лазером. Вхідні дані були такими: частота збуджуючого випромінювання $\omega_{0L} / (2\pi c) = 14403 \text{ см}^{-1}$; частота ВКР-активного коливання $\Omega / (2\pi c) = 1004 \text{ см}^{-1}$; напівдовжина фокальної області $b_e = 0,5 \text{ мм}$; радіус фокальної області $a_f = 5 \text{ мкм}$; час існування нелінійної поляризації $\tau_{ro} = 2,5 \text{ пс}$; числові коефіцієнти в дисперсійній формулі Зельмеєра для толуолу [150] – $A = 1,23633$, $B = 0,23895$, $C = 2,89027 \cdot 10^{-10} \text{ см}^2$.

З поданих результатів випливає, що у режимі самофокусування та релаксаційних осциляцій спектри параметричних компонент ВКР мають частотно-кутову структуру подібну до параболічних дуг, симетричних відносно лінії нульового кута розсіяння та звернених вершиною у низькочастотний бік. У середовищах з нормальною дисперсією в області прозорості найбільше стоксове (низькочастотне) зміщення максимуму енергії у спектрі параметричних компонент ВКР відповідає осьовому випромінюванню і визначається розмірами фокальної області, часом існування поляризації та неузгодженістю $\Delta k_0 = k\{\omega_0\} - k_{p0}$ хвильових векторів поляризації і поля відповідної параметричної компоненти ВКР на частоті комбінаційного резонансу.

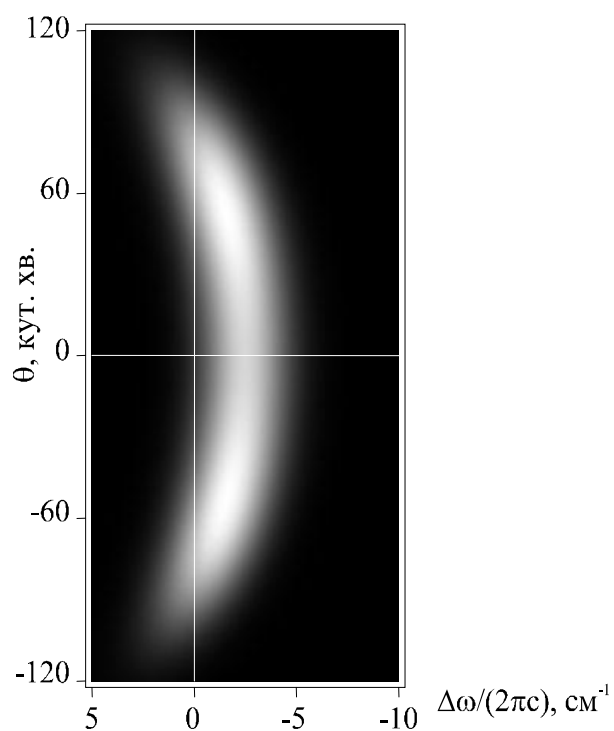


Рис. 7.2. Спектр першої антистоксової компоненти ВКР:
 $\Delta\omega_{\max} \{\theta = 0\} / (2\pi c) = 2,46 \text{ см}^{-1}$.

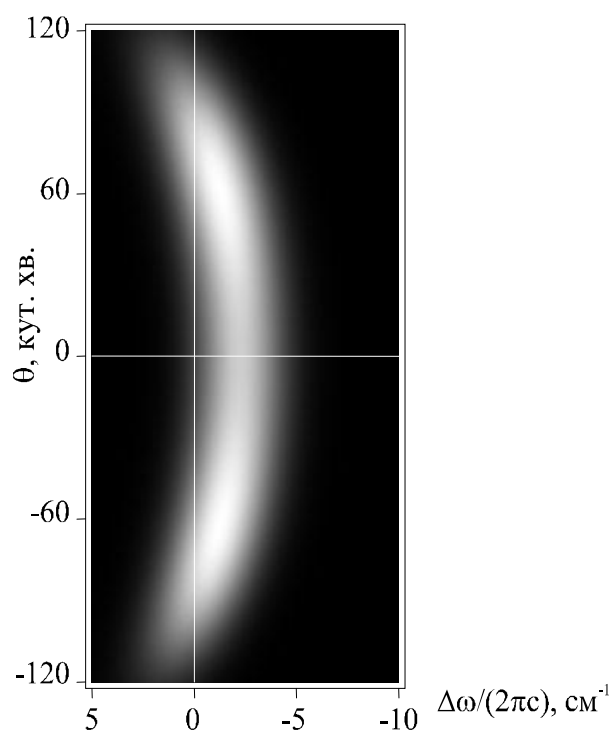


Рис. 7.3. Спектр другої стоксової компоненти ВКР:
 $\Delta\omega_{\max} \{\theta = 0\} / (2\pi c) = 2,23 \text{ см}^{-1}$.

У типових самофокусуєчих рідких середовищах (толуол, бромбензол, ксилол тощо) з частотою ВКР-активного коливання $\Omega/(2\pi c) \sim 1000 \text{ см}^{-1}$ неузгодженість хвильових векторів для основних параметричних процесів (перша антистоксова та друга стоксова компоненти) становить $\Delta k_0 \sim 50 \text{ см}^{-1}$, тож стоксове зміщення $\Delta\omega_{\max} \{\theta = 0\}/(2\pi c)$ відповідних параметричних компонент може сягати значень близько -5 см^{-1} . Для інших параметричних процесів, що мають помітну інтенсивність за великих рівнів збудження, Δk_0 досягає величин $\sim 100 \div 200 \text{ см}^{-1}$ і для них $\Delta\omega_{\max} \{\theta = 0\}/(2\pi c)$ зростає до $-10 \div -20 \text{ см}^{-1}$. Тому релаксаційні осциляції амплітуди нелінійної поляризації є суттєвим механізмом спектральних розширень ліній ВКР у низькочастотний бік.

Важливим моментом є те, що генерація випромінювання на зміщених частотах відбувається в умовах короткочасового фазового синхронізму, а отже є нестаціонарним процесом. Принципова різниця між амплітудно-фазовим синхронізмом і короткочасовим фазовим синхронізмом полягає в тому, що у першому випадку область максимальної амплітуди поляризації рухається й узгодженість фаз поляризації та поля, яке генерується на зміщеній частоті, у разі рівномірного руху зберігається постійно. За випадку ж короткочасного фазового синхронізму область максимальної амплітуди поляризації є нерухомою, а тому узгодженість фаз швидко порушується.

Виконання умови короткочасного фазового синхронізму ($\Delta \mathbf{k} = 0$, $\Delta \omega \neq 0$) може викликати зміщення частоти випромінювання і в інших нестаціонарних процесах, не пов'язаних з ВКР. Зокрема, це стосується подвоєння частоти пікосекундних фокусованих світлових імпульсів у зразках, довжина яких значно коротша довжини самого імпульсу, у порошкоподібних нелінійно-оптичних середовищах або на поверхні поглинаючих середовищ за схемою „на ковзні відбиття” тощо.

7.2. Взаємний вплив фазової модуляції та релаксаційних осциляцій інтенсивності на спектри вимушеного комбінаційного розсіювання.

У розд. 7.1 розглянено вплив релаксаційних коливань зміни амплітуди нелінійної поляризації поблизу точки зупинки фокальної області на спектри ВКР у самофокусуєчих середовищах. Вважалось, що на цій ділянці траси проходження лазерного імпульсу через самофокусуєче ВКР-активне середовище фазова самомодуляція лазерного випромінювання може не враховуватися. Основною підставою для такого наближення є нульова швидкість фокальної області в точці її зупинки.

Загалом таке наближення цілком виправдане, але ж прискорення фокальної області в точці її зупинки відмінне в нуля (рис. 3.20, рис. 3.21), а крім того, в межах фокальної області фаза поляризації змінюється, що є навіть більш суттєвим.

Зосередимо увагу на зміні фази поляризації за віссю z . Врахуємо відхилення $\Gamma = k_L \{z_{fp}\} - k_{0L}$ модуля хвильового вектора лазерного випромінювання за координатою z та часом t у вигляді:

$$\Gamma_z \{z, t\} = \Gamma \exp\left[-(z/b_e)^2\right] \exp\left[-(t/\tau_{ro})^2\right], \quad (7.8)$$

що виконується за введення нової системи координат, у якій $z_{fp} \{t=0\} = 0$.

Уважаючи, що нелінійно-оптичне середовище в новій системі координат розташоване у межах $z = -L/2 \div L/2$ (це спрощує аналітичні вирази), для зміни фази лазерного випромінювання на шляху до фокальної області, яка є нерухомою, маємо (див. коментарі до (6.33) і (6.34))

$$\Delta\varphi_L \{t, z\} = \Gamma \int_{-L/2}^z \exp\left[-\left(\frac{\xi}{b_e}\right)^2\right] \exp\left[-\left(\frac{t - (z - \xi)/v_{gL}}{\tau_{ro}}\right)^2\right] d\xi. \quad (7.9)$$

Оскільки $b_e \ll L$ і $-L/2 \ll z_{fp}$ то для затримки фази в фокальній точці, використовуючи (7.9), отримуємо

$$\begin{aligned} \Delta\varphi_L \{t=0, z=0\} &\approx \Gamma \int_{-\infty}^0 \exp\left[-\left(\frac{\xi}{b_e}\right)^2\right] \exp\left[-\left(\frac{\xi}{v_{gL}\tau_{ro}}\right)^2\right] d\xi = \\ &= \frac{\sqrt{\pi}}{2} \Gamma \frac{b_e}{\sqrt{1+(b_e/(v_{gL}\tau_{ro}))^2}}, \end{aligned} \quad (7.10)$$

та похідні, які визначають частоту та модуль хвильового вектора поляризації у фокальній області:

$$\frac{\partial(\Delta\varphi_L)}{\partial t} \{t=0, z=0\} = \Gamma v_{gL} \frac{1}{1+(v_{gL}\tau_{ro}/b_e)^2}, \quad (7.11)$$

$$\frac{\partial(\Delta\varphi_L)}{\partial z} \{t=0, z=0\} = -\Gamma \frac{1}{1+(v_{gL}\tau_{ro}/b_e)^2} + \Gamma. \quad (7.12)$$

На рис. 7.4 показані нормалізовані залежності затримки фази $\Delta\varphi_L$ та її похідних $\partial(\Delta\varphi_L)/\partial t$ і $\partial(\Delta\varphi_L)/\partial z$, що розраховані чисельно з використанням (7.9) у випадку $\tau_{ro} = 2,5$ пс, $b_e = 0,1$ см, $v_{gL} = 0,6566 \times c$ (толуол), $b_e \ll L$, $-L/2 \ll z_{fp} = z = 0$ у межах $t = -(L/2)/v_{gL} \div (L/2)/v_{gL}$.

Окрім затримки $\Delta\varphi_L$ фази лазерного випромінювання до фокальної точки необхідно враховувати і затримку фази $\Delta\varphi_\omega$ розсіяного випромінювання з частотою ω (зокрема ω_a) на шляху від фокальної області до межі середовища.

Розсіяне випромінювання має певну фазову швидкість $v_{ph} \{\omega\}$. Тому його часова затримка вповдовж шляху з проміжною координатою ξ обчислюється як

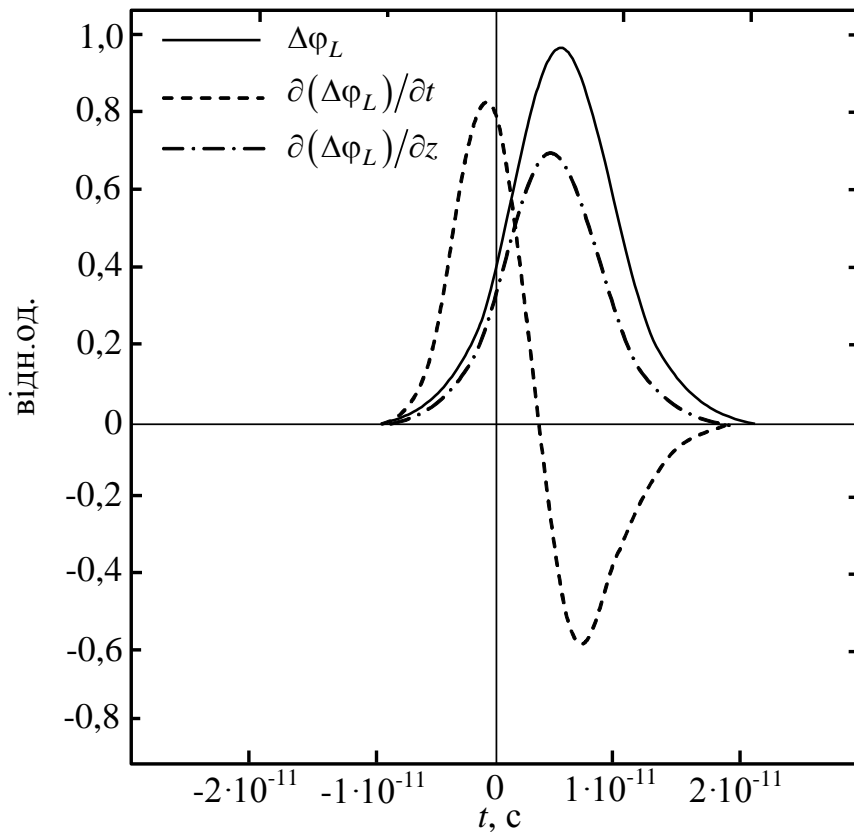


Рис. 7.4. Нормалізовані залежності затримки фази $\Delta\varphi_L$ на шляху до фокальної точки та її похідних $\partial(\Delta\varphi_L)/\partial t$ і $\partial(\Delta\varphi_L)/\partial z$, що розраховані чисельно з використанням (7.9) у випадку $\tau_{ro} = 2,5$ пс, $b_e = 0,1$ см, $v_{gL} = 0,6566 \times c$ (толуол), $b_e \ll L$, $-L/2 \ll z_{fp}$, $z = 0$ у межах $t = -(L/2)/v_{gL} \div (L/2)/v_{gL}$.

$(\xi - z)/v_{ph}$ відносно $t = 0$. Отже для затримки $\Delta\varphi_\omega\{t, z\}$ фази на шляху від фокальної точки до вихідної межі середовища отримуємо

$$\Delta\varphi_\omega\{t, z\} = \Gamma \int_z^{L/2} \exp\left[-\left(\frac{\xi}{b_e}\right)^2\right] \times \exp\left[-\left(\frac{t - (z - \xi)/v_{ph}\{\omega\}}{\tau_{ro}}\right)^2\right] d\xi. \quad (7.13)$$

Оскільки $L/2 \gg b_e$ то у випадку розташування фокальної області в глибині середовища верхню межу в інтегралі (7.13) можна замінити на $+\infty$. Тоді маємо

наступні вирази для затримки $\Delta\varphi_\omega\{t=0, z=0\}$ фази з фокальної точки та її похідних за часом і координатою:

$$\begin{aligned} \Delta\varphi_\omega\{t=0, z=0\} &\approx \Gamma \int_z^\infty \exp\left[-\left(\frac{\xi}{b_e}\right)^2 - \left(\frac{\xi}{\tau_{ro}v_{ph}}\right)^2\right] d\xi = \\ &= \frac{\sqrt{\pi}}{2} \Gamma \frac{b_e}{\sqrt{1+(b_e/(v_{ph}\tau_{ro}))^2}}, \end{aligned} \quad (7.14)$$

$$\frac{\partial(\Delta\varphi_\omega)}{\partial t}\{t=0, z=0\} = -\Gamma v_{ph} \frac{1}{1+(v_{ph}\tau_{ro}/b_e)^2}, \quad (7.15)$$

$$\frac{\partial(\Delta\varphi_\omega)}{\partial z}\{t=0, z=0\} = \Gamma \frac{1}{1+(v_{ph}\tau_{ro}/b_e)^2} - \Gamma. \quad (7.16)$$

Фазова затримка $\Delta\varphi_\omega\{t, z\}$ та її похідні, що розраховані з використання загального виразу (7.13), подані на рис. 7.5.

Загальна фазова затримка $\Delta\varphi\{t, z\}$ у межах усього шляху через середовище визначається як сума $\Delta\varphi_L\{t, z\}$ та $\Delta\varphi_\omega\{t, z\}$. Зокрема, для фокальної точки, для якої за введених координат $z=0, t=0$, на основі (7.10), (7.11), (7.12), (7.14), (7.15), (7.16) маємо:

$$\Delta\varphi\{t=0, z=0\} = \frac{\sqrt{\pi}}{2} \Gamma b_e \left(\frac{1}{\sqrt{1+(b_e/(v_{gL}\tau_{ro}))^2}} + \frac{1}{\sqrt{1+(b_e/(v_{ph}\tau_{ro}))^2}} \right), \quad (7.17)$$

$$\frac{\partial(\Delta\varphi)}{\partial t}\{t=0, z=0\} = \Gamma \frac{v_{gL}}{1+(v_{gL}\tau_{ro}/b_e)^2} - \Gamma \frac{v_{ph}}{1+(v_{ph}\tau_{ro}/b_e)^2}, \quad (7.18)$$

$$\frac{\partial(\Delta\varphi)}{\partial z}\{t=0, z=0\} = -\Gamma \frac{1}{1+(v_{gL}\tau_{ro}/b_e)^2} + \Gamma \frac{1}{1+(v_{ph}\tau_{ro}/b_e)^2}. \quad (7.19)$$

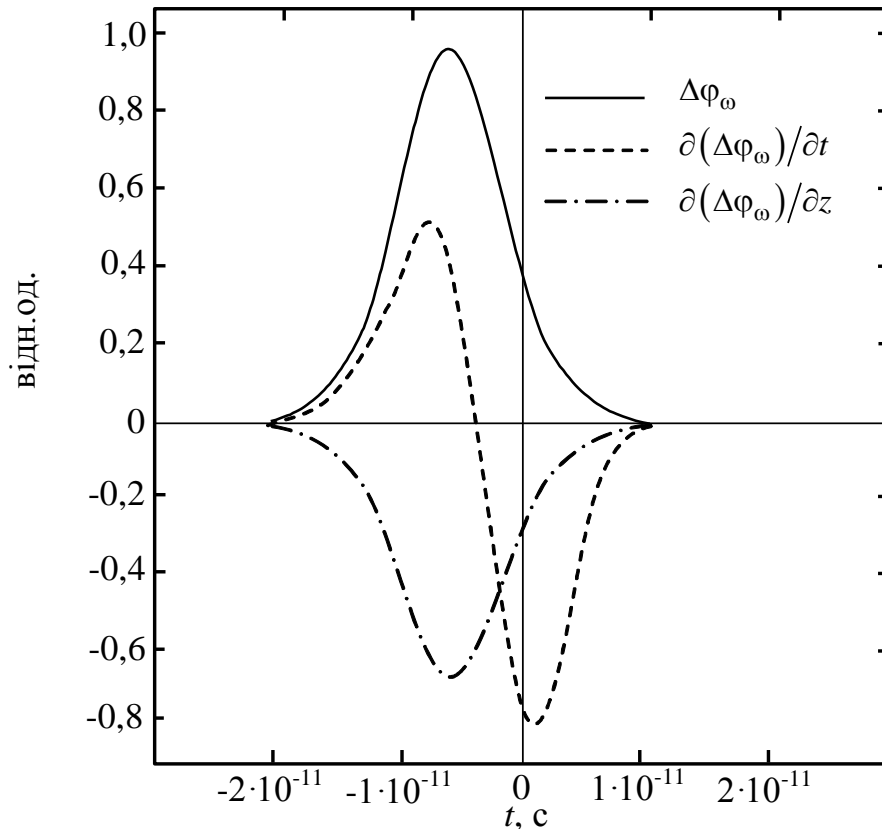


Рис. 7.5. Нормалізовані залежності затримки фази $\Delta\varphi_{\omega}\{t, z\}$ на шляху від фокальної точки та її похідних $\partial(\Delta\varphi_{\omega})/\partial t$ і $\partial(\Delta\varphi_{\omega})/\partial z$, що розраховані чисельно з використанням (7.13) у випадку $\tau_{ro} = 2,5$ пс, $b_e = 0,1$ см, $v_{ph} = 0,67 \times c$ (толуол), $b_e \ll L$, $L/2 \ll z_{fp}$, $z = 0$ у межах $t = -(L/2)/v_{gL} \div (L/2)/v_{gL}$.

Залежності загальної затримки $\Delta\varphi\{t, z=0\}$ та її похідних надані на рис. 7.6. Розрахунок здійснювався з використанням (7.9) та (7.13):

$$\Delta\varphi\{t, z\} = \Gamma \int_{-L/2}^z \exp\left[-\left(\frac{\xi}{b_e}\right)^2\right] \exp\left[-\left(\frac{t - (z - \xi)/v_{gL}}{\tau_{ro}}\right)^2\right] d\xi + \quad (7.20)$$

$$+ \Gamma \int_z^{L/2} \exp\left[-\left(\frac{\xi}{b_e}\right)^2\right] \times \exp\left[-\left(\frac{t - (z - \xi)/v_{ph}\{\omega\}}{\tau_{ro}}\right)^2\right] d\xi.$$

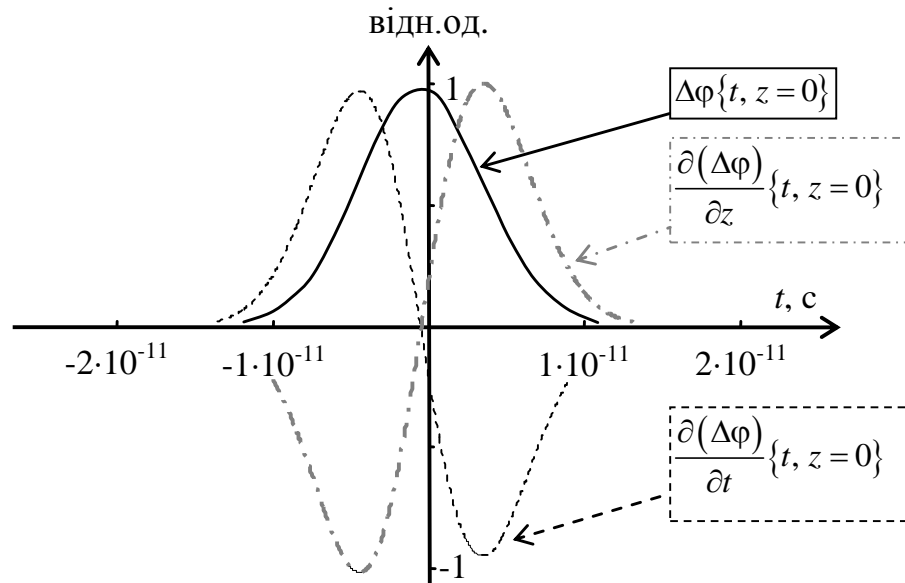


Рис. 7.6. Нормалізовані залежності затримки фази $\Delta\varphi\{t, z=0\}$ та її похідних $\partial(\Delta\varphi)/\partial t$ і $\partial(\Delta\varphi)/\partial z$, що розраховані чисельно з використанням (7.20) у випадку $\tau_{ro} = 2,5$ пс, $b_e = 0,1$ см, $v_{gL} = 0,6566 \times c$, $v_{ph} = 0,670 \times c$ (толуол), $b_e \ll L$, $L/2 \ll z_{fp}$, $z = 0$ у межах $t = -(L/2)/v_{gL} \div (L/2)/v_{gL}$.

З аналізу рис. 7.6 випливає, що похідні $\partial(\Delta\varphi)/\partial t$ і $\partial(\Delta\varphi)/\partial z$ у фокальній точці ($z = 0, t = 0$) є незначними. Проте, виконаємо аналітичне оцінювання.

Фаза нелінійної поляризації параметричних компонент ВКР у фокальній області за лінійної інтерполяції за часом t та координатою z і нехтування постійних величин набуває вигляду (див. (7.18), (7.19)):

$$\varphi_p = \omega_0 t - k_{p0} z - \Delta\varphi_L - \Delta\varphi_\omega \approx \left(\omega_0 - \Gamma \frac{v_{gL}}{1 + (v_{gL}\tau_{ro}/b_e)^2} + \Gamma \frac{v_{ph}}{1 + (v_{ph}\tau_{ro}/b_e)^2} \right) t - \left(k_{p0} - \Gamma \frac{1}{1 + (v_{gL}\tau_{ro}/b_e)^2} + \Gamma \frac{1}{1 + (v_{ph}\tau_{ro}/b_e)^2} \right) z. \quad (7.21)$$

Вираз (7.21) дає змогу оцінити результуючий вплив фазової модуляції на модуль хвильового вектору і частоту поляризації.

У випадку толуолу маємо: групова швидкість випромінювання рубінового лазера $v_{gL} \approx 0,65 \times c$; показник заломлення $n_{0L} \approx 1,49$, а $v_{ph} = c / n_{0L} = 0,67c$; $\tau_{ro} \approx 5$ пс; $b_e \approx 0,1$ см. За таких параметрів у (7.21) отримуємо

$$\left(\frac{v_{gL}}{1 + (v_{gL}\tau_{ro}/b_e)^2} - \frac{v_{ph}}{1 + (v_{ph}\tau_{ro}/b_e)^2} \right) / (2\pi c) \approx 5 \cdot 10^{-6},$$

$$\frac{1}{1 + (v_{gL}\tau_{ro}/b_e)^2} - \frac{1}{1 + (v_{ph}\tau_{ro}/b_e)^2} \approx 0,01.$$

Це вказує на можливість у першому наближенні не враховувати фазову модуляцію та записати фазу поляризації у вигляді

$$\varphi_p = \omega_0 t - k_{p0} z$$

і використовувати для $P_{\omega_0}^{(NL)}$ вираз (7.1). Тож усі результати, що наведені у підр. 7.1, набувають додаткове аналітичне підґрунтя навіть з урахуванням фазової самомодуляції лазерного випромінювання.

Для підсумку наводимо на рис. 7.7 порівняння розрахунків для спектрів

$W_{\omega\theta}^{(a)} \{ \theta = 0 \} \equiv W_{\omega 0}^{(a)}$ першої антистоксової компоненти ВКР у толуолі під кутом розсіювання $\theta = 0$ з використанням (7.3) без урахування фазової модуляції та загального виразу (4.15) за подання фази поляризації на основі (7.21). У даному випадку дійсними є такі позначення: $\omega_0 = \omega_{0a}$, $k_{p0} = k_{p0a}$, $\Delta\omega = \omega_a - \omega_{0a}$.

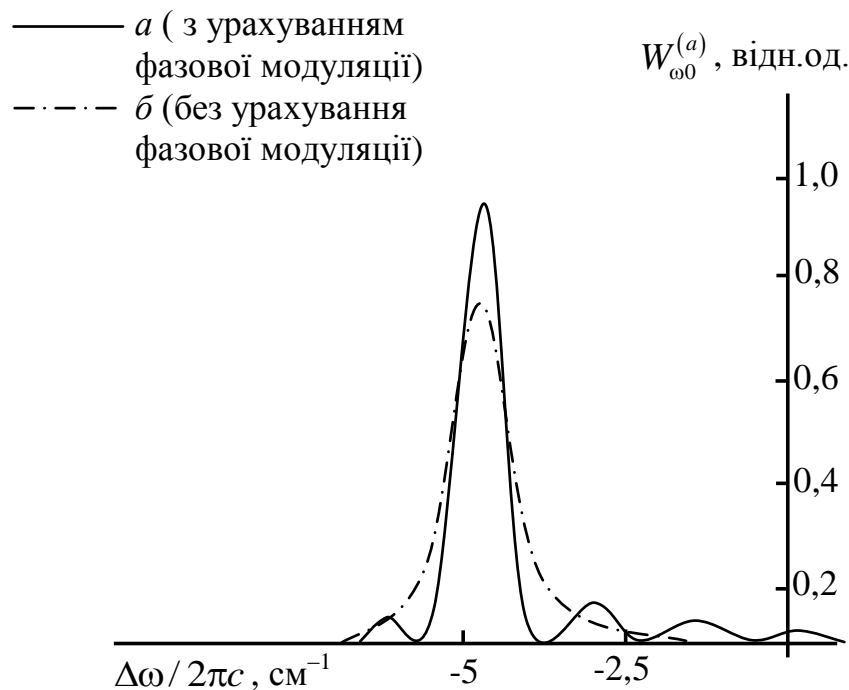


Рис. 7.7. Порівняння частотно-кутової густини енергії антистоксової компоненти у толуолі під кутом розсіювання $\theta = 0$, розрахованих з використанням (7.3) без урахування фазової модуляції (б) та загального виразу (4.15) за подання фази поляризації на основі (7.21), де фазова модуляція врахована (а): $b_e = 0,1$ см.

На рис. 7.7 спостерігаються відмінності для зазначених випадків, але вони є неprincipовими. Тож загалом, для ділянки траси проходження лазерного випромінювання через ВКР-активне самофокусує середовище, де фокальна точка має близьку до нульової швидкість, фазова модуляція у першому наближенні може не враховуватися.

7.3. Ефект насичення інтенсивності вимушеного комбінаційного розсіювання.

Наведемо наші дослідження відомого, як експериментальний факт, ефекту насичення стоксової компоненти ВКР світла [1, 107].

Теоретично можна очікувати експоненційного зростання ефективності ВКР залежно від потужності збуджуючого випромінювання. Проте на практиці в самофокусуєчих рідинах здебільшого виникає ситуація, коли потужність стоксової хвилі, в яку переважно перетворюється лазерне випромінювання, перестає зростати або навіть дещо зменшується після досягнення деякого рівня, незважаючи на подальше збільшення потужності накачки. Такий експериментальний факт не отримав свого належного пояснення і дістав назву „ефекту абсолютного насичення” [107].

З метою пояснення зазначеного ефекту нами виконані розрахунки для потужності й енергії стоксової хвилі на виході з нелінійного самофокусуєчого керівського середовища та їх залежності від різних параметрів середовища та лазерного пучка. Розглядається точка зупинки фокальної області, де фазовою модуляцією можна нехтувати (підр. 7.2).

Деталі розрахунку полягають у наступному. Зміна радіуса a_z лазерного пучка у процесі його поширення через самофокусуєче середовище за координатою z можна наближено описати функцією, що є близькою до (5.6):

$$a_z^2 \approx a_0^2 \left[\left| 1 - \left(z / z_{fd} \right)^2 \right|^{\mu/2} + (a_f / a_0)^2 \right], \quad (7.22)$$

де a_0 – початковий радіус, z – поздовжня координата (відстань від вхідної межі середовища), a_f – мінімальний радіус пучка в центрі фокальної області, z_{fd} – фокальна відстань (у даному випадку маємо розглядати мінімальну z_{fd} , яка збігається з z_{fp}), μ – параметр. Радіус a_f пучка в центрі фокальної області,

фокальна відстань z_{fd} та параметр μ задавалися рівняннями (див. (3.27), (3.36)):

$$a_f = \text{const},$$

$$z_{fd} = \frac{0,38k_{0L}a_0^2}{\sqrt{(\sqrt{\tilde{P}} - 0,77)^2 - 0,053}}, \quad (7.23)$$

$$\mu = 1 + \frac{1}{\tilde{P}} + \frac{\pi}{\sqrt{\tilde{P}}},$$

де $\tilde{P} = P_L \{z=0\} / P_{cr}$.

Для розрахунку потужності стоксової $P_s \{z\}$ та лазерної $P_L \{z\}$ хвиль у довільній точці $z=0 \div L$ середовища з довжиною L та на виході з середовища ($P_s \{z=L\}, P_L \{z=L\}$) за заданих вхідних потужностях $P_L \{z=0\} \square P_s \{z=0\}$ використовувалося наближення модифікованих плоских хвиль [109]. Таке наближення веде до системи рівнянь:

$$P_L \{z\} + \frac{\lambda_{0s}}{\lambda_{0L}} P_s \{z\} = P_L \{z=0\},$$

$$(7.24)$$

$$\frac{d(P_s \{z\} / (\pi a_z^2))}{dz} \approx G(P_s \{z\} / (\pi a_z^2)) \frac{P_L \{z\}}{\pi a_z^2},$$

де G – коефіцієнт комбінаційного підсилення для першої стоксової компоненти за інтенсивністю; $\lambda_{0s}, \lambda_{0L}$ – довжини хвиль стокової та лазерної компоненти без урахування фазової модуляції. Вважалося, що радіуси лазерного та стоксового пучків збігаються, а генерація стоксової компоненти відбувається переважно лише поблизу фокальної точки зі сталою перетяжкою:

$$a_z \approx a_f, P_s \{z\} / (\pi a_z^2) \approx P_s \{z\} / (\pi a_f^2).$$

Перше рівняння в (7.24) є наслідком закону збереження енергії і виконується, якщо відсутні втрати й антистоксові та вищі стоксові компоненти не утворюються. Друге рівняння описує підсилення стоксової компоненти в полі змінної за величиною лазерної хвилі.

Розв'язок системи рівнянь (7.24) виконувався чисельно. Для цього вся траса пучка в кюветі розбивалася на нескінченно маленькі інтервали dz , в яких можна було вважати a_z і $P_L \{z\}$ незмінними та відшукати приріст dP_s . Зміна a_z , $P_L \{z\}$ враховувалася лише при переході до наступного інтервалу з використанням рівнянь (7.22), (7.23) для a_z та (7.24) для $P_L \{z\}$.

Енергія імпульсів $E_L \{z=0\}$, $E_s \{z=L\}$ лазерного та стоксового випромінювання на вході та виході з середовища розраховувалися за формулами:

$$E_L \{z=0\} = \int_{-\infty}^{\infty} P_L \{z=0\} dt, \tag{7.25}$$

$$E_s \{z=L\} = \int_{-\infty}^{\infty} P_s \{z=L\} dt,$$

для часової залежності миттєвої потужності $P_L \{z=0\} = P_{0L} \exp[-(t/\tau_i)]$.

На рис. 7.8 показана залежність потужності стоксової та лазерної компоненти від координати z у випадку $P_s \{z=0\} = 1 \cdot 10^{-9}$ Вт та постійної накачки $P_L \{z=0\} = 62,5$ кВт ($\tilde{P} = 2,5$). Для розрахунку використовувалися параметри типові для багатомодового випромінювання рубінового лазера в толуолі: $a_0 = 0,1$ мм; $a_f = 5$ мкм; $\lambda_{vL} = 649,3$ нм; $\lambda_{vs} = 746,3$ нм; $P_{cr} = 25$ кВт;

$n_{0L}=1,49052$; $G=1,17$ см/МВт; $L=25$ см. Характерним є практично повне (зі стовідсотковою квантовою ефективністю) перетворення лазерного випромінювання у стоксову компоненту безпосередньо в фокальній області самофокусування.

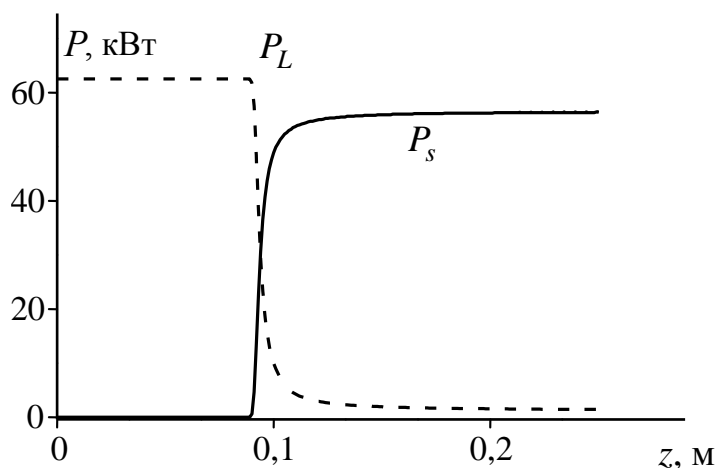


Рис. 7.8. Залежність потужності стоксової $P_s\{z\}$ та лазерної $P_L\{z\}$ компоненти від координати z у випадку $\tilde{P}=2,5$.

Зміни $P_s\{z=0\}$ на декілька порядків величини не впливають істотно на результат розрахунків для $P_s\{z=L\}$. Проте важливим є значення $\tilde{P} = P_L\{z=0\}/P_{cr}$ відношення потужності $P_L\{z=0\}$ лазерного пучка на вході у середовище до критичної потужності P_{cr} самофокусування. Так, на рис. 7.9 подані результати розрахунків (для тих же параметрів, що використані для побудови рис. 7.8) коефіцієнта $P_s\{z=L\}/P_L\{z=0\}$ перетворення лазерного випромінювання в стоксову компоненту як функції \tilde{P} у кюветі з довжиною $L=25$ см, заповненої толуолом. Коефіцієнт перетворення стрімко зростає від нульового до майже максимального значення ($\lambda_{vs}/\lambda_{vL}$), коли перевищується поріг самофокусування (у даному випадку при $\tilde{P}=1,3$), та залишається таким до $\tilde{P}\approx 2,3$. Подальше збільшення \tilde{P} призводить до зменшення коефіцієнта перетворення. Зокрема, при $\tilde{P}\approx 3,2$ коефіцієнт перетворення

$P_s \{z = L\} / P_L \{z = 0\}$ становить приблизно 1%, а при $\tilde{P} \approx 3,6$ – лише 0,1%. Тобто, за певних надмірних потужностей збуджуючого випромінювання ВКР взагалі не відбувається. Детальний аналіз такої „дивної поведінки” коефіцієнта перетворення показав, що вона обумовлена скороченням довжини фокальної області самофокусування та відповідним зменшенням інтегрального коефіцієнта підсилення ВКР.

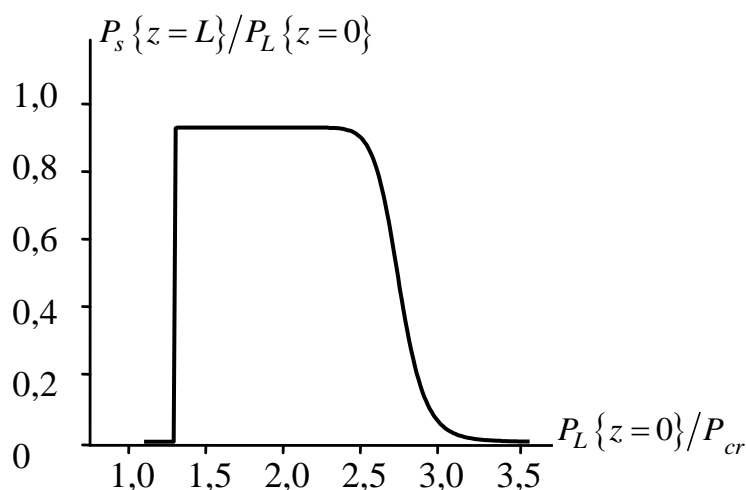


Рис. 7.9. Коефіцієнт $P_s \{z = L\} / P_L \{z = 0\}$ перетворення лазерного випромінювання в стоксову компоненту як функція $\tilde{P} = P_L \{z = 0\} / P_{cr}$ у кюветі з довжиною $L=25$ см, заповненої толуолом.

В експерименті збудження ВКР зазвичай здійснюється в імпульсному режимі та реєструється енергія лазерних і стоксових імпульсів. У такому випадку миттєва потужність лазерного випромінювання змінюється протягом імпульсу, а отже, змінюється коефіцієнт перетворення. Розрахункова залежність енергії стоксового імпульсу $E_s \{z = L\}$ від енергії $E_L \{z = 0\}$ лазерного імпульсу в стаціонарному режимі самофокусування подана на рис. 7.10. Форма лазерного імпульсу вибиралася гаусовою з напівшириною $\tau_i = 5$ нс.

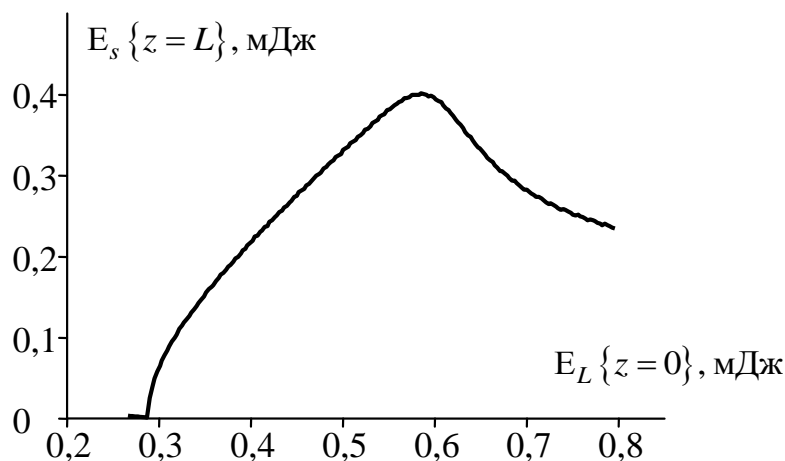


Рис. 7.10. Розрахункова залежність енергії стоксового імпульсу $E_s \{z=L\}$ від енергії $E_L \{z=0\}$ лазерного імпульсу. Для розрахунків використовувалися значення параметрів: $a_0=0,1$ мм; $a_f=5$ мкм; $\lambda_{vL}=649,3$ нм; $\lambda_{vs}=746,3$ нм; $P_{cr}=25$ кВт; $n_{0L}=1,49$; $G=1,17$ см/МВт; $L=25$ см.

Розрахункова залежність $E_s \{z=L\}$ від $E_L \{z=0\}$ на рис. 7.10 загалом узгоджується з відомими експериментальними даними для самофокусуєчих середовищ: за великих енергій імпульсів збуджуючого випромінювання ефективність ВКР зменшується.

Тож можна вважати:

1. Ефект „абсолютного насичення” пов'язаний зі зривом перетворення лазерного випромінювання у стоксову компоненту за миттєвих потужностей накачки, які перевищують для заданих параметрах деяку фіксовану величину, і немає нічого спільного з виснаженням накачки. Зрив обумовлений надмірно жорстким самофокусуванням, що веде до скорочення довжини фокальної області.

2. Для запобігання ефекту насичення необхідно збільшувати початковий діаметр пучка накачки синхронно зі збільшенням його миттєвої потужності.

7.4. Асиметрія індикатриси вимушеного комбінаційного розсіювання світла в органічних самофокусуєчих рідинах.

Історія вивчення питання про природу асиметрії індикатриси ВКР світла розпочинається з перших років після відкриття ефекту ВКР, коли виявилось, що інтенсивність побіжного розсіювання, як правило, перевищує інтенсивність зустрічного [167]. Але на сьогодні можна констатувати, що загальноновизнаного, вичерпного пояснення природи асиметрії ВКР не існує. Актуальність зазначеного питання обумовлена, зокрема, використанням побіжного та зустрічного ВКР у волоконних підсилювачах на лініях оптичного зв'язку [168, 169, 170]

Насамперед зазначимо, що з класичної теорії Плачека [85] випливає незалежність коефіцієнтів підсилення ВКР від напрямку. Проте, експериментально виявлена помітна асиметрія навіть для спонтанного розсіювання [171, 172].

Різними авторами пропонувалося багато фізичних механізмів для пояснення асиметрії індикатриси ВКР. У стислому виді та разом із зауваженнями ці механізми наведені нижче списком.

1. Затухання хвилі когерентних молекулярних коливань (хвилі збудження середовища), яка породжується внаслідок побіжного розсіювання, менше, ніж такої ж хвилі для зустрічного розсіювання, оскільки її хвильовий вектор у першому випадку значно більший. Різниця у затуханнях веде до переважного розсіювання вперед [173]. Проте, не знайдене пояснення на мікроскопічному рівні того, що затухання хвиль когерентних молекулярних коливань у рідинах та газах залежить від їх хвильового вектора.

2. У разі побіжного розсіювання поле передає молекулам менший імпульс, ніж у випадку зустрічного розсіювання. Різні за величиною ефекти віддачі спричиняють переважне розсіювання вперед [174]. Але не існує чіткого теоретичного обґрунтування впливу ефекту віддачі.

3. У випадку побіжного розсіювання цуг стоксової хвилі взаємодіє з однією і

тією ж частиною цугу збуджуючої хвилі. Отже, комбінаційне підсилення у напрямі вперед квазістатично зв'язане зі зміною інтенсивності збуджуючої хвилі, а тому обернено пропорційне ширині $\delta\omega_{кр}$ лінії комбінаційного розсіювання. Комбінаційне підсилення у напрямі назад буде меншим, оскільки процес взаємодії усереднюється за змінами амплітуди та фази збуджуючого поля, і пропорційне $(\delta\omega_{кр} + \delta\omega_L)^{-1}$, де $\delta\omega_L$ – спектральна ширина збуджуючого випромінювання [1, 175]. Таке пояснення придатне для випадку $\delta\omega_L \geq \delta\omega_{кр}$, але в типових умовах класичного експерименту $\delta\omega_L \ll \delta\omega_{кр}$, особливо у точці зупинки фокальної точки.

4. Довжина взаємодії імпульсів збуджуючого та розсіяного випромінювання для побіжного розсіювання обмежена довжиною L активного середовища, а для зустрічного – меншою із двох: просторовою довжиною $L_i \approx \tau_i v_{gL}$ імпульсу та L середовища. Отже, якщо $L > L_i$, то буде переважати розсіювання вперед [1]. Для лазерних імпульсів тривалістю ~ 10 нс такий механізм може мати вплив, коли $L \geq 2$ м. Асиметрія ж спостерігається і у випадку значно менших $L \ll 10$ см.

5. Частота розсіяного світла суттєво відрізняється від частоти збуджуючого, тому помітна частина енергії залишається у середовищі. В залежності від співвідношення між часом життя збудженого коливального стану молекул і тривалістю імпульсу потрібно враховувати або накопичення молекул у збудженому стані чи нагрівання середовища. В обох випадках змінюється діелектрична проникність середовища та протягом збуджуючого імпульсу виникає фазова модуляція взаємодіючих хвиль, яка погіршує умови насамперед для зустрічного розсіювання [176]. Слід зауважити, що до подібної ситуації веде насамперед фазова самомодуляція збуджуючого випромінювання внаслідок ефекту Кера. Очевидно, такий механізм є істотним, коли внаслідок фазової модуляції, незалежно від її походження, спектральна ширина взаємодіючих компонент стає більшою, ніж ширина лінії КР. Якщо ж розглядати ділянку траси проходження лазерного імпульсу, де фокальна точка

має приблизно нульову швидкість (окіл точки зупинки фокальної точки) і тривалість та інтенсивність розсіювання є максимальною, то числові оцінки дають $\delta\omega_L \ll \delta\omega_{кр}$.

6. Більшість ефективних ВКР-активних рідких середовищ є керівськими рідинами. Розташування областей самофокусування збуджуючого випромінювання залежить від його потужності. Розсіювання відбувається переважно в області самофокусування, а решта середовища постає у ролі підсилювача. Якщо розташування області самофокусування не збігається з центром розсіюючого середовища, то і розсіяння матиме відповідну асиметрію. Це ж стосується і експериментальних досліджень у сфокусованих пучках збуджуючого випромінювання [1, 123]. Але до певної міри „несиметричність” експериментальних умов завжди можна усунути.

7. Підсилення імпульсів зустрічного ВКР відбувається у полі невиснаженого збуджуючого випромінювання, що може вести до переважного розсіяння назад [177]. Проте, актуальність такого механізму очевидна лише тоді, коли ефективність перетворення збуджуючого випромінювання є високою. А з іншого боку, експериментально спостережувана асиметрія для наносекундних імпульсів є протилежною до вказаної.

8. Внаслідок взаємодії збуджуючого випромінювання і розсіяної побіжної стоксової хвилі за параметричним механізмом породжуються антистоксові та вищі стоксові компоненти. Навіть тільки внаслідок відтоку енергії вже буде стримуватися темп наростання побіжної стоксової хвилі. За умови ж ідеального фазового узгодження між стоксовою і антистоксовою хвилями жодна з них не може експоненційно підсилюватися і настає параметричне пригнічення побіжного розсіяння [178]. Що ж до зустрічного розсіяння, то умови фазового синхронізму для параметричних процесів у цьому випадку не виконуються за будь-яких обставин. У результаті буде переважне розсіяння назад [179]. Проте, у випадку значного впливу параметричного механізму на асиметрію розсіяння найбільше пригнічення побіжного ВКР має відбуватися в припороговій області збуджень, що експериментально поки що не підтверджено.

Навіть такий короткий перелік фізичних механізмів, що ведуть до асиметрії ВКР, сам по собі вказує на складність поставленого питання, а те, що жоден з перелічених механізмів не є універсальним – на необхідність додаткових експериментальних та теоретичних досліджень. У такій ситуації можна зробити висновок про відсутність у літературі інформації щодо прямих і детальних досліджень асиметрії індикатриси ВКР. На наш погляд, прояснити проблему можуть дослідження з часовою роздільністю сигналів розсіяння і в залежності від рівня перевищення порогу ВКР у керівських середовищах.

Наша ідея експерименту полягала у тому, щоб одночасно реєструвати осцилограми імпульсів побіжного і зустрічного ВКР, енергію цих імпульсів та зіставити їх як для великих рівнів збудження, так і для максимально наближених до порогу ВКР. Спрощена схема установки подана на рис. 7.11.

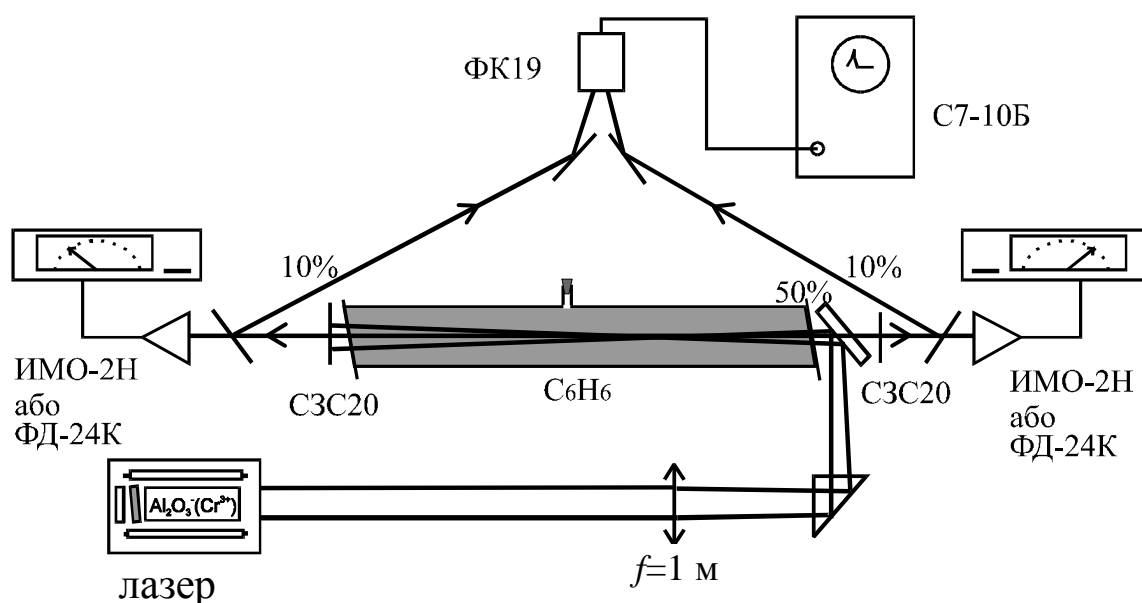


Рис. 7.11. Спрощена схема експериментальної установки.

Рубіновий лазер, що працював на одній поздовжній моді, генерував імпульси випромінювання тривалістю 25 нс на довжині хвилі 694,3 нм, з спектральною шириною $\leq 0,01\text{ см}^{-1}$, енергією 0,6 Дж, розбіжністю 5 кут. хв. Вибір такого традиційного для дослідження ВКР лазера був обумовлений, перш за все, необхідністю зіставлення результатів контрольних досліджень з

роботами інших авторів.

Випромінювання лазера ослаблювалося каліброваними світлофільтрами і фокусувалося лінзою з фокусною відстанню $f = 1$ м у центр кювети, довжиною $L = 1$ м, заповненої бензолом, частота активних молекулярних коливань якого становить 992 см^{-1} . Розсіяне світло у побіжному та зустрічному напрямках пропускалося через фільтри СЗС 20 [180], що повністю поглинали лазерне випромінювання, і спрямовувалося на калориметричні вимірювачі енергії типу ИМО-2Н, якщо енергія розсіяного світла була неменшою за їх чутливість ($\geq 0,1$ мДж), або на фотодіоди ФД-24К з накопичувальною ємністю 1 мкф, підключених до синхронізованих цифрових вольтметрів типу В7-21А. Фотодіоди калібрувалися за допомогою ИМО-2Н та набору тестованих послаблюючих світлофільтрів, починаючи з 1 мДж. У цілому діапазон енергій, що були доступні для вимірювання, становив $0,1 \text{ мкДж} \div 10 \text{ Дж}$. Особлива увага приділялася визначенню відношення чутливостей ИМО-2Н і ФД-24К каналів побіжного і зустрічного розсіяння. Для цього збиралася спеціальна оптична схема на основі принципу рівного поділу лазерного променя.

З обох каналів частина ($\sim 10\%$) розсіяного випромінювання однаковими за довжиною шляхами відводилася на коаксіальний фотоелемент ФК19 для реєстрації на однопроменевий осцилограф типу С7-10Б. З екрана осцилографа імпульси контактним методом фотографувалися на плівку РФ-3. Імпульси розсіяного випромінювання з обох каналів реєструвалися як одночасно на одну осцилограму, так і по чергово. Часова роздільна здатність обмежувалася смугою пропускання лінії затримки сигналів у осцилографі і становила 1 нс. Точність синхронізації, що здійснювалася імпульсом лазерного випромінювання за допомогою додаткового коаксіального фотоелемента, була негіршою 2 нс.

Аби уникнути впливу паразитного зв'язку між кюветою та лазером через ВРМБ подвійна оптична відстань між положенням фокальної області лінзи в центрі кювети та лазером вибиралася $\geq 4,5$ м, що відповідає часовій затримці зворотного зв'язку ≥ 15 нс. Крім того, на шляху між лазером і кюветою (див.

рис. 7.11) використовувалося 50 % дзеркало, яке додатково у 4 рази зменшувало ефективність „ВРМБ-дзеркала” (без урахування послаблюючих світлофільтрів, що використовувалися за низьких рівнів збудження, та втрат на інших оптичних елементах).

Непаралельність вікон кювети між собою та їх неперпендикулярність до лазерного пучка перевищувала 5° . Інші оптичні елементи відхилялися від нормалі на кут $\approx 1^\circ$. Достатність таких відхилень контролювалася за відсутністю ефектів побічних резонаторів.

На рис. 7.12 у вигляді графіка наведені результати вимірювань енергії E_{\uparrow} побіжного та енергії E_{\downarrow} зустрічного стоксового ВКР у залежності від енергії E_L збуджуючого лазерного випромінювання. Числові значення енергій подані після урахування втрат на вікнах кювети та на всіх оптичних елементах.

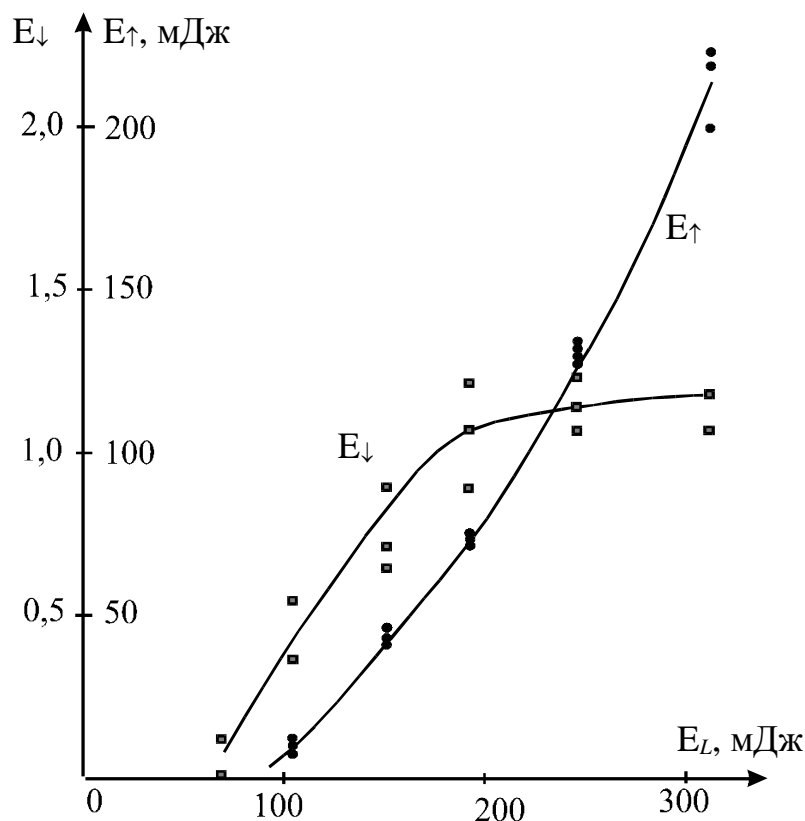


Рис. 7.12. Залежність енергії E_{\uparrow} побіжного (●) та енергії E_{\downarrow} (□) зустрічного стоксового ВКР від енергії E_L збуджуючого випромінювання.

За максимальної енергії $E_L=310$ мДж (у кюветі) отримано, що середня енергія $E_{\uparrow}=220$ мДж, а $E_{\downarrow}=1,1$ мДж. У цих же умовах енергія ВРМБ випромінювання становила 36 мДж. Зі зменшенням E_L швидше спадала енергія побіжного ВКР. Так, для $E_L=70$ мДж середні енергії E_{\uparrow} і E_{\downarrow} були $\sim 0,25$ мДж. За енергії $E_L < 28$ мДж поріг ВКР не досягався.

На рис. 7.13 нанесені експериментально одержані значення логарифмічного коефіцієнту асиметрії $K = \lg[E_{\uparrow}/E_{\downarrow}]$ для деяких енергій E_L збудження.

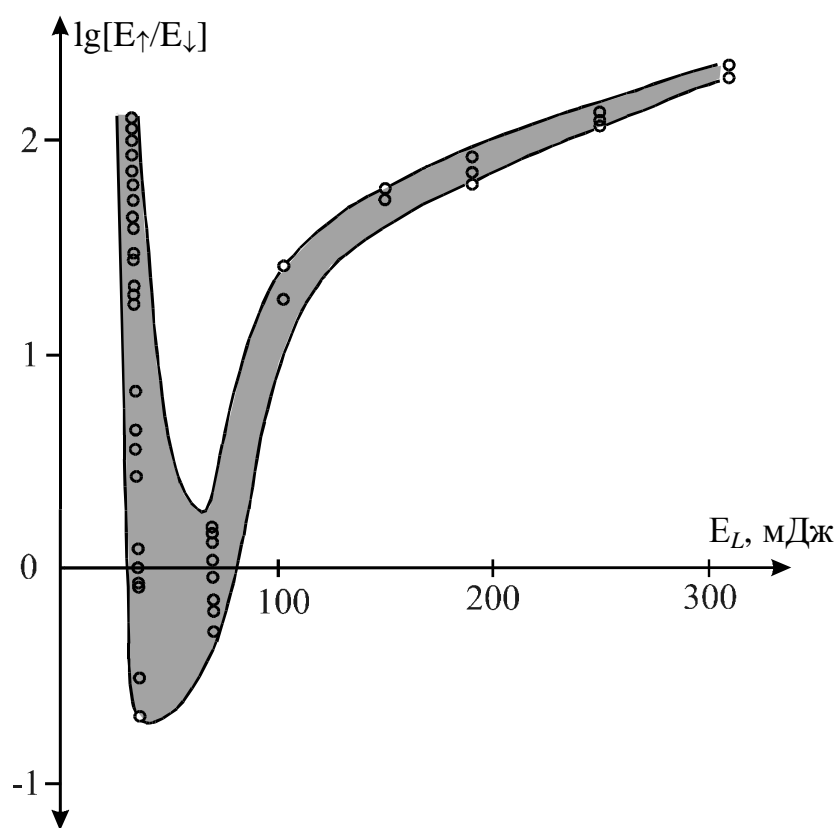


Рис. 7.13. Залежність $K = \lg[E_{\uparrow}/E_{\downarrow}]$ від енергії E_L збуджуючого випромінювання.

Величина $\lg[E_{\uparrow}/E_{\downarrow}]$ змінюється у широких межах зі зміною E_L . За максимальної енергії E_L маємо $\lg[E_{\uparrow}/E_{\downarrow}] \approx \lg[200] = 2,3$. Коли E_L зменшується і прямує до 70 мДж логарифмічний коефіцієнт асиметрії

$\lg[E_{\uparrow}/E_{\downarrow}] \rightarrow \lg[1] = 0$. У цій припороговій області спостерігаються значні флуктуації $\lg[E_{\uparrow}/E_{\downarrow}]$: для різних імпульсів лазерного випромінювання відношення $E_{\uparrow}/E_{\downarrow}$ змінюється у межах $0,5 \div 1,5$ з двома найімовірнішими значеннями 0,6 та 1,4. Подальше зменшення E_L веде до ще більшої амплітуди флуктуацій та відновлення асиметрії розсіяння. Так для $E_L = 34$ мДж відношення $E_{\uparrow}/E_{\downarrow}$ має флуктуації у межах $0,2 \div 100$. Безпосередньо на порозі ВКР спостерігається лише побіжне розсіяння. На рис. 7.13 область зміни логарифмічного коефіцієнта асиметрії $\lg[E_{\uparrow}/E_{\downarrow}]$ з урахуванням флуктуацій затушована.

На рис. 7.14 показані типові осцилограми лазерного імпульсу (а), побіжного (б) і зустрічного (в) стоксового ВКР у припороговій області ($E_L = 35$ мДж) та побіжного (г) і сумарного (д) ВКР за великої енергії збуджуючого випромінювання ($E_L = 250$ мДж). Рівень синхронізації на осцилограмах б, в та г, д відрізняється у стільки ж разів, у скільки разів відрізняються енергії збуджуючого випромінювання (в обох випадках у каналі синхронізації використовувалося 10% від E_L). На осцилограмі д імпульс побіжного розсіювання ослаблений по відношенню до імпульсу зустрічного розсіювання у ~ 20 разів.

На осцилограмах б, в (рис. 7.14) бачимо, що у припороговій області імпульси побіжного і зустрічного ВКР формуються одночасно (з точністю синхронізації) та мають приблизно однакову тривалість ($< 1,3$ нс). З осцилограм г, д слідує, що за великих рівнів збудження максимумами інтенсивності побіжного і зустрічного ВКР досягаються у різний час з інтервалом, що перебільшує тривалість лазерного імпульсу на рівні 0,5. Тривалості імпульсів побіжного і зустрічного ВКР у цьому випадку суттєво різні: ~ 20 нс, $\sim 1,7$ нс відповідно. Враховуючи відношення рівнів синхронізації на осцилограмах б, в та г, д і розташування імпульсу зустрічного ВКР від початку осцилограм, можна стверджувати, що незалежно від величини E_L імпульс зустрічного ВКР

формується за майже фіксованої миттєвої потужності збуджуючого випромінювання, а максимум побіжного ВКР близький до вершини лазерного імпульсу.

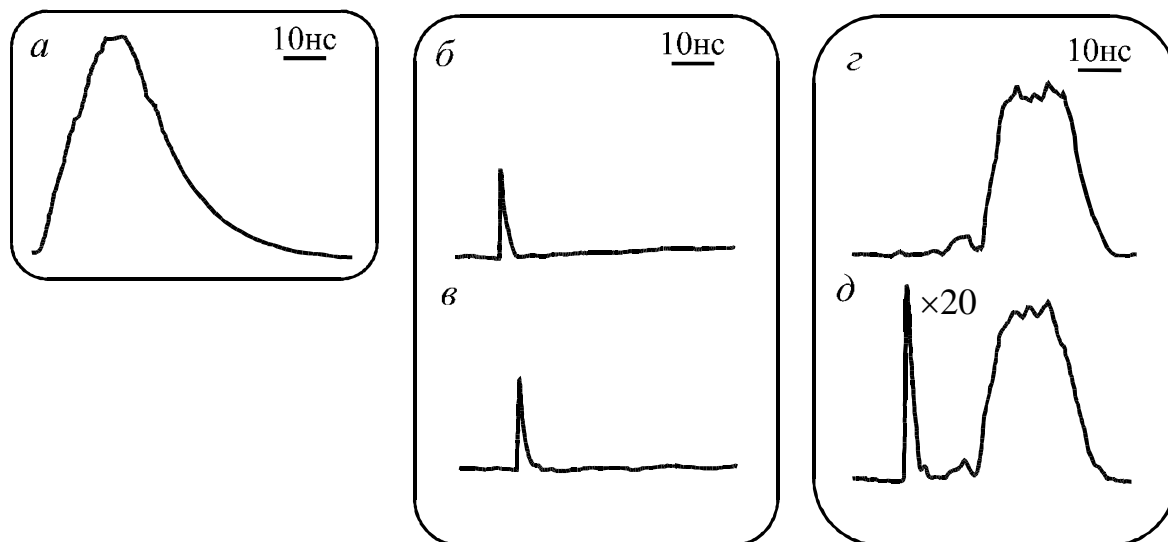


Рис. 7.14. Типова осцилограма лазерного імпульсу – *a*. Осцилограми побіжного (*б*) і зустрічного (*в*) стоксового ВКР у припороговій області ($E_L=35$ мДж). Осцилограми побіжного (*з*) і сумарного (*д*) стоксового ВКР за великої енергії збуджуючого випромінювання ($E_L=250$ мДж).

У деяких випадках за межами припорогової області незалежно від рівня збудження через інтервал часу > 10 нс спостерігався додатковий імпульс зустрічного ВКР меншої амплітуди.

Очевидно, що значний вплив на індикатрису ВКР дає фазова модуляція. Проте на вершині лазерного імпульсу в області зупинки фокальної точки, яка дає основний вклад у розсіювання, фазова модуляція є неістотною. Тож необхідно враховувати інші фізичні механізми.

Розглянемо теоретично вплив параметричних процесів на індикатрису ВКР. Припустимо, що за віссю z , яка збігається з напрямком поширення лазерної хвилі, генерується стоксова і антистоксова компонента, для якої реалізуються умови фазового синхронізму, а в протилежному напрямі – лише

стоксова компонента. Не враховується фазова само модуляція, хвильова нестационарність, часова зміна потужності, дифракційні ефекти, розбіжність пучків.

Числовими методами розв'язувалася система чотирьох зв'язаних рівнянь для амплітуд напруженості електричного поля E_L лазерної хвилі та полів $E_{s\uparrow}$, $E_{s\downarrow}$, E_a побіжної стоксової, зустрічної стоксової і антистоксової компонент, відповідно (індекс 0 для амплітуд упускаємо):

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{dE_L}{dz} = -g'_L E_L (E_{s\uparrow})^2 - g'_L E_L (E_{s\downarrow})^2 - 2g''_L E_L E_{s\uparrow} E_a - \\ \quad + g_L E_L (E_a)^2, \\ \frac{dE_{s\uparrow}}{dz} = g_s E_{s\uparrow} (E_L)^2 + g''_s E_a (E_L)^2, \\ \frac{dE_a}{dz} = -g'_a E_a (E_L)^2 + g''_a E_{s\uparrow} (E_L)^2, \\ \frac{dE_{s\downarrow}}{dz} = -g'_s E_{s\downarrow} (E_L)^2. \end{array} \right. \quad (7.26)$$

Перше рівняння системи (7.26) для градієнту поля лазерної хвилі містить чотири члени. Перші три члени у порядку їх запису враховують зменшення амплітуди поля внаслідок: а) комбінаційного процесу утворення побіжної стоксової компоненти, б) комбінаційного процесу утворення зустрічної стоксової компоненти, в) параметричного процесу одночасного утворення побіжної стоксової і антистоксової компоненти. Четвертий член пов'язаний зі збільшенням амплітуди поля лазерної хвилі внаслідок оберненого комбінаційного процесу за участю антистоксової компоненти. Інші три рівняння у сукупності містять п'ять членів і враховують вплив уже вказаних процесів на зміни амплітуд полів побіжної стоксової, антистоксової та зустрічної стоксової компонент.

За віддаленості частот хвиль від електронних резонансів можна вважати,

що показники заломлення n на частоті ω_{0L} лазерного випромінювання, стоксовій частоті ω_{0s} і антистоксовій ω_{0a} однакові. Крім цього, знехтуємо нерезонансними кубічними сприйнятливостями. Тоді в (7.26) для коефіцієнтів g виконуються співвідношення:

$$\begin{aligned} g_L &= g'_L = g''_L, \\ g_s &= g'_s = g''_s, \\ g'_a &= g''_a, \\ g_L / \omega_{0L} &= g_s / \omega_{0s} = g_a / \omega_{0a}. \end{aligned} \quad (7.27)$$

Отже достатньо знати лише один коефіцієнт. У системі СІ для g_s маємо:

$$g_s = \frac{\omega_{0s}}{2nc} \left| \text{Im} \left[\chi^{(3)}(\omega_{0s}; \omega_{0L}, -\omega_{0L}, \omega_{0s}) \right] \right|, \quad (7.28)$$

де $\chi^{(3)}$ – кубічна сприйнятливість середовища.

Для здійснення розрахунків за відомого значення g_s ще необхідно врахувати комбінаційний зсув частоти Ω . Для конкретності були вибрані значення, характерні для бензолу: $\Omega / (2\pi c) = 992 \text{ см}^{-1}$, $g_s = 2,8 \cdot 10^{-14} \text{ м/В}^2$ ($G \equiv G_s = g_s (4/(nc\epsilon_0)) \approx g_s \cdot 10^3 = 2,8 \cdot 10^{-11} \text{ м/Вт}$). Довжина хвилі лазерного випромінювання становила $\lambda_{0L} = 694,3 \text{ нм}$ (рубіновий лазер).

Граничні умови накладалися для лазерного поля, побіжної стоксової компоненти, антистоксової компоненти на вхідній межі середовища та зустрічної стоксової компоненти на вихідній межі: $E_{0L} \{z=0\} = 30 \text{ МВ/м}$, $E_{s\uparrow} \{z=0\} = 1 \text{ МВ/м}$, $E_a \{z=0\} = 1 \text{ МВ/м}$, $E_{s\downarrow} \{z=L\} = 1 \text{ МВ/м}$, відповідно. Довжина середовища L вибиралася 10 см або 30 см. Після розрахунків амплітуда напруженості полів переводилася в інтенсивність відповідних

компонент $(I_L, I_{s\uparrow}, I_{s\downarrow}, I_a)$ за спільною формулою $I = 0,5\varepsilon_0cnE^2$.

Насамперед зазначимо, що для вибраної моделі у випадку генерації лише побіжної та зустрічної стоксових компонент за відсутності параметричного процесу $2\hbar\omega_L = \hbar\omega_{s\uparrow} + \hbar\omega_a$ має спостерігатися симетрична індикатриса (рис. 7.15): $I_{s\uparrow}\{z=L\} = I_{s\downarrow}\{z=0\}$. Проте слід звернути увагу й на те, що всередині середовища відношення інтенсивностей $I_{s\uparrow}\{z\}/I_{s\downarrow}\{z\}$ залежить від координати і змінюється в широких межах, набуваючи значень як більших, так і менших одиниці. Найшвидші спади інтенсивності лазерного випромінювання відбуваються поблизу входу та поблизу виходу з середовища.

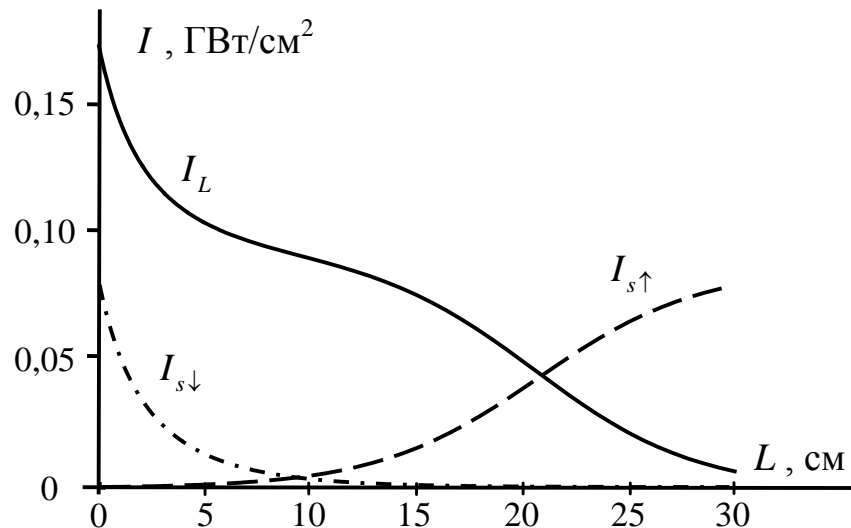


Рис. 7.15. Розподіл інтенсивності випромінювання в середовищі довжиною $L=30$ см у випадку відсутності параметричних процесів.

За наявності параметричного процесу $2\hbar\omega_L = \hbar\omega_{s\uparrow} + \hbar\omega_a$ ситуація кардинально змінюється (рис. 7.16). За тієї ж інтенсивності лазерного випромінювання і довжини середовища, що на рис. 7.15, побіжна стоксова компонента виходить на насичення з досягненням значно більшої інтенсивності $I_{s\uparrow}\{z=L\}$. Напротивагу, зустрічна стоксова компонента має інтенсивність $I_{s\downarrow}\{z=0\}$ суттєво меншу, ніж у попередньому випадку. Також, на виході із

середовища спостерігається досить інтенсивна антистоксова компонента.

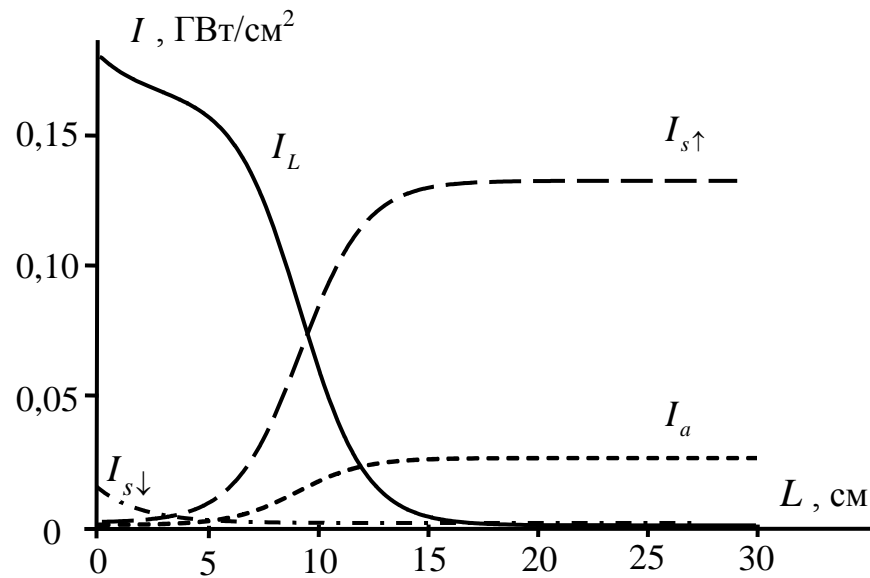


Рис. 7.16. Розподіл інтенсивності випромінювання в середовищі довжиною $L=30$ см з урахуванням параметричного процесу.

На рис. 7.17 показана розрахована залежність інтенсивності $I_{s\uparrow}\{z=L\}$ побіжної стоксової компоненти та інтенсивності $I_{s\downarrow}\{z=0\}$ зустрічної стоксової компоненти (на відповідних межах середовища для цих компонент) від інтенсивності лазерного випромінювання. Результати наведені для довжини середовища $L=10$ см та $L=30$ см. В обох випадках інтенсивності компонент зростають з підвищенням інтенсивності лазерного випромінювання, проте темп зростання для побіжної компоненти значно більший, ніж для зустрічної компоненти. Насичення для абсолютної інтенсивності компонент відсутнє. Зменшення довжини середовища призводить до зменшення інтенсивності обох компонент в області незначних інтенсивностей лазерного випромінювання. Для великих інтенсивностей лазерного випромінювання зміна довжини середовища не впливає на інтенсивність компонент. У цій області інтенсивностей лазерного випромінювання спостерігається практично лінійне наростання інтенсивності обох компонент.

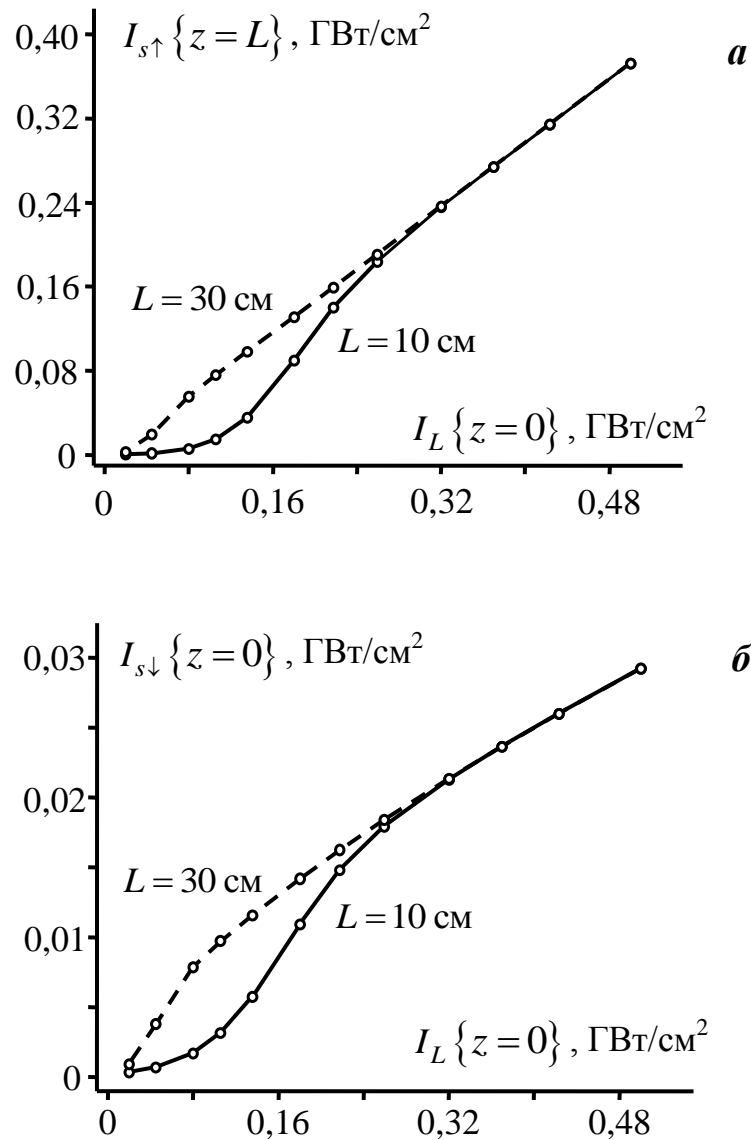


Рис. 7.17. Залежність інтенсивності $I_{s\uparrow}\{z=L\}$ побіжної (а) та $I_{s\downarrow}\{z=0\}$ зустрічної (б) стоксової компоненти на відповідних межах від інтенсивності лазерного випромінювання для довжин L середовища 10 см та 30 см.

З використанням наведених даних (рис. 7.17) для залежностей $I_{s\uparrow}\{z=L\}$ та $I_{s\downarrow}\{z=0\}$ від $I_L\{z=0\}$ розрахована ефективність генерації $I_{s\uparrow}\{z=L\}/I_L\{z=0\}$ побіжної та ефективність генерації $I_{s\downarrow}\{z=0\}/I_L\{z=0\}$ зустрічної стоксової компоненти для різних інтенсивностей лазерного випромінювання в середовищах довжиною 10 см і 30 см (рис. 7.18).

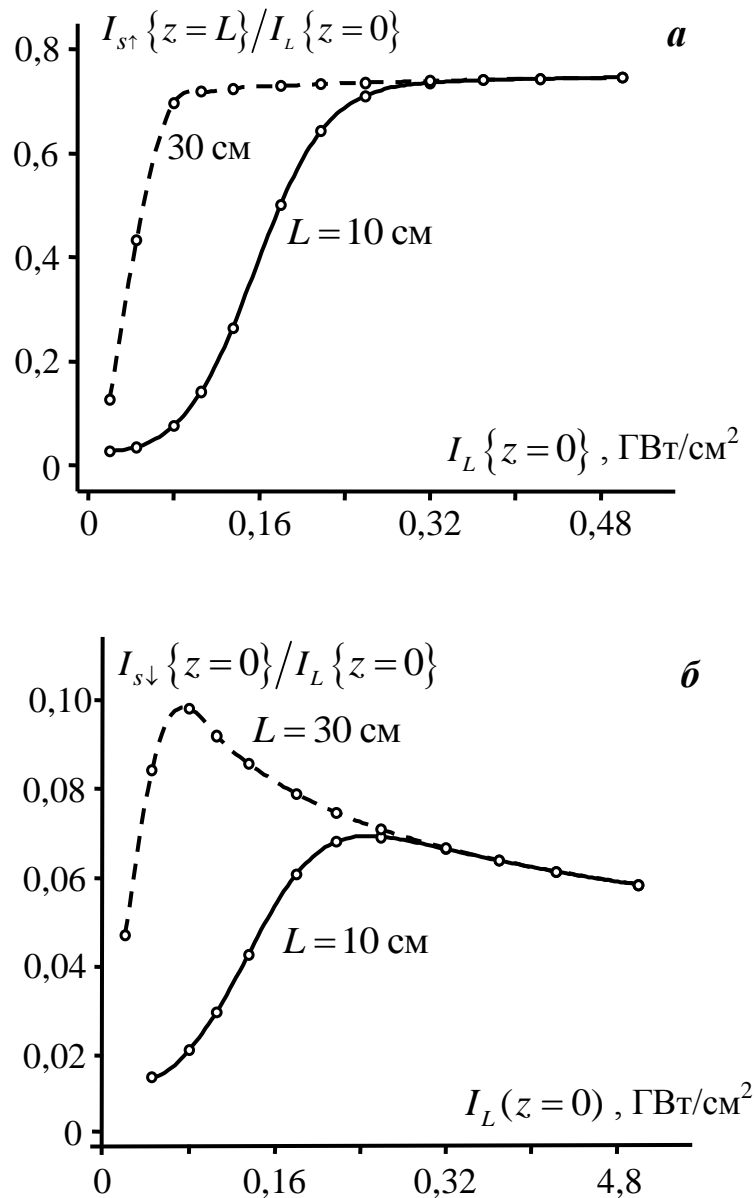


Рис. 7.18. Залежність ефективності генерації $I_{s\uparrow}\{z=L\}/I_L\{z=0\}$ побіжної (а) та $I_{s\downarrow}\{z=0\}/I_L\{z=0\}$ зустрічної (б) стоксової компоненти від інтенсивності лазерного випромінювання для довжин L середовища 10 см та 30 см (бензол).

Ефективність генерації побіжної стоксової компоненти (рис. 7.18) за великих інтенсивностей $I_L\{z=0\}$ виходить на насичення, досягаючи значення 0,746 для обох довжин середовища. З урахуванням різниці довжин хвиль ($\lambda_{0L} = 694,3$ нм, $\lambda_{0s} = 745,7$ нм) відповідна квантова ефективність становить

0,80. Інша частини 0,20 фотонів лазерного випромінювання приблизно порівну витрачається на антистоксову та зустрічну стоксову компоненти (рис. 7.16).

Ефективність генерації зустрічної стоксової компоненти веде себе немонотонно за зростання інтенсивності $I_L \{z=0\}$. Для середовища довжиною 30 см ефективність у максимумі складає 0,098 (квантова 0,105), а для середовища довжиною 10 см досягається ефективність лише 0,069 (квантова 0,074). Розташування максимуму $I_{s\downarrow} \{z=0\}/I_L \{z=0\}$ за інтенсивністю $I_L \{z=0\}$ залежить від довжини L : зі зменшенням довжини середовища максимум спостерігається для більших значень інтенсивності $I_L \{z=0\}$.

На рис. 7.19 в логарифмічному масштабі наведена залежність коефіцієнта асиметрії $I_{s\uparrow} \{z=L\}/I_{s\downarrow} \{z=0\}$ індикатриси генерації стоксових компонент в залежності від інтенсивності $I_L \{z=0\}$. Для використаних параметрів (див. вище) в наведеному діапазоні інтенсивностей лазерного випромінювання $I_{s\uparrow} \{z=L\}/I_{s\downarrow} \{z=0\}$ змінюється від 1 до 12,8. Для великих інтенсивностей лазерного випромінювання коефіцієнт асиметрії перестає залежати від довжини середовища, але має тенденцію до подальшого зростання.

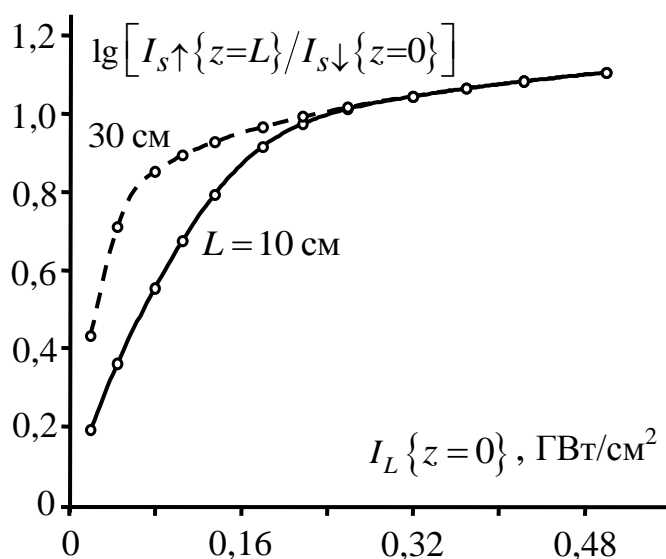


Рис. 7.19. Асиметрія розсіювання у стоксову компоненту ВКР в залежності від $I_L \{z=0\}$ та L для бензолу.

Для підсумку наведемо розрахунки для умов, що є максимально наближені до експериментальних (рис. 7.11), та покажемо, що якісно ситуація не змінюється.

Перш за все врахуємо, що довжина кювети з бензолом становила $L = 1$ м. Накладемо реалістичну умову $E_a \{z = 0\} = 0$. Виберемо в 50 разів нижчі, але симетричні рівні $E_{s\uparrow} \{z = 0\} = E_{s\downarrow} \{z = L\} = 2 \cdot 10^4$ В/м. Зменшимо $E_{0L} \{z = 0\}$ з $E_{0L} \{z = 0\} = 30$ МВ/м до $E_{0L} \{z = 0\} = 14$ МВ/м, що відповідає втратам лазерного випромінювання в оптичній схемі на шляху до кювети.

Розподіл інтенсивності випромінювання в середовищі з урахуванням параметричного процесу для випадку $E_{0L} \{z = 0\} = 14$ МВ/м ($I_L \{z = 0\} = 3,9 \cdot 10^{11}$ Вт/м²) показано на рис. 7.20 (порівняйте з рис. 7.16).

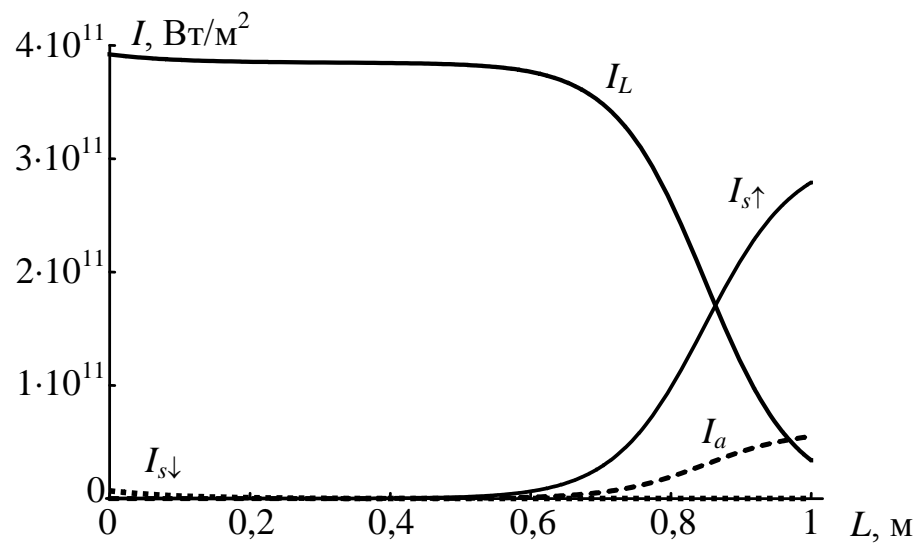


Рис. 7.20. Розподіл інтенсивності випромінювання в середовищі з урахуванням параметричного процесу для випадку $E_{0L} \{z = 0\} = 14 \cdot 10^6$ В/м ($I_L \{z = 0\} = 3,9 \cdot 10^{11}$ Вт/м²), $E_a \{z = 0\} = 0$, $E_{s\uparrow} \{z = 0\} = E_{s\downarrow} \{z = L\} = 2 \cdot 10^4$ В/м.

Залежність логарифму відношення інтенсивності $I_{s\uparrow} \{z = L\}$ побіжної стоксової компоненти ВКР до інтенсивності $I_{s\downarrow} \{z = 0\}$ зустрічної компоненти

від інтенсивності $I_L \{z = 0\}$ лазерного випромінювання показана на рис. 7.21. У порівнянні з рис. 7.19 спостерігається збільшення асиметричності розсіювання.

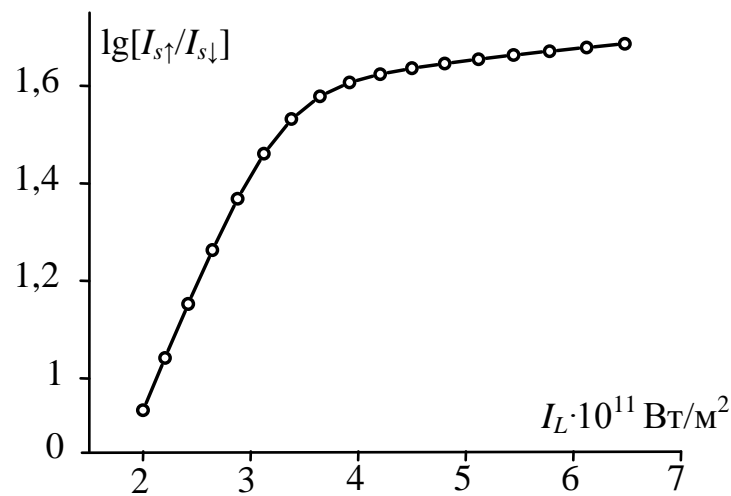


Рис. 7.21. Теоретична залежність відношення інтенсивності $I_{s\uparrow} \{z = L\}$ побіжної стоксової компоненти ВКР та інтенсивності $I_{s\downarrow} \{z = 0\}$ зустрічної компоненти від інтенсивності $I_L \{z = 0\}$ лазерного випромінювання у бензолі: $L = 1 \text{ м}$, $E_a \{z = 0\} = 0$, $E_{s\uparrow} \{z = 0\} = E_{s\downarrow} \{z = L\} = 2 \cdot 10^4 \text{ В/м}$.

Отримані результати вказують на те, що асиметрія індикатриси стоксового ВКР виникає під впливом параметричного процесу розсіювання лазерного випромінювання в антистоксову і стоксову компоненти.

Вказаний параметричний процес забезпечує додаткове надходження фотонів у побіжну стоксову компоненту. Цей надлишок фотонів (у порівнянні із зустрічною стоксовою компонентою) за подальшого поширення хвиль уповдовж середовища зростає за комбінаційним механізмом вимушеного розсіяння. Таким чином, в конкуренції процесів генерації побіжної і зустрічної стоксових компонент суттєву перевагу набуває процес побіжного ВКР. Коефіцієнт $I_{s\uparrow} \{z = L\} / I_{s\downarrow} \{z = 0\}$ асиметрії розсіяння може сягати величини $\square 100$ за великих інтенсивностей лазерного випромінювання навіть без урахування фазової модуляції.

7.5. Генерація та підсилення субнаносекундних імпульсів вимушеного комбінаційного розсіювання у самофокусуєчих органічних речовинах

ВКР успішно використовується у перетворювачах лазерного випромінювання для переналаштування частоти, компресії імпульсів, поліпшення оптичної якості пучків [2, 5, 99, 181]. Але перелік ВКР-активних середовищ, що набули практичного застосування, обмежується воднем [182, 183] та метаном [184, 185] під тиском в десятки атмосфер та кристалами $\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$ [186, 187], $\text{KGd}(\text{WO}_4)_2$ [188, 189, 190]. Такі ж доступні, оптично стійкі та зручні у користуванні середовища, як самофокусуєчі рідини (бензол, толуол, ксилол тощо), саме в яких історично вперше спостерігалось ВКР [87], внаслідок безуспішних спроб створення високоефективних перетворювачів [1] залишаються поза увагою розробників приладів квантової електроніки. Це звужує набір частот випромінювання, що можна одержати від одного лазера, а отже зменшує цінність ВКР, як методу переналаштування частоти.

У самофокусуєчих рідинах експериментальний поріг ВКР визначається порогом самофокусування [123] і досягається надзвичайно легко, але виникають суттєві ускладнення на шляху досягнення високої енергетичної ефективності перетворення випромінювання лазера. Здебільшого в самофокусуєчих рідинах ефективність перетворення у першу стоксову компоненту ВКР не перевищує 20%, а в цілому, в усі стоксові компоненти – 30%, за збудження гігантськими імпульсами багатомодових лазерів [107]. Значною мірою це обумовлено самофокусуванням та фазовою самомодуляцією лазерного випромінювання.

На наш погляд, високої ефективності перетворення на основі ВКР в самофокусуєчих рідинах все ж таки можна досягти, але за двокюветною схемою, тобто у два етапи. А саме: генерації імпульсу ініціюючого побіжного або зустрічного ВКР у кюветі з перевищенням порогу самофокусування та підсилення цього імпульсу в результаті зустрічного ВКР нижче порогу самофокусування у другій кюветі. Важливо, що опріч досягнення високої

загальної ефективності перетворення за двокюветною схемою, у першій кюветі можна одночасно скоротити (а отже, в результаті компресувати) імпульс випромінювання, використовуючи динаміку процесу самофокусування.

Слід також зауважити, що найбільш вагомими практичними результатами вирішення проблеми підвищення ефективності ВКР у самофокуруючих рідинах тісно пов'язані з доступністю збуджуючого лазера. Тому особливо актуальним є вирішення комплексної проблеми ефективного перетворення випромінювання багатомодових лазерів з одночасним поліпшенням оптичної якості їх випромінювання.

Зазначені обставини стимулювали проведення експериментальних досліджень, спрямованих на отримання наносекундних стоксових імпульсів у самофокуруючих ВКР-активних рідинах за збудження гігантським імпульсом багатомодового лазера. Такі імпульси можуть далі використовуватися на етапі підсилення, як ініціюючі, що задають часові та просторові характеристики перетвореного лазерного випромінювання.

У даному випадку використовувався багатомодовий рубіновий лазер з резонатором довжиною 35 см і пасивною модуляцією добротності, що випромінював імпульси на довжині хвилі 0,6943 мкм з енергією 0,5 Дж та тривалістю 30 нс на половинному рівні інтенсивності. Зазначимо, що параметри імпульсів значною мірою визначаються густиною та товщиною пасивного модулятора добротності (фталоціанін хлористого галію в хлорбензолі). Середньоквадратичний розкид енергії імпульсів складав 5%. Форма імпульсу (реєструвалася осцилографом С7-10Б) була гладкою, а ширина спектра (вимірювалася за допомогою інтерферометра Фабрі-Перо з товщиною кільця 30 мм та різкістю ≈ 20) становила $0,01 \text{ см}^{-1}$, що не перевищує відстань між двома сусідніми поздовжніми модами пусого резонатора ($0,014 \text{ см}^{-1}$). У перетині пучок лазера (з діаметром близько 1 см) був неоднорідний, з великою кількістю ($\sim 10^2$) максимумів та мінімумів інтенсивності.

Для зазначених умов без підфокусування пучка у кюветі з толуолом ($\text{C}_6\text{H}_5\text{CH}_3$) довжиною 25 см поріг ВКР перевищувався у 3,5 рази, а ефективність

перетворення в усі стоксові компоненти, що поширюються у напрямку збуджуючого пучка, складала 18 % за енергією. Тривалість імпульсу побіжного стоксового ВКР становила від 15 нс до 25 нс, тобто була не меншою, ніж половина тривалості імпульсу лазера.

Для отримання та реєстрації ініціюючих стоксових імпульсів використана схема, що подана на рис. 7.22. Випромінювання лазера частково пропускалося через діафрагму і попадало у кювету з толуолом, довжиною 25 см. Оптичний фільтр СЗС-20 розташовувався за кюветою і поглинав лазерне випромінювання. Імпульси ВКР, пройшовши через фільтр, попадали на схему реєстрації, що складалася з фотоелектричного перетворювача ФК-19.000 (час наростання від 0,1 до 0,9 максимального значення струму в імпульсі не більше 0,7 нс) та осцилографа С7-10Б спільно з лінією затримки сигналу (окремо утворювався канал синхронізації осцилографа).

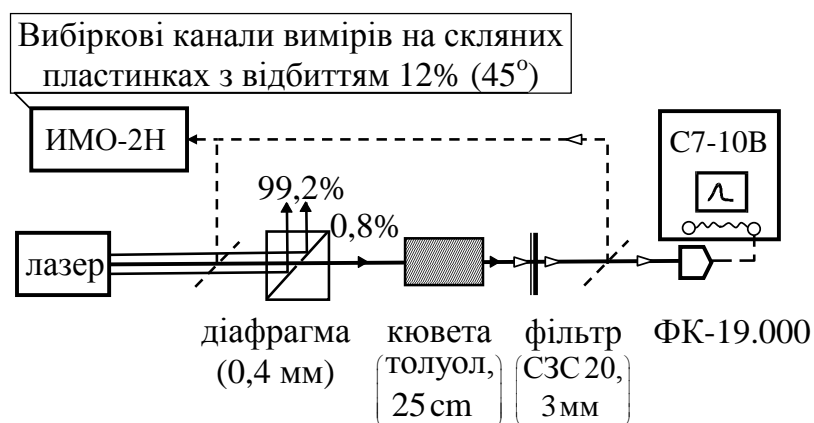


Рис. 7.22. Оптична схема для генерації ініціюючих субнаносекундних імпульсів ВКР і для дослідження ефективності ВКР з окремої області самофокусування.

Діафрагма утворювалася з двох 90°-призм, гіпотенузні грані яких на обмеженій ділянці приводилися в оптичний контакт краплею гліцерину. Поверхня оптичного контакту мала діаметр $D=0,4$ мм. У порівнянні зі звичайними, така діафрагма має ту перевагу, що для потужного імпульсного

випромінювання запобігається оптичний пробій на її межах. Крім того, випромінювання лазера, яке не проходить діафрагму, виводиться без втрат і може далі використовуватися у каналі підсилення.

Діаметр $D=0,4$ мм діафрагми вибирався виходячи з того, що у толуолі пучок лазера фрагментувався на окремі дрібні частинки, які самофокусувалися незалежно. Застосувавши схему реєстрації просторово-кутових спектрів та методику, описану в підр. 3.5, було визначено, що на вході у кювету середній діаметр цих частинок пучка для лазера, який використовувався, становить $d = 2a_0 = 0,23$ мм. За такого співвідношення діаметрів $D/d < 2$ з великою імовірністю у кюветі з толуолом формувалося одночасно не більше однієї фокальної області самофокусування, а отже запобігалось утворення багатьох незалежних джерел ВКР з різною фазою, просторово локалізованих у межах окремих фокальних областей.

Відстань між діафрагмою та кюветою становила 5 см і добиралася експериментально так, щоб поріг ВКР був перебільшений лише на стільки, аби гарантувався розвиток ВКР для кожного імпульсу лазера, враховуючи нестабільність його просторових та часових характеристик, як багатомодового джерела світла. У випадку збільшення відстані між діафрагмою і кюветою до 10 см поріг ВКР не досягався, оскільки внаслідок дифракції пучок на шляху між діафрагмою і кюветою розширювався настільки, що область самофокусування не утворювалася.

Через діафрагму проходило випромінювання з енергією 4 мДж, яка становила лише 0,8% від загальної енергії імпульсу лазера (рис. 7.22). В таких умовах середня енергія імпульсу ВКР складала 0,15 мДж, що відповідало енергетичній ефективності перетворення лазерного випромінювання 4% – суттєво меншій, ніж ефективність перетворення за відсутності діафрагми.

На рис. 7.23 наведені осцилограми імпульсів лазерного випромінювання (а) та стоксової компоненти ВКР (б) без діафрагми, а також, лазерного випромінювання (в) та ВКР (г) з використанням діафрагми. Аби акцентувати увагу на відмінностях у формі та тривалості, усі імпульси на

рис. 7.23 нормовані так, щоб амплітуди їх були однакові.

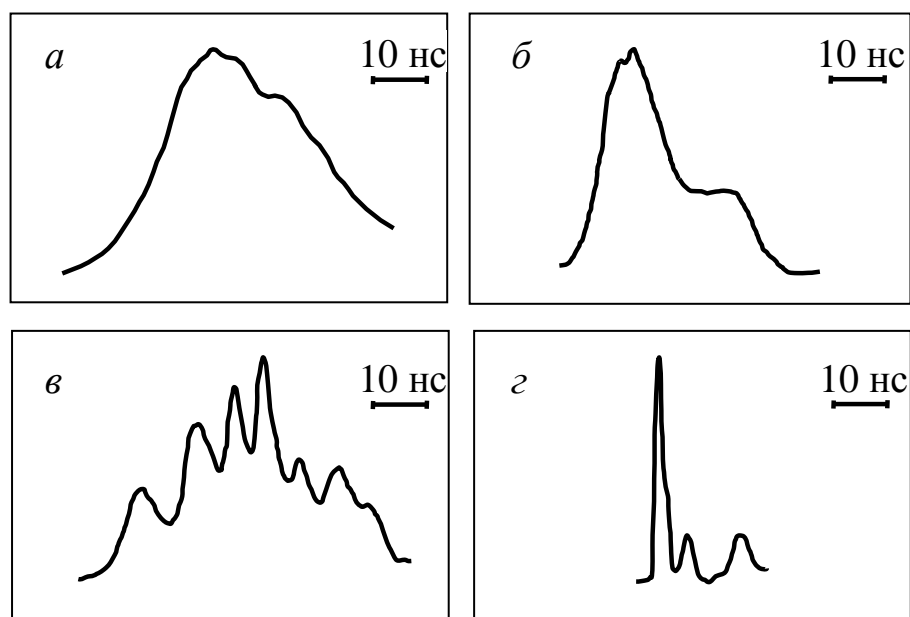


Рис. 7.23. Осцилограми імпульсів лазерного випромінювання (*a*) та ВКР (*б*) без діафрагми і лазерного випромінювання (*в*) та ВКР (*г*) за діафрагмою: вважається що ВКР належить стоксовій компоненті, оскільки вона має найбільшу інтенсивність; енергія лазерного випромінювання була максимальною.

Характерним для осцилограм імпульсів лазерного випромінювання за діафрагмою (рис. 7.23, *в*) є майже 50%-на модуляція з середнім періодом близько 7 нс. Зауважимо, що для резонатора 35 см биття сусідніх поздовжніх мод вело б до модуляції з періодом 2,3 нс, тому її слід віднести до биття поперечних мод або деформації модової структури пучка у процесі генерації.

Осцилограма імпульсу ВКР на рис. 7.23, *г* засвідчує, що у запропонованій схемі з використанням діафрагми можна одержати імпульси ВКР наносекундної тривалості. Тривалість імпульсу ВКР на половинному рівні у 50% випадків за осцилограмами не перевищувала 2 нс, а отже, з урахуванням інерційності схеми реєстрації знаходилася в межах 1÷1,5 нс. Час наростання імпульсів ВКР був настільки коротким, що для його визначення необхідно

використовувати схему реєстрації з часовою роздільністю не більше 0,1 нс. Досить часто навіть за незмінних експериментальних умов після першого імпульсу ВКР генерувалися ще один або два імпульси, але вони були, як правило, триваліші та з меншою амплітудою. Період проходження цих імпульсів тісно корелював з періодом осциляцій інтенсивності лазерного випромінювання після діафрагми (рис. 7.23,в).

Для підсилення ініціюючого стоксового імпульсу ВКР (рис. 7.23,з) використовувалася оптична схема, що зображена на рис. 7.24.

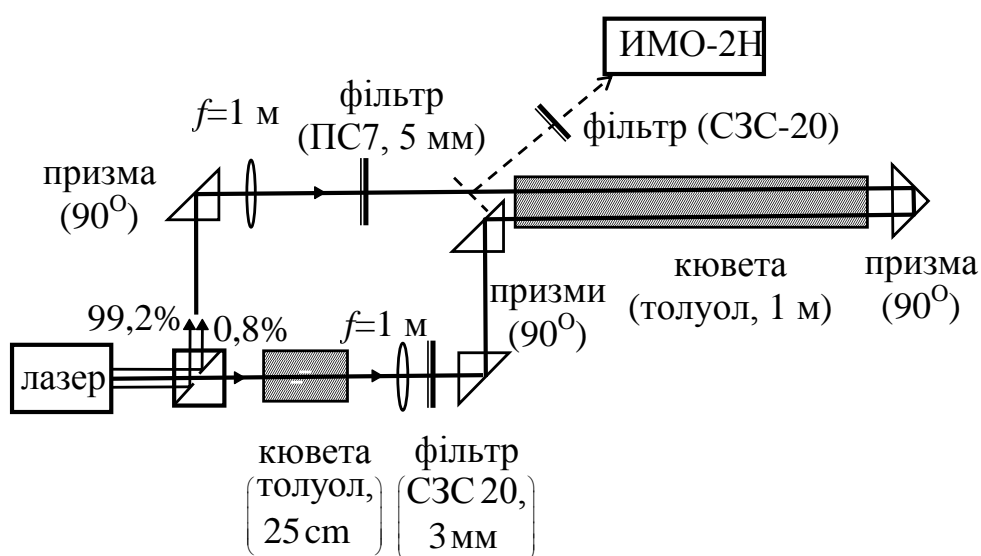


Рис. 7.24. Оптична схема експериментальної установки для дослідження процесу підсилення стоксових імпульсів ВКР з окремої фокальної області в толуолі (або бензолі).

Ініціюючий імпульс, утворений у короткій кюветі з толуолом довжиною 25 см, надалі двічі проходив кювету з толуолом довжиною 1 м зустрічно основної частини (99,2%) лазерного променя. Оптичний фільтр ПС 7 використовувався для запобігання впливу зворотного зв'язку. Коефіцієнт підсилення за схемою на рис. 7.24 становив $k_{en} = 16$. У випадку заміни в обох кюветах толуолу на бензол було отримано $k_{en} = 23$.

Динаміка самофокусування більш ефективно дає скорочення імпульсів

ВКР за схемою, поданою на рис. 7.25. Для утворення ініціюючих імпульсів нами використовувалася подвійна кювета, яка складалася з першої частини (25 см), заповненої толуолом, та другої – з бензолом (0,3 см). Толуол і бензол герметично розділялися скляним віконцем товщиною 0,2 см.

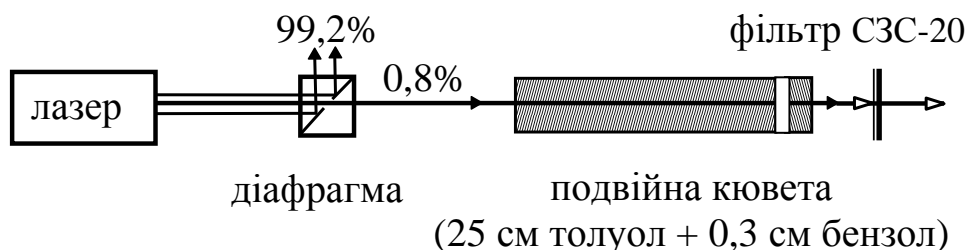


Рис. 7.25. Модифікована оптична схема експериментальної установки для дослідження процесу генерації ініціюючих стоксових імпульсів ВКР з окремої фокальної області в бензолі.

На виході з першої самофокусуєної секції подвійної кювети точка самофокусування має швидкість, близьку до групової швидкості лазерного випромінювання у толуолі: $v_{gL} = 1,97 \cdot 10^8$ м/с (рис. 3.17). Довжину фокальної області на виході першої секції можна оцінити як $\ell_f \approx 2$ см (рис. 3.29). Тож, у другій секції з бензолом, який немає виражених властивостей самофокусування, утворюється імпульс ВКР з тривалістю:

$$\tau_{ВКР} \approx (\ell_f + L_2) / v_{gL} = 0,12 \text{ нс},$$

де L_2 – довжина другої секції.

Отже, у запропонованій схемі на рис. 7.25 за рахунок самофокусуєних властивостей толуолу генерується субнаносекундний імпульс стоксового ВКР у бензолі на його ж комбінаційній частоті. Бензол має у 2,4 рази більший коефіцієнт підсилення ВКР, що зумовлює ефективне підсилення ініціюючого імпульсу в подальшому.

Повна схема експериментальної установки показана на рис. 7.26. Ініціюючий імпульс, утворений в подвійній кюветі, підсилювався далі в кюветі з бензолом довжиною 1 м. Коефіцієнт підсилення складав $k_{en} = 20$.

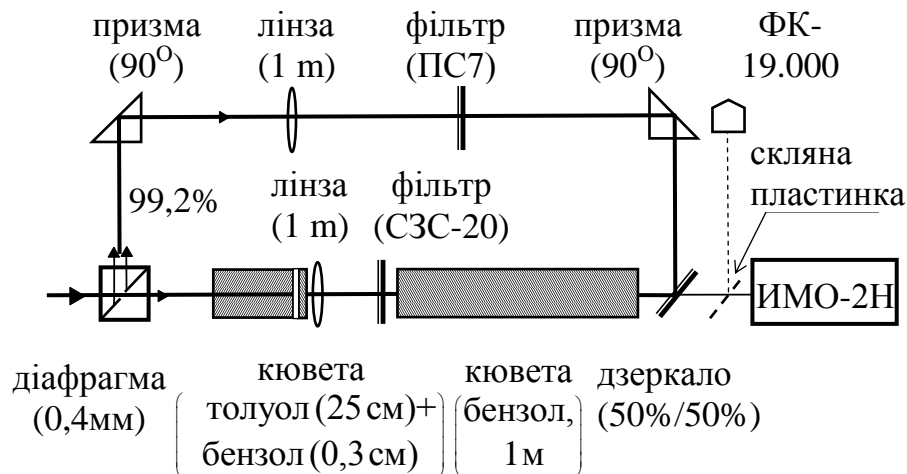


Рис. 7.26. Модифікована оптична схема експериментальної установки для дослідження процесу генерації ініціюючих стоксових імпульсів ВКР з окремої фокальної області в бензолі та їх підсилення.

Одержані експериментальні дані (зокрема див. рис. 7.23) дають змогу оцінити ефективність ВКР у окремій фокальній області. Виходячи з того, що тривалість імпульсу лазерного випромінювання за діафрагмою становила $\tau_L = 30$ нс на половинному рівні, а енергія – $E_L = 4$ мДж, одержуємо значення потужності лазерного випромінювання за діафрагмою: $P_L = E_L / \tau_L = 133$ кВт.

Критична потужність самофокусування для толуолу складає $P_{cr} = 25$ кВт. Оскільки без діафрагми поріг ВКР, а отже й самофокусування, перевищувався у $\tilde{P}_0 = 3,5$ разів, то можна оцінити потужність лазерного випромінювання, яке самофокусувалося в окрему фокальну область після введення діафрагми: $P_L^* = k_d \tilde{P}_0 P_{cr} = 80$ кВт, де $k_d = 0,92$ – коефіцієнт втрат світла внаслідок відбиття на зовнішніх гранях діафрагми.

Таким чином, у фокальну область попадало $P_L / P_L^* = 80 \text{ кВт} / 133 \text{ кВт} = 0,6$,

тобто 60% випромінювання від того, яке пройшло діафрагму, а інша частина (40 %) випромінювання не брала участі у генерації імпульсу ВКР. Якби у фокальній області відбувалося повне виснаження лазерного випромінювання в момент генерації імпульсу ВКР, то на осцилограмах амплітуда імпульсу ВКР становила б теж 60% від амплітуди імпульсу лазерного випромінювання. В експерименті ж відношення амплітуд (після урахування пропускання фільтра та спектральної чутливості фотоелектричного перетворювача) доходило до 0,5. Звідси можна зробити висновок, що енергетична ефективність перетворення лазерного випромінювання у фокальній області досягала в експерименті приблизно $0,5/0,6 \approx 0,8$, а квантова – 86%. Отже, досягнення високої ефективності перетворення лазерного випромінювання у ВКР-активних самофокусуючих рідких середовищах є принципово можливим, а ефект „абсолютного насичення вимушеного розсіяння” [107] не носить фундаментального характеру.

Загалом маємо, що схема на рис. 7.22 придатна для генерації ініціюючих імпульсів тривалістю ~ 1 нс. Такі імпульси можуть бути підсиленими в ~ 20 разів з використанням схеми поданої на рис. 7.24. Удосконалена схема з подвійною кюветою (рис. 7.25) дає ініціюючі імпульси з тривалістю $\sim 0,1$ нс. Ці імпульси також можна підсилити в ~ 20 разів за схемою, що наведена на рис. 7.26.

Обмеження на етапі підсилення пов'язані переважно з вимушеним розсіюванням Мандельштама-Брілюена та фазовою модуляцією, оскільки зворотне ВКР є незначним (підр. 7.4). Проте, можуть впливати інші фактори, які розглядаються далі, зокрема, наявність вищих стоксових компонент.

7.6. Залежність ефективності генерації стоксової компоненти вимушеного комбінаційного розсіяння від поглинання та спектрально складу випромінювання накачування.

Розглянемо можливість підвищення ефективності генерації першої стоксової компоненти ВКР світла внаслідок селективного поглинання та комбінованого накачування. Пропонується одночасно з лазерним

випромінюванням подавати на вхід підсилюючого середовища третю стоксову компоненту або вводити в середовище селективно поглинаючі речовини.

З вище наведених результатів (підр. 7.5) випливає, що високої ефективності перетворення на основі ВКР в самофокусуємих рідинах можна очікувати у двокюветних схемах за генерації імпульсу низькопорогового побіжного ВКР у кюветі з перевищенням порогу самофокусування та підсилення цього імпульсу в іншій кюветі, але нижче порогу самофокусування. З'ясуємо причин, що можуть обмежувати ефективність перетворення лазерного випромінювання у двокюветній схемі, та проведемо дослідження впливу на ефективність перетворення селективного поглинання другої стоксової компоненти, комбінованого накачування за участю третьої стоксової компоненти.

Розглянемо випадок, коли в першій кюветі досягається поріг самофокусування і генеруються як мінімум три стоксові компоненти, а на виході з неї потужність лазерного випромінювання є ще достатньою для інтенсивного ВКР у режимі підсилення в другій кюветі. Випромінювання з першої кювети надходить у другу, заповнену тією ж ВКР-активною рідиною.

Вважається, що перед другою кюветою встановлюється спектральний фільтр або прилад, який пропускає лазерне випромінювання та дає змогу змінювати розподіл потужностей стоксових компонент до заданого рівня. У другу кювету можуть вводитися барвники, які селективно поглинають певні стоксові компоненти. Поріг самофокусування в другій кюветі не досягається внаслідок однієї або декількох таких обставин: недостатня вхідна потужність лазерного випромінювання; відстань між кюветами є значною; друга кювета складається із секцій, між якими існують несамофокусуєчі або дефокусуєчі ділянки; ВКР-активною в обох кюветах є несамофокусуєча рідина, але в першу додана речовина з великою сталою Керра; зміна між кюветами поляризації випромінювання з лінійної на циркулярну.

Не враховується фазова саомодуляція, хвильова нестационарність, часова зміна потужності, дифракційні ефекти, розбіжність пучків, параметричний

механізм генерації антистоксових і стоксових компонент. Останнє виправдано незначною інтенсивністю антистоксових компонент.

Числовими методами розв'язувалася система семи нелінійних зв'язаних рівнянь для інтенсивностей I_i лазерної хвилі (з індексом $i = 0, I_L = I_0$) та шести перших стоксових компонент (з індексами $i = 1, 2, 3, 4, 5, 6$, відповідно) у другій кюветі, розташованій на відрізку осі $z = 0 \div L$:

$$\begin{cases} dI_0 / dz = -G_0' I_0 I_1 - \alpha_0 I_0, \\ dI_1 / dz = G_1 I_1 I_0 - G_1' I_1 I_2 - \alpha_1 I_1, \\ \cdot \quad \quad \cdot \quad \quad \cdot \\ dI_5 / dz = G_5 I_5 I_4 - G_5' I_5 I_6 - \alpha_5 I_5, \\ dI_6 / dz = G_6 I_6 I_5 - \alpha_6 I_6. \end{cases} \quad (7.29)$$

У системі (7.29) використані α_i – коефіцієнти поглинання, а G_i та G_i' – коефіцієнти комбінаційного підсилення та ослаблення для інтенсивності (а не поля) випромінювання на відповідних частотах, що в системі СІ визначаються виразами:

$$G_i = \frac{2\omega_i}{n_i n_{i-1} c^2 \varepsilon_0} \left| \operatorname{Im} \left[\chi_i^{(3)} (\omega_i; \omega_{i-1}, -\omega_{i-1}, \omega_i) \right] \right|, \quad (7.30)$$

$$G_i' = \frac{2\omega_i}{n_i n_{i+1} c^2 \varepsilon_0} \left| \operatorname{Im} \left[\chi_i^{(3)} (\omega_i; \omega_{i+1}, -\omega_{i+1}, \omega_i) \right] \right|,$$

де $\chi_i^{(3)}$ – відповідні кубічні сприйнятливості (поляризованості) середовища, ω_i – циклічні частоти хвиль, $n_i \{ \omega_i \}$ – показники заломлення. Величини G_i та G_i' за віддаленості частот хвиль від електронних резонансів можна вважати однаковими: $G_i \approx G_i'$. Крім цього, внаслідок співвідношення симетрії для комбінаційних сприйнятливостей маємо рівність:

$$\operatorname{Im}\left[\chi_i^{(3)}(\omega_i; \omega_{i-1}, -\omega_{i-1}, \omega_i)\right] = -\operatorname{Im}\left[\chi_{i-1}^{(3)}(\omega_{i-1}; \omega_i, -\omega_i, \omega_{i-1})\right], \quad (7.31)$$

яка разом з (7.30) дає $G_i / \omega_i = G'_{i-1} / \omega_{i-1}$. Тому в (7.29) вважалось, що для $i = 0 \div 6$ виконуються співвідношення

$$G_i / \omega_i = G'_i / \omega_i = G_{i+1} / \omega_{i+1} = G'_{i+1} / \omega_{i+1} = \operatorname{const} \{i\}. \quad (7.32)$$

Отже для здійснення розрахунків достатньо задати значення G_1 та врахувати комбінаційний зсув частоти $\omega_i - \omega_{i+1}$. Для конкретності розрахунків були вибрані значення $G_1 = 5 \cdot 10^{-11}$ м/Вт та $(\omega_i - \omega_{i+1}) / (2\pi c) = 1000$ см⁻¹ (для порівняння: у бензолі – $G_1 = 2,8 \cdot 10^{-11}$ м/Вт, $(\omega_i - \omega_{i+1}) / (2\pi c) = 992$ см⁻¹, у сірко-вуглеці – $G_1 = 24 \cdot 10^{-11}$ м/Вт, $(\omega_i - \omega_{i+1}) / (2\pi c) = 656$ см⁻¹) за довжини хвилі лазерного випромінювання $\lambda_0 = 694,3$ мкм (рубіновий лазер).

Початкові умови у точці $z = 0$ для системи (7.29) змінювалися відповідно до можливих змін спектрального складу випромінювання, яке надходить з першої кювети. У перерізі пучків розподіл інтенсивності за радіусом r у точці $z = 0$ вважався гаусовим з радіусом $r_0 = 4$ мм:

$$I_i \{r, z = 0\} = I_i \{r = 0, z = 0\} \exp\left(-r^2 / r_0^2\right). \quad (7.33)$$

Для переходу до потужностей $P_i \{z\}$ пучків розв'язки системи (7.29) інтегрувалися за радіусом:

$$P_i \{z\} = 2\pi \int_0^{\infty} r I_i \{r, z\} dr. \quad (7.34)$$

Результати розрахунків виявили, що у межах вибраної теоретичної моделі

основною причиною обмеженої ефективності перетворення лазерного випромінювання у першу стоксову компоненту в режимі підсилення у другій кюветі є неоднорідний розподіл інтенсивності в перетині пучків. На це вказує порівняльний аналіз рис. 7.27 та рис. 7.28, наведених нижче.

На рис. 7.27 подано залежність від z нормованої інтенсивності випромінювання лазера та стоксових компонент на осі пучків ($r=0$). Вхідна інтенсивність лазерного пучка на осі становила $I_0\{r=0, z=0\}=56 \text{ МВт/см}^2$ (що для пучка з радіусом $r_0=4 \text{ мм}$ відповідає максимальній інтенсивності імпульсу з енергією $0,5 \text{ Дж}$ і тривалістю 20 нс на рівні e^{-1}), а для усіх стоксових компонент $I_i\{r=0, z=0\}=10 \text{ Вт/см}^2$. Спостерігається стовідсоткова квантова ефективність k_{hv} перетворення густини потоку фотонів, послідовно від лазера до першої стоксової компоненти і далі. Важливо, що збільшення $I_i\{r=0, z=0\}$ стоксових компонент до 1 МВт/см^2 призводить до зменшення вказаної ефективності k_{hv} до $0,8$ для першої стоксової компоненти.

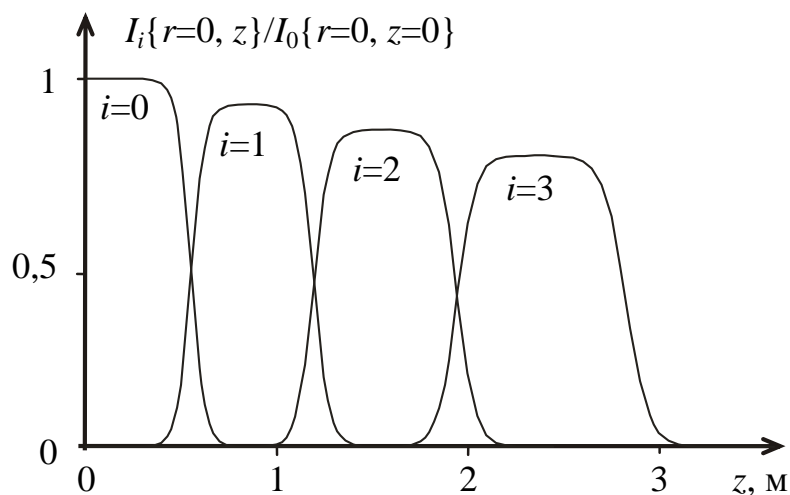


Рис. 7.27. Перетворення інтенсивності випромінювання на осі пучків.

На рис. 7.28 відображено залежність від z нормованої потужності компонент з урахуванням гаусового радіального розподілу інтенсивності пучків. Інтенсивність лазерного випромінювання $I_0\{r=0, z=0\}$ теж становила

56 МВт/см², що у випадку $r_0 = 4$ мм відповідає потужності $P_0\{z=0\}=28$ ГВт. Для усіх стоксових компонент вибрано значення $I_i\{r=0, z=0\}=1$ МВт/см². У цьому випадку для потоку фотонів маємо $k_{hv}=0,43$ для першої стоксової компоненти. Зменшення інтенсивності всіх стоксових компонент веде до збільшення k_{hv} . Для $I_i\{r=0, z=0, i \geq 1\}=10$ Вт/см² отримано $k_{hv}=0,55$ для першої стоксової компоненти. Тож очевидно, що негативну роль відіграє і наявність у вхідному випромінюванні, зокрема, другої стоксової компоненти зі значною потужністю та підсилення цієї компоненти у другій кюветі. Власне, маємо затрати на формування вищих стоксових компонент.

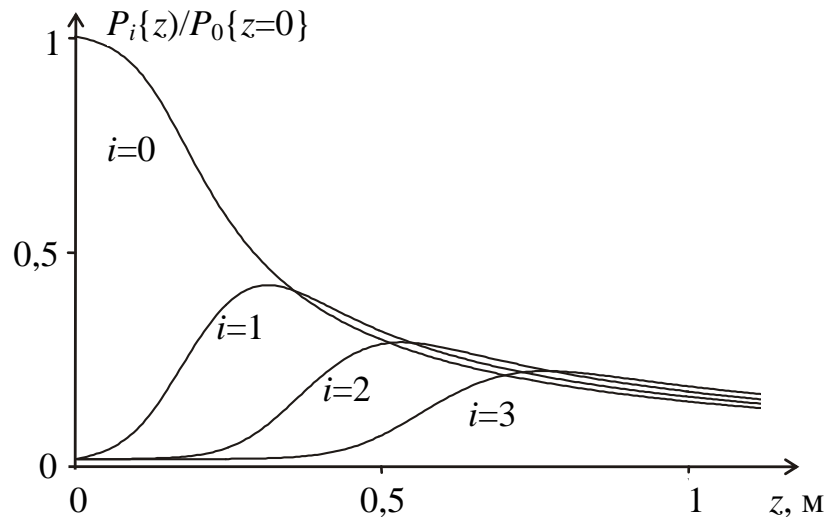


Рис. 7.28. Ефективність перетворення потужності лазерного випромінювання у стоксові компоненти ВКР: $P_0\{z=0\}=28$ ГВт, $r_0 = 4$ мм, $I_i\{r=0, z=0, i \geq 1\}=1$ МВт/см².

Пригнічення генерації другої та вищих стоксових компоненти має забезпечити максимальну потужність першої стоксової компоненти ВКР. Це можна досягти введенням селективно поглинаючої речовини на частоті другої стоксової компоненти ($\alpha_2 \neq 0$).

На рис. 7.29 подано залежності від z потужностей компонент для

коефіцієнта $\alpha_2 = 5 \text{ м}^{-1}$, а на рис. 7.30 – залежність k_{hv} для потоку фотонів першої компоненти від α_2 (за вхідних інтенсивностей, що і на рис. 7.28). Принципово змінюється як $P_i\{z\}$, так і k_{hv} .

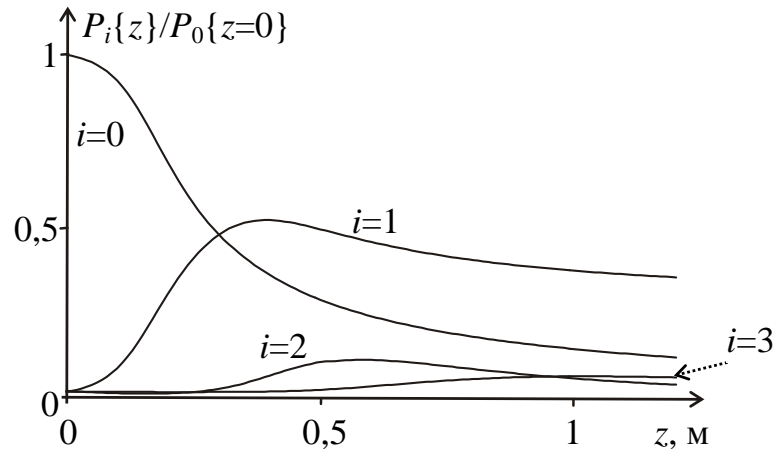


Рис. 7.29. Залежність нормованої потужності $P_i\{z\}$ лазерної ($i=0$) та перших трьох ($i=1, 2, 3$) стоксових компонент ВКР в умовах поглинання другої стоксової компоненти ($\alpha_2 = 5 \text{ м}^{-1}$).

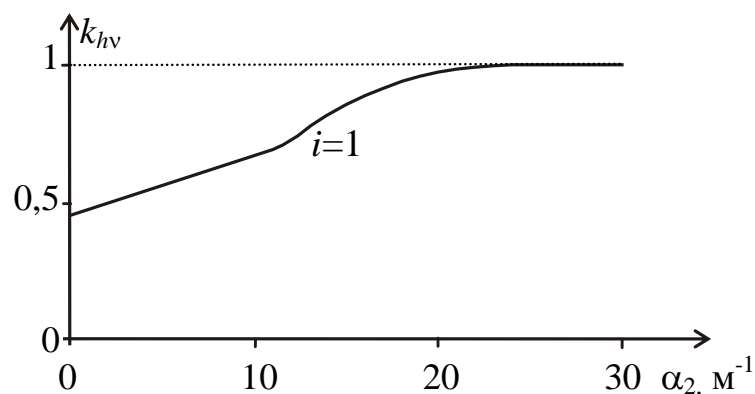


Рис. 7.30. Залежність квантової ефективності k_{hv} перетворення у першу стоксову компоненту ВКР від коефіцієнта α_2 поглинання другої стоксової компоненти.

За використаних коефіцієнтів $\alpha_2 > 25 \text{ м}^{-1}$ досягається $k_{hv} \approx 1$ (рис. 7.30). У

випадку $\alpha_2 > 15\text{м}^{-1}$ потужність стоксової компоненти наростає монотонно, асимптотично наближаючись до максимального значення, коли $z \rightarrow \infty$. Для $\alpha_2 < 12\text{м}^{-1}$ потужність першої стоксової компоненти досягнувши максимального значення надалі спадає (рис. 7.29).

Подібний ефект, що досягається внаслідок поглинання другої стоксової компоненти, можна реалізувати з використанням комбінованого накачування за участю третьої стоксової компоненти. Третя стоксова компонента, якщо вона подається на вхід середовища, пригнічує наростання другої стоксової компоненти.

На рис. 7.31 подано залежність нормованої потужності $P_i\{z\}/P_0\{z=0\}$ для нульових коефіцієнтів $\alpha_i = 0$ та $I_0\{r=0, z=0\} = I_3\{r=0, z=0\} = 56\text{МВт/см}^2$, $I_i\{i=1, 2, 4, 5, 6; r=0; z=0\} = 1\text{МВт/см}^2$.

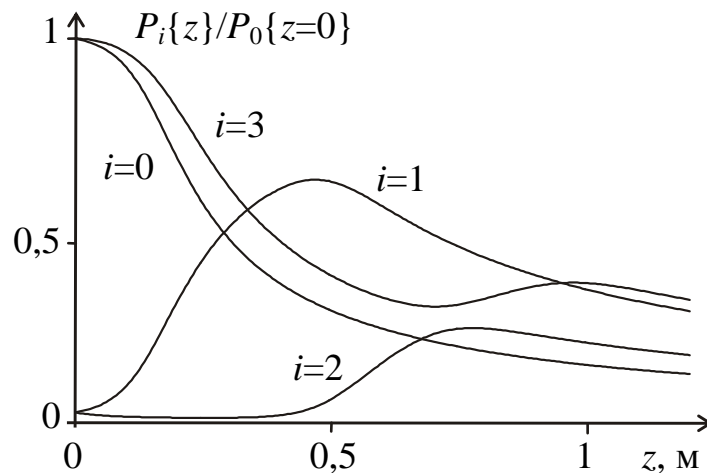


Рис. 7.31. Перетворення потужності випромінювання в умовах комбінованого накачування: $I_0\{r=0, z=0\} = I_3\{r=0, z=0\} = 56\text{МВт/см}^2$, $I_i\{i=1, 2, 4, 5, 6; r=0; z=0\} = 1\text{МВт/см}^2$, $\alpha_i = 0$.

Зміни потужності $P_3\{z=0\}$ третьої стоксової компоненти ВКР суттєво впливають на значення ефективності k_{hv} перетворення у першу стоксову компоненту. На рис. 7.32 подана залежність квантової ефективності k_{hv} для

першої стоксової компоненти ($i=1$) від відношення $I_3 \{r=0, z=0\} / I_0 \{r=0, z=0\}$ в межах $0,02 \div 1$. У цих межах k_{hv} зростає від 0,43 до 0,63. Основною причиною обмеження k_{hv} на рівні 0,63 у таких умовах є перехід фотонів з третьої в четверту стоксову компоненту.

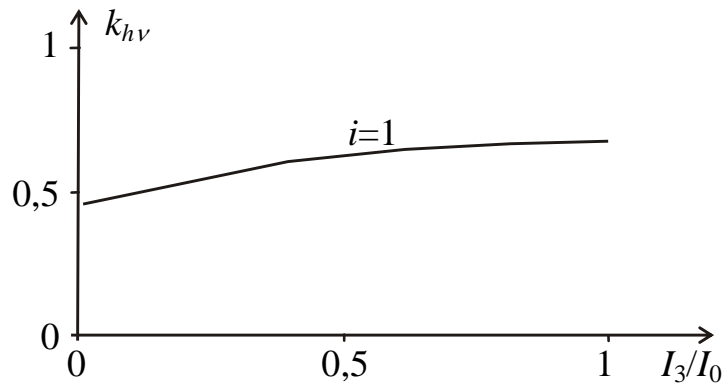


Рис. 7.32. Залежність квантової ефективності k_{hv} перетворення в першу стоксову компоненту ВКР від відношення $I_3 \{z=0\} / I_0 \{z=0\}$ інтенсивності третьої стоксової компоненти до інтенсивності лазерного випромінювання на вході в середовище: $G_1 = 5 \cdot 10^{-11}$ м/Вт, $I_0 \{r=0, z=0\} = 56$ МВт/см², $I_i \{i=1, 2, 4, 5, 6; r=0; z=0\} = 1$ МВт/см², $\alpha_i = 0$.

З наведених результатів обчислень випливає, що для досягнення близької до $k_{hv} = 1$ ефективності для першої стоксової компоненти у двокюветній схемі необхідно направляти в другу кювету випромінювання з максимально можливими значеннями інтенсивностей $I_0, I_1, I_3, I_5 \dots$ та мінімальними $I_2, I_4, I_6 \dots$, вводити поглинаючі добавки для компонент з парним індексом i . Для прикладу, на рис. 7.33 показано залежність $P_i \{z\} / P_0 \{z=0\}$ у випадку $\alpha_2 = \alpha_4 = \alpha_6 = 15 \text{ м}^{-1}$, $I_0 \{r=0, z=0\} = 56$ МВт/см², $I_2 = I_4 = I_6 = 5 \cdot 10^{-5} I_0$, $I_1 = 0,2 I_0$, $I_3 = 0,15 I_0$, $I_5 = 0,1 I_0$. За таких параметрів досягається максимальна квантова ефективність $k_{hv} = 0,92$ поблизу $z = 0,5 \div 0,65$ м.

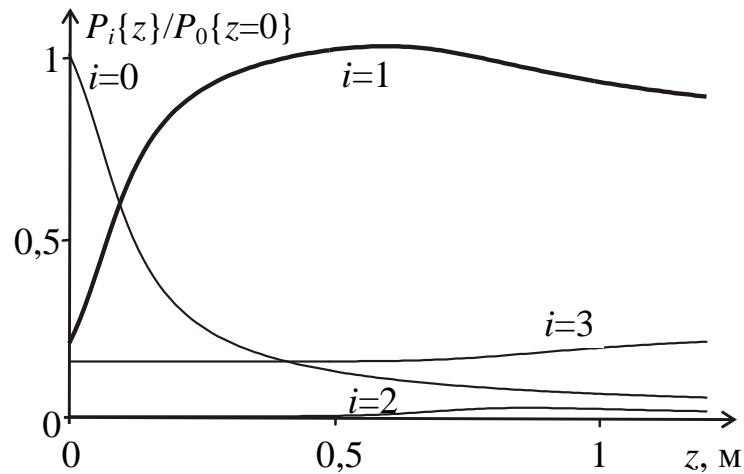


Рис. 7.33. Перетворення в умовах, близьких до оптимальних для першої стоксової компоненти ($i=1$): $\alpha_2 = \alpha_4 = \alpha_6 = 15 \text{ м}^{-1}$, $I_0\{r=0, z=0\} = 56 \text{ МВт/см}^2$, $I_2 = I_4 = I_6 = 5 \cdot 10^{-5} I_0$, $I_1 = 0,2 I_0$, $I_3 = 0,15 I_0$, $I_5 = 0,1 I_0$.

7.7. Вплив наночастинок благородних металів на ефективність вимушеного комбінаційного розсіювання.

Використання ВКР на практиці ускладнене підвищеними вимогами до параметрів лазерного джерела випромінювання та комбінаційно-розсіюючого середовища. Зокрема, ефективне ВКР зазвичай вимагає значних величин інтенсивності лазерного випромінювання накачки та довжини комбінаційно-розсіюючого середовища.

Для оптимізації умов ВКР-генерації та ВКР-підсилення підбираються середовища з відповідними параметрами, зокрема використовуються активніші КР-речовини, застосовується явище самофокусування тощо. Однак ці підходи мають певні недоліки. Приміром, під час самофокусування спостерігаються інші нелінійно-оптичних явища (такі як фазова само модуляція, рух фокальної області тощо), які впливають на параметри ВКР-генерації і ускладнюють керування властивостями генерованого світла.

Альтернативним методом покращення умов ВКР-генерації та ВКР-підсилення може стати використання гігантського комбінаційного розсіювання

(ГКР). Ефект ГКР, який вперше спостерігався авторами роботи [191], виникає, коли КР-активні молекули адсорбуються на шорсткій поверхні деяких (срібло, золото, мідь) металів [192, 193] або на наночастинках металу, введених у КР-середовище у дисперсному стані [194].

Коефіцієнт $k_{ГКР}$ зростання інтенсивності розсіювання компонент КР (коефіцієнт зростання ефективного перетину КР), за використання наночастинок срібла або золота може сягати значень 10^6 і більше [195, 196]. Слід враховувати, що коефіцієнт $k_{ГКР}$ визначається кількома обставинами: довжиною хвилі збуджуючого і розсіяного випромінювання (через що максимальне зростання може відбуватися на частоті, відмінній від частоти спектральних КР-ліній середовища), геометричними параметрами поверхні металу, характером адсорбції молекул КР-речовини на поверхні металу тощо [197]. До того ж, найбільшого значення коефіцієнт зростання ефективного перетину КР досягається у випадку взаємодії з наночастинкою лише першого шару адсорбованих КР-активних молекул [198], а частинки мають бути сумірними за розмірами з молекулами середовища, але більшими за них.

Загалом, ефект ГКР може забезпечити підсилення інтенсивності розсіяного випромінювання, що, в принципі, є ефективним засобом зниження вимог до інтенсивності збуджуючого випромінювання, за якої спостерігається ВКР.

Розглянемо ідеальний випадок ефекту ГКР та його вплив на процес ВКР. У нашій моделі прийнято, що самофокусування у випадку керівських рідин за зниження інтенсивності збуджуючого випромінювання проявляє себе незначною мірою (або мається на увазі точка зупинки фокальної області), тому ним нехтуємо. Крім того, в моделі розглядається утворення лише першої стоксової компоненти ВКР, втрати енергії на ВКР-компоненти вищих порядків не враховуємо.

Для теоретичного підґрунтя розглянемо поле сферичної наночастинки з діелектричною проникністю ϵ_n [199]. Припустимо частинка розташована у вакуумі. Під впливом зовнішнього електричного поля \vec{E}_0 падаючої

(збуджуючої) електромагнітної хвилі наночастинка поляризується. Поле $\vec{E}^{(i)}$ всередині частинки є сумою електричного поля \vec{E}_0 та поля від наведеної в ній поляризації \vec{P} (об'ємної густини дипольного моменту). Поле $\vec{E}^{(i)}$ визначається співвідношеннями (в системі СГС, але остаточні вирази не залежать від системи одиниць вимірювання):

$$\begin{aligned}\vec{E}^{(i)} &= \vec{E}_0 - \frac{4}{3}\pi\vec{P}, \\ \vec{P} &= \alpha\vec{E}^{(i)},\end{aligned}\tag{7.35}$$

де α – поляризованість матеріалу наночастинки. Враховуючи, що діелектрична проникність матеріалу наночастинки становить $\epsilon_n = 1 + 4\pi\alpha$, можна, розв'язуючи систему рівнянь (7.35), виразити внутрішнє поле в наночастинці через \vec{E}_0 :

$$\vec{E}^{(i)} = \frac{3}{\epsilon_n + 2}\vec{E}_0.\tag{7.36}$$

Та подати її поляризацію (головне) у вигляді

$$\vec{P} = \frac{3}{4\pi} \frac{\epsilon_n - 1}{\epsilon_n + 2} \vec{E}_0.\tag{7.37}$$

Наведений дипольний момент \vec{d} сферичної наночастинки з радіусом R визначається співвідношенням:

$$\vec{d} = V\vec{P} = R^3 \frac{\epsilon_n - 1}{\epsilon_n + 2} \vec{E}_0,\tag{7.38}$$

де враховано об'єм частинки $V = 4\pi R^3/3$. Дипольний момент \vec{d} створює

додаткове електричне поле за межами наночастинки. На поверхні частинки (тобто на відстані R від її центру) сума полів становить:

$$\vec{E}^{(e)} = \vec{E}_0 + \left[\frac{3(\vec{d}\vec{R})}{R^5} \vec{R} - \frac{\vec{d}}{R^3} \right], \quad (7.39)$$

де \vec{R} – радіус вектор з довжиною R , проведений з центру наночастинки.

За використання (7.38), (7.39) у випадку $\vec{R} \parallel \vec{E}_0$ отримуємо максимальне поле на поверхні частинки в її полюсах:

$$\vec{E}^{(e)} = \left(1 + 2 \frac{\varepsilon_n - 1}{\varepsilon_n + 2} \right) \vec{E}_0. \quad (7.40)$$

Якщо наночастинка розташована у середовищі з діелектричною проникністю ε_c . Вираз (7.40) набуває вигляду:

$$\vec{E}^{(e)} = \left(1 + 2 \frac{\varepsilon_n - \varepsilon_c}{\varepsilon_n + 2\varepsilon_c} \right) \vec{E}_0. \quad (7.41)$$

ГКР виникає через збільшення локального поля (7.41), діючого на адсорбовану молекулу, якщо $E^{(e)} > E_0$. Вираз (7.41) дає коефіцієнт $E^{(e)}/E_0$ зростання локального поля на поверхні частинки.

За комбінаційного розсіювання відбувається зсув частоти відносно частоти збуджуючого світла. Поле розсіяної хвилі теж зростає за описаним механізмом. Отже, результуючий коефіцієнт $k_{ГКР}$ зростання інтенсивності розсіювання компонент КР становить (дивись також [195, 200, 201]):

$$k_{ГКР} = \left(\left(1 + 2 \frac{\varepsilon_n - \varepsilon_c}{\varepsilon_n + 2\varepsilon_c} \right) \left(1 + 2 \frac{\varepsilon_n' - \varepsilon_c'}{\varepsilon_n' + 2\varepsilon_c'} \right) \right)^2, \quad (7.42)$$

де $\varepsilon_n' \{ \omega_{0s} \}$ та $\varepsilon_c' \{ \omega_{0s} \}$ – діелектричні проникності наночастинки (індекс n) та середовища (індекс c) на стоксовій частоті ω_{0s} , а $\varepsilon_n \{ \omega_{0L} \}$ та $\varepsilon_c \{ \omega_{0L} \}$ – на частоті ω_{0L} збуджуючої хвилі.

Виконаємо числові оцінки коефіцієнта $k_{ГКР}$ зростання інтенсивності КР адсорбованих молекул для різних наночастинок і комбінаційних частотних зсувів. Розглянемо випадок використання наночастинок срібла, які дають змогу отримати одні з найбільших значень $k_{ГКР}$. Припустимо наночастинок введені в толуол (комбінаційний зсув стоксової компоненти $(\omega_{0L} - \omega_{0s}) / (2\pi c) = 1004 \text{ см}^{-1}$) або бензол (зсув стоксової компоненти 992 см^{-1}). За цих умов маємо наведену на рис. 7.34 залежність ефективного коефіцієнта зростання інтенсивності КР адсорбованих молекул від довжини хвилі λ_{vL} збуджуючого випромінювання. Для розрахунку використані відомі дані з дисперсії ε_n срібла [202].

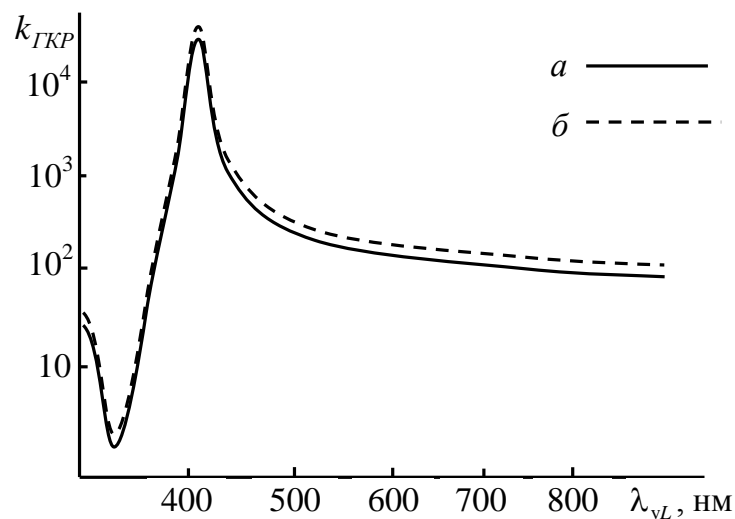


Рис. 7.34. Залежність коефіцієнта зростання $k_{ГКР}$ інтенсивності КР на срібних наночастинок від довжини хвилі збуджуючого випромінювання для різних речовин: a – толуол, b – бензол.

У випадку використання рубінового лазера ($\lambda_{vL}=694,3$ нм) на комбінаційній частоті першої стоксової компоненти значення $k_{ГКР}$ складають для толуолу $k_{ГКР} = 158,1$ і для бензолу $k_{ГКР} = 159,9$.

Слід врахувати, що вказана величина $k_{ГКР}$ стосується однієї молекули КР-активної речовини, яка знаходиться у першому шарі молекул, адсорбованих на поверхні. Для визначення загального зростання інтенсивності розсіяного світла в розчині наночастинок у толуолі чи бензолі необхідно оцінити відношення вільних молекул середовища, які мають „звичайний” перетин КР, та адсорбованих молекул з ефективним перетином КР, збільшеним у $k_{ГКР}$ разів.

Вважатимемо, що комбінаціо активне середовище має власний коефіцієнт G підсилення ВКР за інтенсивністю. Необхідно визначити ефективний коефіцієнт підсилення G_+ , що є результатом розсіювання за обома механізмами (КР та ГКР).

Значення G_+ залежить від співвідношення вільних та адсорбованих молекул. Для визначення цього співвідношення розглянемо модель середовища, яке складається зі сферичних молекул і сферичних наночастинок з ефективними радіусами r та R , відповідно. З фізичної точки зору на ці параметри накладаються обмеження $R \geq r$, оскільки наночастинок мають бути співрозмірними за розміром із молекулами середовища, але є більшими за них.

У середовищі без наночастинок концентрація молекул, що рівномірно розташовані в об'ємі, визначається як $N_M = 1/V_M$, де

$$V_M = \frac{4}{3} \pi r^3 \quad (7.43)$$

– об'єм однієї молекули середовища.

Після додавання в речовину наночастинок молекули адсорбуються на їх поверхні і утворюються комплекси „наночастинка + перший шар молекул”. Об'єм одного комплексу становить:

$$V_k = \frac{4}{3} \pi (R + 2r)^3. \quad (7.44)$$

Максимально можлива концентрація таких комплексів складає $N_{k,\text{макс.}} = 1/V_k$. У реальних умовах вона є меншою. Тому, введемо коефіцієнт $\kappa = 0 \div 1$, який вказує на частку концентрації комплексів від максимально можливої. Тож, фактична концентрація комплексів задається виразом:

$$N_k = \kappa N_{k,\text{макс.}} = \kappa / V_k. \quad (7.45)$$

У цьому разі для „вільних” молекул середовища залишається доступною частка об'єму $1 - V_k N_k$ і концентрація „вільних” молекул середовища рівна

$$N_{M(B)} = \frac{1 - V_k N_k}{V_M} = N_M - N_k \frac{V_k}{V_M}. \quad (7.46)$$

Якщо молекули КР-середовища рівномірно займають усю поверхню наночастинки, то максимальну кількість $n_{\text{адс}}$ адсорбованих молекул на одній наночастинці можна оцінити через відношення площі поверхні $4\pi(R+r)^2$ наночастинки з першим шаром молекул до площі перетину молекули πr^2 :

$$n_{\text{адс}} = 4 \frac{(R+r)^2}{r^2}. \quad (7.47)$$

На всіх наночастинках у одиничному об'ємі є адсорбованими $N_k n_{\text{адс}}$ молекул. Тож концентрація $N_{\text{адс}}$ адсорбованих молекул складає

$$N_{\text{адс}} = N_k n_{\text{адс}}. \quad (7.48)$$

Ураховуючи (7.43) – (7.48) можемо оцінити G_+ як суму вкладів від КР і ГКР у співвідношенні, що задається кількістю вільних та адсорбованих молекул:

$$G_+ = G \left(\frac{N_{M(B)}}{N_M} + k_{ГКР} \frac{N_{адс}}{N_M} \right) = G \left(1 - \kappa + 4\kappa k_{ГКР} r \frac{(R+r)^2}{(R+2r)^3} \right). \quad (7.49)$$

Загалом виконується умова $R \gg r$. Тоді (7.49) зводиться до простого вигляду

$$G_+ \approx G \left(1 - \kappa + 4\kappa k_{ГКР} \frac{r}{R} \right). \quad (7.50)$$

ВКР розвивається за деякої порогової інтенсивності випромінювання накачки, яка безпосередньо пов'язана з коефіцієнтом підсилення. Зменшення порогу ВКР можна оцінити на основі (7.49) як

$$\frac{G_+}{G} = \frac{N_{M(B)} + k_{ГКР} N_{адс}}{N_M} = 1 - \kappa + 4\kappa k_{ГКР} r \frac{(R+r)^2}{(R+2r)^3}. \quad (7.51)$$

Проаналізуємо залежність (7.51) від радіусу наночастинок, який безпосередньо впливає на можливу кількість їх у речовині та на кількість адсорбованих молекул. У випадку дисперсного розчину наночастинок срібла в толуолі та бензолі слід врахувати, що радіус наночастинок має бути більшим 1 нм, щоб перевищувати радіус молекул, який становить приблизно 0,335 нм. За відповідних для цих речовин параметрів і концентрації з $\kappa = 0,1$ (тобто 10% від максимально можливої) залежність G_+/G від R графічно подано на рис. 7.35 (враховано, що для толуолу $k_{ГКР} = 158,1$, а для бензолу $k_{ГКР} = 159,9$).

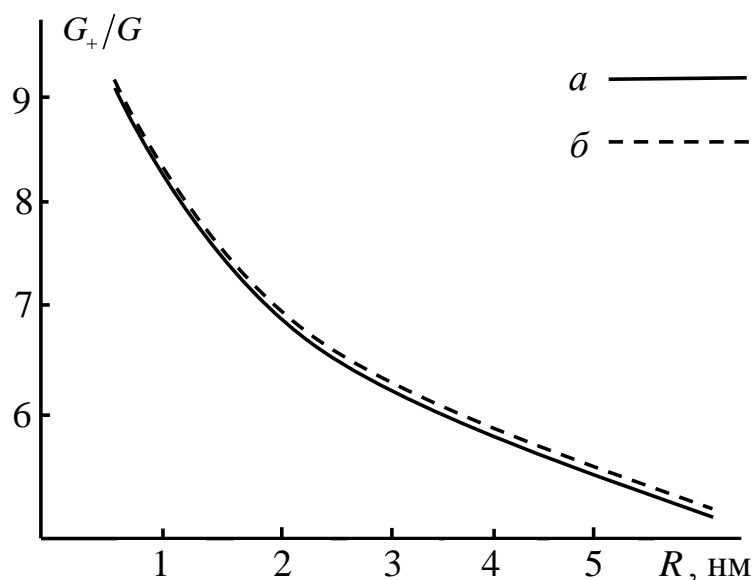


Рис. 7.35. Залежність зменшення G_+/G порогу генерації ВКР від розміру наночастинок срібла за збудження рубіновим лазером ($\kappa=0,1$; для толуолу $k_{ГКР} = 158,1$; для бензолу $k_{ГКР} = 159,9$): *а* – толуол, *б* – бензол.

Отримані значення зростання G_+/G коефіцієнта підсилення за інтенсивністю для першої стоксової компоненти дають змогу розрахувати ефективність ВКР для заданої накачки у випадку чистого чи з наночастинками середовища та визначити відстань, з якої починатиметься генерація ВКР.

Розрахунки виконувалися без урахуванням генерації комбінаційних компонент вищих порядків і затухання світла в речовині. За цих припущень вихідна система рівнянь для інтенсивностей $I_0 \equiv I_L$, $I_1 \equiv I_s$ збуджуючого випромінювання та першої стоксової компоненти має вигляд (див. (7.29)):

$$\frac{dI_L}{dz} = -G_+ \frac{\omega_{0L}}{\omega_{0s}} I_L I_s, \quad \frac{dI_s}{dz} = G_+ I_L I_s, \quad (7.52)$$

у якій G_+ використовується за наявності наночастинок, а G – за їх відсутності.

Розв'язки системи рівнянь (7.52), що дають залежність інтенсивностей від координати подано на рис. 7.36 (толуол) та рис. 7.37 (бензол).

Використовувалося значення $G=1,17 \cdot 10^{-11}$ м/Вт для толуолу та $G=2,8^{-11}$ м/Вт для бензолу за збудження рубіновим лазером ($\lambda_{vL} = 694,3$ нм), а наночастинки мають розмір $R=2$ нм та концентрацію, яка реалізується за $\kappa=0,1$.

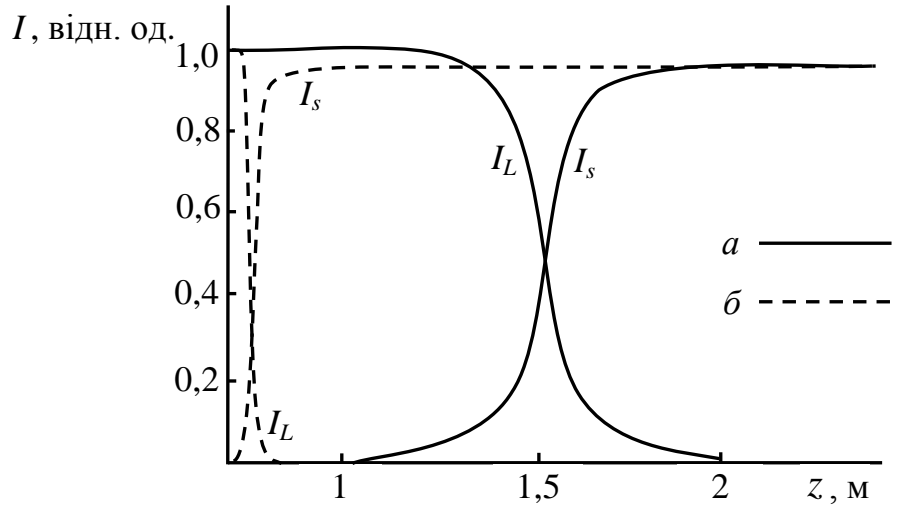


Рис. 7.36. Відносна інтенсивність I_L лазерного випромінювання і першої стоксової компоненти (I_s) в чистому толуолі (а) та толуолі з додаванням наночастинок срібла (б): $I_L \{z=0\} = 40 \text{ МВт/см}^2$, $I_s \{z=0\} = 10 \text{ Вт/см}^2$

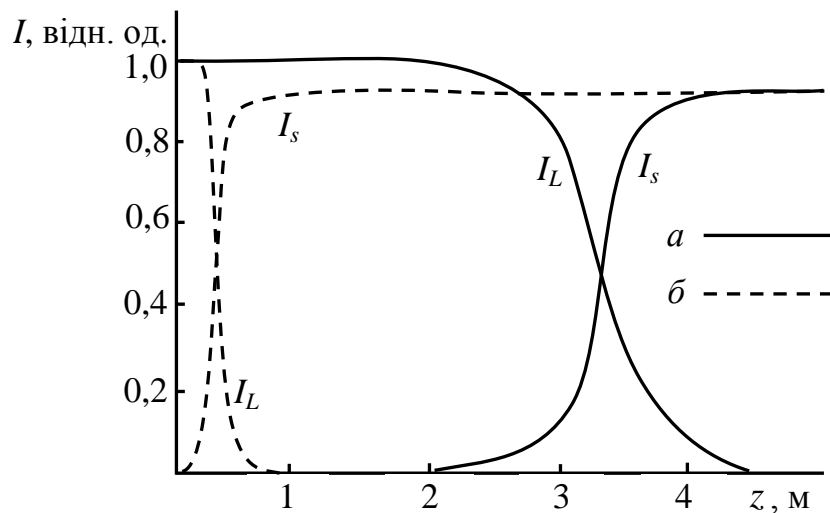


Рис. 7.37. Відносна інтенсивність I_L лазерного випромінювання і першої стоксової компоненти (I_s) в чистому бензолі (а) та бензолі з додаванням наночастинок срібла (б): $I_L \{z=0\} = 40 \text{ МВт/см}^2$, $I_s \{z=0\} = 10 \text{ Вт/см}^2$.

В обох наведених прикладах додавання наночастинок веде до скорочення шляху, на якому починається генерація ВКР.

Зазначимо, що коефіцієнт зростання перетину КР внаслідок ГКР може бути додатково збільшений у випадку керованих змін діелектричної проникності середовища, за рахунок введення поглинаючих компонент на певній довжині хвилі або/та інвертування населеності електронних квантових рівнів середовища допоміжним джерелом накачки.

Для прикладу на рис. 7.38 показана відносна зміна $k_{ГКР}$ на комплексі окремої срібної наночастинок та адсорбованої в її полюсі молекули від діелектричної проникності $\epsilon_c = n_c^2$ непоглинаючого середовища, в якому знаходиться комплекс. Для розрахунків використано вираз (7.42) за стоксового зсуву частоти 100 см^{-1} . Довжина хвилі збуджуючого випромінювання визначалася з розв'язку задачі на екстремальне значення $k_{ГКР}$ за заданого параметру $\epsilon_c = n_c^2$ та перебувала в діапазоні $\sim 0,3 \div 0,5 \text{ мкм}$.

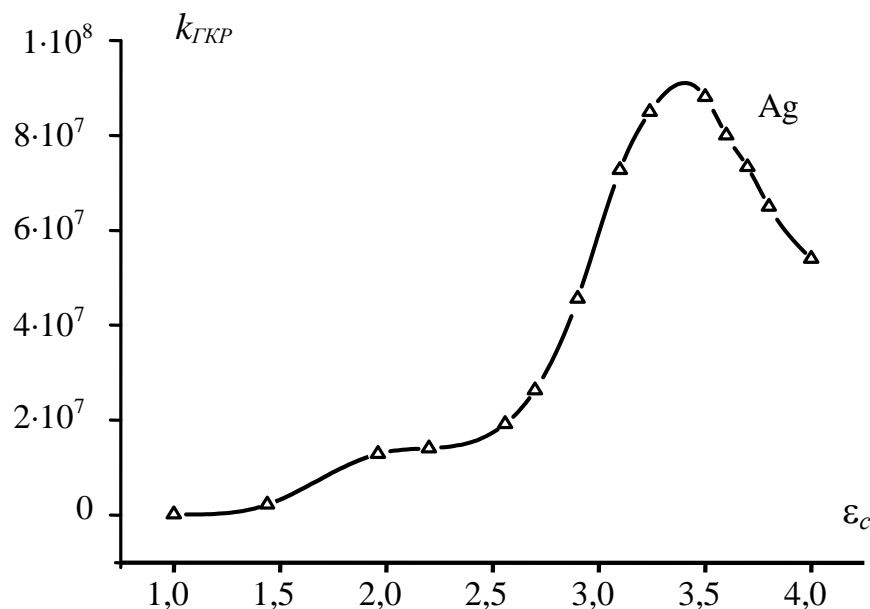


Рис. 7.38. Залежність максимального коефіцієнта зростання $k_{ГКР}$ інтенсивності КР на срібних наночастинках від діелектричної проникності $\epsilon_c = n_c^2$ непоглинаючого середовища.

Загалом зазначимо, що розглянута модель дає уявлення про вплив ГКР на ефективність генерації та підсилення ВКР. Отримані чисельні дані вказують на значне зростання ефективності ВКР, що веде до зменшення вимог до параметрів КР-середовища та випромінювання лазерного джерела накачки. Так, у толуолі (рис. 7.36) теоретично можливе зменшення відстані, на якій досягається ефективна генерація ВКР, становить ~ 7 разів, а в бензолі (рис. 7.37) ~ 6 , що з іншого боку означає можливість використання у $6\div 7$ разів менш потужного джерела накачки за незмінної довжини КР-середовища.

У запропонованому розгляді не враховується вплив інших процесів, які розвиваються паралельно з ВКР і ГКР. Так, утворення комбінаційних компонент вищих порядків відбирає частину енергії джерела накачки, зменшуючи ефективність генерації ВКР у першу стоксову компоненту. Самофокусування у керівських рідинах з одного боку збільшує густину енергії випромінювання накачки завдяки зменшенню перетину лазерного пучка, проте внаслідок фазової самомодуляції за імпульсного збудження розширює спектри компонент ВКР. Розміри нині створюваних наночастинок у реальному середовищі досить сильно варіюються і наночастинок не адсорбують молекули рівним однорідним шаром, що призводить до зменшення ефективності ГКР та зниження коефіцієнта підсилення ВКР. Однак навіть за цих обставин отримані результати вказують на можливість застосування ГКР для підвищення ефективності ВКР.

7.8. Висновки до Розділу 7.

У розділі наведені результати дослідження ВКР за мінімальної фокусної відстані самофокусування. Враховано додаткові фактори: вплив релаксаційних осциляцій лазерного випромінювання на частотно-кутову структуру ВКР. Також, пояснено ефект насичення інтенсивності стоксової компоненти ВКР, асиметрію індикатриси ВКР світла в самофокусуєючих рідинах. Розглядається генерація та підсилення субнаносекундних ВКР-імпульсів у самофокусуєючих рідинах, залежність ефективності генерації стоксової компоненти ВКР від

поглинання та спектрально складу випромінювання накачування, вплив наночастинок благородних металів на ефективність ВКР.

Отримано експериментальні дані з часовою роздільністю та здійснено теоретичний опис асиметрії індикатриси стоксової компоненти ВКР під впливом стокс-антистоксових параметричних процесів. Стокс-антистоксовий параметричний процес забезпечує додаткове надходження фотонів у побіжну стоксову компоненту ВКР. Цей надлишок фотонів у порівнянні із зустрічною стоксовою компонентою у подальшому поширенні хвиль уздовж середовища зростає за комбінаційним механізмом вимушеного розсіяння. Таким чином, в конкуренції процесів генерації побіжної і зустрічної стоксових компонент суттєву перевагу набуває процес побіжного ВКР. Досягнуто задовільне узгодження теоретичних розрахунків і експериментальних даних.

Теоретично доведено, що частотно-кутова структура параметричних компонент ВКР у режимі самофокусування збуджуючого лазерного випромінювання та релаксаційних часових коливань амплітуди нелінійної поляризації має свої особливості: максимум енергії розсіяного випромінювання зміщується щодо комбінаційних частот і цей зсув залежить від кута розсіювання. Найбільший стоковий зсув (близько 10 см^{-1}) максимуму енергії в спектрі параметричних компонент ВКР (які реєструються з точки зупинки фокальної області) відповідає осьовому випромінюванню та визначається розміром фокальної області, часом існування поляризації та неузгодженістю хвильових векторів поляризації і параметричних компонент. Отримано оцінки впливу фазової самомодуляції на випромінювання в разі релаксаційних коливань, які показують, що цей вплив є незначним.

Експериментально та теоретично показана можливість використання самофокуруючих органічних речовин для створення високоефективних перетворювачів лазерного випромінювання на основі ВКР.

Основні результати розділу опубліковані в роботах [4, 7, 11, 19, 20, 22, 23, 26, 28 – 30, 33].

ВИСНОВКИ

1. Застосоване комплексне використання методів реєстрації частотних, кутових, частотно-кутових, просторово-кутових, частотно-просторових спектрів для досягнення загальної мети досліджень і порівняння з теоретичними розрахунками. За допомогою цих методів загалом вирішена проблема експериментальних досліджень динаміки самофокусування та її впливу на частотно-кутові спектри ВКР уздовж траси проходження збуджуючого лазерного імпульсу.

2. Узагальнено існуючі теоретичні та експериментальні результати, що стосуються розташування, швидкості та прискорення фокальної точки самофокусування лазерного випромінювання в керівських рідинах у наносекундному діапазоні тривалостей лазерних імпульсів.

Врахований вплив групової швидкості лазерних імпульсів. Показано, що швидкість фокальної точки змінюється від $-\infty$ до $+\infty$ у безінерційному середовищі. Проте, на виході кювети швидкість фокальної точки близька до групової швидкості світла (дещо перевищує групову швидкість на фронті імпульсу та менша на спаді). За мінімальної відстані самофокусування швидкість фокальної точки є нульовою. Прискорення фокальної точки на виході довгих кювет може бути практично відсутнім, але за мінімальної фокальної відстані набуває фіксованого позитивного значення.

Результати досліджень дають змогу прогнозувати ефективність ВКР за трасою проходження лазерного випромінювання через керівське середовище.

3. Доведено, що рух фокальної області в самофокуруючих рідких середовищах безпосередньо (сам по собі) впливає на частоту випромінювання параметричних компонент ВКР. Зміщення частоти антистоксової компоненти відносно комбінаційного резонансу обумовлене необхідністю виконання умови змішаного, амплітудно-фазового синхронізму, за якого фазове узгодження хвиль поля і нелінійної поляризації реалізується в околі точки максимальної амплітуди поляризації, що переміщується разом з фокальною областю.

Отримані аналітичні вирази, що описують частотно-кутову густину енергії антистоксової компоненти ВКР за рівномірного руху фокальної області, з використанням модельних уявлень про розподіл амплітуди та фази наведеної у фокальній області нелінійної поляризації.

Числовими методами розраховані спектри антистоксової компоненти для типових експериментальних умов збудження ВКР гігантськими імпульсами. Результати розрахунків збігаються з експериментальними даними в тому, що параметричні компоненти ВКР в умовах самофокусування збуджуючого випромінювання розширені переважно в довгохвильовий (стоксів) бік.

4. Експериментально виявлено, що за фазової самомодуляції лазерних імпульсів наносекундного діапазону внаслідок квазістаціонарного самофокусування саме перехідний ефект (нововведене поняття) є відповідальним за породження нових спектральних компонент, зміщених до сотень обернених сантиметрів та переважно в стоксів бік відносно частоти збуджуючого лазерного випромінювання. Перехідний ефект полягає в тому, що за перетину фокальною областю вихідної межі середовища з'являються максимально зміщені спектральні компоненти.

Незважаючи на можливе суттєве частотне розширення лазерних імпульсів за самофокусування, найбільша спектральна густина енергії припадає на незміщену частоту.

З використання теоретичного опису та розрахунків визначені часові та енергетичні характеристики випромінювання, що породжується внаслідок перехідного ефекту. Досягнуто задовільне узгодження з експериментальними даними.

5. Встановлено взаємний вплив швидкості руху фокальної точки самофокусування та фазової самомодуляції на частотно-кутові спектри випромінювання параметричної антистоксової компоненти ВКР.

Пояснено утворення протяжних антистоксових частотно-кутових смуг ВКР. У випадку збігання швидкості фокальної точки самофокусування з фазовою швидкістю нелінійної поляризації на антистоксовій комбінаційній

частоті та фазовою швидкістю розсіяного осьового випромінювання утворюються найінтенсивніші частотно-кутові смуги, які описуються співвідношеннями, характерними для черенковського випромінювання. Зокрема, за збудження наносекундними лазерними імпульсами в толуолі такі смуги сягають довжини близько 200 см^{-1} відносно комбінаційної антистоксової частоти у стоксів бік

6. Вперше отримані експериментальні дані з часовою роздільністю та здійснено теоретичний опис асиметрії індикатриси стоксової компоненти ВКР під впливом стокс-антистоксових параметричних процесів.

Стокс-антистоксовий параметричний процес забезпечує додаткове надходження фотонів у побіжну стоксову компоненту ВКР. Цей надлишок фотонів у порівнянні із зустрічною стоксовою компонентою у подальшому поширенні хвиль уздовж середовища зростає за комбінаційним механізмом вимушеного розсіяння. Таким чином, в конкуренції процесів генерації побіжної і зустрічної стоксових компонент суттєву перевагу набуває процес побіжного ВКР.

Досягнуто задовільне узгодження теоретичних розрахунків і експериментальних даних для бензолу при збудженні лазерними імпульсами тривалістю 25 нс на довжині хвилі 694,3 нм.

7. Теоретично доведено, що частотно-кутова структура параметричних компонент вимушеного комбінаційного розсіяння в режимі самофокусування збуджуючого випромінювання та релаксаційних часових коливань амплітуди нелінійної поляризації має свої особливості: максимум енергії випромінювання зміщується щодо комбінаційних частот і цей зсув залежить від кута розсіювання.

Найбільший стоксовий зсув (близько 10 см^{-1}) максимуму енергії в спектрі параметричних компонент (які реєструються з точки зупинки фокальної області) відповідає осьовому випромінюванню та визначається розміром фокальної області, часом існування поляризації та неузгодженістю хвильових векторів поляризації і параметричних компонент.

Отримано оцінки впливу фазової самомодуляції на випромінювання в разі релаксаційних коливань, які показують, що цей вплив незначний. Ефект трактується з точки зору короткочасного фазового синхронізму.

8. Експериментально та теоретично показана можливість використання самофокусуєчих органічних речовин для створення високоефективних перетворювачів лазерного випромінювання на основі вимушеного комбінаційного розсіювання.

Запропоновані та апробовані оптичні схеми можуть використовуватися для генерації ініціюючих субнаносекундних стоксових імпульсів (внаслідок динаміки самофокусування) і для компресії гігантських імпульсів багатомодового лазера з десятикратними збільшеннями інтенсивності на зміщеній частоті стоксової компоненти ВКР.

СПИСОК ВИКОРИСТАНИХ ДЖЕРЕЛ

1. Shen Y. R. The principles of nonlinear optics / Y. R. Shen.– Wiley-interscience publication, 2003.– 563 p.
2. Boyd R. W. Self-focusing: past and present / R. W. Boyd, S. G. Lukishova, Y. R. Shen.– New York: Springer, 2009.– 605 p.
3. Маненков А. А. Лазерное разрушение прозрачных твердых тел / А. А. Маненков, А. М. Прохоров // Успехи физических наук.– 1986.– Т. 148, № 1.– С. 179 - 211.
4. Smetanina E. O. Spatio-temporal evolution scenarios of femtosecond laser pulse filamentation in fused silica / E. O. Smetanina, A. E. Dormidonov, V. P. Kandidov // Laser physics.– 2012.– V. 22, № 7.– P. 1189 - 1198.
5. Чекалин С. В. От самофокусировки световых мучков – к филаментации лазерных импульсов / С. В. Чекалин, В. П. Кандидов // Успехи физических наук.– 2013.– Т. 183, № 2.– С. 133 - 152.
6. Боровский А. В. О возможных приложениях самоканалирования в веществе мощных ультракоротких лазерных импульсов / А. В. Боровский, В. В. Коробкин, А. М. Прохоров // Журнал экспериментальной и теоретической физики.– 1994.– Т. 106, № 1.– С. 148 - 160.
7. Yefet S. A review of cavity design for kerr lens mode-locked solid-state lasers / S. Yefet, A. Pe'er // Applied sciences.– 2013.– V. 3, № 4.– P. 694 - 724.
8. Ахманов С. А. Оптика фемтосекундных лазерных импульсов / С. А. Ахманов, В. А. Выслоух, А. С. Чиркин.– Москва: Наука, 1988.– 312 с.
9. Blonskyi I. Cherenkov phase-matching in Raman-seeded four-wave mixing by a femtosecond Bessel beam / I. Blonskyi, V. Kadan, I. Dmitruk, P. Korenyuk // Applied Physics: B.– 2012.– V. 107, № 3.– P. 649 - 652.
10. Shcherbin K. Slowing down of light pulses using photorefractive four-wave mixing: Nontrivial behavior with increasing coupling strength / K. Shcherbin, P. Mathey, G. Gadret, R. Guyard, H. Jauslin, S. Odoulov // Physical Review: A.–

2013.– V. 87, № 3.– P. 033820-1 - 033820-7.

11. Іванісік А. І. Спектр випромінювання рухомих згустків нелінійної поляризації / А. І. Іванісік // Вісник Київського національного університету. Серія: Фізико-математичні науки.– 1999.– № 3.– С. 309 - 314.
12. Іванісік А. І. Вплив руху фокальної області самофокусування на спектр антистоксового вимушеного комбінаційного розсіювання / А. І. Іванісік, Д. В. Федін // Вісник Київського національного університету імені Тараса Шевченка. Радіофізика та електроніка.– 2000.– № 2.– С. 45 - 49.
13. Іванісік А. І. Частотно-кутова структура параметричних компонент вимушеного комбінаційного розсіювання в режимі самофокусування та релаксаційних осциляцій / А. І. Іванісік, Г. В. Понежа, Д. В. Федін // Вісник Київського національного університету. Серія: Фізико-математичні науки.– 2000.– № 1.– С. 356 - 365.
14. Багінський В. В. Генерація наносекундних стоксових імпульсів у самофокуруючих ВКР-активних рідинах при збудженні гігантським імпульсом рубінового лазера / В. В. Багінський, А. І. Іванісік, М. М. Лопійчук // Вісник Київського національного університету. Серія: Фізико-математичні науки.– 2000.– № 2.– С. 375 - 381.
15. Іванісік А. І. Спектр антистоксового вимушеного комбінаційного розсіювання з двох фокальних областей самофокусування / А. І. Іванісік, Г. В. Понежа // Оптика и спектроскопия.– 2001.– Т. 90, № 4.– С. 699 - 703.
16. Іванісік А. І. Формувач високовольтних імпульсів для модуляторів добротності резонатора в лазерах / А. І. Іванісік, С. А. Нагула // Вісник Київського національного університету. Серія: Фізико-математичні науки.– 2001.– № 1.– С. 327 - 329.
17. Іванісік А. І. Асиметрія індикатриси вимушеного комбінаційного розсіювання світла в органічних рідинах / А. І. Іванісік, В. В. Багінський // Вісник Київського національного університету. Серія: Фізико-математичні науки.– 2001.– № 1.– С. 327 - 329.

- науки.– 2001.– № 2.– С. 372 - 380.
18. Ivanisik A. I. Stimulated antistokes Raman emission spectrum from a movable focal region under self focusing / A. I. Ivanisik, G. V. Ponezha // *Proceedings of SPIE: selected papers from the “International conference on spectroscopy of molecules and crystals”*.– 2002.– V. 4938.– P. 280 - 285.
 19. Іванісік А. І. Квазістаціонарна фазова саомодуляція лазерних імпульсів у керівських рідинах / А. І. Іванісік, С.О. Дудка, А. Д. Борисенко // *Вісник Київського національного університету. Серія: Фізико-математичні науки*.– 2003.– № 1.– С. 259 - 267.
 20. Дудка С. О. Аналог перехідного випромінювання в оптиці / С. О. Дудка, А. І. Іванісік, П. А. Коротков // *Вісник Київського національного університету. Серія: Фізико-математичні науки*.– 2003.– № 4.– С. 324 - 330.
 21. Іванісік А. І. Ефект абсолютного насичення вимушеного раманівського розсіяння / А. І. Іванісік, А. В. Конопатський // *Вісник Київського національного університету. Серія: Фізико-математичні науки*.– 2004.– № 2.– С. 402 - 406.
 22. Дудка С. О. Фазова саомодуляція в шаруватих структурах / С. О. Дудка, А. І. Іванісік // *Вісник Київського національного університету. Серія: Фізико-математичні науки*.– 2004.– № 4.– С. 318 - 324.
 23. Іванісік А. І. Експериментальне виявлення перехідного ефекту при фазовій саомодуляції світла / А. І. Іванісік, А. В. Конопатський, С. О. Дудка // *Вісник Київського національного університету. Серія: Фізико-математичні науки*.– 2005.– № 1.– С. 268 - 274.
 24. Дудка С. О. Розташування фокальної точки в самофокусуєчих середовищах / С. О. Дудка, А. І. Іванісік, А. В. Конопатський, В. Д. Лобода // *Вісник Київського національного університету. Серія: Фізико-математичні науки*.– 2005.– № 3.– С. 381 - 388.
 25. Dudka S. O. Transition effect at the medium-vacuum interface under the self-phase modulation of a light pulse / S. O. Dudka, A. I. Ivanisik, A. V. Konopatskiy,

- P. A. Korotkov // Ukrainian journal of physics.– 2006.– V. 51, № 2.– P. 140 - 146.
26. Іванісік А. І. Вплив фазової самомодуляції імпульсів накачування на спектр антистоксового вимушеного комбінаційного розсіяння світла / А. І. Іванісік, А. В. Конопатський // Вісник Київського національного університету. Серія: Фізико-математичні науки.– 2006.– № 3.– С. 331 – 340.
27. Іванісік А. І. Енергетично-частотні характеристики випромінювання, зумовленого перехідним ефектом у самофокусуєчих середовищах / А. І. Іванісік, О. Ю. Кременецький // Вісник Київського національного університету. Серія: Фізико-математичні науки.– 2006.– № 4.– С. 297 - 304.
28. Іванісік А. І. Формування надкоротких оптичних імпульсів унаслідок перехідного ефекту на межі самофокусуєчого середовища / А. І. Іванісік, А. В. Конопатський // Вісник Київського національного університету. Серія: Фізико-математичні науки.– 2007.– № 1.– С. 244 - 247.
29. Іванісік А. І. Залежність ефективності генерації стоксової компоненти вимушеного комбінаційного розсіяння від поглинання та спектрально складу випромінювання накачування / А. І. Іванісік, А. В. Конопатський // Вісник Київського національного університету. Серія: Фізико-математичні науки.– 2008.– № 2.– С. 155 - 158.
30. Isaienko O. Iu. Modification of dynamic light scattering for nanoparticles size measurement / O. Iu. Isaienko, A. I. Ivanisik // Вісник Київського національного університету імені Тараса Шевченка. Радіофізика та електроніка.– 2010.– № 13.– С. 39 - 41.
31. Іванісік А. І. Спектральні закономірності антистоксового вимушеного комбінаційного розсіяння в умовах самофокусування та фазової самомодуляції / А. І. Іванісік, О. Ю. Ісаєнко // Вісник Київського національного університету. Серія: Фізико-математичні науки.– 2010.– № 4.– С. 221 - 226.
32. Ivanisik A. I. The influence of dielectric medium on the intensity of enhanced

- Raman scattering lines / A. I. Ivanisik, O. Iu. Isaienko, O. A. Sereduyk // Вісник Київського національного університету імені Тараса Шевченка. Радіофізика та електроніка.– 2011.– № 15.– С. 17 - 19.
33. Дмитрієв М. В. Вплив параметричних процесів на індикатрису вимушеного комбінаційного розсіяння світла / М. В. Дмитрієв, А. І. Іванісік, П. А. Коротков // Вісник Київського національного університету. Серія: Фізико-математичні науки.– 2011.– № 2.– С. 171 - 175.
34. Іванісік А. І. Випромінювання черенковського типу при антистоксовому вимушеному комбінаційному розсіюванні з рухомої фокальної області самофокусування / А. І. Іванісік, О. Ю. Ісаєнко, П. А. Коротков, Г. В. Понежа // Вісник Київського національного університету. Серія: Фізико-математичні науки.– 2011.– № 4.– С. 251 - 256.
35. Ivanisik A. I. Spectral distribution of Cherenkov radiation energy and stimulated Raman scattering / A. I. Ivanisik, O. Iu. Isaienko // Вісник Київського національного університету імені Тараса Шевченка. Радіофізика та електроніка.– 2012.– № 18.– С. 17 - 19.
36. Dmitriev M. V. Experimental and theoretical study of stimulated Raman scattering indicatrix asymmetry / M. V. Dmitriev, O. Iu. Isaienko, A. I. Ivanisik, P. A. Korotkov // Semiconductor physics, quantum electronics and optoelectronics.– 2012.– V. 15, № 1.– P. 44 - 47.
37. Іванісік А. І. Фазомодульоване параметричне антистоксове вимушене комбінаційне розсіяння черенковського типу в областях самофокусування збуджуючого випромінювання / А. І. Іванісік, О. Ю. Ісаєнко, П. А. Коротков, Г. В. Понежа // Український фізичний журнал.– 2012.– Т. 57, № 10.– С. 1000 - 1010.
38. Ivanisik A. I. Frequency-angular spectra of the stimulated Raman scattering parametric components under self-action / A. I. Ivanisik, O. Iu. Isaienko, P. A. Korotkov // Semiconductor physics, quantum electronics and optoelectronics.– 2012.– V. 15, № 4.– P. 370 - 375.
39. Іванісік А. І. Вплив наночастинок благородних металів на ефективність

- вимушеного комбінаційного розсіювання / А. І. Іванісік, О. Ю. Ісаєнко, П. А. Коротков, Г. В. Понежа // Вісник Київського національного університету. Серія: Фізико-математичні науки.– 2012.– № 3.– С. 304 - 308.
40. Ivanisik A. I. Subnanosecond stimulated Raman scattering pulses of Q-switched laser at self-focusing / A. I. Ivanisik, P. A. Korotkov, G. V. Ponezha // Вісник Київського національного університету імені Тараса Шевченка. Радіофізика та електроніка.– 2013.– № 20(2).– С. 11 - 14.
41. Ivanisik A. I. Temporal dynamics of focal point location under self-focusing of nanosecond laser pulses / A. I. Ivanisik, P. A. Korotkov, G. V. Ponezha // Ukr. J. Phys. Opt.– 2014.– V. 15, № 1.– P. 1 - 8.
42. Ivanisik A. I. Self-phase modulation of laser pulse in stratified self-focusing medium / A. I. Ivanisik, O. Iu. Isaienko, P. A. Korotkov, G. V. Ponezha // Вісник Київського національного університету імені Тараса Шевченка. Радіофізика та електроніка.– 2014.– №. 21/22(1/2).– С. 95 - 98.
43. Isaienko O. Iu. Generation and enhancement of SRS sub-nanosecond pulses in self-focusing organic substances / O. Iu. Isaienko, A. I. Ivanisik, P. A. Korotkov, G. V. Ponezha // Semiconductor physics, quantum electronics and optoelectronics.– 2014.– V. 17, № 2.– P. 205 - 208.
44. Ivanisik A. I. Stimulated anti-Stokes Raman emission spectrum from a movable focal region under self-focusing / A. I. Ivanisik, G. V. Ponezha // Proceedings of XV-th International School-Seminar “Spectroscopy of Molecules and Crystals” (23 - 30 June, 2001).– Chernihiv, Ukraine.– 2001.– P. 220.
45. Ivanisik A. I. Experimental study on asymmetry of stimulated Raman scattering indicatrix in benzene / A. I. Ivanisik, P. A. Korotkov, A. I. Pisansky, G. V. Ponezha // Proceedings of XVI-th International School-Seminar “Spectroscopy of Molecules and Crystals” (25 May - 1 June, 2003).– Sevastopol, Ukraine.– 2003.– P. 207.
46. Dudka S. O. Phase modulation of laser radiation under self-focusing effect / S. O. Dudka, A. I. Ivanisik, P. A. Korotkov, G. V. Ponezha // Proceedings of XVI-th

- International School-Seminar “Spectroscopy of Molecules and Crystals” (25 May - 1 June, 2003).– Sevastopol, Ukraine.– 2003.– P. 319.
47. Ivanisik A. I. Saturation effect for Stokes component of stimulated Raman light scattering under laser radiation self-focusing / A. I. Ivanisik, A.V. Konopatskiy // Proceedings of III-rd International Young Scientists’ Conference on Applied Physics (18 - 20 June, 2003).– Kyiv, Ukraine.– 2003.– P. 107 - 108.
48. Korotkov P. A. Recent achievements in a technique of Raman spectroscopy / P.A., Korotkov, I. V. Prisyaznevich, A. I. Ivanisik // Proceedings of V-th International Conference on Laser and Fiber-Optical Networks Modeling (19 - 20 September, 2003).– Alushta, Ukraine.– 2003.– P. 13 - 15.
49. Ivanisik A. I. Spectral-angular competition of stimulated Raman scattering and parametric processes under self-focusing / A. I. Ivanisik, P. A Korotkov. // Proceedings of V-th International Conference on Laser and Fiber-Optical Networks Modeling (19 - 20 September, 2003).– Alushta, Ukraine.– 2003.– P.129 - 131.
50. Dudka S.O. Modulation of laser radiation phase in Kerr liquids / S. O. Dudka, A. I. Ivanisik // Scientific works of IV-th International Young Scientists Conference Problems of Optics & High Technology Material Science (23 - 26 October, 2003).– Kyiv, Ukraine.– 2003.– P. 110.
51. Дудка С. А. Переходной эффект при квазистационарной самофокусировке / С. А. Дудка, Р. А. Коротков, А. И. Иванисик // Материалы 8-го Международного молодежного форума „Радиоэлектроника и молодежь в XXI веке” (13 - 15 апреля, 2004).– Харьков, Украина.– 2004.– Ч.1. С.188.
52. Dudka S. O. Frequency displacement and broadening of stimulated Raman scattering parametric components / S. O. Dudka, A, A. V. Konopatskiy // Proceedings of IV-th International Young Scientists’ Conference on Applied Physics (21 - 23 June, 2004).– Kyiv, Ukraine.– 2004.– P. 34 - 35.
53. Dudka S. O. Transition effect under self-focusing of laser radiation / S. O. Dudka, A. I. Ivanisik // Proceedings of IV-th International Young Scientists’ Conference on Applied Physics (21 - 23 June, 2004).– Kyiv, Ukraine.– 2004.– P.

- 42 - 43.
54. Korotkov P. A. On relative monochromatic of laser radiation was undergone quasistationary self-focusing / P. A. Korotkov, A. I. Ivanisik, S. O. Dudka // Proceedings of VI-th International Conference on Laser and Fiber-Optical Networks Modeling (6 - 9 September, 2004).– Kharkiv, Ukraine.– 2004.– P. 176 - 178.
55. Korotkov P. A. On the angular spectra of anti-Stokes stimulated Raman scattering under self-focusing / P. A. Korotkov, A. I. Ivanisik, A. V. Konopatskiy // Proceedings of VI-th International Conference on Laser and Fiber-Optical Networks Modeling (6 - 9 September, 2004).– Kharkiv, Ukraine.– 2004.– P. 173 - 175.
56. Konopatskiy A. V. Experimental investigation of transition effect under self-phase modulation of light / A. V. Konopatskiy, S. O. Dudka, A. I. Ivanisik // Proceedings of V-th International Young Scientists' Conference on Applied Physics (20 - 22 June, 2005).– Kyiv, Ukraine.–2005.– P. 24 - 25.
57. Dudka S. O. Self-phase modulation of laser pulse on the border of Kerr liquid / S. O. Dudka, A. I. Ivanisik, A. V. Konopatskiy, P. A. Korotkov // Book of Abstracts of XVII-th International School-Seminar "Spectroscopy of Molecules and Crystals" (25 - 26 September, 2005).– Sevastopol, Ukraine.– 2005.– P. 304.
58. Dudka S. O. Self phase-modulation of laser pulse under delimitation of self-focusing medium by thin optically transparent layer / S. O. Dudka, A. I. Ivanisik // Scientific works of VI-th International Young Scientist Conference Problems of Optics and High Tecnology Material Science (27 - 30 October, 2005).– Kyiv, Ukraine.– 2005.– P. 175.
59. Dudka S. O. Focal distance in isotropic self-focusing environment / S. O. Dudka, A. I. Ivanisik, A. V. Konopatskiy // Proceedings of I-st International Conference "Electronics and Applied Physics" (24 - 27 November, 2005).– Kyiv, Ukraine.– 2005.– P. 12 - 13.
60. Dudka S. O. Transition effect under self-focusing of nanosecond laser pulse /

- S. O. Dudka, A. I. Ivanisik, A. V. Konopatskiy // Proceedings of I-st International Conference "Electronics and Applied Physics" (24 - 27 November, 2005).– Kyiv, Ukraine.– 2005.– P. 10 - 11.
61. Kremenetskiy O. Yu. Energy and frequency characteristics of transition effect under self-phase modulation of light / O. Yu. Kremenetskiy, A. I. Ivanisik // Proceedings of VI-th International Young Scientists' Conference on Applied Physics (14 - 16 June, 2006).– Kyiv, Ukraine.– 2006.– P. 18 - 19.
62. Ivanisik A. I. Spectrum of anti-Stokes stimulated Raman light scattering under pumping impulse self-phase modulation / A. I. Ivanisik, A. V. Konopatskiy // Proceedings of II-nd International Conference "Electronics and Applied Physics" (11 - 14 October, 2006).– Kyiv, Ukraine.– 2006.– P.21 - 22.
63. Isaienko O. Iu. Photon-counting mode for spectroscopy / O. Iu. Isaienko, A. I. Ivanisik // Proceedings of VII-th International Young Scientists' Conference on Applied Physics (13 - 15 June, 2007).– Kyiv, Ukraine.– 2007.– P.167.
64. Konopatskiy A. V. The formation of ultrashort optical impulses on border of a self-focusing environment / A. V. Konopatskiy, A. I. Ivanisik // Proceedings of VII-th International Young Scientists' Conference on Applied Physics (13 - 15 June, 2007).– Kyiv, Ukraine.– 2007.– P.42 - 43.
65. Ivanisik A. I. The opportunity of formation of ultrashort optical pulses in consequence of transition effect on border of the self-focusing environment / A. I. Ivanisik A. V. Konopatskiy // Book of Abstracts of XVIII-th International School-Seminar "Spectroscopy of Molecules and Crystals" (20 - 27 September, 2007).– Beregove, Crimea, Ukraine.– 2007.– P. 272.
66. Konopatskiy A. V. Absorption and spectral distribution of pumping radiation effect on effectiveness of stimulated Raman light scattering / A. V. Konopatskiy, A. I. Ivanisik // Proceedings of VIII-th International Young Scientists' Conference on Applied Physics (11 - 13 June, 2008).– Kyiv, Ukraine.– 2008.– P. 42 - 43.
67. Isaenko O. I. Measurement of the size of nanoparticles in liquids using dynamic light scattering / O. I. Isaienko, A. I. Ivanisik // Abstracts of IX-th

- International Young Scientists' Conference on Applied Physics (17 - 20 June, 2009).– Kyiv, Ukraine.– 2009.– P. 69.
68. Isaenko O. I. Modification of dynamic light scattering method for determination of the size of nanoparticles in liquids / O. I. Isaienko, A. I. Ivanisik // Proceedings of V-th International Conference “Electronics and Applied Physics“ (21 - 24 October, 2009).– Kyiv, Ukraine.– 2009.– P.16.
69. Dmitriev M. V. Asymmetry of stimulated Raman light scattering indicatrix / M. V. Dmitriev, A. I. Ivanisik // Proceedings of X-th International Young Scientists' Conference on Applied Physics (16 - 19 June, 2010).– Kyiv, Ukraine.–2010.– P. 18.
70. Isaenko O. Iu. Energy of stimulated Raman scattering anti-Stokes component under self-focusing and self-phase modulation / O. Iu. Isaienko, A. I. Ivanisik // Proceedings of VI-th International Conference “Electronics and Applied Physics“ (20 - 23 October, 2010).– Kyiv, Ukraine.– 2010.– P. 9.
71. Isaienko O. Iu. Obtaining spectral distribution of Cherenkov radiation energy / O. Iu. Isaienko, A. I. Ivanisik // Proceedings of XI-th International Young Scientists' Conference on Applied Physics (15 - 18 June, 2011).– Kyiv, Ukraine.– 2011.– P. 19 - 20.
72. Shaposhnikov A. A. Stimulated Raman light scattering in two-component mixture / A. A. Shaposhnikov, A. I. Ivanisik // Proceedings of XI-th International Young Scientists' Conference on Applied Physics (15 - 18 June, 2011).– Kyiv, Ukraine.– 2011.– P. 42.
73. Dmitriev M. V. The role of parametric processes in the competition of backward and forward stimulated Raman scattering / M. V. Dmitriev, A. I. Ivanisik // Proceedings of XI-th International Young Scientists' Conference on Applied Physics (15 - 18 June, 2011).– Kyiv, Ukraine.– 2011.– P. 15 -16.
74. Isaienko O. Iu. Effect of self-phase modulation on the anti-Stokes SRS spectrum considering phase delay in the medium / O. Iu. Isaienko, A. I. Ivanisik // Proceedings of VII-th International Conference “Electronics and Applied Physics“

- (19 - 22 October, 2011).– Kyiv, Ukraine.–2011.– P. 27.
75. Dmitriev M. V. Effect of the parametric processes in the competition of backward and forward stimulated Raman scattering / M. V. Dmitriev, A. I. Ivanisik, P. A. Korotkov // Abstracts of XX-th International School-Seminar of Galyna Puchkovska “Spectroscopy of Molecules and Crystals” (20 - 27 September, 2011).– Beregove, Crimea, Ukraine.– 2011.– P. 20.
76. Isaienko O. Iu. Angular branches in phase-modulated parametric anti-stokes stimulated Raman scattering / O. Iu. Isaienko, A. I. Ivanisik // Proceedings of XII-th International Young Scientists’ Conference on Applied Physics (23 - 26 May, 2012).– Kyiv, Ukraine.– 2012.– P. 24 - 25.
77. Dmitriev M. V. The role of parametric processes on stimulated Raman scattering indicatrix asymmetry – experimental and theoretical study / M. V. Dmitriev, A. I. Ivanisik // Proceedings of XII-th International Young Scientists’ Conference on Applied Physics (23 - 26 May, 2012).– Kyiv, Ukraine.– 2012.– P. 26 - 27.
78. Dobrovolsky Y. S. Comparison of stimulated Raman scattering and inverse Raman scattering methods to identify concentrations of substances / Y. S. Dobrovolsky, A. I. Ivanisik // Proceedings of XII-th International Young Scientists’ Conference on Applied Physics (23 - 26 May, 2012).– Kyiv, Ukraine.– 2012.– P. 30 - 31.
79. Isaienko O. Iu. Application of silver nanoparticles to increase effectiveness of stimulated Raman scattering / O. Iu. Isaienko, A. I. Ivanisik // Proceedings of VIII-th International Conference “Electronics and Applied Physics” (24 - 27 October, 2012).– Kyiv, Ukraine.– 2012.– P. 16 - 17.
80. Ivanisik A. I. Speed and acceleration of self-focusing focal point in Kerr-liquids at nanosecond range of laser impulse / A. I. Ivanisik, P. A. Korotkov, G. V. Ponezha // Proceeding II-nd International Workshop “Nonlinear Photonics” (10 - 11 September, 2013).– Sudak, Crimea, Ukraine.– 2013.– P. 53 - 55.
81. Ivanisik A. I. Frequency-angular structure of the stimulated Raman scattering

- parametric components under self-action / A. I. Ivanisik, P. A. Korotkov // Abstracts of XXI-th Galyna Puchkovska International School-Seminar "Spectroscopy of Molecules and Crystals" (22 - 29 September, 2013).– Beregove, Crimea, Ukraine.– 2013.– P. 51.
82. Ivanisik A. I. Sub-nanosecond pulses from Q-switched laser / A. I. Ivanisik // Proceedings of IX-th International Conference "Electronics and Applied Physics" (23 - 26 October, 2013).– Kyiv, Ukraine.– 2013.– P. 11 - 12.
83. Dobrovolskyi Y. S. Inverse Raman scattering and stimulated Raman scattering spectroscopy methods with parametric processes / Y. S. Dobrovolsky, A. I. Ivanisik // Proceedings of XIV-th International Young Scientists' Conference on Applied Physics (11 - 14 June, 2014).– Kyiv, Ukraine.–2014.– P. 16 - 17.
84. Ivanisik A. I. Phase modulation in stratified self-focusing medium / A. I. Ivanisik // Proceedings of X-th International Conference "Electronics and Applied Physics" (22 - 25 October, 2014).– Kyiv, Ukraine.– 2014.– P. 220 - 221.
85. Плачек Г. Рэлеевское рассеяние света и раман-эффект: пер. с нем. / Г. Плачек.– Киев, Харьков: ОНТИУ, 1935.– 173 с.
86. Элизер Ш. Вынужденное стоксово и антистоксово рассеяние на ядерных переходах / Ш. Элизер, Х. М. Мартинец-Валь, Й. Пайсс, Г. Веларде // Квантовая электроника.– 1995.– Т. 22, № 11.– С. 1140 - 1142.
87. Woodbury E. J. Ruby laser operation in the near IR / E. J. Woodbury, W. K. Ng // Proceedings of the Institute of Radio Engineers (Correspondence).– 1962.– V. 50, № 11.– P 2367 - 2367.
88. Апанасевич П. А. Стационарное обратное вынужденное комбинационное рассеяние в условиях немонахроматической накачки / П. А. Апанасевич, Ю. Е. Дьяков, Г. Г. Котаев, С. Г. Круглик, С. Ю. Никитин, В. А. Орлович // Известия РАН. Серия физическая.– 1992.– Т. 56, № 12.– С. 19 - 28.
89. Басиев Т. Т. Эффективное преобразование излучения Nd:YAG-лазера в безопасный для глаз спектральный диапазон при вынужденном комбинационном рассеянии в кристалле BaWO₄ / Т. Т. Басиев, М. Н.

- Басиева, А. В. Гаврилов, М. Н. Ершков, Л. И. Ивлева, В. В. Осико, С. Н. Сметанин, А. В. Федин // Квантовая электроника.– 2010.– Т. 40, № 8.– С. 710 - 715.
90. Зверев П. Г. Лазер на Nd:YVO₄ с внутрирезонаторным ВКР в кристалле BaWO₄ для безопасного для глаз спектрального диапазона / П. Г. Зверев, Л. И. Ивлева // Квантовая электроника.– 2012.– Т. 42, № 1.– С. 27 - 30.
91. Midorikawa K. Polarization switching: generation of high-power short-pulsed anti-stokes waves / K. Midorikawa, H. Tashiro, K. Nagasaka, S. Namba // Physical review letters.– 1989.– V. 62, № 11.– P. 1263 - 1265.
92. Wang C. Extracavity pumped BaWO₄ anti-Stokes Raman laser / C. Wang, X. Zhang, Q. Wang, Z. Cong, Z. Liu, W. Wei, W. Wang, Z. Wu, Y. Zhang, L. Li, X. Chen, P. Li, H. Zhang, S. Ding // Optics express.– 2013.– V. 21, № 22.– P. 26014 - 26026.
93. Zaitso S. Continuous-wave anti-Stokes Raman laser based on phase-matched nondegenerate four-wave mixing / S. Zaitso, T. Imasaka // Optics letters.– 2015.– V. 40, № 1.– P. 73 - 76.
94. Zheng J. Freely designable optical frequency conversion in Raman-resonant four-wave-mixing process / J. Zheng, M. Katsuragawa // Scientific reports.– 2015.– V. 5, № 8874.– P. 1 - 6.
95. Wang W. Beam cleanup of the stimulated Raman scattering in grade-index multi-mode fiber / W. Wang, L. Huang, J. Leng, S. Guo, Z. Jiang // Chinese optics letters.– 2014.– V. 12, № S2.– P. S21401-1 - S21401-4.
96. Mandl A. High-gain, high-efficiency stimulated Raman amplification with beam clean-up / A. Mandl, R. Holmes, A. Flusberg, S. Fulghum, D. Angeley // Journal of Applied Physics.– 1989.– V. 66, № 10.– P. 4625 - 4634.
97. McKay A. Non-collinear beam combining of kilowatt beams in a diamond raman amplifier / A. McKay, D. J. Spence, D. W. Coutts, R. P. Mildren // Conference paper Advanced solid state lasers (16 - 21 November, 2014).– Shanghai, China.– 2014.– P. ATu5A.1.

98. Basov N. G. High power Raman lasers. Beam combining and beam clean up / N. G. Basov, A. Z. Grasiuk, I. G. Zubarev // Raman spectroscopy: Sixty years on (series: Vibrational spectra and structure).– Amsterdam: Elsevier, 1989.– V. 17 B.– P. 255 - 292.
99. Смирнов В. Г. Нетрадиционные принципы построения мощных лазеров с нелинейными преобразователями / В. Г. Смирнов // Квантовая электроника.– 1993.– Т. 20, № 5.– С. 421 - 440.
100. Rubenchik A. M. Nonlinear pulse combining and pulse compression in multi-core fibers / A. M Rubenchik, I. S Chekhovskoy, M. P Fedoruk, O. V Shtyrina, S. K Turitsyn // Optics letters.– 2015.– V. 40, № 5.– P. 721 - 724.
101. Wang K. Synchronized time-lens source for coherent Raman scattering microscopy / K. Wang, C. W. Freudiger, J. H. Lee, B. G. Saar, X. S. Xie, C. Xu // Optics express.– 2010.– V. 18, № 23.– P. 24019 - 24024.
102. Качинский А. В. Конкуренция ВКР вперед-назад и компрессия пикосекундных импульсов / А. В. Качинский, Г. Г. Котаев, И. В. Пилипович // Квантовая электроника.– 1992.– Т. 19, № 6.– С. 550 - 553.
103. Bepalov V. G. Investigation of ultrashort pulse parameters under SRS temporal compression / V. G. Bepalov, E. V. Ermolaeva // Bulletin of the Russian academy of sciences: Physics.– 2007.– V. 71, № 2.– P. 151 – 153.
104. Granados E. Pulse compression in synchronously pumped mode locked Raman lasers / E. Granados, D. J. Spence // Optics express.– 2010.– V. 18, № 19.– P. 20422 - 20427.
105. Englund J. C. Spontaneous generation of phase waves and solitons in stimulated Raman scattering: quantum-mechanical models of stimulated Raman scattering / J. C. Englund, C. M. Bowden // Physical review: A.– 1990.– V. 42, № 5.– P. 2870 - 2889.
106. Kharenko D. S. Feedback-controlled Raman dissipative solitons in a fiber laser / D. S. Kharenko, A. E. Bednyakova, E. V. Podivilov, M. P. Fedoruk, A. Apolonski, S. A. Babin // Optics express.– 2015.– V. 23, № 2.– P. 1857 - 1862.

107. Соколовская А. И. Новые оптические явления при комбинационном рассеянии света в конденсированных средах / А. И. Соколовская, А. Д. Кудрявцева, Г. Л. Бреховских // Труды ФИАН.– 1991.– Т. 212.– С. 16 - 37.
108. Лукин В. П. Формирование оптических пучков и изображений на основе применения систем адаптивной оптики / В. П. Лукин // Успехи физических наук.– 2014.– Т. 184, № 6.– С. 599 - 640.
109. Ахманов С. А. Методы нелинейной оптики в спектроскопии рассеяния света: Активная спектроскопия рассеяния света / С. А. Ахманов, Н. И. Коротеев.– Москва.: Наука, 1981.– 544 с.
110. Zhang D. Spectrally modulated stimulated Raman scattering imaging with an angle-to-wavelength pulse shaper / D. Zhang, M. N. Slipchenko, D. E. Leaird, A. M. Weiner, J. X. Cheng // Optics express.– 2013.– V. 21, № 11.– P. 13864 - 13874.
111. Berto P. Background-free stimulated Raman spectroscopy and microscopy / P. Berto, E. R Andresen, H. Rigneault // Physical review letters.– 2014.– V. 112, № 5.– P. 053905-1 - 053905-5.
112. Xiao-Wei X. Image transfer and combination by means of stimulated Raman scattering / X. Xiao-Wei, W. Satoshi, A. Kazuyuki, T. Hideo // RIKEN Rev.– 1995.– № 11.– P. 49 - 50.
113. Higashihata M. Development of ultrabroadband light source based on stimulated Raman scattering in P-doped silica optical fiber for optical coherence tomography / M. Higashihata, H. Takemoto, T. Nakamura, N. J. Vasa, T. Okada // Japanese journal of applied physics.– 2006.– V. 45, № 6 A.– P. 5014 – 5017.
114. Patil C. A. Combined Raman spectroscopy and optical coherence tomography device for tissue characterization / C. A. Patil, N. Bosschaart, M. D. Keller, T. G. van Leeuwen, A. Mahadevan-Jansen // Optics letters.– 2008.– V. 33, № 10.– P. 1135 - 1137.
115. Kamali T. Hybrid single-source online Fourier transform coherent anti-Stokes Raman scattering/optical coherence tomography / T. Kamali, B. Považay, S.

- Kumar, Y. Silberberg, B. Hermann, R. Werkmeister, W. Drexler, A. Unterhube // Optics Letters.– 2014.– V. 39, № 19.– P. 5709 - 5712.
116. Луговой В. Н. Теория распространения лазерного излучения в нелинейной среде / В. Н. Луговой, А. М. Прохоров // Успехи физических наук.– 1973.– Т. 111, № 2.– С. 203 - 247.
117. Бломберген Н. Нелинейная оптика: Пер. с англ. / Бломберген Н.– Москва: Мир, 1966.– 424 с.
118. Луговой В. Н. Введение в теорию вынужденного комбинационного рассеяния / В. Н. Луговой.– Москва: Наука, 1968.– 126 с.
119. Лоудон Р. Квантовая теория света: Пер. с англ. / Лоудон Р.– Москва: Мир, 1976.– 488 с.
120. Луговой В. Н. К теории вынужденного комбинационного рассеяния в фокусированных световых пучках / В. Н. Луговой, А. М. Прохоров // Журнал экспериментальной и теоретической физики.– 1975.– Т. 69, № 1.– С. 84 - 93.
121. Сущинский М. М. Вынужденное рассеяние света / Сущинский М. М.– Москва: Наука, 1985.– 176 с.
122. Корниенко Н. Е. Черенковское излучение от волн нелинейной поляризации, возбуждаемых при вынужденном комбинационном рассеянии света / Н. Е. Корниенко, В. И. Малый, Г. В. Понежа // Оптическая спектроскопия: Сб. научн. тр.– К.: Ин-т физики АН Украины, 1993.– С. 161 - 166.
123. Иванистик А. И. Пространственно-угловая структура антистоксового излучения при вынужденном комбинационном рассеянии света в керровской жидкости / А. И. Иванистик, В. И. Малый, Г. В. Понежа // Оптика и спектроскопия.– 1996.– Т. 80, № 2.– С. 212 - 217.
124. Иванистик А. И. Излучение черенковского типа при вынужденном комбинационном рассеянии света в самофокусирующих жидкостях / А. И. Иванистик, В. И. Малый, Г. В. Понежа // Оптика и спектроскопия.– 1997.– Т. 82, № 3.– С. 447 - 453.

125. Иванисик А. И. О влиянии самофокусировки на угловые спектры вынужденного комбинационного рассеяния / А. И. Иванисик, В. И. Малый, Г. В. Понежа // Оптика и спектроскопия.– 1998.– Т. 85, № 1.– С. 88 - 94.
126. Иванисик А. И. Спектрально-угловые проявления конкуренции комбинационных и параметрических процессов при вынужденном комбинационном рассеянии в самофокусирующих средах / А. И. Иванисик, В. И. Малый, Г. В. Понежа // Оптика и спектроскопия.– 1998.– Т. 85, № 3.– С.512 - 516.
127. Аскарьян Г. А. Воздействие градиента поля интенсивного электромагнитного луча на электроны и атомы / Г. А. Аскарьян // Журнал экспериментальной и теоретической физики.– 1962.– Т. 42, № 6.– С. 1567 - 1570.
128. Государственный реестр открытий СССР. Диплом на научное открытие № 67 с приоритетом от 22. 12. 1961 г. Автор: Г. А. Аскарьян.
129. Аскарьян Г. А. Черенковское и переходное излучение от электромагнитных волн / Г. А. Аскарьян // Журнал экспериментальной и теоретической физики.– 1962.– Т. 42, № 5.– С. 1360 - 1364.
130. Lallemand P. Self-focusing of laser beams and stimulated raman gain in liquids / P. Lallemand, N. Bloembergen // Physical review letters.– 1965.– V. 15, № 26.– P 1010 - 1012.
131. Garmire E. The angular distribution of stimulated Raman emission in liquids / E. Garmire // Physics letters.– 1965.– V. 17, № 3.– P. 251 - 252.
132. Maier M. Threshold of stimulated Raman scattering in liquids and self-focusing of laser beams / M. Maier, W. Kaiser // Physics letters.– 1966.– V. 21, № 5.– P. 529 - 530.
133. Shimoda K. Gain, frequency shift, and angular distribution of stimulated Raman radiations under multimode excitation / K. Shimoda // Japanese journal of applied physics.– 1966.– V. 5, № 7.– P. 615 - 623.
134. Іванісік А. І. Вимушене комбінаційне розсіяння у самофокусуєчих

- середовищах: нові методи експериментальних досліджень / А. І. Іванісік, В. І. Малий, Г. В. Понежа // Вісник Київського національного університету. Серія: Фізико-математичні науки.– 1997.– № 4.– С. 239 - 248.
135. Shimizu F. Frequency broadening in liquids by a short light pulse / F. Shimizu // Physical review letters.– 1967.– V. 19, № 19.– P. 1097 - 1100.
136. Agrawal G. P. Self-phase modulation in optical fiber communications: good or bad? / G. P. Agrawal // Proceedings of Conference on lasers and electro-optics (6 - 11 May, 2007).– Baltimore, USA.– 2007.– P. 1 - 2 (JTUB5).
137. Loy M. M. T. Study of self-focusing and small-scale filaments of light in nonlinear media / M. M. T. Loy, Y. R. Shen // IEEE Journal of Quantum Electronics.– 1973.– V. 9, № 3.– P. 409 - 422.
138. Marburger J. H. Self-focusing: theory / J. H. Marburger // Progress in Quantum Electronics.– 1975.– V. 4, № 1.– P. 35 - 110.
139. Tatarinova L. L. Exact solutions of the eikonal equations describing self-focusing in highly nonlinear geometrical optics / L. L. Tatarinova, M. E. Garcia // Physical review A.– 2008.– V. 78, № 2.– P. 021806 - 021809.
140. Григоруk В. І. Експериментальна лазерна фізика / В. І. Григоруk, А. І. Іванісік, П. А. Коротков.– Київ: „ВІПОЛ”, 2004.– 300 с.
141. Григоруk В. І. Експериментальна лазерна оптика / В. І. Григоруk, А. І. Іванісік, П. А. Коротков.– Київ: Видавничо-поліграфічний центр „Київський університет”, 2007.– 383 с.
142. Корн Г. А. Справочник по математике для научных работников и инженеров / Г. А. Корн, Т. М. Корн.– Москва: Наука, 1984.– 832 с.
143. Клышко Д. Н. Физические основы квантовой электроники / Д. Н. Клышко.– Москва: Наука, 1986.– 296 с.
144. Ландау Л. Д. Теоретическая физика: Учеб. пособие. Т.2. Теория поля / Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц.– Москва: Наука, 1988.– 512 с.
145. Франк И. М. Излучение Вавилова-Черенкова / И. М. Франк.– Москва: Наука, 1988.– 288 с.

146. Херман Й. Лазеры сверхкоротких световых импульсов: Пер. с нем. / Й. Херман, Б. Вильгельми.– Москва: Мир, 1986.– 368 с.
147. Сухоруков А. П. Нелинейные волновые взаимодействия в оптике и радиофизике / А. П. Сухоруков.– Москва.: Наука, 1988.– 232 с.
148. Борбат А. М. Оптические измерения: учебное пособие для физических и физико-технических факультетов вузов / А. М. Борбат, И. С. Горбань, Б. А. Охрименко, П. А. Суббота-Мельник, И. А. Шайкевич, А. А. Шишловский.– Киев: Техника, 1967.– 420 с.
149. Борн М. Основы оптики / Борн М., Вольф Э.– Москва: Наука, 1970.– 856 с.
150. Иванистик А. И. Измерения показателя преломления органических жидкостей в видимой области спектра / А. И. Иванистик, В. И. Малый, Г. В. Понежа.– Киев: Деп. в УкрНИИНТИ №618-Ук85, 1985.– 7 с.
151. Сивухин Д. В. Оптика: учебное пособие / Сивухин Д. В.– Москва: Наука, 1985.– 752 с.
152. Кондиленко И. И. Самопоглощение в спектрах вынужденного комбинационного рассеяния / И. И. Кондиленко, П. А. Коротков, В. И. Малый // Оптика и спектроскопия.– 1973.– Т. 34, № 6.– С. 1230 - 1231.
153. Sacchi C. A. Anti-Stokes generation in trapped filaments of light / C. A. Sacchi, C. H. Townes, J. R. Lifshitz // Physical review.– 1968.– V. 174, № 2.– P. 439.- 447.
154. Корниенко Н. Е. Природа частотно-угловой структуры излучения при ВКР в жидкостях / Н. Е. Корниенко, В. И. Малый, Г. В. Понежа, Е. А. Понежа // Доклады АН УССР, Серия А.– 1983.– № 4.– С. 65 - 68
155. Корниенко Н. Е. Нерезонансные параметрические процессы при ВКР в органических жидкостях / Н. Е. Корниенко, В. И. Малый, Г. В. Понежа, Е. А. Понежа, Н. В. Дзюбан // Украинский физический журнал.– 1986.– Т. 31, № 2.– С. 333 - 336.
156. Качмарек Ф. Введение в физику лазеров / Ф. Качмарек.– Москва: Мир,

1980.– 540 с.

157. Кандидов В. П. Источники суперконтинуума в мощном фемтосекундном лазерном импульсе при распространении в жидкости и газе / В. П. Кандидов, И. С. Голубцов, О. Г. Косарева // Квантовая электроника.– 2004.– Т. 34, № 4.– С. 348 – 354.
158. Gustafson T. K. Self-modulation, self-steepening, and spectral development of light in small-scale trapped filaments / T. K Gustafson, J. P. Taran, H. A Haus, J. R Lifshitz, P. L. Kelly // Physical review.– 1969.– V. 177, № 1.– P. 306 - 313.
159. Dawes E. L. Computer studies in self-focusing / E. L.Dawes, J. H. Marburger // Physical review.– 1969.– V. 179, № 3.– P. 862 - 868.
160. Гинзбург В. Л. Излучение равномерно движущихся источников (эффект Вавилова-Черенкова, переходное излучение и некоторые другие явления) / В. Л. Гинзбург // Успехи физических наук.– 2001.– Т. 171. № 10.– С.1097 - 1106.
161. Wu J. Generation of subfemtosecond pulses with coherence modulation using high-order stimulated Raman scattering / J. Wu, H. Zeng // Europhysics Letters.– 2004.– V. 66, № 5.– P. 661 - 666.
162. Махвиладзе Т. М. Угловое распределение вынужденного комбинационного рассеяния света в изотропной среде / Т. М. Махвиладзе, М. Е. Сарычев // Труды ФИАН.– 1977.– Т. 99.– С. 157 - 174.
163. Корниенко Н. Е. Излучение черенковского типа при вынужденном комбинационном рассеянии в самофокусирующих средах / Н. Е. Корниенко, В. И. Малый, Г. В. Понежа // Тезисы XX Всесоюзного съезда по спектроскопии (Сентябрь, 1988).– Киев, Украина.– 1988.– С. 422.
164. Golub I. Optical characteristics of supercontinuum generation / Golub I. // Optics letters.– 1990.– V. 15, № 6.– P. 305 - 307.
165. Johnson R. V. Relaxation oscillation in stimulated Raman and Brillouin scattering / R. V. Johnson, J. H. Marburger // Physical review A.– 1971.– V. 4, № 3.– P. 1175 - 1182.

166. Беспалов В. Г. Зарождение и развитие квантово-флуктуационных спектральных мод в осциляциях обратного вынужденного комбинационного рассеяния / В. Г. Беспалов, Ю. Н. Ефимов, Д. И. Стаселько // Оптика и спектроскопия.– 1997.– Т. 82, № 5.– С. 734 - 738.
167. Stoicheff V.P. Characteristics of stimulated Raman radiation generated by coherent light / V. P. Stoicheff // Physics letters– 1963.– V.7, № 3.– P.186 - 188.
168. Felinskiy G. S. Simulation of multiwave pumped fiber Raman amplifiers / G. S. Felinskiy, P. A. Korotkov // Semiconductor physics, quantum electronics and optoelectronics.– 2006.– V. 9, № 3.– P. 35 - 39.
169. Коротков П. А. Волоконні ВКР-лазери неперервної дії / П. А. Коротков, Г. С. Фелінський // Український фізичний журнал (Огляди).– 2006.– Т. 3, № 2.– С. 126 - 150.
170. Григоруку В. І. Нелінійні та лазерні процеси в оптичних волокнах / В. І. Григоруку, П. А. Коротков, Г. С. Фелінський.– Київ: Видавничо-поліграфічний центр „Київський університет”, 2008.– 576 с.
171. Кондиленко И. И. К вопросу об асимметрии индикатрисы комбинационного рассеяния / И. И. Кондиленко, П. А. Коротков // Оптика и спектроскопия.– 1968.– Т. 24.– С. 466 - 468.
172. Суцинский М. М. Спектры комбинационного рассеяния молекул и кристаллов / М. М. Суцинский .– Москва: Наука, 1969.– 576 с.
173. Bloembergen N. Coupling between vibrations and light waves in Raman media / N. Bloembergen, Y. R. Shen // Physical review letters.– 1964.– V. 12, № 18.– P. 504 - 507.
174. Maker P. D. Study of optical effects due to an induced polarization third order in electric field strength / P. D. Maker, R. W. Terhune // Physical review.– 1965.– V. 137, № 3A.– P. 801 - 818.
175. Walmsley I. A. Observation of macroscopic quantum fluctuations in stimulated Raman scattering / I. A. Walmsley, M. G. Raymer // Physical review letters.– 1983.– V. 50, № 13.– P.962 - 965.

176. Кузьмин В. В. Нарушение фазового синхронизма при вынужденном рассеянии света / В. В. Кузьмин // Труды ФИАН.– 1991.– Т. 207.– С. 3 - 39.
177. Качинский А. В. Конкуренция ВКР вперед-назад и компрессия пикосекундных импульсов / А. В. Качинский, Г. Г. Котаев, И. В. Пилипович // Квантовая электроника.– 1992.– Т. 19, № 6.– С. 550 - 553.
178. Shen Y. R. Theory of stimulated Brillouin and Raman scattering / Y. R. Shen, N. Bloembergen // Physical review.– 1965.– V. 137, № 6A.– P 1787 - 1805.
179. Дьяков Ю. Е. О взаимодействии и конкуренции прямого и обратного рассеяний при ВКР / Ю. Е. Дьяков, С. Ю. Никитин // Квантовая электроника.– 1982.– Т. 9, № 6.– С. 1258 - 1261.
180. Петровский Г. Т. Цветное оптическое стекло и особые стекла. Каталог / Г. Т. Петровский.– Москва: Дом оптики, 1990.– 228 с.
181. Yao J. Nonlinear optics and solid-state lasers: advanced concepts, tuning-fundamentals and applications / J. Yao, Y. Wang.– Berlin-London-New York: Springer, 2012.– 688 p.
182. Михеев Г. М. Эффективность прямого и обратного ВКР в водороде при монохроматической накачке / Г. М. Михеев // Квантовая электроника.– 1991.– Т. 18, № 3.– С. 337 - 339.
183. Cai X. H₂ stimulated Raman scattering in a multi-pass cell / X. Cai, J. Guo, C. Zhou, D. Zhou, J. Liu, Z. Shi, H. Li, S. Hu. B. Gai, D. Liu, Y. Tan, H. Cai, Y. Jin // Proceedings of SPIE: selected papers from the “XX International symposium on high-power laser systems and applications 2014”.– 2015.– V 9255.– P. 351 - 352.
184. Uesugi Y. Characterization of stimulated Raman scattering of hydrogen and methane gases as a light source for picosecond time-resolved Raman spectroscopy / Y. Uesugi, Y. Mizutani, S. G. Kruglik, A. G. Shvedko, V. A. Orlovich, T. Kitagawa // Journal of Raman spectroscopy.– 2000.– V. 31, № 4.– P. 339 - 348.
185. Zhou C. The amplification of stimulated Raman scattering in H₂ pumped by a Q-switched Nd:YAG laser / C. Zhou, D. Zhou, X. Cai, H. Li, Z. Shi, S. Hu, J. Guo, Y. Jin // Proceedings of SPIE: selected papers from the “XX International

- symposium on high-power laser systems and applications 2014”.– 2015.– V 9255.– P. 340 - 343.
186. Zverev P. G. Physical, chemical and optical properties of barium nitrate Raman crystal / P. G. Zverev, T. T. Basiev, V. V. Osiko, A. M. Kulkov, V. N. Voitsekhovskii, V. E. Yakobson // *Optical materials.*– 1999.– V. 11, № 4.– P. 315 - 334.
187. Li R. Compact high power barium nitrite crystal-based Raman laser at 1197 nm for photoacoustic imaging of fat / R. Li, M. N. Slipchenko, P. Wang, J. X. Cheng // *Journal of biomedical optics.*– 2013.– V. 18, № 4.– P. 040502(1) - 040502(3).
188. Berenberg V. A. Stimulated Raman scattering of nanosecond pulses in a $\text{KGd}(\text{WO}_4)_2$ crystal / V. A. Berenberg, S. N. Karpukhin, I. V. Mochalov // *Soviet journal of quantum electronics.*– 1987.– V. 17, № 9.– P. 1178 - 1179.
189. Ding S. Theoretical and experimental research on the multi-frequency Raman converter with $\text{KGd}(\text{WO}_4)_2$ crystal / S. Ding, X. Zhang, Q. Wang, F. Su, S. Li, S. Fan, Z. Liu, J. Chang, S. Zhang, S. Wang, Y. Liu // *Optics express.*– 2005.– V. 13, № 25.– P. 10120 - 10128.
190. Brenier A. Eye-safe laser radiation from stimulated Raman scattering frequency self-conversion in $\text{KGd}(\text{WO}_4)_2:\text{Nd}^{3+}$ / A. Brenier, C. Tu, J. Li, Z. Zhu, B. Wu // *Journal of physics: Condensed matter.*– 2001.– V. 13, № 18.– P. 4097 - 4104.
191. Fleischmann M. Raman spectra of pyridine adsorbed at a silver electrode / M. Fleischmann, P. J. Hendra, A. J. McQuillan // *Chemical physics letters.*– 1974.– V. 26, № 2.– P. 163 - 166.
192. Емельянов В. И. Эффект гигантского комбинационного рассеяния света молекулами, адсорбированными на поверхности металла / В. И. Емельянов, Н. И. Коротеев // *Успехи физических наук.*– 1981.– Т. 135. № 2.– С. 345 – 361.
193. Нобиев И. Р. Гигантское комбинационное рассеяние и его применение к

- изучению биологических молекул / И. Р. Нобиев, Р. Г. Ефремов, Г. Д. Чуманов // Успехи физических наук.– 1988.– Т. 154, № 3.– С. 459 - 496.
194. Meng W. Preparation of silver colloids with improved uniformity and stable surface-enhanced Raman scattering / W. Meng, F. Hu, X. Jiang, L. Lu // Nanoscale research letters.– 2015.– V. 10, № 34.– P. 1 - 8.
195. Chang R.K. Surface enhanced Raman scattering / R. K. Chang, T. E. Furtak.– New York.: Plenum Press, 1982.– 293 p.
196. Trügler A. Near-field and SERS enhancement from rough plasmonic nanoparticles / A. Trügler, J.-C. Tinguely, G. Jakopic, U. Hohenester, J. R. Krenn, A. Hohenau // Physical review B.– 2014.– V. 89, № 16.– P. 165409-1 - 165409-6.
197. Прохоров А. М. Физическая энциклопедия Т. 1 / А. М. Прохоров (гл. ред.), Д. М. Алексеев, А. М. Балдин, А. М. Бонч-Бруевич, А. С. Боровик-Романов и др.– Москва: Советская энциклопедия, 1988.– 704 с.
198. Schlücker S. Surface-enhanced Raman spectroscopy: concepts and chemical applications / S. Schlücker // Angewandte chemie international edition.– 2014.– V. 53, № 19.– P. 4756 - 4759.
199. Сивухин Д. В. Общий курс физики. Т. 3: Электричество / Д. В. Сивухин.– Москва: Наука, 1977.– 688 с.
200. Kerker M. Surface enhanced Raman scattering (SERS) by molecules adsorbed at spherical particles / M. Kerker, D. S. Wang, H. Chew // Applied optics.– 1980.– V. 19, № 19.– 3373 - 3388.
201. Chew H. Surface enhancement of coherent anti-Stokes Raman scattering by colloidal spheres / H. Chew, D. S. Wang, M. Kerker // Journal of the Optical society of America: B.– 1984.– V. 1, № 1.– P. 56 - 66.
202. Johnson P. B. Optical constants of the noble metals / P. B. Johnson, R. W. Christy // Physical review: B.– 1972.– V. 6, № 12.– P. 4370 - 4379.