

РАМАНОВСКАЯ ГЕНЕРАЦИЯ В ПРОСТРАНСТВЕННО-НЕОДНОРОДНЫХ СРЕДАХ

А.Д. Кудрявцева¹⁾, К.И. Земсков¹⁾, А.Н. Маресев¹⁾, С.Ф. Уманская¹⁾, Н.В. Чернега¹⁾,
М.А. Шевченко¹⁾, А.И. Водчиц²⁾, В.А. Орлович²⁾

¹⁾Физический институт им. П.Н. Лебедева РАН,

Ленинский пр. 53, 119991 Москва, Россия, akudr@sci.lebedev.ru

²⁾ИНСТИТУТ ФИЗИКИ им. Б.И. Степанова НАН Беларуси,

пр. Независимости 68, 220072 Минск, Беларусь, a.vodchits@dragon.bas-net.by

Случайная генерация в комбинационно-активном материале - порошке нитрата бария - зарегистрирована в двух временных режимах: наносекундном и пикосекундном. Было показано, что вынужденное комбинационное рассеяние света (ВКР) в $\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$ для пикосекундного возбуждения имеет гораздо более низкий порог и спектр, содержащий больше компонент, чем для наносекундного возбуждения, в отличие от случая сплошной среды. В пикосекундном режиме интенсивность ВКР возрастала с понижением температуры и перераспределялась в пользу компонент более высокого порядка. Измерена длительность импульса компонент ВКР в пикосекундном режиме. Высокая эффективность преобразования ВКР в порошке нитрата бария в пикосекундном режиме и его большая стабильность при лазерном воздействии, чем для сплошных образцов, дает возможность использовать его в качестве активного материала в рамановских преобразователях.

Ключевые слова: лазер; вынужденное рассеяние; порошок; длительность импульса; температурная зависимость.

RAMAN LASING IN RANDOM MATERIALS

Anna Kudryavtseva¹⁾, Konstantin Zemskov¹⁾, Aleksandr Maresev¹⁾, Sofia Umanskaya¹⁾, Nikolay Tcherniega¹⁾, Mikhail Shevchenko¹⁾, Aleksandr Vodchits²⁾, Valentin Orlovich²⁾

¹⁾*P.N. Lebedev Physical Institute of the Russian Academy of Sciences,*

53 Leninskii Ave., 119991 Moscow, Russia, akudr@sci.lebedev.ru

²⁾*B.I. Stepanov Institute of Physics, National Academy of Sciences of Belarus,*

68 Nezavisimosti Ave., 220072 Minsk, Belarus, a.vodchits@dragon.bas-net.by

Random lasing in Raman active material - barium nitrate powder – has been registered in two temporal regimes: nanosecond and picosecond. To study SRS in barium nitrate powder in both temporal regimes we used two pumping sources: second harmonic of Q-switched Nd:YAG laser ($\lambda = 532\text{nm}$, $\tau = 11\text{ ns}$, $E = 0.2\text{ J}$, frequency 10 Hz) and second harmonic of Nd:YAG mode-locked laser ($\lambda = 532\text{ nm}$, $\tau = 30\text{ ps}$, $E = 25\text{ mJ}$, frequency 10 Hz). The $\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$ powder of micron-sized particles was placed in the cell. Thickness of the sample was 3 mm. Stimulated Raman scattering (SRS) in $\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$ for picosecond excitation has been shown to have much lower threshold and spectrum containing more components than for nanosecond excitation opposite to the case of a bulk medium. In picosecond regime SRS intensity increased with temperature decreasing and redistributed in favor of the higher order components. SRS components pulse duration in picosecond regime was measured with the help of monochromator and a streak camera. Pulse durations of the 1st, 2nd Stokes and anti-Stokes components are 32, 22 and 19 ps correspondingly. High conversion efficiency of SRS in barium nitrate powder in picosecond regime and its larger stability under laser impact than for bulk samples give possibility to use it as an active material in Raman converters.

Keywords: laser; stimulated scattering; powder; pulse duration; temperature dependence.

Введение

Случайные лазеры – это системы, использующие сильно разупорядоченные материалы для получения лазерной генерации. В этих системах оптический путь намного длиннее, чем в сплошном материале, и за счет этого обеспечивается уси-

ление, достаточное для генерации. Эффект случайной генерации был впервые описан Летоховым [1] в 1968 году. Случайные лазеры продолжают привлекать внимание в связи с многочисленными практическими приложениями и активно изучаются до сих пор [2-4]. Случайная

генерация реализована и исследована на множестве различных материалов: порошках редкоземельных элементов и полупроводников [5], биологических тканях [4,6], нанокompозитах, включая нано- или субмикронные частицы [7]. Рамановский случайный лазер – это частный случай случайного лазера, в котором в качестве источника усиления используется вынужденное комбинационное рассеяние (ВКР) [8]. В рамановском случайном лазере вынужденное неупругое рассеяние играет роль источника усиления, в то время как упругое рассеяние возвращает излучение обратно в среду. Эффективность процесса ВКР в диспергирующих средах может быть значительно увеличена за счет увеличения длины взаимодействия в процессе диффузного распространения света в таких средах. Кроме того, эффект локального поля в таких средах также может привести к значительному увеличению эффективности процесса ВКР. Принимая во внимание все вышеперечисленное, а также простоту изготовления и высокую радиационную стойкость, неупорядоченные комбинационно-активные среды представляют большой интерес для различных областей фотоники. Мы зарегистрировали ВКР в ряде порошков, представляющих собой пространственно-неоднородные среды. В данной работе мы представляем результаты исследования ВКР в одном из этих веществ - порошке нитрата бария $Ba(NO_3)_2$. Спектр этого материала содержит линию, соответствующую «дышащей» моде с волновым числом $\nu(A_g) = 1047\text{ см}^{-1}$, с шириной линии 1.5 см^{-1} , высоким коэффициентом усиления ($g = 47 \pm 5\text{ см}^2/\text{ГВт}$) и низким порогом ВКР. Из-за медленной релаксации колебательных возбуждений в $Ba(NO_3)_2$ (~ 30 нс) при наносекундном возбуждении в кристаллах нитрата бария порог ВКР на порядок меньше, чем при возбуждении пикосекундными импульсами [9]. Используя источники возбуждения с различной длительностью импульса, мы могли исследовать как стационарный, так и неста-

ционарный режим для случайных сред.

Материалы и методы исследования

Механические свойства кристаллов могут приводить к их разрушению под действием возбуждающего излучения, поэтому использование ряда комбинационно-активных материалов, в частности нитрата бария, в виде порошка может решить эти проблемы. $Ba(NO_3)_2$ характеризуется низкой влагостойкостью и плохой теплопроводностью. Спектры ВКР в порошке нитрата бария были впервые получены в 1967 г. [10]. Позже порошок $Ba(NO_3)_2$ был использован в качестве неупорядоченного материала для исследования эффекта случайной генерации при комбинационном рассеянии света [11,12]. В процессе ВКР возможны два временных режима: первый – это установившийся режим, когда длительность импульса накачки намного больше, чем время дефазировки колебательной рамановской моды. Второй случай – это переходный режим, когда длительность импульса накачки меньше времени дефазировки, а спектральная ширина лазерной накачки намного больше однородного уширения рамановской линии. Для исследования ВКР в порошке нитрата бария в обоих временных режимах использовались два источника накачки: вторая гармоника Nd:YAG-лазера с модуляцией добротности ($\lambda = 532\text{ нм}$, $\tau = 11\text{ нс}$, $E = 0.2\text{ Дж}$, частота 10 Гц) и вторая гармоника Nd:YAG-лазера с синхронизацией мод ($\lambda = 532\text{ нм}$, $\tau = 30\text{ пс}$, $E = 25\text{ мДж}$, частота 10 Гц). В кювету помещали порошок $Ba(NO_3)_2$ с частицами микронного размера. Толщина образца составляла 3 мм. Возбуждающий лазерный луч фокусировался на образец линзами с разными фокусами. Изменяя длину фокусировки и используя фильтры, мы могли изменять плотность мощности возбуждающего излучения на образце. Процессы вынужденного рассеяния могут зависеть от температуры образца; поэтому мы исследовали влияние температуры на ВКР в неупорядоченном материале. Для

контроля температуры в ячейку с образцом устанавливалась термопара. Для охлаждения использовался жидкий азот.

Результаты и их обсуждение

Когда энергия накачки превышала пороговое значение, начиналась случайная комбинационная генерация из-за превышения коэффициента усиления над потерями в неупорядоченной среде. Как при пикосекундном, так и при наносекундном режиме мы зарегистрировали ВКР в порошке нитрата бария, соответствующее ВКР-активному режиму с частотным сдвигом 1047 см^{-1} , за счет внутренних полностью симметричных колебаний квазимолекулярной группы NO_3 . При комнатной температуре при возбуждении пикосекундными импульсами регистрировались две стоксовы и одна антистоксова компоненты. Пороги наблюдения компонент составляли 0.065 ГВт/см^2 , 3.5 ГВт/см^2 и 14 ГВт/см^2 для 1-й стоксовой, 2-й стоксовой и антистоксовой компонент соответственно. При возбуждении наносекундными импульсами при комнатной температуре регистрировалась только одна стоксова компонента. Порог ее наблюдения составлял 4 ГВт/см^2 . Зависимость интенсивности первой стоксовой компоненты от энергии накачки при комнатной температуре для обоих временных режимов показана на рис. 1.

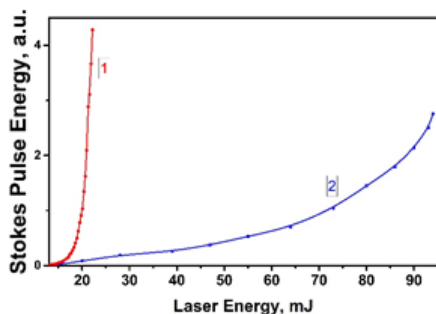


Рис. 1. Зависимость энергии 1-ой стоксовой компоненты ВКР от энергии накачки для пикосекундного (1) и наносекундного (2) режима возбуждения

Fig. 1. 1st Stokes component energy dependence on the pump energy for picosecond (1) and nanosecond (2) excitation regime

Температурные исследования ВКР в нитрате бария показали, что порог ВКР существенно не зависит от температуры образца. Интенсивность ВКР возрастала с понижением температуры и перераспределялась в пользу компонент более высокого порядка. Температурная зависимость интенсивности компонент ВКР показана на рис. 2.

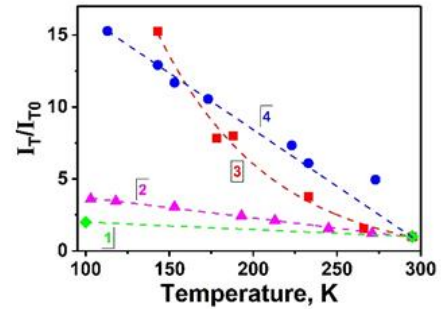


Рис. 2. Температурная зависимость компонент ВКР в $\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$ для нано- и пикосекундного возбуждения. Наносекундная накачка: 1 – 1-ая стоксова компонента. Пикосекундная накачка: 2 – анти-стоксова компонента; 3 – 2-ая стоксова компонента; 4 – 1-ая стоксова компонента

Fig. 2. Temperature dependences for SRS components in $\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$ for nano- and picosecond excitation. Nanosecond pump: 1 – 1st Stokes component. Picosecond pump: 2 – anti-Stokes component; 3 – 2nd Stokes component; 4 – 1st Stokes component

Аналогичная температурная зависимость интенсивности компонент ВКР наблюдалась в кальците [13]. Исследования пространственного распределения излучения на поверхности образца для упругого рассеяния излучения накачки и для 1-й стоксовой компоненты показали, что в пучке ВКР при превышении порога ВКР появляется спекл-структура, характерная для эффекта случайной генерации и характерная для когерентного излучения [14].

В случае пикосекундной длительности импульса накачки исследовалась временная динамика ВКР с помощью монохроматора и стрик-камеры. При длительности импульса возбуждающего излучения 30 пс в рассеянном излучении длительность импульса на несмещенной частоте возрастала до 38 пс, длительности импульса 1-й,

2-й стоковых компонент и анти-стоковой компоненты составляли 32, 22 и 19 пс соответственно. Эти экспериментальные данные хорошо согласуются с расчетами методом Монте-Карло для эффекта случайной рамановской генерации [15], за исключением одного момента. С увеличением энергии накачки 1-я стоковая компонента линейно сдвигается во времени. Отличие от результатов, полученных методом Монте-Карло, может быть связано с влиянием нелинейного показателя преломления среды в условиях усиления локального поля.

В нашей работе мы показали, что ВКР в порошке $\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$ можно возбуждать как наносекундными, так и пикосекундными лазерными импульсами. ВКР, соответствующее нестационарному режиму (пикосекундный режим), намного эффективнее, чем в стационарном режиме (наносекундное возбуждение). Порог ВКР для пикосекундного режима намного ниже, чем в наносекундном, и может быть возбуждено больше компонент ВКР. Зависимость интенсивности ВКР от интенсивности возбуждающего излучения более резкая в пикосекундном режиме, чем в наносекундном. Снижение температуры приводит к увеличению интенсивности ВКР, особенно в пикосекундном режиме. Также наблюдались свойства ВКР, характерные для случайной генерации. Таким образом, наши эксперименты показали, что неупорядоченные материалы могут быть успешно использованы в рамановских преобразователях.

Благодарности

Настоящее исследование финансировалось Российским фондом фундаментальных исследований (гранты 19-02-00750-а, 19-02-00440-а и 20-52-00002-Бел_а) и Белорусским фондом фундаментальных исследований (грант F20R-013).

Библиографические ссылки

1. Летохов В.С. Стимулированное излучение ансамбля рассеивающих частиц с отрицательным

поглощением. *Журнал экспериментальной и теоретической физики* 1967; 53: 1442-1452.

2. Consoli A. and Lopez C. Emission regimes of random lasers with spatially localized feedback. *Opt. Express* 2016; 24: 10912.
3. Shu-Weim, Chang et al. A White Random Laser. *Scientific Reports* 2018; 8: 2720.
4. Pichler K. et al. Random anti-lasing through coherent perfect absorption in a disordered medium. *Nature* 2019; 567: 351.
5. Cao H., Zhao Y., Ho S.T., Seelig E.W., Wang Q.H. and Chang R.P.H. Random Laser Action in Semiconductor Powder. *Phys. Rev. Lett.* 1999; 82: 2278.
6. Polson R.C. and Vardeny Z.V. Random lasing in human tissues. *Appl. Phys. Lett.* 2004; 85: 1289.
7. Anglos D., Stassinopoulos A., Das R. N., Zacharakis G., Psyllaki M., Jakubiak R. et al. Random Laser Action in Organic—Inorganic Nanocomposites. *JOSA B* 2004; 21: 208.
8. Enciso E., Costela A., Garcia-Moreno I., Martin V. and Sastre R. Conventional Unidirectional Laser Action Enhanced by Dye Confined in Nanoparticle Scatters. *Langmuir* 2010; 26: 6154.
9. Баснев Т.Т., Осико В.В. Новые материалы для ВКР-лазеров. *Успехи химии* 2006; 75(10): 939–955.
10. Зубов В.А., Перегудов Г.В., Сушинский М.М., Чирков В.А., Шувалов И.К. Наблюдение вынужденного комбинационного рассеяния света в кристаллических порошках. *Письма в Журнал экспериментальной и теоретической физики* 1967; 5(6): 188-189.
11. Gorelik V.S. and Sverbil P.P. Stimulated Raman Scattering in Microcrystalline Powder of Barium Nitrate. *Journal of Russian Laser Research* 2019; 40: 590.
12. Selden A.C. Albedo and gain threshold of a diffusive Raman random laser. *Opt. Comm.* 2011; 284: 4642.
13. Соколовская А.И., Кудрявцева А.Д., Бреховских Г.Л., Сушинский М.М. Влияние температуры на вынужденное комбинационное рассеяние света в веществах с различными постоянными Керра. *Журнал экспериментальной и теоретической физики* 1969; 57(4): 1160-1166.
14. Van Soest G., Poelwijk F.J. and Lagendijk A. 2002 Speckle experiments in random lasers. *Phys. Rev. E* 2002; 65 (4 Pt 2B):046603.
15. Siddique M. et al. Time-resolved studies of stimulated emission from colloidal dye solutions. *Opt. Lett.* 1996; 21: 450.

References

1. Letokhov V.S. 1968 Generation of light by a scattering medium with negative resonance absorption. *Sov. Phys. JETP* 1968; 26; 835.
2. Consoli A. and Lopez C. Emission regimes of random lasers with spatially localized feedback. *Opt. Express* 2016; 24: 10912.

3. Shu-Weim, Chang et al. A White Random Laser. *Scientific Reports* 2018; 8: 2720.
4. Pichler K. et al. Random anti-lasing through coherent perfect absorption in a disordered medium. *Nature* 2019; 567: 351.
5. Cao H., Zhao Y., Ho S.T., Seelig E.W., Wang Q.H. and Chang R.P.H. Random Laser Action in Semiconductor Powder. *Phys. Rev. Lett.* 1999; 82: 2278.
6. Polson R.C. and Vardeny Z.V. Random lasing in human tissues. *Appl. Phys. Lett.* 2004; 85: 1289.
7. Anglos D., Stassinopoulos A., Das R. N., Zacharakis G., Psyllaki M., Jakubiak R. et al. Random Laser Action in Organic—Inorganic Nanocomposites. *JOSA B* 2004; 21: 208.
8. Enciso E., Costela A., Garcia-Moreno I., Martin V. and Sastre R. Conventional Unidirectional Laser Action Enhanced by Dye Confined in Nanoparticle Scatters. *Langmuir* 2010; 26: 6154.
9. Basiev T.T. and Osiko V.V. New materials for SRS lasers. *Russian chemical reviews* 2006; 75: 847.
10. Zubov V.A., Peregudov G.V., Sushchinskii M.M., Chirkov V.A. and Shuvalov I.K. Observation of Stimulated Raman Scattering of Light in Crystalline Powders. *JETP Lett.* 1967; 5: 150.
11. Gorelik V.S. and Sverbil P.P. Stimulated Raman Scattering in Microcrystalline Powder of Barium Nitrate. *Journal of Russian Laser Research* 2019; 40: 590.
12. Selden A.C. Albedo and gain threshold of a diffusive Raman random laser. *Opt. Comm.* 2011; 284: 4642.
13. Sokolovskaya A.I., Kudryavtseva A.D., Brekhovskikh G.L. and Sushchinskii M.M. Effect of temperature on stimulated Raman scattering of light in substances with various Kerr constants *Soviet Physics JETP* 1970; 30: 633.
14. Van Soest G., Poelwijk F.J. and Lagendijk A. 2002 Speckle experiments in random lasers. *Phys. Rev. E* 2002; 65 (4 Pt 2B):046603.
15. Siddique M. et al. Time-resolved studies of stimulated emission from colloidal dye solutions. *Opt. Lett.* 1996; 21: 450.