

# ПИКОСЕКУНДНОЕ ВЫНУЖДЕННОЕ КОМБИНАЦИОННОЕ РАССЕЯНИЕ В КРИСТАЛЛАХ

*Т. Т. Басиев, П. Г. Зверев, А. Я. Карасик\*, В. В. Осико, А. А. Соболев, Д. С. Чунаев*

*Научный центр лазерных материалов и технологий Института общей физики им. А. М. Прохорова  
119991, Москва, Россия*

Поступила в редакцию 17 марта 2004 г.

Методами спектроскопии спонтанного комбинационного рассеяния (СКР) определены сравнительные значения пикового и интегрального сечений СКР и время оптической дефазировки молекулярных колебаний для ряда оксидных кристаллов. Измерены спектральные, временные и энергетические параметры ВКР в десяти кристаллах при пикосекундной накачке излучением YLF:Nd-лазера с длиной волны излучения 1047 нм. В результате анализа экспериментальной зависимости пороговой энергии накачки ВКР от интегрального и пикового сечений СКР показано, что при изменении отношения длительности импульса накачки — 11 пс — к времени оптической дефазировки молекулярных колебаний, меняющегося от 0.42 до 9.3, инкремент ВКР-усиления явно зависит от интегрального сечения и не зависит от пикового сечения СКР. На основании результатов измерений пороговых энергий накачки ВКР, длительности и ширины спектра импульсов, длины нелинейного взаимодействия и интенсивности накачки и известных теоретических зависимостей, связывающих инкременты стационарного и нестационарного ВКР-усиления, для пороговых условий ВКР определены коэффициенты стационарного ВКР-усиления для всех исследованных кристаллов. Показано, что полученные значения коэффициента стационарного ВКР-усиления хорошо соответствуют их линейной зависимости от пиковых сечений СКР, подтверждая корректность проведенного анализа и измерений.

PACS: 42.65.Dr, 42.70.Mr

## 1. ВВЕДЕНИЕ

Вынужденное комбинационное рассеяние (ВКР) при пикосекундной лазерной накачке активно исследовалось в конце 60-х — начале 70-х годов [1]. Интерес был обусловлен наблюдением новых, в отличие от наносекундной накачки, особенностей процесса, связанных, в частности, с проявлением нестационарного характера или нарушением когерентности ВКР, влиянием дисперсии и фазовой самомодуляции на временные, спектральные и пространственные параметры излучения. Теория нестационарного ВКР (см. обзор в [1, 2]) позволила хорошо объяснить некоторые экспериментальные результаты, полученные в газах и жидкостях [3], а позднее в кварцевых волоконных световодах в условиях большой длины нелинейного взаимодействия излучения со средой [4]. Пикосекундное ВКР исследовалось также в хорошо известных кристаллах кальцита, нио-

бата лития, позднее — в популярных кристаллах  $\text{KGd}(\text{WO}_4)_2$  (KGW) [5] и других. В последнее время интерес к наносекундному и пикосекундному ВКР в кристаллах вырос в связи с перспективой использования последних в ВКР-преобразователях частоты лазерного излучения и продвижением в инфракрасный спектральный диапазон.

В настоящее время появился ряд новых перспективных ВКР-активных кристаллов [6–10] и поиск новых продолжается. Несмотря на то что общие закономерности ВКР в жидких, газообразных и твердых средах должны быть близки, существует ряд отличий, связанных, например, с различием скорости фазовой релаксации и неоднородности спектра колебательных резонансов [1], с дисперсией [2–4], с механизмом и динамикой фазовой самомодуляции [11, 12], с механическими и теплофизическими свойствами сред.

Поскольку выбор объекта исследования, современные экспериментальные методы и лазерная тех-

\*E-mail: karasik@lst.gpi.ru

ника могут позволить переходить при исследовании ВКР из микро- в фемтосекундный временной диапазон [13–15], особый интерес, на наш взгляд, вызывает соответствие экспериментальных данных и теоретических представлений перехода от стационарного к нестационарному режиму ВКР. Как известно, не существует строгих временных границ, разделяющих стационарное и нестационарное ВКР, что затрудняет использование той или иной теории и сравнение экспериментальных результатов. При линейном отклике системы на возбуждающий световой импульс длительностью  $\tau_p$  условие нестационарности для системы с временем фазовой релаксации  $T_2$  относительно прозрачно:  $\tau_p < T_2$ , однако в случае нелинейного отклика это условие может кардинально измениться. Это обстоятельство связано с трансформацией временной огибающей импульса и его спектра в нелинейном процессе.

В условиях экспоненциального усиления спонтанных шумов интенсивности  $I_{S0}$  при неистощенной накачке интенсивность усиленной волны на сдвинутой относительно частоты накачки стоксовой частоте растет как  $I_S = I_{S0} \exp G$  и для стационарного, и для нестационарного ВКР [2]. Для стационарного ВКР, когда длительность накачки  $\tau_p$  значительно превосходит время  $T_2$  фазовой релаксации комбинационного рассеяния (КР) активной колебательной моды, инкремент усиления  $G_0 = gI_p L$  линейно пропорционален интенсивности накачки  $I_p$ , длине  $L$  взаимодействия света со средой и коэффициенту ВКР-усиления  $g$ . В процессе ВКР-усиления спектр стоксова импульса сужается, что при значениях  $G_0$ , меняющихся от единиц до сотен, может существенно трансформировать условие нестационарности отклика системы:  $G_0 T_2 \gg \tau_p$  [1]. С другой стороны, при нестационарном ВКР стоксов импульс в процессе усиления может укорачиваться относительно импульса накачки [2, 3], что усложняет анализ условия нестационарности. Теория, развитая в работах [2] и сочетающая аналитические и численные методы, позволила, в частности, для отношений  $\tau_p/T_2$ , меняющихся от 10 до 0.01, получить связь стационарного и нестационарного инкрементов ВКР-усиления в широких пределах изменения их значений.

В пределе больших значений коэффициентов усиления связь нестационарного и стационарного инкрементов усиления имеет вид [2]

$$G_\tau = \sqrt{4G_0 \frac{\tau_p}{T_2}}, \quad (1)$$

где  $T_2 = 1/\pi c \Delta\nu_R$ ,  $\Delta\nu_R$  — ширина спектра спон-

танного комбинационного рассеяния (СКР). Выражение (1) легко трансформируется в следующее:

$$G_\tau = \left( \frac{4\pi\lambda_s^2 \lambda_p \sigma_{int} I_p L}{hcn_s^2} \right)^{1/2}, \quad (2)$$

где  $\lambda_p$ ,  $\lambda_s$  — длины волн накачки и более длинноволнового стоксова рассеяния,  $n_s$  — показатель преломления на стоксовой частоте,  $\sigma_{int}$  — интегральное сечение СКР,

$$\sigma_{int} = \int \sigma(\nu) d\nu \approx \sigma_p \Delta\nu,$$

$\nu = 1/\lambda$  — частота излучения. Интенсивность излучения накачки  $I_p = E_p/\tau_p S_{eff}$ , где  $E_p$  — энергия накачки,  $S_{eff}$  — эффективная площадь сечения пучка накачки. Связь коэффициента  $g$  стационарного ВКР-усиления с пиковым сечением  $\sigma_p$  спонтанного комбинационного рассеяния дается следующим выражением [1]:

$$g(\nu) = \frac{\sigma_p \lambda_s^2 \lambda_p}{c^2 h n_s^2}. \quad (3)$$

Отметим, что поскольку  $\sigma_p(\sigma_{int}) \sim \lambda_s^{-4}$  [1], коэффициент  $g$  (соответственно, и инкремент  $G_0$ ) стационарного комбинационного усиления линейно пропорционален частоте излучения. (В ряде экспериментов наблюдалась квадратичная зависимость коэффициента ВКР-усиления от частоты, что может быть связано, по-видимому, с вкладом в нелинейный процесс резонансных электронных переходов в ультрафиолетовом спектральном диапазоне [6].) Из (2), в частности, следует, что в соответствии с теорией [2] при больших усилениях в пренебрежении дисперсией нестационарный инкремент усиления  $G_\tau$  пропорционален квадратному корню из интегрального сечения СКР  $\sigma_{int}$  и не зависит ни от ширины спектра излучения, ни от длительности накачки  $\tau_p$ , ни от времени оптической дефазировки фонона  $T_2$ .

В данной работе мы провели исследования процесса ВКР в большом наборе кристаллов, у которых время  $T_2$  оптической дефазировки молекулярных колебаний варьируется более чем на порядок. Таким образом, при неизменной пикосекундной лазерной накачке появилась возможность проанализировать закономерности перехода от стационарного к нестационарному ВКР, а также оценить важнейшие параметры нелинейного процесса.

Методы спектроскопии спонтанного комбинационного рассеяния позволили нам для исследованных кристаллов определить сравнительные значения пикового и интегрального сечений СКР, определяющие величины инкрементов стационарного и

нестационарного ВКР-усиления в различных кристаллах. В 10 оксидных кристаллах измерены спектральные, временные и энергетические параметры ВКР при накачке кристаллов импульсами (длительностью около 11 пс) YLF:Nd-лазера с длиной волны излучения 1047 нм. В результате анализа экспериментальной зависимости пороговой энергии накачки ВКР от интегрального и пикового сечений СКР мы убедились, что при изменении отношения  $\tau_p/T_2$  длительности импульса накачки  $\tau_p = 11$  пс к времени  $T_2$  оптической дефазировки молекулярных колебаний, меняющегося от 0.42 до 9.3, инкремент ВКР-усиления в соответствии с представлениями о нестационарном ВКР явно зависит от интегрального сечения и не зависит от пикового сечения СКР. Далее, пользуясь теоретическими зависимостями, связывающими инкременты стационарного и нестационарного ВКР-усиления, рассчитанными в работах [2] при различных отношениях  $\tau_p/T_2$ , для пороговых условий ВКР для всех исследованных кристаллов мы оценили величины инкремента  $G_0$  стационарного ВКР-усиления. Затем, определив длины  $L$  нелинейного взаимодействия и интенсивности накачки  $I_p$ , из результатов измерений пороговых энергий накачки ВКР, длительности и ширины спектра импульсов мы рассчитали коэффициенты стационарного ВКР-усиления  $g = G_0/I_p L$ . Это позволило нам построить зависимость коэффициентов усиления  $g$  для всех кристаллов как функцию измеренных спектроскопическими методами пиковых сечений СКР ( $\sigma_p$ ). Мы показали, что экспериментальные значения коэффициента  $g$  стационарного ВКР-усиления неплохо соответствуют линейной зависимости  $g = f(\sigma_p)$  выражения (3), что, в свою очередь, подтвердило корректность проведенного анализа и измерений.

## 2. ВРЕМЯ ОПТИЧЕСКОЙ ДЕФАЗИРОВКИ, ПИКОВЫЕ И ИНТЕГРАЛЬНЫЕ СЕЧЕНИЯ СПОНТАННОГО КОМБИНАЦИОННОГО РАССЕЯНИЯ В ОКСИДНЫХ КРИСТАЛЛАХ

Список исследованных в данной работе кристаллов представлен в табл. 1.

ВКР в кристаллах, выделенных в табл. 1, исследовалось впервые. Детальные спектроскопические исследования серии вольфраматов и молибдатов щелочно-земельных металлов (Ca, Sr, Ba) и свинца (Pb) были выполнены в работах [16, 17]. В табл. 1 приведены параметры наиболее интенсивных КР-активных колебаний, проявляющихся

в спектрах СКР и приписываемых полносимметричным колебаниям  $\nu_1$  тетраэдрических комплексов  $[\text{WO}_4]^{2-}$  и  $[\text{MoO}_4]^{2-}$ . Эти комплексы являются структурными фрагментами шеелитовой структуры исследуемых кристаллов вольфраматов и молибдатов. Ранее было показано, что тип катиона (Ca, Sr, Ba, Pb) существенно влияет на ширину линии СКР  $\Delta\nu_1$  вольфраматов, которая варьирует от 6.9 в  $\text{CaWO}_4$  до 1.6  $\text{см}^{-1}$  в  $\text{BaWO}_4$ . Аналогичная ситуация имеет место и в серии молибдатов. Было показано, что уширение  $\nu_1$ -линии зависит от массы катиона и расстояния между комплексами  $[\text{WO}_4]^{2-}$  и  $[\text{MoO}_4]^{2-}$  в кристаллической структуре шеелита. Кристаллы  $\text{BaWO}_4$  и  $\text{BaMoO}_4$  имеют большую массу и наибольшие размеры элементарной ячейки в серии шеелитов, что приводит к наиболее узким  $\nu_1$ -линиям, регистрируемым в спектрах СКР данных кристаллов. Интегральное сечение  $\nu_1$ -линии было практически одинаково в серии вольфраматов и молибдатов щелочно-земельных металлов (Ca, Sr, Ba). В то же время значения пиковых сечений этой линии, обратно пропорциональные ширине линии комбинационно-активного колебания, для  $\text{BaWO}_4$  и  $\text{BaMoO}_4$  оказались в 3–4 раза больше, чем для  $\text{CaWO}_4$  или  $\text{CaMoO}_4$ .

В данной работе мы впервые измерили пиковые и интегральные сечения спонтанного комбинационного рассеяния в ориентированных кристаллах  $\text{SrWO}_4$ ,  $\text{PbWO}_4$  и  $\text{PbMoO}_4$ . Как видно из табл. 1, значение  $\sigma_{int}$  для  $\text{SrWO}_4$  практически такое же, как и для  $\text{CaWO}_4$  и  $\text{BaMoO}_4$ . Эти результаты подтверждают наше предположение о слабом влиянии сорта катиона на интегральное сечение  $\sigma_{int}$  для  $\nu_1$ -линии полносимметричного колебания в ряду щелочноземельных (Ca, Sr, Ba) вольфраматов. Отметим, что ширина  $\nu_1$ -линии в  $\text{SrWO}_4$  больше, чем в  $\text{BaWO}_4$ , но меньше, чем в  $\text{CaWO}_4$ . Пиковое сечение  $\sigma_p$  этой линии в  $\text{SrWO}_4$  на 30 % меньше, чем в  $\text{BaWO}_4$ , но почти в 2 раза больше, чем в  $\text{CaWO}_4$  [17].

Важной специфической особенностью спектров СКР в кристаллах  $\text{PbWO}_4$  и  $\text{PbMoO}_4$  является иная зависимость интенсивности  $\nu_1$ -линии от геометрии рассеяния ( $hh$  и  $vh$  на рис. 1) по сравнению с поляризованными спектрами СКР щелочно-земельных вольфраматов и молибдатов. Максимальная интенсивность этой линии в вольфраматах и молибдатах Ca, Sr, Ba наблюдается при совпадении направления линейной поляризации возбуждающего света с кристаллической осью  $C_4$  ( $\mathbf{E} \parallel C_4, hh$ ) (рис. 1a, табл. 1). Соотношение интенсивностей  $I_{hh}/I_{vh}$  ( $vh$  соответствует  $\mathbf{E} \perp C_4$ ) для этих кристаллов больше единицы:  $I_{hh}/I_{vh} = 1.2\text{--}1.25$ . Для кристаллов

Таблица 1. Спектроскопические параметры ВКР-активных мод в исследованных кристаллах при 300 К

Кристалл	Частота КР-моды, $\nu_R$ , $\text{см}^{-1}$	Ширина линии СКР, $\Delta\nu_R$ , $\text{см}^{-1}$	Время фазовой релаксации колебания, $T_2 = 1/\pi c \Delta\nu_R$ , пс	Показатель преломления, $n$	Поляризация возбуждения	Интегральное поперечное сечение* СКР, $\sigma_{int}$ , отн. ед.	Пиковое поперечное сечение* СКР, $\sigma_p$ , отн. ед.
Ba(NO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	1047	0.4	26.5	1.55	C <sub>4</sub>	21	63
BaMoO <sub>4</sub>	892	1.85	5.73	1.98	C <sub>4</sub>	55	62
SrMoO <sub>4</sub>	887	2.5	4.24	1.98	C <sub>4</sub>	63	51
SrWO <sub>4</sub>	921	2.7	3.93	2.13	C <sub>4</sub>	50	41
KGd(WO <sub>4</sub> ) <sub>2</sub> (KGW)	901	5.4	1.96	1.9	⊥ C <sub>2</sub>	50	35
CaMoO <sub>4</sub>	879	5.5	1.93	1.93	C <sub>4</sub>	65	34
CaWO <sub>4</sub>	911	6.9**	1.54	1.98	C <sub>4</sub>	52	18
TeO <sub>2</sub>	648	9	1.18	2.21	⊥ C <sub>4</sub>	150	35
PbWO <sub>4</sub>	904.7	4.1	2.59	2.15	⊥ C <sub>4</sub>	171	97
PbMoO <sub>4</sub>	871	6.0**	1.77	2.25	⊥ C <sub>4</sub>	390	120

\*Пиковые и интегральные сечения СКР приведены относительно сечений комбинационно-активной (1330  $\text{см}^{-1}$ ) моды монокристалла алмаза.

PbWO<sub>4</sub> и PbMoO<sub>4</sub> это отношение меньше единицы и составляет, соответственно, 0.67 и 0.53. Данный эффект наиболее ярко выражен в кристалле PbMoO<sub>4</sub>, где интенсивность  $\nu_1$ -линии в спектрах СКР для  $vh$ -геометрии аномально велика и в 1.9 раза превосходит интенсивность для  $hh$  геометрии (рис. 1б).

Специфические особенности колебательных спектров PbWO<sub>4</sub> и PbMoO<sub>4</sub> были также выявлены в работах [16,17], где анализировались энергии колебательных уровней в серии шеелитов. Существенное отличие энергетических диаграмм этих кристаллов от других шеелитов объяснялось относительно большой степенью ковалентной связи между Pb и O и большой массой Pb-катиона. Это, в частности, выражалось в наименьшей энергии полносимметричного валентного колебания  $\nu_1$  для кристаллических и расплавленных кристаллов PbWO<sub>4</sub> и PbMoO<sub>4</sub> по сравнению с другими шеелитами.

Ранее в отсутствие данных об интегральных ин-

тенсивностях комбинационного рассеяния PbWO<sub>4</sub> и PbMoO<sub>4</sub> предполагалось, что пиковое сечение  $\nu_1$ -линии СКР невелико из-за ее относительно большой ширины. Корректное измерение всех параметров для всех геометрий и ориентаций кристаллов показало, что ширина  $\nu_1$ -линии в спектрах СКР PbWO<sub>4</sub> и PbMoO<sub>4</sub> близка к ширинам линий для KGW, CaWO<sub>4</sub> и CaMoO<sub>4</sub>. Однако аномально высокое значение интегрального сечения  $\nu_1$ -линии в вольфрамите и молибдате свинца обуславливает также и максимальные пиковые сечения для них в ряду шеелитов (табл. 1), что делает эти кристаллы перспективными не только для пикосекундного, но и для наносекундного ВКР.

В табл. 1 для всех кристаллов, наряду с их показателями преломления, приводится время дефазировки, определенное из ширины спектра СКР:  $T_2 = 1/\pi c \Delta\nu_R$ , в предположении однородного уширения и лоренцевой формы спектра. Как следует из нашего анализа, спектры СКР кристаллов, отмечен-

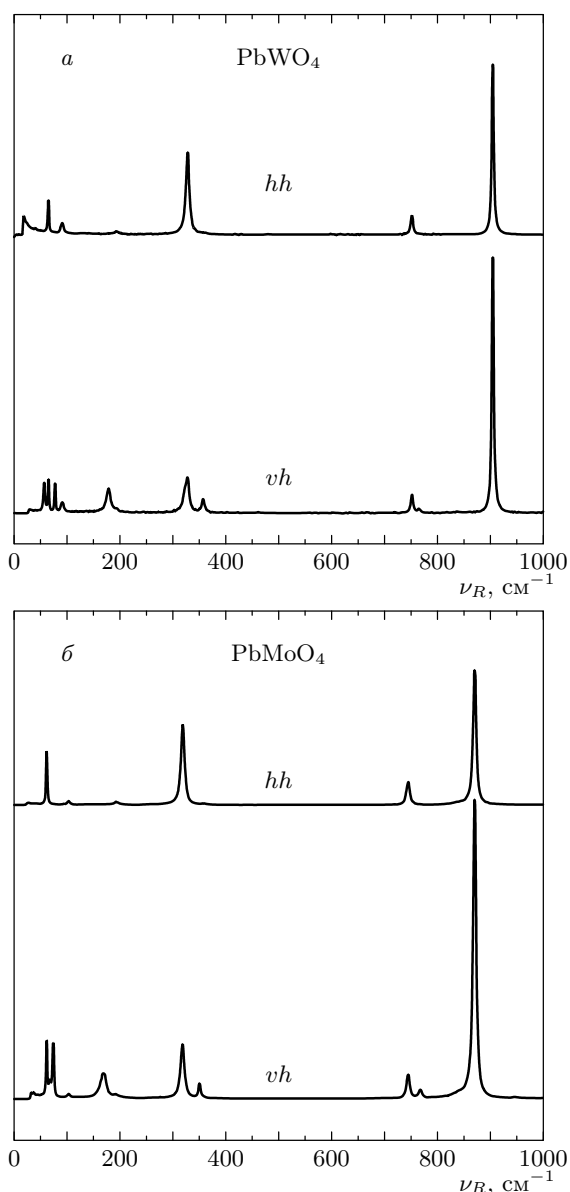


Рис. 1. Спектры спонтанного комбинационного рассеяния в кристалле  $\text{PbWO}_4$  (а) и  $\text{PbMoO}_4$  (б) при коллинеарном ( $\mathbf{E} \parallel C_4$ ,  $hh$ ) и ортогональном ( $\mathbf{E} \perp C_4$ ,  $vh$ ) направлениях линейной поляризации возбуждающего света с оптической осью  $C_4$  для этих кристаллов

ных (\*\*), неоднородно уширены, что может приводить к некоторой неоднозначности в оценке  $T_2$  [1].

Из данных табл. 1 видно, что для импульсов накачки длительностью  $\tau_p = 10$  пс формальное условие нестационарности процесса ВКР,  $G_0 T_2 \gg \tau_p$ , при условном пороговом значении  $G_0 = 25$  заведомо будет выполнимо для кристалла  $\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$ , обладающего максимальным значением времени дефазиров-

ки  $T_2 = 26.5$  пс. В то же время для кристалла  $\text{TeO}_2$  с его минимальным значением  $T_2 = 1.18$  пс произведение  $G_0 T_2$  при пороговых условиях сравнимо с  $\tau_p = 10$  пс, и процесс ВКР может быть близок к стационарному. Подчеркнем, что данные соображения не являются строгими, и только сопоставление экспериментальных и теоретических данных позволит ответить на поставленные вопросы.

### 3. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ ПО ВЫНУЖДЕННОМУ КОМБИНАЦИОННОМУ РАССЕЯНИЮ И ИХ СООТВЕТСТВИЕ ТЕОРЕТИЧЕСКИМ ПРЕДСТАВЛЕНИЯМ

В соответствии с изложенным выше в качестве источника накачки ВКР мы выбрали лазер на кристалле  $\text{YLiF}_4$ , работающий в режиме пассивной синхронизации мод и излучающий на длине волны 1047 нм цуги  $\sim 11$  пс импульсов с длительностью цуга 200–300 нс и суммарной энергией в цуге до 1.5 мДж (рис. 2). Оптическая схема экспериментальной установки для исследования ВКР аналогична использованной нами в работах [10, 18]. Излучение лазера, работавшего в  $\text{TEM}_{00}$ -моду, ослаблялось нейтральными светофильтрами и фокусировалось сферическим длиннофокусным зеркалом ( $f = 70$  см) в исследуемый образец. Излучение лазера и рассеянное излучение после фокусирующей линзы и дихроичного фильтра, отсекающего излучение накачки, попадали на калиброванные быстродействующие германиевые фотодиоды.

За одну вспышку с помощью цифрового осцил-

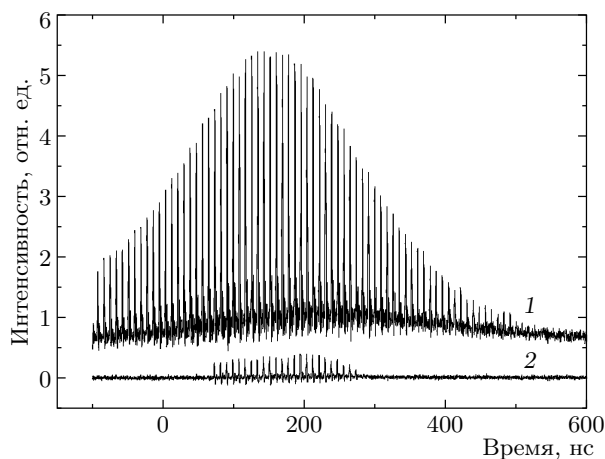


Рис. 2. Осциллограммы излучения лазера накачки (1) и ВКР (2) в кристалле  $\text{PbMoO}_4$

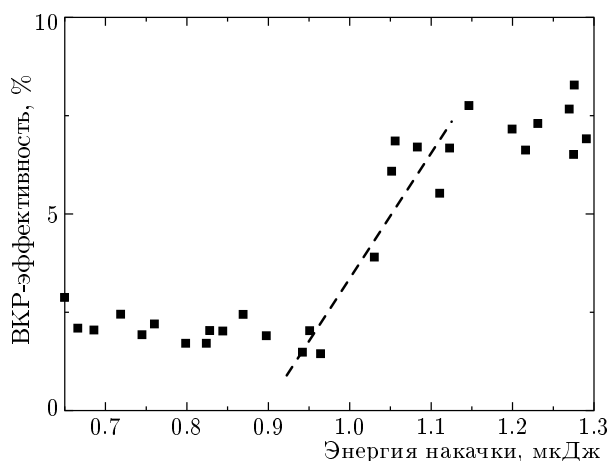


Рис. 3. Зависимость эффективности ВКР от энергии накачки для кристалла РьМО<sub>4</sub>

логафа измерялась энергия в отдельных пикосекундных импульсах цуга накачки и рассеянного излучения (рис. 2), что позволяло определить зависимость эффективности ВКР от энергии импульсов накачки. Временные параметры импульсов рассеянного и возбуждающего излучений измерялись с разрешением 2–3 пс на электронно-оптической камере IMACON-501, сопряженной с устройством считывания на кремниевой ПЗС-матрице. Спектральный состав излучения накачки и рассеянного излучения анализировался на решеточном полихроматоре PGS-2 с помощью ПЗС-матрицы и компьютера. Ширина спектра излучения лазера накачки, измеренная на частоте второй гармоники  $\Delta\nu_p$  равнялась  $2.26 \text{ см}^{-1}$  ( $\Delta\lambda_p = 0.062 \text{ нм}$ ). Для измеренной длительности импульсов  $\tau_p = 11 \text{ пс}$  на длинах волн  $\lambda = 1047, 523.5 \text{ нм}$  произведение  $\tau_p \Delta\nu_p = 0.74$ , что свидетельствует о том, что импульсы лазера накачки не были полностью спектрально ограничены [1].

На рис. 2 в качестве примера показаны осциллограммы излучения накачки лазера и ВКР в кристалле РьМО<sub>4</sub>. Отчетливо наблюдается порог возникновения ВКР. Отношение энергий цугов ВКР и накачки дает нам зависимость эффективности ВКР от энергии накачки (рис. 3). Видно, что рост эффективности ВКР, соответствующий режиму неистощенной накачки, переходит при повышении энергии накачки в насыщение, когда возникает каскадная генерация второй стоксовой компоненты. В эксперименте легко реализуется каскадная генерация трех–четырёх стоксовых компонент ВКР с последовательно уменьшающейся на величину  $\nu_R$  (табл. 1) (относительно  $\nu_p$ ) частотой излучения и нескольких,

обусловленных четырех-фотонным смешением [1], антистоксовых компонент с такими же частотными сдвигами. Зависимость на рис. 3 получена при относительно малых накачках, когда эффективность генерации высших стоксовых и антистоксовых компонент была пренебрежимо мала. Аппроксимируя зависимость на рис. 3 к нулевой эффективности ВКР, мы для каждого кристалла определяли пороговое значение энергии накачки для ВКР и нормировали его на длину кристалла ( $E_p^{thr} L$ ) (см. табл. 2). Как следует из предыдущего раздела, сечения СКР в исследованных кристаллах могут зависеть от направления поляризации излучения относительно кристаллографических осей кристалла. Мы проводили измерения ВКР при ориентации направления линейной поляризации накачки параллельно или перпендикулярно кристаллографическим осям кристаллов, соответствующим максимальным значениям сечений СКР.

### 3.1. Анализ экспериментальных данных

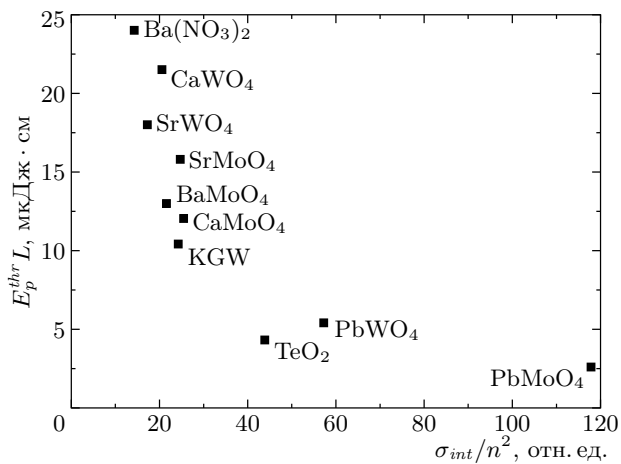
В данном разделе мы анализируем экспериментальные данные в рамках обсуждаемой во Введении связи полученных методами линейной спектроскопии времен фазовой релаксации, интегральных и пиковых сечений СКР с энергетическими, временными и спектральными параметрами процесса ВКР. Эта связь определяется формулами (1)–(3).

Как следует из результатов измерений энергетических характеристик ВКР, имеет место почти десятикратный разброс порогового значения энергии накачки ( $E_p^{thr} L$ ) для ВКР у разных кристаллов (табл. 2). Максимальный порог ВКР имеет место для Ва(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub> с минимальным интегральным сечением СКР и максимальным значением времени дефазировки колебания  $T_2 = 26.5 \text{ пс}$  (табл. 1), обуславливающими наибольшую нестационарность процесса ВКР. Затем пороги ВКР понижаются для группы кристаллов вольфраматов Са и Sr, имеющих меньшие по сравнению с нитратом бария, но существенно разные времена  $T_2$ , и практически одинаковые значения интегрального сечения.

Далее пороги ВКР понижаются для группы молибдатов Са, Sr, Ва при несколько больших по сравнению с вольфраматами Са, Sr интегральных сечениях, но также при разных значениях времени дефазировки  $T_2$ . Существенное понижение порога ВКР имеет место для вольфрамата и молибдата свинца и диоксида теллура, обладающих рекордно высокими интегральными сечениями и минимальными значениями времени дефазировки  $T_2$ . Для всех указан-

**Таблица 2.** Нормированные пороговые значения энергии накачки  $E_p^{thr}L$  и коэффициенты стационарного ВКР-усиления в кристаллах

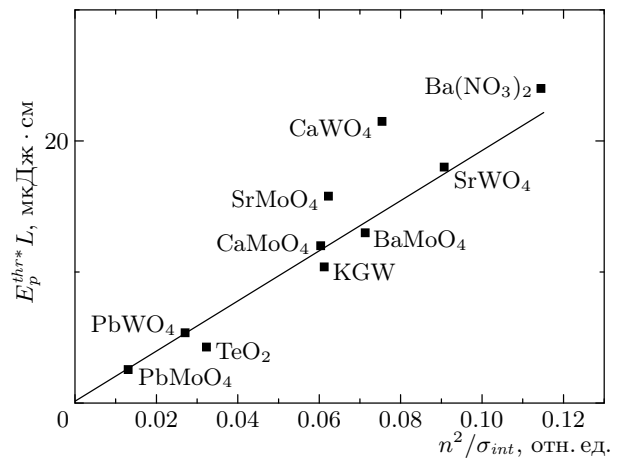
Кристалл	$L$ , мм	$E_p^{thr}L$ , мкДж·см	$\tau_p/T_2$	$G_0$	$g$ , см/ГВт
Ba(NO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	40	24	0.42	300	14.2
BaMoO <sub>4</sub>	18	13.0	1.92	93	8.1
SrMoO <sub>4</sub>	36	15.8	2.6	78	5.6
KGd(WO <sub>4</sub> ) <sub>2</sub>	36	10.4	5.6	47	5.1
SrWO <sub>4</sub>	43	18.1	2.8	75	4.7
CaMoO <sub>4</sub>	28	12.04	5.7	45	4.3
CaWO <sub>4</sub>	39	21.5	7.14	42	2.2
TeO <sub>2</sub>	10	4.3	9.3	37	9.7
PbWO <sub>4</sub>	30	5.4	4.25	52	10.9
PbMoO <sub>4</sub>	30	2.6	6.2	40	17.5



**Рис. 4.** Зависимость пороговой энергии накачки ВКР, нормированной на длину нелинейного взаимодействия, от интегрального сечения СКР для исследованных кристаллов

ных групп кристаллов пороги ВКР явно зависят от интегрального сечения СКР и практически не зависят ни от пиковых сечений, ни от времен фазовой релаксации  $T_2$  в соответствии с теорией нестационарного ВКР [2] (см. выражение (2)).

Последнее утверждение наглядно иллюстрируется представленной на рис. 4 зависимостью порога ВКР от интегрального сечения СКР для исследованных кристаллов. Зависимость демонстрирует монотонное уменьшение порога ВКР при увеличении ин-



**Рис. 5.** Экспериментальные значения нормированных пороговых энергий накачки ВКР для исследованных кристаллов в зависимости от значений обратной величины интегрального сечения СКР ( $n^2/\sigma_{int}$ ). Сплошная линия качественно демонстрирует зависимость, соответствующую выражению (2)

тегрального сечения СКР. Если мы посмотрим на формулу (2) для нестационарного ВКР и положим пороговое значение инкремента усиления одинаковым для всех кристаллов,  $G_r = 25$ , то в соответствии с выражением (2) получим гиперболическую зависимость  $E_p^{thr}L = f(n^2/\sigma_{int})$ . Мы не анализируем линейную зависимость данной функции от близ-

кой для исследованных кристаллов (табл. 1) частоты стоксова излучения, но учитываем более резкую квадратичную зависимость от показателя преломления (формула (2)). Экспериментальные значения нормированных пороговых энергий ВКР для исследованных кристаллов представлены на рис. 5 в зависимости от значений  $n^2/\sigma_{int}$ . Гиперболическая зависимость представлена на рис. 5 сплошной линией и демонстрирует, что в соответствии с теорией и выражением (2) именно интегральное сечение СКР отвечает за процесс нестационарного ВКР-усиления. Отметим, что экспериментальные точки для кристаллов  $\text{PbMoO}_4$ ,  $\text{PbWO}_4$  и  $\text{TeO}_2$  с наиболее короткими временами  $T_2$ , приближающими процесс ВКР к стационарному, также неплохо соответствуют гиперболической зависимости порога ВКР от интегрального сечения.

### 3.2. Коэффициенты ВКР-усиления

Далее мы попытались, используя результаты теории [2], проверить связь нестационарного и стационарного ВКР и оценить коэффициенты  $g$  стационарного ВКР-усиления. Для этой цели мы использовали зависимости, связывающие инкременты нестационарного и стационарного ВКР усиления  $G_\tau = f(G_0)$ , рассчитанные в работе Кармана и др. [2] для гауссовых импульсов для разных отношений длительности импульса накачки к времени дефазировки фона,  $\tau_p/T_2$ , меняющихся от 10 до 0.01 и известных для исследуемых образцов (табл. 1). Положив пороговое значение инкремента усиления одинаковым для всех кристаллов,  $G_\tau = 25$  [1], по данным работы [2] для каждого кристалла мы определили значения стационарного ВКР-усиления  $G_0$  (табл. 2). Как видим, для кристалла  $\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$ , имеющего минимальное отношение  $\tau_p/T_2 = 0.42$  (резко нестационарное ВКР), имеет место наибольшее отличие (в 12 раз) в значениях инкремента усиления нестационарного и стационарного процессов ВКР. Уменьшение разницы в значениях стационарного и нестационарного инкрементов усиления по мере увеличения отношения  $\tau_p/T_2$  до значений, близких к 4–9, демонстрирует приближение к стационарному режиму ВКР в кристаллах  $\text{PbMoO}_4$ ,  $\text{PbWO}_4$  и  $\text{TeO}_2$ . Теперь, определив величины инкремента  $G_0$ , из формулы  $G_0 = gI_pL$  можно рассчитать коэффициент ВКР-усиления  $g$ , зная длину нелинейного взаимодействия  $L$  и интенсивность накачки  $I_p$ .

Длина нелинейного взаимодействия, как правило, определяется удвоенной длиной, на которой сечение пучка из-за дифракции увеличивается в два

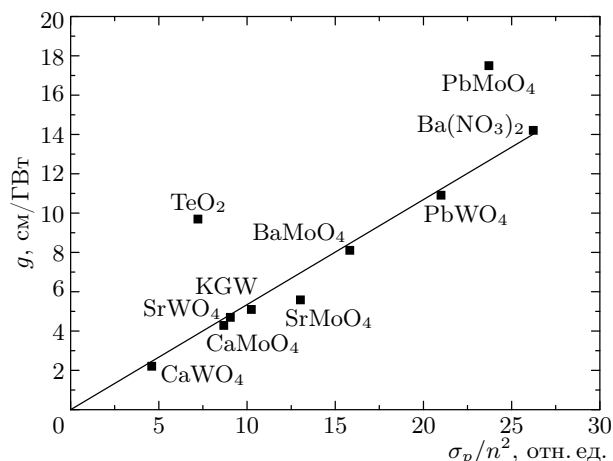


Рис. 6. Значения коэффициента  $g$  стационарного ВКР-усиления для всех исследуемых кристаллов как функция пикового сечения СКР,  $\sigma_p/n^2$ , нормированного в соответствии с выражением (3) на показатель преломления кристалла  $n$

раза, и для гауссова пучка (наш случай) эта длина определяется формулой

$$L = \frac{4\pi w_0^2 n}{\lambda}, \quad (4)$$

где  $2w_0$  — диаметр пучка в перетяжке при  $I = I_0/e$ ,  $n$  — показатель преломления. Измеренный с помощью ПЗС-камеры профиль лазерного пучка был близок к гауссову с диаметром  $2w_0 = 80$  мкм. Измеренная с учетом  $n = 2$  длина  $L$  составила приблизительно 5 см. Как следует из табл. 2, длины наших кристаллов меньше  $L = 5$  см, и, следовательно, они определяют длину нелинейного взаимодействия. Для интенсивности накачки  $I_p$  имеем

$$I_p = \frac{E_p}{S_{eff} \tau_p}. \quad (5)$$

Здесь  $E_p$  и  $\tau_p$  — измеряемые энергия и длительность импульса,  $S_{eff}$  — эффективная площадь сечения пучка, определяемая интегралом перекрытия мод накачки и стоксовой волны, и для гауссовых пучков  $S_{eff} = 2\pi w_0^2$  [4]. Заметим, что в наших расчетах в условиях, близких к пороговым, мы пренебрегаем возможной трансформацией пространственного профиля стоксова пучка вследствие ВКР-усиления или самофокусировки.

В результате, используя измеренные и приведенные в табл. 2 значения  $E_p^{thr} L$ ,  $G_0$ ,  $\tau_p = 11$  пс, мы рассчитали коэффициенты ВКР-усиления  $g$  для всех кристаллов. На рис. 6 приведены полученные значения  $g$  для всех исследуемых кристаллов как



функция пикового сечения СКР, нормированного в соответствии с выражением (3) на показатель преломления. В целом большинство данных хорошо соответствует линейной зависимости коэффициента  $g$  стационарного ВКР-усиления от пикового сечения СКР, подтверждая корректность измерений и их соответствие выражению (3). Не совпадают с линейной зависимостью, показанной на рис. 6, данные для кристаллов  $\text{PbMoO}_4$  и  $\text{TeO}_2$ , обладающих большими значениями интегрального сечения СКР и имеющих минимальные значения времени дефазировки  $T_2$ . Возможные причины этого могут быть связаны, как мы отмечали выше, с неточностью в определении из спектров СКР значений  $T_2$ . В кристалле  $\text{TeO}_2$ , в отличие от остальных кристаллов, уже при незначительных накачках обнаружено двухфотонное поглощение, проявляющееся в видимом свечении возбуждаемого лазером канала. Этот эффект может исказить определяемые значения коэффициента  $g$  ВКР-усиления.

Для сравнения с полученными нами значениями приведем известные из литературы данные по оценке коэффициента ВКР-усиления при возбуждении стационарного ВКР в кристаллах наносекундным лазерным излучением с длиной волны 1060 нм. Так, для кристалла  $\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$  в работе [19] был получен коэффициент  $g = 11$  см/ГВт. Для кристалла KGW величина  $g$  меняется от 6 [20] до 4 [21] см/ГВт, что близко к нашим данным. В работе [22] для  $\text{SrWO}_4$  получено значение  $g = 5$  см/ГВт, что практически совпадает с данными, приведенными в табл. 2. В целом значения  $g$ , оцененные нами по описанной методике, неплохо совпадают с результатами, полученными независимыми методами.

### 3.3. Временные и спектральные свойства ВКР-импульсов

Мы измерили длительности и спектры импульсов ВКР для двух «полярных» кристаллов с максимальным,  $T_2 = 26.5$  пс, и минимальным,  $T_2 = 1.77$  пс, временами оптической дефазировки, соответственно, в кристаллах  $\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$  и  $\text{PbMoO}_4$ . Для кристаллов  $\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$  длительность стокового импульса укорачивалась относительно  $\tau_p$  в неплохом соответствии с теорией [2] с 11 пс до 7 пс при ширине спектра  $\Delta\nu_S = 3$  см<sup>-1</sup>. О некоторой аномальности свойств кристалла  $\text{PbMoO}_4$ , описанной выше, свидетельствует и измерение временных и спектральных параметров ВКР. Так, для этого кристалла длительность стоковых импульсов  $\tau_s = 10.5$  пс на основной частоте и на частоте второй

гармоники (при ширине спектра  $\Delta\nu_S = 3.76$  см<sup>-1</sup>) близка к длительности импульса накачки. В то же время, в соответствии с теорией [2], для  $\text{PbMoO}_4$  стоков импульс должен укоротиться более чем в два раза (для гауссовой огибающей). Для  $\text{PbMoO}_4$  произведение  $\tau_s \Delta\nu_S = 1.18$  отражает значительный уход от спектрально-ограниченного импульса, в то время как для  $\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$  это произведение равно 0.63, что существенно ближе к спектрально-ограниченному импульсу. Следует заметить, что вызванный фазовой самомодуляцией незначительный чирп частоты импульса накачки нашего лазера должен переноситься с частоты накачки на частоту стоковой волны ВКР [12, 13], приводя к фазовой модуляции и спектральному уширению стокова излучения. Причины имеющего место несоответствия теории и эксперимента для  $\text{PbMoO}_4$  могут быть связаны со сложным спектром колебательных резонансов среды.

Как было показано в работе [4], в волоконном световоде — среде с неоднородно-уширенными колебательными резонансами (плавленом кварце) — импульс ВКР при пикосекундной накачке так же, как и в рассмотренном выше случае кристалла  $\text{PbMoO}_4$ , слабо укорачивался и имел фемтосекундную временную структуру, обусловленную большой шириной спектра СКР. В случае  $\text{PbMoO}_4$  возможна аналогичная картина и стоков импульс может иметь определяемую его спектром субструктуру шириной около 2 пс (неразрешаемую в наших экспериментах), препятствующую его укорочению.

## 4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Мы провели сравнительные исследования ВКР при пикосекундной накачке большого набора оксидных кристаллов, причем для ряда кристаллов впервые. В результате измерения энергетических, спектральных, временных параметров ВКР и сопоставления их с измеренными нами спектроскопическими параметрами спонтанного комбинационного рассеяния мы подтвердили закономерности процесса нестационарного ВКР. Измерение пороговых энергий накачки ВКР в большом наборе кристаллов показало, что инкремент усиления нестационарного ВКР не зависит от времени дефазировки или спектральной ширины КР активных колебаний, а определяется интегральным сечением комбинационного рассеяния. Используя результаты теории нестационарного ВКР, развитой в работах [2], мы показали, что теория в целом корректно описывает

наши эксперименты по нестационарному ВКР в оксидных кристаллах и дает правильное значение связи инкрементов усиления нестационарного и стационарного ВКР. С помощью относительно простой экспериментальной методики пикосекундного возбуждения ВКР и сопоставления результатов измерения параметров ВКР с теоретическими зависимостями мы оценили коэффициенты стационарного ВКР-усиления в кристаллах и показали их связь с пиковыми сечениями СКР, определенными методами линейной спектроскопии.

Работа выполнена при частичной финансовой поддержке РФФИ (гранты №№ 04-02-17004а, 03-02-17309а) и МНТЦ (грант EOARD № 2022Р).

### ЛИТЕРАТУРА

1. *Сверхкороткие световые импульсы*, под ред. С. Шапиро, Мир, Москва (1980).
2. R. L. Carman, F. Shimizu, N. Bloembergen et al., *Phys. Rev. A* **2**, 60 (1970); С. А. Ахманов, К. Н. Дробович, А. П. Сухоруков и др., *ЖЭТФ* **59**, 485 (1970).
3. R. L. Carman and M. E. Mack, *Phys. Rev. A* **1**, 341 (1972).
4. Е. М. Дианов, Л. М. Иванов, А. Я. Карасик и др., *ЖЭТФ* **91**, 2031 (1986).
5. К. Андрионас, Ю. Вищакас, В. Кабелка и др., *Письма в ЖЭТФ* **42**, 333 (1985).
6. Т. Т. Басиев, *УФН* **169**, 1149 (1999).
7. А. А. Каминский, S. N. Bagaev, K. Ueda et al., *Laser Phys.* **11**, 1142 (2001).
8. P. Cerny, P. G. Zverev, H. Jelinkova et al., *Opt. Comm.* **177**, 397 (2000).
9. П. Г. Зверев, Т. Т. Басиев, А. А. Соболев и др., *КЭ* **30**, 55 (2000).
10. П. Г. Зверев, А. Я. Карасик, Т. Т. Басиев и др., *КЭ* **33**, 331 (2003).
11. В. Н. Луговой, *ЖЭТФ* **57**, 1307 (1976).
12. Е. М. Дианов, А. Я. Карасик, П. В. Мамышев и др., *ЖЭТФ* **89**, 781 (1985).
13. Е. М. Дианов, А. Я. Карасик, П. В. Мамышев и др., *Письма в ЖЭТФ* **41**, 242 (1985).
14. А. Б. Грудинин, Е. М. Дианов, Д. В. Коробкин и др., *Письма в ЖЭТФ* **45**, 211 (1987).
15. G. P. Agrawal, *Nonlinear Fiber Optics*, Academ. Press Inc., Boston (1994).
16. Т. Т. Basiev, A. A. Sobol, P. G. Zverev et al., *Appl. Opt.* **38**, 594 (1999).
17. Т. Т. Basiev, A. A. Sobol, Yu. K. Voronko et al., *Opt. Mater.* **15**, 205 (2000).
18. Т. Т. Basiev, N. A. Es'kov, A. Ya Karasik et al., *Opt. Lett.* **17**, 201 (1992).
19. Т. Т. Басиев, П. Г. Зверев, В. Н. Войцеховский и др., *КЭ* **14**, 2452 (1987).
20. И. В. Мочалов, *Оптич. ж.* **11**, 4 (1995).
21. Т. Т. Basiev, V. V. Osiko, A. M. Prokhorov et al., in *Solid-State Mid-Infrared Laser Sources*, ed. by I. T. Sorokina and K. L. Vodopyanov, *Topics Appl. Phys.* **89**, 351 (2003).
22. P. G. Zverev, T. T. Basiev, L. I. Ivleva et al., in *OSA Trends in Optics and Photonics* **68**, 70 (2002), *Advanced Solid-State Lasers*, ed. by M. E. Fermann and L. R. Marshall, OSA, Washington, DC (2002).