

# ВЫНУЖДЕННОЕ КОМБИНАЦИОННОЕ РАССЕЯНИЕ НА ДВУХ КОЛЕБАТЕЛЬНЫХ МОДАХ В ШЕЕЛИТОПОДОБНЫХ КРИСТАЛЛАХ В УСЛОВИЯХ СУЩЕСТВЕННОГО ПРОЯВЛЕНИЯ НЕЛИНЕЙНЫХ ЭФФЕКТОВ, ОБУСЛОВЛЕННЫХ КЕРРОВСКОЙ НЕЛИНЕЙНОСТЬЮ

Д. П. Терещенко<sup>а</sup>, К. А. Губина<sup>а,б</sup>, Е. А. Пеганов<sup>а</sup>, Ю. А. Кочуков<sup>а,б</sup>, А. Г. Папашвили<sup>а</sup>,  
В. Е. Шукшин<sup>а</sup>, И. С. Воронина<sup>а</sup>, Л. И. Ивлева<sup>а</sup>, А. А. Ушаков<sup>а</sup>, В. В. Булгакова<sup>а</sup>,  
П. А. Чижев<sup>а</sup>, Т. В. Долматов<sup>а</sup>, В. Х. Багдасаров<sup>а</sup>, С. Н. Сметанин<sup>а,б\*</sup>

<sup>а</sup> Институт общей физики им. А. М. Прохорова Российской академии наук  
119991, Москва, Россия

<sup>б</sup> Национальный исследовательский технологический университет «МИСИС»  
119049, Москва, Россия

Поступила в редакцию 10 февраля 2026 г.,  
после переработки 6 марта 2026 г.  
Принята к публикации 7 марта 2026 г.

Проведено сравнительное исследование вынужденного комбинационного рассеяния (ВКР) на деформационной и полносимметричной колебательных модах в шеелитоподобных кристаллах  $\text{CaMoO}_4$  и  $\text{BaWO}_4$  с различными отношениями интегральных сечений рассеяния на данных колебательных модах в условиях существенного проявления нелинейных эффектов, обусловленных керровской нелинейностью, под действием ультракоротких лазерных импульсов с мощностью выше критической мощности самофокусировки. Использование в экспериментах регулируемого chirпирования импульсов накачки позволило найти параметры, обеспечивающие максимальную эффективность многоволновой ВКР-генерации с одновременными низкочастотным и высокочастотным сдвигами на обеих колебательных модах в сравнении с результатами математического моделирования. Моделирование в согласии с экспериментами показало, что эффективность такой ВКР-генерации повышается в диапазоне длительностей chirпированных импульсов накачки от минимальной длительности, соответствующей теоретическому порогу подавления ВКР из-за фазовой само- и кросс-модуляции, до наибольшей длительности, соответствующей времени фазовой релаксации полносимметричной колебательной моды.

**Ключевые слова:** нестационарное вынужденное комбинационное рассеяние, колебательная мода, фазовая самомодуляция, фазовая кросс-модуляция, генерация суперконтинуума

DOI: 10.31857/S0044451026040022

## 1. ВВЕДЕНИЕ

В этом году исполняется 100 лет от начала экспериментальной нелинейной оптики (первое наблюдение нелинейно-оптического явления просветления среды Вавиловым и Левшиным [1]) и 100 лет со дня рождения Р. В. Хохлова, одного из осно-

воположников нелинейно-оптической теории [2]. В настоящее время принципиально новые многоволновые устройства фотоники могут быть основаны на взаимодействии конкурирующих нелинейных явлений в активных средах под действием высокоинтенсивных ультракоротких импульсов лазерного излучения. Изучение возможностей управления этим взаимодействием может обеспечить повышение эффективности нелинейно-оптического преобразования лазерного излучения для решения различных прикладных задач, таких как мониторинг

\* E-mail: ssmetanin@bk.ru

окружающей среды [3], лазерная локация [4], контроль атмосферных аэрозолей [5] и биомедицинская диагностика [6]. Вынужденное комбинационное рассеяние (ВКР) в кристаллах является простым способом получения многоволнового излучения, не требующим поддержания условия фазового синхронизма. Однако под действием фемтосекундных импульсов накачки режим ВКР в кристаллах становится существенно нестационарным, так как длительность импульсов излучения не превышает времени фазовой релаксации комбинационной нелинейности, которое для кристаллов имеет порядок 1–10 пс [7]. При этом порог ВКР-генерации возрастает настолько, что возникают нелинейные эффекты, обусловленные керровской нелинейностью, — самофокусировка, фазовая самомодуляция, фазовая кросс-модуляция, генерация суперконтинуума, филаментация, при которых ВКР в кристаллах подавляется [8]. Если использовать сильное чирпирование излучения накачки, приводящее к тому, что длительность лазерных импульсов становится намного больше времени фазовой релаксации ВКР-кристалла, то возможно снижение интенсивности накачки ниже порога возбуждения конкурирующих нелинейных явлений и получение эффективно ВКР-преобразования [9]. Однако обычно это влечет за собой сужение спектра генерируемого ВКР-излучения [10]. Это объясняется задержкой процесса ВКР-генерации в нестационарном режиме, приводящей к тому, что накачку осуществляет в основном лишь та часть спектра лазерного излучения, которая находится в хвосте чирпированного импульса накачки. Как следствие, использование оптического компрессора на выходе оптической системы приводит к более длинным (пикосекундным) импульсам выходного излучения [11]. Если же использовать регулируемое чирпирование излучения накачки с небольшим увеличением длительности импульса накачки, не превышающим время фазовой релаксации ВКР-кристалла, то появляется возможность управления конкуренцией между ВКР и нелинейными эффектами, обусловленными керровской нелинейностью [8]. Как показали проведенные ранее исследования существенно нестационарного ВКР в кристалле  $\text{SrMoO}_4$  [12], такое управление позволило найти параметры, обеспечивающие максимальную эффективность ВКР-генерации не только на полностью симметричной (высокочастотной), наиболее интенсивной колебательной моде, но и на деформационной (низкочастотной) колебательной моде, обладающей значительно меньшим пиковым сечением рассеяния. Дело в том, что в существенно нестационар-

ном режиме ВКР-усиление определяется не пиковым, а интегральным сечением рассеяния, которое для деформационной колебательной моды в  $\text{SrMoO}_4$  лишь немного меньше, чем для полностью симметричной колебательной моды. Использование твердых растворов  $\text{Sr}(\text{MoO}_4)_{1-x}(\text{WO}_4)_x$  [13] и  $\text{Sr}_{1-y}\text{Ba}_y\text{MoO}_4$  [14] ( $x$  и  $y$  — относительные содержания анионов и катионов) с искусственно увеличенным интегральным сечением рассеяния для деформационной колебательной моды по сравнению с таковым для полностью симметричной колебательной моды позволило получить высокоэффективную ВКР-генерацию одновременно на обеих колебательных модах.

В настоящей работе детально изучаются конкурирующие нелинейные процессы, происходящие под действием ультракоротких лазерных импульсов с мощностью выше критической мощности самофокусировки при регулируемом чирпировании в шеелитоподобных кристаллах  $\text{CaMoO}_4$  и  $\text{BaWO}_4$  с различными отношениями интегральных сечений рассеяния на деформационной и полностью симметричной колебательных модах.

## 2. ХАРАКТЕРИЗАЦИЯ ВКР-КРИСТАЛЛОВ

Когда шеелитоподобные кристаллы возбуждаются излучением накачки с поляризацией, параллельной оптической оси кристалла, в них возникают две интенсивные колебательные моды — высокочастотная мода полностью симметричных (stretching) внутренних колебаний анионов ( $\nu_s \simeq 900 \text{ см}^{-1}$ ) и низкочастотная мода деформационных (bending) внутренних колебаний анионов ( $\nu_b \simeq 300 \text{ см}^{-1}$ ) [15]. Для сравнительного исследования выбираем хорошо известные шеелитоподобные ВКР-кристаллы  $\text{CaMoO}_4$  и  $\text{BaWO}_4$ , обладающие соответственно малым и большим значениями отношения интегральных сечений рассеяния на деформационной и полностью симметричной колебательных модах. ВКР-генерация в кристаллах  $\text{CaMoO}_4$  и  $\text{BaWO}_4$  чаще всего осуществлялась под действием накачки с длиной волны около 1 мкм наносекундными и пикосекундными лазерными импульсами [16, 17], длительность которых была больше времени фазовой релаксации колебательных мод, а пиковая мощность не превышала критическую мощность самофокусировки. В кристалле  $\text{CaMoO}_4$  (даже в нестационарном режиме ВКР) генерация ВКР-излучения наблюдалась только на полностью симметричной колебательной моде [16], поскольку интегральное сечение рассеяния для нее существенно больше, чем для деформационной колебательной моды [15]. В кристалле  $\text{BaWO}_4$ , обла-

дающем практически равными интегральными сечениями рассеяния на обеих колебательных модах, при использовании селективного резонатора было получено эффективное ВКР не только на полносимметричной, но и на деформационной колебательной моде как при наносекундной [18, 19], так и пикосекундной [20] накачке. Также кристалл  $\text{BaWO}_4$  ранее испытывался под действием остро сфокусированных субпикосекундных импульсов лазерной накачки с пиковой мощностью, превышающей критическую мощность самофокусировки. При этом наблюдалась генерация суперконтинуума с полным подавлением ВКР на длине волны накачки 1.03 мкм [21], но ВКР подавлялось не полностью на длине волны накачки 0.515 мкм [22] благодаря значительно большему коэффициенту ВКР-усиления (в 3.4 раза [23]).

Характеристики комбинационного рассеяния света для шеллита и шеллитоподобных кристаллов  $\text{CaMoO}_4$  и  $\text{BaWO}_4$  [15] представлены в таблице.

Используя данные таблицы, можно сделать некоторые оценки. Время фазовой релаксации для деформационной и полносимметричной колебательных мод определяется как [7]  $\tau_{b,s} = (\pi c \Delta \nu_{b,s})^{-1}$ , где  $c$  — скорость света в вакууме. Имеем  $\tau_b = 1.3$  пс и  $\tau_s = 1.9$  пс для  $\text{CaMoO}_4$ ;  $\tau_b = 2.8$  пс и  $\tau_s = 6.6$  пс для  $\text{BaWO}_4$ . Коэффициенты стационарного ВКР-усиления данных кристаллов на полносимметричной колебательной моде при длине волны накачки около 1 мкм составляют  $g_s = 4.3$  см/ГВт для  $\text{CaMoO}_4$  [7] и  $g_s = 8.0$  см/ГВт для  $\text{BaWO}_4$  [23]. Для деформационной колебательной моды можно сделать оценки:  $g_b = g_s \sigma_b / \sigma_s = 2.15$  см/ГВт для  $\text{CaMoO}_4$  и  $g_b = g_s \sigma_b / \sigma_s = 3.57$  см/ГВт для  $\text{BaWO}_4$ . Интегральное сечение рассеяния пропорционально величине  $\sigma_{b,s} \Delta \nu_{b,s}$  [7]. Получаем, что отношение интегральных сечений рассеяния на деформационной и полносимметричной колебательных модах для  $\text{CaMoO}_4$ , как и для  $\text{CaWO}_4$ , составляет  $\sigma_b \Delta \nu_b / \sigma_s \Delta \nu_s = 0.73$ , но для  $\text{BaWO}_4$  оно имеет аномально высокое значение  $\sigma_b \Delta \nu_b / \sigma_s \Delta \nu_s = 1.0$ . Длина волны первой стоксовой компоненты ВКР-излучения с низкочастотным и высокочастотным сдвигами определяется как  $\lambda_{b,s} = (\lambda_p^{-1} - \nu_{b,s})^{-1}$ , где  $\lambda_p$  — длина волны накачки,  $\nu_{b,s}$  — частота деформационной и полносимметричной колебательной моды. При  $\lambda_p = 1030$  нм имеем для  $\text{CaMoO}_4$   $\lambda_b = 1065$  нм и  $\lambda_s = 1133$  нм, а для  $\text{BaWO}_4$   $\lambda_b = 1066$  нм и  $\lambda_s = 1138$  нм.

При ультракоротких импульсах накачки нужно учесть дисперсионное разбегание импульсов накачки ( $\lambda_p$ ) и стоксовых импульсов ( $\lambda_b$  и  $\lambda_s$ ). Длина дисперсионного разбегания составляет [24]

$L_{pb,ps} = \tau_p / |GVM_{pb,ps}|$ , где  $\tau_p$  — длительность импульса накачки,  $GVM_{pb,ps} = u_p^{-1} - u_{b,s}^{-1}$  — расстройка групповых скоростей импульса накачки ( $u_p$ ) и стоксова импульса с низкочастотным или высокочастотным сдвигом ( $u_{b,s}$ ). Спектральные зависимости показателя преломления в области спектра, включающей  $\lambda_p$ ,  $\lambda_b$  и  $\lambda_s$ , известны для кристаллов  $\text{CaWO}_4$  и  $\text{CaMoO}_4$  [25]. Согласно расчету по этим данным, расстройки групповых скоростей для данных кристаллов различаются несущественно:  $GVM_{pb} = 8$  фс/мм и  $GVM_{ps} = 21$  фс/мм для  $\text{CaWO}_4$ ;  $GVM_{pb} = 10$  фс/мм и  $GVM_{ps} = 25$  фс/мм для  $\text{CaMoO}_4$ . Для кристалла  $\text{BaWO}_4$  дисперсия показателя преломления в области спектра, включающей  $\lambda_p$ ,  $\lambda_b$  и  $\lambda_s$ , неизвестна. Но в видимой области спектра она имеет одинаковый характер для всех щелочноземельных вольфраматов и молибдатов (измерено в [26]). По косвенным данным [27, 28] длина волны нулевой дисперсии  $\text{BaWO}_4$  находится в той же спектральной области (1.9–2.1 мкм), что и для  $\text{CaWO}_4$  и  $\text{CaMoO}_4$ . Поэтому для оценок мы можем приближенно принять равными расстройки групповых скоростей для выбранных кристаллов  $\text{CaMoO}_4$  и  $\text{BaWO}_4$  ( $GVM_{pb} \approx 10$  фс/мм и  $GVM_{ps} \approx 25$  фс/мм). Так, при  $\tau_p = 0.5$  пс имеем  $L_{pb} = 50$  мм и  $L_{ps} = 20$  мм, а при  $\tau_p = 2$  пс получаем  $L_{pb} = 200$  мм и  $L_{ps} = 80$  мм. Следовательно, ВКР с высокочастотным сдвигом находится в невыгодных условиях по дисперсионному разбеганию, если  $L_{ps}$  не превышает длины ВКР-кристалла, но удлинение импульса накачки посредством chirpирования позволяет устранить эту проблему.

Нелинейные эффекты, обусловленные керровской нелинейностью, определяются величиной нелинейного показателя преломления, которая составляет  $n_2 = 7 \cdot 10^{-16}$  см<sup>2</sup>/Вт на длине волны около 1 мкм для обоих кристаллов [29, 30], а также критической мощностью самофокусировки, которая для гауссова пучка вычисляется по формуле [31]

$$P_{cr} = \frac{3.77 \lambda_p^2}{8 \pi n n_2}, \quad (1)$$

где  $n$  — показатель преломления,  $n_2$  — нелинейный показатель преломления, и при  $\lambda_p = 1030$  нм составляет величину  $P_{cr} = 1.16$  МВт и  $P_{cr} = 1.25$  МВт для кристаллов  $\text{CaMoO}_4$  ( $n = 1.96$ ) и  $\text{BaWO}_4$  ( $n = 1.82$ ) соответственно.

Превышение  $P_{cr}$  приводит к нелинейным явлениям генерации суперконтинуума (продукт фазовой самомодуляции излучения) и филаментации (продукт самофокусировки и плазменной

**Таблица.** Характеристики комбинационного рассеяния света для кристаллов  $\text{CaWO}_4$ ,  $\text{CaMoO}_4$  и  $\text{BaWO}_4$  при возбуждении излучением, поляризованным параллельно оптической оси кристалла [15]:  $\nu_b$  и  $\nu_s$  — центральные частоты спектральных линий, соответствующих деформационной и полносимметричной колебательным модам,  $\Delta\nu_b$  и  $\Delta\nu_s$  — ширины соответствующих спектральных линий,  $\sigma_b$  и  $\sigma_s$  — пиковые сечения рассеяния для соответствующих спектральных линий

Кристалл	$\nu_b, \text{см}^{-1}$	$\Delta\nu_b, \text{см}^{-1}$	$\sigma_b, \text{отн. ед.}$	$\nu_s, \text{см}^{-1}$	$\Delta\nu_s, \text{см}^{-1}$	$\sigma_s, \text{отн. ед.}$	$\sigma_b/\sigma_s$
$\text{CaWO}_4$	334	9	10	910	6.9	18	0.56
$\text{CaMoO}_4$	322	8	17	879	5.5	34	0.50
$\text{BaWO}_4$	332	3.8	27	925	1.6	64	0.42

дефокусировки). Возникновение филамента зависит не только от превышения мощности излучения накачки  $P_p$  над  $P_{cr}$ , но и от условий фокусировки излучения в нелинейную среду, в частности, от радиуса пучка на входе в нелинейную среду  $r_{in}$ , а также от числовой апертуры фокусирующей линзы  $NA = r/f$ , где  $r$  — радиус коллимированного пучка, падающего на линзу,  $f$  — фокусное расстояние линзы. Чтобы порог филаментации был ниже порога оптического пробоя конденсированных сред, необходимо увеличивать  $f$  и уменьшать  $NA$ :  $f > 42$  мм и  $NA < 0.055$  для плавленого кварца [32];  $f > 60$  мм и  $NA < 0.042$  для воды [33]. Необратимая модификация материала твердотельных сред (YAG и  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) при многоимпульсном возбуждении филамента наблюдалась даже при снижении  $NA$  до 0.007 [34]. Модификация материала (YAG) в процессе филаментации отсутствовала только в режиме слабой фокусировки (loose focusing) с  $NA \approx 0.004$ , но для стабилизации филамента требовалось использование достаточно длинной нелинейной среды [35, 36]. В работах [37, 38] показано, что в режиме слабой фокусировки с  $NA < 0.005$  линейная фокусировка намного меньше влияет на возникновение филамента, чем нелинейная (керровская) фокусировка. В таких условиях ( $NA = 0.0022$ ), в отличие от условий сильной фокусировки ( $NA = 0.0094$ ), экспериментальные результаты измерения длины самофокусировки  $z_{foc}$  [38] совпали с теоретической оценкой, основанной на применении формулы Марбургера: длина самофокусировки коллимированного пучка определяется как [31]

$$z_{coll} = \frac{0.367 k_p r_{in}^2}{\sqrt{(\sqrt{P_p/P_{cr}} - 0.852)^2 - 0.0219}}, \quad (2)$$

где  $k_p = 2\pi n/\lambda_p$  — волновое число излучения накачки в нелинейной среде,  $r_{in}$  — радиус пучка на входе в среду. С учетом фокусировки линзой в приближении геометрической оптики длина самофокусировки оценивается величиной [39]

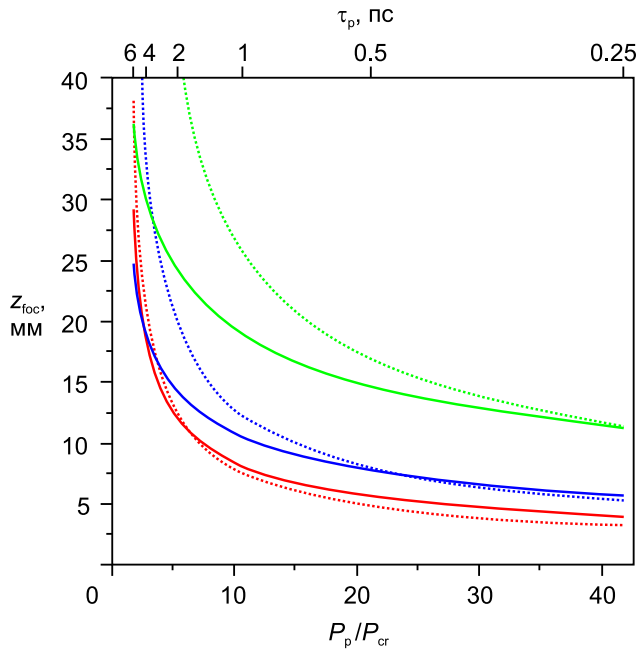
$$z_{foc} = (z_{coll}^{-1} + f^{-1})^{-1}, \quad (3)$$

отсчитываемой от входа в среду.

В настоящей работе мы взяли кристаллы  $\text{CaMoO}_4$  и  $\text{BaWO}_4$  одинаково большой длины  $L = 80$  мм, вырезанные перпендикулярно оптической оси кристаллов, для проведения сравнительных экспериментов в режиме слабой фокусировки линзой с фокусным расстоянием  $f = 450$  мм при радиусе одномодового пучка на линзе  $r = 2.2$  мм, что соответствует  $NA = 0.0049$ . Для предотвращения поверхностного пробоя кристалла фокусировку целесообразно осуществлять в глубь материала. При этом радиус пучка  $r_{in}$  на входе в среду находится из теории гауссова пучка [40]:

$$r_{in} = r_f \sqrt{1 + z_{in}^2/z_R^2}, \quad (4)$$

где  $z_{in}$  — расстояние от входа в среду до перетяжки гауссова пучка в среде;  $r_f = \lambda_p f/\pi r = \lambda_p/\pi NA$  — радиус в перетяжке гауссова пучка, сфокусированного линзой;  $z_R = \pi r_f^2 n/\lambda_p$  — рэлеевская длина перетяжки гауссова пучка в среде. В работе [41] представлена численная модель самофокусировки, которая более строго описывает фокусировку гауссова пучка как вещественной линзой, так и керровской линзой. Мы провели расчеты длины самофокусировки для наших кристаллов как по теоретическим формулам (2)–(4), так и при использовании указанной модели. Результаты расчетов для кристалла  $\text{BaWO}_4$  показаны на рис. 1. Для кристалла  $\text{CaMoO}_4$  такие же расчеты не имели заметных отличий ввиду малого различия показателей преломления и характеристик керровской нелинейности. На рис. 1 можно видеть, что при фокусировке на входной торце кристалла ( $z_{in} = 0$ ) теоретические и модельные расчеты хорошо согласуются при любых отношениях  $P_p/P_{cr}$ . Однако пятно излучения на входном торце кристалла имеет наименьший радиус (67 мкм), что может привести к поверхностному пробоя кристалла. Этого можно избежать при заглублении фокусировки



**Рис. 1.** Расчетные зависимости длины самофокусировки  $z_{\text{foc}}$  в  $\text{BaWO}_4$  от  $P_p/P_{\text{cr}}$  при  $z_{\text{in}} = 0$  (красные линии),  $z_{\text{in}} = 20$  мм (синие линии) и  $z_{\text{in}} = 40$  мм (зеленые линии), рассчитанные (пунктирные линии) по формулам (2)–(4) и полученные в результате моделирования (сплошные линии) для  $\lambda_p = 1030$  нм,  $f = 450$  мм,  $r = 2.2$  мм,  $n_2 = 7 \cdot 10^{-16}$  см<sup>2</sup>/Вт и  $n = 1.82$ . По верхней шкале отложены длительности импульса  $\tau_p$  при энергии импульса  $E_p = 13$  мкДж

в кристалл, но при малых превышениях мощности излучения над критическим значением ( $P_p/P_{\text{cr}} < 20$  при  $z_{\text{in}} = 20$  мм и  $P_p/P_{\text{cr}} < 40$  при  $z_{\text{in}} = 40$  мм) теоретические оценки не согласуются с результатами моделирования (пунктирные линии не совпадают со сплошными). Здесь нужно пользоваться результатами моделирования (сплошные линии): увеличение  $P_p/P_{\text{cr}}$  от 1.7 до 42 приводит к уменьшению  $z_{\text{foc}}$  от 25 до 6 мм и от 36 до 11 мм при  $z_{\text{in}} = 20$  мм и  $z_{\text{in}} = 40$  мм соответственно.

Также на рис. 1 показана верхняя шкала, где отмечены длительности импульса накачки  $\tau_p$  при фиксированной энергии импульса  $E_p = 13$  мкДж, использованной нами в экспериментах. Изменение  $\tau_p$  в диапазоне 0.25–6 пс в экспериментах осуществлялось посредством chirpирования импульса излучения лазера накачки. Нужно отметить, что, поскольку интенсивность излучения в филаменте значительно повышена, в нем и происходит эффективное ВКР-взаимодействие. В этом случае эффективная длина ВКР-взаимодействия  $L_{\text{eff}}$  представляет собой длину филамента, которая ограничена свер-

ху,  $L_{\text{eff}} \leq L - z_{\text{foc}}$ . Ограничением  $L_{\text{eff}}$  снизу является завершение филамента в среде, которое не имеет простой оценки. Для наиболее коротких импульсов ( $\tau_p < 1$  пс), для которых  $L_{\text{pb,ps}} < L - z_{\text{foc}}$ , эффективная длина ВКР-взаимодействия должна быть ограничена также дисперсионным разбеганием импульсов накачки и стоксовых ВКР-компонент. Однако из экспериментов [13, 14] известно, что в таких условиях импульсы излучения удлинялись при филаментации и генерации суперконтинуума, приобретая длительность не менее 1 пс, поэтому дисперсионное разбегание не подавляло ВКР-генерацию.

Известно, что ВКР подавляется из-за дефазирования колебательного резонанса под действием нелинейных эффектов фазовой самомодуляции излучения накачки и фазовой кросс-модуляции ВКР-излучения, когда длительность импульса накачки не превышает минимальную величину [42]

$$\tau_{\text{min}} \approx \frac{160n_2\tau_s}{g_s} \left( \frac{2}{\lambda_s} - \frac{1}{\lambda_p} \right), \quad (5)$$

которая для кристаллов  $\text{CaMoO}_4$  и  $\text{BaWO}_4$  при  $\lambda_p = 1030$  нм составляет 0.39 и 0.73 пс соответственно. Нужно заметить, что величина  $\tau_{\text{min}}$  обратно пропорциональна интегральному сечению рассеяния ( $\sigma_s \Delta\nu_s \sim g_s/\tau_s$  [7]). Регулирование chirpa импульса накачки таким образом, чтобы его длительность немного превышала  $\tau_{\text{min}}$ , позволило преодолеть подавление ВКР [12] и избежать сужения спектра компонент ВКР-излучения, наблюдаемого при чрезмерном chirpe [11].

### 3. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ ИССЛЕДОВАНИЯ

В качестве источника накачки использован одномодовый иттербиевый волоконный лазер ANTAUS-10W-20u/1M (AVESTA Ltd., Россия) с длиной волны 1030 нм, шириной спектра 8 нм и энергией импульса 13 мкДж (на входе в ВКР-кристалл за вычетом потерь, в том числе на отражение от входного торца ВКР-кристалла) при частоте повторения импульсов 10 Гц и длительности спектрально-ограниченного импульса 0.25 пс с возможностью регулируемого положительного и отрицательного chirpирования, увеличивающего длительность импульса  $\tau_p$  до 6 пс. Длительность импульсов контролировалась с помощью сканирующего автокоррелятора IRA-VISIR (AVESTA Ltd., Россия). Пучок излучения накачки радиусом 2.2 мм фокусировался линзой с фокусным расстоянием  $f = 450$  мм в ВКР-кристалл  $\text{CaMoO}_4$

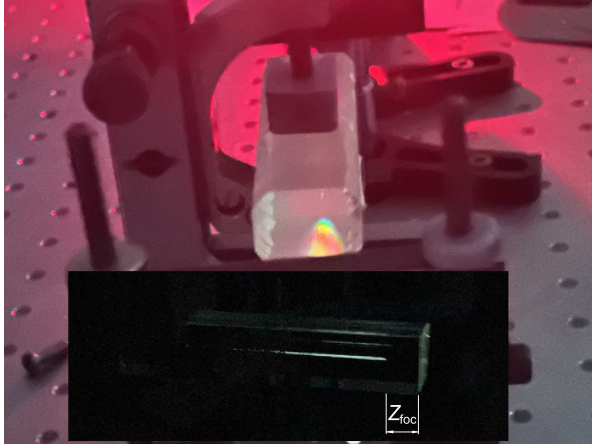


Рис. 2. Фото плазменного канала филамента в кристалле BaWO<sub>4</sub> при  $\tau_p = 1$  пс (положительный чирп)

( $5 \times 6 \times 80$  мм<sup>3</sup>) или BaWO<sub>4</sub> ( $16 \times 20 \times 80$  мм<sup>3</sup>) с заглублением фокуса на  $z_{in} = 20$  мм при поляризации излучения накачки, параллельной оптической оси кристалла, для возбуждения не только полносимметричной, но и деформационной колебательной моды [15]. На выходе излучение коллимировалось линзой с фокусным расстоянием 200 мм и направлялось в систему измерения. Спектр выходного излучения измерялся широкодиапазонным спектрометром АТР8000Т3 (диапазон 950–2600 нм, разрешающая способность 4 нм). Энергия импульса излучения измерялась как для всего выходного излучения, так и отдельно для спектральной компоненты пропущенной накачки и каждой ВКР-компоненты выходного излучения при разложении в спектр дифракционной решеткой ( $600$  мм<sup>-1</sup>). При этом часть спектра излучения шириной около 14 нм в окрестности каждой указанной компоненты выходного излучения направлялась в измерительную головку (пирoeлектрический датчик PE10-C) измерителя энергии Ophir.

На рис. 2 показаны фото плазменного канала филамента в кристалле BaWO<sub>4</sub> при  $\tau_p = 1$  пс (положительный чирп). На основном фото демонстрируется коническое антистоксово излучение [43], сопровождающее филамент и освещающее выходной торец кристалла; фото на вставке демонстрирует вид сбоку на филамент (входной торец — справа), где длина самофокусировки составляет  $z_{foc} \approx 10$  мм, что согласуется с расчетом (см. рис. 1).

На рис. 3 показаны измеренные спектры выходного излучения для кристаллов CaMoO<sub>4</sub> и BaWO<sub>4</sub> при различных чирпах импульсов накачки (красные линии — положительный чирп, синие линии — отрицательный чирп). Выходное излучение подавалось

на входное оптоволоконно спектрометра без диафрагмирования и фокусировки.

При  $\tau_p = 0.25$  пс (без чирпа) на рис. 3 видно, что в стоксовой области спектра относительно линии накачки ( $\lambda_p = 1030$  нм) имеется длинный шлейф генерируемого суперконтинуума. При этом для кристалла CaMoO<sub>4</sub> (рис. 3 а) на пьедестале суперконтинуума наблюдается только одна стоксова компонента ВКР-излучения с высокочастотным сдвигом на длине волны  $\lambda_s = (\lambda_p^{-1} - \nu_s)^{-1} = 1133$  нм, но для кристалла BaWO<sub>4</sub> (рис. 3 б) никаких ВКР-компонент не наблюдается. Это можно объяснить тем, что для BaWO<sub>4</sub> величина  $\tau_{min} = 0.73$  пс, рассчитанная по формуле (5), многократно превышает длительность импульса накачки ( $\tau_p = 0.25$  пс), а для CaMoO<sub>4</sub> она ( $\tau_{min} = 0.39$  пс) лишь незначительно выше.

При  $\tau_p = 1$  пс для CaMoO<sub>4</sub> (рис. 3 а) видно, что теперь на пьедестале суперконтинуума ВКР-генерация на длине волны  $\lambda_s$  стала более интенсивной и преодолен порог ВКР-генерации второй стоксовой компоненты с удвоенным высокочастотным сдвигом на длине волны  $\lambda_{ss} = (\lambda_p^{-1} - \nu_{ss})^{-1} = 1258$  нм, где  $\nu_{ss} = 2\nu_s$ , а также проявилась припороговая ВКР-генерация первой стоксовой компоненты с низкочастотным сдвигом на длине волны  $\lambda_b = (\lambda_p^{-1} - \nu_b)^{-1} = 1065$  нм. При этом для BaWO<sub>4</sub> (рис. 3 б) на таком же пьедестале суперконтинуума сразу наблюдается многоволновая ВКР-генерация как с высокочастотным, так и низкочастотным сдвигами: первая и вторая стоксовы компоненты с низкочастотным сдвигом на длинах волн  $\lambda_b = 1066$  нм и  $\lambda_{bb} = (\lambda_p^{-1} - \nu_{bb})^{-1} = 1106$  нм, где  $\nu_{bb} = 2\nu_b$ ; первая стоксова компонента с высокочастотным сдвигом на  $\lambda_s = 1138$  нм; вторая стоксова компонента с комбинированным сдвигом частоты на  $\lambda_{sb} = (\lambda_p^{-1} - \nu_{sb})^{-1} = 1183$  нм, где  $\nu_{sb} = \nu_s + \nu_b$ . Эффективное ВКР-преобразование в стоксовы компоненты с низкочастотным сдвигом в BaWO<sub>4</sub> сопряжено с отсутствием второй стоксовой компоненты с высокочастотным сдвигом на  $\lambda_{ss}$  в отличие от картины ВКР в CaMoO<sub>4</sub>. Это демонстрирует конкуренцию между процессами ВКР на полносимметричной (высокочастотной) и деформационной (низкочастотной) колебательных модах, имеющих одинаковые интегральные сечения рассеяния в BaWO<sub>4</sub> в отличие от CaMoO<sub>4</sub>. Нужно отметить, что ВКР-преобразование с низкочастотным сдвигом в CaMoO<sub>4</sub> подавлено не полностью несмотря на малое интегральное сечение рассеяния на деформационной колебательной моде, что указывает на возможное влияние нелинейных эф-

фектов, обусловленных керровской нелинейностью. Например, в работе [22] показано, что генерация суперконтинуума может давать затравку для ВКР-генерации. Эта затравка больше для ВКР с низкочастотным, чем для ВКР с высокочастотным сдвигом.

При  $\tau_p = 3$  пс (рис. 3а и 3б) видно, что вышеуказанные компоненты ВКР-излучения для каждого из кристаллов генерировались более интенсивно, а пьедестал суперконтинуума заметно снижен. В дополнение к этому для  $\text{CaMoO}_4$  (рис. 3а) преодолен порог ВКР-генерации на  $\lambda_{sb} = 1175$  нм, а для  $\text{BaWO}_4$  (рис. 3б) — на  $\lambda_{ss} = 1272$  нм и  $\lambda_{sbb} = (\lambda_p^{-1} - \nu_{sbb})^{-1} = 1232$  нм, где  $\nu_{sbb} = \nu_s + \nu_b + \nu_b$  (третья стоксова компонента). Нужно отметить, что при данной длительности импульса накачки ВКР-генерация с участием деформационной (низкочастотной) колебательной моды наиболее эффективна, что согласуется с результатами, полученными для других шеелитоподобных кристаллов [12–14]. Этот оптимум объясняется тем, что при меньших длительностях импульса происходит подавление ВКР из-за конкуренции с нелинейными эффектами, обусловленными керровской нелинейностью, а при больших — из-за конкуренции с ВКР на полносимметричной колебательной моде.

При  $\tau_p = 5$  пс (рис. 3а и 3б) видно, что в обоих кристаллах ВКР-генерация на  $\lambda_b$ ,  $\lambda_{bb}$ ,  $\lambda_{sb}$  и  $\lambda_{sbb}$  с участием деформационной колебательной моды проигрывала конкуренцию ВКР-генерации на  $\lambda_s$  и  $\lambda_{ss}$  с участием только полносимметричной колебательной моды. При этом не только первая ( $\lambda_s$ ), но и вторая ( $\lambda_{ss}$ ) стоксовы ВКР-компоненты с высокочастотным сдвигом стали генерироваться эффективно как в  $\text{CaMoO}_4$ , так и в  $\text{BaWO}_4$  при подавлении других ВКР-компонент. Дело в том, что при увеличении длительности импульса накачки по отношению к временам фазовой релаксации колебательных мод ( $\tau_{b,s}$ ) режим ВКР перестает быть существенно нестационарным. Тогда все большее влияние приобретает пиковое сечение рассеяния, которое существенно выше для полносимметричной, чем для деформационной колебательной моды (см.  $\sigma_b/\sigma_s$  в таблице).

Еще нужно отметить влияние знака чирпа импульса накачки. Отрицательный чирп обеспечивал более интенсивную ВКР-генерацию при  $\tau_p = 1-3$  пс, чем положительный. Это обусловлено уменьшением результирующего чирпа излучения накачки в условиях фазовой самомодуляции (положительной, так как  $n_2 > 0$ ), что ослабляет подавление ВКР под действием нелинейных эф-

фектов, обусловленных керровской нелинейностью. Еще одной особенностью, проявляющейся для ВКР-компонент с высокочастотным сдвигом, является возрастающая отстройка ВКР-сдвига частоты вниз (вверх) относительно теоретических значений  $\nu_s$ ,  $\nu_{sb}$  или  $\nu_{ss}$  при увеличении длительности импульса накачки с положительным (отрицательным) чирпом. Это больше проявлялось при  $\tau_p > 1$  пс, когда влияние нелинейных эффектов, обусловленных керровской нелинейностью, ослаблялось, поэтому с ними не связано. Здесь объяснение заключается в том, что в нестационарном режиме ВКР стоксов импульс генерируется с задержкой [44], преобразуясь из коротковолновых (длинноволновых) компонент импульса накачки, находящихся в хвосте импульса накачки при его положительном (отрицательном) чирпе. Регулируемая перестройка ВКР-сдвига частоты может найти применение. Например, для кристалла  $\text{BaWO}_4$  при  $\tau_p = 5$  пс (отрицательный чирп) вместо теоретического значения  $\lambda_s = 1138$  нм получена отстроенная стоксова длина волны 1141 нм. Тогда при генерации разностной частоты излучения накачки (1030 нм) с этой стоксовой волной (1141 нм) можно получить ультракороткие импульсы излучения, точно позиционированные на длине волны  $\text{CO}_2$ -лазера (10.6 мкм).

Сравнивая ширины линий ВКР-компонент излучения для данных кристаллов, можно заметить, что для  $\text{CaMoO}_4$  (рис. 3а) они заметно шире, чем для  $\text{BaWO}_4$  (рис. 3б). Это коррелирует с более широкими линиями колебательных мод в  $\text{CaMoO}_4$  (см. таблицу). Однако нужно заметить, что разрешающая способность использованного широкодиапазонного спектрометра (4 нм) недостаточна для определения ширины ВКР-линий. Поэтому для измерения ширины линий первых стоксовых компонент ВКР-излучения с низкочастотным и высокочастотным сдвигами ( $\lambda_b$  и  $\lambda_s$ ), а также для определения доли энергии в пьедестале суперконтинуума в окрестности этих ВКР-компонент в спектральном диапазоне измерения (14 нм) мы дополнительно использовали спектрометр OceanOptics USB4000 с узким спектральным диапазоном (до 1150 нм), но с высокой разрешающей способностью 0.2 нм. Так, ширина ВКР-линии с высокочастотным сдвигом ( $\lambda_s$ ) при  $\tau_p = 5$  пс (когда пьедестал суперконтинуума пренебрежимо мал) в кристалле  $\text{CaMoO}_4$  составила 14 нм (положительный чирп) и 11 нм (отрицательный чирп), а в кристалле  $\text{BaWO}_4$  — 10 нм и 6 нм соответственно, т. е. отрицательный чирп давал некоторое сужение ВКР-линии с высокочастотным сдвигом. Для ВКР-линии с низкочастотным

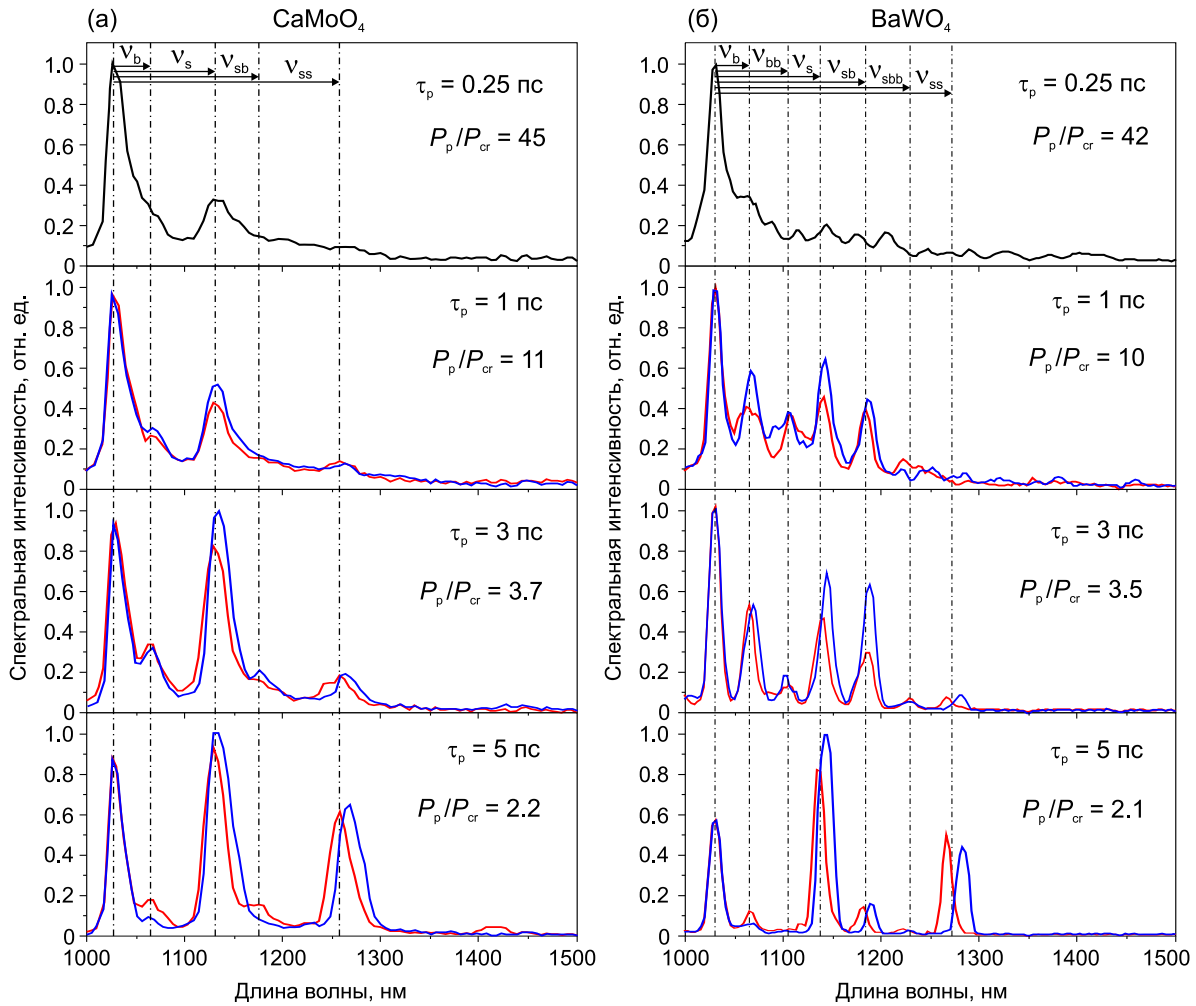


Рис. 3. Измеренные спектры выходного излучения для кристаллов  $\text{CaMoO}_4$  и  $\text{BaWO}_4$  при длительностях импульса накачки  $\tau_p = 0.25$  (без чирпа), 1, 3, 5 пс с положительным (красные линии) и отрицательным (синие линии) чирпами

сдвигом ( $\lambda_b$ ) такого сужения не наблюдалось; ширина линии была близка к ширине линии излучения накачки (точное измерение ширины линии здесь осложнено наличием высокого пьедестала суперконтинуума даже при большом чирпе).

На рис. 4 представлены измеренные зависимости энергии импульса ВКР-компонент на длинах волн  $\lambda_b$ ,  $\lambda_s$  и  $\lambda_{ss}$  от длительности чирпированного импульса накачки для обоих кристаллов. Энергии импульсов представлены за вычетом энергии, приходящейся на пьедестал суперконтинуума в спектральном диапазоне измерения (14 нм).

На рис. 4 (верхние графики) видно, что для обоих кристаллов зависимости энергии импульса ВКР-излучения с низкочастотным сдвигом ( $\lambda_b$ ) от длительности импульса накачки имеют максимум в диапазоне длительностей импульса накачки 1–5 пс. Такой же характер зависимостей наблюдался ранее и

для других шеелитоподобных кристаллов [12–14]. Объяснение этому уже было представлено выше. Здесь мы можем еще заметить, что при отрицательном чирпе максимум энергии импульса наблюдается при меньшей длительности импульса накачки, чем при положительном чирпе. Это тоже является следствием уменьшения результирующего чирпа излучения накачки в условиях фазовой самомодуляции для импульса накачки с отрицательным чирпом. Также можно заметить, что максимумы этих зависимостей для  $\text{CaMoO}_4$  (верхний график на рис. 4 а) находятся при меньших длительностях импульса накачки — 2 и 3 пс при отрицательном и положительном чирпах, чем для  $\text{BaWO}_4$  (верхний график на рис. 4 б) — 3 и 4 пс при отрицательном и положительном чирпах. Это коррелирует с тем, что для  $\text{CaMoO}_4$  величины  $\tau_{\min}$  и  $\tau_s$  меньше, чем для  $\text{BaWO}_4$  (0.39 и 1.9 пс против 0.73 и 6.6 пс). При  $\tau_p < \tau_{\min}$

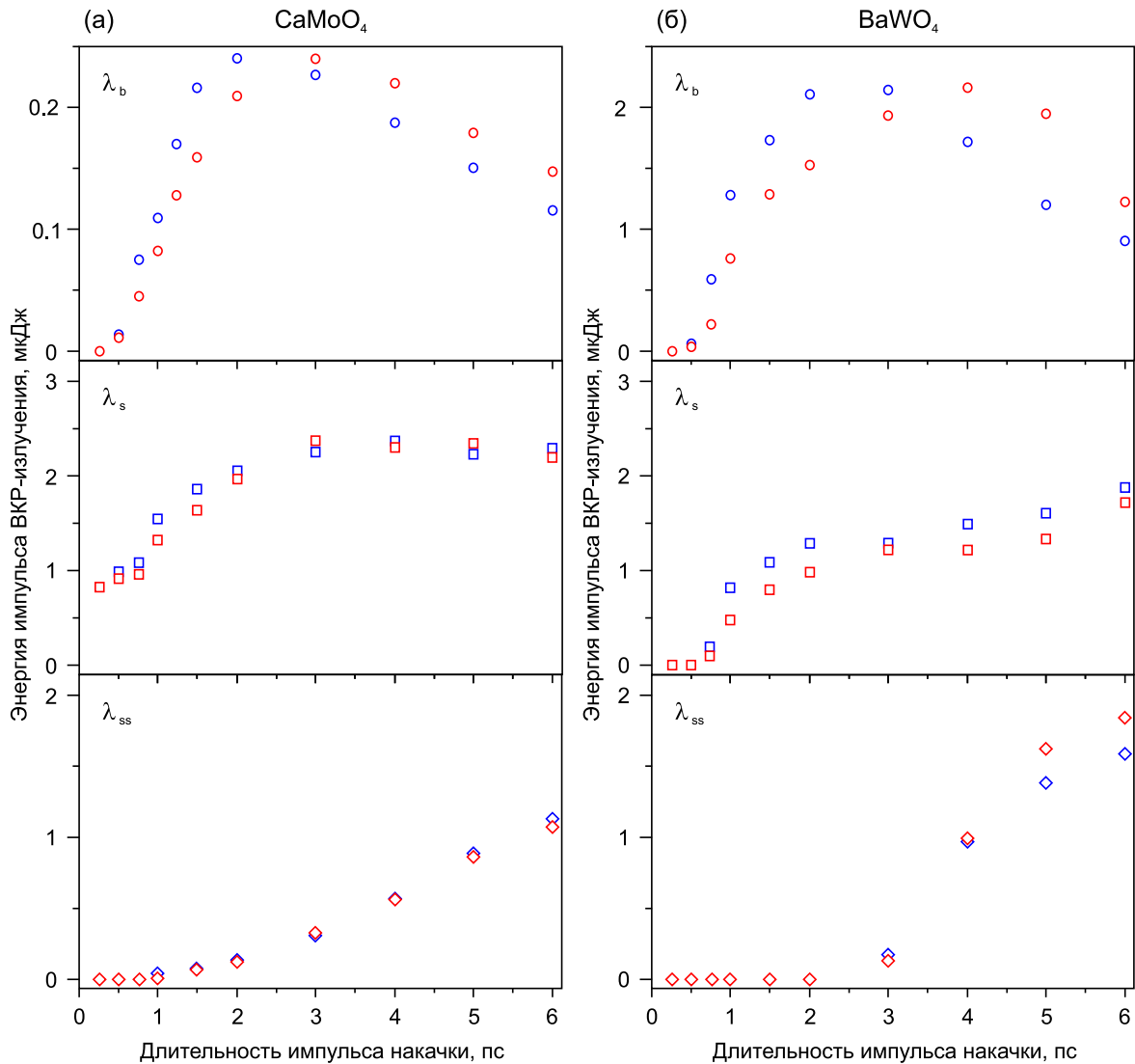


Рис. 4. Измеренные зависимости энергии импульса ВКР-компонент на длинах волн  $\lambda_b$ ,  $\lambda_s$  и  $\lambda_{ss}$  от длительности chirпованного импульса накачки. Погрешность измерения — до 10 %

подавляется ВКР на обоих модах, а при увеличении  $\tau_p > \tau_s$  конкуренцию выигрывает высокочастотная мода, имеющая более высокое пиковое сечение.

Нужно заметить, что энергия импульса на длине волны  $\lambda_b$  для  $\text{CaMoO}_4$  была на порядок ниже, чем для  $\text{BaWO}_4$ , но генерация все же происходила, что не имеет объяснения без рассмотрения конкуренции с нелинейными эффектами, обусловленными керровской нелинейностью, потому что интегральное сечение рассеяния на деформационной колебательной моде относительно мало ( $\sigma_b \Delta\nu_b / \sigma_s \Delta\nu_s = 0.73$ ). Напротив, для кристалла  $\text{BaWO}_4$  значения энергии импульса на  $\lambda_b$  и на  $\lambda_s$  соизмеримы благодаря тому, что  $\sigma_b \Delta\nu_b / \sigma_s \Delta\nu_s = 1$ , а в энергетических зависи-

мостях для  $\lambda_s$  (средний график на рис. 4 б) наблюдается прекращение роста в области  $\tau_p = 2-4$  пс, где ВКР-генерация на  $\lambda_b$  максимальна и практически выигрывает конкуренцию за преобразование из энергии накачки. По этой же причине генерация второй стоксовой ВКР-компоненты с высокочастотным сдвигом на  $\lambda_{ss}$  (нижние графики на рис. 4) для  $\text{BaWO}_4$  начинается при большей длительности импульса накачки (около 3 пс), чем для  $\text{CaMoO}_4$  (около 1 пс), но рост энергии импульса на  $\lambda_{ss}$  с увеличением длительности импульса накачки является более резким для кристалла  $\text{BaWO}_4$ , обладающего более высоким  $g_s$ , чем для  $\text{CaMoO}_4$  (8 см/ГВт против 4.3 см/ГВт).

#### 4. МАТЕМАТИЧЕСКОЕ МОДЕЛИРОВАНИЕ

Математическая модель нестационарного ВКР на двух колебательных модах без учета нелинейных эффектов, обусловленных керровской нелинейностью, была построена в [45]. Модель нестационарного ВКР на одной колебательной моде с учетом нелинейных эффектов фазовой само- и кросс-модуляции была представлена в [46]. На основе данных моделей здесь построена модель нестационарной ВКР-генерации на двух колебательных модах с учетом фазовой само- и кросс-модуляции:

$$\frac{\partial E_p}{\partial z} + \frac{1}{u_p} \frac{\partial E_p}{\partial t} = -ig_s \Delta\nu_s \frac{\omega_p}{n_p} E_s Q_s - ig_b \Delta\nu_b \frac{\omega_p}{n_p} E_b Q_b - i \frac{\omega_p}{c} n_2 I_p E_p - 2i \frac{\omega_p}{c} n_2 I_s E_p - 2i \frac{\omega_p}{c} n_2 I_b E_p - \frac{\beta}{2} E_p, \quad (6)$$

$$\frac{\partial E_s}{\partial z} + \frac{1}{u_s} \frac{\partial E_s}{\partial t} = -ig_s \Delta\nu_s \frac{\omega_s}{n_s} E_p Q_s^* - i \frac{\omega_s}{c} n_2 I_s E_s - 2i \frac{\omega_s}{c} n_2 I_p E_s - 2i \frac{\omega_s}{c} n_2 I_b E_s - \frac{\beta}{2} E_s, \quad (7)$$

$$\frac{\partial E_b}{\partial z} + \frac{1}{u_b} \frac{\partial E_b}{\partial t} = -ig_b \Delta\nu_b \frac{\omega_b}{n_b} E_p Q_b^* - i \frac{\omega_b}{c} n_2 I_b E_b - 2i \frac{\omega_b}{c} n_2 I_p E_b - 2i \frac{\omega_b}{c} n_2 I_s E_b - \frac{\beta}{2} E_b, \quad (8)$$

$$\frac{\partial Q_s}{\partial t} + \frac{Q_s}{\tau_s} = -i \frac{n_p n_s}{16 \omega_s} E_p (E_s^* + \xi), \quad (9)$$

$$\frac{\partial Q_b}{\partial t} + \frac{Q_b}{\tau_b} = -i \frac{n_p n_b}{16 \omega_b} E_p (E_b^* + \xi), \quad (10)$$

где  $E_p$  — медленно меняющаяся комплексная амплитуда поля излучения накачки;  $E_s$  и  $E_b$  — медленно меняющиеся комплексные амплитуды полей стоксовых компонент ВКР-излучения с высокочастотным и низкочастотным сдвигами соответственно;  $I_{p,s,b} = |E_{p,s,b}|^2 cn_{p,s,b}/8\pi$  — интенсивность соответствующей компоненты излучения;  $n_{p,s,b}$ ,  $u_{p,s,b}$  и  $\omega_{p,s,b} = 2\pi c/\lambda_{p,s,b}$  — показатель преломления, групповая скорость и оптическая частота соответствующей компоненты излучения;  $Q_s$  и  $Q_b$  — медленно меняющиеся комплексные амплитуды колебаний полносимметричной (высокочастотной) и деформационной (низкочастотной) колебательных мод ВКР-среды;  $\Delta\nu_{s,b}$  и  $\tau_{s,b} = (\pi c \Delta\nu_{s,b})^{-1}$  — ширина линии и время фазовой релаксации соответствующей колебательной моды;  $g_{s,b}$  — коэффициент стационарного ВКР-усиления на соответствующей колебательной моде;  $n_2$  — нелинейный показатель преломления;  $\beta$  — коэффициент линейных потерь.

В правой части волнового уравнения (6) первое и второе слагаемые описывают истощение накачки из-

за ВКР-преобразования с высокочастотным и низкочастотным сдвигами соответственно; третье слагаемое описывает фазовую самомодуляцию излучения накачки; четвертое и пятое слагаемые отвечают за фазовую кросс-модуляцию излучения накачки под действием каждой из стоксовых компонент ВКР-излучения; последнее слагаемое описывает линейные потери излучения накачки. В правых частях волновых уравнений (7) и (8) первые слагаемые описывают ВКР-усиление соответствующей компоненты ВКР-излучения под действием накачки; вторые слагаемые описывают фазовую самомодуляцию ВКР-излучения; третьи и четвертые слагаемые отвечают за фазовую кросс-модуляцию соответствующей компоненты ВКР-излучения под действием других компонент излучения; последние слагаемые описывают линейные потери ВКР-излучения. В материальных уравнениях (9) и (10) для описания ВКР-генерации учтено затравочное слагаемое, определяемое как  $\xi = s|E_p|$ , где затравочный коэффициент  $s = 3.7 \cdot 10^{-7}$  взят из условия порога ВКР, соответствующего эффективности ВКР-преобразования 1% ( $0.01 \approx s^2 e^{25}$ ) [47]. Заметим, что модель не описывает процесс филаментации, поэтому служит для выявления только качественной картины конкуренции рассматриваемых нелинейных явлений.

В модели на вход подавался chirпированный импульс накачки гауссовой формы с амплитудой

$$E_p(0, t) = \sqrt{\frac{8\pi I_{p0}}{cn_p}} \times \exp\left[-2 \ln 2 (1 + iC_0) \frac{(t - \Delta t)^2}{\tau_p^2}\right]. \quad (11)$$

Здесь  $I_{p0}$  — пиковая интенсивность входного chirпированного импульса накачки;  $\tau_p$  — его длительность на полувысоте (FWHM);  $\Delta t = 1.8\tau_p$  — задержка относительно начала отсчета времени;  $C_0$  — показатель входного chirпа (положительный или отрицательный), абсолютная величина которого определялась как [24]

$$|C_0| = \sqrt{\frac{\tau_p^2}{\tau_0^2} - 1}, \quad (12)$$

где  $\tau_0 = 0.25$  пс — длительность спектрально-ограниченного импульса накачки.

Условный теоретический порог существенно нестационарного ВКР, использованный при выводе формулы (5) в [42], определяется как [48]

$$\frac{g_s L_{\text{eff}}}{\tau_s} F_p^{\text{th}} = 80, \quad (13)$$

где  $F_p^{\text{th}}$  — пороговая плотность энергии импульса накачки. Расчеты проводили при пятикратном превышении теоретического порога ВКР, т. е. при  $F_p/F_p^{\text{th}} = 5$ , где  $F_p$  — плотность энергии входного импульса накачки. При этом варьировали длительность импульса  $\tau_p$  и связанный с ней входной чирп  $C_0$  (см. формулу (12)), а пиковую интенсивность для входного гауссова импульса накачки определяли как  $I_{p0} = F_p \sqrt{4 \ln 2 / \pi} / \tau_p$ . Коэффициент потерь принимали равным  $\beta = 0.01 \text{ см}^{-1}$ . Нужно заметить, что использование больших значений эффективной длины ВКР-взаимодействия  $L_{\text{eff}}$  в модели приводило к подавлению ВКР-генерации при малых длительностях импульса накачки, что было вызвано дисперсионным разбеганием импульсов накачки и ВКР-излучения. Этого не наблюдалось в экспериментах из-за удлинения импульсов излучения при филаментации, что не учтено в модели. Поэтому для сравнительного исследования «чистой» конкуренции рассматриваемых нелинейных явлений при моделировании мы пренебрегли дисперсией показателя преломления ( $n_p = n_b = n_s = 1.96$  для  $\text{CaMoO}_4$  и  $n_p = n_b = n_s = 1.82$  для  $\text{BaWO}_4$ ), что допустимо при малой эффективной длине ВКР-взаимодействия  $L_{\text{eff}} = 10 \text{ мм}$ , не превышающей длину дисперсионного разбегания  $L_{p_s, p_b}$  при  $\tau_p > 0.25 \text{ пс}$ .

На рис. 5 представлены результаты численного моделирования для кристалла  $\text{CaMoO}_4$  при  $F_p/F_p^{\text{th}} = 5$ ,  $\tau_p = 0.5 \text{ пс}$ ,  $|C_0| = 1.732$ , положительный (а) и отрицательный (б) чирпы. Сплошные линии показывают результаты с учетом фазовой само- и кросс-модуляции ( $n_2 = 7 \cdot 10^{-16} \text{ см}^2/\text{Вт}$ ); пунктирные линии — без учета ( $n_2 = 0$ ).

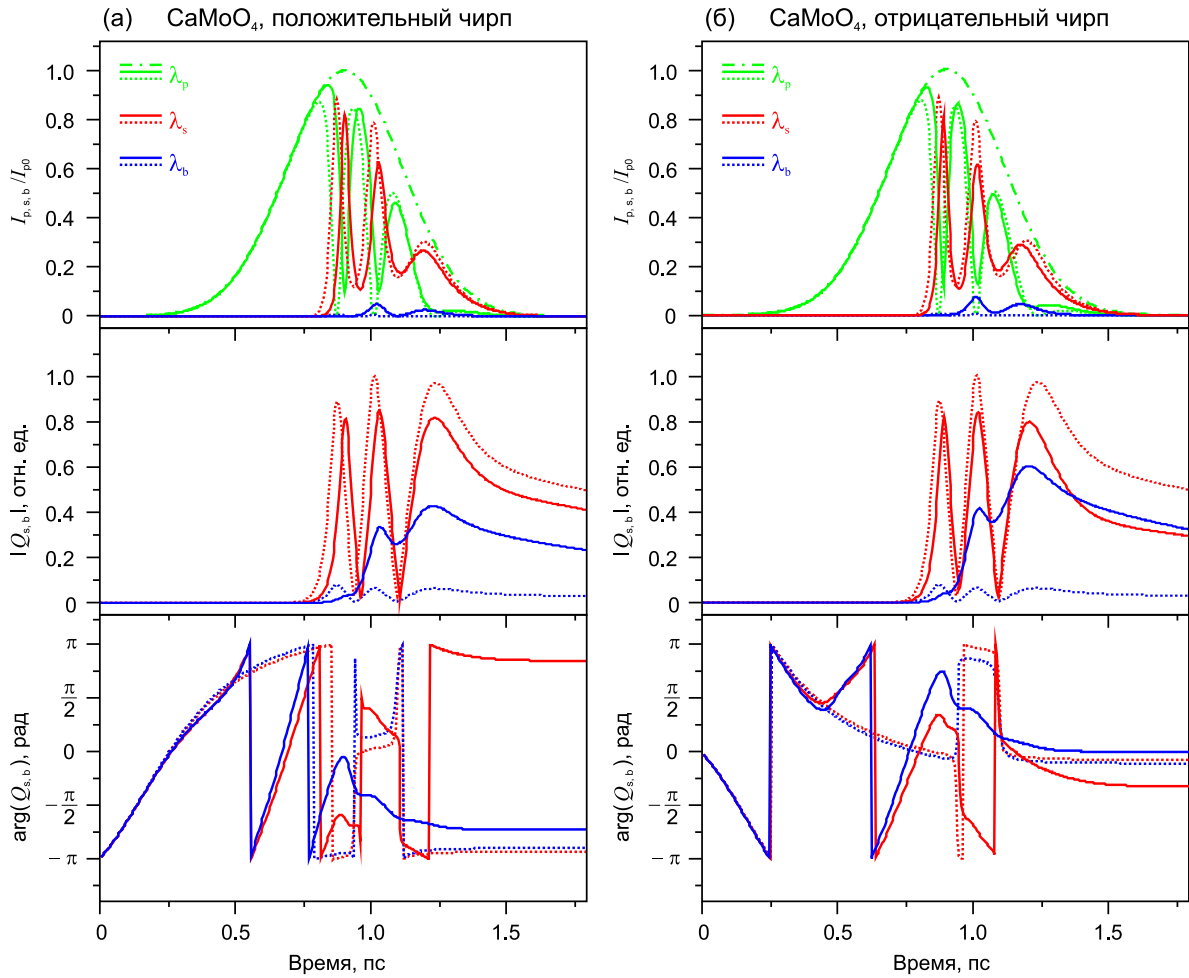
На рис. 5 (верхние и средние графики) видно, что учет фазовой само- и кросс-модуляции слабо сказался на ВКР с высокочастотным сдвигом — произошло лишь небольшое ослабление ВКР-генерации (сплошные красные линии) по сравнению со случаем без учета (пунктирные красные линии). Дело в том, что  $\tau_p = 0.5 \text{ пс}$  превышает  $\tau_{\text{min}} = 0.39 \text{ пс}$  для кристалла  $\text{CaMoO}_4$ , поэтому ослабление ВКР с высокочастотным сдвигом под действием фазовой само- и кросс-модуляции здесь незначительно.

Более интересной является картина ВКР с низкочастотным сдвигом. Видно, что в отсутствие учета фазовой само- и кросс-модуляции (пунктирные синие линии) такое ВКР почти полностью подавлено, что объясняется меньшим интегральным сечением рассеяния на деформационной, чем на полносимметричной колебательной моде ( $\sigma_b \Delta \nu_b / \sigma_s \Delta \nu_s = 0.73$ ), поэтому ВКР с высоко-

частотным сдвигом здесь выигрывает межмодовую конкуренцию. Однако учет  $n_2$  (сплошные синие линии) кардинально изменил ситуацию — ВКР с низкочастотным сдвигом стало генерироваться, но менее эффективно, чем с высокочастотным сдвигом. Объяснение здесь состоит в том, что фазовая само- и кросс-модуляция больше подавляет ВКР на полносимметричной колебательной моде, имеющей более высокое интегральное сечение рассеяния, чем на деформационной колебательной моде, так как величина  $\tau_{\text{min}}$  (см. формулу (5)) обратно пропорциональна интегральному сечению рассеяния, что играет в пользу ВКР с низкочастотным сдвигом в межмодовой конкуренции.

На рис. 5 а (средний график) видно, что учет  $n_2$  привел к снижению скорости начального роста модуля колебательной амплитуды  $|Q_b|$  (см. сплошную и пунктирную синие линии). Это вызвано фазовой само- и кросс-модуляцией, увеличивающей рост фазы колебания  $\arg(Q_b)$  (см. сплошную синюю линию на нижнем графике рис. 5 а) относительно роста фазы при положительном чирпе импульса накачки для  $n_2 = 0$  (см. пунктирную синюю линию на рис. 5 а). Это задержало ВКР-генерацию с низкочастотным сдвигом. Однако в момент времени, когда наблюдается первый пик генерации ВКР-излучения с высокочастотным сдвигом (см. сплошные красные линии на верхнем и среднем графиках на рис. 5 а), рост фазы колебания  $\arg(Q_b)$  (см. сплошную синюю линию на нижнем графике на рис. 5 а) достигает максимума. Далее при быстром росте модуля амплитуды колебания  $|Q_b|$  фаза колебания  $\arg(Q_b)$  уменьшается (см. сплошную синюю линию на среднем графике на рис. 5 а), что вызывает генерацию интенсивного пика ВКР-излучения с низкочастотным сдвигом (см. сплошную синюю линию на верхнем графике на рис. 5 а).

На рис. 5 б видно, что такая же картина наблюдается при отрицательном чирпе импульса накачки, но ВКР-генерация, особенно с низкочастотным сдвигом, происходит более интенсивно благодаря тому, что отрицательное начальное изменение фазы колебания, вызванное отрицательным чирпом импульса накачки, частично компенсирует рост фазы колебания из-за фазовой само- и кросс-модуляции (см. сплошные линии на нижнем графике на рис. 5 б). Заметим, что без учета  $n_2$  результат моделирования ВКР-генерации одинаков как при положительном, так и отрицательном чирпах импульса накачки (пунктирные линии на верхнем и среднем графиках на рис. 5).



**Рис. 5.** Расчетная динамика ВКР-преобразования излучения накачки с интенсивностью  $I_p$  (зеленые линии) в первые стоксовы ВКР-компоненты с интенсивностями  $I_s$  и  $I_b$  соответственно на высокочастотной (красные линии) и низкочастотной (синие линии) колебательных модах с колебательными амплитудами  $Q_s$  и  $Q_b$  в кристалле  $\text{CaMoO}_4$  при  $L_{\text{eff}} = 1$  см,  $\tau_p = 0.5$  пс (входной чирп  $|C_0| = 1.732$ ) и  $F_p/F_p^{\text{th}} = 5$ . Сплошные линии — с учетом  $n_2$ , пунктирные линии — без учета  $n_2$ , штрихпунктирные линии — входной импульс накачки

На рис. 6 представлены результаты численного моделирования для кристалла  $\text{BaWO}_4$  в тех же условиях. На рис. 6 видно, что в модели без учета фазовой само- и кросс-модуляции картина ВКР-генерации в  $\text{BaWO}_4$  заметно отличается от таковой в  $\text{CaMoO}_4$  — эффективность ВКР-генерации с низкочастотным сдвигом (пунктирные синие линии) соизмерима с эффективностью ВКР-генерации с высокочастотным сдвигом (пунктирные красные линии). Это вызвано равными интегральными сечениями рассеяния на обоих колебательных модах:  $\sigma_b \Delta\nu_b / \sigma_s \Delta\nu_s = 1$ .

Учет фазовой само- и кросс-модуляции (сплошные линии) привел к более сильному ослаблению ВКР-генерации, чем без ее учета (пунктирные линии). Это объясняется тем, что  $\tau_p = 0.5$  пс меньше

$\tau_{\text{min}} = 0.73$  пс для кристалла  $\text{BaWO}_4$ , поэтому мы наблюдаем подавление ВКР из-за дефазировки колебательных резонансов при фазовой само- и кросс-модуляции, но эффективность ВКР-генерации с высокочастотным и низкочастотным сдвигами остается соизмеримой. На рис. 6 б видно, что отрицательный чирп импульса накачки, как и в случае с  $\text{CaMoO}_4$ , дал более высокую эффективность ВКР-генерации с низкочастотным сдвигом (сплошные синие линии) благодаря частичной компенсации роста фазы колебания при фазовой само- и кросс-модуляции (см. нижний график).

На рис. 7 представлены расчетные зависимости эффективности ВКР-преобразования с высокочастотным и низкочастотным сдвигами от длительности чирпированного импульса накачки в кристал-

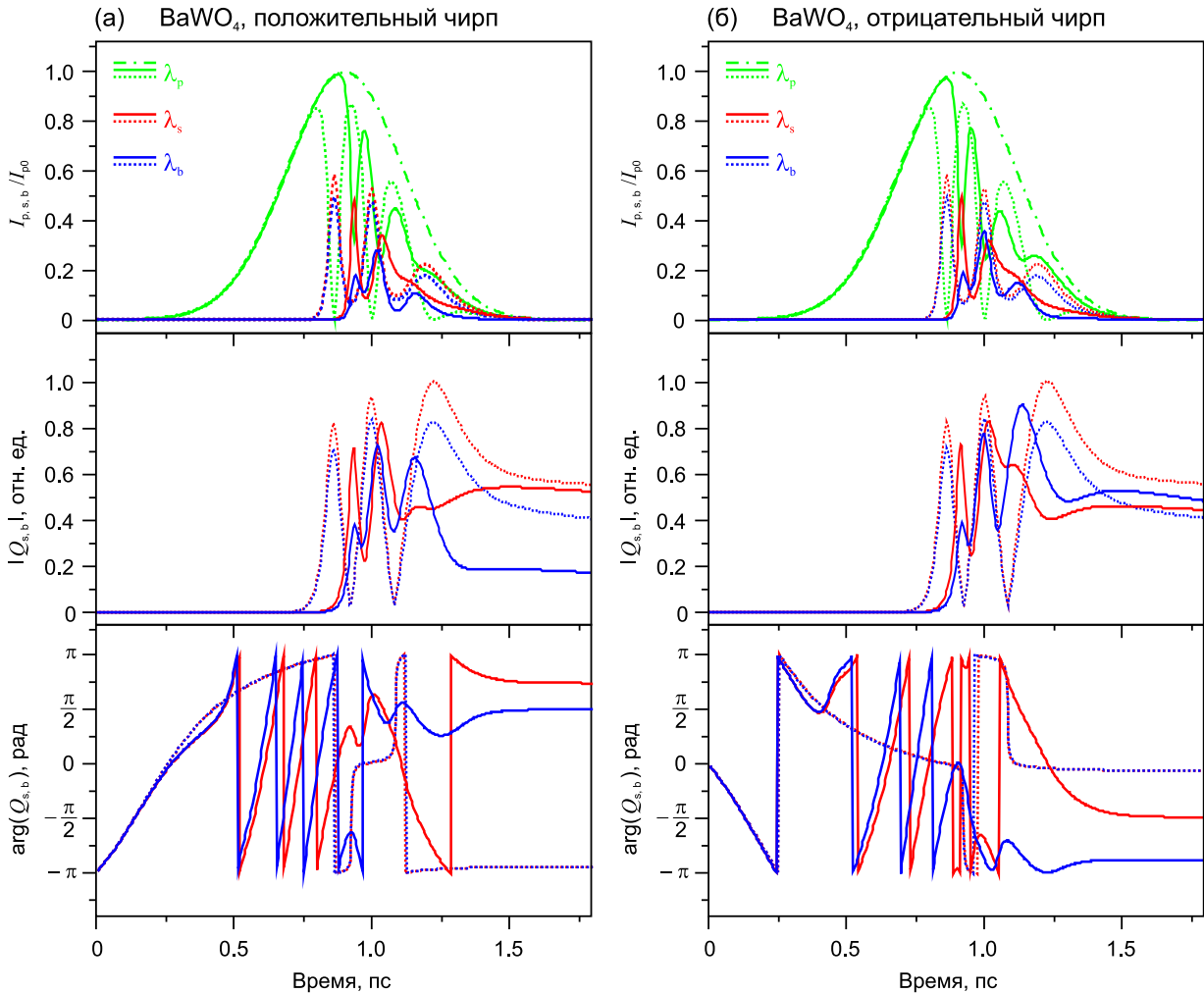
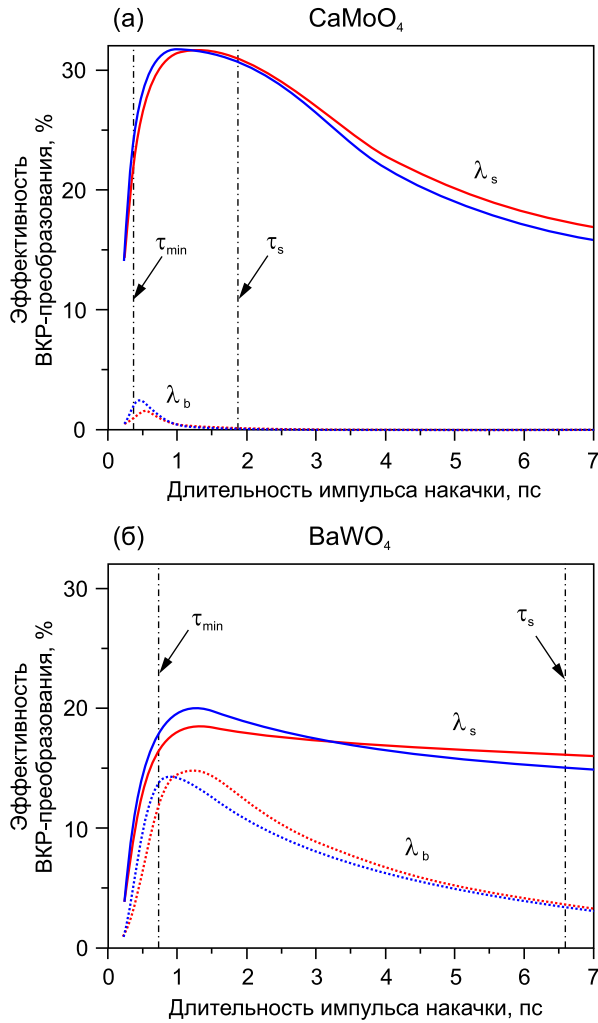


Рис. 6. Расчетная динамика ВКР-преобразования в кристалле ВаWO<sub>4</sub> при тех же условиях, как и в случае рис. 5

лах CaMoO<sub>4</sub> и ВаWO<sub>4</sub> при положительном и отрицательном chirпах импульса накачки для  $L_{\text{eff}} = 1$  см и  $F_p/F_p^{\text{th}} = 5$ . На рис. 7 видно, что теоретическая величина  $\tau_{\text{min}}$  (штрихпунктирные линии) действительно является критической длительностью импульса накачки, ниже которой ВКР подавляется.

При увеличении  $\tau_p$  свыше  $\tau_{\text{min}}$  эффективность ВКР-генерации с высокочастотным сдвигом (сплошные линии) возрастает, достигает максимума и далее медленно уменьшается. Последнее проявляется сильнее для кристалла CaMoO<sub>4</sub> (рис. 7 а), имеющего меньшее значение  $\tau_s$ , чем для кристалла ВаWO<sub>4</sub> (1.9 пс против 6.6 пс), и обусловлено прекращением существенно нестационарного режима ВКР, при котором на эффективность ВКР начинает влиять уменьшение интенсивности накачки  $I_{p0}$  из-за увеличения  $\tau_p$ .

Зависимости эффективности ВКР-генерации с низкочастотным сдвигом от  $\tau_p$  (пунктирные линии) имеют схожий характер, но максимум эффективности генерации наблюдается ближе к величине  $\tau_{\text{min}}$ , а дальнейшее уменьшение эффективности генерации является относительно быстрым в промежутке между  $\tau_{\text{min}}$  и  $\tau_s$  (штрихпунктирные линии), особенно для кристалла CaMoO<sub>4</sub> (рис. 7 а), имеющего меньшее значение  $\tau_s$  (1.9 пс) и меньшую величину  $\sigma_b \Delta\nu_b / \sigma_s \Delta\nu_s$  (0.73). Но нужно заметить, что даже для кристалла ВаWO<sub>4</sub> (рис. 7 б), обладающего равными интегральными сечениями рассеяния на обоих колебательных модах, увеличение  $\tau_p$  более  $\tau_s$  (здесь  $\tau_s = 6.6$  пс) тоже привело к многократному снижению эффективности ВКР-генерации с низкочастотным сдвигом. Это обусловлено конкуренцией между процессами ВКР на двух колебательных модах, ко-



**Рис. 7.** Расчетные зависимости эффективности ВКР-преобразования с высокочастотным (сплошные линии) и низкочастотным (пунктирные линии) сдвигами от длительности chirпованного импульса накачки в кристаллах CaMoO<sub>4</sub> (а) и BaWO<sub>4</sub> (б) при положительном (красные линии) и отрицательном (синие линии) chirпах импульса накачки для  $L_{eff} = 1$  см и  $F_p/F_p^{th} = 5$

тору при  $\tau_p > \tau_s$  выигрывает высокочастотная мода, обладающая более высоким пиковым сечением рассеяния.

Еще на рис. 7 можно заметить, что при малых  $\tau_p$  эффективность ВКР-генерации получается более высокой при отрицательном (синие линии), чем при положительном (красные линии) chirпе импульса накачки, особенно при низкочастотном сдвиге (пунктирные линии). Это качественно согласуется с экспериментальными результатами (верхние графики на рис. 4) — при отрицательном chirпе максимумы зависимостей для  $\lambda_b$  смещены левее, чем при положительном chirпе (для обоих кристаллов). По-

лученные как в экспериментах, так и в расчетах более высокие оптимальные значения  $\tau_p$ , соответствующие максимумам этих зависимостей (верхние графики на рис. 4) для BaWO<sub>4</sub> по сравнению с таковыми для CaMoO<sub>4</sub>, согласно результатам моделирования (рис. 7) коррелируют с более высокими величинами  $\tau_{min}$  и  $\tau_s$  для BaWO<sub>4</sub>, чем для CaMoO<sub>4</sub>. Однако нужно заметить, что экспериментальные значения оптимальных длительностей импульса для ВКР с низкочастотным сдвигом превышают расчетные значения, а экспериментальные зависимости эффективности ВКР-генерации с высокочастотным сдвигом от  $\tau_p$  не имеют этапа уменьшения в отличие от результатов моделирования. Дело в том, что в модели не были учтены факторы дисперсионного разбегания, филаментации и генерации суперконтинуума, которые ответственны за данные несоответствия, но понятно, что роль этих факторов снижается при удлинении импульсов накачки. С другой стороны, исключение из рассмотрения данных факторов позволило выявить качественную картину взаимодействия между процессами ВКР на двух колебательных модах и процессами фазовой само- и кросс-модуляции.

### 5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Проведено сравнительное исследование нестационарного ВКР на двух колебательных модах в шеелиитоподобных кристаллах CaMoO<sub>4</sub> и BaWO<sub>4</sub> с различными отношениями интегральных сечений рассеяния на деформационной и полносимметричной колебательных модах в условиях существенного проявления нелинейных эффектов, обусловленных керровской нелинейностью, под действием ультракоротких лазерных импульсов с мощностью выше критической мощности самофокусировки. Применение слабой фокусировки с числовой апертурой 0.0049 для длинных (80 мм) ВКР-кристаллов позволило осуществить эффективную многоволновую ВКР-генерацию на двух (высокочастотной и низкочастотной) колебательных модах в режиме филаментации без оптического повреждения среды. Использование регулируемого chirпирования импульсов накачки позволило определить параметры, обеспечивающие максимальную эффективность многоволновой ВКР-генерации одновременно с высокочастотным и низкочастотным сдвигами в обоих кристаллах. Проведенное математическое моделирование позволило выявить качественную картину конкуренции рассматриваемых нелинейных явлений и

связать их с характеристиками ВКР-кристаллов. Моделирование показало, что эффективность ВКР-генерации с одновременными низкочастотным и высокочастотным сдвигами повышается в диапазоне длительностей chirpированных импульсов накачки от  $\tau_{\min}$  до  $\tau_s$  благодаря большему ослаблению ВКР-генерации с высокочастотным по сравнению с низкочастотным сдвигом под действием фазовой само- и кросс-модуляции. При увеличении  $\tau_p > \tau_s$  ослабление ВКР с низкочастотным сдвигом происходит даже в кристалле  $\text{BaWO}_4$ , обладающем одинаковыми интегральными сечениями рассеяния на деформационной и полносимметричной колебательных модах, так как режим ВКР перестает быть существенно нестационарным и начинает оказывать влияние пиковое сечение рассеяния, большее для полносимметричной колебательной моды. При этом в кристалле  $\text{CaMoO}_4$ , обладающем малым отношением интегральных сечений рассеяния на деформационной и полносимметричной колебательных модах, ВКР-генерация на деформационной колебательной моде подавляется не полностью. Это объясняется более сильным ослаблением ВКР на полносимметричной, чем на деформационной колебательной моде под действием фазовой само- и кросс-модуляции, а также большей затравкой со стороны генерации суперконтинуума для ВКР-генерации с низкочастотным, чем с высокочастотным сдвигом.

**Финансирование.** Работа выполнена при поддержке Российского научного фонда (грант № 24-12-00448).

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

**Вклад авторов.** Вклад авторов равноценен.

## ЛИТЕРАТУРА

1. S. J. Wawilov and W. L. Lewschin, *Z. Physik* **35**, 920 (1926).
2. S. A. Akhmanov and R. V. Khokhlov, *Problems of Nonlinear Optics*, VINITI Publ., Moscow (1964) [С. А. Ахманов, Р. В. Хохлов, *Проблемы нелинейной оптики*, Изд. ВИНТИ, Москва (1964)].
3. P. Herling, J. P. Lay, and S. Stry, *Lasers in Environmental and Life Sciences — Modern Analytical Methods*, Springer, Berlin (2004).
4. K. E. Im, Ch. S. Gardner, J. B. Abshire, and J. F. McGarry, *J. Opt. Soc. Am. A* **4**, 820 (1987).
5. Y. L. Pan, S. C. Hill, R. G. Pinnick, H. Huang, J. R. Bottiger, and R. K. Chang, *Opt. Express* **18**, 12436 (2010).
6. Ch. Stringari, L. Abdeladim, G. Malkinson et al., *Sci. Rep.* **7**, 3792 (2017).
7. Т. Т. Басиев, Р. Г. Зверев, А. Я. Карасик et al., *J. Exp. Theor. Phys.* **99**, 934 (2004) [Т. Т. Басиев, П. Г. Зверев, А. Я. Карасик и др., *ЖЭТФ* **126**, 1073 (2004)].
8. L. L. Losev, J. Song, J. F. Xia, D. Strickland, and V. V. Brukhanov, *Opt. Lett.* **27**, 2100 (2002).
9. N. Zhavoronkov, F. Noack, V. Petrov et al., *Opt. Lett.* **26**, 47 (2001).
10. А. В. Кonyashchenko, L. L. Losev, and S. Yu. Tenyakov, *Quantum Electron.* **40**, 700 (2010) [А. В. Конященко, Л. Л. Лосев, С. Ю. Теняков, *Квант. электрон.* **40**, 700 (2010)].
11. I. O. Kinyaevskiy, V. I. Kovalev, A. V. Koribut et al., *Quantum Electron.* **52**, 278 (2022) [И. О. Киняевский, В. И. Ковалев, А. В. Корибут и др., *Квант. электрон.* **52**, 278 (2022)].
12. А. Г. Papashvili, Yu. A. Kochukov, D. P. Tereshchenko et al., *Opt. Lett.* **48**, 4528 (2023).
13. Yu. A. Kochukov, K. A. Gubina, D. P. Tereshchenko et al., *Opt. Lett.* **49**, 5575 (2024).
14. Yu. A. Kochukov, K. A. Gubina, D. P. Tereshchenko et al., *Opt. Spectrosc.* **133**, 249 (2025) [Ю. А. Кочуков, К. А. Губина, Д. П. Терещенко и др., *Оптика спектроскоп.* **133**, 261 (2025)].
15. M. Frank, S. N. Smetanin, M. Jelinek et al., *Crystals* **9**, 167 (2019).
16. А. А. Kaminsky, S. N. Bagaev, K. Ueda, K. Takaichi, and H. J. Eichler, *Crystallogr. Rep.* **47**, 653 (2002) [А. А. Каминский, С. Н. Багаев, К. Ueda, К. Takaichi, H. J. Eichler, *Кристаллография* **47**, 711 (2002)].
17. Т. Т. Басиев, В. В. Осико, А. М. Prokhorov, and E. M. Dianov, in *Topics in Applied Physics*, Vol. 89, Springer, Berlin (2003), p. 359.
18. Р. Г. Зверев, Т. Т. Басиев, А. А. Sobol, I. V. Ermakov, and W. Gellerman, in *Advanced Solid-State Lasers*, ed. by C. Marshall, Vol. 50 of OSA Trends in Optics and Photonics (2001), paper ME1.
19. X. Li, A. J. Lee, Y. Huo et al., *Opt. Express* **20**, 19305 (2012).
20. M. Frank, S. N. Smetanin, M. Jelinek et al., *Opt. Lett.* **43**, 2527 (2018).

21. I. O. Kinyaevskiy, V. I. Kovalev, A. V. Koribut et al., *J. Russ. Laser Res.* **43**, 315 (2022).
22. I. O. Kinyaevskiy, V. I. Kovalev, P. A. Danilov et al., *Opt. Lett.* **45**, 2160 (2020).
23. V. A. Lisinetskii, S. V. Rozhok, D. N. Bus'ko et al., *Laser Phys. Lett.* **2**, 396 (2005).
24. G. P. Agrawal, *Nonlinear Fiber Optics*, Academ. Press (2013).
25. M. Bass (Editor in Chief), *Handbook of Optics. Volume IV*, Third Edition, McGraw-Hill (2010).
26. G. F. Bakhshieva and A. M. Morozov, *Opt.-Mech. Ind.*, No. 9, 31 (1977) [Г. Ф. Бахшиева, А. М. Морозов, *Оптико-механическая промышленность*, № 9, 31 (1977)].
27. T. T. Basiev, M. N. Basieva, M. E. Doroshenko et al., *Laser Phys. Lett.* **3**, 17 (2006).
28. O. Kuzucu, *Opt. Lett.* **40**, 5078 (2015).
29. D. Guichaoua, I. Syvorotka, I. Solskii et al., *Opt. Mater.* **121**, 111493 (2021).
30. A. I. Vodchits, V. S. Gorelik, V. A. Orlovich, and P. A. Aranasevich, *Opt. Spectrosc.* **127**, 625 (2019) [А. И. Водчиц, В. С. Горелик, В. А. Орлович, П. А. Апанасевич, *Оптика спектроск.* **127**, 570 (2019)].
31. V. P. Kandidov, S. A. Shlenov, and O. G. Kosareva, *Quantum Electron.* **39**, 205 (2009) [В. П. Кандидов, С. А. Шленов, О. Г. Косарева, *Квант. электрон.* **39**, 205 (2009)].
32. N. T. Nguyen, A. Saliminia, W. Liu, S. L. Chin, and R. Vallee, *Opt. Lett.* **28**, 1591 (2003).
33. W. Liu, O. Kosareva, I. S. Golubtsov et al., *Appl. Phys. B* **76**, 21 (2003).
34. I. Gražulevičiūtė, M. Skeivytyė, E. Keblytė et al., *Lith. J. Phys.* **55**, 110 (2015).
35. S. Cheng, G. Chatterjee, F. Tellkamp et al., *Opt. Lett.* **43**, 4329 (2018).
36. L. Roškot, O. Novák, B. Csanaková et al., *J. Opt. Soc. Am. B* **40**, 1391 (2023).
37. K. Lim, M. Durand, M. Baudalet, and M. Richardson, *Sci. Rep.* **4**, 7217 (2014).
38. N. G. Ivanov and V. F. Losev, *Atmos. Ocean. Opt.* **30**, 331 (2017) [Н. Г. Иванов, В. Ф. Лосев, *Оптика атмосферы и океана* **30**, 198 (2017)].
39. V. I. Talanov, *JETP Lett.* **11**, 199 (1970) [В. И. Таланов, *Письма в ЖЭТФ* **11**, 303 (1970)].
40. O. Svelto, *Principles of Lasers*, Springer (2010).
41. I. O. Kinyaevskiy, A. V. Koribut, P. A. Danilov, and S. I. Kudryashov, *JETP Lett.* **119**, 10 (2024) [И. О. Киняевский, А. В. Корибут, П. А. Данилов, С. И. Кудряшов, *Письма в ЖЭТФ* **119**, 9 (2024)].
42. A. V. Konyashchenko, P. V. Kostryukov, L. L. Losev, and V. S. Pazyuk, *Quantum Electron.* **47**, 593 (2017) [А. В. Комященко, П. В. Кострюков, Л. Л. Лосев, В. С. Пазюк, *Квант. электрон.* **47**, 593 (2017)].
43. H. J. Meyer and R. R. Alfano, *Opt. Lett.* **45**, 6222 (2020).
44. R. L. Carman, F. Shimizu, C. S. Wang, and N. Bloembergen, *Phys. Rev. A* **2**, 60 (1970).
45. S. N. Smetanin, D. P. Tereshchenko, A. G. Papashvili et al., *Quantum Electron.* **53**, 379 (2023) [С. Н. Сметанин, Д. П. Терещенко, А. Г. Папашвили и др., *Квант. электрон.* **53**, 379 (2023)].
46. M. S. Dzhidzhoev, P. M. Mikheev, V. T. Platonenko, and A. V. Savelyev, *Quantum Electron.* **24**, 255 (1997) [М. С. Джиджоев, П. М. Михеев, В. Т. Платоненко, А. В. Савельев, *Квант. электрон.* **24**, 255 (1997)].
47. S. N. Smetanin, M. E. Doroshenko, L. I. Ivleva et al., *Appl. Phys. B* **117**, 225 (2014).
48. N. J. Everall, J. P. Partanen, J. R. M. Barr, and M. J. Shaw, *Opt. Commun.* **64**, 393 (1987).

**Stimulated Raman Scattering on Two Vibrational Modes in Scheelite-Type Crystals under Conditions of Significant Manifestation of Nonlinear Effects Caused by Kerr Nonlinearity**

*D. P. Tereshchenko<sup>a</sup>, K. A. Gubina<sup>a,b</sup>, E. A. Peganov<sup>a</sup>, Yu. A. Kochukov<sup>a,b</sup>, A. G. Papashvili<sup>a</sup>, V. E. Shukshin<sup>a</sup>, I. S. Voronina<sup>a</sup>, L. I. Ivleva<sup>a</sup>, A. A. Ushakov<sup>a</sup>, V. V. Bulgakova<sup>a</sup>, P. A. Chizhov<sup>a</sup>, T. V. Dolmatov<sup>a</sup>, V. Kh. Bagdasarov<sup>a</sup>, and S. N. Smetanin<sup>a,b\*</sup>*

<sup>a</sup>Prokhorov General Physics Institute of the Russian Academy of Sciences  
119991, Moscow, Russia

<sup>b</sup>National University of Science and Technology MISIS  
119049, Moscow, Russia

\* E-mail: ssmetanin@bk.ru

Received February 10, 2026

Revised March 6, 2026

Accepted March 7, 2026

**Abstract**

A comparative study of stimulated Raman scattering (SRS) on bending and stretching vibrational modes in scheelite-type  $\text{CaMoO}_4$  and  $\text{BaWO}_4$  crystals with different ratios of integral scattering cross sections on these vibrational modes has been carried out under conditions of significant manifestation of nonlinear effects caused by Kerr nonlinearity under the action of ultrashort laser pulses with a power higher than the critical power of self-focusing. The use of controlled chirping of pump pulses in experiments made it possible to find parameters that ensure maximum efficiency of multiwavelength SRS generation with simultaneous low- and high-frequency shifts on both vibrational modes in comparison with the results of mathematical modeling. Modeling in agreement with experiments has shown that the efficiency of such SRS generation increases in the range of durations of chirped pump pulses from the minimum duration corresponding to the theoretical threshold for suppression of SRS due to self-phase and cross-phase modulations to the maximum duration corresponding to the phase relaxation time of the stretching vibrational mode.

**Keywords:** transient stimulated Raman scattering, vibrational mode, self-phase modulation, cross-phase modulation, supercontinuum generation

**Funding.** The work is supported by the Russian Science Foundation (project No. 24-12-00448).

**Conflict of interest.** The authors of this work declare that they have no conflicts of interest.

**Authors' contribution.** The contribution of the authors is equal.