

Вынужденное комбинационное рассеяние пикосекундных импульсов в кристаллах SrMoO_4 и $\text{Ca}_3(\text{VO}_4)_2$

П.Г.Зверев, А.Я.Карасик, Т.Т.Басиев, Л.И.Ивлева, В.В.Осико

Предложена экспресс-методика для исследования вынужденного комбинационного рассеяния (ВКР) в кристаллах при возбуждении длинными пучками пикосекундных импульсов. Проведены исследования ВКР в ряде кристаллов при возбуждении излучением лазера с активным элементом из разупорядоченного граната $\text{Nd}^{3+}:\text{CLNGG}$ с импульсами длительностью 15 пс. Впервые реализовано и исследовано ВКР в кристаллах SrMoO_4 и $\text{Ca}_3(\text{VO}_4)_2$, которое сравнивается с ВКР в известных ВКР-активных кристаллах BaWO_4 и $\text{KGd}(\text{WO}_4)_2$.

Ключевые слова: вынужденное комбинационное рассеяние, пикосекундные импульсы, активные среды.

1. Введение

Поиск и исследование новых эффективных нелинейных твердотельных материалов для вынужденного комбинационного рассеяния (ВКР) является важной задачей лазерной физики в связи с необходимостью создания источников лазерного излучения в новых спектральных областях. Недавно был предложен ряд ВКР-активных материалов и исследованы их нелинейные свойства при возбуждении наносекундными лазерными импульсами [1–3]. Для многих кристаллических сред время дефазировки возбуждения ВКР-активных колебательных мод составляет менее 10 пс. При возбуждении ВКР импульсами пикосекундной длительности может наблюдаться как стационарное, так и нестационарное ВКР в зависимости от соотношения между длительностью импульса накачки и временем фазовой релаксации ВКР-активного колебания.

В настоящей работе исследовано ВКР в новых ВКР-активных кристаллах SrMoO_4 и $\text{Ca}_3(\text{VO}_4)_2$ при возбуждении пучками пикосекундных импульсов длительностью ~ 15 пс.

2. Экспериментальная установка

Оптическая схема экспериментальной установки для исследования ВКР при возбуждении пикосекундными лазерными импульсами показана на рис.1. Неодимовый лазер на кристалле разупорядоченного граната CaLiNbGa (CLNGG) [4] работал в импульсно-периодическом режиме с ламповой накачкой. Пассивная синхронизация мод лазера осуществлялась раствором красителя № 3274. Широкая (более 50 см^{-1}) неоднородно-уширенная полоса люминесценции ионов неодима в кристалле CLNGG позволяла генерировать короткие пикосекундные импульсы. Лазер излучал пучки импульсов длитель-

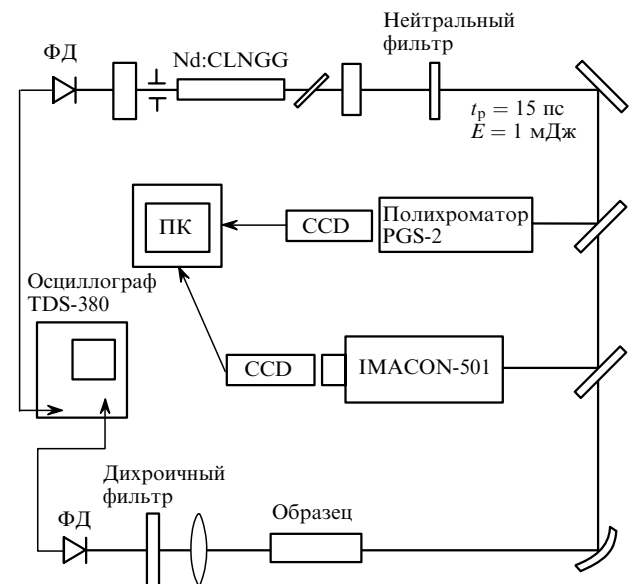


Рис.1. Схема экспериментальной установки для исследования ВКР в кристаллах.

ностью ~ 15 пс с суммарной энергией в пучке около 1 мДж. Малое усиление и высокие потери на выходном зеркале приводили к тому, что генерируемый пучок пикосекундных импульсов состоял из 50 и более импульсов с плавным изменением амплитуды, а следовательно, и энергии в отдельном импульсе. Характерный пучок импульсов накачки показан на рис.2 (осциллограмма 1).

Излучение лазера, работавшего в ТЕМ₀₀-мод, ослаблялось нейтральными светофильтрами и фокусировалось сферическим длиннофокусным зеркалом ($f = 70$ см) в исследуемый образец. Диаметр луча накачки в фокусе d_f составлял около 250 мкм. Длина перетяжки, на которой сечение пучка увеличивалось в два раза, равнялась 19 см. Отсюда следовало, что в кристаллах длиной $L \leq 5$ см, помещенных в фокусе, плотность мощности излучения накачки постоянна. Рассеянное излучение после коллимирующей линзы и дихроичного фильтра, отсекающего излучение накачки, фокусировалось на быстродействующий германиевый фотодиод.

Научный центр лазерных материалов и технологий Института общей физики им. А.М.Прохорова РАН, Россия, 119991 Москва, ул. Вавилова, 38; e-mail: zverev@lst.gpi.ru

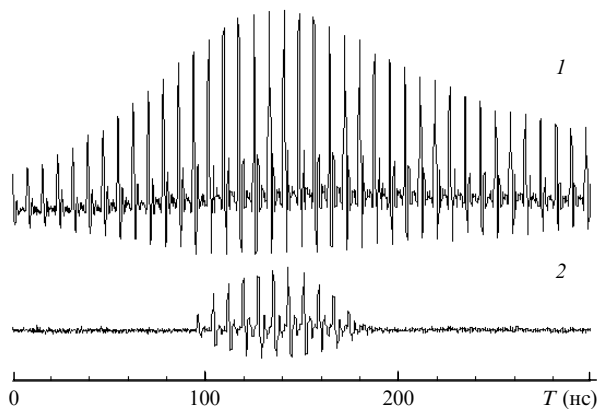


Рис.2. Осциллограммы импульсов накачки (1) и стоксова излучения (2).

На рис.2 представлены осциллограммы импульсов накачки и стоксова излучения, полученные с помощью цифрового осциллографа от одной вспышки лазера. Опорный и регистрирующий фотодиоды были прокалиброваны с помощью пироприемника Molectron J3-05, что позволяло определить энергию в отдельных пикосекундных импульсах пуга накачки и рассеянного излучения, а также оценить эффективность ВКР для отдельных пикосекундных импульсов.

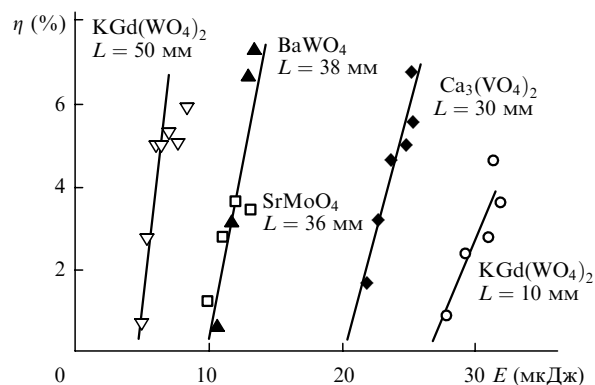
Временные параметры импульсов рассеянного и возбуждающего излучений измерялись разработанной в ИОФАНе электрооптической камерой IMACON-501 с разрешением $\sim 2-3$ пс, сопряженной с кремниевой CCD-матрицей. Измеренная длительность импульсов накачки была около 15 пс и слабо менялась по пугу. Спектральный состав излучения накачки и рассеянного излучения анализировался полихроматором PGS-2 с помощью сопряженной CCD-матрицы. Отметим, что ранее в аналогичном пикосекундном лазере был экспериментально обнаружен и исследован нелинейный чирп частоты генерации, т.е. свипирование частоты в пределах огибающей пикосекундного импульса [4]. В нашем лазере на кристалле $\text{Nd}^{3+}:\text{CLNGG}$ ширина спектра излучения составляла $30-40 \text{ см}^{-1}$. Пикосекундные импульсы не были спектрально ограничены, что указывает на уширение суммарного спектра генерации вследствие фазовой самомодуляции излучения и возможное существование субпикосекундной временной структуры в отдельных импульсах. Каждый из этих эффектов может влиять на эффективность ВКР-генерации, что усложняет количественные оценки коэффициента ВКР-усиления в кристаллах.

В наших экспериментах исследовались образцы кристаллов SrMoO_4 (длиной $L = 36$ мм), $\text{Ca}_3(\text{VO}_4)_2$ (30 мм), BaWO_4 (38 мм) и $\text{KGd}(\text{WO}_4)_2$ (50 и 10 мм). В последнем случае поляризация излучения накачки соответствовала возбуждению ВКР со сдвигом 901 см^{-1} . В табл.1 пред-

Табл.1. Спектроскопические характеристики ВКР-активных колебаний исследованных кристаллов.

Кристалл	$\Omega_R (\text{см}^{-1})$	$\Delta\Omega_R (\text{см}^{-1})$	$T_2 (\text{пс})^{**}$
BaWO_4	925	1.6	6.6
SrMoO_4	888	2.8	3.8
$\text{KGd}(\text{WO}_4)_2$	901	5.4	2.0
$\text{Ca}_3(\text{VO}_4)_2$	854	$\sim 47^*$	—

* неоднородно-уширенная линия; ** величина, оцененная из ширины линии.

Рис.3. Зависимости эффективности ВКР η в стоксовы компоненты от энергии пикосекундных импульсов накачки E .

ставлены спектроскопические характеристики ВКР-активных колебаний исследованных кристаллов [2]. Из энергетических зависимостей эффективности стоксова излучения на переднем фронте пуга накачки были определены пороговые значения энергии накачки для ВКР в исследованных образцах (рис.3). Эффективность определялась как отношение энергии стоксова излучения к падающей энергии накачки. Как будет показано ниже, учет пикосекундных импульсов накачки из средней и задней частей пуга приводит к ошибке в измерении пороговых значений ВКР. Экспериментально измеренные пороговые энергии накачки для ВКР E_{th} и параметры $E_{th}L$, качественно характеризующие усиление, приведены в табл.2.

Кристалл $\text{KGd}(\text{WO}_4)_2$ известен как наиболее эффективный материал для ВКР пикосекундных импульсов вплоть до длительности менее 1 пс [5, 6]. Наши экспериментальные исследования показали, что пороги ВКР-генерации в кристалле $\text{KGd}(\text{WO}_4)_2$ длиной 50 и 10 мм составили 5 и 27 мкДж, что с хорошей точностью свидетельствует об обратной пропорциональной зависимости порога от длины кристалла.

Кристалл BaWO_4 является одним из наиболее эффективных нелинейных кристаллов для нано- и субмикросекундного ВКР [3, 7]. Он обладает узкой ВКР-активной модой с высоким пиковым сечением. Однако в работе [8] отмечалось, что для пикосекундных импульсов возбуждения длительностью 40 пс коэффициент ВКР-усиления в кристалле BaWO_4 уменьшался приблизительно в 3 раза вследствие перехода к нестационарному режиму. В этом случае параметр $E_{th}L$ для этого кристалла оказывался таким же, как и у кристалла $\text{KGd}(\text{WO}_4)_2$. В нашем эксперименте при возбуждении более короткими импульсами параметр $E_{th}L$ для кристалла BaWO_4 был в 1.5 раза выше, чем в $\text{KGd}(\text{WO}_4)_2$ и составлял 38 мкДж·см, что свидетельствует о большей нестационарности процесса ВКР в BaWO_4 по сравнению с [8].

Табл.2. Пороговые энергии накачки E_{th} для ВКР и параметры $E_{th}L$ в исследованных кристаллах.

Кристалл	L (мм)	E_{th} (мкДж)	$E_{th}L$ (мкДж·см)
$\text{KGd}(\text{WO}_4)_2$	50	5	25
$\text{KGd}(\text{WO}_4)_2$	10	27	27
BaWO_4	38	10	38
SrMoO_4	36	10	36
$\text{Ca}_3(\text{VO}_4)_2$	30	20	60

В настоящей работе впервые получено ВКР в нелинейных кристаллах SrMoO_4 и $\text{Ca}_3(\text{VO}_4)_2$. Кристалл молибдата стронция со структурой шеелита является перспективным лазерным материалом, допускающим активацию редкоземельными ионами с коэффициентом распределения до единицы. Частота ВКР-активного колебания в нем равна 888 см^{-1} , что несколько ниже, чем в BaWO_4 , а ширина линии – 2.8 см^{-1} , что в 1.8 раз больше, чем в BaWO_4 (табл.1). Привлекательность данного кристалла – в его технологичности: он может быть выращен с использованием доступных материалов в платиновых тиглях на воздухе со скоростью до $9 \text{ см}^3/\text{ч}$. Параметр $E_{\text{th}}L$ в нем равен $36 \text{ мкДж}\cdot\text{см}$, что близко к значению, полученному для BaWO_4 . Сравнение пиковых и интегральных сечений спонтанного комбинационного рассеяния (σ_{peak} и σ_{int}) [9] показало, что в кристаллах SrMoO_4 и BaWO_4 значения σ_{int} близки, в то время как σ_{peak} существенно отличаются из-за различия ширин линий. Близкие значения $E_{\text{th}}L$ коррелируют с близкими интегральными сечениями рассеяния и свидетельствуют о нестационарном характере ВКР в обоих кристаллах.

Пониженное значение порога ВКР для кристаллов $\text{KGd}(\text{WO}_4)_2$ по сравнению с BaWO_4 и SrMoO_4 при известном равенстве их интегральных сечений рассеяния [9] указывает на промежуточный характер ВКР преобразования (переходный между стационарным и нестационарным) в данных экспериментальных условиях и коррелирует с наименьшей величиной времени дефазировки в кристалле $\text{KGd}(\text{WO}_4)_2$, в котором $T_2 = 2 \text{ пс}$.

Кристалл $\text{Ca}_3(\text{VO}_4)_2$ является высокотемпературным сегнетоэлектриком и может быть интересен также для преобразования частот лазерного излучения в диапазоне длин волн $1.7 - 2.9 \text{ мкм}$. В работах [10, 11] отмечалось, что он обладает повышенной лучевой стойкостью к воздействию лазерного излучения и может быть активирован ионами редкоземельных элементов. В данном кристалле наблюдается максимальный среди исследованных кристаллов параметр $E_{\text{th}}L = 60 \text{ мкДж}\cdot\text{см}$. Из табл.1 видно, что в данном кристалле наблюдается самая широкая линия ($\Delta\Omega_R \sim 47 \text{ см}^{-1}$) ВКР-активного колебания с частотой $\Omega_R = 854 \text{ см}^{-1}$, что может указывать на малое время

фазовой релаксации колебательного возбуждения, стационарный характер ВКР и возможную перспективность использования данного кристалла для ВКР субпикосекундных лазерных импульсов.

На рис.4 представлены две типичные энергетические зависимости эффективности ВКР в кристалле SrMoO_4 , измеренные в относительно малом и в большом диапазонах энергий накачки, изменяющиеся при постановке нейтральных фильтров в пучок накачки. В первом случае наблюдался практически линейный режим ВКР-усиления, во втором имело место насыщение процесса ВКР-генерации. Характерной особенностью обеих зависимостей является гистерезис – различие эффективности преобразования в стоксово излучение при одних и тех же энергиях накачки из начальной (нарастающей) половины пуга импульса накачки и из конечной (спадающей). При этом рост общей энергии пуга накачки приводит к увеличению площади петли гистерезиса.

Похожее явление наблюдалось ранее при исследовании ВКР в жидкостях [12] и связывалось как с возможным изменением τ_p вдоль пуга, так и с температурной дефокусировкой в жидкости. В нашем лазере τ_p и спектр импульса слабо меняются вдоль пуга (аналогично [4]). Кроме того, это изменение пренебрежимо мало для трех – пяти соседних импульсов на вершине пуга импульсов накачки (рис.2,а). Тем не менее в линейном режиме ВКР, при слабом превышении пороговой энергии (см. рис.4) также имеет место слабая бистабильность. Отметим, что в наших экспериментах наблюдался различный характер петли гистерезиса для разных исследованных кристаллов. Обнаруженная бистабильность может рассматриваться для применений в оптоэлектронных системах при создании быстрых (наносекундных) оптических переключателей частотных каналов и, по-видимому, связана с нелинейными свойствами самих исследованных кристаллов.

Разработка технологии выращивания активированных кристаллов SrMoO_4 при сохранении высокой лучевой стойкости материала позволит создать лазеры с ВКР-самопреобразованием излучения в самой активной лазерной среде.

3. Выводы

Таким образом, в работе предложена экспресс-методика исследования порогов ВКР-генерации в кристаллах при их возбуждении длинными пугами пикосекундных импульсов лазера. Впервые получена ВКР-генерация в кристаллах SrMoO_4 и $\text{Ca}_3(\text{VO}_4)_2$, которая сравнивается с ВКР в известных нелинейных кристаллах BaWO_4 и $\text{KGd}(\text{WO}_4)_2$. Проведенные лазерные эксперименты по измерению пороговой энергии накачки при возбуждении импульсами длительностью 15 пс позволили установить, что для нестационарного режима коэффициенты ВКР-усиления кристаллов SrMoO_4 и BaWO_4 близки по величине. Кристалл $\text{Ca}_3(\text{VO}_4)_2$ обладает максимальным порогом накачки ВКР среди исследованных кристаллов, однако вследствие наличия широкой ВКР-активной моды он может быть перспективен для эффективного преобразования субпикосекундных лазерных импульсов. В процессе исследований обнаружен эффект бистабильности ВКР-преобразования в кристаллических средах в наносекундном интервале времен относительно положения импульсов в пуге накачки.

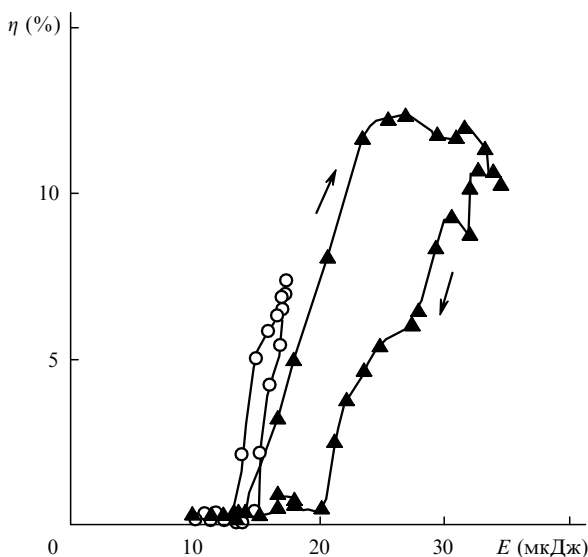


Рис.4. Зависимость эффективности ВКР η от энергии накачки E в кристалле SrMoO_4 при малом (○) и большом (▲) превышении порога ВКР.

Работа выполнена при частичной финансовой поддержке EOARD и МНТЦ (контракт № 2022р) и РФФИ (проекты № 02-02-81003 и 03-02-17309).

1. Басиев Т.Т. *УФН*, **169**, 1149 (1999).
2. Basiev T.T., Sobol A.A., Zverev P. G., Osiko V.V., Powell R.C. *Appl. Opt.*, **38**, 594 (1999).
3. Зверев П.Г., Басиев Т.Т., Соболев А.А., Скорняков В.В., Ивлева Л.И., Полозков Н.М., Осико В.В. *Квантовая электроника*, **30**, 55 (2000).
4. Basiev T.T., Es'kov N.A., Osiko V.V., Sobol A.A., Helbig M., Ushakov S.N., Karasik A.Ya. *Opt. Lett.*, **17**, 201 (1992).
5. Иванюк А.М., Тер-Погосян М.А., Шавердов П.А., Беляев В.Д., Ермолаев В.Л., Тихонова Н.П. *Оптика и спектроскопия*, **59**, 950 (1985).
6. Андрионас К., Вищакас Ю., Кабелка В., Мочалов И.В., Павлюк А.А., Петровский Г.Т., Сырус В. *Письма в ЖЭТФ*, **42**, 333 (1985).
7. Zverev P.G., Basiev T.T., Sobol A.A., Ermakov I.V., Gellerman W. In: *Advanced Solid-State Lasers, OSA Techn. Digest* (Washington DC: OSA, 2001, p. 124).
8. Cerny P., Zverev P.G., Jelinkova H., Basiev T.T. *Opt. Commun.*, **177**, 397 (2000).
9. Basiev T.T., Sobol A.A., Voronko Yu.K., Zverev P.G. *Opt. Mater.*, **15**, 205 (2000).
10. Андреев И.А., Ивлева Л.И. *ФТТ*, **23**, 3721 (1981).
11. Ивлева Л.И., Кузьминов Ю.С. *Изв. АН СССР. Сер. физич.*, **47**, 395 (1983).
12. Остон Д. В кн. *Сверхкороткие световые импульсы*. Под ред. С.Шапиро (М.: Мир, 1980, с.166).