

## Вынужденное комбинационное рассеяние в кристаллах в условиях фазомодулированной пикосекундной накачки

Т.Т.Басиев, П.Г.Зверев, А.Я.Карасик, Д.С.Чунаев

*Исследован процесс возникновения гистерезиса в зависимости эффективности нестационарного ВКР от энергии пикосекундного лазерного возбуждения. К возникновению гистерезиса приводит частотно-фазовая модуляция лазерного излучения, влияющая на изменение коэффициента ВКР-усиления при изменении степени модуляции.*

**Ключевые слова:** вынужденное комбинационное рассеяние, фазовая самомодуляция, пикосекундные импульсы, chirпированные лазерные импульсы.

Твердотельные лазеры, работающие в импульсном режиме пассивной синхронизации мод, как правило, излучают фазомодулированные импульсы [1]. Фазовая самомодуляция (ФСМ) приводит к сканированию частоты и соответственно уширению спектра импульсов лазера и таким образом может влиять на характеристики нелинейных процессов при использовании этих лазеров в качестве источников излучения, инициирующих нелинейные оптические процессы. Теоретически влияние фазо (частотно)-модулированного (чирпированного) излучения накачки на процесс ВКР исследовалось, например, в [2–4]. Обзор экспериментальных работ по ВКР в данном направлении можно найти в [1].

В частности, в работе [5] при возбуждении различных жидкостей цугом пикосекундных импульсов лазера на стекле с неодимом было замечено, что коэффициент ВКР-усиления уменьшается к концу цуга импульсов предположительно из-за уширения спектра лазерных импульсов вследствие ФСМ или из-за увеличения длительности импульсов. В [6] различие эффективностей преобразования накачки в комбинационное излучение пикосекундных импульсов из передней и задней частей цуга связывалось с инерционным эффектом тепловой самофокусировки в жидкости. Нелинейное ВКР в комбинации с ФСМ в условиях, когда начальный диапазон сканирования частоты накачки расширяется при генерации ВКР [7], может приводить к трансформации спектральных и временных параметров вынужденного комбинационного излучения и излучения накачки [4, 8]. В неорганических кристаллах, обладающих отличными от жидкостей и газов теплофизическими и спектроскопическими свойствами, роль ФСМ в процессе ВКР изучена недостаточно полно, и необходимы дальнейшие систематические исследования в этом направлении.

В [9] при накачке оксидных кристаллов  $\text{BaWO}_4$ ,  $\text{SrMoO}_4$ ,  $\text{KGd}(\text{WO}_4)_2$ ,  $\text{Ca}_3(\text{VO}_4)_2$  цугами пикосекундных

импульсов был обнаружен гистерезис в зависимости эффективности нестационарного ВКР от энергии накачки, проявляющийся в изменении эффективности при накачке импульсами одинаковой амплитуды из передней и задней частей цуга полушириной  $\sim 300$  нс. Проявившийся гистерезис трактовался как возможная бистабильность материала. Однако для выявления истинного механизма данного явления в первую очередь необходимо выявить роль параметров излучения лазерной накачки при ВКР.

В качестве источника накачки мы выбрали лазеры с пассивной синхронизацией мод на активных кристаллических элементах из разупорядоченного  $\text{CaLiNbGa}$ -граната (CLNKG) и  $\text{YLiF}_4$  (YLF), легированных ионами  $\text{Nd}^{3+}$ . Лазер на разупорядоченном гранате с насыщающимся поглотителем (краситель № 3274) исследовался нами в [9, 10], где было показано, что спектр пикосекундных импульсов ( $\lambda = 1060$  нм) уширен вследствие ФСМ до  $50 \text{ см}^{-1}$ . Заменяя в том же резонаторе активный элемент из CLNKG:  $\text{Nd}^{3+}$  на активный элемент из YLF:  $\text{Nd}^{3+}$ , мы измерили параметры лазерного излучения.

На рис.1 представлен цуг импульсов YLF-лазера с  $\lambda = 1047$  нм, длительность которого близка к таковой для CLNKG-лазера. Отметим, что энергия излучения в обоих лазерах была равна  $\sim 1.5$  мДж. Длительность импульсов YLF-лазера  $\tau$ , измеренная с помощью элект-

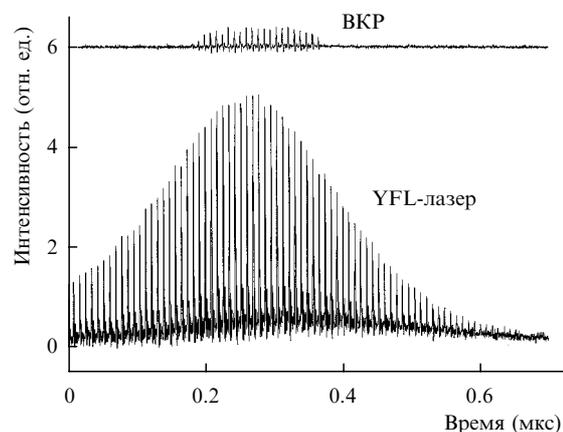


Рис.1. Осциллограммы излучения YLF-лазера накачки и ВКР в кристалле  $\text{PbMoO}_4$ .

Т.Т.Басиев, П.Г.Зверев, А.Я.Карасик, Д.С.Чунаев. Научный центр лазерных материалов и технологий Института общей физики им. А.М.Прохорова РАН, Россия, 119991 Москва, ул. Вавилова, 38; e-mail: karasik@lst.gpi.ru

Поступила в редакцию 25 февраля 2004 г., после доработки – 10 июня 2004 г.

ронно-оптической камеры IMACON-501, составила 11 пс на  $\lambda = 1047$  нм и практически не менялась на длине волны второй гармоники 523.5 нм. Ширина спектра излучения этого лазера, измеренная с помощью полихроматора PGS-2 и CCD-матрицы на частоте второй гармоники,  $\Delta\lambda = 0.062$  нм ( $\Delta\nu = 2.26$  см<sup>-1</sup>). Произведение  $\Delta\nu\tau = 0.74$  превышает значение 0.44, характерное для спектрально ограниченных гауссовых импульсов [1], и свидетельствует о том, что импульсы YLF-лазера не были полностью спектрально ограничены из-за некоторого уширения их спектра. По сравнению с CLNNGG-лазером, в котором спектр импульсов близкой длительности (15 пс) уширяется в 15–20 раз сильнее ( $\Delta\nu = 30 - 50$  см<sup>-1</sup>), эффект ФСМ в YLF-лазере мал, что, очевидно, связано с относительно малым нелинейным показателем преломления  $n_2$  в кристаллах фторидов.

Методика измерения параметров нестационарного ВКР описана в [9]. Излучение лазера, сфокусированное с помощью вогнутого зеркала в исследуемый образец, и рассеянное из образца после коллимирующей линзы и дихроичного фильтра, отсекающего излучение накачки, попадали на калиброванные быстродействующие германиевые фотодиоды. За одну лазерную вспышку с помощью быстрого цифрового осциллографа синхронно измерялась энергия в отдельных пикосекундных импульсах цуга накачки и цуга рассеянного излучения, что позволяло определять зависимость эффективности каждого импульса ВКР от энергии импульса накачки как отношение их энергий.

На рис.2 представлены зависимости эффективности нестационарного ВКР в кристалле PbMoO<sub>4</sub> длиной  $L = 30$  мм от энергии импульсов накачки CLNNGG- и YLF-лазеров. В обоих случаях энергия лазерной накачки варьировалась нейтральными фильтрами от уровня, достаточ-

ного для возбуждения первой стоксовой компоненты ВКР, до уровня, достаточного для возникновения каскадной генерации высших стоксовых компонент и самофокусировки излучения. При накачке кристаллов излучением YLF-лазера фокусировка была более острой, что привело к снижению пороговой энергии накачки ВКР (рис.2,б) по сравнению с таковой при накачке CLNNGG-лазером (рис.2,а). При обеих накачках наблюдается монотонный рост эффективности ВКР при последовательном увеличении энергии в передней части лазерного цуга импульсов с последующим выходом на насыщение. Однако при накачке кристалла излучением CLNNGG-лазера в зависимости эффективности ВКР от энергии накачки появляется гистерезис, проявляющийся в уменьшении ВКР-усиления при переходе от накачки импульсами передней (фронт) к накачке импульсами задней (спад) части цуга (рис.2,а). В аналогичной зависимости при накачке кристалла импульсами YLF-лазера гистерезис практически не наблюдается (рис.2,б).

С целью обобщения данного явления мы, используя накачку нелинейных кристаллов излучением CLNNGG- и YLF-лазеров, измерили подобные зависимости в ряде оксидных кристаллов с существенно разными коэффициентами ВКР-усиления и временами оптической дефазировки молекулярных колебаний ( $T_2 = 1.18 - 26.5$  пс) [9]: Ba(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>, BaWO<sub>4</sub>, SrWO<sub>4</sub>, CaWO<sub>4</sub>, PbWO<sub>4</sub>, BaMoO<sub>4</sub>, SrMoO<sub>4</sub>, CaMoO<sub>4</sub>, PbMoO<sub>4</sub>, TeO<sub>2</sub>, NaClO<sub>3</sub> и NaBrO<sub>3</sub>. Для всех кристаллов эти зависимости оказались аналогичными зависимости для кристалла PbMoO<sub>4</sub>. При накачке импульсами CLNNGG-лазера гистерезис имел место для всех кристаллов и практически отсутствовал при накачке кристаллов импульсами YLF-лазера. Последовательное увеличение энергии накачки, ведущее к каскадной ВКР-генерации высших стоксовых компонент, не приводило к контролируемому изменению петли гистерезиса.

Рассмотрим причины, которые могут вызвать появление гистерезиса при ВКР-усилении. Как следует из теории [2], коэффициенты усиления нестационарного ВКР при накачке нелинейной среды фазомодулированным импульсным излучением и импульсами без фазовой модуляции должны различаться. При этом коэффициенты усиления при нечирпированной накачке должны превышать коэффициенты усиления в случае чирпированной накачки при прочих равных условиях. Тогда изменение степени фазовой модуляции для разных импульсов цуга лазерной накачки должно привести к соответствующей вариации коэффициента ВКР-усиления для этих импульсов и, следовательно, к наблюдаемому гистерезису (рис.2).

В [10] мы исследовали динамику изменения длительности и ширины спектра пикосекундных импульсов в используемом в настоящей работе лазере на основе разупорядченного граната с неодимом. Было показано, что вследствие нарастающей ФСМ в последовательности лазерных импульсов возникает усиливающийся чирп частоты, в результате чего ширина спектра импульса монотонно увеличивается при переходе от импульсов передней к импульсам задней части цуга. Таким образом, в соответствии с [2] применение подобного лазера в качестве источника накачки ВКР должно приводить к уменьшению коэффициента ВКР-усиления или к гистерезису эффективности ВКР при накачке нелинейной среды импульсами одной амплитуды из передней и задней частей цуга (рис.2,а). Использование для возбуждения ВКР в

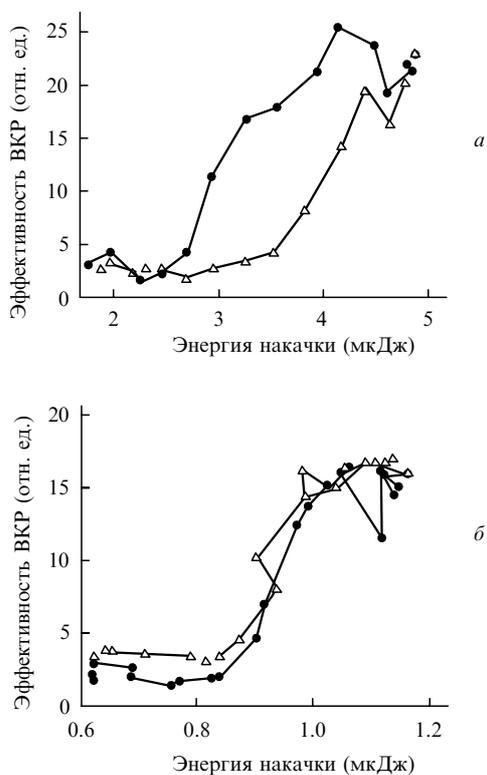


Рис.2. Зависимости эффективности нестационарного ВКР в кристалле PbMoO<sub>4</sub> от энергии импульсов накачки CLNNGG- (а) и YLF-лазеров (б) при накачке импульсами из передней (●) и задней (△) частей цуга.

исследованных кристаллах цуга близких к спектрально ограниченному импульсов YLF-лазера не приводит к заметному гистерезису в аналогичной зависимости (рис. 2, б). Энергия импульсов накачки ВКР в наших экспериментах менялась с помощью нейтральных фильтров в широких пределах. Однако увеличение энергии в два-три раза выше пороговой приводило к возникновению каскадной генерации ВКР, а также к параметрической четырехфотонной стокс-антискосовой генерации [1]. Данные эффекты затрудняют исследование изменения характера петли гистерезиса при более широком изменении энергии накачки.

Интенсивность стоксовой волны не только определяется зависимостью коэффициента ВКР-усиления от ФСМ излучения накачки, но и, как следует из теории [3], должна зависеть от ширины спектра лазерных импульсов  $\Delta\nu$  при частотно-модулированной накачке. Тогда интенсивность стоксовой волны в нестационарном случае должна быть пропорциональна  $(\Delta\nu T_2)^{-1}$ , что обусловлено уменьшением пиковой интенсивности исходного спонтанного рассеяния при уширении спектра излучения накачки.

Для выяснения влияния ширины спектра chirпированного излучения накачки на интенсивность спонтанного комбинационного рассеяния и, как следствие, на интенсивность ВКР, мы сравнили процесс ВКР в кристаллах Ва(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub> ( $T_2 = 26.5$  пс) и РbМО<sub>4</sub> ( $T_2 = 1.77$  пс). Длительность импульсов накачки CLNCG-лазера  $\tau = 15$  пс меньше  $T_2$  для Ва(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub> и много больше  $T_2$  для РbМО<sub>4</sub>. Тем не менее при столь большой разнице в значениях  $T_2$  и существенно разных пороговых энергиях возбуждения ВКР для исследованных кристаллов характер петли гистерезиса эффективности ВКР для Ва(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub> был аналогичен характеру петли гистерезиса для РbМО<sub>4</sub> (рис.2).

Проведенное нами сравнение двух механизмов, которые могут привести к гистерезису эффективности ВКР, позволяет сделать вывод о том, что именно частотно-фазовая модуляция излучения CLNCG-лазера, ответственная за изменение коэффициента нестационарного ВКР-усиления, и приводит к наблюдаемому гистерезису в зависимости эффективности ВКР от энергии накачки.

В заключение отметим, что возможность изменения частотно-фазовой модуляции лазерного излучения позволяет управлять коэффициентом ВКР-усиления, в частности вплоть до полного подавления ВКР. Продемонстрированный в данной работе метод исследования параметров ВКР может оказаться полезным и для исследования характеристик собственно лазерного излучения, а именно динамики частотно-фазовой модуляции в процессе генерации сверхкоротких импульсов.

Работа частично поддержана грантами МНТЦ ЕОАРД № 2022Р и РФФИ № 03-02-17309, 04-02-17004.

1. *Сверхкороткие световые импульсы*. Под ред. С.Шапиро (М.: Мир, 1980, с. 123).
2. Carman R.L., Shimizu F., Bloembergen N., et al. *Phys. Rev. A*, **2**, 60 (1970).
3. Ахманов С.А., Драбович К.Н., Сухоруков А.П., Чиркин А.С. *ЖЭТФ*, **59**, 485 (1970).
4. Дианов Е.М., Карасик А.Я., Мамышев П.В. и др. *ЖЭТФ*, **89**, 781 (1985).
5. Colles M.J. *Opt. Commun.*, **1**, 169 (1969).
6. Alfano R.R., Shapiro S.L. *Phys. Rev. A*, **2**, 2376 (1970).
7. Луговой В.Н. *ЖЭТФ*, **57**, 1307 (1976).
8. Дианов Е.М., Карасик А.Я., Мамышев П.В. и др. *Письма в ЖЭТФ*, **39**, 564 (1984).
9. Зверев П.Г., Карасик А.Я., Басиев Т.Т. и др. *Квантовая электроника*, **33** (4), 331 (2003).
10. Basiev T.T., Es'kov N.A., Karasik A.Ya., et al. *Opt. Lett.*, **17**, 201 (1992).