

**НЕЛИНЕЙНО-ОПТИЧЕСКИЕ ЯВЛЕНИЯ**

PACS 42.65.Dr; 42.65.Ky; 42.70.Mr

**Реализация синхронизма четырехволнового смешения частотных компонент излучения при внутрирезонаторном вынужденном комбинационном рассеянии в кристалле кальцита****С.Н.Сметанин, А.В.Федин, А.С.Шурыгин**

*Теоретически и экспериментально исследованы возможности реализации синхронизма четырехволнового смешения (ЧВС) при вынужденном комбинационном рассеянии (ВКР) в двулучепреломляющем ВКР-активном кристалле, помещенном в резонатор с высокоотражающими зеркалами. Определены углы синхронизма для кристалла кальцита, соответствующие выполнению синхронизма пяти типов, которые различаются сочетанием направлений поляризации взаимодействующих волн и обеспечивают ЧВС-генерацию либо антистоксовой волны, либо второй стоксовой ВКР-компоненты излучения. В согласии с расчетом при углах падения на кристалл кальцита  $4.8^\circ$  и  $18.2^\circ$  и ВКР-накачке на длине волны  $0.532$  мкм зарегистрирована низкопороговая генерация второй стоксовой ВКР-компоненты с длиной волны  $0.602$  мкм, обусловленная ЧВС-связью первой и второй стоксовых ВКР-компонент излучения с волной ВКР-накачки.*

**Ключевые слова:** вынужденное комбинационное рассеяние, четырехволновое смешение, векторный синхронизм, двулучепреломляющий ВКР-активный кристалл.

**1. Введение**

Впервые ВКР-эффекты в твердом теле были реализованы на кристаллах кальцита, алмаза и  $\alpha$ -серы [1]. Несмотря на большую дисперсию показателя преломления, препятствующую выполнению синхронизма четырехволнового смешения (ЧВС) при ВКР, в первых же работах по ВКР в кальците (напр., [2]) была обнаружена параметрическая связь ВКР-компонент излучения при векторном синхронизме ЧВС между лазерной, стоксовой и антистоксовой волнами, обуславливающая внеосевую генерацию антистоксовых волн. Внеосевая комбинационно-параметрическая антистоксова генерация наблюдалась также в жидкостях и газах [3, 4]. Сейчас этот эффект широко используется в спектроскопии комбинационного рассеяния света [5]. В ряде работ при возбуждении ВКР в различных средах наблюдалась также коллинеарная комбинационно-параметрическая генерация как антистоксовых [6], так и стоксовых [7–10] волн, которая объясняется пространственно-ограниченным захватом фаз параметрически связываемых волн при расстройке синхронизма ЧВС [11, 12]. В работах [13–15] для реализации точного синхронизма комбинационно-параметрической генерации применялась бигармоническая накачка. В [13, 14] волны накачки направлялись под определенным углом друг другу, соответствующим векторному синхронизму ЧВС, при котором генерировалась антистоксова или стоксова волна. В [15] использовалась коллинеарная бигармоническая накачка маломодового оптоволокна, а расстройка синхронизма ЧВС при ВКР компенсировалась волновод-

ной дисперсией, что приводило к коллинеарной стоксовой и антистоксовой комбинационно-параметрической генерации.

В 1966 г. Джордмэйн и Кайзер предложили оригинальный метод точного выполнения синхронизма ЧВС при ВКР в кристаллах [16] для генерации как антистоксовых, так и стоксовых волн, и реализовали его в кристалле кальцита. Использовалась бигармоническая накачка на длинах волн ортогонально поляризованных первой и второй гармоник рубинового лазера, которые направлялись в ВКР-кристалл под определенными углами, обеспечивающими коллинеарное распространение внутри него взаимодействующих ортогонально поляризованных пучков ВКР-компонент излучения, что обеспечивало поддержание синхронизма ЧВС.

Недавно был предложен метод [17] выполнения волнового синхронизма частично вырожденных и невырожденных по частоте четырехволновых взаимодействий ВКР-компонент излучения в двулучепреломляющих ВКР-активных кристаллах, обеспечивающий генерацию антистоксовых волн, а также позволяющий существенно снизить пороги генерации высших стоксовых ВКР-компонент излучения при использовании только одной волны накачки. Было показано, что условия синхронизма ЧВС выполняются в определенных направлениях внутри двулучепреломляющего кристалла при коллинеарном распространении ортогонально поляризованных ВКР-компонент излучения. Предложенный метод выгодно отличается от метода Джордмэйна и Кайзера [16] тем, что требует для ЧВС при ВКР наличия только одной волны накачки вместо двух. Он также отличается от известной схемы комбинационно-параметрического лазера [18, 19], в котором используется единственная волна накачки, но накачка осуществляется под определенным углом к оси резонатора, соответствующим векторному синхронизму ЧВС при ВКР.

В настоящей работе реализован синхронизм четырехволнового смешения ВКР-компонент излучения в кристалле кальцита, помещенном во внешний резонатор с

С.Н.Сметанин. Институт общей физики им. А.М.Прохорова РАН, Россия, 119991 Москва, ул. Вавилова, 38; e-mail: ssmetanin@bk.ru  
А.В.Федин, А.С.Шурыгин. Ковровская государственная технологическая академия им. В.А.Дегтярева, Россия, Владимирская обл., 601910 Ковров, ул. Маяковского, 19; e-mail: a\_fedin@list.ru

Поступила в редакцию 11 октября 2012 г., после доработки – 14 декабря 2012 г.

высокоотражающими зеркалами, при накачке вдоль оси резонатора второй гармоникой Nd:YAG-лазера (длина волны 0.532 мкм). При определенных углах поворота кристалла кальцита зарегистрировано снижение порога ВКР-генерации второй стоксовой ВКР-компоненты до порога ВКР-генерации первой стоксовой ВКР-компоненты, что обусловлено ЧВС-связью данных компонент с волной накачки.

## 2. Коллинеарный синхронизм ЧВС в двулучепреломляющем ВКР-кристалле

Сначала необходимо определить направления в двулучепреломляющем ВКР-кристалле, в которых может быть реализован синхронизм четырехволнового смещения ВКР-компонент излучения.

Как показано в [17], для частично вырожденного по частоте процесса ЧВС  $j$ -го порядка волновой синхронизм в двулучепреломляющем кристалле определяется соотношением для волновых векторов

$$k_{j-1}^{o,e} - k_j^{o,e} = k_j^{o,e} - k_{j+1}^{o,e}. \quad (1)$$

Здесь  $j$  – номер ВКР-компоненты излучения, являющейся волной ЧВС-накачки  $j$ -го процесса ЧВС ( $j < 0$  – антистоксова волна,  $j > 0$  – стоксова волна,  $j = 0$  – волна ВКР-накачки);  $j - 1$  и  $j + 1$  – номера соседних ВКР-компонент излучения, являющихся сигнальной и холостой волнами соответственно в процессе ЧВС  $j$ -го порядка. Верхние индексы отвечают обыкновенной (о) либо необыкновенной (е) волне в кристалле. Определенное сочетание верхних индексов для четырех волновых векторов в выражении (1) определяет тип синхронизма ЧВС. Как было показано в работе [20], существуют пять возможных сочетаний верхних индексов, т. е. имеются пять типов синхронизма ЧВС, которые можно обозначить следующим образом: тип I – сочетание оооо или оеее (очередность индексов соответствует очередности слагаемых в выражении (1)), тип II – сочетание ооое или ееео, тип III – сочетание еоое или оеое, тип IV – сочетание еоое или оеое, тип V – сочетание еоое или оеое. Отметим, что из-за частичного вырождения по частоте взаимодействующих волн в (1) сочетание еоое или ооое также относится к синхронизму типа III, а сочетание ееее или оооо – к синхронизму типа V, но для невырожденного по частоте ЧВС существуют семь возможных типов синхронизма.

В случае коллинеарного взаимодействия волн из-за дисперсии показателя преломления среды синхронизм (1) будет иметь волновую расстройку [12]

$$\Delta k_j = k_{j-1} + k_{j+1} - k_j - k'_j = (n_{j-1} + n_{j+1} - n_j - n'_j)2\pi\lambda_j^{-1} + (n_{j-1} - n_{j+1})2\pi\nu_R, \quad (2)$$

где  $k_j$ ,  $k_{j-1}$  и  $k_{j+1}$  – модули соответствующих волновых векторов;  $n_j$ ,  $n_{j-1}$  и  $n_{j+1}$  – показатели преломления соответствующих волн; значения  $k'_j$  и  $n'_j$  отличаются от значений  $k_j$  и  $n_j$  только для синхронизма типов III и V, где в ЧВС участвует как обыкновенная, так и необыкновенная волна ЧВС-накачки;  $\nu_R$  – комбинационная частота, измеряемая в  $\text{см}^{-1}$ ;  $\lambda_j = (\lambda_0^{-1} - j\nu_R)^{-1}$  – длина волны  $j$ -й ВКР-компоненты излучения. В выражении (2) для модулей волновых векторов и показателей преломления верхние

индексы (о или е) опущены, но в зависимости от их сочетания мы получим волновую расстройку (2) для каждого из пяти типов синхронизма.

Благодаря зависимости показателя преломления необыкновенных волн от направления распространения, в двулучепреломляющем кристалле существует направление синхронизма, в котором волновая расстройка (2) равна нулю. Для одноосного кристалла имеем [5, 21]

$$n_j^e(\Theta) = \frac{n_j^o n_j^e}{\sqrt{(n_j^o)^2 - [(n_j^o)^2 - (n_j^e)^2] \cos^2 \Theta}}, \quad (3)$$

где  $j$  – номер частотной компоненты ВКР-излучения, являющейся необыкновенной волной в кристалле;  $n_j^e(\Theta)$  – показатель преломления для данной волны, направленной под углом  $\Theta$  к оптической оси кристалла;  $n_j^o$  и  $n_j^e$  – главные значения показателей преломления одноосного кристалла для  $j$ -й частотной компоненты ВКР-излучения.

В настоящей работе объектом исследования является отрицательный одноосный ВКР-активный кристалл кальцита  $\text{CaCO}_3$  с комбинационной частотой  $\nu_R = 1086 \text{ см}^{-1}$  [22] и большим двулучепреломлением [23]:

$$(n_j^o)^2 = 1 + \frac{0.8559\lambda_j^2}{\lambda_j^2 - 0.0588^2} + \frac{0.833913\lambda_j^2}{\lambda_j^2 - 0.141^2} + \frac{0.0009\lambda_j^2}{\lambda_j^2 - 0.197^2} + \frac{0.6845\lambda_j^2}{\lambda_j^2 - 7.005^2}, \quad (4)$$

$$(n_j^e)^2 = 1 + \frac{1.0856\lambda_j^2}{\lambda_j^2 - 0.07897^2} + \frac{0.0988\lambda_j^2}{\lambda_j^2 - 0.142^2} + \frac{0.317\lambda_j^2}{\lambda_j^2 - 11.468^2}.$$

На рис.1 представлены зависимости угла  $\Theta_{\text{pm}}$  синхронизма ЧВС нулевого и первого порядков типа III в кристалле кальцита от длины волны излучения ВКР-накачки  $\lambda_0$ , рассчитанные при равенстве нулю волновой расстройки (2) с использованием формул (3) и (4). Зависимости для других типов синхронизма имеют сходный характер.

Нужно отметить, что синхронизм ЧВС нулевого порядка ( $j = 0$  в выражениях (1) и (2)) обеспечивает четырехволновую генерацию антистоксовой волны при ВКР, а синхронизм ЧВС первого порядка ( $j = 1$  в выражениях (1)

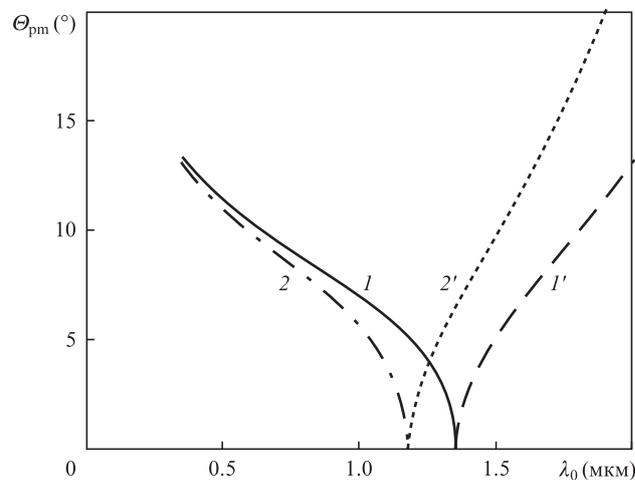


Рис.1. Расчетные зависимости направления  $\Theta_{\text{pm}}$  синхронизма ЧВС нулевого (1, 1') и первого (2, 2') порядков типа III (1 и 2 – еоое, 1' и 2' – оеое) в кристалле  $\text{CaCO}_3$  от длины волны излучения накачки  $\lambda_0$ .

Табл.1. Параметры коллинеарного синхронизма частично вырожденного ЧВС при ВКР в кристалле CaCO<sub>3</sub>.

Тип синхронизма	Процесс ЧВС нулевого порядка		Процесс ЧВС первого порядка	
	$\Theta_{pm}(\circ)$	$\Delta\Theta_{pm}(\circ)$ при $L = 2$ см	$\Theta_{pm}(\circ)$	$\Delta\Theta_{pm}(\circ)$ при $L = 2$ см
I (eooo)	2.753	0.073	2.725	0.079
II (oooe)	2.947	0.078	2.927	0.084
III (eoeo)	10.934	0.30	10.603	0.31
IV (eoee)	2.011	0.053	1.994	0.058
V (eoeo)	2.844	0.075	2.819	0.081

и (2)) – низкопороговую четырехволновую генерацию второй стоксовой ВКР-компоненты излучения [17].

Из рис.1 видно, что для синхронизма ЧВС нулевого порядка (кривые 1 и 1') угол синхронизма  $\Theta_{pm}$  уменьшается до нуля при длине волны излучения ВКР-накачки  $\lambda_0 = 1.351$  мкм, равной длине волны нулевой дисперсии  $\lambda_d$  кристалла кальцита. В области положительной дисперсии ( $\lambda_0 < \lambda_d$ ) реализуется синхронизм вида eoeo (кривая 1), а в области отрицательной дисперсии ( $\lambda_0 > \lambda_d$ ) – синхронизм вида oeee (кривая 1'), что характерно для отрицательных одноосных кристаллов – в отличие от положительных одноосных кристаллов, для которых в данных областях виды синхронизма меняются местами [17], и от двуосных кристаллов, для которых в данных областях могут наблюдаться оба вида синхронизма (eoeo и oeee).

Как видно из рис.1, зависимости для ЧВС первого порядка (кривые 2 и 2') имеют сходный характер, но  $\Theta_{pm} = 0$  при длине волны ВКР-накачки  $\lambda_0 = 1.178$  мкм, первая стоксова ВКР-компонента которой, являющаяся здесь волной ЧВС-накачки, имеет длину волны  $\lambda_1 = (\lambda_0^{-1} - \nu_R)^{-1} = 1.351$  мкм, равную  $\lambda_d$ . Это можно обобщить на синхронизм ЧВС любого ( $j$ -го) порядка, для которого  $\Theta_{pm} = 0$  при  $\lambda_j = \lambda_d$ .

Также из рис.1 видно, что в области положительной дисперсии при уменьшении длины волны зависимости для углов синхронизма нулевого и первого порядков (кривые 1 и 2) сходятся, а в области отрицательной дисперсии при увеличении длины волны соответствующие зависимости (кривые 1' и 2') расходятся.

В нашем эксперименте мы используем длину волны  $\lambda_0 = 0.532$  мкм (вторая гармоника Nd:YAG-лазера), для которой углы синхронизма нулевого (генерация антистоксовой волны) и первого (генерация второй стоксовой волны) порядков очень близки, поэтому процессы ЧВС-генерации антистоксовой и второй стоксовой ВКР-компонент должны происходить одновременно и конкурировать друг с другом. Обеспечение ЧВС-генерации антистоксовой волны требует подавления генерации второй стоксовой ВКР-компоненты, например путем внесения резонаторных потерь или увеличения длины волны ВКР-накачки, при котором углы синхронизма нулевого и первого порядков существенно различаются. В настоящей работе такая задача не ставилась, поэтому здесь мы реализуем ЧВС-генерацию второй стоксовой ВКР-компоненты излучения. Однако нужно отметить, что при синхронизме типа III различие между углами для ЧВС нулевого и первого порядков больше, чем при других типах синхронизма. Поэтому даже для коротких длин волн ВКР-накачки можно осуществить антистоксову ЧВС-генерацию с уменьшением длины волны и продвижением в УФ диапазон, к тому же кристалл кальцита, в отличие от большинства ВКР-активных кристаллов, прозрачен в ближнем УФ диапазоне. Эта возможность впервые была реализована в работе [16] при бигармонической накачке кристалла кальцита.

В табл.1 представлены расчетные значения углов синхронизма  $\Theta_{pm}$  и угловой ширины синхронизма  $\Delta\Theta_{pm} = 2\pi[(d\Delta k/d\Theta)_{\Theta=\Theta_{pm}}L]^{-1}$  [21] ( $L = 2$  см – длина ВКР-кристалла) для всех пяти типов синхронизма ЧВС нулевого (антистоксова генерация) и первого (генерация второй стоксовой ВКР-компоненты) порядков в кристалле кальцита при ВКР-накачке на длине волны  $\lambda_0 = 0.532$  мкм.

Из табл.1 видно, что при любом типе синхронизма углы синхронизма нулевого и первого порядков очень близки. Наибольшее их различие наблюдается при синхронизме типа III, который имеет аномально большие углы ( $\Theta_{pm} \sim 10.9^\circ$ ) и угловую ширину ( $\Delta\Theta_{pm} \sim 0.3^\circ$ ), т.е. данный тип синхронизма не столь критичен к угловой расстройке, что облегчает его обнаружение в эксперименте. Заметим, что в работе [16] под действием бигармонической накачки первой и второй гармониками рубинового лазера был экспериментально реализован именно этот тип синхронизма для невырожденного по частоте ЧВС при однопроходном ВКР в кристалле кальцита.

Из табл.1 также видно, что направления синхронизма  $\Theta_{pm}$  в кристалле CaCO<sub>3</sub> оказываются относительно близкими ( $\Theta_{pm} \sim 2-3^\circ$ ) к направлению оптической оси, что обусловлено очень большим ( $n_0^e - n_0^o \approx 0.17$ ) двулучепреломлением кристалла кальцита на длине волны 0.532 мкм. Как показано в работе [17], для кристалла SrWO<sub>4</sub>, двулучепреломление которого на той же длине волны на порядок меньше ( $n_0^e - n_0^o \approx 0.01$ ), угол синхронизма типа I для ЧВС нулевого порядка увеличивается до  $14.12^\circ$ , а для кристалла BaWO<sub>4</sub>, имеющего на той же длине волны еще на порядок меньшее двулучепреломление ( $n_0^e - n_0^o \approx 0.002$ ), этот угол возрастает до  $36.35^\circ$ . Синхронизма типа III (с наибольшим  $\Theta_{pm}$ ) в кристалле BaWO<sub>4</sub> с малым двулучепреломлением не существует.

Данные табл.1 могут быть использованы для осуществления коллинеарного ЧВС при однопроходном ВКР в кристалле CaCO<sub>3</sub>, а также коллинеарного ЧВС при ВКР в резонаторе, если кристалл вырезан под определенный тип синхронизма ( $\Theta_{pm}$ ) и точно съюстирован. При этом угловая ширина синхронизма  $\Delta\Theta_{pm}$  определяет максимально допустимую расходимость возбуждающего лазерного излучения.

### 3. Векторный синхронизм ЧВС в двулучепреломляющем кристалле при ВКР в резонаторе

Теперь можно обратиться к задаче реализации синхронизма ЧВС частотных компонент излучения при внутрирезонаторном ВКР.

В общем случае внутрирезонаторного ВКР задача поиска синхронизма ЧВС усложняется. Дело в том, что резонатор на зеркалах, отдельно отстоящих от ВКР-кристалла, задает одинаковое направление распространения для всех

ВКР-компонент излучения вне ВКР-кристалла, и если свет падает на ВКР-кристалл наклонно (например, из-за неточности его юстировки или изготовления), то внутри кристалла ВКР-компоненты распространяются неколлинеарно из-за различия в показателях преломления. Тогда можно ожидать, что при определенном угле падения света  $\alpha$  на ВКР-кристалл может реализовываться векторный синхронизм ЧВС, но на выходе кристалла (как и на входе) волны будут распространяться коллинеарно, если торцы кристалла параллельны. При этом существует возможность использования ВКР-кристалла с простой ориентацией, при которой его торцы перпендикулярны оптической оси, а наклонное падение света на кристалл обеспечит векторный синхронизм ЧВС. Тогда для уменьшения угла падения, соответствующего векторному синхронизму ЧВС, предпочтительнее выбирать кристалл с большим двулучепреломлением, у которого направление коллинеарного синхронизма имеет малый угол с оптической осью, например кристалл  $\text{CaCO}_3$  (см. табл. 1). В такой геометрии можно использовать также другие одноосные ВКР-активные кристаллы с большим двулучепреломлением, например положительные одноосные кристаллы  $\text{YVO}_4$  ( $n_0^e - n_0^o \approx 0.234$  при  $\lambda_0 = 0.532$  мкм [24]) и  $\text{GdVO}_4$  ( $n_0^e - n_0^o \approx 0.248$  при  $\lambda_0 = 0.532$  мкм [25]).

Для нахождения рабочего угла падения  $\alpha_{\text{pm}}$  условие синхронизма (1) дополняется условием коллинеарности распространения взаимодействующих волн в резонаторе вне нелинейного кристалла:

$$\alpha_j^{o,e} = \alpha_{j-1}^{o,e} = \alpha_{j+1}^{o,e} = \alpha_{\text{pm}}, \quad (5)$$

где  $\alpha_j^{o,e}$ ,  $\alpha_{j-1}^{o,e}$  и  $\alpha_{j+1}^{o,e}$  – углы падения на ВКР-кристалл волны ЧВС-накачки, сигнальной и холостой волн соответственно, направления поляризации которых соответствуют определенному типу синхронизма для обыкновенных и необыкновенных волн в кристалле;  $j = 0$  для ЧВС нулевого порядка и  $j = 1$  для ЧВС первого порядка.

Схема расчета рабочего угла падения  $\alpha_{\text{pm}}$  на ВКР-кристалл в резонаторе для синхронизма типа III процесса ЧВС первого порядка (ЧВС-генерация второй стоксовой ВКР-компоненты) представлена на рис.2; оптическая ось кристалла лежит в плоскости рисунка и наклонена на угол  $\Psi$  относительно нормали к торцу ВКР-кристалла. С использованием этой схемы условие векторного синхронизма (1) можно записать в проекциях складываемых волновых векторов на направление оптической оси  $c$  и на направление, перпендикулярное оптической оси:

$$\begin{aligned} \frac{2\pi n_2^o}{\lambda_2} \cos \Theta_2 + \frac{2\pi n_0^e(\Theta_0)}{\lambda_0} \cos \Theta_0 - \frac{2\pi n_1^e(\Theta_1^e)}{\lambda_1} \cos \Theta_1^e \\ - \frac{2\pi n_1^o}{\lambda_1} \cos \Theta_1^o = \frac{2\pi n_2^o}{\lambda_2} \sin \Theta_2 + \frac{2\pi n_0^e(\Theta_0)}{\lambda_0} \sin \Theta_0 \end{aligned}$$

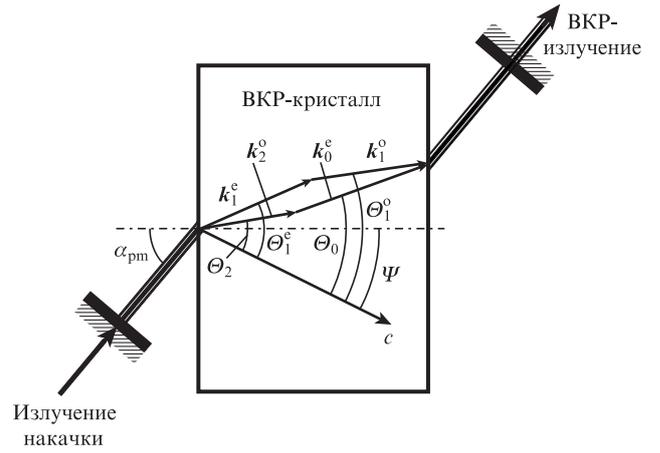


Рис.2. Схема векторного синхронизма ЧВС в двулучепреломлящем кристалле при ВКР в резонаторе.

$$- \frac{2\pi n_1^e(\Theta_1^e)}{\lambda_1} \sin \Theta_1^e - \frac{2\pi n_1^o}{\lambda_1} \sin \Theta_1^o, \quad (6)$$

где показатели преломления для необыкновенных волн  $n_j^e(\Theta_j)$  находятся из выражения (3);  $\Theta_0$ ,  $\Theta_1^e$ ,  $\Theta_1^o$  и  $\Theta_2$  – углы между оптической осью кристалла и направлениями соответствующих волновых векторов (рис.2). Эти углы определяются с помощью условия (5), откуда с учетом закона преломления для  $\Theta_1^e$  и  $\Theta_0$  имеем неявное выражение

$$n_0^e(\Theta_0) \sin(\Theta_0 - \Psi) = n_1^e(\Theta_1^e) \sin(\Theta_1^e - \Psi), \quad (7)$$

а для  $\Theta_1^o$  и  $\Theta_2$  – явные выражения

$$\Theta_1^o = \arcsin \frac{n_1^e(\Theta_1^e) \sin(\Theta_1^e - \Psi)}{n_1^o} + \Psi, \quad (8)$$

$$\Theta_2 = \arcsin \frac{n_0^e(\Theta_0) \sin(\Theta_0 - \Psi)}{n_2^o} + \Psi.$$

При нахождении значений  $\Theta_0$ ,  $\Theta_1^e$ ,  $\Theta_1^o$  и  $\Theta_2$ , удовлетворяющих системе алгебраических уравнений (6)–(8), искомый угол падения на ВКР-кристалл находится из закона преломления для любой из волн, например

$$\alpha_{\text{pm}} = \arcsin[n_2^o \sin(\Theta_2 - \Psi)]. \quad (9)$$

Для других типов синхронизма процесса ЧВС любого порядка процедура расчета аналогична.

В табл.2 представлены результаты расчета при  $\lambda_0 = 0.532$  мкм для кристалла  $\text{CaCO}_3$ , торцы которого срезаны перпендикулярно оптической оси ( $\Psi = 0$ ). Из табл.2 видно, что рабочие углы падения  $\alpha_{\text{pm}}$  для процессов ЧВС нулевого и первого порядков при одинаковом типе синхронизма близки, т.е. одновременно организуется синхронизм для ЧВС-генерации антистоксовой и второй

Табл.2. Параметры векторного синхронизма частично вырожденного ЧВС при внутррезонаторном ВКР в кристалле  $\text{CaCO}_3$  ( $\Psi = 0$ ).

Тип синхронизма	Процесс ЧВС нулевого порядка		Процесс ЧВС первого порядка	
	$\alpha_{\text{pm}}(^{\circ})$	$L_{\beta}$ (мм) при $d = 1$ мм	$\alpha_{\text{pm}}(^{\circ})$	$L_{\beta}$ (мм) при $d = 1$ мм
I (eooo)	4.890	84	4.859	85
II (oooe)	4.584	80	4.529	81
III (eoeo)	18.825	21	18.165	22
IV (eooo)	3.318	116	3.313	117
V (eoeo)	4.729	82	4.679	83

стоксовой волн. Только при синхронизме типа III углы  $\alpha_{pm}$  для процессов ЧВС нулевого и первого порядков заметно различаются. Кроме того, углы преломления, соответствующие углам падения  $\alpha_{pm}$ , представленным в табл.2, оказываются близкими к углам синхронизма  $\Theta_{pm}$  из табл.1.

Необходимо еще обсудить угол сноса  $\beta_j$  для ВКР-компонент излучения, являющихся необыкновенными волнами в кристалле, и обусловленный им диафрагменный апертурный эффект с эффективной апертурной длиной  $L_\beta$  [21]:

$$\tan \beta_j = \frac{\tan \Theta_j [(n_j^o/n_j^e)^2 - 1]}{(n_j^o/n_j^e)^2 + \tan^2 \Theta_j}, \quad L_\beta \approx d/\beta_j, \quad (10)$$

где  $d$  – диаметр (апертура) входного пучка ВКР-накачки. В табл.2 представлены численные значения  $L_\beta$  для  $d = 1$  мм, соответствующего условиям эксперимента. Видно, что минимальное значение  $L_\beta$  в кристалле  $\text{CaCO}_3$  при  $d = 1$  мм реализуется для синхронизма типа III и составляет  $\sim 20$  мм, поэтому в эксперименте мы выбрали длину кристалла  $\text{CaCO}_3$ , равную 20 мм.

#### 4. Экспериментальный стенд

На рис.3 представлена оптическая схема экспериментального стенда. Для возбуждения ВКР в кристалле  $\text{CaCO}_3$  использовался Nd:YAG-лазер 1, генерирующий импульсы лазерного излучения на длине волны  $\lambda_0 = 1.064$  мкм с энергией  $48 \pm 3$  мДж, длительностью  $10 \pm 2$  нс и частотой следования 3 Гц. Для варьирования энергии возбуждения ВКР-кристалла на выходе лазера 1 устанавливали сменные калиброванные светофильтры 2. Зеркало 3 было вогнутым с радиусом кривизны 8 м и производило фокусировку лазерного излучения в ВКР-кристалл 7. При этом длина оптического пути света от зеркала 3 до ВКР-кристалла 7 составляла 4 м. Диаметр лазерного пучка в фокусе (в ВКР-кристалле 7) был равен 1.4 мм по уровню  $1/e^2$  при угле сходимости 1 мрад ( $0.057^\circ$ ), что примерно соответствует минимальному значению расчетной угловой ширины синхронизма  $\Delta\Theta_{pm}$  из табл.1.

Система возбуждения ВКР-преобразователя частоты представляет собой резонатор длиной 110 мм, собранный

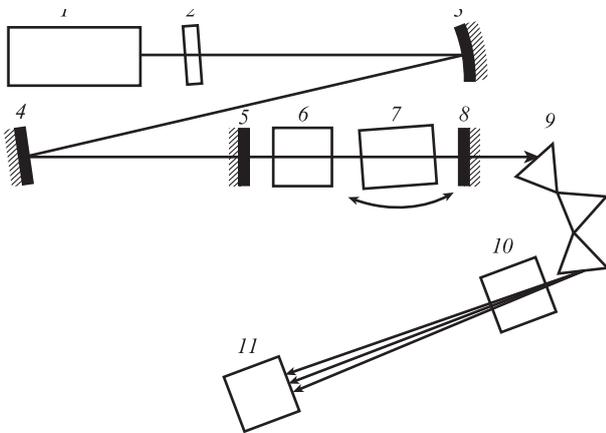


Рис.3. Оптическая схема экспериментального стенда:

1 – Nd:YAG-лазер; 2 – калиброванный светофильтр; 3 – вогнутое зеркало; 4 – плоское зеркало; 5, 8 – зеркала резонатора ВКР-преобразователя; 6 – удвоитель частоты KDP; 7 – ВКР-кристалл  $\text{CaCO}_3$ ; 9 – дисперсионные призмы; 10 – поляризационный клин; 11 – регистратор.

на плоских зеркалах 5 и 8 с высоким пропусканием на длине волны лазерного излучения  $T_{1.064} \approx 90\%$  и высоким отражением ( $R_{0.5-0.6} = 98\%$ ) в диапазоне длин волн 0.5–0.6 мкм, в который попадает не только вторая гармоника Nd:YAG-лазера ( $\lambda_0 = 0.532$  мкм), являющаяся здесь излучением ВКР-накачки, но и антистоксова ( $\lambda_{-1} = 0.503$  мкм), стоксова ( $\lambda_1 = 0.565$  мкм) и вторая стоксова ( $\lambda_2 = 0.602$  мкм) ВКР-компоненты излучения для используемого ВКР-кристалла  $\text{CaCO}_3$  с комбинационным сдвигом частоты  $\nu_R = 1086 \text{ см}^{-1}$  [22]. Внутри данного резонатора устанавливался удвоитель частоты 6 на кристалле KDP и возбуждаемый ВКР-преобразователь частоты 7 на кристалле  $\text{CaCO}_3$ . Торцы ВКР-кристалла  $\text{CaCO}_3$  длиной 2 см были вырезаны перпендикулярно его оптической оси ( $\Psi = 0$ ).

Резонатор ВКР-преобразователя частоты для когерентного накопления второй гармоники не использовался, т.к. не принимались меры для сохранения фазовых соотношений при удвоении частоты, но он обеспечивал существенное снижение порога ВКР-генерации в кристалле  $\text{CaCO}_3$ . Это происходило благодаря не только многопроходному распространению излучения стоксовой ВКР-компоненты, но и многопроходной накачке ВКР-кристалла излучением второй гармоники Nd:YAG-лазера, «запертым» внутри данного добротного резонатора [26].

Выходное ВКР-излучение разлагалось в спектр с помощью дисперсионных призм 9, пропускалось через поляризационный клин 10 из кристалла кальцита и подавалось на регистратор 11 – два лавинных фотодиода ЛФД-2А, подключенных к двухлучевому осциллографу Agilent 54641А и измеряющих отдельно временные параметры разделенных первой и второй стоксовых ВКР-компонент излучения. Для видеорегистрации в качестве регистратора 11 использовалась камера SONY HDR-XR520 с набором цветных светофильтров.

#### 5. Проведение экспериментов

С помощью подбора фильтров 2 выбиралось такое значение энергии возбуждающего лазерного излучения, при котором имело место превышение порога ВКР-генерации первой стоксовой компоненты в кристалле  $\text{CaCO}_3$  под действием второй гармоники лазерного излучения, но не преодолевался порог ВКР-генерации второй стоксовой компоненты. Отметим, что при этом отсутствовало ВКР первой гармоники лазерного излучения ( $\lambda = 1.064$  мкм), т.к. добротный резонатор ВКР-преобразователя частоты был образован только для видимого желто-зеленого спектра излучения (0.5–0.6 мкм).

В процессе эксперимента мы поворачивали ВКР-кристалл 7 и визуально наблюдали разделенные ВКР-компоненты излучения накачки ( $\lambda_0 = 0.532$  мкм) и первой стоксовой компоненты ( $\lambda_1 = 0.565$  мкм); при определенных углах поворота ВКР-кристалла была обнаружена также низкороговая генерация желто-оранжевого излучения второй стоксовой ВКР-компоненты ( $\lambda_2 = 0.602$  мкм).

На рис.4 представлена экспериментальная зависимость интенсивности второй стоксовой ВКР-компоненты излучения от угла падения света на ВКР-кристалл при энергии возбуждающего лазерного излучения 11 мДж (фильтр 2 с пропусканием 23%), в 1.5 раза превышающей пороговое значение для генерации первой стоксовой ВКР-компоненты излучения.

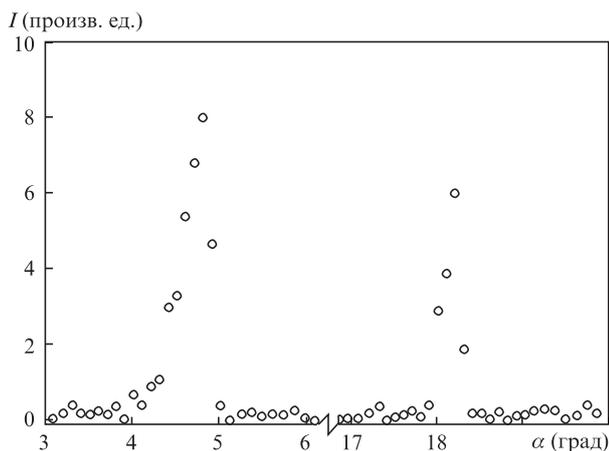


Рис.4. Экспериментальная зависимость интенсивности второй стоксовой ВКР-компоненты излучения от угла падения света на ВКР-кристалл при энергии возбуждающего лазерного излучения 11 мДж.

Из рис.4 видно, что при углах падения на ВКР-кристалл  $\alpha \approx 4.8^\circ$  и  $18.2^\circ$  наблюдаются узкие пики интенсивности генерации второй стоксовой ВКР-компоненты излучения. Пик интенсивности при  $\alpha \approx 4.8^\circ$  шире (около  $0.4^\circ$ ) и выше, чем при  $\alpha \approx 18.2^\circ$  (ширина около  $0.2^\circ$ ). Согласно табл.2 наблюдаемый пик интенсивности при  $\alpha \approx 4.8^\circ$  может быть обусловлен выполнением синхронизма типов I ( $\alpha_{pm} = 4.859^\circ$ ), II ( $\alpha_{pm} = 4.529^\circ$ ) и V ( $\alpha_{pm} = 4.679^\circ$ ). Хотя каждый из этих типов синхронизма имеет малую ширину ( $\Delta\Theta_{pm} \approx 0.08^\circ$ , см. табл.1), они, перекрываясь, дают большую ширину ( $0.4^\circ$ ) пика при  $\alpha \approx 4.8^\circ$  (рис.4). Синхронизм типа IV (табл.2,  $\alpha_{pm} = 3.318^\circ$ ) не проявляется – видимо, из-за его малой угловой ширины ( $\Delta\Theta_{pm} = 0.058^\circ$ , табл.1), достигающей угла сходимости возбуждающего лазерного излучения ( $0.057^\circ$ ). Пик  $\alpha \approx 18.2^\circ$  (рис.4) соответствует выполнению синхронизма ЧВС типа III (табл.2,  $\alpha_{pm} = 18.165^\circ$ ). Ширина пика ( $\sim 0.2^\circ$ ) удовлетворительно согласуется с расчетной угловой шириной синхронизма типа III ( $\Delta\Theta_{pm} \approx 0.31^\circ$ , табл.1). Меньшая амплитуда данного пика может объясняться влиянием диафрагменного апертурного эффекта, т.к. для синхронизма типа III мы имеем (при диаметре пучка  $d \approx 1$  мм) наименьшую апертурную длину  $L_\beta \approx 22$  мм (табл.2), близкую к длине кристалла (20 мм).

Исследование состояния поляризации ВКР-излучения при  $\alpha \approx 4.8^\circ$  с помощью поляризационного клина  $10$  показало, что все ВКР-компоненты излучения имели смешанное состояние поляризации (раскладывающееся на горизонтальную и вертикальную составляющие), т.е. в ВКР-кристалле генерируются ВКР-компоненты, которые являются как обыкновенными, так и необыкновенными волнами. Это также указывает на наличие нескольких типов синхронизма ЧВС при  $\alpha \approx 4.8^\circ$ , например I (eooo) и V (eooo), способных обеспечить одновременную ЧВС-генерацию как обыкновенной, так и необыкновенной волн второй стоксовой ВКР-компоненты.

Аналогичное исследование для  $\alpha \approx 18.2^\circ$  показало, что в большинстве вспышек лазера вторая стоксова ВКР-компонента излучения при смешанном состоянии поляризации излучения ВКР-накачки и первой стоксовой ВКР-компоненты имела преимущественно линейную поляризацию, ориентированную вертикально (рис.5).

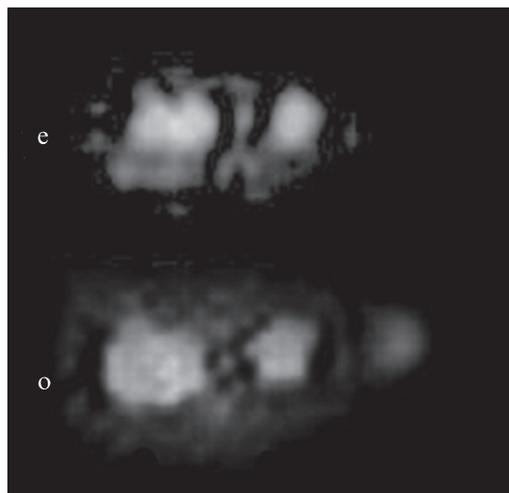


Рис.5. Фотография распределений интенсивности излучения накачки (пятна слева), первой стоксовой компоненты (пятна в центре) и второй стоксовой компоненты (пятно справа) при угле падения на ВКР-кристалл  $\alpha \approx 18.2^\circ$ ; все ВКР-компоненты излучения разделены поляризационным клином на горизонтально (пятна вверх) и вертикально (пятна вниз) поляризованные составляющие.

На рис.5 представлена фотография распределений интенсивности излучения накачки, а также первой и второй стоксовых компонент при угле падения на ВКР-кристалл  $\alpha \approx 18.2^\circ$ ; все ВКР-компоненты излучения разделены поляризационным клином  $10$  (см. рис.3) на горизонтально и вертикально поляризованные составляющие. Поскольку мы поворачивали ВКР-кристалл в горизонтальной плоскости (торцы кристалла перпендикулярны его оптической оси), то горизонтальное состояние поляризации соответствует необыкновенной волне в кристалле, а вертикальное – обыкновенной. Следовательно, ВКР-кристалл генерировал обыкновенную волну второй стоксовой ВКР-компоненты, что и должно наблюдаться при синхронизме ЧВС типа III (eooo), в котором участвуют необыкновенно поляризованная волна ВКР-накачки (пятно слева вверху на рис.5), обыкновенно и необыкновенно поляризованные волны первой стоксовой ВКР-компоненты (пятна в центре вверху и внизу на рис.5), и обыкновенная волна второй стоксовой ВКР-компоненты (единственное пятно справа на рис.5).

На рис.6 представлены осциллограммы импульсов генерации первой и второй стоксовых ВКР-компонент излучения при угле падения на ВКР-кристалл  $\alpha \approx 0$  и  $18.2^\circ$  и энергии импульса возбуждающего лазерного излучения 24 мДж (фильтр 2 с пропусканием 50%), соответствующей превышению порога генерации второй стоксовой ВКР-компоненты при любом угле падения на ВКР-кристалл.

Осциллограммы на рис.6,а демонстрируют обычный каскадный процесс ВКР-преобразования без участия ЧВС, в котором генерация второй стоксовой компоненты запаздывает относительно генерации первой стоксовой компоненты. При этом в импульсе первой стоксовой компоненты во время генерации импульса второй стоксовой компоненты наблюдается провал, соответствующий истощению первой стоксовой компоненты при ее ВКР-преобразовании во вторую стоксову компоненту.

Анализ зарегистрированных камерой SONY HDR-XR520 распределений интенсивности в пучках излучения ВКР-компонент при той же энергии импульса возбуждающего лазерного излучения показал, что в первой сток-

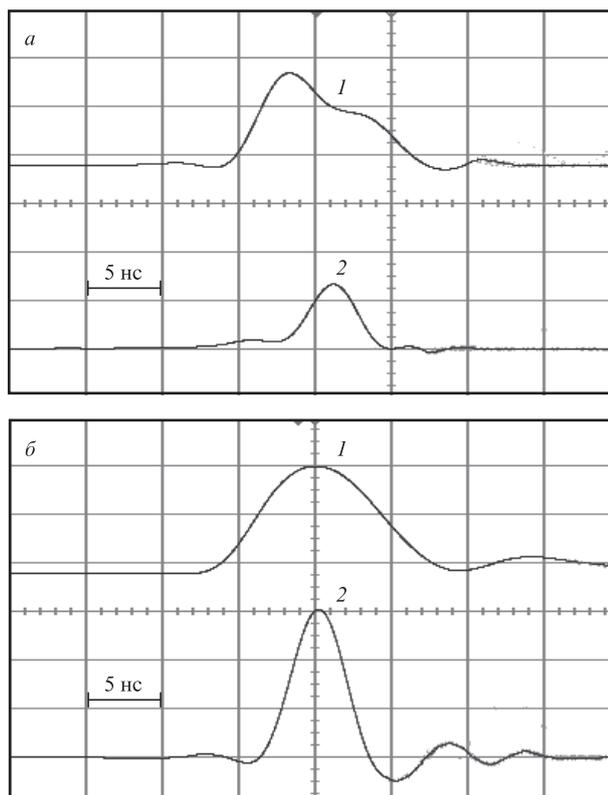


Рис.6. Осциллограммы импульсов генерации первой (1) и второй (2) стоксовых ВКР-компонент излучения при угле падения на ВКР-кристалл  $\alpha \approx 0^\circ$  (а) и  $18.2^\circ$  (б) и энергии импульса возбуждающего лазерного излучения 24 мДж.

своей ВКР-компоненте содержалось  $\sim 70\%$ , а во второй – около 30% энергии ВКР-излучения, что подтверждает наличие сильного энергообмена с истощением накачки и первой стоксовой компоненты.

Осциллограммы на рис.6,б соответствуют выполнению синхронизма четырехволновой генерации второй стоксовой ВКР-компоненты излучения. Видно, что импульсы первой и второй стоксовых ВКР-компонент генерируются одновременно, характерный провал в импульсе первой стоксовой компоненты отсутствует, а интенсивность второй стоксовой компоненты существенно выше, чем на рис.6,а, что указывает на наличие четырехволновой связи, повышающей эффективность генерации второй стоксовой ВКР-компоненты излучения при ЧВС-преобразовании непосредственно из волны ВКР-накачки.

## 6. Заключение

Таким образом, в настоящей работе теоретически и экспериментально исследованы возможности реализации синхронизма четырехволнового смещения при ВКР в двулучепреломляющем ВКР-активном кристалле, помещенном во внешний резонатор с высокоотражающими зеркалами. Определены углы синхронизма для кристалла кальцита, соответствующие выполнению синхронизма пяти типов, различающихся сочетанием направлений поляризации взаимодействующих волн и обеспечивающих генерацию либо антистоксовой волны, либо второй стоксовой ВКР-компоненты излучения. В согласии с расчетом при углах падения на кристалл кальцита  $\alpha \approx 4.8^\circ$  и  $18.2^\circ$  при ВКР-накачке с длиной волны 0.532 мкм зарегистриро-

вана низкопороговая генерация второй стоксовой ВКР-компоненты с длиной волны 0.602 мкм, обусловленная ЧВС-связью первой и второй стоксовых ВКР-компонент излучения с волной ВКР-накачки. Обнаружено, что при близких значениях углов синхронизма для процессов ЧВС нулевого (антистоксова генерация) и первого (генерация второй стоксовой волны) порядков и при одинаковых добротностях резонаторов ВКР-преобразователей частоты для всех ВКР-компонент излучения процесс ВКР-ЧВС-генерации второй стоксовой ВКР-компоненты выигрывает конкуренцию у антистоксова ВКР-ЧВС-процесса, поэтому антистоксовой генерации в эксперименте не наблюдалось. Однако отмечено, что при синхронизме типа III (eoeo) имеется наибольшее различие углов синхронизма для процессов ЧВС нулевого и первого порядков, а управление добротностью резонатора ВКР-преобразователя частоты может позволить выделить ЧВС-генерацию антистоксовой волны. Поэтому в перспективе при данном типе синхронизма возможно осуществление антистоксовой генерации с уменьшением длины волны излучения и продвижением в УФ диапазон.

Работа выполнена при частичной финансовой поддержке РФФИ (гранты № 12-02-00157 и 13-02-00031).

- Eckhardt G., Bortfeld D.P., Geller M. *Appl. Phys. Lett.*, **3**, 137 (1963).
- Chiao R.Y., Stoicheff V.P. *Phys. Rev. Lett.*, **12**, 290 (1964).
- Бломберген Н. *УФН*, **97**, 307 (1969).
- Жданов Б.В., Кулюк Л.Л., Першин С.М. *Квантовая электроника*, **3**, 1027 (1976).
- Шен И.Р. *Принципы нелинейной оптики* (М.: Наука, 1989).
- Бутылкин В.С., Венкин Г.В., Протасов В.П., Смирнов Н.Д., Хронопуло Ю.Г., Шалаяев М.Ф. *Письма в ЖЭТФ*, **17**, 400 (1973).
- Венкин Г.В., Крочик Г.М., Кулюк Л.Л., Малеев Д.И., Хронопуло Ю.Г. *Письма в ЖЭТФ*, **21**, 235 (1975).
- Losev L.L., Song J., Xia J.F., Strickland D., Brukhanov V.V. *Opt. Lett.*, **27**, 2100 (2002).
- Басиев Т.Т., Гаврилов А.В., Осико В.В., Сметанин С.Н., Федин А.В. *Квантовая электроника*, **34**, 649 (2004).
- Basiev T.T., Basieva M.N., Doroshenko M.E., Fedorov V.V., Osiko V.V., Mirov S.B. *Laser Phys. Lett.*, **3**, 17 (2006).
- Бутылкин В.С., Каплан А.Е., Хронопуло Ю.Г., Якубович Е.И. *Резонансные взаимодействия света с веществом* (М.: Наука, 1977).
- Басиев Т.Т., Сметанин С.Н., Шурыгин А.С., Федин А.В. *УФН*, **180**, 639 (2010).
- Грасюк А.З., Лосев Л.Л., Луценко А.П., Сазонов С.Н. *Квантовая электроника*, **17**, 599 (1990).
- Grasiuk A.Z., Kubasov S.V., Losev L.L. *Opt. Commun.*, **240**, 239 (2004).
- Басиев Т.Т., Дианов Е.М., Захидов Э.А., Карасик А.Я., Миров С.Б., Прохоров А.М. *Письма в ЖЭТФ*, **37**, 192 (1983).
- Giordmaine J.A., Kaiser W. *Phys. Rev.*, **144**, 676 (1966).
- Сметанин С.Н., Басиев Т.Т. *Квантовая электроника*, **42**, 224 (2012).
- Грасюк А.З., Лосев Л.Л., Луценко А.П., Сазонов С.Н. *Квантовая электроника*, **17**, 1245 (1990).
- Mildren R.P., Coutts D.W., Spence D.J. *Opt. Express*, **17**, 810 (2009).
- Jain R.K., Stenerson K. *Appl. Phys. B*, **35**, 49 (1984).
- Дмитриев В.Г., Тарасов Л.В. *Прикладная нелинейная оптика* (М.: Физматлит, 2004).
- Басиев Т.Т. *УФН*, **169**, 1149 (1999).
- Weber M.J. *Handbook of Optical Materials* (New York: CRC Press, 2002).
- Maunder E.A., DeShazer L.G. *J. Opt. Soc. Am.*, **61**, 684A (1971).
- Студеникин П.А., Загуменный А.И., Заварцев Ю.Д., Попов П.А., Щербakov И.А. *Квантовая электроника*, **22**, 1199 (1995).
- Басиев Т.Т., Сметанин С.Н., Федин А.В., Шурыгин А.С. *Квантовая электроника*, **40**, 704 (2010).