# 06 Вынужденное комбинационное рассеяние импульсов титан-сапфирового лазера длительностью от 7 до 45 ps в кристалле BaWO<sub>4</sub>

© И.О. Киняевский, А.В. Корибут, Л.В. Селезнев, Я.В. Грудцын

Физический институт им. П.Н. Лебедева РАН (ФИАН), 119991 Москва, Россия e-mail: kinvaevskivio@lebedev.ru

e-mail. Kinyaevskiylo@lebedev.ru

Поступила в редакцию 11.12.2023 г. В окончательной редакции 09.01.2024 г. Принята к публикации 16.01.2024 г.

Экспериментально исследовано нестационарное вынужденное комбинационное рассеяние (ВКР) импульсов титан-сапфирового лазера с варьируемой длительностью в кристалле BaWO<sub>4</sub> на доминирующей моде  $v_1 = 925 \text{ cm}^{-1}$ , имеющей время фазовой релаксации  $T_2 \sim 6.6 \text{ ps}$ . Для импульсов длительностью 7-17 ps (соответствует  $\sim T_2 - 2.5T_2$ ) максимальная эффективность преобразования была  $\sim 1\%$ , которую достигали при одинаковой плотности энергии  $1.2 \pm 0.2 \text{ J/cm}^2$ . При длительности импульса 45 ps ( $\sim 7T_2$ ) эффективность ВКР-преобразования была в 7 раз выше ( $\sim 7\%$ ), а "пороговая" плотность энергии в 2 раза ниже. Показано, что для снижения порога и повышения эффективности ВКР фемтосекундный импульс должен быть растянут во времени до  $\sim 7T_2$  или более.

Ключевые слова: вынужденное комбинационное рассеяние, BaWO<sub>4</sub>, чирпированные импульсы, нестационарное взаимодействие.

DOI: 10.61011/OS.2024.01.57549.4-24

#### Введение

Вынужденное комбинационное рассеяние (ВКР) является широко распространенным методом для изменения длины волны лазерного излучения [1], эффективность которого может достигать почти квантового предела [2]. Однако для сверхкоротких (фемтосекундных) лазерных импульсов, которые сопоставимы или меньше времени дефазировки колебаний среды Т2, эффективность ВКР значительно снижается из-за нестационарности этого процесса взаимодействия [3]. Соответственно для повышения эффективности ВКР для ультракоротких лазерных импульсов требуется высокая интенсивность излучения накачки. Однако высокая интенсивность, в свою очередь, усиливает влияние других нелинейных эффектов, таких как фазовая самомодуляция, нелинейное поглощение и др. [4-7]. Для решения этой проблемы используется методика, при которой импульс накачки с помощью, например, дифракционных решеток многократно растягивается во времени до значения, большего чем  $T_2$ .

Нам известно несколько работ [7–12], в которых продемонстрирована высокая, вплоть до 40% [11], эффективность ВКР-чирпированных лазерных импульсов. Несмотря на успехи в этом направлении, задача увеличения эффективности ВКР путем управления параметрами импульса накачки на данный момент полностью не решена. В частности, подробно не рассматривался вопрос оптимизации величины чирпа (длительности импульса). Проблема заключается в том, что если длительность чирпированного импульса будет меньше или сопоставима с временем Т<sub>2</sub> (маленький чирп), то, как отмечалось выше, эффективный коэффициент ВКР-усиления будет меньше из-за нестационарности процесса. Если длительность импульса будет слишком большой (большой чирп), это приводит к уменьшению эффективного коэффициента усиления ВКР из-за быстрого сдвига несущей частоты импульса накачки [3,10]. При этом необходимо отметить, что длительность импульса влияет и на другие факторы, например порог оптического разрушения, которые также определяют максимально достижимую эффективность ВКР. Поэтому целью настоящей работы было определение эффективности ВКР-чирпированных импульсов фемтосекундного титан-сапфирового лазера при вариации их длительности (величины чирпа). В работе использовались импульсы с положительным чирпом, который изначально задавался "стретчером", встроенным в титан-сапфировый лазер. Для этих работ был выбран кристалл BaWO<sub>4</sub> (BWO) как один из самых эффективных ВКР-конверторов частоты накачки [2,13], который неоднократно апробирован в экспериментах с чирпированными лазерными импульсами [8,10].

# Схема эксперимента

Оптическая схема эксперимента представлена на рис. 1. Эксперимент проводился с применением титансапфирового лазерного комплекса Старт 248М (Авеста проект, Россия): центральная длина волны излучения  $0.75\,\mu$ m, ширина спектра по полувысоте 10 nm



Рис. 1. Оптическая схема эксперимента.

 $(\sim 150\,{\rm cm}^{-1})$ , длительность спектрально ограниченного импульса 100 fs, энергия до 6 mJ. Излучение выводилось, минуя встроенный компрессор лазерного комплекса, и направлялось в самодельный управляемый компрессор, состоящий из двух дифракционных решеток 1200 groves/mm и обратного отражателя. Сжатый по времени импульс направляли либо в "стрик"-камеру GPI PS-1/S1 (ИОФАН, Россия) для измерения его длительности, либо в ВКР-преобразователь. ВКР-преобразователь состоял из линзы с фокусным расстоянием 35 cm и кристалла BaWO<sub>4</sub> длиной 8 mm. Кристалл располагался за фокусом лазерного пучка на расстоянии 37 ст от линзы, положение кристалла не менялось на протяжении всего эксперимента. Отметим, что при приближении кристалла к фокусу излучения наблюдалось повреждение кристалла независимо от длительности импульса. Излучение, вышедшее из ВКР-кристалла, направляли в спектрометр ASP-150 (Авеста проект, Россия). Для изменения энергии лазерных импульсов использовался дифракционный ослабитель, установленный перед компрессором.

Экспериментальный образец кристалла ВWO длиной 8 mm был выращен в Институте общей физики им. А.М. Прохорова РАН методом Чохральского из платиновых тиглей на воздухе [14]. Этот материал характеризуется высоким стационарным коэффициентом ВКР-усиления  $8.0 \pm 1.6$  сm/GW ( $\lambda = 1.06 \,\mu$ m) моды ~ 925 сm<sup>-1</sup>, для которой время дефазировки  $T_2$  составляет 6.6 рs [15]. Для повышения эффективности ВКРпреобразования использовалась затравка широкополосным наносекундным импульсом, представляющим собой усиленное спонтанное излучение многопроходного усилителя титан-сапфирового лазера и распространяющимся вместе с лазерным импульсом [8,16].

### Результаты эксперимента

Длительность положительно чирпированного лазерного импульса на выходе лазерной системы (без компрес-



**Рис. 2.** Временные формы импульсов до компрессора (1) и после компрессора при различном расстоянии между дифракционными решетками:  $t_p = 17$  (2), 7 ps (3).

сора) составила  $t_p = 45 \pm 5$  рѕ по полувысоте (кривая 1 на рис. 2). Минимальное расстояние между решетками в компрессоре составляло L = 17 ст и ограничивалось "обрезанием" лазерного пучка оптическими элементами, входящими в компрессор. При L = 17 ст длительность импульса составила  $t_p = 17 \pm 2$  рѕ (кривая 2 на рис. 2). Увеличением расстояния между решетками управляли длительностью импульса, получены импульсы длительность ностью  $t_p = 10 \pm 1$  рѕ и  $7 \pm 1$  рѕ (кривая 3 на рис. 2). Отметим, что при энергии лазерного импульса на входе в компрессор ~ 6 т знергия лазерного импульса после компрессора составляла ~ 1 т ,что связано с низким (~ 70%) коэффициентом отражения дифракционных решеток.

Лазерные импульсы различной длительности  $(t_p = 7-45 \text{ ps})$  с энергией 1 mJ направляли в ВКР-преобразователь, спектр которых регистрировали спектрометром. На рис. З представлены спектры лазерных импульсов после ВКР-преобразователя, полученные при длительности импульсов  $t_p = 7$  (*a*), 10 (*b*), 17 (*c*) и 45 ps (*d*). Эти длительности



**Рис. 3.** Спектры излучения после кристалла BWO, нормированные на единицу, для лазерных импульсов длительностью 7 (*a*), 10 (*b*), 17 (*c*) и 45 ps (*d*).

соответствовали примерно  $T_2$ ,  $1.5T_2$ ,  $2.5T_2$  и  $7T_2$ , а величина чирпа, определяемая в линейном случае как отношение ширины спектра к длительности импульса,  $\Delta f / \Delta t$ , составляла 0.7, 0.5, 0.3, 0.1 ps<sup>-2</sup> соответственно. Спектры на рис. 3 нормированы на амплитуду спектра прошедшей накачки.

Для лазерных импульсов длительностью 7–17 ps, что соответствует примерно  $T_2-2.5T_2$ , эффективность ВКР-преобразования была примерно одинаковой:  $(1 \pm 0.5)$ %. Эффективность определялась как отношение площади под ВКР-пиком к площади под спектром прошедшей накачки. При длительности импульса  $t_p = 45$  ps амплитуда ВКР-пика оказалась значительно выше и достигала  $\sim 20\%$  от амплитуды спектра прошедшей накачки, а эффективность составляла  $\sim 7\%$ . Следует отметить, что при  $t_p = 45$  ps наблюдалось сильное изменение формы спектра импульса накачки, которое может быть вызвано коллинеарным четырехволновым смешением, как ранее наблюдалось в [17].

На рис. 4, *а* представлена зависимость "порога" ВКРгенерации (эффективности ВКР — 1%) в единицах плотности энергии от длительности лазерного импульса, определенная из эксперимента. "Порог" генерации ВКР для относительно коротких чирпированных импульсов ( $t_p = 7-17$  ps,  $T_2-2.5T_2$ ) находился при примерно той же плотности импульса накачки  $1.2 \pm 0.2 \text{ J/cm}^2$ , что характерно для нестационарного ВКР [1,3]. При  $t_p = 45 \text{ ps}$  "пороговая" плотность энергии ВКР снизилась в два раза (до ~ 0.6 J/cm<sup>2</sup>), что указывает на переход к стационарному режиму ВКР. "Пороговая" интенсивность ВКР для  $t_p = 45 \text{ ps}$  составила ~ 13 GW/cm<sup>2</sup>, что в ~ 12 раз меньше, чем для  $t_p = 7 \text{ ps}$ .

На рис. 4, *b* черными точками представлена зависимость экспоненциального инкремента усиления G = Iglдля "порога" ВКР от относительной длительности импульса  $t_p/T_2$ . Кружками на рис. 4, *b* также представлены результаты работы [18]. Для удобства анализа зависимости на рис. 4, *b* нормированы. Следует отметить, что эксперимент в [18] проводился со спектрально ограниченными лазерными импульсами длительностью 11 рs, а относительная длительность импульса  $t_p/T_2$  варьировала путем использования различных ВКР-кристаллов при  $T_2$ от 1.18 рs для TeO<sub>2</sub> до 26.5 рs для Ba(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>. Экспериментальные точки были интерполированы функцией  $G = k_1 + k_2/(t_p/T_2)$  [19], где  $k_1$  и  $k_2$  — коэффициенты интерполяции.

Зависимости на рис. 4, b находятся в удовлетворительном согласии друг с другом, однако для чирпированных импульсов (кривая 1) величина G имеет более быстрый рост с уменьшением относительной длительности им-



**Рис. 4.** (*a*) "Порог" генерации ВКР в зависимости от длительности импульса накачки в единицах плотности энергии; (*b*) зависимость инкремента усиления G = Igl для "порога" генерации ВКР от относительной длительности импульса  $t_p/T_2$ : I — настоящая работа, 2 — данные из работы [18].

пульса. Это может быть связано с ростом вклада других нелинейных эффектов — нелинейным поглощением [10] или четырехволновым взаимодействием [17], которые сильнее проявляются для более коротких импульсов с большей интенсивностью.

## Выводы и заключение

В кристалле BaWO<sub>4</sub> экспериментально исследовано ВКР импульсов фемтосекундного титан-сапфирового лазера с длительностью, варьируемой оптическим компрессором. Для импульсов длительностью 7-17 ps (соответствует T<sub>2</sub>-2.5T<sub>2</sub>) максимальная эффективность преобразования была на уровне 1%, при этом "порог" генерации ВКР достигался при одинаковой плотности энергии 1.2–0.2 J/cm<sup>2</sup>. При длительности импульса 45 ps эффективность ВКР-преобразования была в 7 раз выше, а порог генерации ВКР в единицах плотности энергии и интенсивности снижался до  $\sim 0.6\,J/cm^2$  и  $13\,GW/cm^2$ соответственно. Поведение "порога" ВКР при вариации относительной длительности импульса t<sub>p</sub>/T<sub>2</sub> для чирпированного импульса выглядело так же, как и для спектрально ограниченного импульса. Для оценки влияния чирпирования импульса накачки на ВКР требуется проведение экспериментов с большим диапазоном длительностей импульса (величины чирпа), а также различным знаком чирпа. Однако из данного исследования можно сделать вывод, что для снижения порога и увеличения эффективности ВКР-преобразования необходимо растянуть фемтосекундный лазерный импульс по времени хотя бы до  $\sim 7T_2$ .

## Финансирование работы

Исследование выполнено за счет гранта Российского научного фонда № 22-79-10068, https://rscf.ru/project/22-79-10068/.

#### Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

# Список литературы

- [1] R.W. Boyd. *Nonlinear optics*, 4th edition (Academic press, 2020).
- [2] P. Černý, H. Jelínková. Opt. Lett., 27 (5), 360–362 (2002).
   DOI: 10.1364/OL.27.000360
- [3] R.J. Heeman, H.P. Godfried. IEEE J. Quantum. Elect., 31 (2), 358-364 (1995). DOI: 10.1109/3.348067
- [4] A.S. Grabtchikov, R.V. Chulkov, V.A. Orlovich, M. Schmitt,
   R. Maksimenko, W. Kiefer. Opt. Lett., 28 (11), 926–928 (2003). DOI: 10.1364/OL.28.000926
- [5] И.О. Киняевский, В.И. Ковалев, А.В. Корибут, Е.Э. Дунаева, Н.С. Семин, А.А. Ионин. Опт. и спектр., 131 (2), 207–211 (2023). [I.O. Kinyaevskiy, V.I. Kovalev, A.V. Koribut, E.E. Dunaeva, N.S. Semin, A.A. Ionin. Opt. Spectrosc., 131 (2), 195 (2023). DOI: 10.61011/EOS.2023.02.55785.8-23].
- [6] А.В. Конященко, Л.Л. Лосев, В.С. Пазюк. Квант. электрон.,
   51 (3), 217 (2021). [A.V. Konyashchenko, L.L. Losev,
   V.S. Pazyuk. Quantum Electron., 51 (3), 217 (2021).
   DOI: 10.1070/QEL17508].
- [7] L.L. Losev, J. Song, J.F. Xia, D. Strickland, V.V. Brukhanov. Opt. Lett., 27 (23), 2100–2102. (2002).
   DOI: 10.1364/OL.27.002100

- [8] I.O. Kinyaevskiy, A.V. Koribut, Y.V. Grudtsyn, L.V. Seleznev, V.I. Kovalev, D.V. Pushkarev, E.E. Dunaeva, A.A. Ionin. Laser Phys. Lett., 19 (9), 095403 (2022).
   DOI: 10.1088/1612-202X/ac7f36
- I.O. Kinyaevskiy, A.V. Koribut, L.V. Seleznev, Y.M. Klimachev, E.E. Dunaeva, A.A. Ionin. Opt. Laser. Technol., 169, 110035 (2024).
   DOI: 10.1016/j.optlastec.2023.110035
- [10] I.O. Kinyaevskiy, A.V. Koribut, L.V. Seleznev, Y.V. Grudtsyn,
   E.E. Dunaeva. Opt. Commun., 546, 129800 (2023).
   DOI: 10.1016/j.optcom.2023.129800
- [11] N. Daher, X. Délen, F. Guichard, M. Hanna, P. Georges. Opt. Lett., 46 (14), 3380–3383 (2021). DOI: 10.1364/OL.431675
- [12] F.B. Grigsby, P. Dong, M.C. Downer. JOSA B, 25 (3), 346–350 (2008). DOI: 10.1364/JOSAB.25.000346
- [13] P. Černý, H. Jelínková, P.G. Zverev, T.T. Basiev. Prog. Quant. Electron., 28 (2), 113–143 (2004).
   DOI: 10.1016/j.pquantelec.2003.09.003
- [14] L.I. Ivleva, I.S. Voronina, P.A. Lykov, L.Y. Berezovskaya,
   V.V. Osiko. J. Cryst. Growth., **304** (1), 108–113 (2007).
   DOI: 10.1016/j.jcrysgro.2007.02.020
- [15] V.A. Lisinetskii, S.V. Rozhok, D.N. Bus'ko, R.V. Chulkov, A.S. Grabtchikov, V.A. Orlovich, T.T. Basiev, P.G. Zverev. Laser. Phys. Lett., 2 (8), 396 (2005). DOI: 10.1002/lapl.200510007
- [16] И.О. Киняевский, Л.В. Селезнев, А.В. Корибут, Е.Э. Дунаева, Ю.М. Андреев, А.А. Ионин. Известия вузов. Физика, 64 (11), 67–70 (2021).
  [I.O. Kinyaevskiy, L.V. Seleznev, A.V. Koribut, E.E. Dunaeva, Y.M. Andreev, A.A. Ionin. Russ. Phys. J., 64 (11), 2058–2061 (2022)].
  DOI: 10.1007/s11182-022-02555-y
- [17] I. Kinyaevskiy, L. Seleznev, A. Ionin. Photonics., 9 (12), 1000 (2022). DOI: 10.3390/photonics9121000
- [18] Т.Т. Басиев, П.Г. Зверев, А.Я. Карасик, В.В. Осико, А.А. Соболь, Д.С. Чунаев. ЖЭТФ, **126** (5), 1073–1082 (2004).
  [Т. Basiev, P. Zverev, A. Karasik, V. Osiko, A. Sobol', D. Chunaev. J. Exp. Theor. Phys., **99**, 396 (2004)].
  DOI: 10.1134/1.1842874
- [19] С.Н. Сметанин. Опт. и спектр., 121 (3), 430–440 (2016).
   [S. Smetanin. Opt. Spectrosc., 121, 395 (2016)].
   DOI: 10.7868/S0030403416080213