

## 06 Влияние фокусировки на нестационарное ВКР 0.3 ps лазерных импульсов в кристалле BaWO<sub>4</sub> с самозаправкой ФСМ

© И.О. Киняевский<sup>1</sup>, А.В. Корибут<sup>1,¶</sup>, И.В. Гриценко<sup>1</sup>, А.М. Сагитова<sup>1</sup>, М.В. Ионин<sup>1</sup>,  
Е.Э. Дунаева<sup>2</sup>, А.А. Ионин<sup>1</sup>

<sup>1</sup> Физический институт им. П.Н. Лебедева РАН (ФИАН),  
119991 Москва, Россия

<sup>2</sup> Институт общей физики им. А.М. Прохорова РАН (ИОФАН),  
119991 Москва, Россия

¶e-mail: andrew-koribut@yandex.ru

Поступила в редакцию 20.12.2022 г.

В окончательной редакции 13.01.2023 г.

Принята к публикации 28.01.2023 г.

Экспериментально исследовано влияние остроты фокусировки с учетом самофокусировки на интерференцию эффектов вынужденного комбинационного рассеяния (ВКР) и фазовой самомодуляции лазерных импульсов длительностью 0.3 ps и длиной волны 515 nm в кристалле BaWO<sub>4</sub> длиной 8 mm. Максимальная эффективность ВКР-преобразования (~ 23%) в стоксову компоненту сильнейшей моды  $\nu_1 = 925 \text{ cm}^{-1}$  получена с линзой с фокусным расстоянием 40 mm при смещении линейного фокуса в сторону задней грани кристалла. Увеличение эффективности при смещении линейного фокуса к задней грани было связано с увеличением расстояния между линейным и нелинейным фокусами излучения, что приводило к увеличению эффективной длины нелинейного взаимодействия.

**Ключевые слова:** вынужденное комбинационное рассеяние, фазовая самомодуляция, самофокусировка, BaWO<sub>4</sub>, фемтосекундные импульсы.

DOI: 10.21883/OS.2023.02.55006.6-23

### Введение

Преобразование лазерного излучения методами нелинейной оптики широко используется для получения требуемых (для конкретной задачи) спектральных характеристик излучения, которые недоступны напрямую из лазерных источников. Используемые методы нелинейной оптики весьма многообразны: параметрическое преобразование в кристаллах с квадратичной нелинейностью [1], вынужденное комбинационное рассеяние (ВКР) [2], фазовая самомодуляция (ФСМ) [3] и другие. Ранее была обнаружена конструктивная интерференция эффектов ФСМ и ВКР в кристалле BaWO<sub>4</sub> (BWO) при его накачке лазерными импульсами длительностью 0.3 ps и длиной волны 515 nm [4,5]. Такое взаимодействие двух нелинейных эффектов позволило получить в простой однопроходной оптической схеме необычно высокую для субпикосекундных лазерных импульсов эффективность генерации стоксовых компонент ВКР: до ~ 20% на моде  $\nu_1 = 925 \text{ cm}^{-1}$  [4] и до ~ 35% на моде  $\nu_2 = 330 \text{ cm}^{-1}$  [5]. Необычно высокая эффективность достигалась за счёт того, что эффект ФСМ формировал затравочное для ВКР излучение, сдвинутое на частоту соответствующих мод комбинационного рассеяния кристалла BWO, а эффект ВКР приводил к усилению этих компонент.

Работы по ВКР [4,5], как и связанные с ними работы по исследованию отклика керровской нелинейности кристалла BWO [6,7], проводились в одной и той же конфигурации оптической схемы при фокусировке

линзой с фокусным расстоянием 35–40 mm. При этом влияние геометрии взаимодействия, определяемое как числовой апертурой фокусировки, так и положением фокуса излучения, ранее не исследовалось. Поэтому целью настоящей работы было определение эффективности ВКР-преобразования с самозатравкой ФСМ в кристалле BWO при вариации параметров фокусировки лазерного пучка.

### Экспериментальная установка

Эксперименты по исследованию эффективности ВКР-преобразования фемтосекундных лазерных импульсов в кристалле BWO проводились в Центре лазерных и нелинейно-оптических технологий (ФИАН). Образец кристалла длиной 8 mm был выращен методом Чохральского из расплава на воздухе в Институте общей физики РАН (Отделение лазерных материалов и фотоники). Схема эксперимента представлена на рис. 1. Для накачки кристалла использовалось излучение второй гармоники волоконного лазера на ионах иттербия Satsuma (Amplitude Systemes). Параметры лазерного излучения: центральная длина волны 515 nm, длительность импульса 300 fs, энергия импульса до 3.1  $\mu\text{J}$ , частота следования импульсов 1 kHz, диаметр пучка 1.7 mm (по уровню  $1/e^2$ ). Для варьирования остроты фокусировки использовались линзы с фокусными расстояниями 40 и 90 mm, а также объектив с фокусным расстоянием

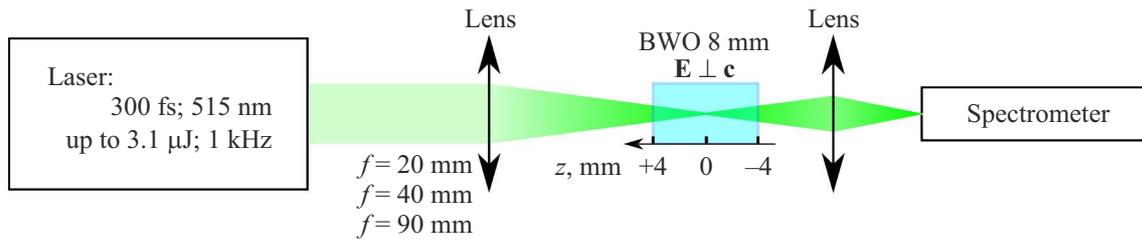


Рис. 1. Оптическая схема эксперимента. Ось  $z$  указывает положение линейного фокуса внутри кристалла.

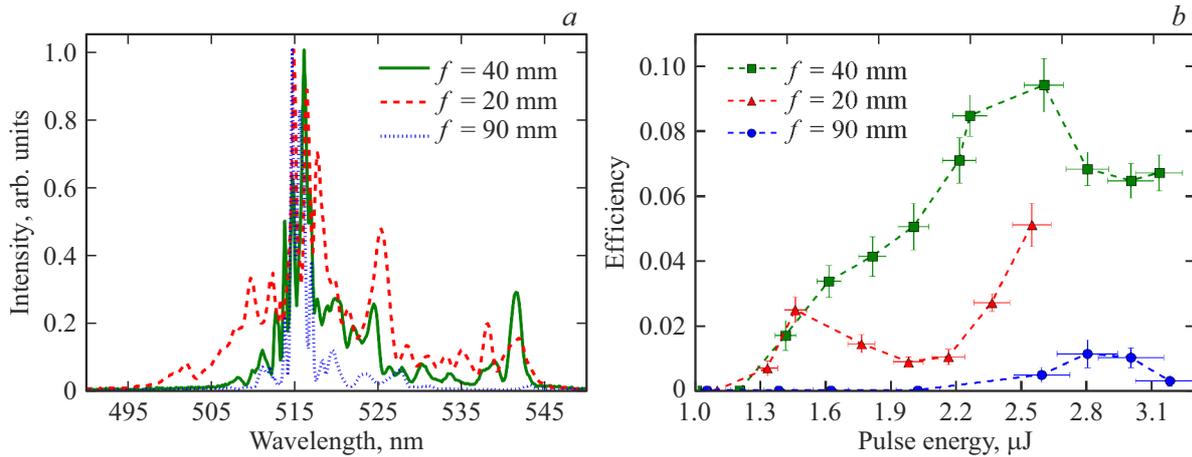


Рис. 2. (a) Спектры излучения, прошедшего через кристалл BWO, при максимальной эффективности генерации ВКР-компоненты  $925 \text{ cm}^{-1}$  при  $z = 0 \text{ mm}$  и различной остроте фокусировки:  $f = 20, 40$  и  $90 \text{ mm}$ . (b) Эффективность генерации ВКР-компоненты  $\nu_1 = 925 \text{ cm}^{-1}$  кристалла BWO в зависимости от энергии импульса при  $f = 20, 40$  и  $90 \text{ mm}$ .

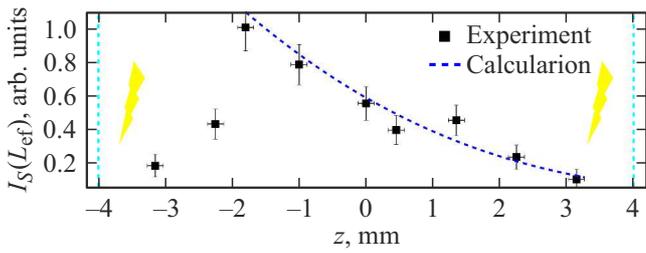
20 mm. Отметим, что объектив вносил дополнительные потери на отражение (20%) по сравнению с линзами, поэтому максимальная энергия лазерного импульса, падающая на кристалл, в экспериментах с объективом не превышала  $2.5 \mu\text{J}$ . За кристаллом устанавливалась линза с фокусным расстоянием 90 mm, которая переносила изображение задней грани кристалла на входную щель спектрометра ASP-150 FT (спектральное разрешение 0.3 nm, Авеста-Проект). Оптическая  $c$ -ось кристалла была перпендикулярна поляризации излучения. Для варьирования положения линейного фокуса внутри кристалла последний закреплялся на подвижной платформе, сдвиг которой осуществлялся шаговым двигателем. Положение линейного фокуса внутри кристалла определяется по оси  $z$  и измеряется в миллиметрах (рис. 1);  $z = 0$  соответствует положению фокуса в середине кристалла, отрицательные значения  $z$  соответствуют смещению линейного фокуса в сторону задней грани.

### Влияние остроты фокусировки

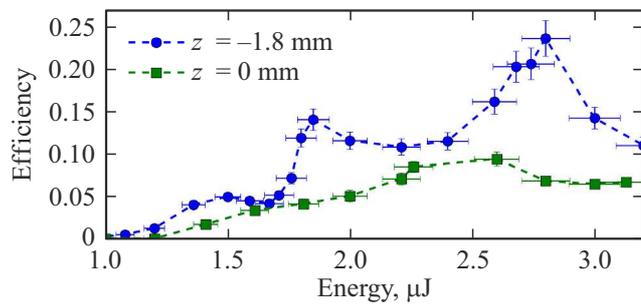
На рис. 2 приведены примеры спектров излучения и эффективности ВКР-генерации сильнейшей ВКР-моды кристалла BWO ( $\nu_1 = 925 \text{ cm}^{-1}$ ) в зависимости от энергии лазерного импульса для различной остроты фокусировки при  $z = 0 \text{ mm}$ . Эффективность преобразования

определялась тем же путем, что и в работе [4]: как отношение площади контура ВКР-компоненты к полной площади спектра прошедшего лазерного импульса. Погрешности измерения энергии соответствуют стабильности лазерной системы и определяются как среднеквадратичное отклонение энергии лазерных импульсов на выходе лазерной системы. Погрешность измерения эффективности связана с точностью определения амплитуд и границ положения ВКР-компоненты. Отметим, что отношения длины Релея ( $2\pi n \omega_0^2 / \lambda$ , где  $\omega_0$  — радиус пучка в перетяжке по уровню  $1/e^2$ ,  $n$  — показатель преломления BWO,  $\lambda$  — длина волны) к длине кристалла при фокусных расстояниях 20, 40 и 90 mm составили 0.02, 0.08 и 0.41 соответственно. Таким образом, как и в работах [4–7], при всех фокусировках длина кристалла не ограничивала наиболее интенсивную часть пучка (перетяжку), соответствующую эффективной длине нелинейного взаимодействия.

При „мягкой“ фокусировке ( $f = 90 \text{ mm}$ ) эффективность генерации составила  $\sim 1\%$ . При фокусировке линзой с фокусным расстоянием 40 mm была получена наибольшая эффективность преобразования (10%). При фокусировке объективом с фокусным расстоянием 20 mm эффективность достигала 5% при энергии  $2.5 \mu\text{J}$ , при этом не наблюдался спад эффективности при увеличении энергии. Поэтому, вероятно, при фокусировке



**Рис. 3.** Зависимость амплитуды сильнейшей ВКР-моды от положения линейного фокуса внутри кристалла. Штрихи — расчет эффективности преобразования в зависимости от положения линейного фокуса с учетом изменения длины филамента.



**Рис. 4.** Зависимость эффективности генерации моды  $925\text{ cm}^{-1}$  для двух положений ( $z = 0\text{ mm}$  и  $z = -1.8\text{ mm}$ ) от энергии лазерных импульсов.

$f = 20\text{ mm}$  эффективность преобразования могла быть выше, но параметры используемого лазера не позволили реализовать режим с большей энергией.

### Влияние положения фокуса

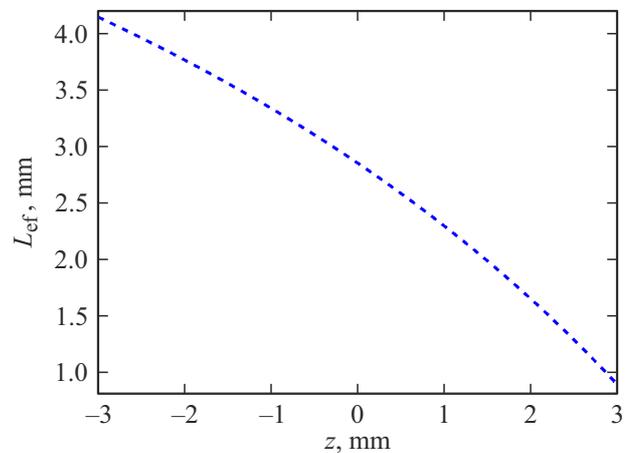
В работе [4] эффективность ВКР-генерации моды  $\nu_1$  достигала 20% при фокусировке линзой с фокусным расстоянием 35 mm, что в два раза больше полученной нами эффективности при  $z = 0$ . В силу близости фокусных расстояний использованных линз данное различие может быть связано с другим фактором, например с положением линейного фокуса в образце, что не указывалось в работе [4]. Для исследования влияния данного фактора была измерена зависимость эффективности ВКР-генерации от положения линейного фокуса в кристалле. Смещая кристалл вдоль сфокусированного луча от исходного положения ( $z = 0$ ) при энергии импульсов  $2.6\text{ }\mu\text{J}$  (максимальная эффективность генерации при фокусировке линзой 40 mm), определялась амплитуда сильнейшей ВКР-моды, измеренная спектрометром, в зависимости от положения линейного фокуса (рис. 3). В положениях, отмеченных „молниями“, наблюдалось появление плазменного факела, свидетельствующее о повреждении передней или задней грани кристалла.

При смещении линейного фокуса от центра кристалла к его передней грани наблюдалось уменьшение амплитуды ВКР-линии, а при смещении к задней грани — достижение максимума при  $z \approx -1.8\text{ mm}$  и резкий спад при дальнейшем смещении фокуса к задней грани кристалла.

Зависимости эффективности преобразования от энергии лазерных импульсов для двух положений (линейный фокус в центре кристалла ( $z = 0$ ) и в положении максимальной амплитуды сильнейшей ВКР-моды ( $z = -1.8\text{ mm}$ )) представлены на рис. 4. Максимальная эффективность генерации ВКР-компоненты со сдвигом  $925\text{ cm}^{-1}$  составила 23%, что хорошо согласуется с результатами работы [4]. Отметим, что при смещении координаты линейного фокуса изменилась оптимальная энергия лазерного импульса, при которой достигается максимальная эффективность ВКР-преобразования. Так, при сдвиге из  $z = 0\text{ mm}$  в положение  $z = -1.8\text{ mm}$  оптимальная энергия лазерного импульса увеличилась с 2.6 до 2.8  $\mu\text{J}$ .

### Анализ и обсуждение результатов

Полученные экспериментальные данные не могут быть объяснены в приближении, где область взаимодействия определяется только геометрической оптикой. В случае линейного распространения лазерного импульса в кристалле (учёт изменения размеров пучка только за счет фокусировки линзой) наибольшая эффективность ВКР-преобразования достигается при  $z = 0\text{ mm}$ . Поскольку отношение длины Релея к длине кристалла равно 0.08 при фокусировке линзой с фокусным расстоянием 40 mm, то при смещении линейного фокуса на 1.8 mm в сторону задней грани эффективность должна уменьшаться незначительно (на  $\sim 3\%$ ). Таким образом, при рассмотрении эффективности конструктивной интерференции ВКР и ФСМ в кристалле BWO необходимо учитывать также эффект самофокусировки.



**Рис. 5.** Рассчитанная длина филамента от положения линейного фокуса внутри кристалла BWO длиной 8 mm при энергии лазерного импульса  $2.6\text{ }\mu\text{J}$ .

Критическая мощность самофокусировки  $P_{cr}$  лазерного импульса определяется выражением [8]

$$P_{cr} = 3.77\lambda^2 / (8\pi n_0 n_2), \quad (1)$$

где  $n_0$ ,  $n_2$  — линейный и нелинейный показатели преломления. Для кристалла BWO  $n_0(515 \text{ nm}) = 1.85$  [9]. Нелинейный показатель преломления BWO составляет  $n_2 = 6.4 \cdot 10^{-15} \text{ cm}^{-2}\text{W}$ , однако его отклик не мгновенный, а имеет время запаздывания 0.35 ps, сравнимое с длительностью лазерного импульса [6,7]. Поэтому для рассмотрения эффекта самофокусировки мы использовали значение эффективного нелинейного показателя преломления  $n_2 = 1.7 \cdot 10^{-15} \text{ cm}^{-2}\text{W}$ , измеренное с использованием техники Z-сканирования [10], т.е. методики, основанной на изменении пространственной формы пучка вследствие самофокусировки, при которой время отклика не учитывается.

Используя выражение (1), мы получили, что критическая мощность самофокусировки для наших условий составила  $P_{cr} = 0.13 \text{ MW}$ , что соответствует энергии лазерного импульса  $E = 40 \text{ nJ}$ . Следовательно, эффективная генерация ВКР-компоненты со сдвигом  $925 \text{ cm}^{-1}$  реализуется при мощности лазерных импульсов значительно выше критической, и эффект самофокусировки оказывает существенное влияние на геометрию взаимодействия. Для коллимированного пучка положение нелинейного фокуса определяется полуэмпирической формулой Марбургера [11]:

$$z_{sf} = \frac{0.367ka^2}{\sqrt{(\sqrt{P/P_{cr}} - 0.852)^2 - 0.0219}},$$

где  $k$  — волновое число,  $a$  — радиус пучка по уровню  $1/e$ ,  $P$  — пиковая мощность излучения,  $P_{cr}$  — критическая мощность самофокусировки. При наличии дополнительной фокусировки линзой с фокусным расстоянием  $f$  расстояние до нелинейного фокуса  $z_{fil}$  определяется формулой

$$\frac{1}{z_{fil}} = \frac{1}{z_{sf}} + \frac{1}{f}. \quad (2)$$

Отметим, что самофокусировка возникает только в образце BWO, поскольку критическая мощность самофокусировки в воздухе ( $P_{cr}(\text{воздух}) \sim 10^9 \text{ W}$  [12]) соответствует энергии лазерного импульса 0.4 мДж значительно выше, чем энергия/мощность импульсов в нашем эксперименте. Поэтому в нашем случае  $f$  в формуле (2) соответствует эквивалентному фокусному расстоянию линзы на передней грани кристалла.

Смещение линейного фокуса от передней к задней грани кристалла приводит к увеличению нелинейного набега фазы и, как следствие, к более раннему коллапсу пучка (началу филамента). Исходя из модели движущихся фокусов конец филамента определяется линейным фокусом, так как нелинейный фокус соответствует сходимости центральной части пучка (наиболее интенсивная

часть), а между ним и линейным фокусом располагаются нелинейные фокусы менее интенсивных частей пучка. В этом случае длину филамента можно оценить как разность расстояний от линейного до нелинейного фокусов,  $L_{ef} = F - z_{fil}$ . График зависимости длины филамента от положения линейного фокуса при энергии импульса  $2.6 \mu\text{J}$  представлен на рис. 5.

При постоянной энергии лазерного импульса и неизменной линзе интенсивность излучения внутри филамента можно считать постоянной (эффект „intensity clamping“) [13]. При смещении линейного фокуса происходит увеличение длины филамента, т.е. увеличение длины нелинейного взаимодействия. С учетом экспоненциального нарастания интенсивности излучения ВКР-компоненты

$$I_s(L) = I_s(0) \exp(gI_p L_{ef}),$$

где  $I_s(0)$  и  $I_s(L)$  — интенсивности ВКР-излучения на входе и выходе ВКР-среды,  $g$  — коэффициент ВКР-усиления,  $I_p$  — интенсивность накачки,  $L_{ef}$  — эффективная длина ВКР-взаимодействия, расчёт эффективности ВКР-преобразования от положения линейного фокуса показал хорошее согласие с экспериментом для  $z \geq -1.8 \text{ mm}$ . Однако при дальнейшем приближении линейного фокуса к задней грани ( $z < -1.8 \text{ mm}$ ) в эксперименте наблюдался резкий спад амплитуды стоксовой компоненты, что не объясняется в представленной модели. Этот спад эффективности может быть связан со следующими факторами: 1) рассогласованием групповых скоростей импульсов ВКР и накачки, которое составляет 50 fs/mm для наших условий, 2) повреждением задней грани кристалла без появления яркого плазменного факела, 3) сохранением интенсивной части излучения за линейным фокусом лазерного луча (постфиламентационный канал [14]), которая может давать вклад в ВКР-усиление, но при смещении линейного фокуса в сторону задней грани кристалла постфиламентационный канал может быть ограничен геометрическими размерами кристалла.

## Заключение

Экспериментально исследован эффект конструктивной интерференции эффектов ВКР и ФСМ 0.3 ps 515-нм лазерных импульсов в кристалле BWO при вариации условий фокусировки. При „мягкой“ фокусировке ( $f = 90 \text{ mm}$ ) эффективность генерации ВКР-пика  $\nu_1 = 925 \text{ cm}^{-1}$  составила  $\sim 1\%$ . При более жесткой фокусировке ( $f = 40$  и  $20 \text{ mm}$ ) и прочих равных условиях эффективность генерации этого пика достигала 10 и 5% соответственно.

Обнаружено, что при смещении положения линейного фокуса излучения накачки от передней к задней грани кристалла BWO наблюдается экспоненциальный рост амплитуды ВКР-пика  $\nu_1$ . Максимальная эффективность преобразования достигала 23%, когда линейный фокус

был смещен от центра на  $\sim 2$  mm к задней грани 8-mm образца кристалла. Однако при дальнейшем смещении линейного фокуса к задней грани (на расстояние менее 2 mm от грани) амплитуда пика резко падала.

Оценки показали, что экспоненциальный рост связан с наличием нелинейной (само-)фокусировки. Смещение линейного фокуса к задней грани кристалла приводит к дополнительному набегу нелинейной фазы и соответственно к увеличению расстояния между линейным и нелинейным фокусами (увеличение длины филамента). Как следствие, увеличивается эффективная длина нелинейного взаимодействия (длина ВКР-усиления), и амплитуда ВКР-пика экспоненциально растет. При приближении линейного фокуса к задней грани на расстояние менее 2 mm наблюдалось резкое падение эффективности ВКР-преобразования. Предложены различные эффекты, которые могут быть связаны с этим.

### 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] А.А. Ионин, И.О. Киняевский, Ю.М. Климачев, А.Ю. Козлов, А.А. Котков, О.А. Рулев, А.М. Сагитова, Л.В. Селезнев, Д.В. Сеницын. *Журн. прикл. спектр.*, **89** (4), 443 (2022). DOI: 10.47612/0514-7506-2022-89-4-443-454
- [2] В.С. Горелик. *Сибирский физический журнал*, **13** (3), 62 (2018). DOI: 10.25205/2541-9447-2018-13-3-62-68
- [3] A. Dubietis, G. Tamošauskas, R. Šuminas, V. Jukna, A. Couairon. *Lithuanian J. Physics*, **57** (3), 13 (2017). DOI: 10.3952/physics.v57i3.3541
- [4] I.O. Kinyaevskiy, V.I. Kovalev, P.A. Danilov, N.A. Smirnov, S.I. Kudryashov, L.V. Seleznev, E.E. Dunaeva, A.A. Ionin. *Opt. Lett.*, **45** (8) 2160 (2020). DOI: 10.1364/OL.391550
- [5] I. Kinyaevskiy, V. Kovalev, P. Danilov, N. Smirnov, S. Kudryashov, A. Koribut, A. Ionin. *Chinese Opt. Lett.*, **21** (3) (2023). DOI: 10.3788/COL202321.031902
- [6] I. Kinyaevskiy, V. Kovalev, P. Danilov, N. Smirnov, S. Kudryashov, A. Koribut, A. Ionin. *Opt. Lett.*, **46** (3), 697 (2021). DOI: 10.1364/OL.417661
- [7] I.O. Kinyaevskiy, V.I. Kovalev, A.V. Koribut, P.A. Danilov, N.A. Smirnov, S.I. Kudryashov, Ya.V. Grudtsyn, E.E. Dunaeva, V.A. Trofimov, A.A. Ionin. *J. Rus. Laser Research*, **43**, 315 (2022). DOI: 10.1007/s10946-022-10053-2
- [8] R.Y. Chiao, E. Garmire, C.H. Townes. *Phys. Rev. Lett.*, **13** (15), 479 (1964). DOI: 10.1103/PhysRevLett.13.479
- [9] L.I. Ivleva, I.S. Voronina, P.A. Lykov, L.Y. Berezovskaya, V.V. Osiko. *J. Crystal Growth*, **304** (1), 108 (2007). DOI: 10.1016/j.jcrysgro.2007.02.020
- [10] A.I. Vodchits, V.A. Orlovich, P.A. Apanasevich, T.T. Basiev, P.G. Zverev. *Opt. Mater.*, **29** (12), 1616 (2007). DOI: 10.1016/j.optmat.2006.08.005
- [11] J.H. Marburger. *Progress in Quantum Electronics*, **4**, 35 (1975). DOI: 10.1016/0079-6727(75)90003-8
- [12] E.T.J. Nibbering, G. Grillon, M.A. Franco, B.S. Prade, A. Mysyrowicz. *JOSA B*, **14** (3), 650 (1997). DOI: 10.1364/JOSAB.14.000650
- [13] В.П. Кандидов, В.Ю. Федоров, О.В. Тверской, О.Г. Косарева, С.Л. Чин. *Квант. электрон.*, **41** (4), 382 (2011). [V.P. Kandidov, V.Yu. Fedorov, O.V. Tverskoi, O.G. Kosareva, S.L. Chin. *Quant. Electron.*, **41** (4) 382 (2011). DOI: 10.1070/QE2011v041n04ABEH014486].
- [14] Y. Geints, O. Minina, A. Zemlyanov. *JOSA B*, **39** (6), 1549 (2022). DOI: 10.1364/JOSAB.453694