

09
Обогащение спектра многоволновой пикосекундной генерации синхронно-накачиваемого ВКР-лазера на кристалле $\text{Sr}(\text{MoO}_4)_{0.8}(\text{WO}_4)_{0.2}$

© Д.П. Терещенко,¹ С.Н. Сметанин,¹ А.Г. Папашвили,¹ К.А. Губина,² Ю.А. Кочуков,^{1,2} С.А. Солохин,³ М.Н. Ершков,³ Е.В. Шашков,¹ В.Е. Шукшин,¹ Л.И. Ивлева,¹ Е.Э. Дунаева,¹ И.С. Воронина¹

¹ Институт общей физики им. А.М. Прохорова РАН,
119991 Москва, Россия

² Национальный исследовательский технологический университет „МИСиС“,
119049 Москва, Россия

³ Ковровская государственная технологическая академия им. В.А. Дегтярева,
601910 Ковров, Россия
e-mail: solokhins@gmail.com

Поступило в Редакцию 9 декабря 2022 г.

В окончательной редакции 9 декабря 2022 г.

Принято к публикации 9 декабря 2022 г.

Впервые в качестве среды лазера на вынужденном комбинационном рассеянии (ВКР) использован однофазный твердый раствор $\text{Sr}(\text{MoO}_4)_{0.8}(\text{WO}_4)_{0.2}$. Использование высокоинтенсивной синхронной пикосекундной накачки, удовлетворяющей условию захвата фаз комбинационно-параметрического взаимодействия на второй колебательной моде, позволило получить генерацию шести компонент ВКР-излучения с комбинированным сдвигом частоты на первой (888 cm^{-1}) и второй (327 cm^{-1}) колебательных модах в диапазоне длин волн 1194–1396 nm. Эффективность генерации многоволнового ВКР-излучения составила 10%. При расстройке длины резонатора получено укорочение импульсов для компонент ВКР-излучения с комбинированным сдвигом частоты до 6 ps, что на порядок короче импульсов накачки (64 ps).

Ключевые слова: вынужденное комбинационное рассеяние, комбинированный сдвиг частоты, твердый раствор, колебательная мода.

DOI: 10.21883/JTF.2023.04.55036.270-22

Введение

В настоящее время большой интерес в биотехнологиях представляют неинвазивные методы исследования живых тканей и организмов, основанные на действии различных физических принципов, например, магнитном, электрическом или оптическом взаимодействии отдельных частиц с веществом или полем. Одним из перспективных направлений в данной области является многоцветная двухфотонная микроскопия живых тканей [1], где используются повторяющиеся с высокой частотой ультракороткие импульсы излучения на нескольких длинах волн ближнего инфракрасного диапазона, которые могут проникать в биологическую ткань на глубину до нескольких сантиметров. Длины волн излучения должны быть спектрально позиционированы для резонансного возбуждения специально разработанных флуоресцентных белков, таких как mKate2, tdKatushka2, mNeptune, mCardinal, Alexa647 и др., которые обладают исключительной яркостью и фотостабильностью, а поглощают на различных длинах волн, позиционированных в терапевтическом окне прозрачности биологических тканей (1000–1400 nm) [2]. Одновременное возбуждение нескольких „разноцветных“ флуорофоров позволяет существенно повысить глубину и контраст флуорес-

центного биоимиджинга, поэтому нужно использовать несколько различных лазеров, что коммерчески не выгодно, или один лазер, но с преобразованием частоты лазерного излучения. В работе [2] было осуществлено преобразование частоты субпикосекундного иттербиевого волоконного лазера путем вынужденного комбинационного рассеяния (ВКР) в искусственном алмазе при синхронной накачке, что было успешно применено для задач двухфотонного флуоресцентного биоимиджинга. В работе [3] был предложен и осуществлен оригинальный метод укорочения генерируемых импульсов излучения при ВКР с комбинированным сдвигом частоты на нескольких колебательных резонансах ВКР-активных кристаллов под действием синхронной пикосекундной накачки. Использовались тетрагональные кристаллы с двумя колебательными резонансами: интенсивный резонанс (первая колебательная мода) — для возбуждения ВКР при синхронной пикосекундной накачке и спектрально уширенный резонанс (вторая колебательная мода) — для укорочения импульса ВКР-излучения до его обратной спектральной ширины на втором каскаде ВКР с комбинированным сдвигом частоты. Это позволило получить импульсы излучения длительностью около 1 ps и короче, что в десятки раз короче импульса накачки [4]. В работе [5] показано, что

использование твердых растворов $Pb(MoO_4)_{x-1}(WO_4)_x$ в качестве активной среды синхронно-накачиваемого ВКР-лазера может быть использовано для увеличения числа генерируемых компонент ВКР-излучения.

Настоящая работа посвящена исследованию условий увеличения числа генерируемых компонент ВКР-излучения с комбинированным сдвигом частоты. Для решения данной задачи в качестве активной среды ВКР-лазера при интенсивной синхронной пикосекундной накачке использован однофазный твердый раствор $Sr(MoO_4)_{0.8}(WO_4)_{0.2}$, обладающий более интенсивной второй колебательной модой, чем в номинально чистом кристалле $SrMoO_4$. Это обеспечило генерацию шести компонент ВКР-излучения с близкорасположенными длинами волн, что превысило число генерируемых компонент в кристалле $SrMoO_4$ той же длины в аналогичных условиях.

1. Характеризация активного кристалла

Монокристалл твердого раствора $Sr(MoO_4)_{0.8}(WO_4)_{0.2}$ был выращен из расплава методом Чохральского в направлении [100] с использованием платинового тигля на воздухе в Научном центре лазерных материалов и технологий ИОФ РАН. Для подготовки шихты смешивались молибдат и вольфрамат стронция, полученные методом твердофазного синтеза из порошков карбоната стронция $SrCO_3$ и оксидов вольфрама WO_3 и молибдена MoO_3 марки ОСЧ, в пропорции 80 и 20 mol.% соответственно. Для получения кристаллов высокого оптического качества объемную скорость роста поддерживали не выше $0.3 \text{ cm}^3/\text{h}$ и осевой градиент температуры в зоне роста — $100^\circ\text{C}/\text{cm}$. Также был произведен послеростовой отжиг кристаллов в течение 6–8 h для предотвращения их растрескивания и минимизации термических напряжений.

Из полученного кристалла $Sr(MoO_4)_{0.8}(WO_4)_{0.2}$ был приготовлен активный элемент длиной $L = 7 \text{ cm}$ с просветляющими покрытиями на плоскопараллельных торцах. Оптическая ось кристалла была ориентирована перпендикулярно направлению распространения лазерного излучения в нем, чтобы обеспечить накачку при поляризации излучения, направленной вдоль оптической оси кристалла, для возбуждения не только первой, но и второй колебательной моды кристалла [3].

На рис. 1 представлены измеренные поляризованные спектры комбинационного рассеяния света в кристаллах $SrMoO_4$ и $Sr(MoO_4)_{0.8}(WO_4)_{0.2}$ при поляризации излучения накачки и рассеянного излучения, направленной вдоль оптической оси кристалла.

Первая колебательная мода в твердом растворе $Sr(MoO_4)_{0.8}(WO_4)_{0.2}$ (рис. 1, b) является двухчастотной, соответствующей полностью симметричным колебаниям молибдатной ($\nu_{1(M)} = 888 \text{ cm}^{-1}$) и вольфраматной

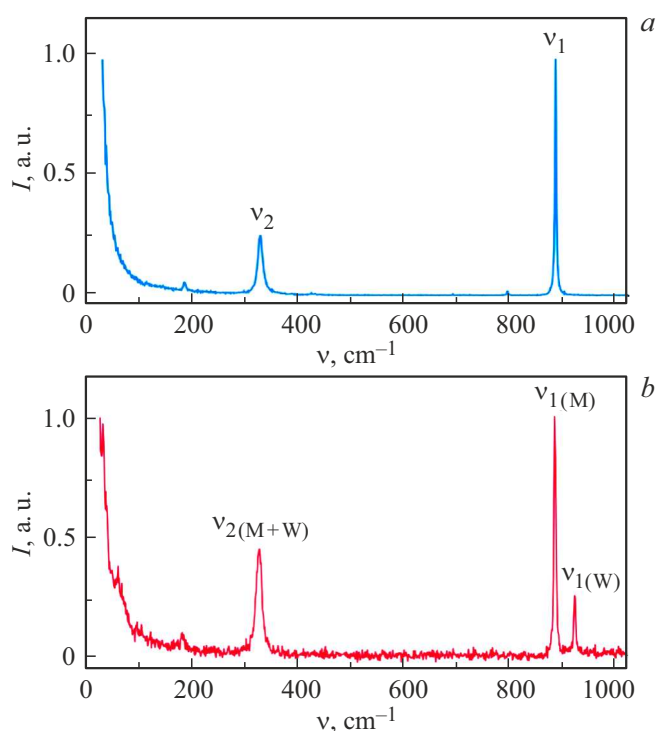


Рис. 1. Поляризованные спектры комбинационного рассеяния света при поляризации излучения накачки и рассеянного излучения, направленной вдоль оптической оси кристалла: *a* — в кристалле $SrMoO_4$, *b* — в кристалле $Sr(MoO_4)_{0.8}(WO_4)_{0.2}$.

($\nu_{1(W)} = 921 \text{ cm}^{-1}$) анионных групп. Вторая колебательная мода ($\nu_2 = 327 \text{ cm}^{-1}$) в кристалле $SrMoO_4$ (рис. 1, *a*) является самой низкоинтенсивной ($I_1/I_2 = 4.8$, где $I_{1,2}$ — интенсивности первой и второй колебательных мод), но самой широкой ($\Delta\nu_2 = 10.5 \text{ cm}^{-1}$) среди шеелитоподобных кристаллов [6]. В твердом растворе $Sr(MoO_4)_{0.8}(WO_4)_{0.2}$ (рис. 1, *b*) интенсивность второй колебательной моды ($\nu_{2(M+W)} = 327 \text{ cm}^{-1}$) возрастает до величины $I_1/I_2 = 3.2$, сравнимой с таковой для номинально чистого $SrWO_4$, но ее спектральная ширина в то же время увеличивается до $\Delta\nu_2 = 12 \text{ cm}^{-1}$ благодаря комбинации в ней деформационных колебаний молибдатной и вольфраматной анионных групп с близкими центральными частотами [7]. Ширина линии колебательного резонанса более 10 cm^{-1} обеспечивает возможность сжатия импульсов ВКР-излучения короче 1 ps (до обратной полуширины линии) [4].

2. Условия обогащения спектра многоволновой генерации ВКР-излучения с комбинированным сдвигом частоты

Для многоволновой ВКР-генерации с малым межволновым интервалом необходимо обеспечить участие не только первой, но и второй колебательной моды в

процессе ВКР в кристалле. В стационарном режиме ВКР, когда длительность импульсов излучения накачки существенно превышает время дефазировки (фазовой релаксации) колебаний кристалла $\tau = (\pi c \Delta\nu)^{-1}$ (c — скорость света в вакууме, $\Delta\nu$ — ширина колебательного резонанса на полувысоте), коэффициент стационарного ВКР-усиления g пропорционален интенсивности колебательной линии [8]. Так, в кристалле SrMoO_4 при накачке с длиной волны $1.06 \mu\text{m}$ для первой и второй колебательных мод имеем коэффициенты стационарного ВКР-усиления $g_1 = 5.6 \text{ cm/GW}$ [8] и $g_2 \approx g_1 I_2/I_1 = 1.17 \text{ cm/GW}$ соответственно. Следовательно, ВКР на первой, высокоинтенсивной колебательной моде выигрывает конкуренцию у ВКР на второй, менее интенсивной колебательной моде.

В существенно нестационарном режиме ВКР длительность импульса накачки наоборот является более короткой, чем время дефазировки τ . При этом процесс ВКР определяется интегральным сечением комбинационного рассеяния света, пропорциональным произведению коэффициента стационарного ВКР-усиления (g) на ширину линии колебательного резонанса ($\Delta\nu$) [8]. Из-за того, что вторая колебательная мода является низкоинтенсивной, но широкой, ее интегральное сечение может быть сравнимо с интегральным сечением первой (высокоинтенсивной, но узкой) колебательной моды, что может обеспечить ВКР не только на первой, но и на второй колебательной моде. Так, для кристалла SrMoO_4 имеем $g_1 \Delta\nu_1 = 14.6 \text{ GW}^{-1}$ и $g_2 \Delta\nu_2 = 12.3 \text{ GW}^{-1}$. Для твердого раствора $\text{Sr}(\text{MoO}_4)_{0.8}(\text{WO}_4)_{0.2}$ вторая колебательная линия является более интенсивной и более широкой, чем в SrMoO_4 (рис. 1), поэтому величина $g_2 \Delta\nu_2$ даже превышает величину $g_1 \Delta\nu_1$ (в 1.4 раза), что должно обеспечить более эффективное нестационарное ВКР на второй колебательной моде.

Еще одной возможностью является использование селективного оптического резонатора, в который устанавливается ВКР-активный кристалл. При длине резонатора, равной 1 m , время обхода (двойного прохода) резонатора составляет более 6 ns . Для обеспечения многопроходного развития ВКР-генерации в резонаторе нужно, чтобы длительность импульса накачки многократно превышала время обхода резонатора, так как ВКР-лазер является лазером без инверсии населенностей. Такое длительное ВКР происходит в стационарном режиме, при котором разность коэффициентов g_1 и g_2 должна быть скомпенсирована высокой добротностью резонатора для ВКР на второй колебательной моде, но обычно дает низкую эффективность ВКР-преобразования с комбинационным сдвигом частоты [9].

Наилучшим выбором является использование оптического резонатора для нестационарного режима ВКР под действием ультракоротких импульсов накачки, когда большая ширина второй колебательной моды становится важной. Поскольку при этом длительность импульса является заведомо короче времени обхода резонатора,

то необходима накачка серией пикосекундных импульсов с периодом повторения, синхронизированным со временем обхода резонатора ВКР-лазера [10]. Резонатор должен быть высокодобротным для первой стоксовой компоненты ВКР-излучения с высокочастотным сдвигом на первой колебательной моде. Выходное зеркало резонатора должно быть оптимизировано для эффективной многоволновой генерации высших стоксовых компонент ВКР-излучения с комбинарованным (высокочастотным и низкочастотным) сдвигом частоты на обеих колебательных модах [3].

В работе [11] в таком ВКР-лазере на кристалле SrWO_4 при синхронной пикосекундной накачке с длиной волны $\lambda_p = 1063 \text{ nm}$ в генерации участвовали стоксовы компоненты ВКР-излучения не только с высокочастотным сдвигом (ν_1) — первая с длиной волны $\lambda_S = (\lambda_p^{-1} - \nu_1)^{-1} = 1178 \text{ nm}$ и вторая с длиной волны $\lambda_{SS} = [\lambda_p^{-1} - (\nu_1 + \nu_2)]^{-1} = 1322 \text{ nm}$, но и вторая стоксова компонента с комбинарованным ($\nu_1 + \nu_2$) сдвигом частоты и длиной волны $\lambda_{Ss} = [\lambda_p^{-1} - (\nu_1 + \nu_2)]^{-1} = 1227 \text{ nm}$. В работе [6] в подобном ВКР-лазере на кристалле SrWO_4 получена также припороговая генерация третьей стоксовой компоненты с дополнительным низкочастотным сдвигом и длиной волны $\lambda_{Sss} = [\lambda_p^{-1} - (\nu_1 + \nu_2 + \nu_2)]^{-1} = 1279 \text{ nm}$, что обеспечило генерацию четырех стоксовых компонент с малым межволновым интервалом около 48 nm .

В настоящей работе мы исследуем возможности обогащения спектра ВКР-генерации на многих близкорасположенных длинах волн. В работе [6] была также отмечена существенная роль комбинационно-параметрического взаимодействия на второй (низкочастотной) колебательной моде (ν_2), имеющего относительно малую волновую расстройку

$$\Delta k_2 = (n_S + n_{Ss} - 2n_{Ss})2\pi\lambda_S^{-1} + (n_S - n_{Ss})2\pi\nu_2,$$

где n_S , n_{Ss} и n_{Sss} — показатели преломления на длинах волн λ_S , λ_{Ss} и λ_{Sss} . Данная волновая расстройка на порядок меньше, чем для комбинационно-параметрического взаимодействия на первой (высокочастотной) колебательной моде. Так, используя известные данные показателя преломления для кристалла SrMoO_4 [12], получаем $\Delta k_2 = 4.4 \text{ cm}^{-1}$ (на второй моде) против $\Delta k_1 = 35 \text{ cm}^{-1}$ (на первой моде).

Известен эффект захвата фаз процесса комбинационно-параметрического взаимодействия, который происходит при выполнении условия [13,14] $I_p > \Delta k/g$, где I_p — интенсивность излучения накачки. Так, для комбинационно-параметрического взаимодействия на первой колебательной моде кристалла SrMoO_4 ($\Delta k_1 = 35 \text{ cm}^{-1}$, $g_1 = 5.6 \text{ cm/GW}$) требуется очень высокая интенсивность накачки $I_p > 6.3 \text{ GW/cm}^2$. Но для комбинационно-параметрического взаимодействия на второй колебательной моде кристалла SrMoO_4 ($\Delta k_2 = 4.4 \text{ cm}^{-1}$, $g_2 = 1.17 \text{ cm/GW}$) требуемая интенсивность накачки снижается — $I_p > 3.7 \text{ GW/cm}^2$. Более того, так как

наше комбинационно-параметрическое взаимодействие (λ_S , λ_{S_s} и $\lambda_{S_{ss}}$) происходит на втором каскаде ВКР, то здесь первая стоксова компонента с длиной волны λ_S играет роль волны накачки данного взаимодействия. Тогда условие захвата его фаз переписывается в виде $I_S > \Delta k_2/g_2 = 3.7 \text{ GW/cm}^2$, где $I_S = I_{\text{out}}/(1-R_S)$ — интенсивность первой стоксовой компоненты внутри кристалла, I_{out} — ее интенсивность на выходе ВКР-лазера, R_S — коэффициент отражения выходного зеркала ВКР-лазера для первой стоксовой компоненты. Пренебрегая различием пространственно-временной структуры излучения накачки и первой стоксовой компоненты, в лучшем случае высокоэффективного ВКР получаем $I_{\text{out}} \approx I_p$. Тогда условие захвата фаз можно записать в виде $I_p > (1-R_S)\Delta k_2/g_2$. Поэтому использование высокодобротного резонатора ($R_S \rightarrow 1$) для первой стоксовой компоненты ВКР-излучения облегчает выполнение условия захвата фаз многоволновой ВКР-генерации с малым межволновым интервалом.

Проведенное нами математическое моделирование генерации синхронно-накачиваемого ВКР-лазера на кристалле SrMoO_4 подтвердило снижение порогов генерации высших стоксовых компонент ВКР-излучения с комбинированным сдвигом частоты при высокоинтенсивной накачке, удовлетворяющей условию захвата фаз комбинационно-параметрического взаимодействия.

3. Оптическая схема лазерной системы

Оптическая схема лазерной системы представлена на рис. 2.

Излучение лазера накачки I после прохода вентиля Фарадея 2 фокусировалось вогнутым зеркалом 3 в ВКР-активный элемент 4 , помещенный во внешний зигзаг-

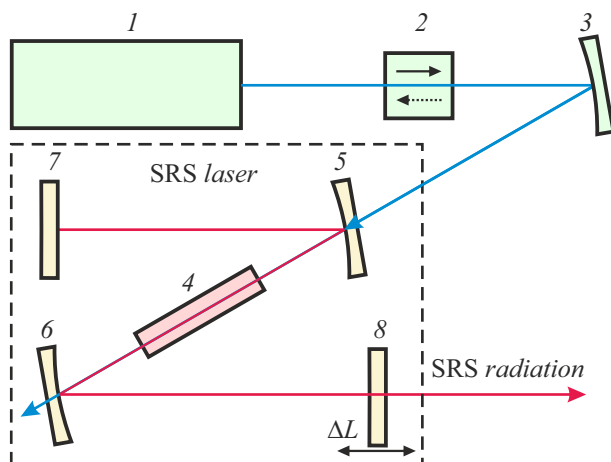


Рис. 2. Оптическая схема лазерной системы: 1 — лазер накачки; 2 — вентиль Фарадея; 3 — фокусирующее зеркало; 4 — ВКР-активный элемент; 5 – 8 — зеркала резонатора ВКР-лазера.

гообразный оптический резонатор, состоящий из двух вогнутых 5 и 6 и двух плоских 7 и 8 зеркал.

В качестве лазера накачки использована высокоомощная генераторно-усилительная лазерная система на кристаллах $\text{YAlO}_3:\text{Nd}^{3+}$ с длиной волны $\lambda_p = 1079 \text{ nm}$, генерирующая в режиме пассивной синхронизации мод лазерного резонатора пуг импульсов длительностью 440 ns с длительностью отдельных импульсов $t_p = 64 \text{ ps}$ и периодом их повторения 8 ns при энергии пуга лазерных импульсов $E_{\text{train}} = 18 \text{ mJ}$, что соответствовало энергии отдельных импульсов до $E_p = 320 \mu\text{J}$ [15]. Лазер накачки был изолирован от ВКР-лазера с помощью вентиля Фарадея. Использование вогнутого зеркала 3 с радиусом кривизны 240 cm позволило сфокусировать пучок излучения накачки в фокальное пятно с минимальным радиусом пучка $r_p = 290 \mu\text{m}$ (по уровню $1/e^2$) при гауссовом поперечном распределении интенсивности излучения. Это обеспечило повышение интенсивности импульсов излучения накачки до $I_p = 2E_p/(t_p\pi r_p^2) = 3.8 \text{ GW/cm}^2$, что удовлетворяет условию захвата фаз комбинационно-параметрической генерации на второй колебательной моде.

В качестве активного элемента ВКР-лазера использовался описанный выше кристалл $\text{Sr}(\text{MoO}_4)_{0.8}(\text{WO}_4)_{0.2}$ ($L = 7 \text{ cm}$). Длина резонатора ВКР-лазера была точно отрегулирована (зеркало 8 установлено на микрометрический стол, обеспечивающий прецизионное изменение длины резонатора ΔL) для синхронизации времени обхода резонатора с периодом повторения импульсов накачки (8 ns). Концевое плоское зеркало 7 было высокоотражающим на длинах волн ВКР-излучения от 1194 до 1396 nm ($R_{1192-1396} > 99\%$). Вогнутые зеркала 5 и 6 (радиус кривизны 50 cm) были прозрачными на длине волны накачки (коэффициент пропускания $T_{1079} = 97.1\%$) и имели следующее распределение коэффициентов отражения по длинам волн ВКР-излучения: $R_{1194} = 99.3\%$, $R_{1242} = 99.2\%$, $R_{1294} = 92.9\%$, $R_{1336} = 7.0\%$ и $R_{1396} = 15.3\%$. Выходное плоское зеркало 8 имело следующее распределение коэффициентов отражения по длинам волн ВКР-излучения: $R_{1194} = 99.2\%$, $R_{1242} = 98.5\%$, $R_{1294} = 86.6\%$, $R_{1336} = 24.2\%$ и $R_{1396} = 48.0\%$. Конфигурация резонатора была рассчитана в программном продукте ReZonator [16] для согласования размера основной поперечной моды первой стоксовой компоненты ВКР-излучения с фокальным радиусом пучка накачки ($r_p = 290 \mu\text{m}$) при времени обхода резонатора, синхронизированном с периодом повторения импульсов накачки (8 ns).

4. Экспериментальные результаты

Выходное ВКР-излучение раскладывалось в спектр с помощью дифракционной решетки (600 mm^{-1}) и посылалось на систему раздельной регистрации.

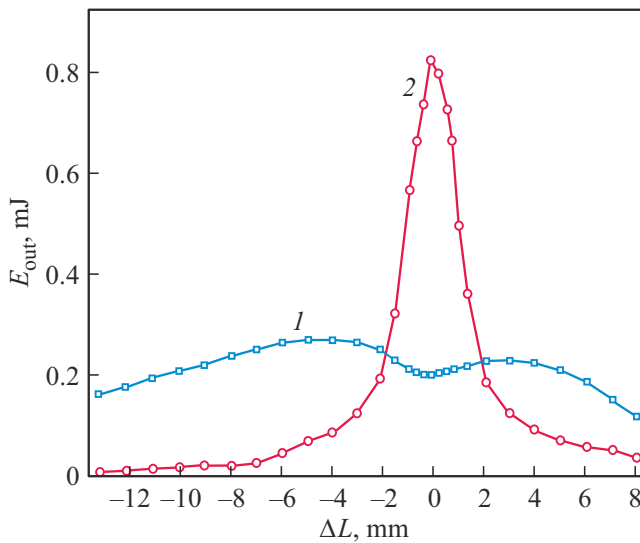


Рис. 3. Зависимости энергии пуга импульсов выходного ВКР-излучения E_{out} от расстройки длины резонатора ΔL : 1 — для первой стоксовой компоненты с высокочастотным сдвигом; 2 — для второй стоксовой компоненты с комбинированным сдвигом частоты.

Сначала осуществлялась настройка синхронизации накачки при продольном перемещении выходного зеркала 8. На рис. 3 показаны зависимости энергии пуга импульсов выходного излучения E_{out} от расстройки длины резонатора ΔL , измеренные для первых двух стоксовых компонент ВКР-излучения (при энергии пуга импульсов накачки, равной $E_{\text{train}} = 18 \text{ mJ}$).

Из рис. 3 видно, что ширина линии расстройки для первой стоксовой компоненты достаточно велика ($\sim 20 \text{ mm}$), а для второй компоненты — мала ($\sim 3 \text{ mm}$). Узкие расстрочные кривые наблюдались также для других стоксовых компонент с комбинированным сдвигом частоты. На рис. 3 по вертикальной шкале отложены абсолютные значения энергии, полученные прямыми измерениями (измеритель энергии StarLite Ophir-Spiricon) после отражения ВКР-излучения от дифракционной решетки, имеющей коэффициент отражения около 70% (в первом порядке дифракции). Нуль по горизонтальной шкале соответствует оптимальной настройке синхронной накачки, при которой были исследованы выходные характеристики лазера.

Длины волн всех генерируемых компонент ВКР-излучения были зарегистрированы спектрометром OceanOptics HR2000 (200–1100 nm, разрешающая способность 2 nm) после удвоения частоты кристаллом иодата лития. Ширины линий излучения не превышали разрешающую способность спектрометра. Рис. 4 демонстрирует результат измерений, проведенных отдельно для каждой компоненты ВКР-излучения, разложенного в спектр дифракционной решеткой.

Генерируемые компоненты излучения идентифицированы как пять стоксовых компонент ВКР-излучения

$$\lambda_S = (\lambda_p^{-1} - \nu_1)^{-1} = 1194 \text{ nm},$$

$$\lambda_{SS} = [\lambda_p^{-1} - (\nu_1 + \nu_2)]^{-1} = 1242 \text{ nm},$$

$$\lambda_{SSS} = [\lambda_p^{-1} - (\nu_1 + \nu_2 + \nu_3)]^{-1} = 1294 \text{ nm},$$

$$\lambda_{SS} = [\lambda_p^{-1} - (\nu_1 + \nu_1)]^{-1} = 1336 \text{ nm}$$

и

$$\lambda_{SSS} = [\lambda_p^{-1} - (\nu_1 + \nu_1 + \nu_2)]^{-1} = 1396 \text{ nm},$$

а также одна стокс-антистоксова компонента

$$\lambda_{SSa} = [\lambda_p^{-1} - (\nu_1 + \nu_1 - \nu_2)]^{-1} = 1279 \text{ nm}.$$

В результате происходила генерация на шести близкорасположенных длинах волн со средним значением межволнового интервала 40.4 nm. Наличие стокс-антистоксовой компоненты (λ_{SSa}) однозначно подтверждает участие комбинационно-параметрического взаимодействия на второй колебательной моде.

Выходная энергия распределялась по компонентам ВКР-излучения следующим образом:

- 14% на $\lambda_S = 1194 \text{ nm}$,
- 58% на $\lambda_{SS} = 1242 \text{ nm}$,
- 9% на $\lambda_{SSS} = 1294 \text{ nm}$,
- 10% на $\lambda_{SS} = 1336 \text{ nm}$,
- 6% на $\lambda_{SSS} = 1396 \text{ nm}$ и
- 3% на $\lambda_{SSa} = 1279 \text{ nm}$.

Энергетическая эффективность преобразования излучения накачки в суммарное ВКР-излучение составила 10%.

Нами был подготовлен также активный элемент из номинально чистого кристалла SrMoO_4 такой же длины ($L = 7 \text{ cm}$) с антиотражающими покрытиями на плоскопараллельных торцах. При замене $\text{Sr}(\text{MoO}_4)_{0.8}(\text{WO}_4)_{0.2}$ элемента на этот SrMoO_4 -элемент в тех же условиях была получена генерация также на пяти стоксовых длинах

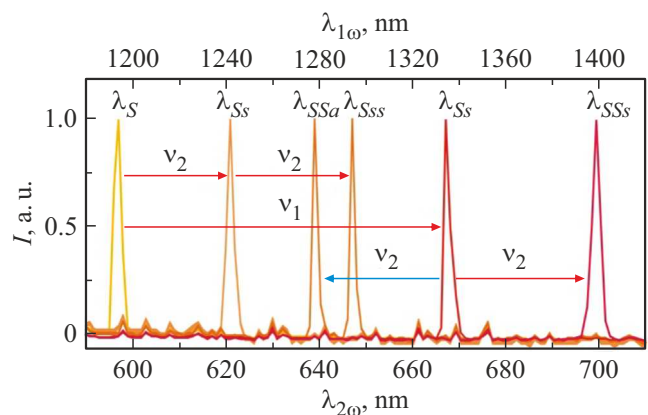


Рис. 4. Спектр генерируемого ВКР-излучения: $\lambda_{2\omega}$ — длина волны второй гармоники, измеренная спектрометром; $\lambda_{1\omega} = 2\lambda_{2\omega}$ — пересчитанная длина волны излучения лазера.

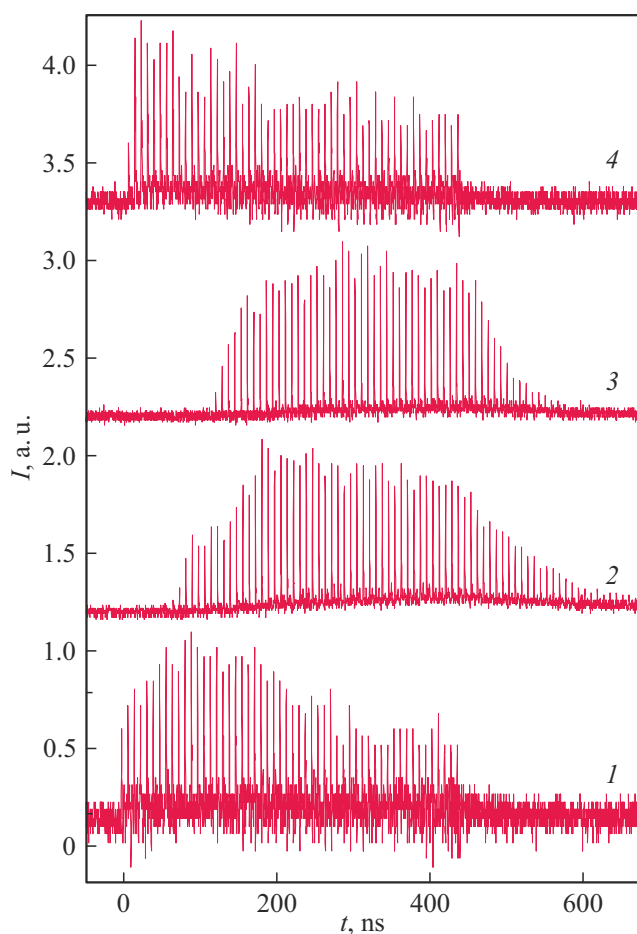


Рис. 5. Осциллограммы четырех компонент ВКР-излучения: 1 — для первой стоксовой компоненты (λ_S); 2 — для второй стоксовой компоненты с комбинированным сдвигом частоты (λ_{SS}); 3 — для третьей стоксовой компоненты с комбинированным сдвигом частоты (λ_{SSs}); 4 — для второй стоксовой компоненты с высокочастотным сдвигом (λ_{SSa}).

волн (λ_S , λ_{SS} , λ_{SSs} , λ_{SSa} и λ_{SSs}), но на стокс-антисксово-вой длине волны λ_{SSa} генерация не происходила, что можно объяснить меньшей интенсивностью второй колебательной моды (рис. 1, а).

На рис. 5 представлены осциллограммы четырех основных компонент генерируемого ВКР-излучения с длинами волн λ_S , λ_{SS} , λ_{SSs} и λ_{SSa} (при энергии цуга импульсов накачки, равной $E_{\text{train}} = 18$ мДж). Осциллограммы получены с помощью четырех лавинных фотодиодов ЛФД-2А, подключенных к четырехканальному осциллографу Tektronix TDS7404В (4 GHz).

На рис. 5 нуль по горизонтальной шкале соответствует началу цуга импульсов накачки (на рис. 5 не показан). Видно, что цуги импульсов первой (кривая 1) и второй (кривая 4) стоксовых компонент с высокочастотным сдвигом начинались одновременно с накачкой, т.е. генерировались в одноканальном режиме благодаря высокой интенсивности накачки (3.8 GW/cm²).

Цуги импульсов стоксовых компонент с комбинированным сдвигом частоты (кривые 2 и 3) имели задержку на развитие комбинационно-параметрической генерации под действием внутрирезонаторной синхронной накачки первой стоксовой компонентой ВКР-излучения, запертой в добротном резонаторе. Задержку имели также непоказанные на рис. 3 цуги оставшихся двух компонент ВКР-излучения с комбинированным сдвигом частоты (λ_{SSa} и λ_{SSs}). Из рис. 5 также видно, что генерация цуга импульсов компоненты 2 продолжалась в течение 160 ns после завершения генерации цуга импульсов компоненты 1. Это объясняется большим временем жизни фотона в добротном резонаторе для компоненты 2, имеющем порядок 100 ns. Этого не наблюдается для компоненты 3, потому что резонатор для нее менее добротен, и время жизни фотона в резонаторе на порядок меньше.

С помощью стрик-камеры типа PS-1/S1 [17] (разработка ИОФ РАН) была также измерена длительность генерируемых импульсов выходного ВКР-излучения. Измерения при $\Delta L = 0$ показали, что длительность импульсов стоксовых компонент с комбинированным сдвигом частоты (λ_{SS} и λ_{SSs}) составляла 12 ± 4 ps, а при $\Delta L = 1.5$ mm, соответствующей полуширине расстройочной кривой (линия 2) на рис. 3, длительность импульсов укорачивалась до 6 ± 2 ps. Для первой (λ_S) и второй (λ_{SS}) стоксовых компонент ВКР-излучения с высокочастотным сдвигом заметного укорочения импульсов не наблюдалось, длительность импульсов для них была не менее 20 ps. Укорочение импульсов излучения можно объяснить тем, что в лазерах синхронной накачкой длительность импульса определяется квадратным корнем произведения длительности импульса накачки и времени фазовой релаксации активной среды [18], а время дефазировки (фазовой релаксации) для второй колебательной моды существенно меньше ($\tau_2 = (\pi c \Delta \nu_2)^{-1} = 0.9$ ps), чем для первой ($\tau_1 = (\pi c \Delta \nu_1)^{-1} = 4$ ps).

Заключение

В работе в качестве среды ВКР-лазера впервые использован однофазный твердый раствор Sr(MoO₄)_{0.8}(WO₄)_{0.2}. Использование высокоинтенсивной синхронной пикосекундной накачки позволило получить генерацию шести компонент ВКР-излучения с комбинированным сдвигом частоты на первой (888 см⁻¹) и второй (327 см⁻¹) колебательных модах. Число генерируемых компонент превышало такое для номинально чистого кристалла SrMoO₄ той же длины в одинаковых условиях эксперимента. Дополнительная генерируемая волна представляла собой стокс-антисксовую компоненту с комбинированным сдвигом частоты, что однозначно подтверждает участие комбинационно-параметрического взаимодействия на второй колебательной моде. Интенсификация процесса генерации заключалась в повышении интенсивности накачки для выполнения условия захвата фаз такого комбинационно-

параметрического взаимодействия в твердом растворе, имеющем более интенсивную вторую колебательную моду, чем в номинально чистом кристалле. Эффективность генерации многоволнового ВКР-излучения составила 10%. При расстройке длины резонатора получено укорочение импульсов для компонент ВКР-излучения с комбинированным сдвигом частоты до 6 ps, что на порядок короче импульсов накачки (64 ps).

Финансирование работы

Исследование выполнено за счет гранта Российского научного фонда № 22-22-20092, <https://rscf.ru/project/22-22-20092/>.

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] Ch. Stringari, L. Abdeladim, G. Malkinson, P. Mahou, X. Solinas, I. Lamarre, S. Brizion, J.-B. Galey, W. Supatto, R. Legouis, A.-M. Pena, E. Beaurepaire. *Sci. Rep.*, **7**, 3792 (2017). DOI: 10.1038/s41598-017-03359-8
- [2] E.P. Perillo, J.W. Jarrett, Ye.-L. Liu, A. Hassan, D.C. Fernee, J.R. Goldak, A. Bonteanu, D.J. Spence, H.-Ch. Yeh, A.K. Dunn. *Light Sci. Appl.*, **6**, e17095 (2017). DOI: 10.1038/lsa.2017.95
- [3] M. Frank, S.N. Smetanin, M. Jelínek, D. Vyhřídál, L.I. Ivleva, P.G. Zverev, V. Kubeček. *Opt. Lett.*, **43**(11), 2527 (2018). DOI: 10.1364/OL.43.002527
- [4] M. Frank, S.N. Smetanin, M. Jelínek, D. Vyhřídál, V.E. Shukshin, P.G. Zverev, V. Kubeček. *Laser Phys. Lett.*, **16**(8), 085401 (2019). DOI: 10.1088/1612-202X/ab2b92
- [5] M. Frank, S.N. Smetanin, M. Jelínek, D. Vyhřídál, M.B. Kosmyna, A.N. Shekhovstov, K.A. Gubina, V.E. Shukshin, P.G. Zverev, V. Kubeček. *Crystals*, **12**(2), 148 (2022). DOI: 10.3390/cryst12020148
- [6] M. Frank, S.N. Smetanin, M. Jelínek, D. Vyhřídál, V.E. Shukshin, L.I. Ivleva, E.E. Dunaeva, I.S. Voronina, P.G. Zverev, V. Kubeček. *Crystals*, **9**(3), 167 (2019). DOI: 10.3390/cryst9030167
- [7] Y. Sun, Zh. Zhu, J. Li, Sh. Gao, H. Xia, Zh. You, Y. Wang. *Ch. Tu. Opt. Mater.*, **49**, 85 (2015). DOI: 10.1016/j.optmat.2015.08.023
- [8] Т.Т. Басиев, П.Г. Зверев, А.Я. Карасик, В.В. Осико, А.А. Соболев, Д.С. Чунаев. *ЖЭТФ*, **126**(5), 1073 (2004). [T.T. Basiev, P.G. Zverev, A.Y. Karasik, V.V. Osiko, A.A. Sobol, D.S. Chunaev. *J. Exp. Theor. Phys.*, **99**, 934 (2004). DOI: 10.1134/1.1842874]
- [9] P.G. Zverev, T.T. Basiev, A.A. Sobol, I.V. Ermakov, W. Gellerman. In *Advanced Solid-State Lasers*, ed. by C. Marshall. Vol. 50 of OSA Trends in Optics and Photonics (Optica Publishing Group, 2001), paper ME1. DOI: 10.1364/ASSL.2001.ME1
- [10] Г.Г. Григорян, С.Б. Согомонян. *Квант. электрон.*, **16**(11), 2180 (1989). [G.G. Grigoryan, S.B. Sogomonyan. *Sov. J. Quantum Electron.*, **19**(11), 1402 (1989). DOI: 10.1070/QE1989v019n11ABEH009263]
- [11] M. Frank, S.N. Smetanin, M. Jelínek, D. Vyhřídál, V.E. Shukshin, L.I. Ivleva, P.G. Zverev, V. Kubeček. *Opt. Laser Technol.*, **119**, 105660 (2019). DOI: 10.1016/j.optlastec.2019.105660
- [12] *Handbook of Optics. Volume IV: Optical Properties of Materials, Nonlinear Optics, Quantum Optics* (The McGraw-Hill Companies, Inc., NY, USA, 2010), 1152 p.
- [13] В.С. Бутылкин, Г.В. Венкин, Л.Л. Кулюк, Д.И. Малеев, Ю.Г. Хронополо, М.Ф. Шаляев. *Квант. электрон.*, **4**(7), 1537 (1977). [V.S. Butylkin, G.V. Venkin, L.L. Kulyuk, D.I. Maleev, Yu.G. Khronopulo, M.F. Shalyaev. *Sov. J. Quantum Electron.*, **7**(7), 867 (1977). DOI: 10.1070/QE1977v007n07ABEH012668]
- [14] Л.Л. Лосев, А.П. Луценко. *Квант. электрон.*, **21**(10), 965 (1994). [L.L. Losev, A.P. Lutsenko. *Sov. J. Quantum Electron.*, **24**(10), 900 (1994). DOI: 10.1070/QE1994v024n10ABEH000206]
- [15] D.P. Tereshchenko, E.A. Peganov, S.N. Smetanin, A.G. Papashvili, E.V. Shashkov, L.I. Ivleva, E.E. Dunaeva, I.S. Voronina, M. Frank. *Crystals*, **12**, 495 (2022). DOI: 10.3390/cryst12040495
- [16] Резонатор. [Электронный ресурс] URL: <http://rezonator.orion-project.org> (дата обращения 02.02.2023)
- [17] Н.С. Воробьев, П.Б. Горностаев, В.И. Лозовой, А.В. Смирнов, Е.В. Шашков, М.Я. Щелев. *Приборы и техника эксперимента*, **4**, 72 (2016). [N.S. Vorobiev, P.B. Gornostaev, V.I. Lozovoi, A.V. Smirnov, E.V. Shashkov, M.Y. Schelev. *Instrum. Exp. Tech.*, **59**(4), 551 (2016). DOI: 10.1134/S0020441216030246]
- [18] В.А. Нехаенко, С.М. Першин, А.А. Подшивалов. *Квантовая электрон.*, **13**(3), 453 (1986). [V.A. Nekhaenko, S.M. Pershin, A.A. Podshivalov. *Sov. J. Quantum Electron.*, **16**(3), 299 (1986). DOI: 10.1070/QE1986v016n03ABEH005825]