

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: kinyaevskiyio@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  $\nu_1 = 925 \text{ cm}^{-1}$ , 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>, chirпированные 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  $T_2$ , 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-chirпированных 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 chirпа (длительности импульса). Проблема заключается в том, что если длительность

chirпированного импульса будет меньше или сопоставима с временем  $T_2$  (маленький chirп), то, как отмечалось выше, эффективный коэффициент ВКР-усиления будет меньше из-за нестационарности процесса. Если длительность импульса будет слишком большой (большой chirп), 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-chirпированных импульсов фемтосекундного титан-сапфирового лазера при вариации их длительности (величины chirпа). В работе использовались импульсы с положительным chirпом, 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 chirпированными лазерными импульсами [8,10].

### Схема эксперимента

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

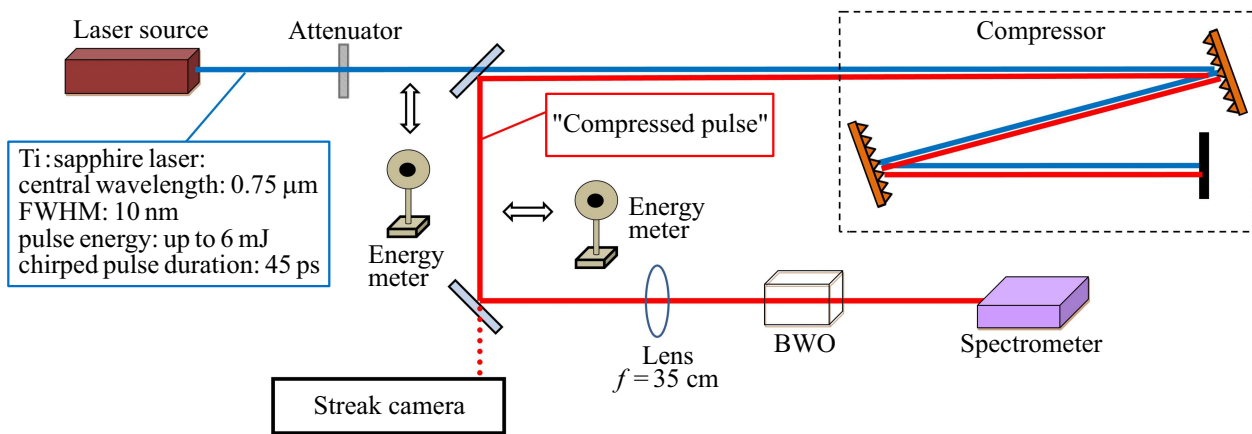


Рис. 1. Оптическая схема эксперимента.

( $\sim 150 \text{ cm}^{-1}$ ), 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 см и кристалла  $\text{BaWO}_4$  длиной 8 мм. Кристалл располагался за фокусом лазерного пучка на расстоянии 37 см 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 ВКР длиной 8 мм 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  $8.0 \pm 1.6 \text{ cm/GW}$  ( $\lambda = 1.06 \mu\text{m}$ ) моды  $\sim 925 \text{ cm}^{-1}$ , для которой время дефазировки  $T_2$  составляет 6.6 ps [15]. Для повышения эффективности ВКР-преобразования 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 chirпированного лазерного импульса на выходе лазерной системы (без компрес-

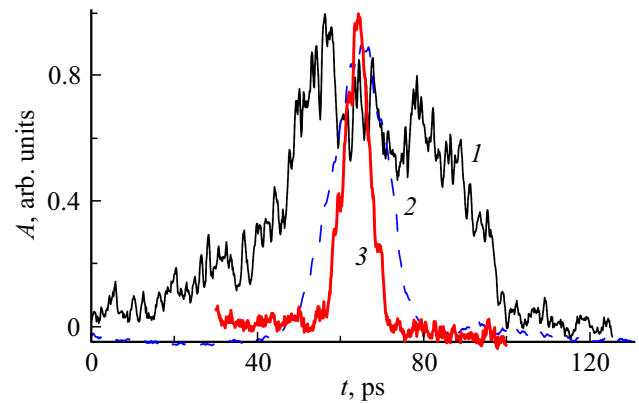
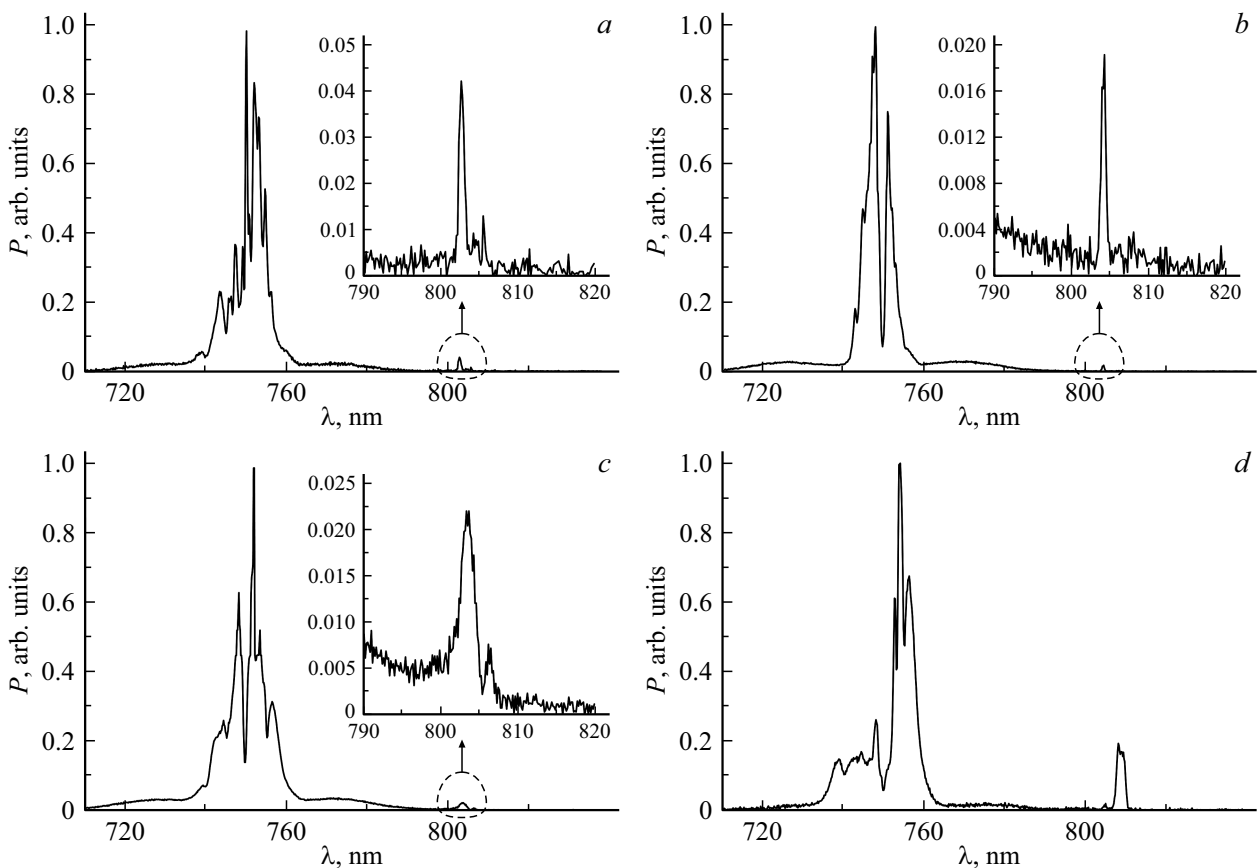


Рис. 2. Временные формы импульсов до компрессора (1) и после компрессора при различном расстоянии между дифракционными решетками:  $t_p = 17$  (2), 7 ps (3).

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

Лазерные импульсы различной длительности ( $t_p = 7\text{--}45 \text{ ps}$ ) с энергией 1 mJ направляли в ВКР-преобразователь, спектр которых регистрировали спектрометром. На рис. 3 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 WVO, 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,  $0.1 \text{ ps}^{-2}$  соответственно. Спектры на рис. 3 нормированы на амплитуду спектра прошедшей накачки.

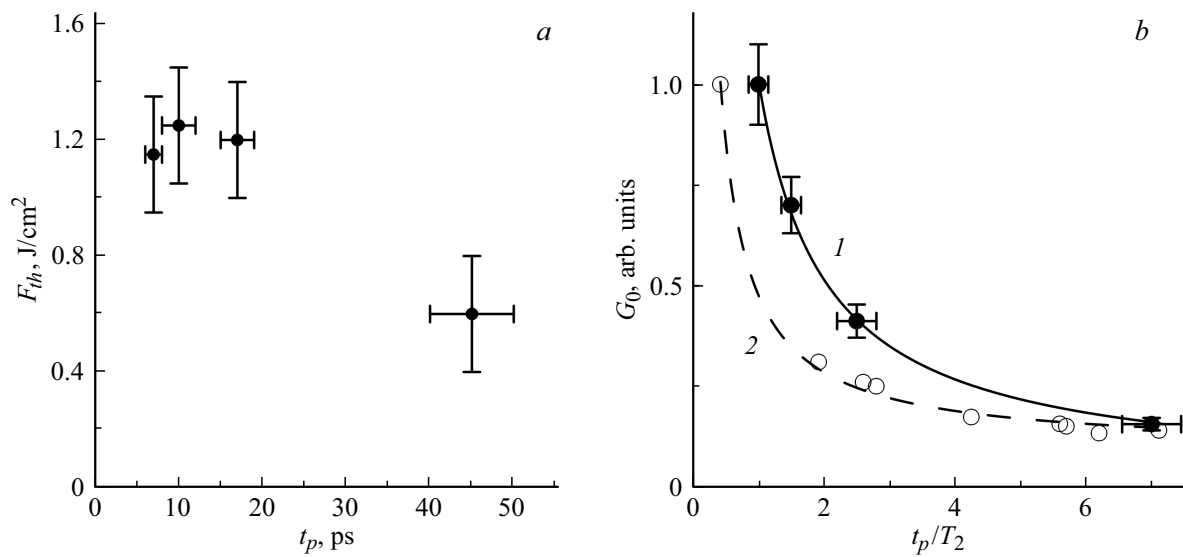
Для лазерных импульсов длительностью 7–17 ps, что соответствует примерно  $T_2$ – $2.5T_2$ , эффективность ВКР-преобразования была примерно одинаковой:  $(1 \pm 0.5)\%$ . Эффективность определялась как отношение площади под ВКР-пиком к площади под спектром прошедшей накачки. При длительности импульса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

На рис. 4, a представлена зависимость „порога“ ВКР-генерации (эффективности ВКР — 1%) в единицах плотности энергии от длительности лазерного импульса, определенная из эксперимента. „Порог“ генерации ВКР для относительно коротких чирпированных импульсов ( $t_p = 7$ – $17 \text{ ps}$ ,  $T_2$ – $2.5T_2$ ) 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  $\sim 0.6 \text{ J/cm}^2$ ), что указывает на переход к стационарному режиму ВКР. „Пороговая“ интенсивность ВКР для  $t_p = 45 \text{ ps}$  составила  $\sim 13 \text{ GW/cm}^2$ , что в  $\sim 12$  раз меньше, чем для  $t_p = 7 \text{ ps}$ .

На рис. 4, b черными точками представлена зависимость экспоненциального инкремента усиления  $G = Igl$  для „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 ps, а относительная длительность импульса  $t_p/T_2$  варьировала путем использования различных ВКР-кристаллов при  $T_2$  от 1.18 ps для  $\text{TeO}_2$  до 26.5 ps для  $\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$ . 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.** (а) „Порог“ генерации ВКР в зависимости от длительности импульса накачки в единицах плотности энергии; (б) зависимость инкремента усиления  $G = Igl$  для „порога“ генерации ВКР от относительной длительности импульса  $t_p/T_2$ : 1 — 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  $BaWO_4$  экспериментально исследовано ВКР импульсов фемтосекундного титан-сапфирового лазера с длительностью, варьируемой оптическим компрессором. Для импульсов длительностью 7–17 ps (соответствует  $T_2 - 2.5T_2$ ) максимальная эффективность преобразования была на уровне 1%, при этом „порог“ генерации ВКР достигался при одинаковой плотности энергии 1.2–0.2  $J/cm^2$ . 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  $t_p/T_2$  для chirпованного импульса выглядело так же, как и для спектрально ограниченного импульса. Для оценки влияния chirпования импульса накачки на ВКР требуется проведение экспериментов с большим диапазоном длительностей импульса (величины chirпа), а также различным знаком chirпа. 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. Kinyevskiy, 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. Коныщенко, 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
- [9] 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. Соболев, Д.С. Чунаев. *ЖЭТФ*, **126** (5), 1073–1082 (2004). [T. 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