

Анизотропия двухфотонного поглощения и ВКР-генерации в кристалле $\text{Na}_2\text{Mo}_2\text{O}_7$

© Д.С. Чунаев,¹ С.Б. Кравцов,¹ В.Е. Шукшин,¹ В.Н. Шлегель,² В.Д. Григорьева,² П.Г. Зверев¹

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

² Институт неорганической химии им. А.В. Николаева СО РАН,
Новосибирск, Россия

e-mail: zverev@lst.gpi.ru

Поступила в редакцию 12.12.2024 г.

В окончательной редакции 20.01.2025 г.

Принята к публикации 28.02.2025 г.

Исследовано двухфотонное поглощение и вынужденное комбинационное рассеяние в кристалле $\text{Na}_2\text{Mo}_2\text{O}_7$ при облучении пикосекундными лазерными импульсами с длительностью 25 ps. Выявлена анизотропия нелинейно-оптических свойств и ширины запрещенной зоны в кристалле. Максимальный коэффициент двухфотонного поглощения на длине волны 523.5 nm составил 7.8 cm/GW для излучения с поляризацией, параллельной кристаллографической оси **a**. Вынужденное комбинационное рассеяние на кристалле $\text{Na}_2\text{Mo}_2\text{O}_7$ со стоксовым сдвигом 939 cm^{-1} при накачке с длиной волны 523.5 nm получено только при возбуждении излучением с поляризацией, параллельной кристаллографическим осям **b** и **c**, с максимальным коэффициентом рамановского усиления 10.3 cm/GW. Отсутствие вынужденного комбинационного рассеяния при возбуждении излучением с поляризацией, параллельной оси **a** и соответствующей геометрии максимального коэффициента рамановского усиления, связано с конкуренцией между процессами вынужденного комбинационного рассеяния и двухфотонного поглощения.

Ключевые слова: димолибдат натрия, двухфотонное поглощение, ширина запрещенной зоны, вынужденное комбинационное рассеяние.

DOI: 10.61011/OS.2025.03.60240.9-25

Введение

Поиск нелинейных кристаллов для эффективных твердотельных преобразователей лазерного излучения на основе вынужденного комбинационного рассеяния (ВКР) является актуальной задачей современной лазерной физики. ВКР позволяет преобразовывать лазерное излучение хорошо разработанных лазеров в новые спектральные диапазоны длин волн и создавать компактные и надежные источники лазерного излучения [1–3]. Для достижения порога ВКР требуется высокая интенсивность излучения, что может приводить к другим нелинейным процессам, включая двухфотонное поглощение, самофокусировку [4,5]. Двухфотонное поглощение (ДФП) ограничивает использование ВКР-преобразователей в видимой и ближней ультрафиолетовой областях спектра, когда рабочая длина волны близка к границе фундаментального поглощения в среде [6,7].

Прозрачность оптической среды в видимом и ближнем ультрафиолетовом диапазонах определяется шириной запрещенной зоны E_g , которая определяется энергетическим зазором между дном зоны проводимости и верхними уровнями валентной зоны. Большинство ВКР-активных материалов на основе оксидных молекулярно-ионных комплексов имеют энергетическую ширину запрещенной зоны 3–6 eV [8,9]. Облучение среды ин-

тенсивным светом с энергией фотонов, превышающей половину E_g , может приводить к двухфотонным межзонным переходам. ДФП создает долгоживущие оптические центры, которые приводят к однофотонному поглощению возбуждающего излучения и снижают его интенсивность.

Недавно была усовершенствована технология получения кристаллов димолибдата натрия $\text{Na}_2\text{Mo}_2\text{O}_7$, и появилась возможность получать образцы этого кристалла высокого оптического качества [10]. Кристалл $\text{Na}_2\text{Mo}_2\text{O}_7$ обладает сильной анизотропией оптических свойств. Недавно было показано, что $\text{Na}_2\text{Mo}_2\text{O}_7$ обладает интенсивными линиями в спектре комбинационного рассеяния и является высокоэффективным ВКР-активным материалом. Коэффициент ВКР-усиления в нем при оптимальной ориентации составляет 12.4 cm/GW на длине волны 1.047 μm , что является одним из самых высоких значений для твердотельных ВКР-активных сред [11].

Целью настоящей работы было исследование анизотропии нелинейного ДФП излучения с длиной волны 523.5 nm в кристалле $\text{Na}_2\text{Mo}_2\text{O}_7$, получить ВКР-генерацию в нем при возбуждении пикосекундными лазерными импульсами, а также проанализировать влияние ДФП на процесс ВКР-генерации в зависимости от поляризации излучения накачки.

Экспериментальный образец кристалла $\text{Na}_2\text{Mo}_2\text{O}_7$

Кристалл $\text{Na}_2\text{Mo}_2\text{O}_7$ имеет орторомбическую структуру с параметрами элементарной ячейки $a = 7.2 \text{ \AA}$, $b = 11.8 \text{ \AA}$, $c = 14.7 \text{ \AA}$. Исследуемый образец кристалла был выращен методом Чохральского в платиновом тигле; подробности ростового процесса описаны в работе [10]. Экспериментальный образец кристалла был вырезан вдоль кристаллографических осей **a**, **b** и **c** в виде прямоугольного параллелепипеда с полированными гранями и имел размеры $7.3 \times 6.0 \times 3.5 \text{ mm}$. Кристалл $\text{Na}_2\text{Mo}_2\text{O}_7$ прозрачен в видимом и ближнем ИК спектральных диапазонах вплоть до длины волны $5 \mu\text{m}$ [10]. Коротковолновая граница пропускания кристалла лежит около длины волны 370 nm .

До настоящего времени прозрачность кристаллов в ультрафиолетовой области спектра исследовалась только для неполяризованного излучения [12]. В наших экспериментах для получения поляризованных спектров пропускания использовался спектрометр Cary-5000 (Varian), работающий в спектральном диапазоне $175\text{--}3200 \text{ nm}$ со спектральным разрешением 0.08 nm , и поляризаторы Глана-Тейлора. На рис. 1 представлены поляризованные спектры пропускания кристалла $\text{Na}_2\text{Mo}_2\text{O}_7$ для поляризаций, параллельных всем трем кристаллографическим осям **a**, **b** и **c**. Видно, что спектр пропускания кристалла сильно зависит от ориентации кристалла. Для поляризаций излучения $\mathbf{E} \parallel \mathbf{b}$ и $\mathbf{E} \parallel \mathbf{c}$ ультрафиолетовая граница пропускания расположена в области $365\text{--}370 \text{ nm}$, а для $\mathbf{E} \parallel \mathbf{a}$ она смещена в красную сторону и находится около длины волны 390 nm . Заметим, что пропускание образца в видимой области спектра для этой поляризации составляет 73%, что заметно меньше, чем пропускание для поляризаций $\mathbf{E} \parallel \mathbf{b}$ и $\mathbf{E} \parallel \mathbf{c}$, равное 84%. Это связано с различием величины френелевского отражения для разных ориентаций кристалла и свидетельствует о более высоком значении показателя преломления для поляризации $\mathbf{E} \parallel \mathbf{a}$.

Анизотропия коэффициента двухфотонного поглощения в кристалле $\text{Na}_2\text{Mo}_2\text{O}_7$

Величины коэффициентов ДФП в кристалле $\text{Na}_2\text{Mo}_2\text{O}_7$ для различных поляризаций света измерялись на длине волны 523.5 nm с использованием экспресс-методики, предложенной в [9]. В эксперименте измеряется пропускание образца при прохождении через него цуга пикосекундных лазерных импульсов с плавно изменяющейся амплитудой. В качестве источника излучения использовался импульсный неодимовый лазер на кристалле Nd:YLF с пассивной синхронизацией мод, который даёт поляризованное излучение на длине волны 1047 nm . Для получения излучения второй гармоники с длиной волны 523.5 nm использовался удвоитель

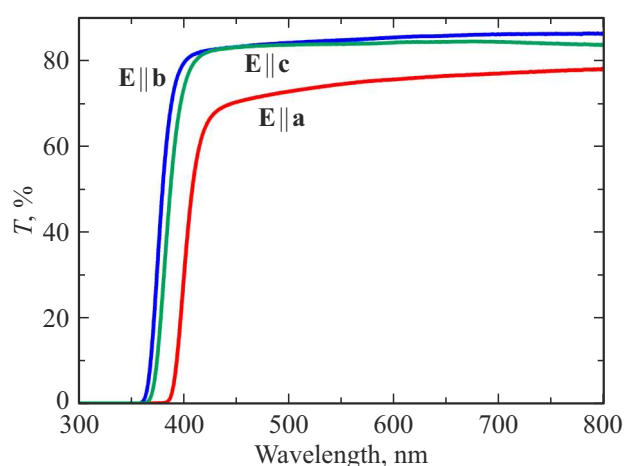


Рис. 1. Поляризованные спектры пропускания образца кристалла $\text{Na}_2\text{Mo}_2\text{O}_7$.

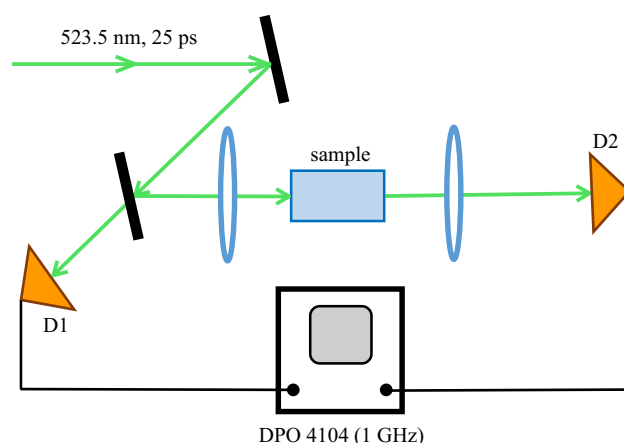


Рис. 2. Схема экспериментальной установки для измерения коэффициента ДФП в кристалле $\text{Na}_2\text{Mo}_2\text{O}_7$.

частоты на кристалле LiIO_3 . Лазер генерировал цуги пикосекундных импульсов, длительность которых измерялась с помощью стрик-камеры Imacon-501 и составляла 25 ps по полувысоте. Максимальная энергия цуга импульсов лазера была около 1.5 mJ . Излучение второй гармоники фокусировалось линзой ($f = 250 \text{ mm}$) в исследуемый образец. Поперечный профиль интенсивности лазерного излучения хорошо описывался гауссовым распределением, а измеренный радиус пятна второй гармоники в фокусе линзы по уровню $1/e^2$ был равен $\omega_0 = 73 \mu\text{m}$. Длина эффективной перетяжки гауссова пучка была около 30 mm , что было значительно больше размеров исследуемого образца и позволяло считать площадь поперечного сечения лазерного излучения в образце неизменной. Для измерения энергии отдельных пикосекундных импульсов падающего и прошедшего излучения использовались калиброванные кремниевые фотодиоды D_1 и D_2 и осциллограф Tektronix DPO4104 (рис. 2). Для радиуса

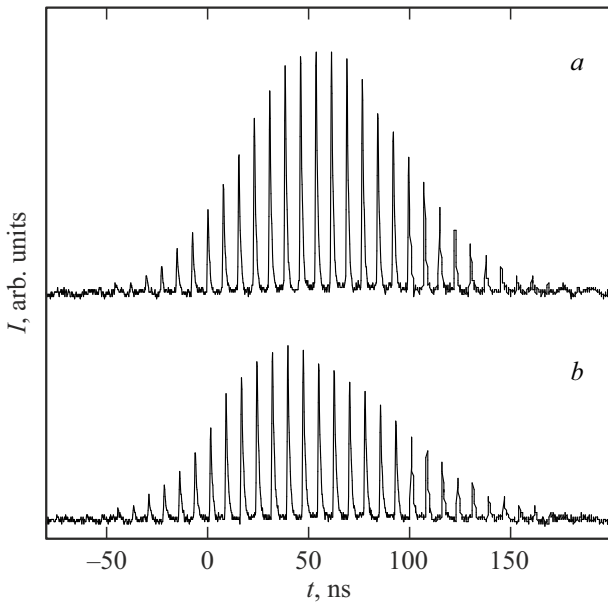


Рис. 3. Цуги импульсов падающего (а) и прошедшего (b) через кристалл $\text{Na}_2\text{Mo}_2\text{O}_7$ излучения с длиной волны 523.5 nm и поляризацией $\mathbf{E} \parallel \mathbf{a}$.

пучка накачки в фокусе $\omega_0 = 73 \mu\text{m}$, длительности импульсов в цуге 25 ps и энергии отдельных импульсов до $1 \mu\text{J}$ плотность мощности излучения накачки в образце достигала 0.5 GW/cm^2 .

При ДФП изменение интенсивности I света вдоль оси распространения z определяется уравнением [13]

$$\frac{dI}{dz} = -\alpha I - \beta I^2, \quad (1)$$

где α — коэффициент линейного поглощения, β — коэффициент ДФП. В случае отсутствия линейного поглощения ($\alpha = 0$) решение уравнения (1) будет следующим:

$$I(z) = \frac{I_0}{1 + \beta z I_0}, \quad (2)$$

где I_0 — интенсивность света при $z = 0$. Тогда ослабление света, прошедшего среду длиной L , выражается соотношением

$$\frac{I_0}{I(L)} = 1 + \beta L I_0. \quad (3)$$

Для импульсного излучения с гауссовым временным профилем и луча накачки с гауссовым поперечным распределением уравнение (3) преобразуется в выражение для ослабления света по энергии в зависимости от энергии импульса на входе в образец E_{in} :

$$\frac{E_{\text{in}}}{E_{\text{out}}} = \frac{1}{T_{\text{in}} T_{\text{out}}} \left(1 + \beta L \frac{1}{2\sqrt{2}} \frac{1}{\tau} \frac{T_{\text{in}} E_{\text{in}}}{\frac{1}{2} \pi \omega_0^2} \right). \quad (4)$$

Здесь E_{out} — энергия импульса после прохождения образца, T_{in} , T_{out} — коэффициенты пропускания, связанные

с френелевским отражением, на входе и выходе образца кристалла, ω_0 — радиус пучка по уровню $1/e^2$, а τ — эффективная длительность импульса, которая равна

$$\tau = \frac{\tau_{1/2}}{\sqrt{\ln 2}} \frac{\sqrt{\pi}}{2}, \quad (5)$$

где $\tau_{1/2}$ — длительность импульса по полувысоте.

Из (4) видно, что ослабление энергии при ДФП линейно растет при увеличении энергии E_{in} падающего излучения. Графиком зависимости является прямая линия с наклоном, равным

$$B = \beta L \frac{1}{2\sqrt{2}} \frac{1}{\tau} \frac{1}{\frac{1}{2} \pi \omega_0^2} T_{\text{in}}. \quad (6)$$

Определив наклон экспериментальной зависимости B , из уравнения (6) можно определить величину коэффициента ДФП β .

Излучение с длиной волны 523.5 nm попадает в диапазон прозрачности кристалла $\text{Na}_2\text{Mo}_2\text{O}_7$, а удвоенная энергия кванта попадает в область фундаментального поглощения. Из-за анизотропии кристалла эффективность ДФП в $\text{Na}_2\text{Mo}_2\text{O}_7$ будет зависеть от поляризации излучения. На рис. 3 представлены экспериментальные осциллограммы цугов импульсов, падающих на кристалл и прошедших через него, для излучения с поляризацией $\mathbf{E} \parallel \mathbf{a}$. За одну вспышку лазер излучает цуг пикосекундных импульсов с плавно меняющейся интенсивностью, соответствующей энергии в отдельных импульсах. Поскольку длительность пикосекундных импульсов в цуге и их поперечный размер постоянны, то за одну лазерную вспышку можно измерить всю энергетическую зависимость для нелинейного процесса. На рис. 4, а показана экспериментальная зависимость ослабления энергии для отдельных импульсов из цуга, представленного на рис. 3, для поляризации $\mathbf{E} \parallel \mathbf{a}$ от энергии падающих импульсов E_{in} в диапазоне до $1 \mu\text{J}$. Видно, что в начале цуга с ростом энергии E_{in} наблюдается линейный рост ослабления излучения вследствие ДФП. Для последующих импульсов наблюдается дальнейшее ослабление, связанное с остаточным однофотонным поглощением на наведенных долгоживущих оптических центрах и независящее от интенсивности отдельных импульсов. Количество наведенных оптических центров зависело от эффективности процесса ДФП. Время жизни наведенных центров зависит от материала образца и может достигать нескольких секунд [14]. На рис. 4, б показана экспериментальная зависимость ослабления энергии от энергии падающих импульсов E_{in} в диапазоне до $12 \mu\text{J}$ для поляризации излучения $\mathbf{E} \parallel \mathbf{c}$. Видно, что наклон этой зависимости значительно ниже, чем для поляризации $\mathbf{E} \parallel \mathbf{a}$, что связано в меньшим значением коэффициента ДФП.

Величины наклона B экспериментальных зависимостей для разных ориентаций и направлений образца и расчетные значения коэффициента ДФП β приведены в табл. 1. Видно, что коэффициент нелинейного ДФП

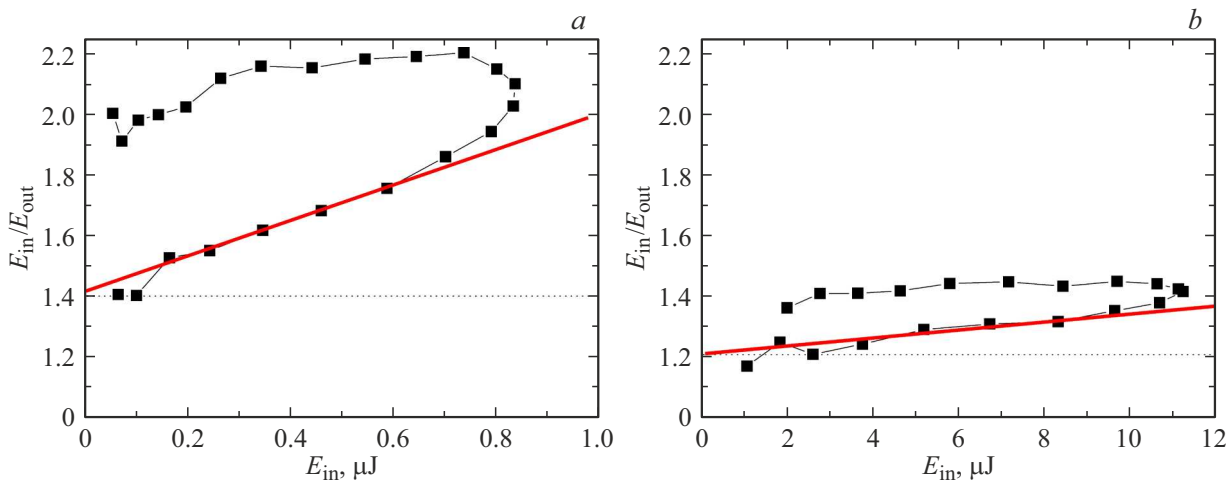


Рис. 4. Зависимости ослабления накачки в кристалле Na₂Mo₂O₇ от падающей энергии для излучения, проходящего через образец вдоль оси **b** с поляризацией **E** || **a** (a) и **E** || **c** (b).

Таблица 1. Значения коэффициентов ДФП β на длине волны 523.5 nm и нелинейности экспериментальной зависимости ослабления света B для разных ориентаций кристалла Na₂Mo₂O₇

Поляризация излучения	Направление распространения излучения	Длина образца, mm	Нелинейность ослабления света B , 1/ μ J	Коэффициент ДФП β , cm/GW
E a	k b	6.0	0.66	6.7 ± 1.0
	k c	3.5	0.46	7.8 ± 1.0
E b	k c	3.5	0.01	0.17 ± 0.02
	k a	7.3	0.025	0.2 ± 0.02
E c	k a	7.3	0.015	0.12 ± 0.02
	k b	6.0	0.013	0.13 ± 0.02

для поляризации **E** || **a** почти на полтора порядка больше коэффициента ДФП для поляризаций **E** || **b** и **E** || **c**. Такая зависимость связана со смещением границы фундаментального поглощения в Na₂Mo₂O₇ для поляризации **E** || **a** в красную сторону, что обусловлено сильной анизотропией фундаментального поглощения в нем.

Исследование кристаллической структуры и электронных состояний атомов в кристалле Na₂Mo₂O₇ с использованием первых принципов было проведено в работе [15]. Авторы показали, что низкоэнергетичные уровни зоны проводимости, определяющие границу фундаментального поглощения, связаны с электронными переходами 4*d*-электронов в атомах молибдена и 2*p*-электронов в атомах кислорода. Расчеты показали, что ширина запрещенной зоны E_g составляет 2.87 eV, в то время как экспериментально измеренная ширина запрещенной зоны составила 3.69 eV [10]. Такое расхождение значений E_g может быть связано с тем, что авторы этих работ не учли сильную анизотропию электронных состояний в зоне проводимости и валентной зоне, которые определяют границу фундаментального поглощения и коэффициент ДФП.

Влияние процесса двухфотонного поглощения на ВКР-генерацию в кристалле Na₂Mo₂O₇

Кристаллы молибдатов известны как высокоэффективные материалы для ВКР [16], а молибдаты, активированные ионами редкоземельных элементов, могут быть одновременно активной и нелинейной средой лазера с ВКР-самопреобразованием излучения [2]. ВКР света, как правило, получают на наиболее интенсивных модах в спектре спонтанного комбинационного рассеяния среды. В кристалле Na₂Mo₂O₇ эта мода соответствует валентным колебаниям связи иона Mo⁶⁺ и ионов O²⁻ [12] с частотой 939 cm⁻¹. Наибольшая интенсивность этой линии наблюдается при распространении излучения вдоль кристаллографических осей **b** или **c** и поляризацией вдоль оси **a** [11]. Соотношение интенсивностей линий 939 cm⁻¹ в спектре КР для других ориентаций даёт отношение компонентов тензора рассеяния около трех, что предполагает в три раза меньшее сечение рассеяния и соответственно в три раза более высокий порог ВКР.

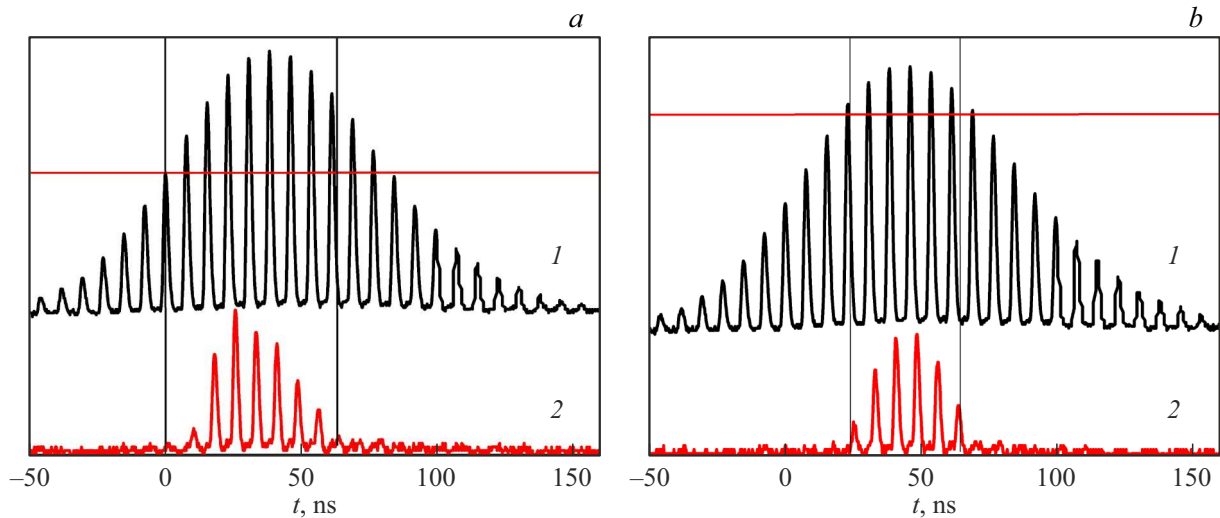


Рис. 5. Пути импульсов накачки (1) и ВКР-генерации (2) в кристалле $\text{Na}_2\text{Mo}_2\text{O}_7$ длиной 7.3 mm и поляризацией накачки $\mathbf{E} \parallel \mathbf{b}$ (a) и в кристалле KGW длиной 10 mm и поляризацией накачки $\mathbf{E} \parallel \mathbf{m}$ (b). Подробности в тексте.

В настоящей работе мы впервые наблюдали ВКР в кристалле $\text{Na}_2\text{Mo}_2\text{O}_7$ при возбуждении пикосекундными лазерными импульсами с длиной волны 523.5 nm. Использовалась экспериментальная установка, описанная выше, только в выходном каскаде использовалась дифракционная решетка для спектральной селекции излучения на длине волны первой стоксовой компоненты, которая составляла 550 nm. Для достижения порога ВКР использовалась более жесткая фокусировка линзой с $f = 150$ mm. В этом случае диаметр пучка излучения второй гармоники в перетяжке уменьшался до $\omega_0 = 41 \mu\text{m}$ по уровню $1/e^2$ от максимума интенсивности, что позволяло для импульса с энергией $E = 1 \mu\text{J}$ поднять плотность мощности в фокусе до $I = 1.4 \text{ GW/cm}^2$. С помощью цифрового осциллографа за одну лазерную вспышку измерялась энергия в отдельных пикосекундных импульсах цуга накачки и рассеянного излучения (рис. 5) и определялась зависимость эффективности ВКР от энергии импульсов накачки. В работе [16] описана методика измерения коэффициента ВКР-усиления в образце путем сравнения энергетических порогов возникновения ВКР с известным кристаллом.

Мы измеряли коэффициент ВКР-усиления в кристалле путем сравнения порогов возникновения ВКР в $\text{Na}_2\text{Mo}_2\text{O}_7$ и известном высокоэффективном ВКР-активном кристалле калий-гадолиниевый вольфрамат (KGW) (табл. 2). ВКР в кристалле KGW возбуждался вдоль оси оптической индикатрисы $\mathbf{g}$, длина взаимодействия в образце составляла 1 cm. При возбуждении ВКР-излучением с поляризацией, параллельной оси $\mathbf{m}$, возбуждается ВКР со стоксовым сдвигом 901 cm^{-1} [17]. На рис. 5 показаны экспериментальные пути пикосекундных импульсов возбуждения и ВКР-импульсов в кристалле $\text{Na}_2\text{Mo}_2\text{O}_7$ для поляризации излучения накачки $\mathbf{E} \parallel \mathbf{b}$ и в кристалле KGW для $\mathbf{E} \parallel \mathbf{m}$. Отчетливо виден порог возникновения ВКР (горизонтальная линия).

Заметим, что цуг ВКР-импульсов в KGW расположен симметрично относительно цуга накачки, а в $\text{Na}_2\text{Mo}_2\text{O}_7$ он смещен к началу цуга накачки. Это связано с тем, что в кристалле $\text{Na}_2\text{Mo}_2\text{O}_7$ в импульсах цуга с большой энергией возникает наведенное поглощение из-за ДФП, которое уменьшает интенсивность проходящего излучения и эффективность ВКР на конечной части цуга. В кристалле KGW цуги симметричны, так как в нем отсутствует ДФП на длине волны 523.5 nm, поскольку ширина запрещенной зоны в нем значительно больше и составляет 3.9–4.51 eV [18].

Спектральная ширина ВКР-активной моды в кристаллах $\text{Na}_2\text{Mo}_2\text{O}_7$ и KGW составляет 3.5 и 5.4 cm^{-1} , что соответствует времени дефазировки моды T_2 , равным 3 и 2 ps соответственно [11,16]. Поскольку эффективная длительность импульса накачки τ в наших экспериментах значительно больше времени дефазировки, то режим ВКР-генерации можно считать стационарным. В этом случае в условиях малых стоксовых сигналов и неистощенной накачки инкремент ВКР-усиления G пропорционален интенсивности накачки I и длине нелинейного взаимодействия L :

$$G = gIL, \quad (7)$$

где g — стационарный коэффициент ВКР-усиления в среде. Из уравнения (7) следует, что в предположении гауссова пространственного и временного распределения излучения накачки пороговое значение инкремента G_{thr} , равное 25, достигается при пороговой энергии импульсов в цуге

$$G_{\text{thr}} = 25 = gLE_{\text{thr}} \frac{1}{2\sqrt{2}} \frac{1}{\tau} \frac{1}{\frac{1}{2}\pi\omega_0^2}. \quad (8)$$

Здесь E_{thr} — пороговая энергия пикосекундного импульса, τ — эффективная длительность импульса согласно

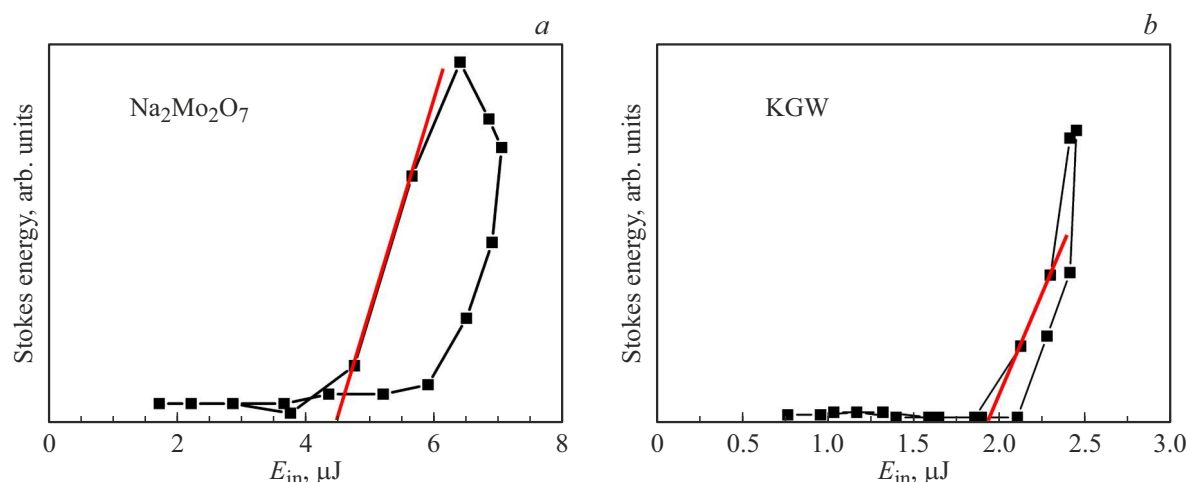


Рис. 6. Зависимости энергии импульсов ВКР от энергии импульсов возбуждающего излучения в пуце в кристалле $\text{Na}_2\text{Mo}_2\text{O}_7$ длиной 7.3 mm для поляризации излучения накачки $\mathbf{E} \parallel \mathbf{b}$ (a) и в кристалле KGW длиной 10 mm для поляризации излучения $\mathbf{E} \parallel \mathbf{m}$ (b).

Таблица 2. Пороги, приведенные пороги и коэффициент ВКР-усиления в кристаллах $\text{Na}_2\text{Mo}_2\text{O}_7$ и KGW для разных ориентаций образцов

Поляризация излучения	Направление луча	Длина образца, mm	Порог ВКР, μJ	Приведенный порог, $L = 1 \text{ cm}$, $\mu\text{J}\cdot\text{cm}$	Коэффициент ВКР-усиления, cm/GW
$\text{Na}_2\text{Mo}_2\text{O}_7$					
$\mathbf{E} \parallel \mathbf{c}$	$\mathbf{k} \parallel \mathbf{a}$	7.3	4.0 ± 0.3	2.9	8.2 ± 1.0
$\mathbf{E} \parallel \mathbf{c}$	$\mathbf{k} \parallel \mathbf{b}$	6.0	4.6 ± 0.3	2.8	8.5 ± 1.0
$\mathbf{E} \parallel \mathbf{b}$	$\mathbf{k} \parallel \mathbf{a}$	7.3	4.0 ± 0.3	2.9	8.2 ± 1.0
$\mathbf{E} \parallel \mathbf{b}$	$\mathbf{k} \parallel \mathbf{c}$	3.5	6.5 ± 0.3	2.3	10.3 ± 1.5
KGW					
$\mathbf{E} \parallel \mathbf{m}$	$\mathbf{k} \parallel \mathbf{g}$	10	1.9 ± 0.1	1.9	12.5 ± 1.5

уравнению (5), ω_0 — радиус пучка накачки по уровню $1/e^2$.

На рис. 6 представлены зависимости энергии импульсов ВКР от энергии импульсов возбуждающего излучения. Видно, что в $\text{Na}_2\text{Mo}_2\text{O}_7$ зависимость имеет вид гистерезиса из-за сопутствующего ДФП. Линейная аппроксимация начального участка пуца ВКР-генерации дает нам возможность определить величину энергетического порога ВКР, рассчитать порог, приведенный на 1 cm нелинейной среды, и определить стационарный коэффициент ВКР-усиления, используя (8). В наших экспериментах порог ВКР в кристалле KGW длиной 10 mm составил около $1.9 \mu\text{J}$. Порог ВКР для кристалла $\text{Na}_2\text{Mo}_2\text{O}_7$ был несколько выше и составлял от 4 до $6.5 \mu\text{J}$. Приведенный порог также оказался выше и составил $2.3\text{--}2.9 \mu\text{J}\cdot\text{cm}$, что связано меньшим значением стационарного коэффициента ВКР-усиления, который составил от 8.2 до 10.3 cm/GW . Эти значения несколько ниже, чем в кристалле KGW, что требует

большой энергии накачки для получения эффективной ВКР-генерации. Заметим, что максимальное значение коэффициента ВКР-усиления наблюдалось в образце минимальной длины, что может быть связано с отсутствием конкуренции с ДФП на меньшей длине образца.

В работе [11] исследовался ВКР в кристалле $\text{Na}_2\text{Mo}_2\text{O}_7$ при возбуждении излучением с длиной волны $1.047 \mu\text{m}$. Было установлено, что максимальный коэффициент ВКР-усиления в $\text{Na}_2\text{Mo}_2\text{O}_7$ наблюдается для поляризации $\mathbf{E} \parallel \mathbf{a}$, что соответствует геометрии максимального сечения спонтанного комбинационного рассеяния в кристалле. Причем в этом случае коэффициент ВКР-усиления примерно в три раза выше, чем для поляризаций $\mathbf{E} \parallel \mathbf{b}$ и $\mathbf{E} \parallel \mathbf{c}$. Для накачки с длиной волны 523.5 nm коэффициент ВКР-усиления для поляризации $\mathbf{E} \parallel \mathbf{a}$ должен составлять примерно 30 cm/GW . Однако в эксперименте при накачке излучением с поляризацией $\mathbf{E} \parallel \mathbf{a}$ ВКР-генерация не наблюдалась. Это связано с тем, что для излучения с этой поляризацией наблюдается

очень сильное ДФП, что приводит к образованию наведенного поглощения, которое поглощает значительную часть возбуждающего излучения.

Заключение

В настоящей работе исследована анизотропия ДФП и ВКР в кристалле $\text{Na}_2\text{Mo}_2\text{O}_7$ при возбуждении лазерными импульсами на длине волны 523.5 nm и длительностью 25 ps. Выявлена анизотропия ширины запрещенной зоны в кристалле. Это приводит к сильной анизотропии коэффициента ДФП, который на длине волны 523.5 nm составил 7.8 cm/GW для излучения с поляризацией $\mathbf{E} \parallel \mathbf{a}$ и 0.12 – 0.2 cm/GW для поляризаций $\mathbf{E} \parallel \mathbf{b}$ и $\mathbf{E} \parallel \mathbf{c}$. Впервые получена ВКР-генерация на кристалле $\text{Na}_2\text{Mo}_2\text{O}_7$ при накачке излучением с длиной волны 523.5 nm со стоксовым сдвигом 939 cm^{-1} , которая дает излучение на длине волны 550 nm. В соответствие со спектром спонтанного комбинационного рассеяния максимальный коэффициент ВКР-усиления в кристалле наблюдается для поляризации $\mathbf{E} \parallel \mathbf{a}$, которая при возбуждении излучением с длиной волны 523.5 nm оказывается подавленной наведенными потерями за счет ДФП. Для возбуждающего излучения с поляризациями $\mathbf{E} \parallel \mathbf{b}$ и $\mathbf{E} \parallel \mathbf{c}$ измеренный стационарный коэффициент ВКР-усиления составил от 8.2 до 10.3 cm/GW, что сравнимо с кристаллом KGW.

Проведенные исследования показали, что кристалл $\text{Na}_2\text{Mo}_2\text{O}_7$ является перспективной нелинейно-оптической средой, обладающей сильной анизотропией кристаллической структуры, которую следует учитывать при создании устройств на его основе.

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] T.T. Basiev, R.C. Powell. *Solid-state Raman lasers*. In: *Handbook of Laser Technology and Applications* (CRC Press, 2021), p. 127–149. DOI: 10.1201/9781003127130
- [2] H. Zhao, S. Dai, S. Zhu, H. Yin, Z. Li, Z. Chen. *Crystals*, **11**, 114 (2021). DOI: 10.3390/cryst11020114
- [3] P. Cerny, H. Jelinkova, P.G. Zverev, T.T. Basiev. *Progr. Quant. Electron.*, **28**, 113 (2004). DOI: 10.1016/j.pquantelec.2003.09.003
- [4] M. Rumi, J.W. Perry. *Adv. Opt. Photon.*, **2**, 451 (2010). DOI: 10.1364/AOP.2.000451
- [5] D.N. Christodoulides, I.C. Khoo, G.J. Salamo, G.I. Stegeman, E.W. Van Stryland. *Adv. Opt. Photon.*, **2**, 60 (2010). DOI: 10.1364/AOP.2.000060
- [6] P. Jiang, X. Ding, J. Guo, H. Zhang, H. Qi, Y. Shang, Z. Song, W. Wang, C. Wang, G. Liu, C. Yao. *Opt. Laser Tech.*, **169**, 110072 (2024). DOI: 10.1016/j.optlastec.2023.110072
- [7] И.О. Киняевский, В.И. Ковалев, А.В. Корибут, Е.Э. Дунаева, Н.С. Семин, А.А. Ионин. *Опт. и спектр.*, **131** (2), 207 (2023). DOI: 10.61011/OS.2025.03.60240.9-25
- [8] I.O. Kinyavskiy, V.I. Kovalev, A.V. Koribut, E.E. Dunaeva, N.S. Semin, A.A. Ionin. *Opt. Spectrosc.*, **131** (2), 195 (2023). DOI: 10.61011/OS.2025.03.60240.9-25
- [9] R. Lacomba-Perales, J. Ruiz-Fuertes, D. Errandonea, D. Martínez-García, A. Segura. *Europhys. Lett.*, **83**, 37002 (2008). DOI: 10.1209/0295-5075/83/37002
- [10] В.И. Луканин, Д.С. Чунаев, А.Я. Карасик. *ЖЭТФ*, **140**, 472 (2011). [V.I. Lukanin, D.S. Chunaev, A.Y. Karasik. *J. Exp. Theor. Phys.*, **113**, 412 (2011). DOI: 10.1134/S1063776111070077]
- [11] V.D. Grigorieva, V.N. Shlegel, N.V. Ivannikova, T.B. Bekker, A.P. Yelisseyev, A.B. Kuznetsov. *J. Crystal Growth*, **507**, 31 (2019). DOI: 10.1016/j.jcrysgro.2018.10.058
- [12] Д.С. Чунаев, С.Б. Кравцов, В.Е. Шукшин, В.Н. Шлегель, В.Д. Григорьева, П.Г. Зверев. *Квант. электрон.*, **54** (8), 494 (2024). [D.S. Chunaev, S.B. Kravtsov, V.E. Shukshin, V.N. Shlegel, V.D. Grigorieva, P.G. Zverev. *Bulletin of the Lebedev Physics Institute*, **51** (11), S919–S927 (2024). DOI: 10.3103/S1068335624602796]
- [13] D.A. Spassky, N.S. Kozlova, M.G. Brik, V. Nagirnyi, S. Omelkov, O.A. Buzanov, M. Buryi, V. Laguta, V.N. Shlegel, N.V. Ivannikova. *J. Lumin.*, **192**, 1264 (2017). DOI: 10.1016/j.jlumin.2017.09.006
- [14] A. Dragomir, J.G. McInerney, D.N. Nikogosyan. *Appl. Opt.*, **41** (21), 4365 (2002). DOI: 10.1364/AO.41.004365
- [15] В.И. Луканин, А.Я. Карасик. *Опт. и спектр.*, **121** (4), 553 (2016). [V.I. Lukanin, A.Y. Karasik. *Opt. Spectrosc.*, **121**, 503 (2016). DOI: 10.1134/S0030400X16100143]
- [16] Y. Gao, C. Zhang, L. Ma, H. Li, S. Chen. *Phys. Stat. Sol. B*, **259** (8), 2200036 (2022). DOI: 10.1002/pssb.202200036
- [17] 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]
- [18] I.V. Mochalov. *Opt. Engineer.*, **36**, 1660 (1997). DOI: 10.1117/1.601185
- [19] В.И. Луканин, А.Я. Карасик. *Opt. Commun.*, **336**, 207 (2015). DOI: 10.1016/j.optcom.2014.10.012