

Федеральное государственное бюджетное учреждение науки
Физический институт им. П. Н. Лебедева Российской академии наук

На правах рукописи

Корибут Андрей Валериевич

**Фазовая само модуляция и вынужденное комбинационное рассеяние в
кристалле вольфрамата бария и плавном кварце**

Специальность 1.3.19 –
Лазерная физика

Автореферат диссертации на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

Москва – 2025

Работа выполнена в Физическом институте им. П.Н. Лебедева Российской Академии Наук (ФИАН)

Научный руководитель: **Киняевский Игорь Олегович**
кандидат физико-математических наук

Официальные оппоненты: **Сметанин Сергей Николаевич**
доктор физико-математических наук, старший научный сотрудник Отдела лазерных материалов и фотоники Научного центра лазерных материалов и технологий ИОФ РАН

Федотов Андрей Борисович
кандидат физико-математических наук, доцент кафедры общей физики и волновых процессов (Физический факультет) Московского Государственного Университета имени М.В. Ломоносова

Ведущая организация: Федеральное государственное бюджетное научное учреждение «Федеральный исследовательский центр Институт прикладной физики им. А.В. Гапонова-Грехова Российской академии наук»

Защита состоится «21» апреля 2025 г. в 10:00 часов на заседании диссертационного совета 24.1.262.01 на базе ФИАН по адресу: 119991, г. Москва, Ленинский проспект, д. 53.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке ФИАН, а также на сайте института www.lebedev.ru

Автореферат разослан «_____» _____ 2025 г.

Ученый секретарь
диссертационного совета
24.1.262.01,
доктор физ.-мат. наук

Золотько Александр Степанович

Общая характеристика работы

Актуальность темы исследования

Открытие в 1962 году эффекта вынужденного комбинационного рассеяния (ВКР), позволило расширить традиционные методы спектроскопии комбинационного рассеяния, разработать методики преобразования лазерного излучения с целью освоения новых спектральных диапазонов и управления длительностью и формой импульса. Суть эффекта заключается в том, что излучение накачки приводит к возбуждению колебательных или вращательных движений молекул, или к колебанию решетки (фононов) в твердотельных образцах, в результате чего происходит неупругое рассеяние света, при котором энергия фотона (частота излучения) изменяется. Поскольку время установления колебательного возбуждения конечно, то в зависимости от длительности импульса выделяют два случая: стационарный (когда время релаксации колебаний среды T_2 намного меньше длительности импульса T_p) и переходной (нестационарный) режим ВКР (когда T_p меньше или сопоставима с T_2). Для кристаллических сред T_2 составляет порядка единиц/десятка пикосекунд и для фемтосекундных/пикосекундных лазерных импульсов ВКР происходит в нестационарном режиме с меньшим экспоненциальным инкрементом усиления, по сравнению со стационарным [1,2]. Реализация эффективного ВКР для фемтосекундных/пикосекундных лазерных импульсов также осложняется тем, что длина взаимодействия ограничена временным рассогласованием импульса накачки и стоксового импульса из-за влияния дисперсии среды, а повышение интенсивности накачки приводит к соперничеству с другими практически безынерционными нелинейными эффектами (фазовая самомодуляция (ФСМ), самофокусировка (СФ), нелинейное поглощение).

Среди известных работ [3–12], в которых исследовалось ВКР фемтосекундных импульсов, отмечается негативное влияние ФСМ на ВКР, и для уменьшения ее влияния лазерный импульс растягивается во времени до величины порядка или более T_2 . Несмотря на это для достижения высокой эффективности

преобразования все равно приходится использовать сложные схемы: генератор-усилитель, двухимпульсная накачка, синхронная накачка и др.. На фоне известных работ выделяется работа [10] по ВКР субпикосекундных импульсов (0,3 пс, 515 нм) в кристалле вольфрамата бария $BaWO_4$ (BWO), где в простой однопроходной схеме при фокусировке в толщину кристалла была достигнута аномально высокая эффективность ВКР (~20%) в режиме значительного уширения спектра. Авторы работы выдвинули предположение, что это связано с формированием затравочного излучения в результате уширения спектра посредством ФСМ, но исходя из значений интенсивности и параметров образца данный эффект мог развиваться и из спонтанного комбинационного рассеяния. Оцененное в этой же работе значение нелинейного показателя преломления указывает, что мощность импульсов накачки превышала критическую мощность СФ, однако влияние СФ на распространение излучения внутри образца не рассматривалось. Так как вольфрамат бария является первым кристаллом, в котором наблюдалась аномально высокая эффективность вынужденного комбинационного рассеяния в условиях значительного уширения спектра импульса, то для разработки эффективных методов преобразования ультракоротких импульсов посредством вынужденного рассеяния требуется исследовать и выделить физические процессы и факторы, ответственные за этот эффект.

Цели и задачи работы

Целью диссертационной работы являлось определение физических факторов, ответственных за высокую эффективность вынужденного комбинационного рассеяния сфокусированных субпикосекундных импульсов в кристалле вольфрамата бария.

Для достижения цели были поставлены и решены следующие задачи:

- 1) Исследование уширения спектра сфокусированных субпикосекундных импульсов за счет фазовой самомодуляции при мощностях излучения меньше и

больше критической мощности самофокусировки в плавленом кварце, как эталонном материале;

2) Исследование уширения спектра сфокусированных субпикосекундных импульсов за счет фазовой самомодуляции в кристалле вольфрамата бария;

3) Определение взаимного влияния вынужденного комбинационного рассеяния и фазовой самомодуляции при значительном уширении спектра субпикосекундных импульсов в кристалле вольфрамата бария;

4) Исследование влияния параметров фокусировки на эффективность генерации ВКР мод в кристалле вольфрамата бария при мощности излучения больше критической мощности самофокусировки.

Научная новизна

1) Разработана численная модель на основе матричной оптики для описания распространения сфокусированных лазерных импульсов с учетом влияния самофокусировки, которая позволяет описать спектральное уширение, вызванное фазовой самомодуляцией, в трёх режимах распространения сфокусированных фемтосекундных импульсов: а) линейное распространение – при мощности излучения меньше 0,6 от критической мощности самофокусировки; б) нелинейное распространение – при мощности от 0,6 до 1 от критической мощности самофокусировки, характеризуется резким увеличением ширины спектра из-за увеличения интенсивности в фокальной плоскости за счет самофокусировки при отсутствии нелинейного поглощения; в) филаментация – при мощности излучения больше критической мощности самофокусировки, характеризуется близкой к линейной зависимостью ширины спектра от энергии лазерного импульса.

2) Обнаружен первый неорганический кристалл – вольфраMAT бария, в котором для субпикосекундных лазерных импульсов доминирует «медленная» кубическая нелинейность с субпикосекундным временем отклика.

3) Описана конструктивная интерференция эффектов фазовой самомодуляции и вынужденного комбинационного рассеяния субпикосекундных

лазерных импульсов с длиной волны 515 нм в кристалле вольфрама бария: уширение в стоксовое крыло, вызванное фазовой самомодуляцией формирует затравочное излучения для его последующего ВКР усиления на модах $\nu_1=925 \text{ см}^{-1}$ и $\nu_2=330 \text{ см}^{-1}$, при этом порядок генерации ВКР-линий определяется их частотным сдвигом, а не коэффициентом усиления.

4) Продемонстрировано эффективное вынужденное комбинационное рассеяние субпикосекундных лазерных импульсов в кристалле вольфрамата бария на вторичной моде $\nu_2=330 \text{ см}^{-1}$.

5) Определены параметры фокусировки, позволяющие максимизировать эффективность ВКР субпикосекундных лазерных импульсов в кристалле вольфрама бария на модах $\nu_1=925 \text{ см}^{-1}$ и $\nu_2=330 \text{ см}^{-1}$.

Практическая значимость

Показано, что в режиме филаментации зависимость уширения спектра для сфокусированного лазерного импульса от его энергии имеет близкий к линейному характер с наклоном, который можно описывать в приближении геометрической оптики (без учета самофокусировки), что может быть использовано для определения величины нелинейного показателя среды.

Продемонстрированно вынужденное комбинационное рассеяние субпикосекундных импульсов на колебательных модах кристалла вольфрамата бария $\nu_1=925 \text{ см}^{-1}$ и $\nu_2=330 \text{ см}^{-1}$ с высокой эффективностью, позволяющее формировать «двухцветные» субпикосекундные импульсы, которые могут в дальнейшем применяться для решения различных задач, требующих излучение на двух различных частотах, таких как генерация излучения на разностной частоте или в схемах накачка-зондирование.

Обнаружено, что в кристалле вольфрама бария для субпикосекундных лазерных импульсов доминирует «медленная» (с субпикосекундным временем отклика) керровская нелинейность, которая способствует конструктивной интерференции эффектов вынужденного комбинационного рассеяния и фазовой самомодуляции в нем. Это дает основание ожидать, что существуют и другие

твердотельные материалы с доминирующей «медленной» керровской нелинейностью, которые окажутся эффективными для вынужденного комбинационного рассеяния субпикосекундных лазерных импульсов.

Положения, выносимые на защиту:

1) Уширение спектра сфокусированного субпикосекундного импульса при его филаментации в плавленом кварце с продольным размером меньшим, чем дисперсионная длина, и большим, чем длина Релея, определяется эффектом фазовой самомодуляции с таким же распределением интенсивности как в геометрической оптике.

2) Спектральное уширение субпикосекундных лазерных импульсов в кристалле вольфрамата бария, вызванное эффектом фазовой самомодуляции, является несимметричным с доминированием уширения в стоксовую область, что связано с инерционностью кубической нелинейности этого кристалла с субпикосекундным временем отклика.

3) При филаментации субпикосекундных импульсов с длиной волны 515 нм в кристалле вольфрамата бария, обладающего инерционностью отклика кубической нелинейности, за счёт фазовой самомодуляции формируется излучение с частотным сдвигом, соответствующим колебательным модам ν_1 и ν_2 этого кристалла, которое эффективно усиливается за счет вынужденного комбинационного рассеяния в этом же кристалле.

4) Эффективность вынужденного комбинационного рассеяния сфокусированного субпикосекундного лазерного импульса на колебательных модах ν_1 и ν_2 кристалла вольфрамата бария при затравке излучением, возникающим вследствие эффекта фазовой самомодуляции в этом же кристалле, увеличивается при смещении линейного фокуса излучения в сторону задней грани кристалла, что обусловлено увеличением эффективной длины взаимодействия (расстояния между линейным и нелинейным фокусами), пока она не ограничивается временным рассогласованием импульсов.

Достоверность результатов

Достоверность результатов диссертационного исследования подтверждена хорошим согласием экспериментальных результатов с результатами теоретических расчетов и моделирования. В эксперименте использовались высокоточные откалиброванные измерительные приборы, что обеспечило достоверность измерений пространственного профиля излучения, и энергетических и спектральных характеристик.

Сведения об апробации и публикации результатов работы

Основные результаты диссертации были опубликованы в 6 научных изданиях, индексируемых международными базами данных Scopus и Web of Science [1*-6*], а также были доложены на 5 международных конференциях:

- 1) V International Conference on Ultrafast Optical Science «UltrafastLight-2021», Москва, Россия, 2021;
- 2) XI International Conference Photonics and Information Optics, Москва, Россия, 2022;
- 3) VI International Conference on Ultrafast Optical Science «UltrafastLight-2022», Москва, Россия, 2022;
- 4) VII International Conference on Ultrafast Optical Science «UltrafastLight-2023», Москва, Россия, 2023;
- 5) XIX Международная конференция «Лазерные, Плазменные Исследования и Технологии» ЛАПЛАЗ-2023, Москва, Россия, 2023

Часть представленных в диссертационной работе результатов была включена в цикл работ «Нестационарное вынужденное комбинационное рассеяние ультракоротких сине-зеленных лазерных импульсов в кристалле BaWO_4 для генерации двух-цветного излучения с разностью частот $-900-1000 \text{ см}^{-1}$ », который был удостоен премии Басова в 2021 г (ФИАН, ОКРФ) в составе участников Киняевский И.О., Ковалев В.И., Корибут А.В.

Часть представленных в диссертационной работе результатов была включена в цикл работ А.В. Корибут «Вынужденное комбинационное рассеяние и

фазовая само модуляция фемтосекундных лазерных импульсов в различных кристаллах», который был удостоен премии им. С.И. Вавилова в конкурсе молодежных научных работ ФИАН 2024.

Личный вклад

Все используемые в диссертации экспериментальные результаты были получены автором лично или при его непосредственном участии. Автор непосредственно производил обработку и анализ полученных экспериментальных данных, участвовал в обсуждении и интерпретации полученных результатов, написании статей, выступал на конференциях с полученными научными результатами. Программа для вычисления распространения сфокусированного пучка (Глава 3) была написана непосредственно автором. Идея о немгновенности отклика кубической нелинейности кристалла вольфрамата бария и связанное с ним различие в уширении спектра в стоксовую и антистоксовую области была предложена д.ф.-м.н. Ковалевым В.И..

Структура и объем работы

Диссертационная работа состоит из введения, пяти глав и заключения. Полный объем диссертации составляет 102 страницу, включая 43 рисунка и 1 таблицу. Список литературы содержит 99 наименований.

Основное содержание работы

Во **Введении** обосновывается актуальность проводимого исследования, приводится краткий обзор научной литературы по изучаемой проблеме, формулируется цель, ставятся задачи работы, необходимые для достижения поставленной цели, приводится научная новизна и практическая значимость выполненного исследования, приводятся положения, выносимые на защиту, личный вклад автора, апробация результатов исследования, публикации основных результатов.

Глава 1 представляет собой подробный литературный обзор, посвященный распространению ультракоротких импульсов в среде и связанным с ним

эффектам: дисперсия, самофокусировка (СФ), фазовая самомодуляция (ФСМ) и вынужденное комбинационное рассеяние (ВКР). Приведен обзор работ по ВКР ультракоротких импульсов в газах и кристаллах и отмечается негативное влияние ФСМ и СФ на ВКР. В этих работах предлагаются различные методики, позволяющие уменьшить влияние ФСМ и повысить эффективность преобразования: двух импульсная накачка, синхронная накачка, применение аксикона, преобразование chirпированного импульса в схемах затравка-усилитель и в многопроходной ячейке. Также отмечена работа [10], в которой получена высокая (до 20%) эффективность ВКР в простой однопроходной схеме при фокусировке субпикосекундных импульсов в толщину кристалла вольфрамата бария $BaWO_4$ (BWO) при значительном уширении спектра, в которой авторы предполагают конструктивную интерференцию эффектов ФСМ и ВКР. Исследованию физически процессов приводящих к данной высокой эффективности и посвящена диссертационная работа

Глава 2 посвящена описанию характеристик итербиевого волоконного субпикосекундного лазерного комплекса (Satsuma, Amplitude Systemes) используемого в эксперименте. Приведены характеристики регистрирующего оборудования: спектрометр (Avesta ASP-150FT); измеритель энергии (Ophir PD10-C), измеритель мощности (Ophir 3A), и ПЗС-камера (Spiricon SP620U).

Отдельным разделом приведены характеристики кристалла BWO: спектр спонтанного комбинационного рассеяния, коэффициенты ВКР усиления для линии 925 см^{-1} на разных длинах волн, диапазон прозрачности, ширина запрещенной зоны и формулы Селлмейера для обыкновенной и необыкновенной волн, нелинейный показатель преломления. Отмечается, что данный кристалл обладает высокими значениями пиковой и интегральной интенсивности линии КР, что свидетельствует о перспективности его использования как для стационарного режима ВКР, так и для нестационарного. Также приведены результаты по исследованию порогов поверхностного оптического разрушения экспериментальных образцов выращенных в Институте общей физики РАН методом Чохральского из расплава, из платиновых тиглей в атмосфере воздуха, с

различным содержанием примесей. В экспериментах по ВКР субпикосекундных импульсов исследовался образец длиной 8 мм с меньшим количеством примесей, который не имел характерного окраса и обладал большим порогом поверхностного оптического разрушения. Для данного образца приведен спектр спонтанного комбинационного рассеяния, измеренный с помощью КР спектрометра Confotec 350-MR.

В **Главе 3** приводятся результаты по исследованию уширения спектра сфокусированных субпикосекундных лазерных импульсов в плавленом кварце при мощностях меньше и больше критической мощности СФ, для выявления характера уширения спектра в режиме филаментации, так как в кристалле ВВО наблюдаемая высокая эффективность реализуется при мощности излучения превышающей критическую мощность СФ. Излучение второй гармоники лазерного комплекса (515 нм) фокусировалось в толщину образца плавленого кварца длиной 10 мм линзой с фокусным расстоянием 40 мм. При изменении энергии лазерных импульсов, падающих на образец, измерялись энергетические, спектральные и пространственные характеристики излучения, прошедшего через образец. Наблюдалось симметричное уширение спектра в стоксовую и антистоксовую области, но в зависимости уширения спектра от энергии лазерных импульсов было выделено три различных режима: линейный, нелинейный и филаментация (Рис. 1). Регистрируемое изменение пропускания образца проявилось на третьем участке (режиме филаментации), на котором в пространственном распределении наблюдалось формирование и усиление пьедестала при постоянной ширине основного максимума, ширина которого до этого (на втором участке) уменьшалась. Стоит отметить, что угол наклона на первом (линейном) и третьем (филаментация) участках совпадал в пределах погрешности, что позволяет определять нелинейный показатель в режиме филаментации.

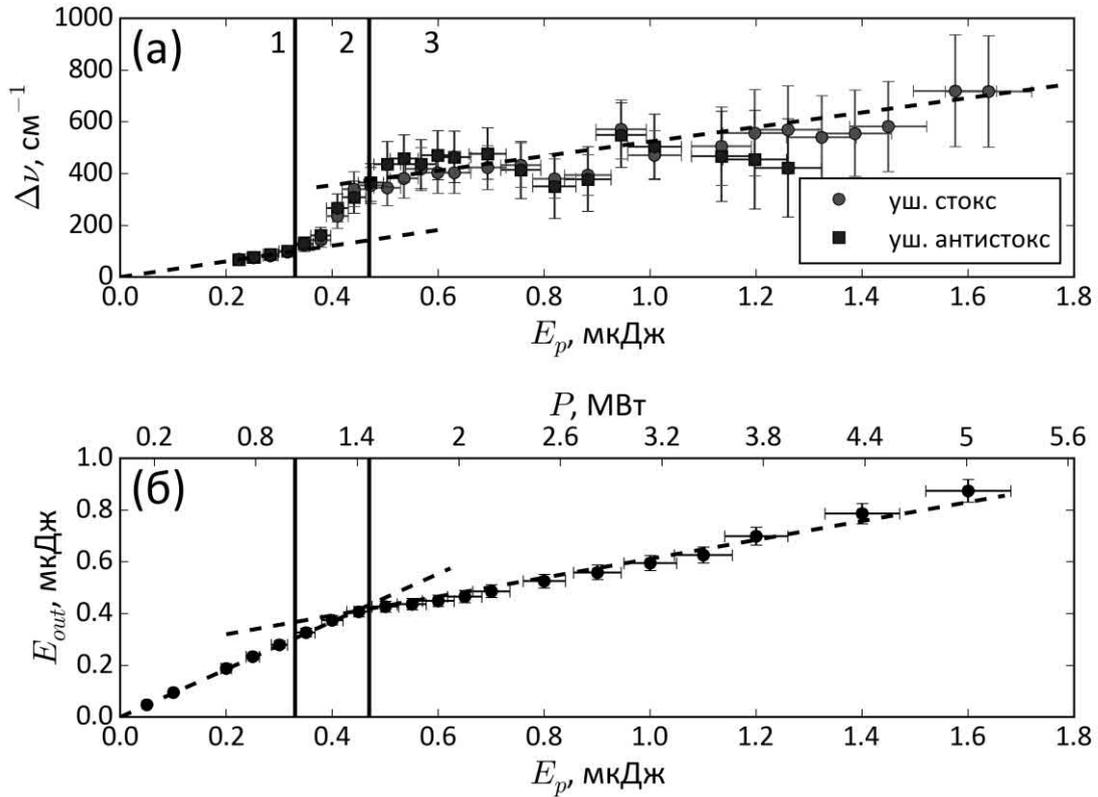


Рис. 1. а) Уширение спектра лазерного импульса в стоксовую и антистоксовую области в кварце. Кружки – уширение в стоксовую область, квадраты – уширение в антистоксовую область. б) Пропускание образца в зависимости от энергии.

Для подтверждения наблюдаемых результатов была разработана численная модель, основанная на матричной оптике ($ABCD$ -матрицы). В первом порядке малости по радиальной координате нелинейный набег фазы для гауссового пучка совпадает с фазой, вносимой собирающей линзой, поэтому влияние СФ внутри образца учитывалось как дополнительные линзы с фокусным расстоянием $F = nw^2 / (4n_2 I_0 dz)$, где n – показатель преломления, w – радиус пучка по $1/e^2$, n_2 – нелинейный показатель преломления, I_0 – интенсивность излучения, dz – шаг разбиения. Модель была откалибрована по значению критической мощности СФ для гауссового пучка и для согласия с $P_{cr} = 3,77 \lambda^2 / (8\pi n n_2)$ [13], где λ – длина волны, эффективное фокусное расстояние необходимо увеличить в 3,77 раз. Величина этого коэффициента не зависит от диаметра начального пучка, линейного и нелинейного показателей преломления, а его появление может быть

связано с другими порядками при разложении экспоненты (определяется профилем пучка). Для сфокусированного пучка наблюдалось согласие с результатами других работ, например [14], при мощности менее критической мощности СФ. При мощности превышающую критическую мощность СФ, СФ преобладает над дифракцией, что приводит к коллапсу пучка. Положение коллапса задавалось интенсивностью излучения, которая для филаментов в плавленом кварце находится на уровне 10^{13} Вт/см² [15,16]. Уширение спектра определялась по максимальному смещению частоты за счет действия ФСМ проинтегрированной по длине образца:

$$\Delta\omega_{\max} = \frac{k_0 n_2 \sqrt{8 \ln 2 / e}}{T_{FWHM}} \int_0^l I_0(z) dz, \quad (1)$$

где $k_0 = 2\pi/\lambda$, T_{FWHM} – длительность импульса по уровню FWHM, l – длина образца.

Без учета влияния СФ данный интеграл вычисляется аналитически и зависимость уширения спектра от энергии импульсов задается линейной зависимостью:

$$\Delta\nu_{\max} [\text{см}^{-1}] = \frac{16 \ln 2 \sqrt{2 / \pi e} n n_2 E}{T_{FWHM}^2 \lambda^2 c} \arctg \left(\frac{l}{2z_{dif}} \right), \quad (2)$$

где E – энергия импульса, z_{dif} – длина Релея для пучка с минимальным размером. В случае учёта влияния СФ возможны два варианта: мощность меньше критической мощности СФ и больше. В первом используются значения интенсивности излучения, полученные в модели на всей длине образца. Во втором наступает коллапс пучка, и интегрирование разбивается на три участка: 1) от входной грани до нелинейного фокуса (положение коллапса) используется зависимость интенсивности от координаты внутри образца, полученная в модели; 2) от нелинейного до линейного фокуса как оценку используется значение интенсивности в филаменте умноженное на его длину; 3) от линейного фокуса до задней грани, как оценку используется величина интеграла $I(z)dz$ с первого участка умноженная на коэффициент пропускания, из-за поглощения в филаменте. Варьируя значение нелинейного показателя преломления, влияющего на положение точки перегиба по горизонтали и определяющей критическую

мощность СФ, и интенсивности излучения в филаменте, влияющей на положение точки перегиба по вертикали определяющую величину уширения спектра до режима филаментации, модель позволила описать экспериментальные данные при $n_2=1,7 \times 10^{-16} \text{ см}^2/\text{Вт}$ и $I_{\text{филамент}}=1,3 \times 10^{13} \text{ Вт}/\text{см}^2$. Линейная зависимость уширения спектра от энергии, задаваемая формулой (2), при этом значении нелинейного показателя преломления хорошо описывает начальное уширение спектра, и при дополнительном сдвиге (параллельный перенос) описывает уширение спектра в режиме филаментации (Рис. 2). В моделировании при мощностях излучения выше критической мощности СФ получено, что основной вклад в уширение спектра вносит участок филамента, а участки вне филамента формируют примерно постоянный сдвиг.

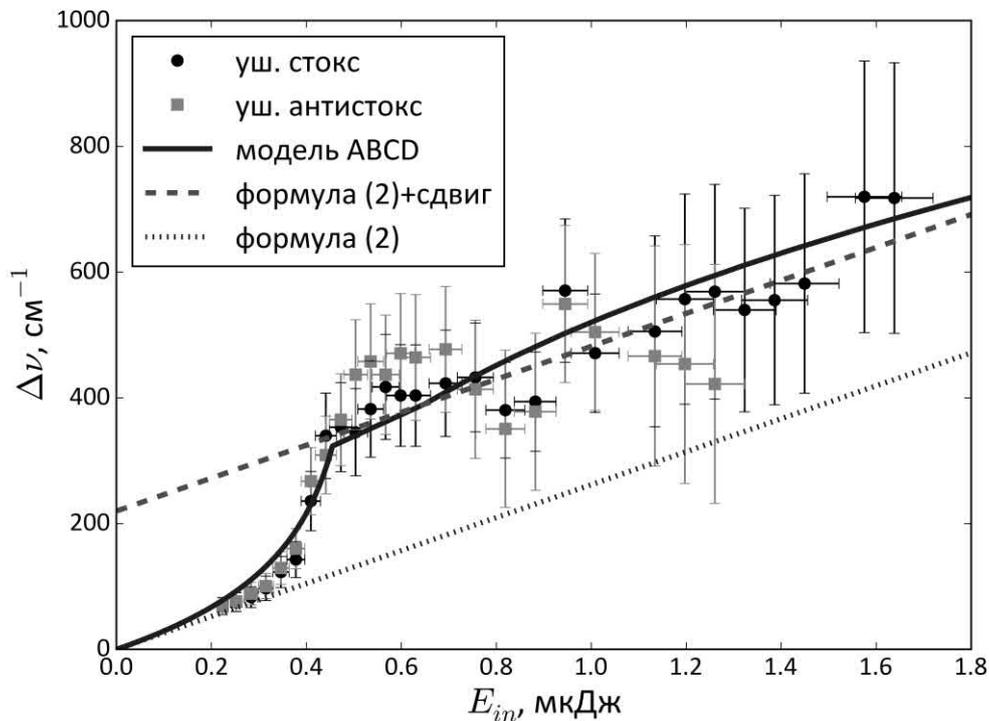


Рис. 2. Расчетная (сплошная линия) и экспериментальная (точки) зависимости ширины спектра лазерного импульса, прошедшего через образец плавленого кварца, от энергии импульса накачки. Пунктирная линия соответствует наклону для линейного режима, описываемому (2).

В Главе 4 представлены результаты по исследованию уширения спектра сфокусированных субпикосекундных импульсов в кристалле ВВО. В отличие от

симметричного уширения в плавленом кварце, в ВВО наблюдалось несимметричное уширение с доминированием уширения в стоксовую область (Рис. 3), что не характерно для твердых тел, в которых асимметрия обычно проявляется в антистоксовую область из-за эффекта самоукручения [17].

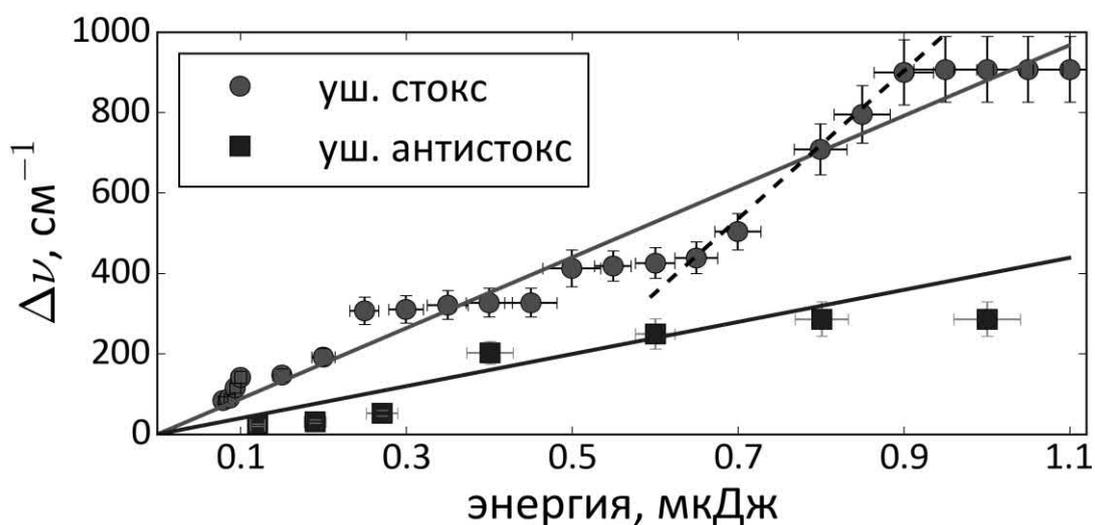


Рис. 3. Уширение спектра в стоксовую и антистоксовую области в ВВО в зависимости от энергии лазерных импульсов на второй гармонике лазерного комплекса.

Зависимости уширения спектра в стоксовую и антистоксовую области были аппроксимированы прямыми с отношением углов наклона ~ 2 . Объяснение асимметрии уширения спектра в кристалле ВВО было предложено д.ф.-м.н. Ковалевым В.И. и заключается в немгновенности отклика кубической нелинейности. При увеличении времени отклика уменьшается смещение частоты в стоксовую и антистоксовую области, при этом максимальное смещение в стоксовую часть становится больше, чем в антистоксовую (Рис. 4). При времени отклика 0,35 пс и длительности импульса 0,3 пс смещение в стоксовую область в 2 раза больше, чем в антистоксовую, что совпадает с отношением наблюдаемом в эксперименте. Дополнительно в зависимости уширения спектра в стоксовую область от энергии импульса в некоторых диапазонах энергии формируются «полочки», которые по величине смещения совпадают с модами $\nu_2=330 \text{ см}^{-1}$ и $\nu_1=925 \text{ см}^{-1}$ кристалла ВВО, что может быть вызвано замедлением уширения

спектра из-за ВКР. Выбрав участок на котором не наблюдалось замедление уширения спектра и учитывая уменьшение амплитуды по сравнению с мгновенным откликом для кристалла ВВО получено значение нелинейного показателя преломления $6,4 \times 10^{-15} \text{ см}^2/\text{Вт}$. Отношение восприимчивости третьего порядка к времени отклика позволяет выявить природу нелинейности [18] и для кристалла ВВО данное отношение $\sim 1,5 \text{ ГГцЭ/с}$, что свидетельствует об ориентационной природе нелинейности, которая в твердых телах ранее не наблюдалась.

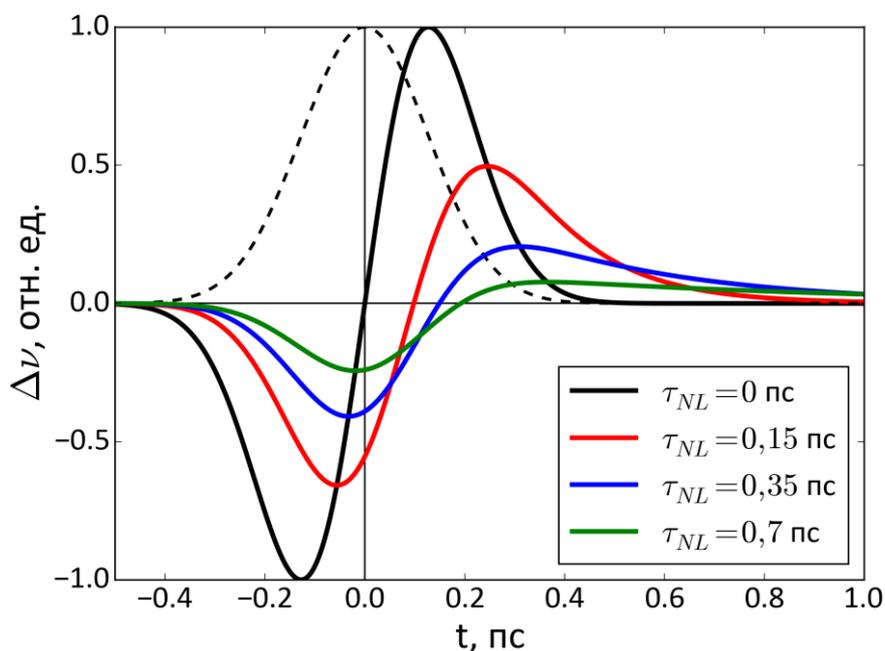


Рис. 4. Смещение частоты от времени для различных значений времени отклика. Пунктиром приведен начальный гауссов импульс длительностью 0,3 пс по уровню FWHM.

Дополнительно был проведен эксперимент на первой гармонике лазерного комплекса (1030 нм), в котором не наблюдалась генерация ВКР компонент и замедление уширения спектра при увеличении энергии лазерных импульсов (Рис. 5), что связано с уменьшенным в 4 раза коэффициентом ВКР-усиления из-за большей длины волны, что позволило исключить влияние ВКР и возможность последующей кроссмодуляции стоксового импульса и накачки, которая могла бы приводить к в два раза большему уширению. В эксперименте также наблюдалось

несимметричное уширение в стоксовую часть. Зависимости уширения спектра в стоксовую и антистоксовую области от энергии импульса были аппроксимированы прямыми с отношением углов наклона $\sim 2,3$, что соответствует времени отклика 0,44 пс при длительности импульса 0,3 пс. Учитывая уменьшение амплитуды уширения спектра при увеличении времени отклика значение нелинейного показателя преломления на длине волны 1030 нм равно $6,3 \times 10^{-15} \text{ см}^2/\text{Вт}$, которое хорошо согласуется с экспериментами на второй гармонике.

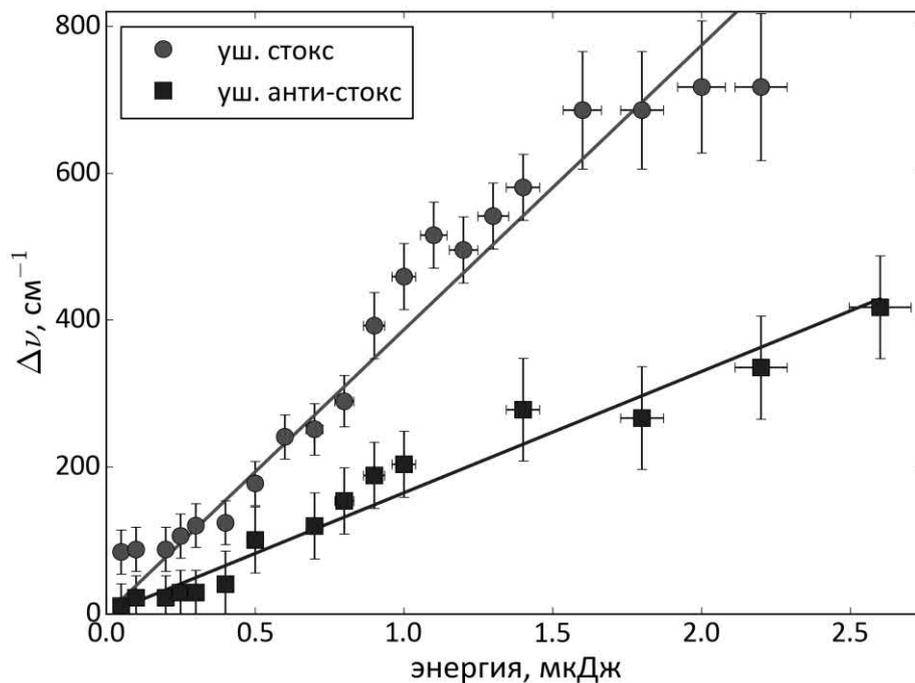


Рис. 5. Уширение спектра в стоксовую и антистоксовую области в ВВО в зависимости от энергии лазерных импульсов на первой гармонике лазерного комплекса.

В Главе 5 представлены результаты по исследованию взаимного влияния ФСМ и ВКР. Для этого спектры импульсов, измеренных в эксперименте, были сопоставлены с результатами расчета учитывающего только ФСМ и инерционность кубической нелинейности (Рис. 6). При малых энергиях (до 0,1 мкДж) наблюдалось хорошее согласие между спектрами. При энергии 0,12 мкДж в эксперименте наблюдалось формирование линии со сдвигом

$\sim 300 \text{ см}^{-1}$, в то время как край уширение спектра в расчете только достигал такого смещения. Увеличение энергии в эксперименте более чем в 3 раза не приводило к существенному смещению данной линии в спектре, а последующее повышение энергии приводило к уменьшению ее амплитуды. Максимальная эффективность преобразования по спектральной яркости, определяемая как отношение площади под контуром ВКР-линии ко всей площади под спектром, достигалась при энергии $\sim 0,2 \text{ мкДж}$, что соответствует совпадению максимума спектра уширенного за счет ФСМ с положением линий.

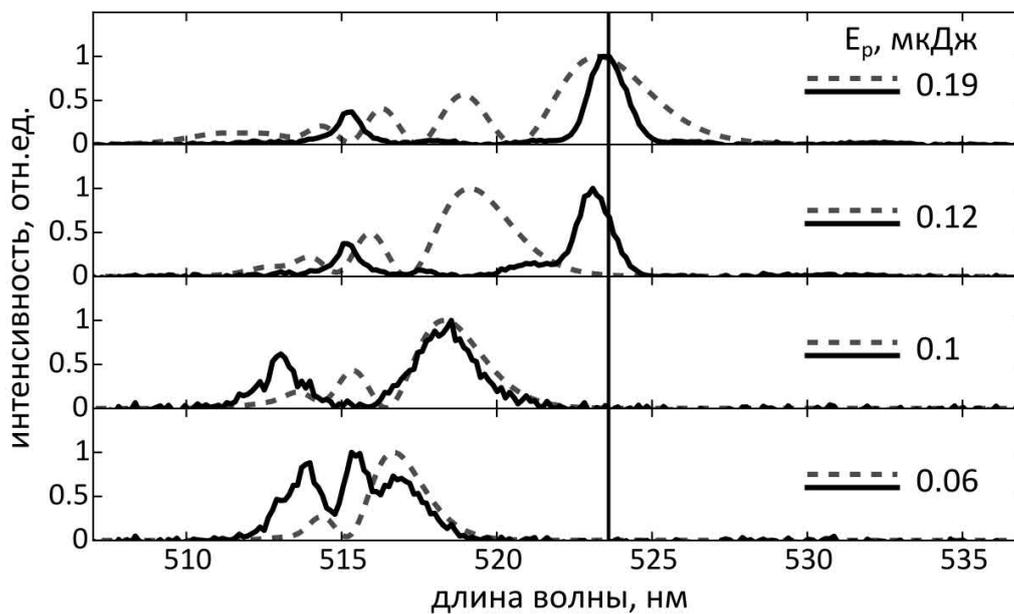


Рис. 6. Сравнение экспериментально измеренных спектров (сплошные линии) и полученных в расчете в приближении плоской волны (пунктиры).

В силу инерционности отклика кубической нелинейности (0,35 пс) и длительности импульса (0,3 пс) максимум уширения спектра в стоксовую область находится вблизи центральной части импульса (Рис. 4), что создает благоприятные условия для последующего усиления затравки за счет ВКР. При последующем повышении энергии другие максимумы могут совпасть с положением линии, однако временное перекрытие будет меньше и будет смещено в сторону переднего фронта накачки, обладающего меньшей интенсивностью, что соответствует худшим условиям для последующего усиления. Спектры излучения на выходе из кристалла были сопоставлены со спектром спонтанного

комбинационного рассеяния (Рис. 7), на которых отчетливо видно, что когда уширение спектра достигает линий $\nu_2=330 \text{ см}^{-1}$ или $\nu_1=925 \text{ см}^{-1}$, то при последующем увеличении энергии наблюдается усиление данных линий. Таким образом, ФСМ формирует затравочное излучение, которое затем усиливается за счет ВКР, что приводит к очередности формирования линий, определяемой величиной частотного сдвига, а не коэффициентом ВКР усиления линии.

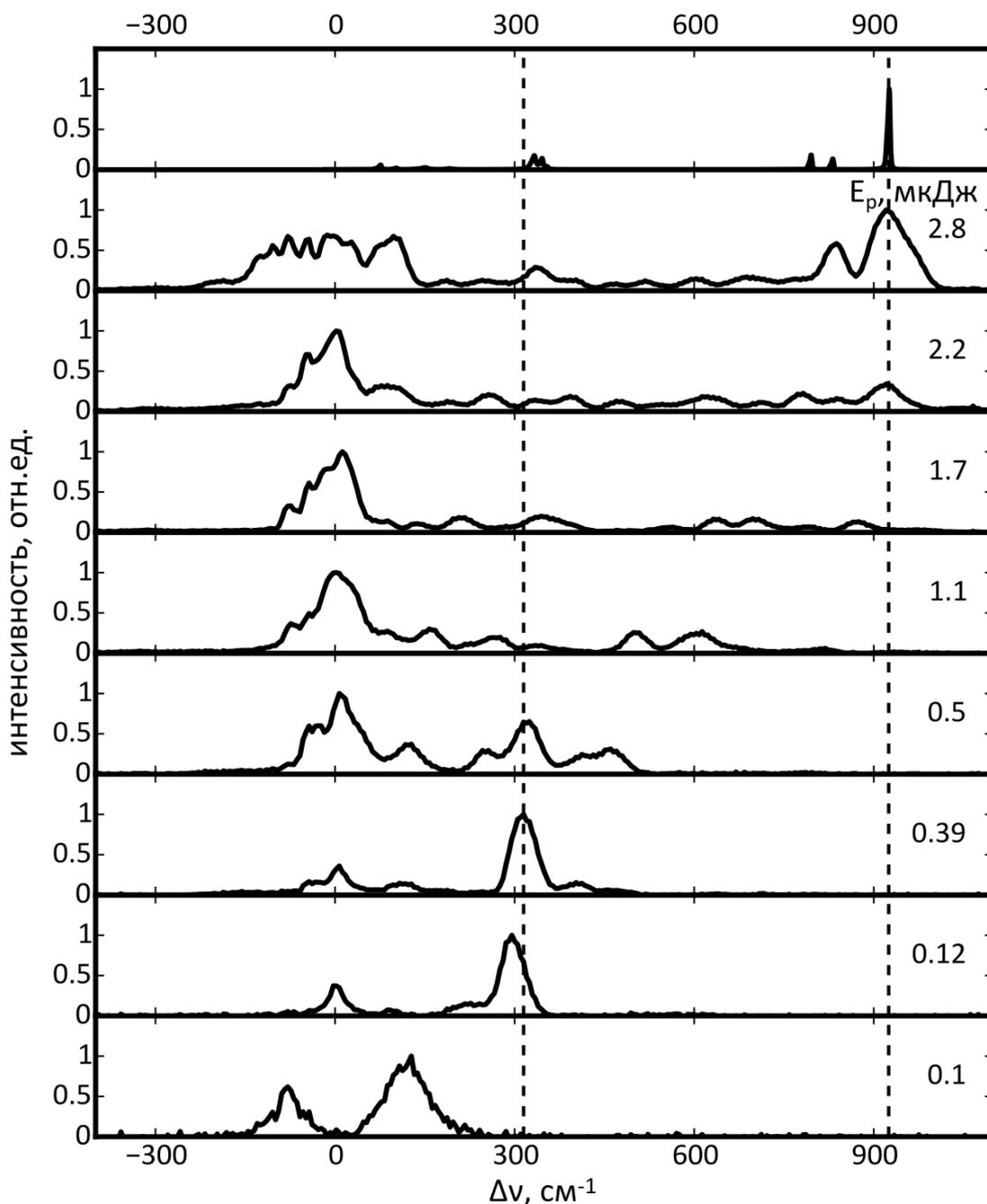


Рис. 7. Сравнение спектров излучения на выходе из кристалла со спектром спонтанного КР кристалла ВВО.

Во второй части главы представлены результаты по исследованию факторов, позволяющих повысить эффективность преобразования. Рассмотрены три режима фокусировки с фокусными расстояниями: 20 мм (объектив), и 40 мм и 90 мм (линзы). Длина перетяжки не ограничивалась размерами кристалла, и линейный фокус совпадал с его центром при всех фокусировках. Максимальная эффективность генерации (10%) линии со сдвигом 925 см^{-1} достигалась при фокусировке линзой с фокусным расстоянием 40 мм и энергии импульса 2,6 мкДж, но при фокусировке объективом в зависимости эффективности наблюдался рост с увеличением энергии, однако она была ограничена на уровне 2,5 мкДж из-за дополнительных потерь на отражения. Полученная эффективность оказалась в два раза ниже, чем в [10], хотя используемые фокусные расстояния линз достаточно близки. Одним из факторов, влияющих на эффективность ВКР, могло являться положение линейного фокуса внутри кристалла, так как мощность излучения превосходит критическую мощность СФ. Для исследования этого эффекта кристалл был закреплен на подвижной платформе, сдвиг которой осуществлялся шаговым двигателем, и измерялась зависимость амплитуды ВКР-линии со сдвигом 925 см^{-1} от положения линейного фокуса внутри кристалла. При смещении линейного фокуса от передней грани к задней наблюдалось увеличение амплитуды стоксовой компоненты, достижение максимума при смещении от центра в сторону задней грани на 1,8 мм и последующий резкий спад. Рост амплитуды связан с увеличением длины взаимодействия, которая определяется расстоянием между линейным и нелинейным фокусами, что хорошо описывается формулой нарастания амплитуды стоксовой компоненты при нестационарном ВКР [1] где параметром является только длина, определяемая разностью расстояний линейного и нелинейного фокуса, вычисляемого по формуле Марбургера [19] при наличии геометрической фокусировки [20]. Спад амплитуды данной компоненты не объясняется таким подходом и может быть связан со следующими факторами: 1) рассогласованием групповых скоростей импульсов ВКР и накачки; 2) повреждением задней грани кристалла без появления яркого плазменного факела; 3) сохранением интенсивной части излучения за линейным

фокусом лазерного луча (постфиламентационный канал), который может давать вклад в ВКР усиление, но при смещении линейного фокуса в сторону задней грани кристалла постфиламентационный канал может быть ограничен геометрическими размерами кристалла.

В положении, в котором достигалась максимальная амплитуда ВКР линии, была измерена зависимость эффективности по спектральной яркости от энергии лазерных импульсов, которая составила 23% и 70% для линии 925 см^{-1} и 330 см^{-1} , соответственно. Так же была измерена эффективность по энергии, которая измерялась с помощью отражения от дифракционной решетки и выделением диафрагмой необходимой части спектра. Эффективности по энергии составили 10% и 35% для линии 925 см^{-1} и 330 см^{-1} , соответственно.

В Заключение приведены основные результаты работы:

1) Для описания распространения гауссового пучка с мощностью вплоть до критической мощности самофокусировки в среде с учетом влияния эффекта самофокусировки применим метод ABCD матриц при разбиении нелинейной среды на малые участки и действия дополнительных линз с фокусными расстояниями $F=3,77nw^2/(4n_2I_0dz)$, где n – показатель преломления среды, w – радиус пучка по уровню $1/e^2$, n_2 – нелинейный показатель преломления, I_0 – интенсивность на оси, dz – шаг разбиения

2) Значение нелинейного коэффициента преломления и время отклика кубической нелинейности для кристалла вольфрамата бария, усредненные по измерениям на длинах волн 515 нм и 1030 нм, составляют $(6,4\pm 1,6)\times 10^{-15}\text{ см}^2/\text{Вт}$ и 0,4 пс, соответственно.

3) Максимальная эффективность вынужденного комбинационного рассеяния на колебательной моде $\nu_2=330\text{ см}^{-1}$ в кристалле вольфрамата бария длиной 8 мм для лазерного импульса с длиной волны 515 нм и длительностью 300 фс достигается при фокусировке ($NA\sim 0,02-0,04$), энергии импульса 0,19 мкДж, и смещению линейного фокуса излучения на 1,8 мм от центра в сторону задней грани кристалла, при этом энергия на частоте рассеянного

излучения достигает ~35% от энергии всего импульса, прошедшего через кристалл.

4) Максимальная эффективность вынужденного комбинационного рассеяния на колебательной моде $\nu_1=925 \text{ см}^{-1}$ в кристалле вольфрамата бария длиной 8 мм для лазерного импульса с длиной волны 515 нм и длительностью 300 фс достигается при фокусировке ($NA \sim 0,02-0,04$), энергии импульса 2,8 мкДж, и смещению линейного фокуса излучения на 1,8 мм от центра в сторону задней грани кристалла, при этом энергия на частоте рассеянного излучения достигает ~10% от энергии всего импульса, прошедшего через кристалл.

Публикации автора по теме диссертации

Основные результаты диссертационной работы изложены в 6-ти научных изданиях, индексируемых международными базами данных Scopus и Web of Science [1*-6*]:

1*. Kinyaevskiy I., Danilov P., Smirnov N., Kudryashov S., Koribut A., Dunaeva E., Voronina I., Andreev. Yu., Ionin A., Ablation of BaWO₄ crystal by ultrashort laser pulses //Crystals. – 2020. – Т. 10. – №. 9. – С. 754.

<https://doi.org/10.3390/cryst10090754>

2*. Kinyaevskiy I., Kovalev V., Danilov P., Smirnov N., Kudryashov S., Koribut A., Ionin A., Asymmetric spectral broadening of sub-picosecond laser pulse in BaWO₄ crystal: interplay of self-phase modulation, stimulated Raman scattering, and orientational Kerr nonlinearity //Optics Letters. – 2021. – Т. 46. – №. 3. – С. 697-700.

<https://doi.org/10.1364/OL.417661>

3*. Kinyaevskiy I. O., Kovalev V.I., Koribut A.V., Danilov P.A., Smirnov N.A., Kudryashov S.I., Grudtsyn Ya.V., Dunaeva E.E., Trofimov V.A., Ionin A.A., Asymmetric Spectral Broadening of 0.3 ps, 1030 nm Laser Pulse in BaWO₄ Crystal //Journal of Russian Laser Research. – 2022. – Т. 43. – №. 3. – С. 315-318.

<https://doi.org/10.1007/s10946-022-10053-2>

4*. Киняевский И. О., Корибут А.В., Гриценко И.В., Сагитова А.М., Ионин М.В., Дунавева Е.Э., Ионин А.А., Влияние фокусировки на нестационарное ВКР 0.3 ps лазерных импульсов в кристалле ВаWO₄ с самозаправкой ФСМ // Оптика и спектроскопия. – 2023. – Т. 131. – №. 2. – С. 202-206

<http://dx.doi.org/10.21883/OS.2023.02.55006.6-23>

5*. Kinyayevskiy I., Kovalev V., Danilov P., Smirnov N., Kudryashov S., Koribut A., Ionin A., Highly efficient transient stimulated Raman scattering on secondary vibrational mode of BaWO₄ crystal due to its constructive interference with self-phase modulation // Chinese Optics Letters. – 2023. – Т. 21. – №. 3. – С. 031902.

<http://dx.doi.org/10.3788/COL202321.031902>

6*. Kinyayevskiy I.O., Koribut A.V., Danilov P.A., Kudryashov S.I., Self-focusing and Self-phase Modulation of Focused Femtosecond Laser Beam in Fused Silica at Near-critical Peak Power // JETP Letters. – 2024. – Т. 119. – №. 1. – С. 10-15.

<https://doi.org/10.1134/S0021364023603585>

Список литературы, цитируемой в автореферате:

1. Carman R.L., Shimizu F., Wang C.S., Bloembergen N. Theory of Stokes Pulse Shapes in Transient Stimulated Raman Scattering // Physical Review A. – 1970. – Т. 2, – № 1. – С. 60.
2. Akhmanov S., Drabovich K., Sukhorukov A., Shchednova A. Combined Effects of Molecular Relaxation and Medium Dispersion in Stimulated Raman Scattering of Ultrashort Light Pulses // Soviet Journal of Experimental and Theoretical Physics. – 1972. – Т. 35, – № 2. – С. 279.
3. Klewitz S., Sogomonian S., Woerner M., Herminghaus S. Stimulated Raman scattering of femtosecond Bessel pulses // Optics Communications. – 1998. – Т. 154, – № 4. – С. 186–190.
4. Grabtchikov A.S. и др. Observation of Raman conversion for 70-fs pulses in KGd(WO₄)₂ crystal in the regime of impulsive stimulated Raman scattering // Optics Letters. – 2003. – Т. 28, – № 11. – С. 926.
5. Konyashchenko A. V., Losev L.L., Tenyakov S.Y. Raman frequency shifter for

- laser pulses shorter than 100 fs // *Optics Express*. – 2007. – Т. 15, – № 19. – С. 11855.
6. Grigsby F.B., Dong P., Downer M.C. Chirped-pulse Raman amplification for two-color, high-intensity laser experiments // *Journal of the Optical Society of America B*. – 2008. – Т. 25, – № 3. – С. 346.
 7. Orlovich V.A. и др. Raman conversion of femtosecond laser pulses in crystals // *Laser Physics Letters*. – 2012. – Т. 9, – № 11. – С. 770–774.
 8. Murtagh M. и др. Efficient diamond Raman laser generating 65 fs pulses // *Optics Express*. – 2015. – Т. 23, – № 12. – С. 15504.
 9. Конященко А.В., Кострюков П.В., Лосев Л.Л., Пазюк В.С. Минимально возможная длительность лазерного импульса при ВКР // *Квантовая электроника*. – 2017. – Т. 47, – № 7. – С. 593–596.
 10. Kinyaevskiy I.O. и др. Highly efficient stimulated Raman scattering of sub-picosecond laser pulses in BaWO₄ for 10.6 μm difference frequency generation // *Optics Letters*. – 2020. – Т. 45, – № 8. – С. 2160.
 11. Daher N. и др. Raman wavelength conversion in a multipass cell // *Optics Letters*. – 2021. – Т. 46, – № 14. – С. 3380.
 12. Kinyaevskiy I.O. и др. Frequency down-conversion of a chirped Ti:sapphire laser pulse with BaWO₄ Raman shifter and second-order nonlinear crystal // *Laser Physics Letters*. – 2022. – Т. 19, – № 9. – С. 095403.
 13. Chiao R.Y., Garmire E., Townes C.H. Self-trapping of optical beams // *Physical Review Letters*. – 1964. – Т. 13, – № 15. – С. 479–482.
 14. Schaffer C.B., Brodeur A., García J.F., Mazur E. Micromachining bulk glass by use of femtosecond laser pulses with nanojoule energy // *Optics Letters*. – 2001. – Т. 26, – № 2. – С. 93.
 15. Tzortzakis S. и др. Self-guided propagation of ultrashort ir laser pulses in fused silica // *Physical Review Letters*. – 2001. – Т. 87, – № 21. – С. 213902-1-213902–213904.
 16. Tian Y., Gong C., Kong D., Hu X. Avalanche ionization during UV filamentation in fused silica: suppression of blueshifted spectra extent // *Journal of the Optical*

Society of America B. – 2022. – Т. 39, – № 9. – С. 2435.

17. DeMartini F., Townes C.H., Gustafson T.K., Kelley P.L. Self-steepening of light pulses // *Physical Review*. – 1967. – Т. 164, – № 2. – С. 312–323.
18. Kovalev V.I. Dispersion of characteristics of optical nonlinear response used for phase conjugation // *Journal of Russian Laser Research*. – 1997. – Т. 18, – № 1. – С. 1–16.
19. Marburger J.H. Self-focusing: Theory // *Progress in Quantum Electronics*. – 1975. – Т. 4, – № 1. – С. 35–110.
20. Таланов В.И. О фокусировке света в кубичных средах // *Письма в ЖЭТФ*. – 1970. – Т. 116, – № 6. – 303–305 с.