<u>ΥCΠΕΧΗ ΦИЗИЧЕСКИХ НАУК</u>

ПРИБОРЫ И МЕТОДЫ ИССЛЕДОВАНИЙ

Новые нелинейно-лазерные эффекты в α-кварце: генерация двухоктавной гребенки стоксовых и антистоксовых частот и каскадный лазинг в спектральной области второй и третьей гармоник

А.А. Каминский, Л. Богати, П. Бекер, Г.Й. Эйхлер, Х. Рии

Кристаллы, являющиеся одновременно нелинейно $\chi^{(2)}$ - и $\chi^{(3)}$ -активными, предоставляют большое разнообразие возможностей для когерентной генерации света на новых длинах волн. В нецентросимметричном кристалле данного типа посредством каскадных лазерных $\chi^{(2)} \leftrightarrow \chi^{(3)}$ -процессов могут быть инициированы такие эффекты преобразования частоты, как вынужденное комбинационное рассеяние (BKP), генерация второй и третьей гармоник, суммарных и разностных частот. В статье сообщается об обнаружении в давно известном нелинейно-лазерном кристалле α -кварца (α -SiO₂) при пикосекундном лазерном возбуждении ряда новых проявлений этих эффектов, среди которых — более чем двухоктавная генерация 45-компонентной гребенки стоксовых и антистоксовых длин волн (от 0,3692 мкм до 1,5142 мкм), многоступенчатое каскадное $\chi^{(3)} \leftrightarrow \chi^{(2)}$ -самопреобразование частот BKP-генерации в частоты спектральной области второй и третьей гармоник одномикронной накачки.

PACS numbers: 42.62.-b, 42.65.-k, 42.70.Ce

Содержание

- 1. Введение (935).
- 2. Кристаллография образцов для исследования (936).
- Нелинейно-генерационные эффекты: многоволновые гребенки стоксовых и антистоксовых компонент и многокаскадный χ⁽³⁾ ↔ χ⁽²⁾-лазинг (938).
- Коэффициент усиления вынужденного комбинационного рассеяния (941).
- 5. ВКР-промоутирующая колебательная мода α-кварца (944).
- 6. Заключение (944).

Список литературы (945).

А.А. Каминский. Институт кристаллографии

им. А.В. Шубникова РАН,

Ленинский просп. 59, 119333 Москва, Российская Федерация Тел. (499) 135-22-10 (6310). Факс (499) 135-10-11

E-mail: kaminalex@mail.ru

Л. Богати, П. Бекер. Institut für Kristallographie, Universität zu Köln, Zulpicherstr. 49b, D-50674 Köln, Germany Tel. (+49) 221-470-3154, (+49) 221-470-6104 Fax (+49) 221-470-4963, (+49) 221-470-4963 E-mail: ladislav.bohaty@uni-koeln.de, petra.becker@uni-koeln.de

Г.Й. Эйхлер, X. Рии. Institut für Optik and Atomare Physik,

Technische Universität Berlin,

Hardenbergstr. 36, D-10623 Berlin, Germany

Tel. (+49) 30-314-22468, (+49) 30-314-24701. Fax (+49) 30-314-21079 E-mail: eichler@physik.tu-berlin.de, hanjo@physik.tu-berlin.de

Статья поступила 29 апреля 2008 г.

1. Введение

В науках о твердом теле α-кварц играл ключевую роль не только из-за доступности его больших высококачественных природных образцов, но также благодаря его симметрии, которая позволила выявить множество ценных кристалло-физических свойств. На протяжении последних столетий α-кварц являлся материалом, который стимулировал исследования в области как линейной, так и нелинейной оптики — уже в первых десятилетиях XIX в. результаты детальных измерений показателей преломления кристаллов кварца и кальцита были использованы для изучения анизотропии распространения света.

DOI: 10.3367/UFNr.0178.200809c.0935

Так, в 1811 г. Араго [1] открыл в α-кварце оптическую активность, а вскоре Френель, благодаря проведенному им остроумному эксперименту с использованием призм из право- и левовращающего кварца, подтвердил существование циркулярного двойного лучепреломления [2]. После экспериментов Брюстера по изучению двойного лучепреломления в оптически изотропных средах под действием механических напряжений [3] кварц стал одним из первых оптически анизотропных кристаллов, используемых для изучения пьезооптического эффекта [4]. Позднее независимо Рентген и Кундт экспериментально обнаружили в α-кварце линейный электрооптический эффект [5]. Но только правильная интерпретация этих данных на основе их количественного анализа позволила Поккельсу установить подлинную природу этого эффекта (получившего название эффекта Поккельса) [6].

© А.А. Каминский, Л. Богати, П. Бекер, Г.Й. Эйхлер, X. Рии 2008

Детальные исследования Г. Ландсберга и Л. Мандельштама неупругого рассеяния света в природном α-кварце [7] привели их к открытию в 1928 г. спонтанного комбинационного рассеяния света в твердом теле*. На протяжении последующих 80-ти лет различные аспекты этого эффекта в природных и синтетических кристаллах α-кварца являлись объектами систематического исследования многих ученых (относительно ранних работ см., например, [9]).

Сразу после изобретения лазера α-кварц стал первым кристаллом нелинейной оптики, в котором благодаря его $\chi^{(2)}$ -активности впервые было обнаружено нелинейное преобразование оптической частоты — эффект генерации второй гармоники (ГВГ) (second harmonic generation (SHG)) [10]. Ввиду отсутствия в α-кварце фазового синхронизма он не стал практическим материалом для ГВГ, несмотря на то, что значение его нелинейного коэффициента d^{SHG}, характеризующего эффективность процесса ГВГ, близко к величине коэффициента d₃₁₂ широко используемого в прикладной нелинейной оптике кристалла КDР (КH₂PO₄) [11]. Однако нелиней-ный коэффициент α -кварца $d_{111}^{SHG} = 0,30$ пм В⁻¹ (для $\lambda = 1,064$ мкм) [12] сертифицирован, и это значение часто используется как стандартная величина для абсолютной калибровки в относительных измерениях нелинейных коэффициентов ГВГ в других материалах, например по методу интерференционных полос Мейкера (Maker fringes method).

Кристалл α -кварца явился первым твердотельным материалом, в котором при его возбуждении излучением ($\lambda = 0,6943$ мкм) рубинового лазера была обнаружена генерация вынужденного комбинационного рассеяния (ВКР), обусловленная кубичной нелинейностью α -кварца [13]. Отметим, что в работе [14] несколько ранее, чем в [13], в α -кварце был обнаружен близкий по природе эффект, который сейчас мы называем вынужденным рассеянием Мандельштама–Бриллюэна.

Живой интерес к α-кварцу и его свойствам не ослабевал и в последующие годы (см., например, [15]), в частности, α-кварц использовался для получения инфракрасной (ИК) и терагерцевой генерации посредством вынужденного поляритонного излучения (см., например, [16]). Приведенные примеры убедительно свидетельствуют о том, что α-кварц играл выдающуюся и уникальную роль как в рождении и становлении нелинейной оптики, так и в развитии современной лазерной физики.

Сегодня различные компании, используя гидротермальные методы [17], в промышленных количествах выращивают большие монокристаллы α-кварца высокого "стандартного" качества с целью их применения как основного пьезоэлектрического материала. Здесь уместно отметить, что впервые α-кварц был выращен в 1845 г. Шафотлом (Schafhäutl) [18] и это был один из первых успешных экспериментов по выращиванию кристаллов при использовании гидротермальных условий.

В данной статье мы сообщаем о первом наблюдении в α -кварце новых нелинейно-лазерных эффектов, в которых одновременно проявляются его кубичная ($\chi^{(3)}$) и квадратичная ($\chi^{(2)}$) нелинейности. В частности, применяя одномикронную пикосекундную накачку, мы обнаружили и изучили процессы эффективного многокаскадного $\chi^{(3)} \leftrightarrow \chi^{(2)}$ -лазинга (от англ. *lasing*), среди которых — генерация многоволновых гребенок (combs) стоксовых и антистоксовых компонент в спектральном диапазоне, превышающем две октавы, и параметрическое самопреобразование частоты этих комбинационных компонент в частоты спектральной области второй и третьей гармоник.

2. Кристаллография образцов для исследования

Кристалл α -кварца представляет собой низкотемпературную модификацию кремнезема SiO₂, кристаллизующуюся при низком давлении в энантиоморфной точечной группе 32. Его структурными единицами являются связанные по вершинам [SiO₄] тетраэдры, расположенные в спиралях с правым или левым направлением вращения, в зависимости от энантиоморфизма (пространственная группа P3₁21 или P3₂21), которые образуют трехмерный каркас [19]. Правая и левая структурноморфологические формы кварца показаны на рис. 1. Кристалл кварца с симметрией P3₂21 является правовращающим в направлении оптической оси [20, 21]. Из массивных коммерческих монокристаллов именно этого типа были вырезаны три образца с разной длиной для наших экспериментов.

Для указания ориентации образцов мы использовали декартову систему с координатными векторами $\{\mathbf{e}_i\}$, которая соотносится с кристаллографической системой $(\mathbf{a}, \mathbf{b}, \mathbf{c})$ в соответствии со стандартом IEEE (Institute of Electrical and Electronics Engineers) [22] (рис. 2), т.е. вектор \mathbf{e}_1 параллелен одной из осей второго порядка, \mathbf{e}_2 перпендикулярен этой оси и \mathbf{e}_3 параллелен оси третьего порядка. В этом случае продольная пьезоэлектрическая константа d_{111} является положительной. При накачке вдоль \mathbf{e}_1 длина кристалла составляла 59,9 мм (образец 1), вдоль \mathbf{e}_2 — 54,5 мм (образец 2) и вдоль \mathbf{e}_3 — 35,8 мм (образец 3). Рабочая поверхность образцов была отполирована, антиотражающие покрытия не наносились. Некоторые кристаллографические и физические свойства α -кварца представлены в табл. 1.



Рис. 1. Структурные диаграммы α -кварца, показывающие его две энантиоморфные модификации с пространственными группами P3₂21 (левая сторона) и P3₁21 (правая сторона). Элементарная ячейка указана для обоих случаев. Атомы Si обозначены маленькими темными сферами, атомы кислорода — большими темными. Содержание примитивной ячейки указано более темной окраской сфер; атомы, которые ей не принадлежат, но помогают понять структурные особенности α -кварца, обозначены слабо окрашенными сферами.

^{*} В этом же году Раман опубликовал статью [8] о наблюдении аналогичного эффекта в жидкостях.

Пространственная группа [19]	D ₃ ⁴ -Р3 ₁ 21 (№ 152) или D ₃ ⁶ -Р3 ₂ 21 (№ 154)
Параметр элементарной ячейки, Å[23]	a = 4,91344(4), c = 5,40524(8)
Число формульных единиц в элементарной ячейке [19]	Z = 3
Плотность, г см $^{-3}$ (для температуры 0 °С) [24]	$ \rho_{\rm exp} = 2,65068(23) $
Локальная симметрия атомов [19]	Si: 2 (C ₂), O: 1 (C ₁)
Метод выращивания кристаллов	Гидротермальный [17]; доступны коммерческие кристаллы
Твердость по шкале Мооса и по шкале Кнупа, кг мм ⁻²	$7 \approx 740$
Температура плавления ¹ , К [25, 26]	1996(5)
Коэффициент теплопроводности ² к _{ij} , Вт м ⁻¹ К ⁻¹ [27]	$\kappa_{11} = 6,2(3), \kappa_{33} = 10,4(5)$
Оптические свойства	Одноосный, оптически положительный: n _e > n _o
Область оптической прозрачности ³ , мкм [28]	$\approx 0,19-pprox 3,6$
Ширина запрещенной зоны, эВ [29]	≈ 8,30
Порог оптического пробоя, ГВт см $^{-2}$ (для $\lambda = 0,6943$ мкм) [30]	$\approx 28(5)$
Показатель преломления (дисперсионная формула) ⁴ [31]	$n^{2}(\lambda) = A + \frac{B}{\lambda^{2} - C} + \frac{D}{\lambda^{2} - E} + \frac{127,2}{\lambda^{2} - 108}$
Оптическая активность, град мм ⁻¹ [32]: для $\lambda = 0,481$ мкм для $\lambda = 0,535$ мкм для $\lambda = 0,589$ мкм для $\lambda = 0,636$ мкм для $\lambda = 0,940$ мкм для $\lambda = 1,100$ мкм для $\lambda = 1,342$ мкм	33,52 26,67 21,75 18,48 8,14 5,836 3,890

Таблица 1. Некоторые физические свойства монокристаллов α-кварца при комнатной температуре (ошибки измерения приведены в круглых скобках) (см. продолжение таблицы на следующей странице)

¹ Температура плавления высокотемпературного кристобалита (стабильная модификация кристаллического SiO₂ при повышенной температуре и давлении); отметим, что β-кварц может быть перегрет с использованием стабильной модификации — кристобалита с метастабильной температурой плавления ≈ 1696(50) К [25, 26].

² Близкие значения ($\kappa_{11} \approx 7$ Вт м⁻¹ К⁻¹ и $\kappa_{33} \approx 12$ Вт м⁻¹ К⁻¹) приведены в [42].

³ Область прозрачности по уровню 0,5 для кристалла длиной 10 мм вдоль *с*-оси [28] (см. также рис. 3).

⁴ Дисперсионные коэффициенты, λ в [мкм] (индексы "о" и "е" обозначают соответственно "ординарный" и "экстраординарный")

	A	В	С	D	Ε
no	3,53445	0,008067	0,0127493	0,002682	0,000974
ne	3,5612557	0,00844614	0,0127493	0,00276113	0,000974



1,70 SiO_2 Показатель преломления 1,66 α-кварц Поглощение, отн. ед. 3 1,62 1,58 2 1,54 n. 1,50 1 0 0,5 1,0 1,5 2,0 2,5 Длина волны, мкм

Рис. 2. Ориентация образцов α-кварца, используемых в настоящей работе. a, b и c обозначают кристаллографические оси, {e_i} — оси декартовой системы координат. Три оси симметрии второго порядка и тройная ось точечной группы симметрии 32 указаны стандартными кристаллографическими символами.



Габлица Г (продолжение)	
Нелинейный показатель преломления n_2 , 10^{-13} см ³ эрг (для $\lambda = 1,064$ мкм) [33]	1,16 (∥с-оси), 1,12 (⊥с-оси)
Фазовый синхронизм для ГВГ	Не выполняется
Тип нелинейности	$\chi^{(2)} + \chi^{(3)}$
Нелинейный коэффициент для ГВГ d_{ijk}^{SHG} , пм В ⁻¹ (для $\lambda = 1,064$ мкм) [12, 34]	$d_{111}^{\rm SHG} = 0,30, \ d_{123}^{\rm SHG} = 0,0045$
Электрооптический коэффициент r_{ijk}^{σ} , пм В ⁻¹ (для $\lambda = 0,633$ мкм) [35]	$r_{111}^{\sigma} = -0,481(8), r_{231}^{\sigma} = -0,235(10)$
Фотоупругие константы p_{ijkl} (для $\lambda = 0,5893$ мкм) [36]	$p_{1111} = 0,16, p_{1122} = 0,27, p_{1133} = 0,27, p_{3311} = 0,29, p_{3333} = 0,10,$ $p_{1123} = -0,030, p_{2311} = -0,047, p_{2323} = -0,079$
Низкочастотные относительные диэлектрические постоянные ε_{ij}^{r} (при постоянном напряжении) [37]	$\varepsilon_{11}^{r} = 4,5208(10), \ \varepsilon_{33}^{r} = 4,6368(10)$
Коэффициент температурного расширения, 10 ⁻⁶ К ⁻¹ [38]	$\alpha_{11} = 13,87, \ \alpha_{33} = 7,62$
Пьезоэлектрические коэффициенты ⁵ <i>d_{ijk}</i> , пм В ⁻¹ [35, 39]	$d_{111} = 2,31(1), \ d_{123} = -0,369(13)$
Упругие постоянные ⁶ <i>c</i> _{<i>ijk1</i>} , ГПа [41]	$c_{1111} = 86,790, c_{1122} = 6,790, c_{1133} = 12,01, c_{3333} = 105,787, c_{1123} = 18,116, c_{2323} = 58,212$
Ширина линии спонтанного комбинационного рассеяния, соответ- ствующая ВКР-активной колебательной моде ⁷ , см ⁻¹	$\Delta \nu_{\rm R} = 6.7 \pm 0.3$
Частота ВКР-промоутирующей моды ⁸ , см ⁻¹	$\omega_{\rm SRS} = 465.5 \pm 1.0$
Протяженность фононного спектра ⁹ , см ⁻¹	≈ 1250
⁵ См. также данные по пьезоэлектрическим константам в [40].	

Таблица 1 (продолжение)

⁶ См. также данные по упругим константам в [43].

⁷ Известно несколько точных измерений значения Δv_R для колебательного перехода α -кварца, связанного с его ВКР-генерацией при комнатной температуре [44].

⁸ При криогенных температурах была получена ВКР-генерация с частотными сдвигами 128–132 см⁻¹ (Е-мода) и 466–468 см⁻¹ (А₁-мода) (см., например, [13, 45]).

⁹ Получена из спектров спонтанного КР-рассеяния первого порядка (см., например, [9]).

3. Нелинейно-генерационные эффекты: многоволновые гребенки стоксовых и антистоксовых компонент и многокаскадный $\chi^{(3)} \leftrightarrow \chi^{(2)}$ -лазинг

Для однопроходного (безрезонаторного) возбуждения в α-кварце генерации стоксовых и антистоксовых компонент, а также нелинейно-каскадной $\chi^{(3)} \leftrightarrow \chi^{(2)}$ -генерации в ультрафиолетовом (УФ), видимом, ближнем и среднем инфракрасных диапазонах мы использовали модифицированную установку (подробно описанную в нашей недавней статье [45]) на основе "самодельного" пикосекундного Nd^{3+} : Y₃Al₅O₁₂-лазера (задающий генератор и усилитель) с ламповой (Xe) накачкой и эффективного $(\approx 25\%)$ внешнего удвоителя частоты на основе кристалла KDP (KH₂PO₄). Лазерная установка позволяла получать излучение на двух основных (fundamental) длинах волн: $\lambda_{f1} = 1,06415$ мкм (основной лазерный межштарковский переход генерационного канала ${}^4F_{3/2} \rightarrow {}^4I_{11/2}$ ионов Nd^{3+} [47], длительность импульса $\tau_{\rm p1} \approx 100\,$ пс) и $\lambda_{\rm f2} = 0,53207\,$ мкм (вторая гармоника, $\tau_{p2} \approx 80$ пс). Излучение накачки с почти гауссовым профилем пучка направлялось линзой (с фокусным расстоянием f = 25 см) в ориентированные образцы, образуя в них пучок накачки с диаметром фокальной перетяжки около 160 мкм. Спектральный состав нелинейно-лазерной генерации исследуемых кристаллов в диапазоне от ультрафиолетовых длин волн до средних инфракрасных изучался с помощью дифракционного монохроматора (модель McPherson 270 в установке Черни-Тёрнера с решеткой 150 штрихов на 1 мм),

оснащенного двумя ПЗС-сенсорами фирмы "Хамамацу" (Si-CCD типа S3923-1024Q и CCD-InGaAs типа G9204-512D). Отобранные типичные спектры ВКР и каскадной $\chi^{(3)} \leftrightarrow \chi^{(2)}$ -лазерной генерации α -кварца, полученные в условиях специфических геометрий возбуждения, а также результаты их анализа показаны на рис. 4–8 и в систематизированном виде приведены в табл. 2.

Благодаря ВКР и параметрическим процессам многоволнового смешения в геометрии эксперимента $\mathbf{e}_1(\mathbf{e}_2, \mathbf{e}_2)\mathbf{e}_1$ при одномикронной пикосекундной накачке (с пиковой мощностью мегаваттного уровня) была зарегистрирована (см. рис. 4 и 8а) 45-волновая гребенка генерации, состоящая из эквидистантно ($\omega_{SRS} =$ $= 465,5 \text{ cm}^{-1}$ (SRS — Simulated Raman Scattering)) pasgeленных линий — 6 стоксовых, 38 антисоксовых линий и линии накачки, — которые простирались от видимого диапазона ($\lambda_{ASt38} = 0,3692$ мкм) до среднего ИК-диапазона ($\lambda_{\text{St6}} = 1,5142$ мкм). Эта частотная гребенка охватывает интервал величиной 20481 см⁻¹, т.е. больший, чем две октавы. Этот диапазон может быть дополнительно расширен при использовании двухфотонного возбуждения в нестационарном случае $\tau_p < T_2$ (здесь T_2 — время фононной релаксации), если для волны основной накачки $(\lambda_{\rm fl} = 1,06415$ мкм) и волны первой стоксовой компоненты ($\lambda_{St1} = 1,1196$ мкм) будут выполняться условия волнового синхронизма. В этом случае большинство стоксовых и антистоксовых компонент окажутся когерентными и будут распространяться коллинеарно. Помимо образования наблюдающейся при одномикронной пикосекундной накачке широкополосной спектральной гребенки, происходят процессы самопреобразова-

Таблица 2. Спектральный состав нелинейной $\chi^{(2)}$ - и $\chi^{(3)}$ -генерации в о-кварце: ВКР, параметрическое четырехволновое смешение при ВКР, каскадный $\chi^{(3)} \leftrightarrow \chi^{(2)}$ -лазинг при комнатной температуре в условиях стационарного возбуждения при накачке излучением пикосекундного Nd³⁺: Y₃Al₅O₁₂-лазера на его двух основных длинах волн генерации $\lambda_{f1} = 1,06415$ мкм и $\lambda_{f2} = 0,53207$ мкм (вторая гармоника)

Условия накачки		Нелинейно-лазерная генерация		
$\lambda_{\rm f}$, мкм	Геометрия возбужде-	Длина волны ² ,	Линия ³	Процесс ⁴
	ния ¹	MKM		
1,06415	$e_1(e_2, e_2)e_1$	0,5216	ASt ₂₁	$\omega_{\rm fl} + 21\omega_{\rm SRS}$
	(см. рис. 4)	0,5345	ASt ₂₀	$\omega_{\rm fl} + 20\omega_{ m SRS}$
		0,5482	ASt ₁₉	$\omega_{\rm fl} + 19\omega_{\rm SRS}$
		0,5625	ASt ₁₈	$\omega_{\rm fl} + 18\omega_{\rm SRS}$
		0,5777	ASt ₁₇	$\omega_{\rm fl} + 17\omega_{\rm SRS}$
		0,5936	ASt ₁₆	$\omega_{\rm fl} + 16\omega_{\rm SRS}$
		0,6105	ASt ₁₅	$\omega_{\rm fl} + 15\omega_{\rm SRS}$
		0,6284	ASt ₁₄	$\omega_{\rm fl} + 14\omega_{\rm SRS}$
		0,6473	ASt ₁₃	$\omega_{\rm fl} + 13\omega_{\rm SRS}$
		0,0074		$\omega_{\rm fl} + 12\omega_{\rm SRS}$
		0,0888	AStin	$\omega_{\rm fl} + 11\omega_{\rm SRS}$ $\omega_{\rm cr} + 10\omega_{\rm SRS}$
		0,7110	ASto	$\omega_{\rm fl} + 10\omega_{\rm SRS}$ $\omega_{\rm fl} + 9\omega_{\rm SRS}$
		0.7621	ASt ₈	$\omega_{f1} + 8\omega_{SRS}$
		0.7902	ASt ₇	$\omega_{f1} + 7\omega_{SRS}$
		0,8203	ASt ₆	$\omega_{\rm fl} + 6\omega_{\rm SRS}$
		0,8529	ASt ₅	$\omega_{\rm fl} + 5\omega_{\rm SRS}$
		0,8882	ASt ₄	$\omega_{\rm fl} + 4\omega_{\rm SRS}$
		0,9265	ASt ₃	$\omega_{\rm fl} + 3\omega_{\rm SRS}$
		0,9684	ASt ₂	$\omega_{\rm fl} + 2\omega_{\rm SRS}$
		1,0139	ASt ₁	$\omega_{\rm fl} + \omega_{\rm SRS}$
		1,06415	λ_{fl}	$\omega_{ m fl}$
		1,1196	St_1	$\omega_{\rm fl} - \omega_{\rm SRS}$
		1,1812	St_2	$\omega_{\rm fl} - 2\omega_{\rm SRS}$
		1,2499	St ₃	$\omega_{\rm fl} - 3\omega_{\rm SRS}$
		1,3271	St4 St-	$\omega_{\rm fl} - 4\omega_{\rm SRS}$
		1,4145	St ₅ St ₆	$\omega_{\rm f1} - 5\omega_{\rm SRS}$ $\omega_{\rm f1} - 6\omega_{\rm SRS}$
0 53207	e1 (e2 e2)e1	0 4181	AStu	$\omega_{\rm SD} + 11\omega_{\rm SDS}$
0,55207	$(c_1(c_2, c_2)c_1)$	0,4161	AStin	$\omega_{12} + 11\omega_{SRS}$ $\omega_{c2} + 10\omega_{SRS}$
	(enii piiere)	0.4351	ASt ₉	$\omega_{12} + 9\omega_{SRS}$
		0,4441	ASt ₈	$\omega_{f2} + 8\omega_{SRS}$
		0,4534	ASt ₇	$\omega_{f2} + 7\omega_{SRS}$
		0,4632	ASt ₆	$\omega_{f2} + 6\omega_{SRS}$
		0,4734	ASt ₅	$\omega_{\rm f2} + 5\omega_{\rm SRS}$
		0,4841	ASt ₄	$\omega_{\rm f2} + 4\omega_{\rm SRS}$
		0,4953	ASt ₃	$\omega_{f2} + 3\omega_{SRS}$
		0,5070	ASt ₂	$\omega_{\rm f2} + 2\omega_{\rm SRS}$
		0,5192	ASt ₁	$\omega_{f2} + \omega_{SRS}$
		0,53207	λ_{f2}	ω_{f2}
		0,5456	St1	$\omega_{f2} - \omega_{SRS}$
		0,5598	St ₂	$\omega_{f2} - 2\omega_{SRS}$ $\omega_{f2} - 3\omega_{SRS}$
		0,5740	St₄	$\omega_{12} = 3\omega_{SRS}$ $\omega_{e2} = 4\omega_{e2}$
		0.6073	St ₅	$\omega_{12} = -5\omega_{SRS}$
		0,6249	St ₆	$\omega_{f2} - 6\omega_{SRS}$
		0,6437	St ₇	$\omega_{\rm f2} - 7\omega_{\rm SRS}$
1,06415	$e_2(e_1, e_1)e_2$	0,4734	$\lambda_{\text{S-SFM}}(\lambda_{\text{f1}}, \lambda_{\text{ASt5}})$	$\omega_{\rm fl} + (\omega_{\rm fl} + 5\omega_{\rm SRS})$
	(см. рис. 6)	0,4841	$\lambda_{\text{S-SFM}}(\lambda_{\text{fl}}, \lambda_{\text{ASt4}})$	$\omega_{\rm fl} + (\omega_{\rm fl} + 4\omega_{\rm SRS})$
		0,4953	$\lambda_{S-SFM}(\lambda_{f1}, \lambda_{ASt3})$	$\omega_{\rm fl} + (\omega_{\rm fl} + 3\omega_{\rm SRS})$
		0,5070	$\lambda_{\text{S-SFM}}(\lambda_{\text{fl}}, \lambda_{\text{ASt2}})$	$\omega_{\rm fl} + (\omega_{\rm fl} + 2\omega_{\rm SRS})$
		0,5192	$\lambda_{\text{S-SFM}}(\lambda_{\text{fl}}, \lambda_{\text{AStl}})$	$\omega_{\rm fl} + (\omega_{\rm fl} + \omega_{\rm SRS})$
		0,53207	$\Gamma B \Gamma^{5}$	$2\omega_{\mathrm{fl}}$
		0,5456	$\lambda_{\text{S-SFM}}(\lambda_{f1}, \lambda_{St1})$	$\omega_{\rm fl} + (\omega_{\rm fl} - \omega_{\rm SRS})$
		0,5598	$\lambda_{\text{S-SFM}}(\lambda_{f1},\lambda_{\text{St2}})$	$\omega_{\rm fl} + (\omega_{\rm fl} - 2\omega_{\rm SRS})$
		0,5748	$\lambda_{\text{S-SFM}}(\lambda_{f1},\lambda_{\text{St3}})$	$\omega_{fl} + (\omega_{fl} - 3\omega_{SRS})$
		0,5906	$\lambda_{\text{S-SFM}}(\lambda_{f1},\lambda_{\text{St4}})$	$\omega_{fl} + (\omega_{fl} - 4\omega_{SRS})$
		0,5936	ASt ₁₆	$\omega_{\rm fl} + 16\omega_{\rm SRS}$
		0,6105	ASt ₁₅	$\omega_{\rm fl} + 15\omega_{ m SRS}$
		0,6284	ASt ₁₄	$\omega_{\rm fl} + 14\omega_{\rm SRS}$

Таблица	2 (продолжен	ние)			
Услов	вия накачки	Н	елинейно-лазерна	и генерация	
λ_{f} , мкм	Геометрия возбужде- ния ¹	Длина волны ² , мкм	Линия ³	Процесс ⁴	
		0,6473	ASt ₁₃	$\omega_{\rm fl} + 13\omega_{\rm SRS}$	
		0,6674	ASt ₁₂	$\omega_{\rm fl} + 12\omega_{\rm SRS}$	
		0,6888	ASt_{11}	$\omega_{\rm fl} + 11\omega_{\rm SRS}$	
		0,7110	ASt_0	$\omega_{fl} + 10\omega_{SRS}$ $\omega_{fl} + 9\omega_{SRS}$	
		0,7621	ASt ₈	$\omega_{\rm fl} + 8\omega_{\rm SRS}$	
		0,7902	ASt ₇	$\omega_{\rm fl} + 7\omega_{\rm SRS}$	
		0,8203	ASt ₆	$\omega_{\rm fl} + 6\omega_{\rm SRS}$	
		0,8529		$\omega_{\rm fl} + 5\omega_{\rm SRS}$ $\omega_{\rm cr} + 4\omega_{\rm SRS}$	
		0,9265	ASt ₃	$\omega_{\rm fl} + 3\omega_{\rm SRS}$	
		0,9684	ASt ₂	$\omega_{\rm fl} + 2\omega_{\rm SRS}$	
		1,0139	ASt_1	$\omega_{\rm fl} + \omega_{\rm SRS}$	
		1,06415	λ_{fl}	$\omega_{\rm fl}$	
		1,1190	St_2	$\omega_{\rm fl} = \omega_{\rm SRS}$ $\omega_{\rm fl} = 2\omega_{\rm SRS}$	
		1,2499	St ₃	$\omega_{\rm fl} - 3\omega_{\rm SRS}$	
		1,3271	St ₄	$\omega_{\rm fl} - 4\omega_{\rm SRS}$	
		1,4145	St ₅	$\omega_{\rm fl} - 5\omega_{\rm SRS}$	
1,06415	$e_3(e_2, e_2)e_3$	0,4953	ASt ₃	$2\omega_{\rm fl} + 3\omega_{\rm SRS}$	
	(см. рис. /)	0,5070	ASt ₂	$2\omega_{\rm fl} + 2\omega_{\rm SRS}$ $2\omega_{\rm cl} + \omega_{\rm SRS}$	
		0,53207	$\Gamma B \Gamma^{5}$	$2\omega_{\rm fl} + \omega_{\rm SRS}$ $2\omega_{\rm fl}$	
		0,5456	St_1	$2\omega_{\rm fl} - \omega_{\rm SRS}$	
		0,5598	St ₂	$2\omega_{\rm fl} - 2\omega_{\rm SRS}$	
		0,5748	St ₃	$2\omega_{\rm fl} - 3\omega_{\rm SRS}$ $2\omega_{\rm cl} - 4\omega_{\rm SRS}$	
		0,6105	ASt_{15}	$\omega_{f1} + 15\omega_{SRS}$	
		0,6284	ASt ₁₄	$\omega_{\rm fl} + 14\omega_{\rm SRS}$	
		0,6473	ASt ₁₃	$\omega_{\rm fl} + 13\omega_{\rm SRS}$	
		0,6674	ASt ₁₂	$\omega_{\rm fl} + 12\omega_{\rm SRS}$	
		0,0888	ASt_{10}	$\omega_{f1} + 10\omega_{SRS}$ $\omega_{f1} + 10\omega_{SRS}$	
		0,7360	ASt ₉	$\omega_{\rm fl} + 9\omega_{\rm SRS}$	
		0,7621	ASt ₈	$\omega_{\rm fl} + 8\omega_{\rm SRS}$	
		0,7902	ASt ₇	$\omega_{\rm fl} + 7\omega_{\rm SRS}$	
		0,8203	ASt ₅	$\omega_{f1} + 5\omega_{SRS}$ $\omega_{f1} + 5\omega_{SRS}$	
		0,8882	ASt ₄	$\omega_{\rm fl} + 4\omega_{\rm SRS}$	
		0,9265	ASt ₃	$\omega_{\rm fl} + 3\omega_{\rm SRS}$	
		0,9684	ASt ₂	$\omega_{\rm f1} + 2\omega_{\rm SRS}$	
		1,0139	λ_{f1}	$\omega_{f1} + \omega_{SRS}$	
		1,1196	St_1	$\omega_{\rm fl} - \omega_{\rm SRS}$	
		1,1812	St ₂	$\omega_{\rm fl} - 2\omega_{\rm SRS}$	
1,06415	$\mathbf{e}_1(\mathbf{e}_2,\mathbf{e}_2)\mathbf{e}_1$	0,3692	ASt ₃₈	$\omega_{\rm fl} + 38\omega_{\rm SRS}$	
	(см. рис. 8а)	0,3756	ASt ₃₇	$\omega_{\rm fl} + 37\omega_{\rm SRS}$	
		0,3823	AS136 AS125	$\omega_{\rm fl} + 30\omega_{\rm SRS}$ $\omega_{\rm fl} + 35\omega_{\rm SRS}$	
		0,3964	ASt_{34}	$\omega_{\rm fl} + 34\omega_{\rm SRS}$	
		0,4039	ASt ₃₃	$\omega_{\rm fl} + 33\omega_{\rm SRS}$	
		0,4116	ASt ₃₂	$\omega_{\rm fl} + 32\omega_{\rm SRS}$	
		0,4197	ASI31 ASI30	$\omega_{\rm fl} + 31\omega_{\rm SRS}$ $\omega_{\rm fl} + 30\omega_{\rm SRS}$	
		0,4367	ASt ₂₉	$\omega_{\rm fl} + 29\omega_{\rm SRS}$	
		0,4458	ASt ₂₈	$\omega_{\rm fl} + 28\omega_{\rm SRS}$	
		0,4552	ASt ₂₇	$\omega_{\rm f1} + 27\omega_{\rm SRS}$	
		0,4651	ASI26 AStas	$\omega_{\rm fl} + 26\omega_{\rm SRS}$ $\omega_{\rm fl} + 25\omega_{\rm SRS}$	
		0,4862	ASt_{24}	$\omega_{\rm fl} + 24\omega_{\rm SRS}$	
		0,4974	ASt ₂₃	$\omega_{\rm fl} + 23\omega_{\rm SRS}$	
		0,5092	ASt ₂₂	$\omega_{\rm fl} + 22\omega_{\rm SRS}$	
		0,5216	ASt ₂₁	$\omega_{\rm fl} + 21\omega_{\rm SRS}$ $\omega_{\rm fl} + 20\omega_{\rm SRS}$	
		0.5482	ASt_{20} ASt ₁₉	$\omega_{f1} + 20\omega_{SRS}$ $\omega_{f1} + 19\omega_{SPS}$	

Таблица 2 (продолжение)

		r			
Услов	ия накачки	Нелинейно-лазе		ная генерация	
λ_{f} , мкм	Геометрия возбужде- ния ¹	Длина волны ² ,	Линия ³	Процесс ⁴	
	шия	NIKIVI			
		0,5625	ASt ₁₈	$\omega_{\rm fl} + 18\omega_{\rm SRS}$	
		0,5777	ASt ₁₇	$\omega_{\rm fl} + 1/\omega_{\rm SRS}$ $\omega_{\rm cl} + 16\omega_{\rm SRS}$	
		0,6105	ASt ₁₅	$\omega_{fl} + 15\omega_{SRS}$	
		0,6284	ASt ₁₄	$\omega_{\rm fl} + 14\omega_{\rm SRS}$	
		0,6473	ASt ₁₃	$\omega_{\rm fl} + 13\omega_{\rm SRS}$	
		0,6674	ASt ₁₂	$\omega_{\rm fl} + 12\omega_{\rm SRS}$	
		0,0888	ASt ₁₀	$\omega_{f1} + 11\omega_{SRS}$ $\omega_{f1} + 10\omega_{SRS}$	
1.06415		0.0547	ETE ⁷	2	
1,06415	$e_2(e_1, e_1)e_2$	0,3547		$3\omega_{\rm fl}$	
	(em. pre. 60)	0,4260	ASt ₂₉	$\omega_{f1} + 30\omega_{SRS}$ $\omega_{f1} + 29\omega_{SRS}$	
		0,4458	ASt ₂₈	$\omega_{\rm fl} + 28\omega_{\rm SRS}$	
		0,4552	ASt ₂₇	$\omega_{\rm fl} + 27\omega_{\rm SRS}$	
		0,4651	ASt ₂₆	$\omega_{\rm f1} + 26\omega_{\rm SRS}$	
		0,4754	ASt ₂₅	$\omega_{\rm fl} + 25\omega_{\rm SRS}$	
		0,4802	ASt ₂₄	$\omega_{\rm fl} + 24\omega_{\rm SRS}$ $\omega_{\rm fl} + 23\omega_{\rm SRS}$	
		0,5070	$\lambda_{\text{S-SFM}}(\lambda_{f1}, \lambda_{\text{ASt}2})$	$\omega_{f1} + 25\omega_{SRS}$ $\omega_{f1} + (\omega_{f1} + 2\omega_{SRS})$	
		0,5092	ASt ₂₂	$\omega_{\rm fl} + 22\omega_{\rm SRS}$	
		0,5192	$\lambda_{\text{S-SFM}}(\lambda_{f1},\lambda_{\text{ASt1}})$	$\omega_{\rm fl} + (\omega_{\rm fl} + \omega_{\rm SRS})$	
		0,5216	ASt ₂₁	$\omega_{\rm fl} + 21\omega_{\rm SRS}$	
		0,53207	I BI S	$2\omega_{\rm fl}$	
		0,5345	$\lambda S SEM(\lambda EL \lambda SEL)$	$\omega_{f1} + 20\omega_{SRS}$ $\omega_{f1} + (\omega_{f1} - \omega_{SRS})$	
		0,5482	ASt ₁₉	$\omega_{\rm fl} + 19\omega_{\rm SRS}$	
		0,5598	$\lambda_{\text{S-SFM}}(\lambda_{f1},\lambda_{\text{St2}})$	$\omega_{\rm fl} \! + (\omega_{\rm fl} \! - \! 2 \omega_{\rm SRS})$	
		0,5625	ASt ₁₈	$\omega_{\rm fl} + 18\omega_{\rm SRS}$	
		0,5748	$\lambda_{\text{S-SFM}}(\lambda_{\text{f1}}, \lambda_{\text{St3}})$	$\omega_{\rm fl} + (\omega_{\rm fl} - 3\omega_{\rm SRS})$	
		0,3777	ASI17 AS SEM(ASI ASIA)	$\omega_{fl} + 1/\omega_{SRS}$ $\omega_{fl} + (\omega_{fl} - 4\omega_{SRS})$	
		0,5936	ASt ₁₆	$\omega_{\rm fl} + 16\omega_{\rm SRS}$	
		0,6073	$\lambda_{\text{S-SFM}}(\lambda_{f1},\lambda_{\text{ASt5}})$	$\omega_{\rm fl} + (\omega_{\rm fl} - 5\omega_{\rm SRS})$	
		0,6105	ASt ₁₅	$\omega_{\rm fl} + 15\omega_{\rm SRS}$	
		0,6284	ASt ₁₄	$\omega_{\rm fl} + 14\omega_{\rm SRS}$	
		0,0475	ASt ₁₃	$\omega_{fl} + 13\omega_{SRS}$ $\omega_{cl} + 12\omega_{SRS}$	
		0,6888	ASt ₁₁	$\omega_{fl} + 12\omega_{SRS}$ $\omega_{fl} + 11\omega_{SRS}$	
		0,7116	ASt ₁₀	$\omega_{\rm fl} + 10\omega_{\rm SRS}$	
1 06415	e ₂ (e ₂ , e ₂)e ₂	0 3434	LE SEM(LEL LASS)	$2\omega_{\epsilon_1} + (\omega_{\epsilon_1} + 2\omega_{sps})$	
-,	(см.	0,3490	$\lambda_{\text{S-SFM}}(\lambda_{\text{fl}}, \lambda_{\text{AStl}})$	$2\omega_{\rm fl} + (\omega_{\rm fl} + \omega_{\rm SRS})$	
	рис. 8в) ⁶	0,3547	$\Gamma T \Gamma^7$	$3\omega_{\rm fl}$	
		0,3607	$\lambda_{\text{S-SFM}}(\lambda_{\text{f1}}, \lambda_{\text{St1}})$	$2\omega_{\rm fl} + (\omega_{\rm fl} - \omega_{\rm SRS})$	
		0,3668	$\lambda_{\text{S-SFM}}(\lambda_{\text{f1}}, \lambda_{\text{St2}})$	$2\omega_{\rm fl} + (\omega_{\rm fl} - 2\omega_{\rm SRS})$	
		0,3798	$\lambda_{\text{S-SFM}}(\lambda_{\text{fl}}, \lambda_{\text{St3}})$	$2\omega_{\rm fl} + (\omega_{\rm fl} - 3\omega_{\rm SRS})$ $2\omega_{\rm fl} + (\omega_{\rm fl} - 4\omega_{\rm SRS})$	
		0,3866	$\lambda_{\text{S-SFM}}(\lambda_{\text{fl}}, \lambda_{\text{St5}})$	$2\omega_{\rm fl} + (\omega_{\rm fl} - 5\omega_{\rm SRS})$	
		0,4102	ASt ₁₂	$2\omega_{\rm f1} + 12\omega_{\rm SRS}$	
		0,4181	ASt ₁₁	$2\omega_{\rm f1} + 11\omega_{\rm SRS}$	
		0,4264	ASt ₁₀	$2\omega_{\rm f1} + 10\omega_{\rm SRS}$	
		0,4351	ASI9 ASto	$2\omega_{\rm fl} + 9\omega_{\rm SRS}$ $2\omega_{\rm fl} + 8\omega_{\rm SRS}$	
		0,4534	ASt ₇	$2\omega_{\rm fl} + 7\omega_{\rm SRS}$	
		0,4632	ASt ₆	$2\omega_{\rm f1} + 6\omega_{\rm SRS}$	
		0,4734	ASt ₅	$2\omega_{\rm f1} + 5\omega_{\rm SRS}$	
		0,4841	ASt ₄	$2\omega_{\rm f1} + 4\omega_{\rm SRS}$	
		0,4953	ASI3 ASta	$2\omega_{\rm fl} + 3\omega_{\rm SRS}$ $2\omega_{\rm cl} + 2\omega_{\rm SRS}$	
		0.5192	ASt ₁	$2\omega_{f1} + 2\omega_{SRS}$ $2\omega_{f1} + \omega_{SRS}$	
		0,53207	ГВГ ⁵	$2\omega_{\rm fl}$	
		0,5456	St ₁	$2\omega_{\rm fl} - \omega_{\rm SRS}$	
		0,5482	ASt ₁₉	$\omega_{\rm fl} + 19\omega_{\rm SRS}$	
		0,5598	St ₂	$2\omega_{\rm fl} - 2\omega_{\rm SRS}$	
		0,5625	ASI ₁₈	$\omega_{\rm fl} + 18\omega_{\rm SRS}$	
1		0,3748	513	$\omega_{\rm fl} - \omega_{\rm SRS}$	

Таблица 2 (окончание)

	Условия накачки		Нелинейно-лазерная генерация	
λ_{f} , мкм	Геометрия возбужде- ния ¹	Длина волны ² , мкм	Линия ³	Процесс ⁴
		0,5777 0,5906 0,5936 0,6073 0,6105 0,6249 0,6284 0,6437 0,6473 0,6674 0,6888 0,7116	$\begin{array}{c} ASt_{17} \\ St_4 \\ ASt_{16} \\ St_5 \\ ASt_{15} \\ St_6 \\ ASt_{14} \\ St_7 \\ ASt_{13} \\ ASt_{12} \\ ASt_{11} \\ ASt_{10} \end{array}$	$\begin{split} & \omega_{\Pi} + 17 \omega_{\text{SRS}} \\ & 2\omega_{\Pi} - 4\omega_{\text{SRS}} \\ & \omega_{\Pi} + 16\omega_{\text{SRS}} \\ & 2\omega_{\Pi} - 5\omega_{\text{SRS}} \\ & \omega_{\Pi} + 15\omega_{\text{SRS}} \\ & 2\omega_{\Pi} - 6\omega_{\text{SRS}} \\ & 2\omega_{\Pi} - 6\omega_{\text{SRS}} \\ & \omega_{\Pi} + 14\omega_{\text{SRS}} \\ & 2\omega_{\Pi} - 7\omega_{\text{SRS}} \\ & \omega_{\Pi} + 13\omega_{\text{SRS}} \\ & \omega_{\Pi} + 12\omega_{\text{SRS}} \\ & \omega_{\Pi} + 11\omega_{\text{SRS}} \\ & \omega_{\Pi} + 10\omega_{\text{SRS}} \end{split}$

¹ Система обозначений аналогична используемой в [48].

 2 Точность измерений $\pm 0{,}0002$ мкм.

³ St_i, ASt_i — стоксовы и антистоксовы линии, λ_{S-SFM} соответствует S-SFM (Self-Sum-Frequency Mixing) — каскадному параметрическому ап-конверсионному процессу, являющемуся результатом взаимодействия между вторичной нелинейно-лазерной генерацией (стоксовой или антистоксовой) и излучением накачки; например, излучение с длиной волны λ_{S-SFM} (λ_{f1} , λ_{ASt1}) = 0,3490 мкм результат взаимодействия между двумя фотонами накачки (с энергией $2\omega_{f1} = 18794$ см⁻¹) и фотоном первой антистоксовой компоненты BKP ($\omega_{f1} + \omega_{SRS} = 9862,5$ см⁻¹).

⁴ $\omega_{\text{SRS}} = 465,5 \pm 1$ см⁻¹ — энергия ВКР-промоутирующей А₁-колебательной моды кристалла.

⁵ ГВГ при отсутствии фазового синхронизма.

⁶ Интенсивность процесса самоудвоения частоты накачки при отсутствии фазового синхронизма настолько велика в условиях эксперимента, что она способствует возникновению компонент многоволновой каскадной генерации ВКР и параметрического четырехволнового смешения в спектральной области ГВГ. (Следует отметить, что наблюдаемые линии в области излучения второй гармоники могут являться результатом процессов параметрического суммирования частоты накачки и ее стоксовых и антистоксовых компонент.) Для волны, распространяющейся строго вдоль оптической оси кристалла (с-оси) плоскость поляризации вращается из-за оптической активности α-кварца (см. табл. 1). В наших экспериментах, благодаря использованию сфокусированного пучка накачки, линейные доминанты двойного лучепреломления устранялись. Здесь стоит отметить работу [49], авторы которой не обнаружили влияния оптической активности на пороговую интенсивность накачки ВКР-генерации в α-кварце при температурах ниже 70 К.

⁷ ГТГ — генерация третьей гармоники при отсутствии фазового синхронизма.

ния частоты ее компонент, которые могут приводить как к ГВГ и ГТГ (генерации третьей гармоники), так и многоволновым каскадным лазерным эффектам в темно-синей и зеленой областях спектра (см. рис. 6–8), что может увеличить интерес к данному материалу. Эти эффекты не являются эксклюзивными для α -кварца [50], они также наблюдались в целом ряде органических и неорганических нецентросимметричных кристаллах, таких как β-LaBGeO₅, β'-Gd₂(MoO₄)₃, Ca₄GdO(BO₃)₃ [51], β-BaB₂O₄ [52], C₁₆H₁₅N₃O₄ (MNBA) [53], BiB₃O₆ [54], C₁₅H₁₉N₃O₂ (AANP) [55], LiGeBO₄ [56], Y(HCOO)₃ × 2H₂O [57], CsLiMoO₄ и CsLiMoO₄ × 1/3H₂O [58], Li₂SO₄ × H₂O [59], Li₂B₄O₇ [60], PbB₄O₇ [61], LaBO₂MoO₄ [62]), а также в NH₄H₂PO₄ (ADP) и ND₄D₂PO₄ (DADP) [46].

Особого внимания заслуживают результаты, свидетельствующие о том, что компоненты ВКР и параметрической антистоксовой генерации, обусловленные $\chi^{(3)}$ - и



Рис. 4. Фрагменты спектра генерации ВКР и четырехволнового параметрического взаимодействия α-кварца, записанные при комнатной температуре для геометрии возбуждения $\mathbf{e}_1(\mathbf{e}_2, \mathbf{e}_2)\mathbf{e}_1$ при пикосекундной лазерной накачке с длиной волны $\lambda_{f1} = 1,06415$ мкм. Длины волн всех линий даны в микрометрах (линия накачки отмечена звездочкой), а их интенсивности приведены без коррекции, учитывающей различную спектральную чувствительность фотосенсоров Si-CCD (фрагмент 1) и InGaAs-CCD (фрагмент 2) используемого спектрометрического многоканального анализатора CSMA. Энергетические зазоры между линиями $\chi^{(3)}$ -генерации (показаны горизонтальными квадратными скобками) равны энергии ВКР-активной колебательной моды ($\omega_{SRS} = 465,5$ см⁻¹) кристалла.



Рис. 5. Спектр генерации ВКР и четырехволнового параметрического взаимодействия α -кварца, записанный при комнатной температуре для геометрии возбуждения $\mathbf{e}_1(\mathbf{e}_2, \mathbf{e}_2)\mathbf{e}_1$ при пикосекундной лазерной накачке с длиной волны $\lambda_{f2} = 0,53207$ мкм с использованием в качестве детектора Si-CCD-фотосенсора. Обозначения аналогичны обозначениям рис. 4.

 $\chi^{(2)}$ -нелинейно-лазерными процессами в нецентросимметричных кристаллах, излучаются в достаточно малый телесный угол, т.е. почти коллинеарно, что, как правило, находится в противоречии с необходимостью выполнения условия фазового синхронизма, определяемого показателями преломления и их дисперсией. Эти обнаруженные эффекты, вероятно, могут быть объяснены генерацией компонент или ГВГ на длине когерентности конкретного процесса под действием сильной волны накачки. Наше наблюдение достаточно эффективного процесса ГВГ в α -кварце (когда условия фазового синхронизма заведомо не выполняются) подтверждает эту интерпретацию. Альтернативным (более спекулятивным) объяснением наблюдаемых эффектов может быть зависимость показателя преломления от интенсивности накачки (вследствие высокочастотного эффекта Керра), которая может приводить к самоорганизации условий фазового синхронизма.

Надеемся, что уже накопленные экспериментальные знания являются достаточной основой для разработки реалистичной теоретической модели этих интересных нелинейно-лазерных эффектов, которые обещают новые возможности для практических приложений. Следует отметить, что первые шаги в объяснении данных эффектов были сделаны при изучении параметрической антистоксовой ВКР-генерации в твердом водороде, а также в экспериментах по получению широкополосного когерентного излучения в кристалле PbWO₄ [63].

4. Коэффициент усиления вынужденного комбинационного рассеяния

В наших экспериментах процесс ВКР-генерации осуществлялся в строго стационарных (steady-state (ss)) условиях, поскольку длительности используемых лазерных импульсов накачки составляли $\tau_{p1} \approx 100$ пс и $\tau_{p2} \approx 80$ пс, что существенно больше времени фононной релаксации $T_2 = (\pi \Delta v_R)^{-1} \approx 1.6$ пс, где $\Delta v_R \approx 6.7$ см⁻¹



Рис. 6. Фрагменты спектра генерации ВКР и четырехволнового параметрического взаимодействия α-кварца, записанные при комнатной температуре для геометрии возбуждения $\mathbf{e}_2(\mathbf{e}_1, \mathbf{e}_1)\mathbf{e}_2$ при пикосекундной лазерной накачке с длиной волны $\lambda_{fl} = 1,06415$ мкм с использованием фотосенсоров Si-CCD (фрагмент 1) и InGaAs-CCD (фрагмент 2) (см. также табл. 2). Энергетические зазоры между компонентами $\chi^{(3)}$ -генерации и каскадного $\chi^{(3)} \leftrightarrow \chi^{(2)}$ -лазинга равны энергии ВКР-активной колебательной моды ($\omega_{SRS} = 465,5 \text{ см}^{-1}$) кристалла. Обозначения аналогичны обозначениям рис. 4.



Рис. 7. Спектр генерации ВКР и четырехволнового параметрического взаимодействия α -кварца, записанный при комнатной температуре для геометрии возбуждения $\mathbf{e}_3(\mathbf{e}_2, \mathbf{e}_2)\mathbf{e}_3$ при пикосекундной лазерной накачке с длиной волны $\lambda_{12} = 0,53207$ мкм с использованием в качестве детектора Si-CCD-фотосенсора. Обозначения аналогичны обозначениям рис. 4 и 5.



Рис. 8. Коротковолновые фрагменты спектров генерации ВКР и четырехволнового параметрического взаимодействия α -кварца, записанные при комнатной температуре при пикосекундной лазерной накачке с длиной волны $\lambda_{f1} = 1,06415$ мкм с использованием в качестве детектора Si-CCD-фотосенсора (см. текст и табл. 2) для геометрий возбуждения: (а) $\mathbf{e}_1(\mathbf{e}_2, \mathbf{e}_2)\mathbf{e}_1$, (б) $\mathbf{e}_2(\mathbf{e}_1, \mathbf{e}_1)\mathbf{e}_2$ и (в) $\mathbf{e}_3(\mathbf{e}_2, \mathbf{e}_2)\mathbf{e}_3$. Спектры регистрировались в специальных экспериментальных условиях (см. текст). Энергетические зазоры между компонентами $\chi^{(3)}$ -генерации и каскадного $\chi^{(3)} \leftrightarrow \chi^{(2)}$ -лазинга равны энергии ВКР-активной колебательной моды ($\omega_{SRS} = 465,5 \text{ см}^{-1}$) кристалла. Обозначения аналогичны обозначения ризм. 4 и 5.



Рис. 9. Фрагмент спектра спонтанного комбинационного рассеяния (A₁-мода) в α-кварце, записанный при комнатной температуре (см., например, [45, 48]). Частоты КР-линий приведены в единицах [см⁻¹]. На вставке показаны полносимметричные (stretching) колебания кремниевого тетраэдра [SiO4] кристалла α-кварца.

(рис. 9, см. также табл. 1) колебательного ВКР-перехода кристалла ($\omega_{\text{SRS}} = 465,5 \text{ см}^{-1}$). Поэтому мы смогли грубо оценить значение коэффициента усиления для первой стоксовой компоненты ВКР g_{ssR}^{St1} изучаемого кристалла на длине волны $\lambda_{St1} = 1,1196$ мкм для геометрии возбуждения $e_1(e_2, e_2)e_1$. Это было сделано достаточно проверенным методом, основанным на хорошо известном соотношении [64] $g_{ssR}^{St1} I_p^{thr} l_{SRS} \approx 30$ и сопоставлении "пороговой" интенсивности накачки $I_{\rm p}^{\rm thr}$ четко измеряемого сигнала первой стоксовой компоненты ВКР для α-кварца с пороговой интенсивностью накачки для эталонного кристалла PbWO₄ с известным коэффициентом усиления на длине волны $\lambda_{St1} =$ = 1,1770 мкм [65]. По нашим измерениям пороговая интенсивность накачки для вольфрамата свинца была примерно в 15 раз меньше, чем для α-кварца, из этого следует, что искомое значение коэффициента усиления g_{ssR}^{St1} для α -кварца составляет не менее 0,2 см ГВт⁻¹.

5. ВКР-промоутирующая колебательная мода α-кварца

В примитивной тригональной ячейке α-кварца, которая содержит 9 атомов, ионы Si⁴⁺ находятся в позициях C₂, а ионы О²⁻ — в позициях С₁, что дает суммарное число колебательных степеней свободы 3NZ = 27, распределенных в $\Gamma_{27} = 4A_1 + 5A_2 + 9E$ неприводимых представлениях [66]. Они соответствуют двум акустическим колебательным ветвям с симметрией А₂ + Е и 16-ти оптическим колебательным модам с симметрией $4A_1 + 4A_2 + 8E$, при этом A_1 соответствует КР-активным модам, А₂ — ИК-активным модам, а Е — модам, являющимся одновременно ИК- и КР-активными. Значения измеренных интервалов между всеми зарегистрированными при комнатной температуре многочисленными стоксовыми и антистоксовыми спектральными линиями для обеих используемых в эксперименте длин волн накачки, λ_{f1} и λ_{f2} , а также между линиями, являющимися результатом процессов самопреобразования частоты (удвоение и утроение частоты, каскадная генерация, параметрическое смешение при накачке с длиной волны $\lambda_{f1} = 1,06415$ мкм), для кристаллов α -кварца с высокой точностью оказались равными $\omega_{SRS} = 465,5$ см⁻¹ (см. рис. 4–8). В соответствии с отмеченными выше многочисленными обстоятельными публикациями (см., например, [9, 13, 15, 45, 48]) ВКРпромоутирующая колебательная мода α -кварца обусловлена полностью симметричными внутренними A₁колебаниями его кремниевых тетраэдров [SiO₄] (см. рис. 9).

6. Заключение

Фундаментальные исследования ВКР в кристаллических материалах, проведенные в последнее десятилетие, свидетельствуют о том, что нелинейно-лазерные каскадные процессы преобразования частоты дают многообещающие возможности для обогащения арсенала эффективных источников когерентного излучения для современной лазерной физики. нелинейной оптики и оптических технологий. Результаты многочисленных экспериментов (см., например, [46, 56, 62, 63, 67, 68]), осуществленных в этой привлекательной области исследований, свидетельствуют о том, что у каждого ВКР-активного кристалла (как с центром, так и без центра симметрии) выявляются новые ценные свойства, происходящих в нем нелинейнолазерных процессов. В частности, есть основания надеяться, что обнаруженные в кристаллах многокомпонентные гребенки стоксовых и антистоксовых частот могут расширить экспериментальные возможности лазерных исследований по формированию различных фемтосекундных волновых форм. Мы ожидаем, что αкварц в связи с открытием в нем новых генерационных свойств еще более упрочит свои позиции в ряду наиболее часто используемых в науке и технике кристаллов.

Здесь важно отметить, что в основе всех обнаруженных нами новых проявлений нелинейно-лазерных процессов в α -кварце лежит открытое в этом же кристалле 80 лет назад Г. Ландсбергом и Л. Мандельштамом явление комбинационного рассеяния света [7]. Отмечая это событие в науке, мы сочли возможным посвятить нашу статью 80-летию этого великого открытия. Хочется здесь также выразить разделяемое большинством ученых сожаление, что Г. Ландсберг и Л. Мандельштам не получили Нобелевскую премию за это действительно выдающееся открытие [69, 70]. Как выяснилось после опубликования архивов Нобелевского комитета, это было ошибкой [71, 72]. Спустя 80 лет выдающееся значение этого открытия стало более очевидным.

Благодарности. А.А.К. благодарен фонду Александра фон Гумбольдта за премию "Festkörperphysik" (физика твердого тела), позволившую ему провести эксперименты по ВКР в Институте оптики и атомной физики Технического университета Берлина, а также выражает признательность И.Л. Фабелинскому за многочисленные беседы об истории открытия рассеяния света в α -кварце и о пионерских работах Г. Ландсберга и Л. Мандельштама. Авторы считают своим долгом отметить, что прогресс в работе был достигнут благодаря тесному сотрудничеству с Объединенной открытой лабораторией "Лазерные кристаллы и прецизионные лазерные системы". Авторы благодарят К. Шарферонт за помощь в проведении спектральных измерений и М. Мюльберга за предоставление образцов α-кварца для экспериментов. Работа частично поддержана РФФИ, программой президиума РАН "Фемтосекундная физика и новые оптические материалы", а также Университетом Кёльна и Техническим университетом Берлина.

Список литературы

- 1. Arago F Mém. Classe Sci. Math. Phys. Inst. (1) 115 (1811)
- 2. Fresnel A Ann. Chim. Phys. 28 147 (1825)
- 3. Brewster D Philos. Trans. R. Soc. London 105 60 (1815)
- 4. Brewster D Trans. R. Soc. Edinb. 8 281, 369 (1818)
- Röntgen W C Wied. Ann. 18 213 (1883); Kundt A Wied. Ann. 18 228 (1883); Röntgen W C Wied. Ann. 18 534 (1883); 19 319 (1883)
- 6. Pockels F Abhandl Ges. Wiss. Göttingen Math. Phiz. Kl. 39 1 (1894)
- Landsberg G, Mandelstam L Naturwissenschaften 16 557 (1928); Z. Phys. 50 769 (1928)
- Raman C V Ind. J. Phys. 2 387 (1928); Raman C V, Krishnan K S Ind. J. Phys. 2 399 (1928); Krishnan K S Nature 122 477 (1928)
- Rao I R Ind. J. Phys. 3 123 (1928); Landsberg G, Leontovich M Z. Phys. 53 439 (1929); Landsberg G, Wulfsohn K Z. Phys. 58 95 (1929); Krishnan K S Ind. J. Phys. 4 131 (1929); Gross E, Romanova M Z. Phys. 55 744 (1929); Kujumzelis Th G Z. Phys. 100 221 (1936); Saksena B D Proc. Ind. Acad. Sci. A 16 270 (1942); Krishnan R S Nature 155 452 (1945); Krishnamurti D Proc. Ind. Acad. Sci. A 47 276 (1958)
- 10. Franken P A et al. Phys. Rev. Lett. 7 118 (1961)
- Charra F, Gurzadyan G G, in *High Frequency Properties of Dielectric Crystals: Nonlinear Dielectric Susceptibilities* (Landolt-Börnstein, New Series, Group III, Vol. 30b, Ed. D F Nelson) (Berlin: Springer, 2000) p. 44
- 12. Roberts D A IEEE J. Quantum Electron. 28 2057 (1992)
- Tannenwald P E, Thaxter J B Science 154 1319 (1966); Tannenwald P, Weinberg D IEEE J. Quantum Electron. 3 334 (1967)
- Chiao R Y, Townes C H, Stoicheff B P Phys. Rev. Lett. 12 592 (1964); Кривохижа C В и др. Письма в ЖЭТФ 3 378 (1966) [Krivokhizha S V et al. JETP Lett. 3 245 (1966)]
- Shapiro S M, Axe J D *Phys. Rev. B* 6 2420 (1972); Striefler M E, Barsch G R *Phys. Rev. B* 12 4553 (1975); Grimsditch M H et al. *Phys. Rev. B* 15 5869 (1977); Gale G M, Laubereau A *Opt. Commun.* 44 273 (1983)
- Biraud-Laval S, Chartier G Phys. Lett. A 30 177 (1969); Biraud-Laval S et al. Phys. Rev. B 13 1797 (1976)
- 17. Wilke K Th, Bohm J *Kristallzüchtung* (Berlin: VEB Deutscher Verlag der Wissenschaften, 1988) p. 1046 ff. and references therein
- Schafhäutl K E Bull. Königl. Akad. Wiss. (20) 501 (1845); Gelehrte Anzeigen Bayer. Akad. Wiss. (72) (10. April 1845)
- 19. Bragg W H, Gibbs R E Proc. R. Soc. London A 109 405 (1925)
- 20. de Vries A Nature 181 1193 (1958)
- 21. Donnay J D H, Le Page Y Acta Cryst. A 34 584 (1978)
- IEEE Standard on Piezoelectricity, an American National Standard, Std 176-1987 (New York: IEEE Standards Board, American National Standards Institute, 1988)
- 23. Kern A, Eysel W Z. Kristallogr. 198 177 (1992)
- 24. Batuecas T *Nature* **159** 705 (1947)
- Chase M W (Jr.) (Ed.) NIST-JANAF Thermochemical Tables 4th ed. (Gaithersburg: National Institute of Standard and Technology, 1998)
- 26. Mackenzie J D J. Am. Ceram. Soc. 43 615 (1960)
- 27. Haussühl S Kristallphysik (Weinheim: Physik-Verlag, Verlag Chemie, 1983)
- Dmitriev V G, Gurzadyan G G, Nikogosyan D N Handbook of Nonlinear Optical Crystals 2nd ed. (Berlin: Springer, 1997)
- 29. Tan G L et al. *Phys. Rev. B* 72 205117 (2005)
- 30. Draggoo V et al. IEEE J. Quantum Electron. 8 54 (1972)
- Frondel C The System of Mineralogy Vol. III Silica Minerals (New York: Wiley, 1962) p. 129

- Кизель В А, Бурков В И Гиротропия кристаллов (М.: Наука, 1980)
- 33. Adair R, Chase L L, Payne S A Phys. Rev. B 39 3337 (1989)
- 34. Crane G R, Bergman J G J. Chem. Phys. 64 27 (1976)
- 35. Bohatý L Z. Kristallogr. 161 299 (1982)
- 36. Narasimhamurty T S J. Opt. Soc. Am. 59 682 (1969)
- 37. Fontanella J, Andeen C, Schuele D J. Appl. Phys. 45 2852 (1974)
- 38. Barron T H K et al. J. Phys. C: Solid State Phys. 15 4311 (1982)
- Spitzer F "Die Bestimmung der piezoelektrischen Moduln einiger isomorpher Kristalle", Dissertation (Göttingen: Univ. Göttingen, 1938)
- Bhalla A S, Cook W R, Liu S T, in Low Frequency Properties of Dielectric Crystals. Piezoelectric, Pyroelectric, and Related Constants (Landolt-Börnstein, New Series, Group III, Vol. 29b, Ed. D F Nelson) (Berlin: Springer, 1993) p. 141
- James B J, in Proc. of the 42nd Annual Symp. on Frequency Control (New York: IEEE, 1988) p. 146
- Охотин А С и др. Теплопроводность твердых тел (Под ред. А С Охотина) (М.: Энергоатомиздат, 1984); Beasley J D Appl. Opt. 33 1000 (1994)
- Every A G, McCurdy A K, in Low Frequency Properties of Dielectric Crystals. Second and Higher Order Elastic Constants (Landolt-Börnstein, New Series, Group III, Vol. 29a, Ed. D F Nelson) (Berlin: Springer, 1992) p. 148
- 3убов В Г, Осипова Л П Кристаллография 6 418 (1961) [Zubov V G, Osipova L P Sov. Phys. Crystallogr. 6 330 (1961)]; Tannenwald P E J. Appl. Phys. 38 4788 (1967); Pine A S, Tannenwald P E Phys. Rev. 178 1424 (1969); Harker Y D, She C Y, Edwards D F Appl. Phys. Lett. 15 272 (1969); Ichikawa S et al. J. Raman Spectrosc. 34 135 (2003)
- Scott J F *IEEE J. Quantum Electron.* **3** 693 (1967); Fabelinskii I L, Starunov V S *Appl. Opt.* **6** 1793 (1967) and references therein; Арефьев И М и др. *Письма ЖЭТФ* **8** 142 (1968) [Aref ev I M et al. *JETP Lett.* **8** 84 (1968)]; Pine A S, Dresselhaus G *Phys. Rev.* **188** 1489 (1969); Klein M, Maier M *Opt. Commun.* **44** 411 (1983)
- 46. Kaminskii A A et al. Laser Phys. Lett. 5 532 (2008)
- Каминский A A ЖЭТФ 51 49 (1966) [Kaminskii A A Sov. Phys. JETP 24 33 (1967)]; Kaminskii A A Laser Crystals: Their Physics and Properties (Berlin: Springer-Verlag, 1981, 2nd ed. — 1990)
- Damen T C, Porto S P S, Tell B *Phys. Rev.* 142 570 (1966); Scott J F, Porto S P S *Phys. Rev.* 161 903 (1967)
- 49. Klein M, Maier M, Prettl W Phys. Rev. B 28 6008 (1983)
- 50. Kaminskii A A, Bohatý L, Becker P Ferroelectrics 352 42 (2007)
- 51. Kaminskii A A et al. J. Raman Spectrosc. 29 645 (1998)
- 52. Каминский A A и др. Докл. *PAH* **367** 464 (1999) [Kaminskii A A et al. *Dokl. Phys.* **44** 495 (1999)]
- 53. Kaminskii A A, Hulliger J, Eichler H J Phys. Status Solidi A 186 R19 (2001)
- 54. Kaminskii A A et al. Opt. Commun. 206 179 (2002)
- 55. Kaminskii A A et al. Jpn. J. Appl. Phys. 41 L603 (2002)
- 56. Kaminskii A A et al. Laser. Phys. 13 1385 (2003)
- 57. Kaminskii A A et al. Phys. Status Solidi A 201 3200 (2004)
- 58. Becker P et al. Phys. Status Solidi A 202 2543 (2005)
- 59. Bohatý L et al. Laser Phys. 15 1509 (2005)
- 60. Kaminskii A A et al. Laser Phys. Lett. 3 519 (2006)
- 61. Kaminskii A A et al. Laser Phys. Lett. 4 660 (2007)
- 62. Becker P et al. Laser Phys. Lett. 5 114 (2008)
- 63. Hakuta K et al. *Phys. Rev. Lett.* **79** 209 (1977); Zhi M, Sokolov A V *Opt. Lett.* **32** 2251 (2007)
- Shen Y R *The Principles of Nonlinear Optics* (New York: J. Wiley, 1984)
- 65. Kaminskii A A et al. Opt. Commun. 183 277 (2000)
- Saksena B D Proc. Ind. Acad. Sci. A 12 93 (1940); Rousseau D L, Bauman R P, Porto S P S J. Raman Spectrosc. 10 253 (1981)
- 67. Kaminskii A A et al. Laser Phys. Lett. 4 668 (2007)
- 68. Kaminskii A A et al. Laser Phys. Lett. 5 304 (2008)
- 69. Фабелинский И Л УФН 168 1341 (1998) [Fabelinskii I L Phys. Usp. 41 1229 (1998)]

- Фабелинский И Л УФН 173 1137 (2003) [Fabelinskii I L Phys. Usp. 46 1105 (2003)]
- Гинзбург В Л Вести. РАН 68 51 (1998) [Ginzburg V L Herald Russ. Acad. Sci. 68 56 (1998)]
- Гинзбург В Л, Фабелинский И Л Вести. PAH 73 215 (2003) [Ginzburg V L, Fabelinskii I L Herald Russ. Acad. Sci. 73 152 (2003)]

New nonlinear-laser effects in α -quartz: more than two octaves Stokes and anti-Stokes comb generation and cascaded $\chi^{(3)} \leftrightarrow \chi^{(2)}$ lasing effects with involved second and third harmonic generation

A.A. Kaminskii

A.V. Shubnikov Institute of Crystallography, Russian Academy of Sciences, Leninskii prosp. 59, 119333 Moscow, Russian Federation
Tel. (7-499) 135-22 10 (6310). Fax (7-499) 135-10 11. E-mail: kaminalex@mail.ru
L. Bohatý, P. Becker
Institut für Kristallographie, Universität zu Köln,
Zulpicherstr. 49b, D-50674 Köln, Germany
Tel. (+49) 221-470-3154, (+49) 221-470-6104
Fax (+49) 221-470-4963, (+49) 221-470-4963
E-mail: ladislav.bohaty@uni-koeln.de, petra.becker@uni-koeln.de
H.J. Eichler, H. Rhee
Institut für Optik and Atomare Physik, Technische Universität Berlin,
Hardenbergstr. 36, D-10623 Berlin, Germany

Tel. (+49) 30-314-22468, (+49) 30-314-24701. *Fax* (+49) 30-314-21079 *E-mail: eichler@physik.tu-berlin.de, hanjo@physik.tu-berlin.de*

Simultaneously $\chi^{(2)}$ - and $\chi^{(3)}$ -active crystals offer a wide range of possibilities for the generation of new coherent wavelengths of light. Frequency conversion processes such as stimulated Raman scattering, second and third harmonic generation or parametric sum and difference frequency mixing can be combined effectively in the same noncentrosymmetric crystal in cascaded $\chi^{(3)} \leftrightarrow \chi^{(2)}$ lasing processes. In this work we present several new manifestations of these effects in α -quartz (SiO₂), the oldest nonlinear-laser crystal. Among them are more than two octaves Raman-induced 45 wavelengths comb generation (from 0.3692 µm to 1.5142 µm), and self-frequency conversion generation via many-steps cascaded $\chi^{(3)} \leftrightarrow \chi^{(2)}$ processes in the wavelength regions of the second and the third harmonic of one-micron picosecond pumping, including participation of Stokes and anti-Stokes components.

PACS numbers: 42.62.-b, 42.65.-k, 42.70.Ce

DOI: 10.3367/UFNr.0178.200809c.0935

Bibliography — 72 references

Uspekhi Fizicheskikh Nauk 178 (9) 935-946 (2008)

Received 29 April 2008

Physics-Uspekhi 51 (9) (2008)