Ноябрь 2026 г. *Том 196, № 11*

УСПЕХИ ФИЗИЧЕСКИХ НАУК

ИЗ ТЕКУЩЕЙ ЛИТЕРАТУРЫ

Вынужденное комбинационное рассеяние и самовоздействие ультракоротких лазерных импульсов в кристалле вольфрамата бария

И.О. Киняевский, В.И. Ковалёв

Среди широкого круга возможных практических применений вынужденного комбинационного рассеяния (ВКР) особое место занимает задача получения мощного когерентного излучения на частотах, недоступных для обычных лазеров. В связи с появлением новых и расширением возможностей традиционных применений при работе с ультракороткими световыми импульсами стала актуальной задача и их эффективного ВКР-преобразования. В ходе исследований ВКР субпикосекундных лазерных импульсов в кристалле вольфрамата бария нами обнаружены экспериментально и интерпретированы ранее считавшиеся невозможными в твёрдом теле конструктивная интерференция эффектов ВКР и фазовой самомодуляции (ФСМ), а также ориентационная керровская нелинейность с субпикосекундным временем релаксации. Показано, что благодаря такой нелинейности ФСМ, уширение спектра накачки обеспечивает мощную стоксовую затравку ВКР-взаимодействия в максимуме импульса накачки, что в итоге приводит к аномально высокой эффективности ВКР-преобразования ультракоротких импульсов (20 % на основной и 35 % на вторичной колебательной моде) в простой однопроходной схеме ВКР-взаимодействия. Поскольку обнаруженный в вольфрамате бария ориентационный нелинейный отклик является следствием неизбежных в реальных кристаллах дефектов их решётки, проявления подобного отклика следует ожидать и в других кристаллах.

Ключевые слова: кристалл вольфрамата бария, дефекты, ориентационная нелинейность, ультракороткие лазерные импульсы, вынужденное рассеяние, самовоздействие излучения

PACS numbers: 42.65.An, 42.65.Dr, 42.65.Jx, 42.65.Re, 42.70.Mp, **61.72.–y,** DOI: https://doi.org/10.3367/UFNr.2026.10.040216

Содержание

1. **Введение (1153).**
2. **Кристалл вольфрамата бария (BWO) (1154).**
3. **Оптическая схема экспериментов (1155).**
4. **Результаты экспериментов при накачке на длине волны 515 нм (1156).**
   4.1. Вынужденное комбинационное рассеяние на основной колебательной моде BWO. 4.2. Вынужденное комбинационное рассеяние на вторичной моде BWO. 4.3. Энергетическая эффективность ВКР-преобразования.
5. **Фазовая самомодуляция в BWO (1157).**
   5.1. Фазовая самомодуляция в BWO и кварце на 515 нм. 5.2. Фазовая самомодуляция в BWO на 1030 нм.
6. **Взаимное влияние нелинейных эффектов в BWO (1160).**
   6.1. Интерференция вынужденного комбинационного рассеяния и фазовая самомодуляция. 6.2. Насыщение накачки. 6.3. Самофокусировка.
7. **Заключение (1162).**

Список литературы (1163).

И.О. Киняевский (*), **В.И. Ковалёв** (**)
Физический институт им. П.Н. Лебедева РАН,
Ленинский просп. 53, 119991 Москва,
Российская Федерация
E-mail: (*) kigor@sci.lebedev.ru, (**) kovalevvi@lebedev.ru

*Статья поступила 9 июля 2025 г.,
после доработки 23 апреля 2026 г.*

1. Введение

Вынужденное комбинационное рассеяние (ВКР) лазерного излучения — открытый в 1962 г. [1] нелинейный оптический эффект, природа которого, в классической интерпретации [2], заключается в том, что при распространении в комбинационно-активной среде двухчастотного лазерного излучения, биения двух световых волн на разностной частоте раскачивают ответственные за рассеяние молекулярные колебания среды (уравнение (38) в [2]) "вынуждая" рост эффективности рассеяния. При достаточно высокой интенсивности накачки квантовая эффективность ВКР-преобразования в стационарном режиме взаимодействия может достигать $\sim 100\,\%$ [3]. Поскольку комбинационное рассеяние (КР) является неупругим, частота рассеянного излучения сдвигается относительно частоты излучения накачки, и этот сдвиг определяется частотой соответствующих КР-активных возбуждений среды. Эффект нашёл применение во мно-

© И.О. Киняевский, В.И. Ковалёв 2026

жестве научных и прикладных задач, таких как управление спектральными, временными, пространственными и энергетическими характеристиками лазерного излучения [3 – 5], расширение возможностей традиционной КР спектроскопии [6] и микроскопии [7], и др.

По мере развития лазерной техники в направлении укорочения импульсов и расширения спектра их применений, стала актуальной задача реализация эффективного ВКР ультракоротких импульсов, а именно импульсов, длительность которых t_p меньше времени релаксации КР-активных движений среды T_2. Известно, что в таком случае с уменьшением отношения t_p/T_2 эффективный коэффициент ВКР усиления падает [8 – 10]. Вследствие этого достигаемая на практике эффективность ВКР-преобразования в простой однопроходной схеме взаимодействия снижается до единиц процента [11, 12]. Компенсировать снижение эффективности ВКР за счёт увеличения интенсивности накачки обычно не удаётся из-за активации других нелинейных эффектов, таких как уширение спектра накачки из-за фазовой самомодуляции (ФСМ), кросс-модуляции и четырёхволнового смешения, нелинейного поглощения и оптического пробоя [13 – 15]. В ранних работах отмечалось, что самофокусировка (СФ) способствует снижению "порога" ВКР [16], однако существенно повысить эффективность ВКР-преобразования при СФ не получается из-за обычно сопровождающих её нелинейного роста поглощения, образования плазмы и оптического пробоя. Повысить эффективность ВКР ультракоротких лазерных импульсов за счёт увеличения длины области взаимодействия невозможно из-за дисперсии среды, приводящей к рассогласованию групповых скоростей между импульсами накачки и рассеянным импульсом [17]. Поэтому идёт активный поиск путей повышения эффективности ВКР-преобразования ультракоротких лазерных импульсов.

Наряду с подбором среды, обеспечивающей максимальный коэффициент ВКР-усиления при минимальном T_2 [18], идёт поиск способов преодоления вышеописанных проблем. Одним из перспективных способов является чирпирование короткого импульса и растягивание его длительности с помощью дисперсионных элементов до значения, большего, чем T_2 [19 – 23] (важно при этом, что при таком подходе ВКР-импульс сохраняет чирп импульса накачки и может быть сжат до его спектрально-ограниченной длительности [19]). Эффект от собственно увеличения длительности накачки таким путём, однако, оказался ограниченным поскольку "временна́я" нестационарность взаимодействия заменяется на "спектральную" [8]. Положительным же эффектом такой замены оказались открывшиеся возможности повышения (вплоть до ~ 40 %) эффективности ВКР путём использования более сложных оптических схем: ВКР генератор – усилитель [19], многопроходной ячейки [20], серии из нескольких ВКР-активных кристаллов [21] или использование внешней затравки [22, 23].

Среди множества работ по ВКР ультракоротких лазерных импульсов выделилась работа [24], в которой на длине волны 515 нм в простейшей схеме с одним проходом излучения накачки через кристалл вольфрамата бария $BaWO_4$ (BWO) была получена необычайно высокая (до 20 %) эффективность ВКР-преобразования в первую стоксовую компоненту на моде ν_1 (925 см$^{-1}$) импульсов длительностью $t_p = 0{,}3$ пс несмотря на то, что эта $t_p \ll T_2 = 6{,}6$ пс в этом кристалле. Для сравнения, в работе [18] в такой же схеме максимальная эффективность ВКР-преобразования на этой моде BWO импульсов длительностью 5,1 нс и 35 пс, т.е. при $t_p \gg T_2$, была сопоставимой по величине (25 % и 40 % соответственно). И это несмотря на в ~ 4 раза более длинный образец кристалла в [18]. В [24] отмечено, что полученная высокая эффективность ВКР на моде ν_1 BWO наблюдается в условиях значительного уширения спектра прошедшей накачки (рис. 1), величина которого согласуется с ожидаемым уширением вследствие эффекта ФСМ в этом кристалле, который обычно считается фактором, подавляющим ВКР. Ниже представлен обзор цикла исследований [24 – 27], позволивших выявить уникальные свойства BWO, ответственные за обнаруженную аномально высокую эффективность ВКР, возбуждаемого в нём ультракороткими импульсами лазерного излучения с длиной волны 515 нм.

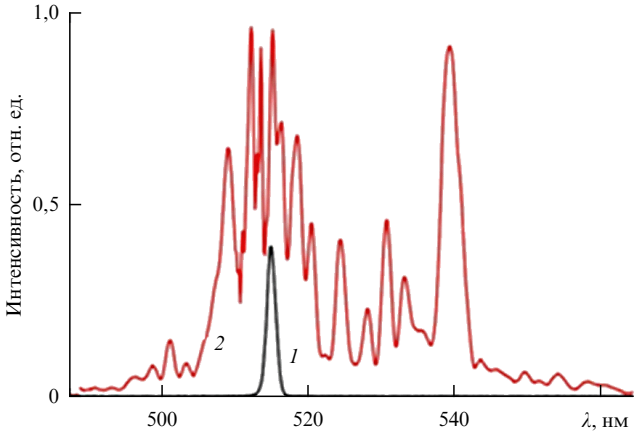


Рис. 1. Спектр на выходе кристалла BWO при энергии импульса накачки 10 нДж (*1*) и 1,8 мкДж (*2*) [24].

2. Кристалл вольфрамата бария (BWO)

Кристалл BWO, имеющий структуру шеелита, в конце 1990-х годов привлёк к себе внимание как материал, перспективный для ВКР-преобразования лазерных импульсов [28]. Использованный в серии экспериментов [24 – 27] образец BWO был выращен в Институте общей физики РАН методом Чохральского из расплава в атмосфере воздуха. Подробно методика роста описана в [29]. Измеренный КР-спектрометром Confotec 350-MR спектр спонтанного КР образца представлен на рис. 2. Измерения проводились для поляризации падающего излучения перпендикулярно и параллельно оптической c-оси кристалла, $\mathbf{E} \perp c$ и $\mathbf{E} \| c$.

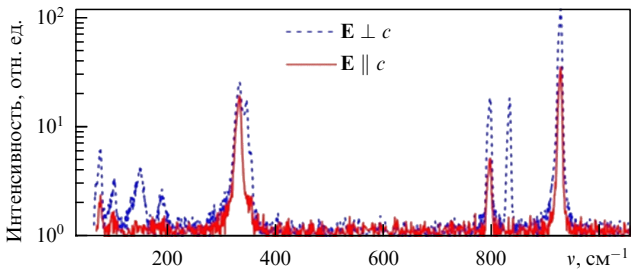


Рис. 2. Спектр спонтанного КР исследованного образца BWO при $\mathbf{E} \perp c$ и $\mathbf{E} \| c$.

Наиболее сильной КР-активной модой в BWO является мода $\nu_1(A_g)$ с частотой 925 см$^{-1}$ (см. рис. 2). Экспериментально измеренный стационарный коэффициент усиления ВКР для этой моды, g_R, измеренный при $\mathbf{E}\,||\,c$ на основной ($\lambda = 1064$ нм), второй ($\lambda = 532$ нм), и третьей ($\lambda = 355$ нм), гармониках Nd:YAG лазера составил 8,5 см ГВт$^{-1}$, 36 см ГВт$^{-1}$ и 40 см ГВт$^{-1}$, соответственно [30, 31]. По этому параметру кристалл BWO уступает лишь $Ba(NO_3)_2$ и $NaNO_3$, где g_R лишь на 20 % выше. Согласно [30] абсолютные величины стационарного g_R на моде ν_1, для $\mathbf{E}\,||\,c$ и $\mathbf{E}\perp c$ относятся как 1:0,8. Ширина линии $\Delta\nu_R$ моды ν_1 и для $\mathbf{E}\,||\,c$ и $\mathbf{E}\perp c$ составляет 1,6 см$^{-1}$ [32], что соответствует времени её релаксации, или дефазировки, $T_2 = 6{,}6$ пс, что в 4 и 1,6 раза короче, чем в $Ba(NO_3)_2$ и $NaNO_3$, соответственно [18]. Таким образом, кристалл BWO, сочетая в себе высокое значение g_R и относительно небольшое T_2 на моде ν_1, по параметру "качества" ВКР усиления, g_R/T_2, является более перспективным для реализации ВКР ультракоротких лазерных импульсов.

Наряду с пиком моды ν_1 в спектре присутствует ещё ряд пиков, наиболее интенсивные из которых — пики моды ν_2 в районе 330 см$^{-1}$ и моды ν_3 в районе 800 см$^{-1}$. Что до амплитуд и ширин соответствующих пиков, отношение которых пропорционально g_R на них [28], то при $\mathbf{E}\,||\,c$, для моды ν_2 они соответственно в 2,4 раза меньше и в 2,4 раза больше [32], а для моды ν_3, при сопоставимой ширине, амплитуда примерно в 5,5 раз меньше, чем для моды ν_1 (см. рис. 2). Амплитуда и ширина пика моды ν_2 при $\mathbf{E}\perp c$ соответственно в 4 раза меньше и в 2,7 раза больше [32] чем моды ν_1, а амплитуда пика моды ν_3 примерно в 5,5 раз меньше, чем моды ν_1, а вот их ширины примерно одинаковые (см. рис. 2). Исходя из приведённых в [32] и на рис. 2 данных оценены, следуя [28], величины g_R для трёх наиболее интенсивных мод в BWO при $\mathbf{E}\,||\,c$ и $\mathbf{E}\perp c$. Соответствующие величины, нормированные на g_R на моде ν_1 при $\mathbf{E}\,||\,c$, представлены в таблице наряду с ширинами линий соответствующих мод.

Приведённые данные показывают интересную особенность кристалла BWO, состоящую в том, что можно в широких пределах изменять g_R и $\Delta\nu_R$ (в $\sim 2{,}6$ раза и в ~ 3 раза соответственно) при повороте на 90° ориентации направления вектора поляризации относительно оптической оси образца. Это открывает возможности для исследования влияния этих параметров материала на характеристики ВКР в нём не меняя образец, и схему, и метод измерений.

К достоинствам кристалла BWO с точки зрения практических применений следует отнести его не гигроскопичность, высокие теплопроводность и твёрдость, а также широкие диапазон прозрачности, 0,26 мкм – 5 мкм [33], и запрещённая зона, $E_g = 5{,}28$ эВ [34]. Он является одноосным с зависимостью показателя преломления для обыкновенной и необыкновенной волн (n_o и n_e) от длины волны λ [29],

$$n_o^2(\lambda) = 3{,}3550 + \frac{0{,}01738}{\lambda^2 - 0{,}08176} - 0{,}0965\lambda^2$$

$$n_e^2(\lambda) = 3{,}3460 + \frac{0{,}01770}{\lambda^2 - 0{,}08197} - 0{,}0962\lambda^2, \qquad (1)$$

где λ дана в мкм. Следующие из этих данных параметры группового разбегания $\delta(\lambda) = 1/v_{\text{гр.нак.}} - 1/v_{\text{гр.ст.}}$ импульсов накачки и стокса на моде ν_1 и дисперсии групповых скоростей $k_2(\lambda)$ [35] кристалла составили $\delta(515\text{ нм}) \cong 50$ фс мм$^{-1}$, $\delta(1030\text{ нм}) \cong -0{,}1$ фс мм$^{-1}$, $k_2(515\text{ нм}) \cong 300$ фс^2 мм$^{-1}$ и $k_2(1030\text{ нм}) \cong -40$ фс^2 мм$^{-1}$. Нелинейный показатель преломления n_2 кристалла BWO измерялся в работе [36] методом Z-сканирования с применением лазерных импульсов длительностью 1 пс. Он составил $\sim 0{,}8\times10^{-15}$ см^2 Вт$^{-1}$ и $1{,}7\times10^{-15}$ см^2 Вт$^{-1}$ на длинах волн 790 нм и 395 нм, соответственно. Измеренный в работе [37] порог оптического разрушения поверхности BWO под действием импульсов длительностью 0,3 пс составил 4,2 Дж см$^{-2}$ на длине волны 515 нм и 3,6 Дж см$^{-2}$ на 1030 нм.

Таблица. Стационарные коэффициенты усиления ВКР g_{Ri} в относительных единицах и ширины линии $\Delta\nu_{Ri}$ в см$^{-1}$ для трёх мод, где $i = 1-3$ — номер моды, в BWO при $\mathbf{E}\,||\,c$ и $\mathbf{E}\perp c$

	g_{R1}	$\Delta\nu_{R1}$	g_{R2}	$\Delta\nu_{R2}$	g_{R3}	$\Delta\nu_{R3}$
$\mathbf{E}\,||\,c$	1	1,6	0,18	3,8	0,2	1,5
$\mathbf{E}\perp c$	0,8	1,6	0,07	4,4	0,16	1,5

3. Оптическая схема экспериментов

Оптическая схема экспериментов представлена на рис. 3. Источником линейно поляризованного излучения накачки служил волоконный лазер на ионах иттербия (Satsuma, Amplitude Systems, Франция), генерирующий на длине волны 1030 нм импульсы длительностью на полувысоте $t_p = 0{,}3$ пс (спектрально-ограниченный) с энергией до 10 мкДж в TEM_{00}-моде с частотой повторения 1 кГц. Во вторую гармонику его излучение преобразовывалось в кристалле BBO. Энергия в 0,3 пс импульсе на его выходе достигала 3,4 мкДж. Исследуемый образец в виде куба размером $8\times8\times8$ мм^3 вырезан так, что его оптическая c-ось направлена вдоль одного из рёбер куба. Излучение накачки распространялось перпендикулярно этой оси ($\mathbf{k}\perp c$) так, что его поляризация могла быть ориентирована либо вдоль, либо перпендикулярно ей ($\mathbf{E}||c$ и $\mathbf{E}\perp c$). Падающее излучение фокусировалось в объём образца линзой с фокусным расстоянием 3,5 см. В перетяжке диаметр пятна на полувысоте d_w оценивался как ~ 20 мкм, а длина перетяжки l_w — $\sim 0{,}23$ см. При таких d_w и l_w в условиях проведённых экспериментов плотности энергии излучения на поверхностях образца не превышали порога их разрушения, а групповое разбегание и дисперсия групповых скоростей были пренебрежимо малы. Прошедшее кристалл излучение с помощью линзы с фокусным расстоянием 10 см направлялось на систему регистрации его спектральных и энергетических характеристик. Спектрометры ASP-150FT (515 нм) и Avesta-IR-2.5 (1030 нм) использовались

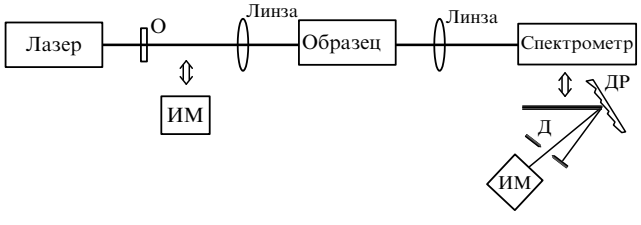


Рис. 3. Оптическая схема эксперимента. О — ослабитель, ИМ — измеритель мощности, ДР — дифракционная решётка, Д — диафрагма.

при регистрации видимого и ближнего ИК излучения, соответственно. Приходящее на них излучение ослаблялось посредством отражения от поверхности стеклянных клиньев. Энергия излучения регистрировалась с помощью измерителя мощности Ophir-3A. При измерении энергии импульса на длине волны рассеянного излучения оно отделялось от прошедшей накачки с помощью дифракционной решётки и соответствующей диафрагмы.

4. Результаты экспериментов при накачке на длине волны 515 нм

Прежде всего исследования спектров прошедшего образец BWO излучения показали, что спектральные компоненты, характерные для ВКР на его КР-активных модах, наблюдаются только в стоксовом крыле. Эволюция этого крыла с ростом энергии E_p в импульсе падающего на образец излучения накачки при $\mathbf{E}||c$ приведена на рис. 4. Антистоксовое крыло спектра в этой серии измерений было подавлено соответствующим фильтром. Явно видно появление, выход на максимум и затухание спектральных компонент на длинах волн 540 нм, 524 нм и 526 нм, соответствующих частотам КР-активных мод ~ 925 см$^{-1}$ (основная мода v_1), ~ 330 см$^{-1}$ (вторичная мода v_2) и ~ 400 см$^{-1}$ (комбинация мод v_2 и $T(E_g)$).

4.1. Вынужденное комбинационное рассеяние на основной колебательной моде BWO

В [24] основное внимание было уделено компоненте спектра в районе длины волны $\lambda \cong 540$ нм, соответствующей ВКР на самой сильной моде колебательного спектра BWO $v_1(A_g)$ с частотой ~ 925 см$^{-1}$ (см. рис. 2). Обнаружено, что в спектре прошедшего излучения измеримый пик в районе длины волны 540 нм (ВКР сигнал) появляется при $E_p \geqslant 0{,}8$ мкДж когда в области этой длины волны появляется измеримый сигнал от уширенного в стоксовую сторону излучения накачки. Амплитуда этого пика достигает максимума при $E_p \cong 1{,}7 \pm 0{,}1$ мкДж, и падает при дальнейшем увеличении E_p [24]. Если судить по соотношению амплитуд пиков накачки в области $\lambda_p = 515$ нм и ВКР сигнала на $\lambda \cong 540$ нм при $E_p \cong 1{,}7$ мкДж (см. рис. 1 и 4), то они примерно равны. Из спектра на рис. 1 в [24] определён коэффициент ВКР-преобразования K в этот пик, как отношение площади под ним к полной площади под спектром прошедшего излучения, который в максимуме составил 20 ± 3 %. Выявленные свойства ВКР сигнала являются нетипичными для классического ВКР [7, 8], где он стартует с уровня спонтанного КР — максимальное K для ультракоротких импульсов накачки обычно не превышает единиц процента и только возрастает с ростом E_p.

В [24] высказано предположение, что полученная высокая эффективность ВКР-преобразования на моде v_1 является следствием высокой мощности его затравки на стоксовой частоте, которую обеспечило ФСМ-уширение спектра импульса накачки при его распространении в образце — эффект ранее наблюдавшийся в оптическом волокне [38]. Величина экспериментально измеренного стоксового уширения $\Delta v(E_p)$ прошедшего образец излучения накачки представлена на рис. 5 точками. Видно, что, если $\Delta v(E_p)$ в представленном диапазоне E_p интерполировать прямой, то, в согласии с теорией ФСМ, её

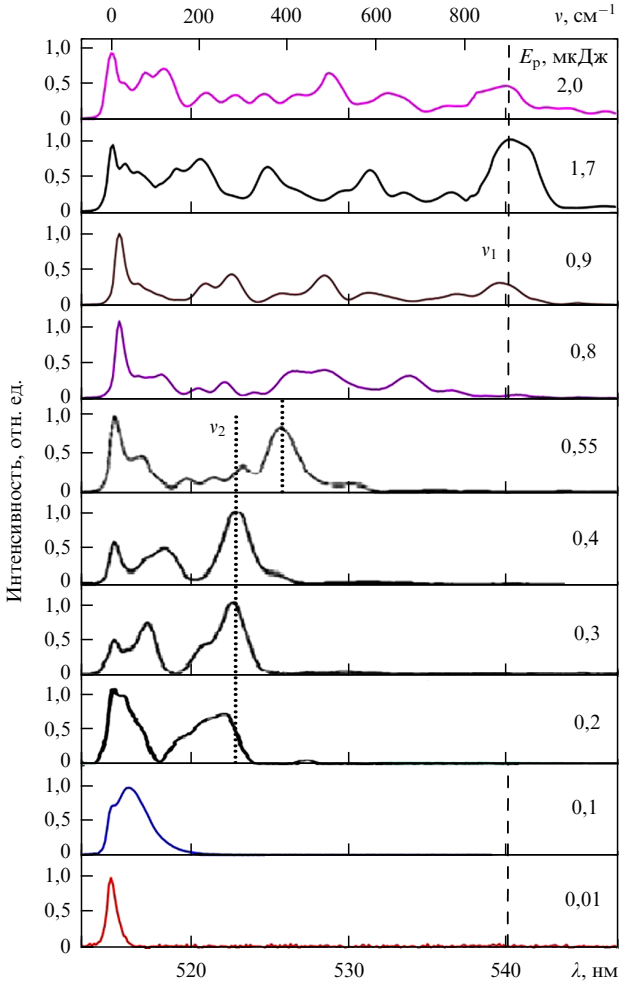


Рис. 4. Спектры прошедшего образец BWO излучения при $\lambda_p = 515$ нм, $\mathbf{E}||c$ и различных E_p.

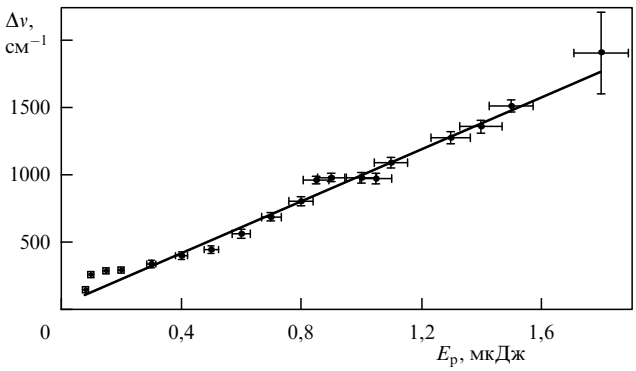


Рис. 5. Зависимость уширения спектра (Δv) в стоксовую области от энергии импульса накачки в BWO (b) [24].

можно описать формулой [39],

$$\Delta v = \frac{\Delta\omega}{2\pi c} = \frac{1{,}56\, n^2 n_2}{t_p^2\, \lambda_p^2 c}\, E_p \ [\text{см}^{-1}], \qquad (2)$$

где $n = 1{,}85$ и $n_2 = 1{,}3 \times 10^{-15}$ см^2 Вт$^{-1}$ — линейный и нелинейный показатели преломления BWO, c — скорость света в вакууме и λ_p — длина волны излучения накачки. Полученная величина n_2 близка к измеренной в BWO в [36]. Тот факт, что уширение интерполируется прямой

позволил в [24] сделать вывод, что ни самофокусировка, ни нелинейное поглощение заметного вклада в наблюдаемое не вносили.

4.2. Вынужденное комбинационное рассеяние на вторичной моде BWO

Очевидно, что ФСМ-уширение должно обеспечивать затравку и для более низкочастотных мод кристалла BWO. Поэтому, согласно предложенной в [24] модели, высокая эффективности ВКР-преобразования 0,3 пс импульса накачки в стокс может проявиться и для них. Из рисунка 4 следует, что в спектре проходящего излучения при $E_p \cong 0{,}2$ мкДж, и вплоть до 0,45 мкДж, т.е. до появления пика на $\lambda \cong 540$ нм, присутствует чёткий пик в районе $\lambda \cong 524$ нм, соответствующий ВКР на моде v_2 с частотой 330 см$^{-1}$, а в диапазоне E_p от 0,5 мкДж до 0,65 мкДж ещё и достаточно мощный пик в районе $\lambda \cong 526$ нм, соответствующий ВКР со сдвигом частоты ~ 400 см$^{-1}$, которому могло бы соответствовать рассеяние на комбинации мод v_2 и $T(E_g)$ (частота ~ 70 см$^{-1}$ [40]). Особо следует отметить, что при E_p в диапазоне от 0,2 мкДж до 0,4 мкДж амплитуда пика в районе $\lambda \cong 524$ нм даже заметно выше пика накачки в области $\lambda_p = 515$ нм, и все это имеет место быть несмотря на существенно более низкий, чем для моды v_1, коэффициент ВКР усиления g_{R2} (см. таблицу) Ранее подобные эффекты в однопроходной схеме ВКР не наблюдались.

Аналогично исследованы спектры прошедшего образец излучения при $\mathbf{E} \perp c$. Несмотря на разницу в величинах g_{Ri} и Δv_{Ri} (см. таблицу) они подобны представленным на рис. 4 с той лишь разницей, что явный пик в районе $\lambda \cong 524$ нм при $\mathbf{E} \perp c$ возникает при несколько большей (в среднем в $\sim 1{,}5$ раза) E_p. Подобие в случае моды v_1 не является большой неожиданностью так как g_{R1} отличаются лишь на 20 % (см. таблицу), подобие же для пика в районе $\lambda \cong 524$ нм явилось неожиданным поскольку g_{R2} при $\mathbf{E} \perp c$ в $\sim 2{,}6$ раза ниже, чем при $\mathbf{E}||c$ (см. таблицу). Судя по амплитудам этих пиков [28], эффективность преобразования накачки была, так же, как и при $\mathbf{E}||c$, достаточно высокой: оцененная по отношению площадей на рис. 4 величина K достигала в максимуме 70 %. Вообще же K на $\lambda \cong 524$ нм на измеримом уровне $\geqslant 5$ % появлялась при $E_p \cong 1{,}5$ мкДж и далее, так же как на моде v_1, K выходила на максимум при некоторой E_p (от 0,2 мкДж до 0,4 мкДж в разных сериях измерений) и падала при дальнейшем увеличении E_p [27]. Природа таких зависимостей рассматривается ниже в разделе 6.

4.3. Энергетическая эффективность ВКР-преобразования

Эффективность преобразования накачки в пик на $\lambda \cong 524$ нм по энергии $K_э$ измерена также калориметрически. Для этого излучение на $\lambda \cong 524$ нм в схеме, представленной на рис. 3, отделялось от прошедшей накачки с помощью дифракционной решётки с 1200 штр мм$^{-1}$ и соответствующей диафрагмы и направлялось на калориметр Ophir PD10-C. Диаметр диафрагмы выбирался таким образом, чтобы вклад прошедшей энергии накачки не превышал 2 % от E_p, а потери энергии ВКР-сигнала не превышали 10 %. Величина $K_э$ определялась как отношение измеренной таким образом энергии ВКР-сигнала к полной энергии вышедшего из кристалла излучения. В результате точность измерения $K_э$ оценивалась в ~ 12 %. Максимальная измеренная таким образом величина $K_э$ на моде v_2 при $E_p \cong 0{,}3-0{,}4$ мкДж составила ~ 35 % и 30 % ±5 % усреднённо по серии из трёх независимых измерений. Эта величина $K_э$ в ~ 2 раза ниже, чем K оценённый из спектров. Два основных обстоятельства привели к такому различию: 1) потерянное из-за подавления фильтром антистоксовое крыло прошедшего излучения и 2) разница [41] в размерах пучка накачки и ВКР сигнала приходящего на входную щель спектрометра в используемой схеме эксперимента. Так как обстоятельство 2) справедливо и при оценке $K = 20$ % на моде v_1 [24], $K_э$ на этой моде так же должна быть несколько ниже 20 %.

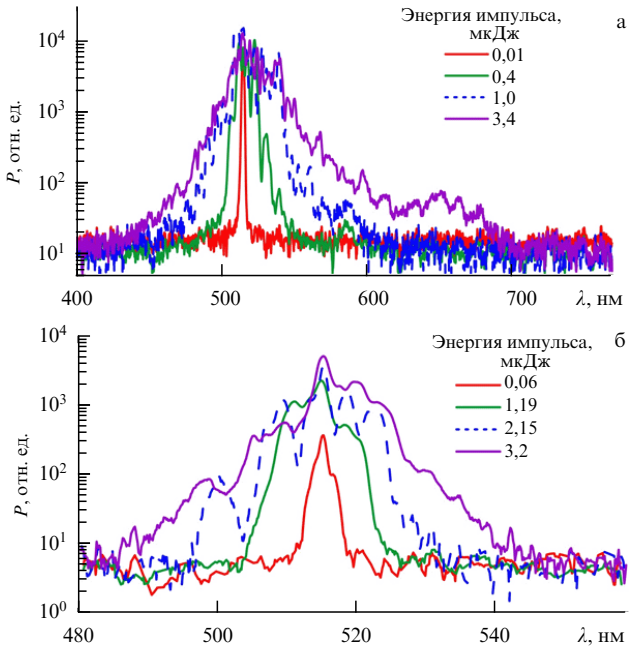


Рис. 6. Спектр излучения прошедшего образец BWO (а) и плавленого кварца (б) при различных энергиях импульса накачки [25].

Таким образом, сопоставление приведённых в разделах 4.1 и 4.2 данных по эффективности ВКР-преобразования с данными по ФСМ-уширению спектра прошедшего излучения (рис. 6) показывает, что соответствующие пики в области $\lambda \cong 540$ нм и 526 нм, равно как и пик в области $\lambda \cong 540$ нм ($\Delta v(E_p) \sim 330$ см$^{-1}$, ~ 400 см$^{-1}$ и 925 см$^{-1}$ соответственно), появляются и растут именно при таких E_p, когда амплитуда уширяемого в стоксовую сторону сигнала достигает измеримой величины в области этих длин волн. Это позволяет предположить/сделать вывод, что, как само по себе ВКР на соответствующих модах, так и его высокая эффективность являются следствием затравки на соответствующих стоксовых частотах, которую обеспечило ФСМ-уширение спектра импульса накачки при его распространении в образце.

5. Фазовая самомодуляция в BWO

Полученные выше данные противоречат устоявшемуся представлению, что в кристаллах ФСМ-уширение накачки ведёт к снижению эффективности ВКР-преобразования [13]. Естественно, встал вопрос о том, что такого необычного в ФСМ в BWO? Для ответа на этот вопрос ФСМ в BWO было проанализировано и исследовано более детально.

Прежде всего следует напомнить, что в спектрах на рис. 4 представлено уширение только в стоксовую сторону, а антистоксовое крыло подавлено фильтром. Спектр, полученный в отсутствие фильтра (см. рис. 1), демонстрирует, что уширение происходит и в антистоксовую сторону, но оно заметно меньше, чем в стоксовую сторону. Причина такой асимметрии в BWO оказалась нетривиальной [25].

Известно, что фундаментальной причиной асимметрии уширенного за счёт ФСМ спектра с преобладанием стоксового крыла является немгновенность времени релаксации ответственной за ФСМ керровской нелинейности, τ_{NL} [42, 43]. В то же время обычно считается, что в прозрачных диэлектрических кристаллах керровский нелинейный отклик обусловлен ангармонизмом движения связанных электронов, время релаксации которого не превышает единиц фемтосекунд [44], т.е. в нашем случае на два порядка меньше длительности падающего импульса, t_p. Чтобы разобраться в природе наблюдаемых результатов выполнены детальные исследования уширения в BWO как в стоксовую, так и в антистоксовую строну относительно длины волны исходного излучения накачки 515 нм [24] и 1030 нм [26] в зависимости от энергии E_p падающего импульса. Для сравнения в этих же экспериментальных условиях исследовано ФСМ-уширение в "эталонном" материале, коим является плавленный кварц.

5.1. Фазовая самомодуляция в BWO и кварце на 515 нм

На рисунке 6 приведены панорамные спектры на выходе образцов (а) 8 мм BWO и (б) 10 мм плавленого кварца при различных E_p.

В BWO детектируемое уширение спектра появляется при энергии $E_p \sim 0{,}03$ мкДж. С ростом E_p уширение растёт в стоксовую и антистоксовую сторону асимметрично (рис. 6а), при энергии $E_p = 3{,}4$ мкДж достигая по уровню $\sim 0{,}2$ % от максимума длины волны ~ 700 нм в стоксовую сторону и ~ 420 нм в антистоксовую сторону. В этих же экспериментальных условиях уширение в кварце (рис. 6б), было симметричным и существенно меньшим по абсолютной величине (при $E_p = 3{,}2$ мкДж спектр по тому же уровню уширялся до ~ 540 нм в стоксовую сторону и ~ 490 нм в антистоксовую сторону).

Величина уширения $\Delta\nu(E_p)$ на уровне ~ 1 % от максимума в стоксовую и антистоксовую сторону относительно центральной длины волны $\lambda_p = 515$ нм при плавном повышении E_p приведена на рис. 7 для кварца (а) и BWO (б). Видно, что в кварце уширение и в стоксовую, и в антистоксовую сторону с точностью до ошибки измерений растёт линейно и одинаково. Прямая на этом графике представляет результат расчёта по формуле (1) при $n_2 \approx (3 \pm 0{,}5) \times 10^{-16}$ см^2 Вт$^{-1}$, соответствующей его табулированной величине [45]. Как абсолютная величина n_2, так и тот факт, что уширение в стоксовую и антистоксовую стороны одинаковое, свидетельствуют о том, что за уширение ответственен "быстрый" нелинейный отклик связанных электронов [44].

В отличие от кварца, в BWO ширина стоксового крыла растёт примерно в два раза быстрее, чем антистоксового (см. наклон прямых *1* и *2* на рис. 7б). В предположении, что разница в скоростях уширения является следствием "медленности" определяющей уширение нелинейности, величина уширения $\Delta\nu_{tr}(t)$ описывается формулой [35],

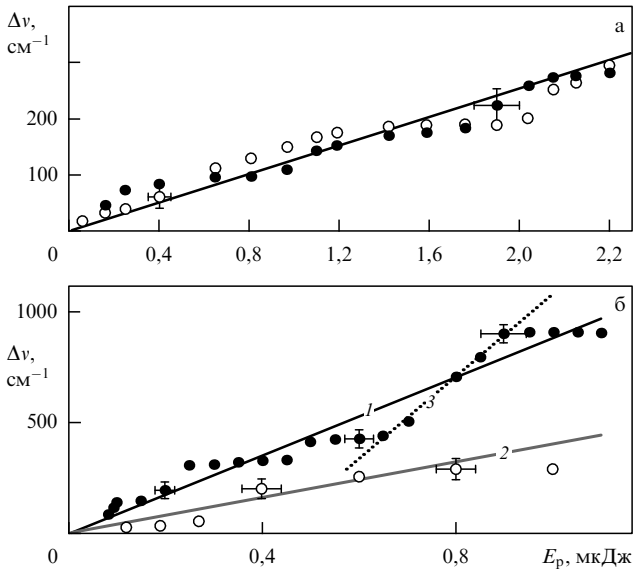


Рис. 7. Зависимость уширения спектра ($\Delta\nu$) в стоксовую (точки) и антистоксовую (кружки) сторону от энергии импульсов в плавленом кварце (а) и в BWO (б) [25].

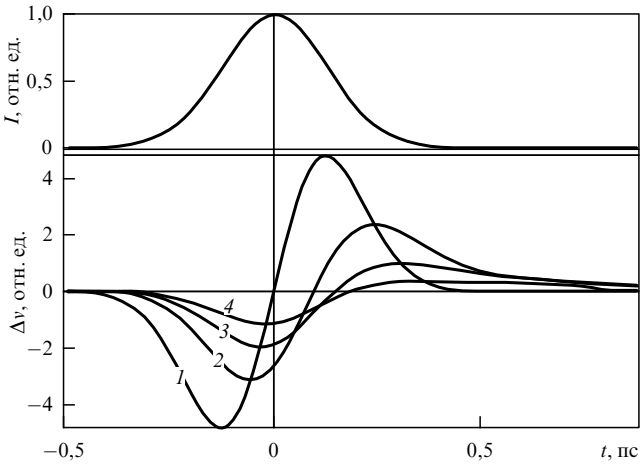


Рис. 8. Динамика интенсивности, $I(t)$, гауссового импульса длительностью 0,3 пс, и уширения его спектра из-за ФСМ согласно формуле (3) при фиксировнной E_p и $\tau_{NL} = 0$ пс (*1*), 0,15 пс (*2*), 0,35 пс (*3*), 0,7 пс (*4*) [25].

$$\Delta\nu_{tr}(t) = \frac{n^2 n_2}{t_p \tau_{NL} \lambda^2 c} E_p \int_{-\infty}^{t} \exp\left(-\left(\frac{1{,}67x}{t_p}\right)^2\right) \times \exp\left(-\left(\frac{t-x}{\tau_{NL}}\right)\right) \mathrm{d}x, \qquad (3)$$

где τ_{NL} — время релаксации ответственной за n_2 нелинейности.

На рисунке 8 приведены рассчитанные по формуле (3) зависимости $\Delta\nu_{tr}(t)$ для гауссовского импульса с длительностью импульса $t_p = 0{,}3$ пс при различных τ_{NL}. Видно, что с ростом τ_{NL}, сдвиг частоты в стоксовую ($\Delta\nu < 0$) и антистоксовую ($\Delta\nu > 0$) сторону уменьшается с разной скоростью, а положение их максимума смещается к заднему фронту импульса. При $\tau_{NL} = 0{,}35$ пс отношение максимального уширения в стоксовую и ан-

тистоксовую область составляет ~ 2 (кривая *3*), как и в эксперименте с BWO (рис. 7б), но при этом амплитуда уширения в стоксовую область оказываться в 2,5 раза меньше, чем при $\tau_{NL} = 0$ и такой же величине n_2. Соответственно, для согласования с экспериментом полученное в [24] в предположении мгновенного нелинейного отклика значение $n_2 = (1{,}3 \pm 0{,}2) \times 10^{-15}$ см^2 Вт$^{-1}$ необходимо умножить на эти 2,5. В результате величина "инерционного" нелинейного показателя преломления оказывается $n_{2i} = (3{,}2 \pm 0{,}5) \times 10^{-15}$ см^2 Вт$^{-1}$.

Ещё одной, выявленной при этом исследовании, особенностью зависимости $\Delta\nu(E_p)$ в BWO (рис. 7б), оказалась её "ступенчатая" форма, такая что, при E_p от $\sim 0{,}2$ мкДж до 0,45 мкДж, т.е. когда стоксовое крыло достигало $\Delta\nu \sim 330$ см$^{-1}$, при E_p от 0,5 мкДж до 0,65 мкДж, т.е. когда стоксовое крыло достигало $\Delta\nu \sim 400$ см$^{-1}$ и при E_p больших 0,9 мкДж, когда $\Delta\nu$ достигало ~ 925 см$^{-1}$, уширение практически не менялось в соответствующем диапазоне E_p, а в промежутках росло примерно в два раза быстрее (пунктирная линия *3*) чем усреднённый рост (прямая *1*). "Полки" при соответствующих E_p коррелируют с моментом достижения высокой эффективности ВКР преобразования на соответствующих модах кристалла BWO (см. рис. 4), что позволяет говорить о "подавлении" ФСМ при высокой эффективности ВКР преобразования. Ранее возможность подобного влияния попутного ВКР на самовоздействие лазерного излучения, а именно на сжатие пучка при самофокусировке, было предсказано теоретически и наблюдалось экспериментально в [41]. Более детально взаимное влияние эффектов ВКР и ФСМ в BWO и причина возникновения и окончания "полки" при E_p от 0,2 мкДж до 0,45 мкДж будет рассмотрено в следующем разделе. Тот же факт, что уширение в промежутке энергий от 0,6 мкДж до 0,9 мкДж, т.е., когда ВКР компоненты не наблюдались, позволил предположить, что спектр прошедшего излучения уширялся только за счёт эффекта ФСМ. Поскольку, $\Delta\nu(E_p)$ росло при этом в два раза быстрее, чем усреднённый рост (прямая *1*), то это позволило заключить, что ответственный за такой рост нелинейный показатель преломления тоже в два раза больше полученного исходя из наклона прямых *1* и *2* на рис. 7б, т.е. $n_{2tr} = 2 \times n_{2i} = (6{,}4 \pm 1{,}2) \times 10^{-15}$ см^2 Вт$^{-1}$.

5.2. Фазовая самомодуляция в BWO на 1030 нм

Для проверки предположения относительно роли ВКР на ФСМ в BWO исследовано уширение спектра в исследуемом образце на основной частоте лазерного комплекса Satsuma ($\lambda_p = 1030$ нм, $t_p = 0{,}3$ пс) в той же геометрии взаимодействия (см. рис. 3) [26]. Поскольку коэффициент усиления ВКР пропорционален квадрату частоты излучения накачки [2], в ходе этих экспериментов характерные для ВКР в BWO спектральные компоненты не наблюдались, т.е. влияние ВКР на ФСМ было подавлено.

Панорамные спектры прошедшего 8 мм образец BWO излучения, при различных энергиях падающего импульса с длиной волны 1030 нм, представлены на рис. 9а. Как и в экспериментах с $\lambda_p = 1515$ нм (рис. 6а), наблюдается несимметричное уширение спектра с преобладающим стоксовым сдвигом.

Зависимость $\Delta\nu(E_p)$ на уровне ~ 1 % от максимума в стоксовую и антистоксовую сторону относительно центральной длины волны 1030 нм представлена на рис. 9б. С точностью до разброса экспериментальных данных обе зависимости оказались линейными с углом наклона для уширения в стоксовую область в $2{,}3 \pm 0{,}3$ раза большим, чем в антистоксовую область. Эти данные позволили, используя формулу (3), оценить нелинейный показатель преломления и время его релаксации для кристалла BWO на длине волны 1030 нм. Соответствующие величины, $n_{2tr} = (6{,}0 \pm 0{,}8) \times 10^{-15}$ см^2 Вт$^{-1}$ и $\tau_{NL} = 0{,}44 \pm 0{,}06$ пс, с точностью до ошибки измерений и с учётом разности длин волн, хорошо согласуется с величинами, определёнными в эксперименте со второй гармоникой (см. раздел 5.1).

Такие величины нелинейного коэффициента преломления и времени его отклика явно не характерны для "быстрой" нелинейности, обусловленной связанными электронами в диэлектриках, где $\tau_{NLe} \leqslant 1$ фс, а $n_{2e} = \chi_e^{(3)}/(25n^2) \cong 3 \times 10^{-11}/(25n^2E_g^4)$, где $\chi_e^{(3)}$ — нелинейная восприимчивость третьего порядка [44, 46]. Для BWO, где $E_g = 5{,}28$ эВ, ожидаемое $n_{2e} \cong 4{,}8 \times \times 10^{-16}$ см^2 Вт$^{-1}$ $\ll n_{2tr}$, т.е. ответственная за наблюдаемое уширение спектра в BWO нелинейность явно имеет иную природу. В [44] показано, что параметром, позволяющим идентифицировать механизм нелинейности, является величина отношения нелинейной поляризуемо-

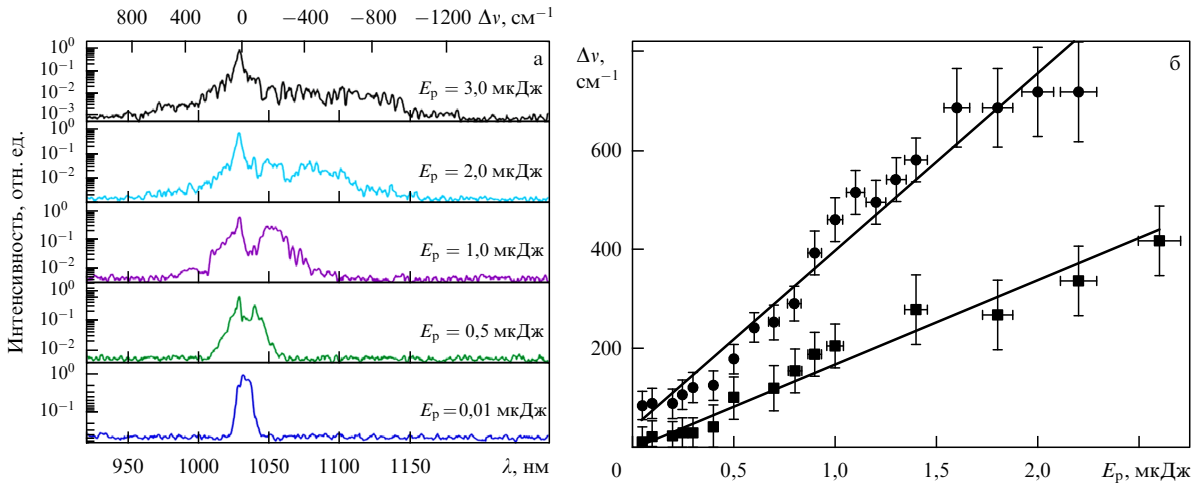


Рис. 9. (а) Спектры на выходе образца BWO при различных энергиях импульса E_p падающего излучения с длиной волны 1030 нм, и (б) зависимость уширения спектра $\Delta\nu$ в стоксовую (точки) и антистоксовую (квадраты) стороны от E_p [26].

сти третьего порядка к времени её релаксации, $\chi^{(3)}/\tau_{\rm NL}$. Для кристалла BWO величина $\chi^{(3)}/\tau_{\rm NL}$ оказалась $\sim 1{,}5$ СГС с^{-1}, что характерно для ориентационного нелинейного отклика (НО) [44]. В этой связи следует отметить, что ранее такой механизм керровской нелинейности наблюдался только в жидкостях [46], органических кристаллах [47] и в нематических жидких кристаллах [48], и считалось, что в твёрдых телах он невозможен.

Обнаруженное нами необычное для твёрдых тел свойство кристалла BWO, по-видимому, является следствием двух обстоятельств: того, что образующие его решётку катион-анионные группы Ba_2^+ и $(WO_4)_2^-$ по сути являются "большими" диполями [49] и того, что в реальных кристаллах неизбежны разного рода разупорядоченности их решётки [50]. Свидетельства того, что последнее обстоятельство может приводить к появлению новых, либо к значительному изменению, физических свойств реальных кристаллов, стали появляться в последние годы. В частности, обнаружены "неожиданно большие" изменения термодинамических [51], электрических [52, 53], магнитных [54], оптических [55] и других [56, 57] свойств реальных кристаллов именно из-за разупорядоченности их решётки. Например, в [58] показано, что именно по такой причине измеряемая оптическая анизотропия Δn в кристалле $BaTiS_3$ [55], троекратно превышает ожидаемую для идеального кристалла величину. В этом плане обнаруженный в BWO эффект представляется первым свидетельством нового нелинейно-оптического свойства кристалла из-за разупорядоченности его решётки. По аналогии с тем, как это происходит в жидкостях, например в сероуглероде или нитробензоле, [59], падающее излучение, ослабляя разупорядоченность, приводит к ориентационному нелинейному отклику.

Исходя из того, что ответственными за обнаруженную ориентационную нелинейность являются дефекты реальных кристаллов [50], подобным свойством должны обладать и другие неорганические кристаллы. И действительно, асимметрия уширения спектра накачки наблюдалась также в таком ВКР-активном кристалле как калий-гадолиниевый вольфрамат $KGd(WO_4)_2$ [60] (сами авторы [60], однако, на это внимания не обратили). Соответствующие целенаправленные исследования, несомненно, существенно расширят круг кристаллов с заметной ориентационной нелинейностью и в нем будут и нитрататы бария и натрия. Поскольку обнаруженная нелинейность способна радикально изменить характер и результат преобразования излучения методами нелинейной оптики (не только ВКР, как показал наш опыт работы с $BaWO_4$, но и других типов [46]), такие исследования будут иметь важное практическое значение.

6. Взаимное влияние нелинейных эффектов в BWO

6.1. Интерференция вынужденного комбинационного рассеяния и фазовая самомодуляция

Приведённые выше результаты показали неожиданное взаимовлияние эффектов ВКР и ФСМ при взаимодействии фемтосекундных лазерных импульсов с BWO, оказавшееся следствием нетривиальной особенности керровской нелинейности в BWO.

Исходя из представленных выше результатов и их анализа, предлагается следующий сценарий эволюции

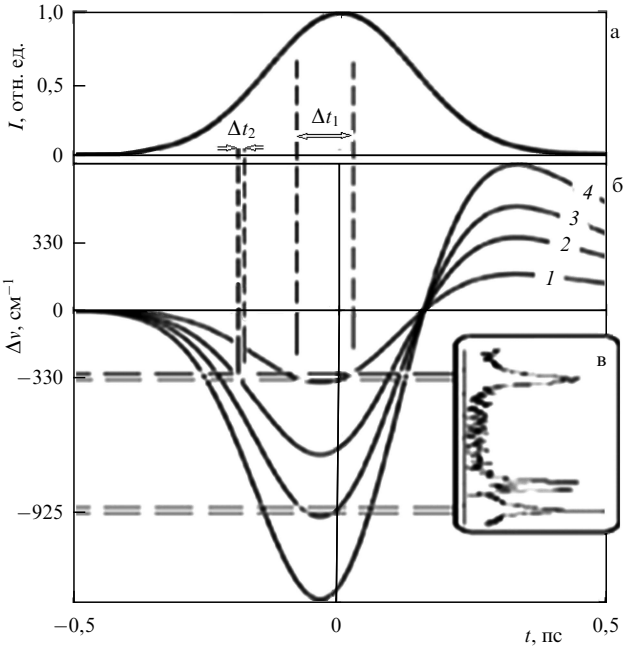


Рис. 10. Иллюстрация спектрально-временно́го согласования ФСМ и ВКР в BWO: (а) импульс накачки, (б) динамика и амплитуда ФСМ-уширения при четырёх $E_{\rm p}$ (кривые *1–4*), и (в) фрагмент спектра КР в BWO [27].

ВКР спектров в BWO. На образец падает гауссов импульс накачки длительностью по полувысоте $t_{\rm p} = 0{,}3$ пс (рис. 10, диаграмма (а)). По мере распространения в образце спектр этого импульса уширяется из-за ФСМ. Кривые *1–4* на диаграмме (б) представляют следующую из (3) динамику сдвига частоты $\Delta\nu_{\rm tr}(t, E_{\rm p})$ для четырёх $E_{\rm p}$. Вставка (в) воспроизводит фрагмент КР спектра BWO (см. рис. 2).

Прежде всего, поскольку антистоксовый сдвиг реализуется на спадающем крыле импульса накачки, ясно, почему антистоксовые компоненты ВКР в экспериментах не наблюдаются. Что же до стоксового сдвига ($\Delta\nu < 0$), то максимум $|\Delta\nu|$ достигается вблизи максимума интенсивности импульса накачки, обеспечивая благоприятные условия для реализации стоксового ВКР. Согласно (3) $\Delta\nu$ пропорционально $E_{\rm p}$. Соответственно, по мере увеличения $E_{\rm p}$, максимум $|\Delta\nu|$ достигнет ~ 330 см^{-1} (кривая *1*), т.е. частоты моды ν_2, и ~ 925 см^{-1} (кривая *3*), т.е. частоты моды ν_1, (см. спектр КР на рис. 10в) обеспечивая затравку и максимальное время её перекрытия с накачкой Δt_1 (интервал между вертикальными штриховыми линиями) для эффективного ВКР на этих модах. Назовём такие энергии накачки, $E_{\rm p2}$ и $E_{\rm p1}$, оптимальными. Когда $E_{\rm p}$ не оптимальны (кривые *2* и *4*), $|\Delta\nu|$ в их максимуме не совпадает частотами КР мод BWO, но в $\Delta\nu(t)$ всё же есть промежутки времени (Δt_2), когда $|\Delta\nu|$ с этими частотами совпадает. Эффективность ВКР в этих случаях, однако, оказывается невысокой из-за малости Δt_2 и не максимальной интенсивности накачки в эти промежутки времени. Этими обстоятельствами, в частности, можно объяснить наблюдаемый спад эффективности ВКР на модах ν_1 и ν_2 при $E_{\rm p}$ превышающих оптимальные $0{,}3 \pm 0{,}1$ мкДж и $1{,}7 \pm 0{,}1$ мкДж (см. раздел 4).

В этой связи следует отметить также, что высокая эффективность ВКР-преобразования на этих модах реализуется не в одной точке на шкале $E_{\rm p}$, как можно

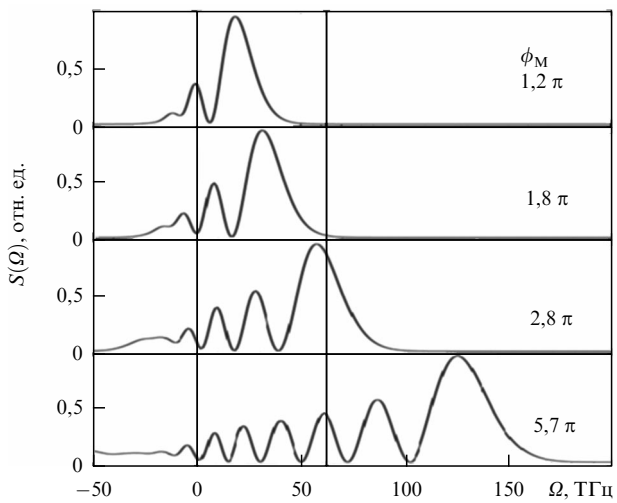


Рис. 11. Следующие из (4) формы спектра прошедшего образец BWO импульса излучения накачки с $\lambda_p = 515$ нм и длительностью по полувысоте $t_p = 0{,}3$ пс при четырёх ϕ_M. Вертикальная линия при $\Omega = 62$ ТГц соответствует $\Delta\nu = 330$ см$^{-1}$.

понять из рис. 10, а в некоторых диапазонах — от $\sim 0{,}1$ мкДж до $\sim 0{,}45$ мкДж для моды ν_2 и от ~ 1 мкДж до ~ 2 мкДж для моды ν_1 (см. [24, 27]). Причиной тому представленная на рис. 11 особенность формы спектра на "фронте" уширения — пик с амплитудой в ~ 2 и более раза превышающей все остальные пики.

Представленные на рис. 11 спектры рассчитаны по формуле [35],

$$S(\Omega) = \frac{I_p}{2\pi}\left|\int_{-\infty}^{+\infty} \exp\left[-\frac{t^2}{\tau_p^2} + i\Omega t + i\varphi_{NL}(t)\right] dt\right|^2, \qquad (4)$$

где

$$\varphi_{NL}(t) = -\frac{\omega_0 n_2 I_p L_{ef}}{c\tau_{NL}}\int_{-\infty}^{t} \exp\left[-\frac{2x^2}{\tau_p^2} - \frac{t-x}{\tau_{NL}}\right] dx,$$

$$\Omega = 2\pi c\Delta\nu = \omega_0 - \omega, \quad \omega = \frac{2\pi c}{\lambda}$$

— текущая частота излучения, $\omega_0 = 2\pi/\lambda_p$ — центральная частота падающего излучения, $I_p = E_p/s_п t_p$, $s_п$ — площадь поперечного сечения пучка, L_{ef} — эффективная длина нелинейного взаимодействия, τ_p — длительность гауссова импульса на уровне $1/e$. Предполагалось, что на входе спектрально-ограниченный гауссовский импульс, форма огибающей его при распространении не изменяется, дисперсия среды мала, и I_p есть интенсивность излучения на оси пучка.

На рисунке 11 приведены следующие из (4) формы спектра прошедшего образец импульса накачки с $\lambda_p = 515$ нм и длительностью $t_p = 0{,}3$ пс при $n_2 = 6{,}4 \times 10^{-15}$ см^2 Вт$^{-1}$ и $\tau_{NL} = 0{,}4$ пс, и при четырёх нелинейных набегах фазы $\phi_M = \max|\varphi_{NL}(t)|$ [36]. Форма спектра и его ширина при $\phi_M = 1{,}2\pi$ согласуется с экспериментально наблюдаемым спектром при $E_p = 0{,}1$ мкДж (см. рис. 4). По мере роста E_p, и соответственно ϕ_M, сдвиг частоты растёт и в какой-то момент (при $\phi_M = 1{,}8\pi$) на частоте $\Omega = 62$ ТГц, соответствующей $\Delta\nu = 330$ см$^{-1}$, появляется заметный сигнал, достаточный для затравки измеримого ВКР-сигнала на $\lambda \cong 524$ нм. С увеличением E_p и, соответственно ϕ_M, в 2,5 раза амплитуда затравки возрастает более чем на порядок и при этом $K_э$ вырастает до максимальной величины ~ 30 %. Дальнейшее повышение E_p ведёт к уменьшению амплитуды затравки и соответственно к спаду $K_э$.

В этом же диапазоне E_p наблюдается остановка роста $|\Delta\nu(E_p)|$ (рис. 7б) которую можно объяснить, по аналогии с [41], как следствие ослабления накачки из-за её перекачки в КР-активные колебания среды и в рассеянное излучение.

Важной особенностью представленных на рис. 11 спектров является то, что их максимум лежит в области максимального стоксового сдвига и это радикально отличает их от приведённых на рис. 6а экспериментально измеренных "панорамных" спектров. Причиной такого отличия является то, что при расчёте представленных на рис. 11 спектров *предполагалось однородное распределение интенсивности в пучке, тогда как реальное распределение неоднородное*. В последнем случае наблюдаемый спектр будет формироваться как сумма спектров, уширенных при различных интенсивностях в неоднородном по интенсивности пучке. Например, в случае гауссовского распределения, как в наших экспериментах, максимум интегрального спектра будет в области минимальных сдвигов частоты, как на рис. 6. Нам же, в связи с обсуждаемым эффектом затравки ВКР, как раз интересна область максимальных сдвигов частоты. Поскольку она определяется интенсивностью излучения вблизи вершины гауссовского распределения (см. рис. 8), и соответственно в интегральном спектре (рис. 6а) амплитуда спектра в этой области выглядит небольшой, его представленная на рис. 11 форма с максимумом как раз в области максимальных сдвигов частоты оказывается тем, что надо для затравки ВКР.

6.2. Насыщение накачки

Из проведённых исследований следует, что высокая эффективность ВКР-преобразования ультракороткого, 0,3 пс, лазерного импульса как на основной, так и на вторичной колебательной моде BWO является следствием высокой интенсивности затравки ВКР на соответствующей частоте. Поскольку рассеянное излучение есть то, что отобрано от накачки, его усиление перестает быть экспоненциальным. Так при ВКР вдоль направления распространения накачки усиление G_S стоксовой затравки, с интенсивностью на входе в область нелинейного взаимодействия $I_S(0) = r_0 I_p(0)$, в поле накачки с интенсивностью $I_p(0)$ описывается формулой [61],

$$G_S = \frac{I_S(L)}{r_0 I_p(0)} = \frac{(1+r_0)\exp\left[G(1+r_0)\right]}{1 + r_0\exp\left[G(1+r_0)\right]}, \qquad (5)$$

где $G = g_R I_p(0) L_{эф}$ — инкремент ВКР усиления в поле заданной накачки и $L_{эф}$ — эффективная длина взаимодействия. Определив коэффициент ВКР преобразования как $I_S(L)/I_p(0)$, из (5) получим $K_э = r_0 G_S$. Данное определение $K_э$ предполагает, что пространственное распределение и длительность импульса накачки и рассеянного излучения совпадают. Что же до $L_{эф}$, учитывая, что максимальный сдвиг частоты при ФСМ имеет место быть в конце области нелинейного взаимодействия (см. (3)), её величина для описываемого формулой (5) ВКР взаимодействия не превышает $0{,}1 l_w$. Следующие из (5) зависимости $K_э$ от r_0 и G приведены на рис. 12. Видно, в частности, что при $r_0 \cong 0{,}01$ для достижения $K_э \cong 30$ %

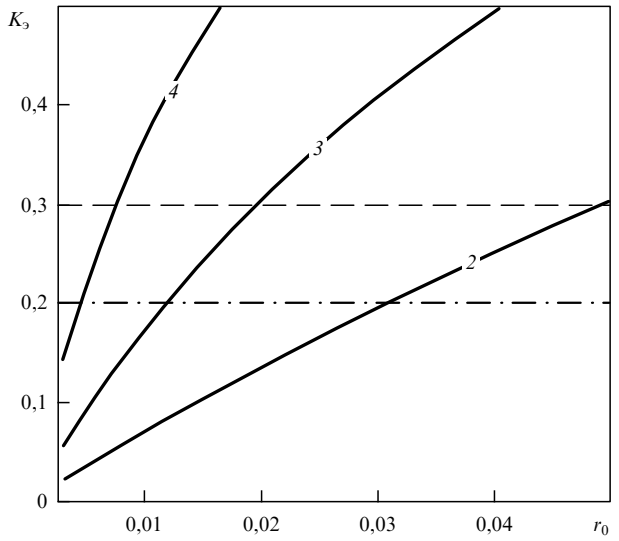


Рис. 12. Зависимость коэффициента ВКР-преобразования $K_э$ от отношения затравки к накачке r_0 при $G = 2, 3$ и 4.

потребуется $G \cong 4$. При таком G и интенсивности накачки $I_p(0) \cong 300$ ГВт см$^{-2}$, соответствующей $E_p \cong$ $\cong 0{,}3$ мкДж, при которой реализуется $K_э \cong 30\,\%$ для моды v_2 при $\mathbf{E}||c$, действующий коэффициент ВКР усиления $g_R \cong 0{,}06$ см ГВт$^{-1}$ в (5) хорошо согласуется с нестационарным коэффициентом ВКР усиления на моде v_2, $g_{R2}(t_p/T_2) \cong 0{,}07$ см ГВт$^{-1}$ (см. таблицу).

Сопоставление спектров при $\mathbf{E}||c$ и $\mathbf{E} \perp c$ свидетельствует, что, несмотря на значительную (в 2,6 раза) разницу в g_{R2} (см. таблицу), их отличие не столь велико. Три фактора играют в этом роль: 1) ширина спектра этой моды при $\mathbf{E} \perp c$ в $\sim 1{,}2$ раза больше, т.е. нестационарность меньше, чем при $\mathbf{E}||c$, 2) из-за в 1,5 раза большей E_p, и I_p соответственно, при которой появляется пик на 524 нм амплитуда затравочного сигнала выше, причём может быть и значительно из-за особенности ФСМ-уширения приведённой на рис. 12 (см. спектры при $1{,}8\pi$ и $2{,}8\pi$), и, как следствие, 3) согласно (5) требуемая для сопоставимого коэффициента преобразования величина G в два раза ниже (см. рис. 12). Что же касается характеристик ВКР сигнала на моде v_1, т.е. величины E_p при которых достигается максимум $K_э \cong 20\,\%$, они не отличаются при $\mathbf{E}||c$ и $\mathbf{E} \perp c$ поскольку g_{R1} и Δv_{R1} практически равны (см. таблицу).

6.3. Самофокусировка

Формально, исходя из полученной величины $n_2 \cong$ $\cong 6 \times 10^{-15}$ см^2 Вт$^{-1}$, при длительности импульса 0,3 пс на длинах волны излучения 515 нм и 1030 нм критическая мощность самофокусировки (СФ), $P_{cr} \cong 0{,}15\lambda^2/nn_2$ [46], в BWO достигалась бы при $E_p \cong 10$ нДж и 40 нДж. Соответственно получается, что все представленные в разделах 4 и 5 данные получены при значительно превышенной P_{cr} с сопутствующим "схлопыванием" пучка и активацией целого ряда других нелинейных эффектов, таких как нелинейное поглощение, генерация плазмы, оптический пробой и другие. Однако явных свидетельств влияния таких эффектов на полученные зависимости как ФСМ-уширения, так и ВКР-преобразования не обнаружено. И это при том, что визуально наблюдалось характерное для филаментации свечение в объёме образца. Причина

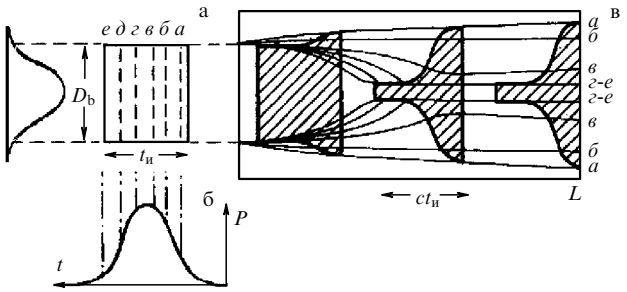


Рис. 13. Характер изменения пучка исходно диаметром D_b (а) при нестационарной самофокусировке лазерного импульса длительностью $t_и$ (б), распространяющегося в керровской нелинейной среде длиной $L \gg ct_и$ (в).

тому в "длинном" времени релаксации ответственной за СФ нелинейности.

Известно, что, когда время релаксации керровской нелинейности среды превышает длительность распространяющегося импульса, на переднем фронте падающего импульса диаметр проходящего пучка из-за самофокусировки меняется слабо даже при значительном превышении мощностью падающего излучения критической мощности СФ, а максимальное сжатие пучка реализуется на спаде импульса [62]. Рисунок 13 иллюстрирует схематически это в случае падающего пучка диаметром D_b (а) при распространении короткого импульса длительностью $t_и$ (б) по такой среде длиной $L \gg ct_и$ (в). Линии $a-e$ на рис. 13в представляют траектории лучей для соответствующих частей $a-e$, падающего импульса (б). Траектория a демонстрирует, что, в момент a на переднем фронте импульса, из-за медленности нелинейности нелинейная рефракция мала и диаметр пучка растёт вследствие дифракции. В момент $б$, нарастающая нелинейная рефракция начинает компенсировать дифракцию (траектория $б$), приводя к постепенному сжатию пучка (траектории $в-г$) в районе максимума импульса (моменты $в-г$) с выходом на минимум ("схлопывание" пучка) на спаде импульса (траектории в моменты $г-е$).

Как следствие, обеспечивающее в нашем случае затравку ВКР ФСМ-уширение в стоксовую сторону (см. рис. 10) и "схлопывание" пучка, с сопровождающей его филаментацией, оказываются разнесенными по времени. Это позволяет понять почему, даже при значительном, до ~ 100-кратном, превышении мощностью падающего излучения критической мощности самофокусировки в BWO, она не сказывается на $\Delta v(E_p)$ в стоксовую сторону, как это видно на рис. 5, 7 и 9.

7. Заключение

Кристалл BWO, сочетающий в себе высокое значение коэффициента усиления ВКР g_R (~ 36 см ГВт$^{-1}$) и относительно небольшое T_2 ($\sim 6{,}6$ пс) и потому считающийся одним из лучших для реализации ВКР пико- и наносекундных лазерных импульсов [18], позволяет и для субпикосекундных импульсов (0,3 пс в нашем случае) получать в простой однопроходной схеме с фокусировкой в объём образца весьма высокую ($\sim 10\,\%$ на основной колебательной моде и до 35 % на вторичной моде) энергетическую эффективность ВКР-преобразования $K_э$ 515 нм лазерного излучения. Причина столь высокой

эффективности в мощной затравке ВКР-взаимодействия излучением уширенного из-за ФСМ излучения накачки. Установлено, что в BWO это оказалось возможным благодаря особенности керровской нелинейности этого кристалла — на порядок более высокой чем электронная, нелинейности ориентационного типа с субпикосекундным временем релаксации. Как следствие,

1) ФСМ-уширение спектра в стоксовую и антистоксовую стороны оказалось асимметричным и по величине значительно превзошло ожидаемое. Полученные из данных по уширению нелинейные коэффициенты преломления и время их отклика, n_2 и τ_{NL}, для кристалла BWO составили $(6{,}4 \pm 1{,}2) \times 10^{-15}$ см^2 Вт$^{-1}$ на 515 нм и $(6{,}0 \pm 0{,}8) \times 10^{-15}$ см^2 Вт$^{-1}$ на 1030 нм и $0{,}4 \pm 0{,}08$ пс соответственно.

2) Поскольку длительность использованных в [24–27] лазерных импульсов оказалась короче, чем время релаксации керровской нелинейности, из-за "большого" n_2 ФСМ-уширение в стоксовую сторону достигает частотного сдвига, соответствующего КР-активным колебательным модам BWO, обеспечивая затравку ВКР, и по времени максимум уширения смещается к максимуму импульса, что создаёт оптимальные условия для достижения высокой эффективности ВКР-преобразования.

3) Исследования характеристик ВКР при различных ориентациях вектора поляризации излучения относительно направления оптической оси кристалла показали, что и на основной, и на вторичных модах BWO появление измеримого ВКР сигнала, его выход на максимум и затухание с изменением энергии накачки коррелирует с величиной сигнала затравки и слабо зависит от коэффициента ВКР усиления.

4) Обнаружено, что ВКР в режиме истощения накачки ($K_э \geqslant 10\,\%$) "тормозит" ФСМ-уширение подобно тому, как ранее было показано для самофокусировки (СФ) [41].

5) Характер полученных зависимостей величины ФСМ-уширения от энергии/мощности импульса излучения накачки указывает на отсутствие явных признаков самофокусировки несмотря на значительное, формально до ~ 100 кратное, превышение её критической мощности. Факторами, определившими это, являются нестационарность действующей керровской нелинейности и высокая эффективность ВКР преобразования [41, 61].

Полученные в BWO результаты, а также результаты работ [49–58], дают основание для поиска и синтеза других ВКР-активных, и не только, кристаллов с такой же природой кубической нелинейности, для реализации высоко эффективных нелинейно-оптических преобразователей лазерного излучения. Пока же, среди большого числа изученных нелинейных сред, наиболее близким, к обнаруженному в BWO, сочетанием характеристик керровской нелинейности и ВКР ($n_2 \cong 3{,}4 \times 10^{-14}$ см^2 Вт$^{-1}$, $\tau_{NL} \cong \cong 2$ пс, g_R(@515 нм) $\cong 31$ см ГВт$^{-1}$ и $T_2 \cong 11$ пс) обладает сероуглерод [41], но для работы с ультракороткими импульсами у BWO явное преимущество из-за более коротких τ_{NL} и T_2 ($\sim 0{,}4$ пс и $\sim 6{,}6$ пс соответственно).

В плане практической значимости полученные результаты

1) разрушают стереотипы а) о невозможности ориентационного НО в неорганических кристаллах, и б) о том, что фазовая самомодуляция исходного излучения накачки может играть лишь деструктивную роль при его ВКР-преобразовании, и

2) демонстрируют возможность создания предельно простых конструктивно и одновременно высокоэффективных ВКР преобразователей ультракоротких лазерных импульсов для всего спектра решаемых с привлечением ВКР задач в физике, химии, биологии и других областях.

Авторы выражают признательность Е.Э. Дунаевой за предоставление образца BWO и А.В. Корибуту за помощь в проведении измерений.

Список литературы

1. Woodbury E J, Ng W K *Proc. IRE* **50** 2347 (1962)
2. Бломберген Н *УФН* **97** 307 (1969); Пер. с англ. яз.: Bloembergen N *Am. J. Phys.* **35** 989 (1967)
3. Грасюк А З *Квантовая электроника* **1** 485 (1974); Grasyuk A Z *Sov. J. Quantum Electron.* **4** 269 (1974); Грасюк А З *Труды ФИАН* **76** 75 (1974)
4. Желтиков А М *УФН* **181** 33 (2011); Zheltikov A M *Phys. Usp.* **54** 29 (2011)
5. Грасюк А З и др. *Квантовая электроника* **42** 1064 (2012); Grasyuk A Z et al. *Quantum Electron.* **42** 1064 (2012)
6. Ахманов С А, Коротеев Н И *Методы нелинейной оптики в спектроскопии рассеяния света. Активная спектроскопия рассеяния света* (М.: Наука, 1981)
7. Cheng Q et al. *Matter* **4** 1460 (2021)
8. Ахманов С А и др. *ЖЭТФ* **59** 485 (1970); Akhmanov S A et al. *Sov. Phys. JETP* **32** 266 (1971)
9. Carman R L et al. *Phys. Rev. A* **2** 60 (1970)
10. Зельдович Б Я, Пилипецкий Н Ф, Шкунов В В *Обращение волнового фронта* (М.: Наука, 1985); Пер. на англ. яз.: Zel'dovich B Ya, Pilipetsky N F, Shkunov V V *Principles of Phase Conjugation* (Berlin: Springer-Verlag, 1985)
11. Grabtchikov A S et al. *Opt. Lett.* **28** 926 (2003)
12. Orlovich V A et al. *Laser Phys. Lett.* **9** 770 (2012)
13. Alfano R R, Shapiro S L *Phys. Rev. Lett.* **24** 592 (1970)
14. Киняевский И О и др. *Оптика и спектроскопия* **131** 207 (2023) DOI:10.21883/OS.2023.02.55007.8-23; Kinyaevskiy I O et al. *Opt. Spectrosc.* **131** 196 (2023)
15. Kinyaevskiy I et al. *Crystals* **10** 754 (2020)
16. Кудрявцева А Д и др. *ЖЭТФ* **59** 1556 (1971); Kudryavtseva A D et al. *Sov. Phys. JETP* **32** 849 (1971)
17. Agrawal G P, Baldeck P L, Alfano R R *Phys. Rev. A* **39** 5063 (1989)
18. Černý P et al. *Prog. Quantum Electron.* **28** 113 (2004)
19. Grigsby F B, Dong P, Downer M C *J. Opt. Soc. Am. B* **25** 346 (2008)
20. Daher N et al. *Opt. Lett.* **46** 3380 (2021)
21. Киняевский И О и др. *Квантовая электроника* **52** 278 (2022); Kinyaevskiy I O et al. *Quantum Electron.* **52** 278 (2022)
22. Kinyaevskiy I O et al. *Opt. Laser Technol.* **169** 110035 (2024)
23. Kinyaevskiy I O et al. *J. Appl. Phys.* **136** 123103 (2024)
24. Kinyaevskiy I O et al. *Opt. Lett.* **45** 2160 (2020)
25. Kinyaevskiy I et al. *Opt. Lett.* **46** 697 (2021)
26. Kinyaevskiy I O et al. *J. Russ. Laser Res.* **43** 315 (2022)
27. Kinyaevskiy I et al. *Chinese Opt. Lett.* **21** 031902 (2023)
28. Basiev T T et al. *Appl. Opt.* **38** 594 (1999); *Opt. Mater.* **11** 307 (1999)
29. Ivleva L I et al. *J. Cryst. Growth* **304** 108 (2007)
30. Зверев П Г и др. *Квантовая электроника* **30** 55 (2000); Zverev P G et al. *Quantum Electron.* **30** 55 (2000)
31. Pask H M *Prog. Quantum Electron.* **27** (1) 3 (2003)
32. Frank M et al. *Crystals* **9** (3) 167 (2019)
33. Басиев Т Т *Физика твердого тела* **47** 1354 (2005); Basiev T T *Phys. Solid State* **47** 1400 (2005)
34. Lacomba-Perales R et al. *Europhys. Lett.* **83** 37002 (2008)
35. Ахманов С А, Выслоух В А, Чиркин А С *Оптика фемтосекундных лазерных импульсов* (М.: Наука, 1988); Пер. на англ. яз.: Akhmanov S A, Vysloukh V A, Chirkin A S *Optics of Femtosecond Laser Pulses* (New York: American Institute of Physics, 1992)
36. Vodchits A I et al. *Opt. Mater.* **29** 1616 (2007)
37. Kinyaevskiy I et al. *Crystals* **10** 754 (2020)
38. Дианов Е М и др. *Письма в ЖЭТФ* **41** 242 (1985); Dianov E M et al. *JETP Lett.* **41** 294 (1985)
39. Dubietis A et al. *Lithuanian J. Phys.* **57** 113 (2017)

40. Suda J, Zverev P G *Vibration. Spectrosc.* **62** 85 (2012)
41. Rahn O, Maier M *Phys. Rev. A* **9** 1427 (1974)
42. Gustafson T K et al. *Phys. Rev.* **177** 306 (1969)
43. Ахманов С А, Выслоух В А, Чиркин А С *УФН* **149** 449 (1986); Akhmanov S A, Vysloukh V A, Chirkin A S *Sov. Phys. Usp.* **29** 642 (1986)
44. Kovalev V I *J. Russ. Laser Res.* **18** 1 (1997)
45. Агравал Г *Нелинейная волоконная оптика* (М.: Мир, 1996); Пер. с англ. яз.: Agrawal G P *Nonlinear Fiber Optics* (San Diego, CA: Academic Press, 1989)
46. Boyd R W *Nonlinear Optics* (San Diego, CA: Academic Press, 2020)
47. George M et al. *J. Photochem. Photobiol. A* **393** 112413 (2020)
48. Зельдович Б Я, Табирян Н В *УФН* **147** 633 (1985); Zel'dovich B Ya, Tabiryan N V *Sov. Phys. Usp.* **28** 1059 (1985)
49. Дунаева Е Э, Частное сообщение
50. Kelly A, Knowles K M *Crystallography and Crystal Defects* (Hoboken, NJ: John Wiley and Sons, 2020)
51. Keen D A, Goodwin A L *Nature* **521** 303 (2015)
52. Kumar A et al. *Nature Mater.* **20** 62 (2021)
53. Ji H et al. *Nature Commun.* **10** 592 (2019)
54. Tokura Y *Rep. Prog. Phys.* **69** 797 (2006)
55. Niu S et al. *Nature Photon.* **12** 392 (2018)
56. Izrailev F M, Krokhin A A, Makarov N M *Phys. Rep.* **512** 125 (2012)
57. Ahn C H, Triscone J -M, Mannhart J *Nature* **424** 1015 (2003)
58. Zhao B et al. *Adv. Mater.* **36** 2311559 (2024)
59. Shen Y R *Phys. Lett.* **20** 378 (1966)
60. Petrulenas A, Mackonis P, Rodin A M *Crystals* **12** 888 (2022)
61. AuYeung J, Yariv A *IEEE J. Quantum Electron.* **14** 347 (1978)
62. Hanson E G, Shen Y R, Wong G K L *Appl. Phys.* **14** 65 (1977)

Stimulated raman scattering and self-action of ultrashort laser pulses in a barium tungstate crystal

I.O. Kinyaevsky (*), **V.I. Kovalev** (**)
Lebedev Physical Institute, Russian Academy of Sciences, Leninskii prosp. 53, 119991 Moscow, Russian Federation
E-mail: (*) *kigor@sci.lebedev.ru,* (**) *kovalevvi@lebedev.ru*

Among the wide range of potential practical applications of stimulated Raman scattering (SRS), the generation of high-power coherent radiation at frequencies inaccessible to conventional lasers remains topical. With the emergence of new and the expansion of existing applications for ultrashort light pulses the efficient conversion of such pulses via SRS has become a significant area of interest. In our study on the SRS of subpicosecond laser pulses in a barium tungstate crystal, we experimentally observed and subsequently interpreted two phenomena previously considered impossible in solid-state media: (i) constructive interference between SRS and self-phase modulation (SPM) effects, and (ii) an orientational Kerr nonlinearity with a subpicosecond relaxation time. It is shown that, due to this nonlinearity, the spectral broadening of the pump pulse, arising from SPM, provides a strong Stokes seed for SRS process at the peak of the pump pulse. This results in an anomalously high SRS conversion efficiency for ultrashort pulses (20% for the fundamental vibrational mode and 35% for the secondary vibrational mode) within a simple, single-pass SRS interaction configuration. Since the orientational nonlinear response observed in barium tungstate stems from lattice defects, which are inevitable in real crystals, similar response should be expected in other crystalline materials.

Keywords: barium tungstate crystal, defects, orientational nonlinearity, ultrashort laser pulses, stimulated scattering, self-action of radiation

PACS numbers: 42.65.An, 42.65.Dr, 42.65.Jx, 42.65.Re, 42.70.Mp, **61.72.–y,**

Bibliography — 62 references *Received 9 July 2025, revised 23 April 2026*

Uspekhi Fizicheskikh Nauk **196** (11) 1153–1164 (2026) *Physics–Uspekhi* **69** (11) (2026)

DOI: https://doi.org/10.3367/UFNr.2026.10.040216 DOI: https://doi.org/10.3367/UFNe.2026.10.040216