

КОНФЕРЕНЦИИ И СИМПОЗИУМЫ

Научная сессия Отделения общей физики и астрономии Российской академии наук

(19 мая 1999 г.)

19 мая 1999 г. в Институте физических проблем им. П.Л. Капицы РАН состоялась научная сессия Отделения общей физики и астрономии Российской академии наук. На сессии были заслушаны доклады:

1. **Басиев Т.Т.** (Институт общей физики РАН, Москва). *Спектроскопия новых ВКР-активных кристаллов и твердотельные ВКР-лазеры.*

2. **Красюк И.К.** (Институт общей физики РАН, Москва). *Применение лазерных ударных волн для изучения теплофизических и механических свойств вещества.*

3. **Ляпин А.Г., Бражкин В.В., Громницкая Е.Л., Стальгорова О.В., Циок О.Б.** (Институт физики высоких давлений РАН, Троицк, Московская обл.). *Превращения в аморфных твердых телах при высоких давлениях.*

Краткие содержания докладов публикуются ниже.

PACS numbers: 33.20.Fb, 42.55.Ye, 42.65.Dr, **78.30.-j**

Спектроскопия новых ВКР-активных кристаллов и твердотельные ВКР-лазеры

Т.Т. Басиев

В прошлом году отмечалось 70-летие со времени открытия спонтанного комбинационного рассеяния света (КРС), которое было сделано одновременно и независимо Ч.В. Раманом, К.С. Кришнаном для жидкостей [1] и Г.С. Ландсбергом, Л.И. Мандельштамом для кристаллов [2].

Учет вынужденных процессов комбинационного рассеяния (КР) можно обнаружить уже в общей теории Г. Плачека [3], созданной вскоре после открытия явления КР. Однако только создание лазерных источников излучения, вклад в которое российских ученых Н.Г. Басова и А.М. Прохорова нашел мировое признание, повлекло за собой открытие вынужденного комбинационного рассеяния света (ВКР). Это открытие сделали Е.Дж. Вудбери и В.К. Нг в 1962 г. [4] при исследовании модуляции добротности рубинового лазера с помощью ячейки Керра на нитробензоле. Они обнаружили в лазерном спектре мощную инфракрасную компоненту излучения с частотой, сдвинутой на 1345 см^{-1} от лазерной линии, что было впоследствии объяснено наличием ВКР [5].

С тех пор это интересное нелинейное явление и его применения в лазерной спектроскопии и лазерной тех-

нике привлекают повышенное внимание физиков (см., например, обзоры [6–15]). Это и понятно, поскольку за процесс вынужденного (или стимулированного) КР, так же как и за процесс спонтанного КР, отвечают двухфотонные переходы в материальной среде (атомы, ионы и молекулы в газе, жидкости, стекле, кристалле). При этом резонансный характер двухфотонного процесса позволяет исследовать не только макроскопическое поведение вещества при взаимодействии с мощным лазерным излучением, но и микрофизику отдельных атомов, ионов и молекул со своими правилами отбора, скоростями поперечной (фазовой) и продольной (энергетической) релаксации. С прикладной точки зрения ВКР позволяет получить мощное когерентное излучение на новых длинах волн.

Процесс КР удобно представить как двухфотонный резонанс, в котором разность двух оптических частот, поглощенной ν_L и излученной ν_S , равна частоте колебательного кванта атомов в молекуле или кристалле:

$$\nu_L - \nu_S = \nu_v.$$

Сечения этого двухфотонного оптического процесса КР очень малы ($\sigma \sim 10^{-30}\text{ см}^2$). Даже в наше время его очень трудно зарегистрировать без применения мощных узконаправленных монохроматических источников излучения (лазеров), что делает открытие спонтанного КР особо ценным.

Теоретические исследования [3, 5, 8–10] показали, что интенсивность вынужденного стоксова рассеяния пропорциональна плотности заполнения состояний трех взаимодействующих полей — фотонов лазерной накачки (N_L), фотонов рождаемой стоксовой волны (N_S) и фононов (молекулярных колебаний) кристалла в основном или возбужденном состояниях ($N_v = N_0 - N_1$):

$$\frac{dN_S}{dz} \propto N_L N_S (N_0 - N_1).$$

Для стационарного ВКР интенсивность стоксова излучения имеет простой вид [8]:

$$I_S(l) = I_S(0) \exp(g I_L l),$$

где I_L — интенсивность накачки, l — длина взаимодействия излучения с ВКР-активной средой, I_S — интенсивность стоксова излучения,

$$g = \frac{\lambda_L \lambda_S^2 N_v}{\pi c \hbar n_S^2 \Delta \nu} \frac{d\sigma}{d\Omega}$$

— коэффициент ВКР-усиления. Значительно более низкие сечения резонансных двухфотонных процессов по сравнению с однофотонными (на 10–15 порядков величины) поставило развитие ВКР-преобразователей в зависимости от разработки лазерных пучков излучения с особыми свойствами (высокая пиковая мощность, когерентность, широкий спектральный диапазон частот) и определило труднодостижимые требования к ВКР-активным средам.

Оценки показывают, что для достижения порога по ВКР, т.е. $I_S \approx I_L$, необходимо обеспечить значения инкремента $gI_L l = 30$. При типичных для газообразных и жидких ВКР-активных сред значениях $g = 1–3$ см ГВт^{–1} (для водорода $g = 1,5$ см ГВт^{–1}, для нитробензола $g = 3$ см ГВт^{–1}) это требует либо активных сред метровой длины ($l = 30–100$ см), либо сверхгигаваттных интенсивностей накачки ($I_L > 1$ ГВт см^{–2}).

К достоинствам ВКР-активных сред на основе молекулярных газов (H₂, N₂, O₂, CH₄) можно отнести оптическую однородность, простоту создания оптической среды, высокие частоты ВКР-активных колебаний (2000–4000 см^{–1}) и большой сдвиг частот $\nu_S = \nu_L - \nu_V$ ВКР-излучения. Большое значение имеет малая ширина спектра ВКР-активного колебания ($\Delta\nu = 10^{-3}–10^{-1}$ см^{–1}), а следовательно, и относительно высокое пиковое сечение КР для одной молекулы [11, 12].

ВКР-активные среды на основе газов имеют ряд недостатков. Во-первых, это низкая плотность частиц даже при давлениях значительно выше атмосферного ($N \leq 10^{21}$ см^{–3} при 10 атм), что требует резкого увеличения длины оптического пути взаимодействия (до единиц метров) и, как следствие, усложняет обеспечение высокой пороговой интенсивности накачки (выше 10⁹ Вт см^{–2}) по всей длине. Во-вторых, это проблема низкой теплопроводности газов, которая может быть решена путем применения громоздких и дорогих устройств прокачки, что резко усложняет систему, особенно при высоких давлениях.

К достоинствам ВКР-активных сред на основе жидкостей [11, 12] относятся простота создания оптической ВКР-ячейки и высокая плотность активных частиц (10²² см^{–3}). При этом уширение колебательных переходов, конечно, растет, в особенности для высоких температур ($\Delta\nu \approx 0,1$ см^{–1} при $T = 77$ К, $\Delta\nu \approx 1–4$ см^{–1} при $T = 300$ К), что несколько снижает пиковое сечение рассеяния каждой молекулы. Отрицательное воздействие уширения, однако, не обнуляет положительного эффекта роста плотности, и в целом ВКР-активные среды на молекулярных жидкостях обладают большим усилением ($g \approx 3$ см ГВт^{–1}) и компактностью, чем газовые.

К основным недостаткам жидких ВКР-активных сред относятся низкая теплопроводность (в сочетании с проблемами создания высокооднородных ламинарных потоков при прокачке вещества) и высокое значение dn/dT , приводящее к значительным термооптическим искажениям вследствие стоковых потерь в среде. Высокие значения нелинейного показателя преломления n_2 вызывают явления самоканалирования и самофокусировки пучка накачки, уменьшая длину взаимодействия, ухудшают расходимость и могут привести к оптическому пробое среды.

Для криогенных молекулярных жидкостей (N₂, O₂), обладающих высокой плотностью, малым уширением и высоким сечением рассеяния (17 см ГВт^{–1} [12]), главными

проблемами являются создание и поддержание низких температур в ВКР-активной среде, теплоизоляция оптических окон и легкость образования большого количества газовых пузырьков, искажающих волновой фронт накачки и генерируемого ВКР-излучения.

Многих из перечисленных выше проблем можно избежать при переходе к твердым оптическим телам, в особенности к кристаллам. При этом можно попытаться сохранить и усилить положительные свойства рассмотренных выше сред.

Высокие плотности вещества в кристаллическом состоянии ($n \approx 10^{23}$ см^{–3}) позволяют обеспечить наилучшее (наиболее компактное) взаимодействие возбуждающего света с ВКР-активным веществом и высокий коэффициент усиления [14]. Высокая симметрия в расположении атомов и молекул в кристаллах препятствует разбросу частот и ширин линий (вследствие вращений, столкновений, а также флуктуаций скоростей, силовых констант и расстояний, как это наблюдается в жидкостях и газах) и обеспечивает точную настройку всех ВКР-активных частиц в резонанс. Отсутствие разброса частот, т.е. минимальное неоднородное уширение спектра ВКР-активных колебаний, усиливает коллективный эффект взаимодействия кристалл–лазерное излучение накачки, что проявляется в снижении порога взаимодействия, росте коэффициента усиления и эффективности ВКР-преобразования.

Широкий спектр различных кристаллов, известных в природе и особенно синтезированных искусственно в последние десятилетия, обуславливают многообразие их свойств: тип связи (ионные, молекулярно-ионные, ковалентные), диапазон прозрачности (от 100 нм до 100 мкм), большой набор резонансных колебательных частот, активных в процессе КР (10–2000 см^{–1}).

Главным фактором, усложняющим применение кристаллов, является многообразие и сложность физических явлений взаимодействия молекулярных колебаний друг с другом и с коллективными возбуждениями кристаллической решетки (фононами). Эти явления приводят к сдвигу, расщеплению, неоднородному или однородному уширению узких ВКР-активных колебательных мод, снижая эффективность их взаимодействия с лазерным излучением накачки.

Первые эффекты ВКР в твердых телах и первые ВКР-лазеры были реализованы на природных кристаллах кальцита (CaCO₃) и алмаза, а затем на синтетических кристаллах CaWO₄, LiNbO₃ и LiIO₃ (см. ссылки в [6, 7, 11–15]). Исследования последних десятилетий показали, что среди новых синтетических кристаллов могут быть найдены такие, которые обладают необходимым набором параметров для создания эффективных ВКР-преобразователей лазерного излучения.

Так, в 80-х годах были созданы два новых синтетических кристалла, обеспечивших на несколько лет прогресс в развитии ВКР-лазеров. Это кристалл нитрата бария Ba(NO₃)₂ (см. [16, 17]) и кристалл калий-гадолиниевого вольфрамата KGd(WO₄)₂ (см. [18, 19]). Первый кристалл отличается своим рекордным усилением в наносекундном диапазоне и высокой лучевой стойкостью, однако он очень мягок, пластичен и гигроскопичен. Второй кристалл значительно более прочен механически, обладает большей теплопроводностью и допускает активацию лазерными ионами неодима, эрбия и др. К сожалению, его лазерная прочность оказалась значительно ниже, как

ниже и пиковое сечение ВКР, что, однако, не помешало его применению в пикосекундных лазерах.

Первые работы по ВКР-преобразованию на кристаллах $\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$ были выполнены в видимом диапазоне с накачкой зеленым излучением второй гармоники неодимового лазера ($\lambda_L = 532$ нм) [20]. ВКР-преобразователи позволили значительно продвинуться от частоты накачки в стоксову (желтую и красную) область спектра путем многокаскадного преобразования [20–22]. Ограничением является то, что ВКР-преобразователи дают дискретные частоты ($\nu_S = \nu_L - \nu_V$) и длины волн (560, 598, 639 нм). В видимой области спектра у ВКР-преобразователей есть мощный конкурент — лазеры на красителях, которые тоже преобразуют когерентное излучение в стоксову (от накачки) область, но дополнительно позволяют перестраивать его длину волны в широких пределах.

Кардинально новые возможности дает антистоксово ВКР-преобразование, при котором дополнительная энергия черпается из тепловых колебаний кристалла и увеличивает частоту оптического излучения (преобразование спектральных диапазонов: красного в желтый, желтого в зеленый и т.д.), однако эффективность такого процесса пока невелика (всего несколько процентов) [21].

Другая ситуация наблюдается в ИК-области спектра, где нет хороших лазерных красителей с высоким квантовым выходом, фото- и термостабильностью, а разработка каждого нового кристаллического лазера требует очень больших средств и времени, так как для каждого спектрального диапазона нужно изучить и оптимизировать динамику возбуждения и генерации, разработать новый лазерный кристалл, технологию синтеза соединения и выращивания монокристалла с высоким оптическим качеством. ВКР-кристаллы обладают здесь явными преимуществами, поскольку они могут работать во всем диапазоне оптической прозрачности: от УФ (0,2–0,3 мкм) до ИК (2–10 мкм) диапазона.

Однако отметим, что продвижение в ИК-область спектра сопряжено с растущими сложностями, так как сечение ВКР-усиления падает в четыре раза при увеличении длины волны накачки вдвое. Так, для $\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$ значение $g = 47$ см ГВт⁻¹ при $\lambda = 532$ нм, $g = 11$ см ГВт⁻¹ при $\lambda = 1064$ нм [23, 24].

К началу 80-х годов мы разработали уникальные перестраиваемые лазеры для ближнего ИК-диапазона на кристаллах LiF с F_2^- - и F_2^+ -центрами окраски [25–27]. Их диапазон перестройки в ИК-области ограничивался длиной волны 1,3 мкм. С целью продвижения дальше в ИК-диапазон применялись новые ВКР-активные кристаллы $\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$ и $\text{KGd}(\text{WO}_4)_2$.

Исследования [28] показали, что кристалл $\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$ успешно работает в ближнем ИК-диапазоне (вплоть до 1,7 мкм) с КПД до 60 % при интенсивностях наносекундной накачки, существенно меньших порога лазерного разрушения. Ограничением является край собственного поглощения в районе 1,8 мкм, что не позволяет продвинуться дальше в ИК-область. Для кристаллов $\text{KGd}(\text{WO}_4)_2$ область прозрачности в ИК-диапазоне значительно дальше (до 5 мкм), и они также позволяют преобразовывать ИК-излучение в стоксову область, однако малое усиление g и низкая лучевая прочность сдерживают применение этих кристаллов в наносекундных лазерах.

Благодаря разработанным ВКР-лазерам на кристаллах $\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$, нам впервые удалось распространить

спектральный диапазон твердотельных перестраиваемых лазеров на 1,3–1,7 мкм и создать комплекс лазерного спектрометра ближнего ИК-диапазона (0,82–1,66 мкм), который вторыми гармониками (при помощи нелинейных кристаллов) перекрывает видимый диапазон (0,42–0,82 мкм) и (при повторном удвоении или нелинейном смещении частот) УФ-диапазон спектра (0,25–0,45 мкм). Тем самым впервые был создан трехдиапазонный (УФ, видимый и ИК) лазерный комплекс с использованием только кристаллических лазерных технологий [14, 27–29].

Следующий пик интереса к ВКР-лазерам пришелся на начало 90-х годов, когда применение лазеров стало столь широким, что актуальность приобрели проблемы лазерной безопасности. Наиболее важными оказались вопросы разработки лазерных технологий, безопасных для глаз человека. Безопасная для глаза длина волны была определена стандартом как $\lambda = 1,54$ мкм, тогда как большинство разработанных до этого лазеров оказалось в запретной зоне длин волн $\lambda < 1,5$ мкм: например, излучение ИАГ-лазеров на 0,53, 1,06, 1,32 мкм, излучение рубина на 0,69 мкм, александрита на 0,78 мкм, сапфира с титаном на 0,7–1,1 мкм.

Количество подобных лазеров сейчас измеряется тысячами, и на их разработку истрачены огромные средства. Один из путей решения проблемы в сложившейся ситуации — создание компактных дешевых твердотельных преобразователей длины волны: например, $1,064 \rightarrow 1,5$ мкм, $1,32 \rightarrow 1,5$ мкм. Такая задача была поставлена и успешно решена нами в 1990–1995 гг. [30–37].

Использование ВКР-активных кристаллов $\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$ длиной 30–50 мм и компактного резонатора с дихроичными зеркалами, специально разработанными на оптимальную генерацию первой, второй или третьей стоксовых волн, позволило получить одномодовое излучение в новых, в том числе и в безопасном для глаз, диапазонах (1,2–1,4 мкм, 1,5–1,6 мкм) с КПД преобразования излучение — излучение равным 20–50 % [30–33].

Применение схемы внутррезонаторной накачки ВКР-активного кристалла, когда лазер накачки (например, Nd:ИАГ) и ВКР-лазер имеют один и тот же резонатор или два, но оптически связанных резонатора, позволило довести КПД преобразования излучение — излучение до 90 % [34–37]. При этом за счет эффекта нелинейной разгрузки резонатора можно достичь укорочения импульса и повышения его пиковой мощности по сравнению с лазером накачки. Дополнительным важным достижением ВКР-лазеров является улучшение пространственного качества выходного лазерного излучения по сравнению с излучением накачки, уменьшение его расходимости ("очистка луча"), а значит, и рост его пространственной яркости [13, 31–33, 38].

Параллельно с созданием новых ВКР-преобразователей и лазеров ИК-диапазона нами ставились и решались задачи физики КР-активных колебательных возбуждений в твердых телах, которые определяют природу рассеяния и его свойства на временной и спектральной шкале. Работы, выполненные нами в начале 80-х годов, позволили вскрыть сложную неоднородную природу ВКР-резонанса в плавленом кварце на частоте 450 см⁻¹ [39]. Применив разработанные нами кристаллические перестраиваемые лазеры на центрах окраски и методы бигармонической накачки совместно со спектроскопией

ВКР-усиления, нам впервые удалось измерить однородную ширину неоднородно-уширенного колебательного спектра плавленого кварца. Этот результат является приоритетным и единственным в литературе.

Следующий цикл наших работ связан с выяснением природы аномально высокого ВКР-усиления в кристалле $\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$. Для исследования физики ВКР-процессов в $\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$ при различных температурах (вплоть до гелиевых) мы применили последние достижения лазерной спектроскопии: наносекундную спектроскопию ВКР-усиления с высоким спектральным разрешением [40] и нестационарную пикосекундную спектроскопию когерентного антистоксова рассеяния [41]. Впервые было обнаружено, что высокочастотное (1047 см^{-1}) полносимметричное A_{1g} -колебание NO_3 -групп обладает аномально низким значением однородного и неоднородного уширения ($\Delta\nu = 0,4 \text{ см}^{-1}$ при комнатной температуре), что указывает на аномально слабую связь с другими квазимолекулярными и решеточными колебаниями [40]. Прямо измеренное время дефазировки T_2 колебательной A_{1g} -моды оказалось удивительно длинным (значение $T_2(300 \text{ К}) = 26 \text{ пс}$) и увеличивалось почти в десять раз при охлаждении до гелиевых температур ($T_2(11 \text{ К}) = 220 \text{ пс}$) [41]. Эти значения в десятки раз превосходят значения T_2 для кристаллов алмаза, кальцита, NaNbO_3 и др.

Увеличение температуры выше комнатной (до 400–600 К) вызывает более быстрый рост однородного уширения линии $\Delta\nu(T)$ и скорости дефазировки T_2^{-1} , однако все еще значительно отстающий от уширения в других матрицах. Описание экспериментальных данных по скорости дефазировки $T_2^{-1}(T)$, полученных двумя современными методами (КР-усиления и пикосекундного CARS) в диапазоне $T = 11–600 \text{ К}$ при помощи теории многофононных процессов распада, поглощения и дефазировки колебательных возбуждений показало, что главной причиной аномально большого времени жизни A_{1g} -колебания в кристалле $\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$ является отсутствие трехфононных процессов распада (когда одно высокочастотное КР-активное колебание распадается на два других с более низкими частотами) [40, 41]. Именно трехфононные процессы доминируют на других частотах и в других ВКР-активных материалах в диапазоне 11–300 К, определяя высокую скорость дефазировки и значительное однородное уширение спектра [17].

Оказалось, что скорость дефазировки в кристалле $\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$ обусловлена не только разрешенными четырехфононными процессами распада $\nu_{1047} \rightarrow \nu_{817} + \omega_{144} + \omega_{81}$, доминирующими при низких температурах (4–77 К), но и с шестифононными процессами распада $\nu_{1047} \rightarrow \nu_{731} + 4\omega_{81}$, которые, несмотря на значительно меньшую вероятность, имеют быстрый температурный рост и вносят значительный вклад в уширение при температурах выше комнатной [40, 41].

В связи с растущим применением ВКР-активных кристаллов, многообразием их свойств и большим разбросом литературных данных в последние годы все более серьезно встают задачи сравнительного количественного анализа известных ВКР-активных сред и поиска, исследования и разработки новых, более совершенных кристаллов для ВКР-генерации.

За последние четыре года мы провели поиск и сравнительные исследования десятков различных кристаллов, как известных, так и потенциальных кандида-

тов для твердотельных ВКР-лазеров [42–46]. Это кристаллы карбонатов, нитратов, фосфатов, вольфраматов, ниобатов, йодатов, бромидов, боратов и силикатов. Сравнивались частоты и ширины линий наиболее интенсивных квазимолекулярных ВКР-активных колебаний, обусловленных движением ионов кислорода в анионных группах $[\text{CO}_3]$, $[\text{NO}_3]$, $[\text{PO}_4]$, $[\text{ClO}_3]$, $[\text{WO}_4]$, $[\text{NbO}_6]$, $[\text{IO}_3]$, $[\text{B}_3\text{O}_6]$, $[\text{BrO}_3]$, $[\text{SiO}_2]$, $[\text{SO}_4]$, $[\text{NH}_4]$, $[\text{NbO}_4]$.

Измерены относительные интенсивности линий (интегральные и пиковые) спонтанного КР для более 30 синтетических кристаллов, сопоставляя их друг с другом и с реперным кристаллом алмаза 100 %. Исследовалась их зависимость от ориентации кристалла по отношению к возбуждающему лазерному и рассеянному излучению (см. табл.) [42–44].

Показано, что из перечисленных кристаллов лишь кристаллы йодатов, ниобатов и вольфраматов обладают значительными интегральными сечениями рассеяния для высокочастотных КР-линий ($600–900 \text{ см}^{-1}$). За исключением кристаллов ниобата лития (166 %), эти значения несколько ниже, чем для кристалла алмаза (100 %), но превышают аналогичные значения для известных ВКР-активных кристаллов кальцита (6 %) и нитратов (20 %) в несколько раз.

Иная ситуация обнаружена нами для пиковых значений сечения рассеяния, которые определяют порог и коэффициент ВКР-усиления в стационарном режиме при накачке нано- и субнаносекундной длительности. Малое уширение КР-линий обуславливает рекордные пиковые сечения для кристаллов нитратов (44–63 %) даже при весьма скромных значениях интегральных сечений (21–23 %).

Анализ данных таблицы показывает, что реализация низкопороговых лазерных ВКР-преобразователей частоты требует создания материалов с высоким интегральным сечением КР и малым уширением КР-перехода. Одним из перспективных классов для этой цели может служить класс вольфраматов, обладающий высокими интегральными сечениями КР (40–60 %), но значительным уширением спектров: от 5 до 15 см^{-1} для известных к настоящему времени кристаллов.

Учитывая, что процессы распадного уширения (так же как up-конверсии и дефазировки) высокочастотных ВКР-активных колебательных мод связаны со взаимодействием с решеточными фоннными модами, мы постарались снизить частоты последних, выбирая кристаллы с наиболее тяжелыми катионами в своем классе.

Мы целенаправленно синтезировали [43–44] и исследовали простые вольфраматы щелочноземельных металлов Ca, Sr и Ba со структурой шеелита. Как видно из таблицы, широко известный в литературе кристалл CaWO_4 обладает весьма средним пиковым сечением рассеяния: 18 %, что в три раза ниже, чем в кристалле $\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$, и даже не достигает значения для $\text{KGd}(\text{WO}_4)_2$. Это связано со значительным уширением его КР-линии ($\Delta\nu = 6,95 \text{ см}^{-1}$). Замена ионов кальция на более тяжелые ионы стронция и бария позволила резко замедлить процессы релаксации и сузить спектральную линию в несколько раз: до $1,63 \text{ см}^{-1}$ при комнатной температуре.

С ростом массы катиона в ряду Ca, Sr, Ba действительно снижается максимальная частота решеточных фононов ω_{lat} в кристалле (с 274 до 194 см^{-1}). Рост ионного радиуса катиона и постоянной кристаллической решетки приводит также к росту частоты полносиммет-

Таблица. Параметры спонтанного комбинационного рассеяния в кристаллах

Материал	Пространственная решеточная группа	Молекулярная группа	Частота КР ν_v , см ⁻¹	Ширина линии КР $\Delta\nu$, см ⁻¹	Интегральное сечение, отн. ед.	Пиковая интенсивность, отн. ед.	Геометрия рассеяния возбуждения	
							К	Е
Алмаз	O_h^7	—	1332,9	2,7	100	100	$\parallel C_3$	$\perp C_3$
<i>Нитраты и кальцит</i>								
Ba(NO ₃) ₂	T_h^6	[NO ₃]	1048,6	0,4	21	63	$\parallel C_4$	$\parallel C_4$
NaNO ₃	D_{3d}^6	—	1069,2	1,0	23	44	$\parallel C_3$	$\perp C_3$
CaCO ₃	D_{3d}^6	[CO ₃]	1086,4	1,2	6,0	10,6	$\parallel C_3$	$\perp C_3$
<i>Вольфраматы</i>								
CaWO ₄	C_{4h}^6	[WO ₄]	910,7	6,95	47	18,6	$\perp C_4$	$\parallel C_4$
SrWO ₄ *	—	—	921,5	3	—	—	—	—
BaWO ₄	—	—	926,5	1,63	47	64	—	—
NaGd(WO ₄) ₂ *	—	—	919	14 *	—	—	—	—
NaY(WO ₄) ₂ *	—	—	918	15 *	—	—	—	—
Sc ₂ (WO ₄) ₃ *	—	—	1024	15	—	—	—	—
In ₂ (WO ₄) ₃ *	—	—	1023	13	—	—	—	—
LiIn(WO ₄) ₂ *	—	—	920	8	—	—	—	—
NaSr(WO ₄) ₂ *	—	—	924	2,5	—	—	—	—
Na ₂ WO ₄ *	O_h^7	—	929,2	1,8	—	—	—	—
KGd(WO ₄) ₂	C_{2h}^6	[WO ₆]	901	5,4	50	35	$\perp C_2$	$\perp C_2$
—	—	—	901	5,4	43	30	$\perp C_2$	$\parallel C_2$
—	—	—	768	6,4	19	9,2	$\perp C_2$	$\perp C_2$
—	—	—	768	6,4	59	37	$\perp C_2$	$\parallel C_2$
KY(WO ₄) ₂	—	—	905,6	7	46	35	$\perp C_2$	$\perp C_2$
—	—	—	905,6	7	41	30	$\perp C_2$	$\parallel C_2$
—	—	—	767,4	8,4	17	10	$\perp C_2$	$\perp C_2$
—	—	—	767,4	8,4	58	35	$\perp C_2$	$\parallel C_2$
KYb(WO ₄) ₂	—	—	908	7,4	48	34	$\perp C_2$	$\perp C_2$
—	—	—	908	7,4	48	34	$\perp C_2$	$\parallel C_2$
—	—	—	757	15 **	18 **	13,8 **	$\perp C_2$	$\perp C_2$
—	—	—	757	15 **	58 **	30 **	$\perp C_2$	$\parallel C_2$
<i>Молибдаты</i>								
CaMoO ₄	C_{4h}^6	[MoO ₄]	879,3	5,0	64	34	$\perp C_4$	$\parallel C_4$
SrMoO ₄	—	—	887,7	2,8	55	51	$\perp C_4$	$\parallel C_4$
BaMoO ₄	—	—	892,4	2,1	52	64	$\perp C_4$	$\parallel C_4$
<i>Йодаты и ниобаты</i>								
LiIO ₃	C_6^6	[IO ₃]	821,6	5,0	54	25	$\parallel C_2$	$\perp C_2$
LiNbO ₃	C_{3v}^6	[NbO ₆]	872	21,4	44	5	$\parallel C_3$	$\perp C_3$
—	—	—	632	27	166	18	$\perp C_3$	$\parallel C_3$
—	—	—	250	28	—	22	$\perp C_3$	$\parallel C_3$
LaNbO ₄	C_{2h}^3	[NbO ₄]	805	9	22	7,1	$\perp C_2$	$\parallel C_2$
<i>Фосфаты</i>								
Ca ₅ (PO ₄) ₃ F	C_{6h}^2	[PO ₄]	964,7	2,8	3,4	3,8	$\perp C_6$	$\parallel C_6$
Sr ₅ (PO ₄) ₃ F	—	—	950,3	2,8	3,4	3,8	$\perp C_6$	$\parallel C_6$
LiPO ₄ *	—	—	951	7,7	—	—	—	—
<i>Прочие</i>								
NaClO ₃ ***	—	[ClO ₃]	937	4,9 **	—	—	—	—
NaBrO ₃ ***	—	[BrO ₃]	799,5	2,5 **	—	—	—	—
NH ₄ Cl ***	O_h^1	[NH ₄]	1712	6	—	—	—	—
—	—	—	3052	85 **	—	—	—	—

Продолжение таблицы

Материал	Пространственная решеточная группа	Молекулярная группа	Частота КР ν_v , см^{-1}	Ширина линии КР $\Delta\nu$, см^{-1}	Интегральное сечение, отн. ед.	Пиковая интенсивность, отн. ед.	Геометрия рассеяния возбуждения	
							К	Е
Прочие								
NH ₄ SO ₄ ***	—	[SO ₄]	976,5	3,5	—	—	—	—
Ba ₃ (B ₃ O ₆) ₂	C_{3v}^6	[B ₃ O ₆]	636	4,5	1	0,6	C ₃	⊥ C ₃
SiO ₂	D_3^6	[SiO ₄]	464	7	2,2	1,2	⊥ C ₃	C ₃
* Поликристаллический образец.								
** Линия с неоднородным расщеплением.								
*** Неориентированный кристалл.								

ричного КР-активного A_{1g} -колебания $[\text{WO}_4]$ -комплекса (см. табл.). Оба эти фактора приводят к уменьшению виброн-решеточных взаимодействий и значительному сужению спектра КР-активного колебания, что должно проявляться в росте пикового сечения рассеяния и коэффициента ВКР-усиления.

Аналогичные закономерности мы обнаружили в ряду щелочноземельных молибдатов со структурой шеелита: CaMoO_4 , SrMoO_4 , BaMoO_4 (см. табл.). Проведенные исследования позволили предсказать [43], а впоследствии и экспериментально подтвердить [44] наличие рекордных пиковых сечений КР, а значит, и коэффициентов ВКР-усиления в кристаллах бариевых и стронциевых молибдатов и вольфраматов.

Таблица показывает сравнительные значения интегральных и пиковых коэффициентов рассеяния. Видно, что даже при более широкой линии КР-перехода новые кристаллы BaWO_4 и BaMoO_4 превосходят по пиковому сечению уникальный кристалл $\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$, а кристаллы SrWO_4 и SrMoO_4 приближаются к его значениям.

Результаты сравнительных исследований пиковых сечений спонтанного КР были впоследствии подтверждены прямыми методами измерения ВКР-усиления [45–46] и ВКР-генерации (измерение порогов), что позволяет с уверенностью говорить о перспективности новых разработанных кристаллов для ВКР-усилителей и ВКР-лазеров.

Изложенные выше результаты, на наш взгляд, успешно демонстрируют возможности лазерной спектроскопии спонтанного и вынужденного комбинационного рассеяния света не только для исследования важнейших физических процессов возбуждения и релаксации колебательных состояний в твердом теле, но и позволяют целенаправленно конструировать новые кристаллические материалы для ВКР-генераторов, предсказывая их свойства и применения в лазерной физике и квантовой электронике.

Список литературы

- Raman C V, Krishnan K S *Nature* (London) **121** 501 (1928)
- Ландсберг Г С, Мандельштам Л И *ЖРФХО* **60** 335 (1928)
- Плачек Г *Рэлеевское рассеяние и раман-эффект* (Харьков: Гостехиздат Украины, 1935)
- Woodbury E J, Ng W K *Proc. IRE* **50** 2367 (1962)
- Hellwarth R W *Phys. Rev.* **130** 1850 (1963)
- Зубов В А, Сущинский М М, Шувалов И К *УФН* **83** 2 (1964)
- Erckhart G *IEEE J. Quantum Electron.* **2** 1 (1966)
- Бломберген Н *УФН* **97** 307 (1969)
- Loudon R *Adv. Phys.* **13** 423 (1967)
- Луговой В Н *Введение в теорию вынужденного комбинационного рассеяния* (М.: Наука, 1968)
- Kaiser W, Maier M, in *Laser Handbook* Vol. 11 (Eds F T Arecchi, E O Shults-Dubois) (Amsterdam: North-Holland, 1972) p. 1077
- Грасюк А З *Квантовая электроника* **3** 485 (1974)
- Дьяков Ю Е, Никитин С Ю *Квантовая электроника* **14** 10 (1987)
- Basiev T T, Powell R C *Opt. Mater.* **11** 301 (1999)
- Zverev P G, Basiev T T, Prokhorov A M *Opt. Mater.* **11** 335 (1999)
- Белевцева Л И и др. *Опико-механическая промышленность* **56** (4) 38 (1989)
- Zverev P G et al. *Opt. Mater.* **11** 315 (1999)
- Веренберг В А, Карпунин С Н, Мочалов И В *Квантовая электроника* **14** 1849 (1987)
- Мочалов И В *Оптический журнал* (11) 4 (1995)
- Еременко А С, Карпунин С Н, Степанов А С *Квантовая электроника* **7** 196 (1980)
- Zverev P G et al. *Opt. Commun.* **97** 59 (1993)
- He Ch, Chyba T H *Opt. Commun.* **135** 273 (1997)
- Карпунин С Н, Яшин В Е *Квантовая электроника* **10** 1992 (1984)
- Войцеховский В Н, Карпунин С Н, Якобсон В Е *Оптический журнал* (11) 30 (1995)
- Басиев Т Т и др. *Изв. АН СССР Сер. физ.* **46** 1600 (1982)
- Basiev T T, Osiko V V, Mirov S B *IEEE J. Quantum Electron.* **QE-24** 1052 (1988)
- Basiev T T, Mirov S B, in *Room Temperature Tunable Color Center Lasers* (Laser Science and Technology Books Series, 16) (Chur, Switzerland: Harwood Academic Publishers, 1994) p. 1
- Басиев Т Т и др. *Квантовая электроника* **14** 2452 (1987)
- Басиев Т Т и др. *Изв. АН СССР Сер. физ.* **54** 1450 (1990)
- Zverev P G, Basiev T T, in *Proc. of All-Union Conference "Optika Lazerov"* Vol. 2 (Leningrad, 1993) p. 363
- Zverev P G, Basiev T T *J. Phys. IV* (Paris) **4** C4-599 (1994)
- Zverev P G, Basiev T T, Prokhorov A M, in *CLEO/Europe'94* (Tech. Digest 94TH0614-8, 1994) p. 154
- Zverev P G et al., in *Laser Methods of Surface Treatment and Modification* (Proc. SPIE, Vol. 2498) (Bellingham: SPIE, 1994) p. 164
- Basiev T T et al., in *CLEO/Europe'94* (Tech. Digest 94TH0614-8, 1994) p. 125
- Basiev T T et al., in *Laser Methods of Surface Treatment and Modification* (Proc. SPIE, Vol. 2498) (Bellingham: SPIE, 1994) p. 171
- Zverev P G, Basiev T T, in *OSA Proceedings on Advanced Solid State Lasers* Vol. 24 (Eds B H T Chai, S A Pain) (Washington, DC: OSA, 1995) p. 288
- Zverev P G et al., in *Advanced Solid State Lasers* Vol. 1 (Eds S A Paine, C Pollok) (Washington, DC: OSA TOPS, 1996) p. 554
- Murray J T et al. *Opt. Mater.* **11** 373 (1999)
- Басиев Т Т и др. *Письма в ЖЭТФ* **37** 192 (1983)
- Басиев Т Т, Зверев П Г *Квантовая электроника* **22** 1241 (1995)
- Zverev P G et al. *Opt. Lett.* **20** 2378 (1995)
- Basiev T T et al., in *Advanced Solid State Lasers* Vol. 19 (Eds W R Rosenberg, M M Fejer) (Washington, DC: OSA TOPS, 1998) p. 546
- Basiev T T et al. *Appl. Opt.* **38** (1999)
- Basiev T T et al. *Opt. Mater.* **11** 307 (1999)

45. Basiev T T et al., in *Proc. Laser 98 Conference, Tucson, Dec. 1998* (Eds V J Corcoran, T A Goldman) (McLean, VA: STS PRESS, 1999) p. 712
46. Basiev T T et al., in *Tech. Digest. Novel Lasers and Devices — Basic Aspects* (CLEO-EUROPE Focus Meeting 99, Munich, 1999) p. 160

PACS numbers: 42.62.-b, 61.80.Ba

Применение лазерных ударных волн для изучения теплофизических и механических свойств вещества

И.К. Красюк

Лазеры дают уникальную возможность для изучения физических свойств вещества при высоких концентрациях энергии [1]. Исследования по лазерному термоядерному синтезу показывают, например, что, воздействуя импульсным лазерным излучением на оболочечные сферические мишени, в их центре можно получить как значительное сжатие вещества мишени (1000 г см^{-3}), так и его нагрев до высоких температур (100 кэВ).

В типичных условиях при действии импульса лазерного излучения на поверхности мишени образуется высокотемпературная плазма. Гидродинамический разлет плазмы приводит к действию на мишень абляционного давления, вызванного импульсом отдачи. В результате в мишени формируется ударная волна, амплитуда которой может достигать сотен мегабар. За фронтом ударной волны происходит нагрев и сжатие вещества мишени.

Разработанные к настоящему времени экспериментальные методы позволяют использовать лазерные ударные волны для изучения термодинамических и механических характеристик вещества в экстремальных условиях. Одно из важных применений лазерных ударных волн — это создание широкодиапазонных полумпирических уравнений состояния вещества. При этом появляется возможность проникнуть в ранее неизученные области фазовых диаграмм.

Метод исследования основан на использовании алгебраических соотношений между гидродинамическими величинами на поверхности разрыва, являющихся следствием общих законов сохранения массы, импульса и давления [2]:

$$\begin{aligned} P &= P_0 + U \frac{D}{V_0}, \\ V &= (D - U) \frac{V_0}{D}, \\ E &= E_0 + 0,5(P_0 + P)(V_0 - V). \end{aligned} \quad (1)$$

Здесь V — удельный объем, P — давление, E — внутренняя энергия, D — скорость фронта ударной волны по невозмущенному веществу, U — массовая скорость, т.е. скорость частиц за фронтом ударной волны, индекс "0" относится к величинам, характеризующим невозмущенное вещество перед фронтом ударной волны.

Регистрируя любые два из пяти параметров P , V , D , U , E , с помощью соотношений (1) можно найти гидродинамические и термодинамические характеристики вещества и установить связь между ними с помощью калориче-

ского уравнения состояния

$$E = E(P, V). \quad (2)$$

В случае металлов обычно измеряют кинематические параметры D и U . Измерения сводятся к регистрации времен, за которые фронт ударной волны проходит фиксированные (базисные) расстояния. Точность измерения фазовой D и групповой U скоростей движения ударной волны в практически важных случаях должна быть не хуже 5–10 %.

Использование динамических методов диагностики, основанных на соотношениях (1), для получения ударных адиабат предполагает стационарность и одномерность гидродинамических течений исследуемого вещества. Стационарность и одномерность обеспечиваются выбором толщины мишени и диаметра пятна облучения. Начальное состояние мишени также имеет существенное значение, поскольку лазерная генерация ударных волн связана с образованием на лицевой поверхности мишени высокотемпературной плазмы, вследствие чего возможен предпрогрев вещества мишени рентгеновским излучением плазменной короны и потоком быстрых электронов.

Наличие уравнения состояния в калорическом виде (2) позволяет проводить гидродинамические расчеты адиабатических течений вещества. Однако учет процессов с теплопереносом или излучением требует явного задания температуры как функции давления и объема:

$$T = T(P, V). \quad (3)$$

В случае металлов прямое измерение температуры вещества за фронтом ударной волны оптическими методами представляет собой весьма сложную задачу, главным образом из-за наличия экранировки излучения из горячих областей мишени парами вещества в волне разгрузки. Отметим, что вследствие экспериментальных трудностей и неоднозначности интерпретации получаемых данных лишь небольшое число имеющихся работ по лазерной генерации ударных волн посвящено прямому измерению температуры вещества за фронтом ударной волны в металлах.

Из-за короткой длительности воздействия экспериментальное изучение термодинамических свойств вещества с помощью лазерных ударных волн достаточно затруднительно. Возникает необходимость удовлетворить ряд требований на конструкцию и точность изготовления мишени, качество и мощность лазерного пучка, пространственное и временное разрешение регистрирующей аппаратуры.

При типичной длительности лазерного воздействия около 1 нс толщина мишени не должна превышать 15–20 мкм, а диаметр пятна облучения должен быть не менее 150–200 мкм. Возникающие экспериментальные трудности могут быть преодолены применением измерительной аппаратуры с высоким временным и пространственным разрешением и выполнением особых требований к точности и чистоте изготовления мишеней из исследуемого материала.

Другое направление, связанное с применением лазерных ударных волн, — это исследование механических свойств вещества при сверхвысоких скоростях деформирования. При отражении ударной волны от тыльной поверхности мишени вблизи нее возникает область растягивающих напряжений ("отрицательных" давле-