

НЕСТАЦИОНАРНОЕ ВЫНУЖДЕННОЕ КОМБИНАЦИОННОЕ РАССЕЯНИЕ В КРИСТАЛЛАХ ПРИ ДВИЖЕНИИ НАСЕЛЕННОСТЕЙ КОЛЕБАТЕЛЬНЫХ СОСТОЯНИЙ

*С. Н. Сметанин**

*Институт общей физики им. А. М. Прохорова Российской академии наук
119991, Москва, Россия*

Поступила в редакцию 12 февраля 2014 г.

Дан анализ процесса нестационарного вынужденного комбинационного рассеяния (ВКР) в кристаллах с учетом движения населенностей колебательных состояний под действием субпикосекундных (короче времени дефазировки) импульсов накачки. Найдены аналитические выражения, описывающие динамику возбуждения колебаний при ВКР. Установлено, что при малых длинах ВКР-взаимодействия и высоких интенсивностях излучения накачки, которые имеют место при фемтосекундном ВКР в кристаллах, лавинное возбуждение колебаний может являться причиной подавления ВКР. Показано, что обеспечение синхронизма стокс-антискосовой параметрической связи при нестационарном ВКР позволяет повысить эффективность частотного преобразования в условиях движения населенностей колебательных состояний, что объясняет недавние успешные результаты экспериментальной реализации фемтосекундного ВКР в кристаллах при накачке беселевым пучком.

DOI: 10.7868/S0044451014070050

1. ВВЕДЕНИЕ

Вынужденное комбинационное рассеяние (ВКР) является одним из важнейших направлений нелинейной оптики, тесно связанным с задачами лазерной физики по созданию источников когерентного излучения с уникальными энергетическими, спектральными, временными и пространственными характеристиками. ВКР-преобразователи частоты осуществляют сдвиг частоты лазерного излучения накачки в более длинные волны, что по результату подобно лазерной генерации при лазерной накачке, поэтому их также называют ВКР-лазерами, но в отличие от лазеров принцип работы ВКР-преобразователей частоты в основном обусловлен не инверсией населенности, а поляризацией среды. В большинстве случаев движением населенностей при ВКР можно пренебречь. В особенности это справедливо для стационарного ВКР, когда длительность импульсов лазерного излучения накачки существенно превышает время дефазировки колебаний среды. При сокращении длительности импульса накач-

ки, когда процесс ВКР становится нестационарным, влияние движения населенностей колебательных состояний должно возрасти. Однако нестационарное ВКР обычно также рассматривается в пренебрежении движением населенностей колебательных состояний [1–4], что оказывается оправданным для пикосекундного ВКР в кристаллах, когда длительность импульса накачки превышает время дефазировки колебаний, имеющее порядок пикосекунды для большинства кристаллов [5].

Из работ [1–5] следует, что при сокращении длительности импульса накачки до величин меньших времени дефазировки колебаний интенсивность накачки нужно сильно увеличивать, так как ВКР в таком существенно нестационарном режиме определяется не интенсивностью, а плотностью энергии возбуждения [1, 2]. Из-за повышения требуемой интенсивности импульса накачки при сокращении его длительности экспериментальная реализация фемтосекундного ВКР сталкивается с рядом трудностей, связываемых обычно с проявлением других конкурирующих явлений, таких как фазовая само-модуляция, фазовая кросс-модуляция, дисперсионное разбегание импульсов и генерация суперконтинуума [6, 7].

*E-mail: ssmetanin@bk.ru

В газах, имеющих низкие нелинейный показатель преломления и дисперсию показателя преломления, данные паразитные эффекты проявляются слабо и не подавляют фемтосекундное ВКР [7], но в жидкостях и твердых телах, в которых нелинейный показатель преломления и дисперсия, наоборот, высоки, реализация фемтосекундного ВКР требует применения специальных методов подавления указанных паразитных явлений. Например, для получения фемтосекундных стоковых импульсов при ВКР в кристаллах $\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$ [6] и $\text{KGd}(\text{WO}_4)_2$ [8, 9] использовалось предварительное chirпирование импульса накачки, обеспечивающее высокоэффективное субнаносекундное ВКР с последующей компрессией стокова импульса ВКР-излучения. Для непосредственной фемтосекундной ВКР-генерации в жидкости (вода) [10] и в кристалле ($\text{KGd}(\text{WO}_4)_2$) [11, 12] была использована накачка бесселевым пучком, сфокусированным с помощью аксикона.

При chirпировании импульсов благодаря уменьшению их интенсивности устраняется вредное влияние конкурирующих нелинейных явлений, но импульсы приобретают внешнюю фазовую модуляцию. Однако это не препятствует реализации ВКР, так как фазовый синхронизм двухфотонного процесса ВКР не чувствителен к изменению фаз взаимодействующих волн. Можно предположить, что и фазовая самомодуляция, которая традиционно считается основной причиной подавления фемтосекундного ВКР [6, 8], также не должна сильно ухудшать процесс ВКР-преобразования. Это подтверждается реализацией фемтосекундного ВКР при накачке бесселевым пучком [10–12], при которой ослаблялось влияние дисперсионного разбегания импульсов, но интенсивность накачки оставалась высокой для проявления фазовой самомодуляции.

Увеличение интенсивности накачки должно приводить не только к появлению конкурирующих нелинейных эффектов при ВКР, но и к заметному движению населенностей колебательных состояний. Учет перехода в возбужденное колебательное состояние в теории ВКР был произведен еще на заре нелинейной оптики [13], но долгое время не был востребован, так как в большинстве практически реализуемых случаев движение населенностей колебательных состояний слабо сказывается на процессе ВКР несмотря на то, что возбуждение колебаний при нестационарном ВКР может быть значительным [14, 15]. Анализ динамики процесса ВКР с учетом движения населенностей колебательных состояний ранее проводился только для наиболее коротких импульсов, короче периода колебания ВКР-среды (едини-

цы фемтосекунд) [16]. Была установлена качественно новая физика процессов, когда динамика светового поля обусловлена изменением не числа фотонов, а их энергии при переходе колебательного резонанса в возбужденное состояние. В работе [17] в пренебрежении динамикой светового поля, что справедливо при предельно малой длине взаимодействия и непрерывной накачке, также рассмотрена динамика движения населенностей колебательных состояний при ВКР, которая заключается в лавинном переходе ВКР-среды в возбужденное колебательное состояние с задержкой во времени, сокращающейся при увеличении интенсивности возбуждения. Однако бесконечно малая длина ВКР-взаимодействия нереализуема на практике. Теоретический анализ движения населенностей колебательных состояний при ВКР в общем случае отсутствует в литературе, поэтому до сих пор неизвестны условия, при которых оно может быть существенно в эксперименте.

В настоящей работе теоретически рассматривается динамика процесса ВКР в кристаллах с учетом движения населенностей колебательных состояний под действием субпикосекундных (меньше времени дефазировки) импульсов накачки. Установлено, что лавинное возбуждение колебаний может являться причиной подавления фемтосекундного ВКР в кристаллах при малой длине взаимодействия. Показано, что стимулирование стокс-антистоксовой связи при ВКР позволяет преодолеть данную проблему.

2. ТЕОРЕТИЧЕСКИЙ АНАЛИЗ ДВИЖЕНИЯ НАСЕЛЕННОСТЕЙ КОЛЕБАТЕЛЬНЫХ СОСТОЯНИЙ ПРИ ВКР

Нестационарное взаимодействие излучения с ВКР-средой может быть описано связанными уравнениями [13]

$$\frac{\partial^2 E}{\partial z^2} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 (\epsilon E)}{\partial t^2} = \frac{4\pi}{c^2} N_V \frac{\partial \alpha}{\partial Q} \frac{\partial^2 (QE)}{\partial t^2}, \quad (1)$$

$$\frac{\partial^2 Q}{\partial t^2} + \frac{1}{T_2} \frac{\partial Q}{\partial t} + \Omega^2 Q = \frac{1}{2m} \frac{\partial \alpha}{\partial Q} E^2 n, \quad (2)$$

$$\frac{\partial n}{\partial t} + \frac{n-1}{T_1} = -\frac{1}{\hbar \Omega} \frac{\partial \alpha}{\partial Q} E^2 \frac{\partial Q}{\partial t}, \quad (3)$$

где E — электрическая напряженность излучения, Q — амплитуда колебаний ВКР-среды, Ω — центральная частота колебаний, T_1 и T_2 — времена продольной (время жизни возбужденного колебательного состояния) и поперечной (время дефазировки колебаний) релаксации колебаний ($T_1 \geq T_2$), m и N_V — эффективная масса и концентрация колеблющихся

частиц, $\partial\alpha/\partial Q$ — коэффициент изменения поляризуемости среды, ε — диэлектрическая проницаемость среды, n — разность населенностей основного и возбужденного колебательных состояний, нормированная на число колеблющихся частиц.

При использовании метода медленноменяющихся амплитуд легко прийти к укороченным уравнениям для резонансного взаимодействия квазимонохроматических волн лазерной накачки с частотой ω_L и стоксовой ВКР-компоненты излучения с частотой $\omega_S = \omega_L - \Omega$:

$$\frac{\partial E_L}{\partial z} + \frac{1}{u_L} \frac{\partial E_L}{\partial t} + \mu_L E_L = -i \frac{\pi \omega_L^2 N_V}{k_L c^2} \frac{\partial \alpha}{\partial Q} q_{LS} E_S, \quad (4)$$

$$\frac{\partial E_S}{\partial z} + \frac{1}{u_S} \frac{\partial E_S}{\partial t} + \mu_S E_S = -i \frac{\pi \omega_S^2 N_V}{k_S c^2} \frac{\partial \alpha}{\partial Q} q_{LS}^* E_L, \quad (5)$$

$$\frac{\partial q_{LS}}{\partial t} + \frac{1}{2T_2} q_{LS} = -\frac{i}{4m\Omega} \frac{\partial \alpha}{\partial Q} E_L E_S^* n, \quad (6)$$

$$\frac{\partial n}{\partial t} + \frac{n-1}{T_1} = -\frac{i}{4\hbar} \frac{\partial \alpha}{\partial Q} (E_L^* E_S q_{LS} - E_L E_S^* q_{LS}^*), \quad (7)$$

где E_L и E_S — медленноменяющиеся комплексные амплитуды соответственно волн лазерной накачки и стоксовой ВКР-компоненты; $\omega_{L,S}$, $k_{L,S}$ и $u_{L,S}$ — соответственно их частоты, волновые числа и групповые скорости; q_{LS} — медленноменяющаяся комплексная амплитуда колебания среды, раскачиваемого на разностной частоте $\Omega = \omega_L - \omega_S$ волн лазерной накачки и стоксовой ВКР-компоненты. В волновые уравнения (4) и (5) также формально введены слагаемые $\mu_{L,S} E_{L,S}$, ответственные за потери, где $\mu_{L,S}$ — коэффициенты потерь для соответствующих амплитуд.

Поведение системы в пренебрежении динамикой светового поля, справедливом при бесконечно малой длине ВКР-взаимодействия, было проанализировано в работе [17]. Согласно данному анализу, полагая $\partial E_{L,S}/\partial z = 0$ и $\partial E_{L,S}/\partial t = 0$, систему уравнений (4)–(7) легко свести к одному уравнению для движения населенностей колебательных состояний:

$$\frac{\partial n}{\partial t} = -\frac{1}{\tau} (1 - n^2), \quad (8)$$

где

$$\frac{1}{\tau} = \frac{\pi \omega_S^2 N_V}{8m\Omega k_S c^2 \mu_S} \left(\frac{\partial \alpha}{\partial Q} \right)^2 |E_L|^2.$$

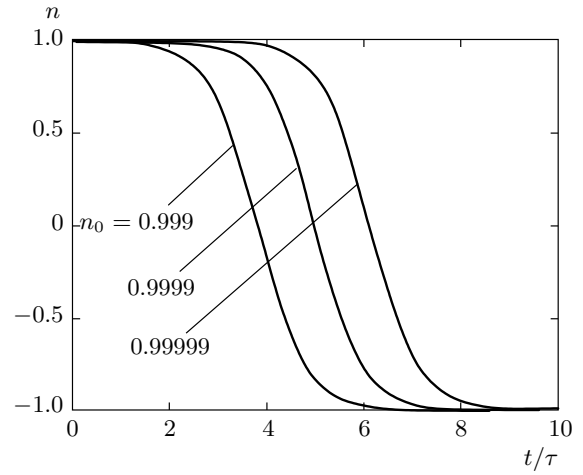


Рис. 1. Динамика колебательного возбуждения согласно выражению (9)

Уравнение (8) имеет решение

$$n(t) = -\operatorname{th} \frac{t - t_0}{\tau}, \quad (9)$$

где

$$t_0 = \frac{\tau}{2} \ln \frac{1 + n_0}{1 - n_0}$$

— временная задержка лавинного возбуждения колебаний ($n(t_0) = 0$), n_0 — начальное значение разности населенностей основного и возбужденного колебательных состояний, которое близко к единице. Выражение (9) описывает лавинный переход из основного ($n_0 \approx 1$) в возбужденное колебательное состояние ($n \rightarrow -1$) с временной задержкой t_0 . Такое поведение системы хорошо известно из теории кооперативного излучения многоатомных систем [18]. Задержка t_0 увеличивается при снижении интенсивности возбуждения $I_L \sim |E_L|^2 \sim 1/\tau$ и повышении начальной разности населенностей $n_0 \rightarrow 1$ (рис. 1).

Движение населенностей колебательных состояний, определяемое решением (9), является идеализированным и не может наблюдаться на практике, так как приближение неизменности светового поля при ВКР может быть использовано только при бесконечно малой длине ВКР-взаимодействия ($L \rightarrow 0$). Дело в том, что даже в случае неистощенной (неизменной) накачки стоксово поле быстро экспоненциально нарастает с координатой не только в стационарном, но и в нестационарном режиме ВКР. Это следует из аналитического решения системы уравнений (4)–(6), проведенного в работах [1–3] при неистощенной накачке и в пренебрежении движением населенностей колебательных состояний ($n = 1$). В работе [3] представлено интересующее нас решение для

случая $t_L \leq T_2$ и $n = 1$ (при большом значении ВКР-усиления решение справедливо и для случая $t_L > T_2$):

$$|E_S(z, t')|^2 = |E_S(0, t')|^2 \times I_0^2 \left(\sqrt{\frac{gz}{T_2} \int_{-\infty}^{t'} I_L(t) dt} \right), \quad (10)$$

где $t' = t - z/u$ — локальное время, бегущее с групповой скоростью света $u \approx u_L \approx u_S$;

$$g = \frac{8\pi^2 T_2 N_V \omega_S}{m \Omega c^2 n_L n_S} \left(\frac{\partial \alpha}{\partial Q} \right)^2$$

— коэффициент ВКР-усиления, измеряемый в см/Вт;

$$I_L(t') = \frac{cn_L}{8\pi} |E_L(t')|^2$$

— интенсивность импульса накачки, измеряемая в Вт/см²; $n_{L,S}$ — показатели преломления соответственно для волны накачки и стоксовой волны; $I_0(x)$ — модифицированная функция Бесселя первого рода нулевого порядка (x — ее аргумент в выражении (10)).

В работе [1] при решении была использована аппроксимация $I_i(x) \approx e^x / \sqrt{2\pi x}$ ($i = 0$ или $i = 1$ — порядок модифицированной функции Бесселя), что преобразует выражение (10) в экспоненциальную зависимость

$$|E_S(z, t')|^2 = \frac{|E_S(0, t')|^2}{2\pi \sqrt{\frac{gz}{T_2} \int_{-\infty}^{t'} I_L(t) dt}} \times \exp \left(2 \sqrt{\frac{gz}{T_2} \int_{-\infty}^{t'} I_L(t) dt} \right). \quad (11)$$

В работе [1] знаменатель в коэффициенте перед экспонентой был опущен, что справедливо при большой величине показателя экспоненты.

Теперь займемся решением полной системы уравнений (4)–(7) с учетом движения населенностей колебательных состояний. В уравнение (7) подставим q_{LS}^* и q_{LS} , выраженные из формулы (5) при введении локального времени $t' = t - z/u$ и пренебрежении потерями μ_S . Получим уравнение

$$\frac{\partial n}{\partial t'} + \frac{n-1}{T_1} = -\frac{cn_S}{4\hbar\omega_S\pi N_V} \frac{\partial (|E_S(z, t')|^2)}{\partial z}. \quad (12)$$

В уравнение (12) для движения населенностей колебательных состояний подставим выражение (10) для

изменения амплитуды стоксовой волны при $n = 1$ и пренебрежем вторым слагаемым в левой части уравнения (12) (приближение короткого импульса $t_L < T_1$). Это даст нам приближенное аналитическое решение, справедливое для значений n , мало отличающихся от единицы, но это позволит определить момент начала лавинного перехода в возбужденное колебательное состояние, когда n начинает стремительно падать, как в идеализированном случае (формула (9)). Получим частично проинтегрированное выражение

$$n(z, t') = 1 - \frac{2I_S(0, t')}{\hbar\omega_S N_V z} \int_{-\infty}^{t'} \sqrt{\frac{gz}{T_2} \int_{-\infty}^{t''} I_L(t) dt} \times I_0 \left(\sqrt{\frac{gz}{T_2} \int_{-\infty}^{t''} I_L(t) dt} \right) \times I_1 \left(\sqrt{\frac{gz}{T_2} \int_{-\infty}^{t''} I_L(t) dt} \right) dt'', \quad (13)$$

где

$$I_S(0, t') = \frac{cn_S}{8\pi} |E_S(0, t')|^2,$$

$I_{0,1}(x)$ — модифицированные функции Бесселя первого рода соответственно нулевого и первого порядков (x — их аргумент в выражении (13)).

Для случая прямоугольного импульса накачки получим решение

$$n(z, t') = 1 - \frac{2I_S(0, t')t'}{\hbar\omega_S N_V z} I_1^2 \left(\sqrt{\frac{gzI_L t'}{T_2}} \right), \quad (14)$$

где I_L — интенсивность прямоугольного импульса накачки. При ВКР-генерации форма затравочного стоксова сигнала задается формой импульса накачки, т. е. $I_S(0, t') = sI_L$, где $s \ll 1$ — затравочный коэффициент. Выражение (14) описывает процесс лавинного перехода в возбужденное колебательное состояние, который происходит с временной задержкой t'_0 , которую по аналогии с выражением (9) можно определить как соответствующую уменьшению n до нуля, т. е. $n(z, t'_0) = 0$. При этом временная задержка t'_0 находится из неявного выражения

$$1 - \frac{2sI_L t'_0}{\hbar\omega_S N_V z} I_1^2 \left(\sqrt{\frac{gzI_L t'_0}{T_2}} \right) = 0. \quad (15)$$

Значение t'_0 можно выявить, принимая во внимание, что в коэффициенте перед квадратом бesselевой функции зависимость от t'_0 слаба, поэтому там

можно заменить t'_0 на длительность импульса накачки t_L . Тогда, применяя аппроксимацию $I_1(x) \approx \approx e^x / \sqrt{2\pi x}$, получим искомое выражение

$$t'_0(z) \approx \frac{T_2}{4gLz} \left(\ln \frac{\pi \hbar \omega_S N_V z \sqrt{gz}}{s \sqrt{I_L t_L T_2}} \right)^2. \quad (16)$$

Значения $t'_0(z)$ из выражения (16) оказываются близкими к определяемым неявным выражением (15), но нужно отметить, что в точном выражении (15) отсутствует зависимость времени задержки $t'_0(z)$ от длительности импульса накачки t_L .

Теперь нужно связать полученные характеристики движения населенностей колебательных состояний с процессом ВКР-генерации, который обычно характеризуется экспериментальным порогом. Влияние других нелинейных и дисперсионных эффектов в первом приближении учтем как факторы, ограничивающие длину эффективного ВКР-взаимодействия. Поэтому введем эффективную длину ВКР-взаимодействия L , на которой, можно считать, проявляются только ВКР и движение населенностей колебательных состояний, а при превышении L процесс ВКР подавляется под действием других нелинейных (фазовая самомодуляция и кросс-модуляция) и дисперсионных эффектов.

Экспериментальный порог ВКР связывается с условиями, при которых ВКР-излучение начинает заметно истощать излучение накачки. Это происходит, когда инкремент экспоненциального нарастания интенсивности ВКР-излучения достигает значения $G_{th} \approx 25$ [5, 19], которое условно считается пороговым. Затравочный коэффициент s (в выражениях (15) и (16)) может быть оценен из условия однопроцентной эффективности ВКР-преобразования при пороговом значении инкремента стационарного ВКР-усиления $G_{th} = gI_L L \approx 25$, где L — эффективная длина взаимодействия, т. е. $0.01I_L \approx sI_L e^{25}$, откуда имеем $s \approx 10^{-13}$. Интенсивность излучения накачки I_L также можно связать с пороговым значением I_L^{th} как $I_L = pI_L^{th}$, где p — превышение порога ВКР-генерации по интенсивности. Пороговую интенсивность накачки можно найти, приравняв инкремент нестационарного ВКР-усиления $\ln(|E_S(L, t_L)|^2 / |E_S(0, t_L)|^2)$ из выражения (11) к пороговому значению $G_{th} \approx 25$. Для прямоугольного импульса накачки получим неявное выражение для пороговой интенсивности накачки:

$$2\sqrt{\frac{gI_L^{th} L t_L}{T_2}} - \ln \left(2\pi \sqrt{\frac{gI_L^{th} L t_L}{T_2}} \right) \approx 25. \quad (17)$$

Второе слагаемое в формуле (17) заметно меньше

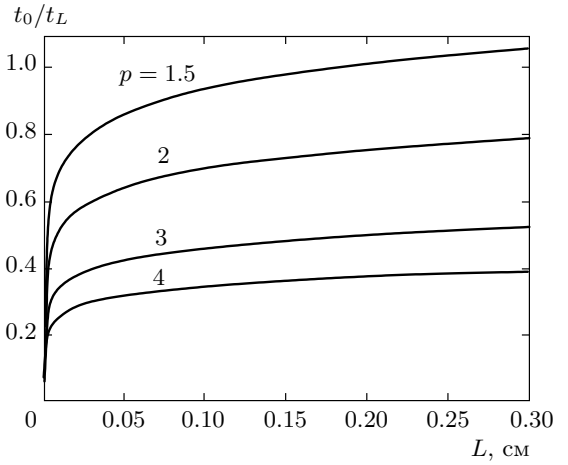


Рис. 2. Зависимости отношения времени задержки движения населенностей колебательных состояний к длительности импульса накачки $t'_0(L)/t_L$ от эффективной длины ВКР-взаимодействия L при различных значениях превышения порога ВКР p для кристалла BaWO_4

первого (им часто пренебрегают), поэтому I_L^{th} можно выявить методом приближений. В первом приближении выразим I_L^{th} , пренебрегая вторым слагаемым в формуле (17), а во втором приближении полученное значение I_L^{th} подставим во второе слагаемое выражения (17). Получим выражение

$$I_L^{th} \approx \frac{T_2}{4gLt_L} (25 + \ln(25\pi))^2 \approx 216 \frac{T_2}{gLt_L}, \quad (18)$$

тогда интенсивность накачки можно записать как

$$I_L = pI_L^{th} \approx p216 \frac{T_2}{gLt_L}. \quad (19)$$

Подстановка (19) в (16) дает выражение

$$t'_0(z) \approx \frac{t_L L}{4p216z} \left(\ln \frac{\pi \hbar \omega_S N_V g z \sqrt{zL}}{s T_2 \sqrt{p216}} \right)^2. \quad (20)$$

Из выражения (20) следует, что отношение $t'_0(z)/t_L$ не зависит от длительности импульса накачки t_L , но уменьшается при увеличении превышения порога ВКР p и уменьшении эффективной длины ВКР-взаимодействия L . Наименьшее значение $t'_0(z)$ наблюдается при $z = L$. Зависимость $t'_0(z)$ от параметров ВКР-среды выражается, в основном, отношением g/T_2 , характеризующим интегральное сечение комбинационного рассеяния, которое не сильно различается для эффективных ВКР-кристаллов групп вольфрамов и молибдатов [19], поэтому выражение (20) имеет слабую

зависимость от индивидуальных параметров ВКР-кристаллов (g и T_2). На рис. 2 представлены зависимости отношения $t'_0(L)/t_L$ от эффективной длины ВКР-взаимодействия L при четырех значениях превышения порога ВКР: $p = 1.5, 2, 3, 4$. Для построения были взяты параметры кристалла BaWO_4 : $T_2 = 6.6$ пс [19] и $g = 11$ см/ГВт при $\lambda_L = 0.8$ мкм [20].

На рис. 2 видно, что нормированная задержка $t'_0(L)/t_L$ сокращается при уменьшении эффективной длины ВКР-взаимодействия, поэтому влияние движения населенностей колебательных состояний на ВКР должно проявляться при острой фокусировке излучения накачки с малой длиной перетяжки пучка или при накачке фемтосекундными лазерными импульсами, при которых эффективная длина взаимодействия ограничена уменьшением интенсивности импульса накачки при фазовой самомодуляции, уменьшением интенсивности стока импульса при фазовой кросс-модуляции и дисперсионным разбеганием данных импульсов.

3. ЧИСЛЕННОЕ МОДЕЛИРОВАНИЕ НЕСТАЦИОНАРНОГО ВКР С УЧЕТОМ ДВИЖЕНИЯ НАСЕЛЕННОСТЕЙ КОЛЕБАТЕЛЬНЫХ СОСТОЯНИЙ

На рис. 3 представлены результаты математического моделирования процесса ВКР с учетом движения населенностей колебательных состояний при превышении порога ВКР, равном $p = 4$. При этом численно решалась система уравнений (4)–(7) при входных параметрах, соответствующих кристаллу BaWO_4 ($T_2 = 6.6$ пс, $\Omega/(2\pi c) = 926$ см $^{-1}$ [19], $g = 11$ см/ГВт при $\lambda_L = 0.79$ мкм [20]), и накачке прямоугольным импульсом длительностью $t_L = 500$ фс с длиной волны $\lambda_L = 0.79$ мкм. Затравочный коэффициент для ВКР-генерации стоковой волны принимался равным $s = 10^{-13}$ ($I_S(z = 0) = sI_L^{in}$, где I_L^{in} — интенсивность прямоугольного импульса накачки на входе среды). Неизвестное для кристалла BaWO_4 значение времени жизни возбужденного колебательного состояния T_1 подчиняется условию $T_1 \geq T_2$ [14]. Результаты, представленные на рис. 3 (и далее), соответствуют принятию $T_1 = T_2$. Однако нужно отметить, что увеличение значения времени жизни возбужденного колебательного состояния $T_1 > T_2$ не показало заметных различий в результатах численных расчетов, что обусловлено малостью используемой длительности импульса накачки (t_L меньше T_2 более чем на порядок), поэтому в уравнении динамики населенности (7) второе слагаемое в

левой части пренебрежимо мало, и соответственно, результаты математического моделирования фемтосекундного ВКР практически не зависят от величины T_1 .

При нормировке времени t на длительность импульса накачки t_L , а интенсивностей $I_{L,S}$ компонент излучения — на входную интенсивность накачки I_L^{in} — полученные результаты оказались слабо зависящими от длительности импульса накачки в диапазоне значений $t_L \leq T_2$. Это обусловлено тем, что превышение порога ВКР p есть универсальный параметр, определяющий требуемую интенсивность накачки по выражению (19) для различных длительностей импульса накачки и параметров ВКР-среды.

Характер зависимостей почти не менялся при использовании в качестве ВКР-сред других кристаллов: CaWO_4 ($g = 2.2$ см/ГВт, $T_2 = 1.5$ пс, $\Omega/(2\pi c) = 911$ см $^{-1}$ [5]), SrWO_4 ($g = 4.7$ см/ГВт, $T_2 = 3.9$ пс, $\Omega/(2\pi c) = 921$ см $^{-1}$ [5]), $\text{KGd}(\text{WO}_4)_2$ ($g = 5$ см/ГВт, $T_2 = 2$ пс, $\Omega/(2\pi c) = 901$ см $^{-1}$ [5]). Было замечено только слабое снижение эффективности частотного преобразования при уменьшении отношения g/T_2 , так как инкремент ВКР-усиления в нестационарном режиме имеет близкую к линейной зависимость от $\sqrt{g/T_2}$ (см. выражение (11)), что подтверждается физическими экспериментами с различными ВКР-кристаллами [5].

Из рис. 3 следует, что при короткой эффективной длине взаимодействия $L = 0.03$ см (рис. 3а) переход в возбужденное колебательное состояние ($n \rightarrow -1$) приводит к подавлению ВКР — интенсивность генерируемого ВКР-излучения достигает пика, который оказывается существенно ниже, чем без учета движения населенностей. Увеличение эффективной длины взаимодействия L в два (рис. 3б) и три (рис. 3в) раза ослабляет действие движения населенностей колебательных состояний из-за увеличения времени задержки t'_0 (рис. 2) лавинного перехода в возбужденное колебательное состояние. На рис. 3 штрихпунктирными линиями показаны результаты аналитических оценок начального движения населенностей колебательных состояний по формуле (14), которые оказываются близкими к численным результатам начального изменения разности населенностей колебательных состояний при $n \geq 0$ в любой точке среды.

Заметим, что нестационарный процесс ВКР без учета движения населенностей (штриховые линии на рис. 3) также представляет собой периодические осцилляции ВКР-генерации и истощения накачки, но это не вызвано возбуждением колебаний. В пике осцилляций ВКР-излучение полностью истоща-

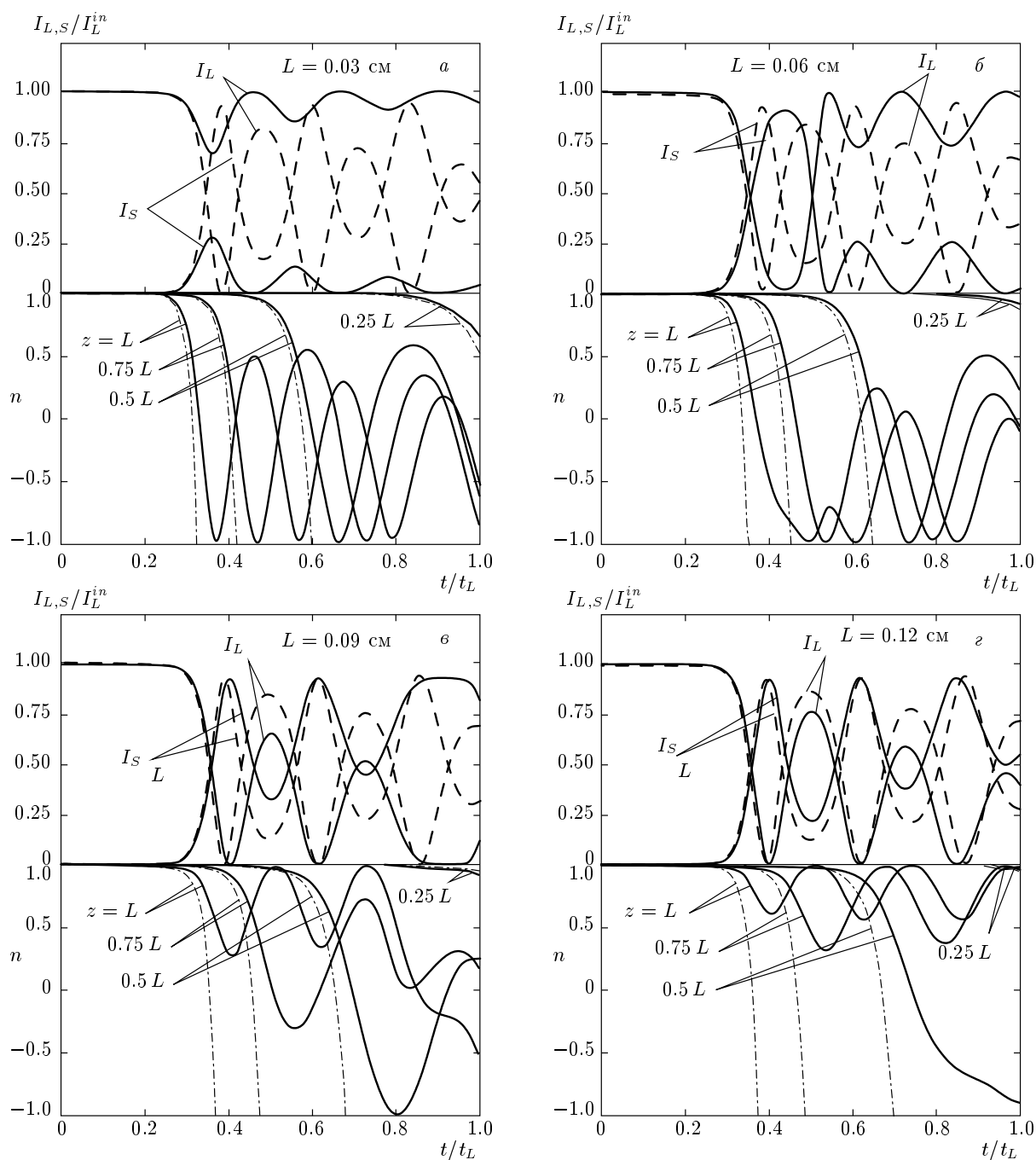


Рис. 3. Расчетная динамика ВКР-преобразования излучения накачки с интенсивностью I_L в стоксову ВКР-компоненту с интенсивностью I_S и движения населенностей колебательных состояний n (при указанных значениях координаты среды z) при превышении порога ВКР $p = 4$ и разной эффективной длине ВКР-взаимодействия L для кристалла ВаWO₄. Штриховые линии — результат ВКР-преобразования излучения без учета движения населенностей колебательных состояний (при $n = 1$). Штрихпунктирные линии — теоретическая оценка движения населенностей колебательных состояний по формуле (14)

ет излучение накачки, что приводит к завершению очередной осцилляции ВКР-излучения и прекращению истощения накачки, и далее процесс повторяется. Влияние движения населенностей колебательных состояний (сплошные линии на рис. 3) приводит к тому, что из-за оттока энергии на возбуждение колебаний процесс ВКР-преобразования замедляется, что уменьшает интенсивность и увеличивает длительность осцилляций ВКР-излучения, а в пиках ВКР-генерации истощение накачки оказывается не полным. При увеличении эффективной длины ВКР-взаимодействия до $L = 0.09\text{--}0.12$ см (рис. 3в,г) наблюдается оптимальная ситуация для эффективного ВКР-преобразования, когда влияние движения населенностей ослабляется настолько, что осцилляции ВКР-излучения оказываются столь же высокими, как без учета движения населенностей, но длительность их больше, поэтому ВКР-излучение в промежутках между осцилляциями подавляется слабее, а энергетическая эффективность ВКР-преобразования оказывается выше (47% на рис. 3в и 40% на рис. 3г), чем без учета движения населенностей (35% на рис. 3а-г). При дальнейшем увеличении L движение населенностей колебательных состояний в процессе ВКР-преобразования проявляется все слабее и им можно пренебречь.

Итак, при уменьшении эффективной длины L ВКР-взаимодействия движение населенностей колебательных состояний сначала приводит к увеличению энергетической эффективности ВКР, а при дальнейшем уменьшении L , проявляясь все сильнее, оно, в конечном счете, подавляет ВКР. Введем оптимальную L_{opt} и критическую L_{cr} длины ВКР-взаимодействия. Пусть оптимальная длина L_{opt} соответствует эффективной длине ВКР-взаимодействия, при которой для данного превышения порога ВКР p энергетическая эффективность ВКР-преобразования максимальна, а критическая длина L_{cr} соответствует эффективной длине ВКР-взаимодействия, при которой для данного превышения порога ВКР p энергетическая эффективность ВКР-преобразования в два раза меньше, чем без учета движения населенностей.

Мы проводили численные решения системы уравнений (4)–(7) при различных L и p для ВКР-кристаллов $BaWO_4$, $CaWO_4$, $SrWO_4$ и $KGd(WO_4)_2$. В результате были получены расчетные зависимости оптимальной L_{opt} и критической L_{cr} длин ВКР-взаимодействия, а также энергетических эффективностей ВКР-преобразования η при $L \gg L_{opt}$ (когда движение населенностей колебательных состояний не проявляется) и η_{max} при

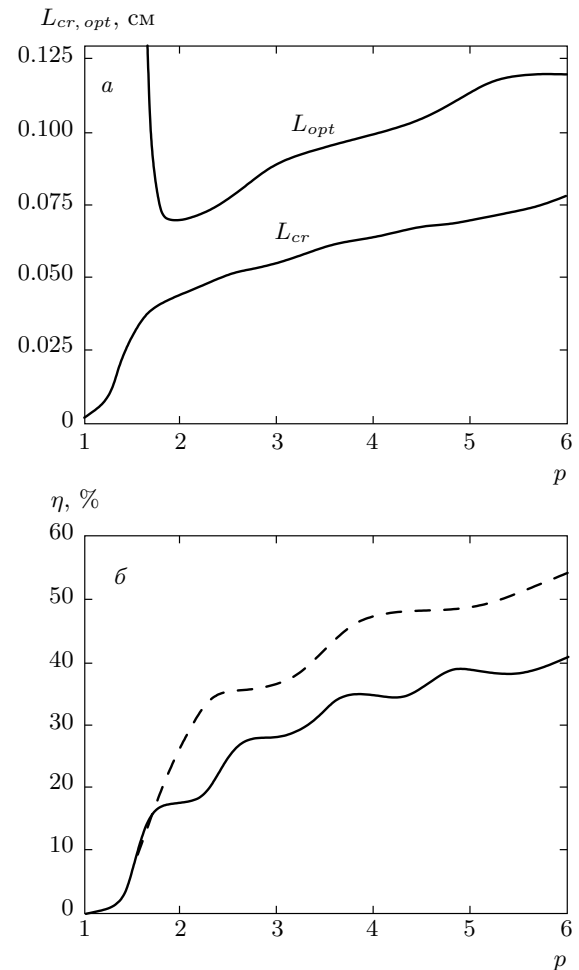


Рис. 4. а) Расчетные зависимости оптимальной L_{opt} и критической L_{cr} длин ВКР-взаимодействия, б) энергетических эффективностей ВКР-преобразования η при $L \gg L_{opt}$ (когда движение населенностей колебательных состояний не проявляется, сплошная линия) и η_{max} при $L = L_{opt}$ (штриховая линия) от превышения порога ВКР p

$L = L_{opt}$ от превышения порога ВКР p , показанные на рис. 4. Зависимости оказались одинаковыми для всех рассмотренных кристаллов.

На рис. 4а видно, что при увеличении превышения порога ВКР p критическая длина L_{cr} возрастает от нуля на пороге ВКР. При увеличении p скорость роста L_{cr} уменьшается: при $p = 3$ мы имеем $L_{cr} = 0.055$ см, а при $p = 6$ получаем $L_{cr} = 0.078$ см.

Зависимость оптимальной длины L_{opt} (рис. 4а) имеет иной характер. При малом значении превышения порога ВКР $p \approx 1.6$ она стремится в бесконечность. Нужно заметить, что ВКР-генерация происходит в режиме осцилляций интенсивности

ВКР-излучения, а движение населенностей колебательных состояний при L_{opt} расширяет данные осцилляции, что увеличивает энергетическую эффективность ВКР (см. рис. 3). При $p < 1.6$ режим ВКР является припороговым, когда не сформировано еще ни одного пика осцилляций ВКР-излучения, поэтому движение населенностей начинает проявляться в процессе ВКР только при $p > 1.6$, когда появляются осцилляции ВКР-излучения. Оптимальная длина взаимодействия имеет минимальное значение $L_{opt} = 0.07$ см при $p \approx 2$, и при дальнейшем увеличении p она плавно нарастает.

Как видно на рис. 4б, зависимость энергетической эффективности ВКР-генерации η_{max} , соответствующая $L = L_{opt}$ (наибольшее влияние движения населенностей), разделяется с зависимостью η , соответствующей $L \gg L_{opt}$ (наименьшее влияние движения населенностей), при $p \approx 1.6$, и при дальнейшем увеличении p различие между этими зависимостями растет в пользу η_{max} .

Заметим, что все зависимости, представленные на рис. 4, имеют волнообразный характер, что обусловлено генерацией в режиме осцилляций ВКР-излучения. Точки перегиба или плато зависимостей энергетических эффективностей ВКР-преобразования (рис. 4б) соответствуют условиям, когда ВКР-генерация завершается в минимуме очередной осцилляции. Так, зависимость η при $L \gg L_{opt}$ имеет точки перегиба при $p \approx 2, 3, 4, 5$ (штриховые линии на рис. 3г, например, иллюстрируют случай $p = 4$). При этом число осцилляций ВКР-излучения составляет $(p - 1)$. Движение населенностей колебательных состояний при $L = L_{opt}$ проявляется в сглаживании осцилляций ВКР-излучения и изменении их периодичности, что приводит к повышению эффективности ВКР-преобразования и изменению характера ее волнообразного увеличения с ростом превышения порога ВКР. Заметим еще, что участки вогнутости зависимости η_{max} при $L = L_{opt}$ (рис. 4б) примерно соответствуют выпуклым участкам зависимости L_{opt} (рис. 4а).

4. СТОКС-АНТИСТОКСОВА ПАРАМЕТРИЧЕСКАЯ СВЯЗЬ В ПРОЦЕССЕ НЕСТАЦИОНАРНОГО ВКР ПРИ ДВИЖЕНИИ НАСЕЛЕННОСТЕЙ КОЛЕБАТЕЛЬНЫХ СОСТОЯНИЙ

При учете стокс-антистоксовой параметрической связи уравнения (1)–(3) с помощью метода медленноменяющихся амплитуд приводятся к виду

$$\frac{\partial E_L}{\partial z} + \frac{1}{u_L} \frac{\partial E_L}{\partial t} = -i \frac{\pi \omega_L^2 N_V}{k_L c^2} \frac{\partial \alpha}{\partial Q} \times [q_{LS} E_S + q_{AL}^* E_A + (q_{LS}^* E_A + q_{AL} E_S) e^{-i \Delta k z}], \quad (21)$$

$$\frac{\partial E_S}{\partial z} + \frac{1}{u_S} \frac{\partial E_S}{\partial t} = -i \frac{\pi \omega_S^2 N_V}{k_S c^2} \frac{\partial \alpha}{\partial Q} \times (q_{LS}^* E_L + q_{AL} E_L e^{i \Delta k z}), \quad (22)$$

$$\frac{\partial E_A}{\partial z} + \frac{1}{u_A} \frac{\partial E_A}{\partial t} = -i \frac{\pi \omega_A^2 N_V}{k_A c^2} \frac{\partial \alpha}{\partial Q} \times (q_{AL} E_L + q_{LS} E_L e^{i \Delta k z}), \quad (23)$$

$$\frac{\partial q_{LS}}{\partial t} + \frac{1}{2T_2} q_{LS} = -\frac{i}{4m\Omega} \frac{\partial \alpha}{\partial Q} E_L E_S^* n, \quad (24)$$

$$\frac{\partial q_{AL}}{\partial t} + \frac{1}{2T_2} q_{AL} = -\frac{i}{4m\Omega} \frac{\partial \alpha}{\partial Q} E_A E_L^* n, \quad (25)$$

$$\frac{\partial n}{\partial t} + \frac{n-1}{T_1} = -\frac{i}{4\hbar} \frac{\partial \alpha}{\partial Q} (E_L^* E_S q_{LS} - E_L E_S^* q_{LS}^* + E_A^* E_L q_{AL} - E_A E_L^* q_{AL}^*), \quad (26)$$

где E_A — медленноменяющаяся комплексная амплитуда антистоксовой волны; ω_A , k_A и u_A — соответственно ее частота ($\omega_A = \omega_L + \Omega$), волновое число и групповая скорость; q_{AL} — медленноменяющаяся комплексная амплитуда колебания среды, раскачиваемого на разностной частоте $\Omega = \omega_A - \omega_L$ антистоксовой волны и волны лазерной накачки; Δk — волновая расстройка синхронизма стокс-антистоксовой параметрической связи. Остальные обозначения такие же, как и ранее.

Анализ уравнений (21)–(26) показывает, что в отсутствие стокс-антистоксовой параметрической связи ($\Delta k \rightarrow \infty$) ВКР-генерация антистоксовой волны может происходить только при инверсии населенностей колебательных состояний ($n < 0$), что хорошо известно из теории ВКР [21]. Однако затравочная интенсивность для генерации антистоксовой волны $I_A(0) = a I_L^{in} \approx n_T I_S(0)$, обусловленная начальной тепловой заселенностью возбужденного колебательного состояния $n_T \approx \exp(-\hbar\Omega/kT)$, оказывается в $1/n_T$ раз меньше, чем для генерации стокссовой волны ($I_S(0) = s I_L^{in}$). Для кристалла ВаWO₄ ($\Omega/(2\pi c) = 926$ см⁻¹) при комнатной температуре имеем $n_T \approx 10^{-2}$, тогда антистоксов затравочный коэффициент a оказывается в 100 раз меньше стокссова затравочного коэффициента s (как мы определили выше, $s \approx 10^{-13}$). Очень малая величина антистоксова затравочного коэффициента ($a \approx 10^{-15}$) оказывается причиной ослабления

антистоксовой генерации в отсутствие параметрической стокс-антистоксовой связи даже при инверсии населенностей колебательных состояний. Численное решение системы уравнений (21)–(26) для кристалла BaWO_4 при эффективной длине взаимодействия $L = 0.03$ см (меньше L_{cr} при $p > 1.5$ согласно рис. 4а) и длительности прямоугольного импульса накачки $t_L = 500$ фс в отсутствие в уравнениях (21)–(23) слагаемых, содержащих экспоненты волновой расстройки ($e^{i\Delta k z}$), показало, что порог антистоксовой ВКР-генерации (соответствующий ее энергетической эффективности $\eta_A = 1\%$) преодолевается при очень высокой интенсивности излучения накачки, превышающей пороговое значение I_L^{th} (18) для стоксовой ВКР-генерации в 12 раз, т. е. при $p = 12$. Такое высокое значение интенсивности накачки не может быть реализовано на практике из-за преодоления порога оптического пробоя среды. Однако заметим, что стокс-антистоксова параметрическая связь может обеспечить снижение порога генерации антистоксовой волны [22]. При этом параметрическая связь будет обеспечивать комбинационно-параметрическую генерацию не только антистоксовой, но и стоксовой волны даже в случае, если переход в возбужденное колебательное состояние будет препятствовать прямому процессу стоксовой ВКР-генерации.

На рис. 5 представлены результаты математического моделирования процесса ВКР с учетом движения населенностей колебательных состояний и стокс-антистоксовой параметрической связи при превышении порога ВКР, равном $p = 4$, эффективной длине ВКР-взаимодействия $L = 0.03$ см, в два раза меньшей, чем критическая длина ($L_{cr} = 0.06$ см при $p = 4$ согласно рис. 4а), и значениях параметра волновой расстройки стокс-антистоксовой связи $\Delta kL = 100$ (рис. 5а), 50 (рис. 5б), 30 (рис. 5в) и 15 (рис. 5г). При этом численно решалась система уравнений (21)–(26) при входных параметрах, соответствующих кристаллу BaWO_4 , и накачке прямоугольным импульсом длительностью $t_L = 500$ фс.

Отметим, что расчеты с другими длительностями импульсов в диапазоне $t_L \leq T_2$ показали результаты, практически совпадающие с представленными на рис. 5, а расчеты для других ВКР-кристаллов показали снижающиеся значения эффективностей частотного преобразования при уменьшении g/T_2 , но характер зависимостей оставался близким к представленному на рис. 5 для кристалла BaWO_4 .

На рис. 5а,б видно, что при большой волновой расстройке, $\Delta kL \geq 50$ процесс генерации стоксовой волны оказывается близким к таковому при

отсутствии стокс-антистоксовой связи (рис. 3а), но при уменьшении параметра волновой расстройки до $\Delta kL = 50$ (рис. 5б) благодаря стокс-антистоксовой параметрической связи происходит генерация не только стоксовой, но и антистоксовой волны с энергетической эффективностью более 1%.

На рис. 5в видно, что уменьшение параметра волновой расстройки до $\Delta kL = 30$ приводит к повышению эффективности генерации как стоксовой, так и антистоксовой волны, причем стоксова волна имеет наибольшую эффективность преобразования $\eta_S = 8.0\%$, что почти в два раза больше, чем при подавленной стокс-антистоксовой связи (рис. 5а).

При уменьшении параметра волновой расстройки до $\Delta kL = 15$ (рис. 5г) эффективность генерации стоксовой волны несколько снижается (до $\eta_S = 4.6\%$), но эффективность генерации антистоксовой волны достигает наибольшего значения $\eta_A = 14.1\%$. Дальнейшее уменьшение параметра волновой расстройки ΔkL приводит к снижению эффективностей преобразования в стоксову и антистоксову волны, а при $\Delta kL \rightarrow 0$ — к полному подавлению ВКР, что хорошо известно в теории стокс-антистоксовой связи при ВКР [21, 22].

С точки зрения влияния стокс-антистоксовой параметрической связи на движение населенностей колебательных состояний при ВКР можно заметить, что уменьшение параметра волновой расстройки ΔkL приводит к снижению скорости начального возбуждения колебаний среды по сравнению с теоретической оценкой по формуле (14) (штрихпунктирные линии на рис. 5) и к увеличению частоты последующих перевозбуждений. Такой новый характер движения населенностей колебательных состояний вызван не только параметрическим взаимодействием световых полей, но и интерференцией колебательных амплитуд q_{AL} и q_{LS} . При этом переход в возбужденное колебательное состояние (уменьшение n) усиливает антистоксову генерацию, а возвращение в основное колебательное состояние (увеличение n) усиливает стоксову генерацию, поэтому наблюдается волнообразный характер комбинационно-параметрической генерации стоксовых и антистоксовых волн с периодом, равным периоду перевозбуждения колебаний среды (рис. 5г).

Дополнительные расчеты показали, что оптимальные значения параметра волновой расстройки для высокоэффективной стоксовой ($\Delta kL = 30$) и антистоксовой ($\Delta kL = 15$) генерации сохраняются при изменении превышения порога ВКР p , эффективной длины ВКР-взаимодействия L и параметров ВКР-кристалла (g и T_2).

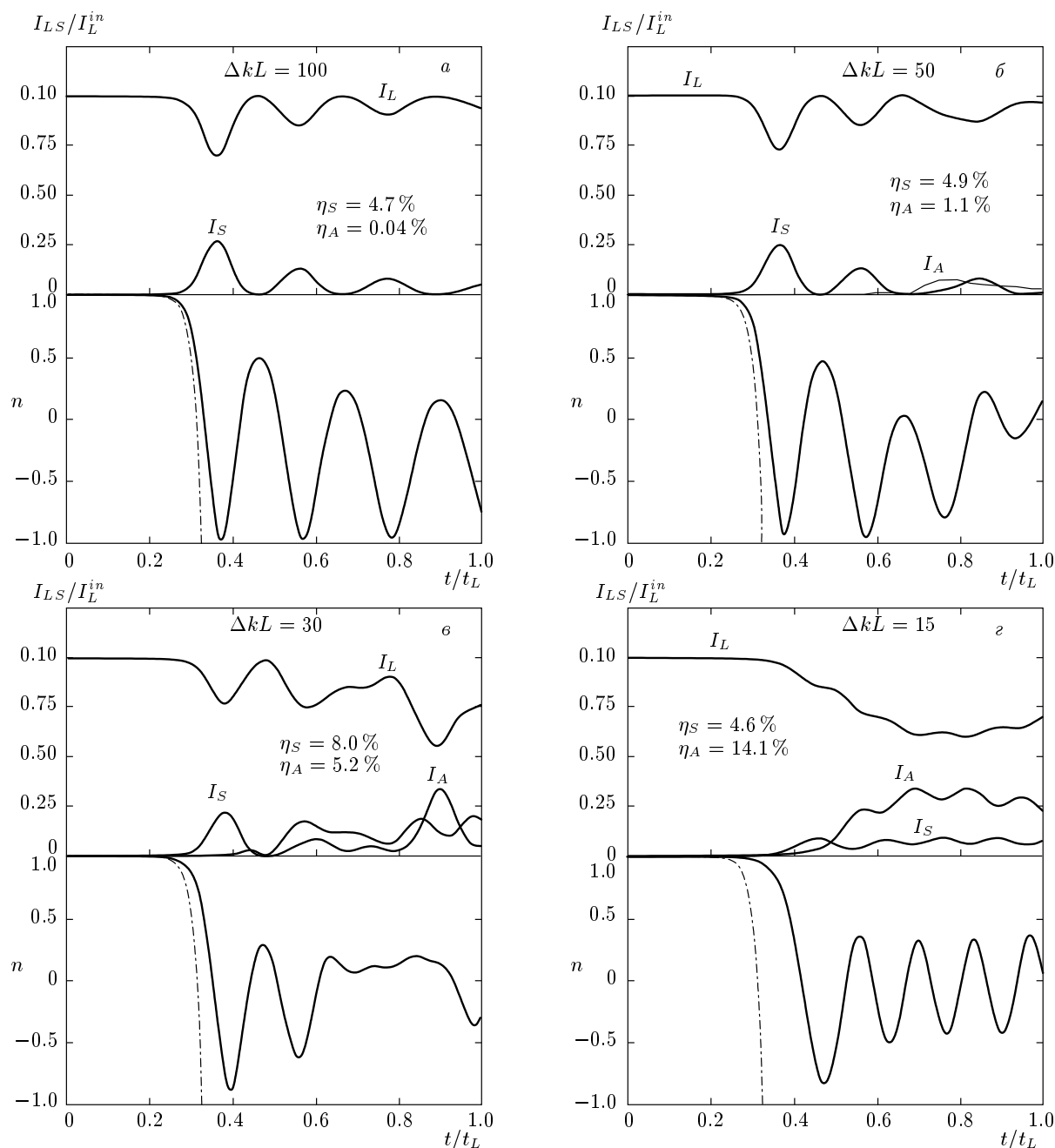


Рис. 5. Расчетная динамика ВКР-преобразования излучения накачки с интенсивностью I_L в стоксову и антистоксову ВКР-компоненты с интенсивностями I_S и I_A и населенностей колебательных состояний n на выходе среды при превышении порога ВКР $p = 4$, эффективной длине ВКР-взаимодействия $L = 0.03$ см и разных значениях параметра волновой расстройки стокс-антистоксовой связи $\Delta kL = 100$ для кристалла $BaWO_4$. Штрихпунктирные линии — теоретическая оценка движения населенностей колебательных состояний по формуле (14)

На рис. 6 показаны расчетные зависимости энергетической эффективности η_S генерации стоксовой волны от эффективной длины ВКР-взаимодействия L в кристалле $BaWO_4$ при $\Delta kL = 30$ (сплошные линии) и $\Delta kL \rightarrow \infty$ (штриховые линии) для значений

превышения порога ВКР $p = 2$ (рис. 6а), 3 (рис. 6б), 4 (рис. 6в) и 5 (рис. 6г).

На рис. 6а видно, что при малом превышении порога ВКР $p = 2$ и любых значениях эффективной длины ВКР-взаимодействия L эффективность

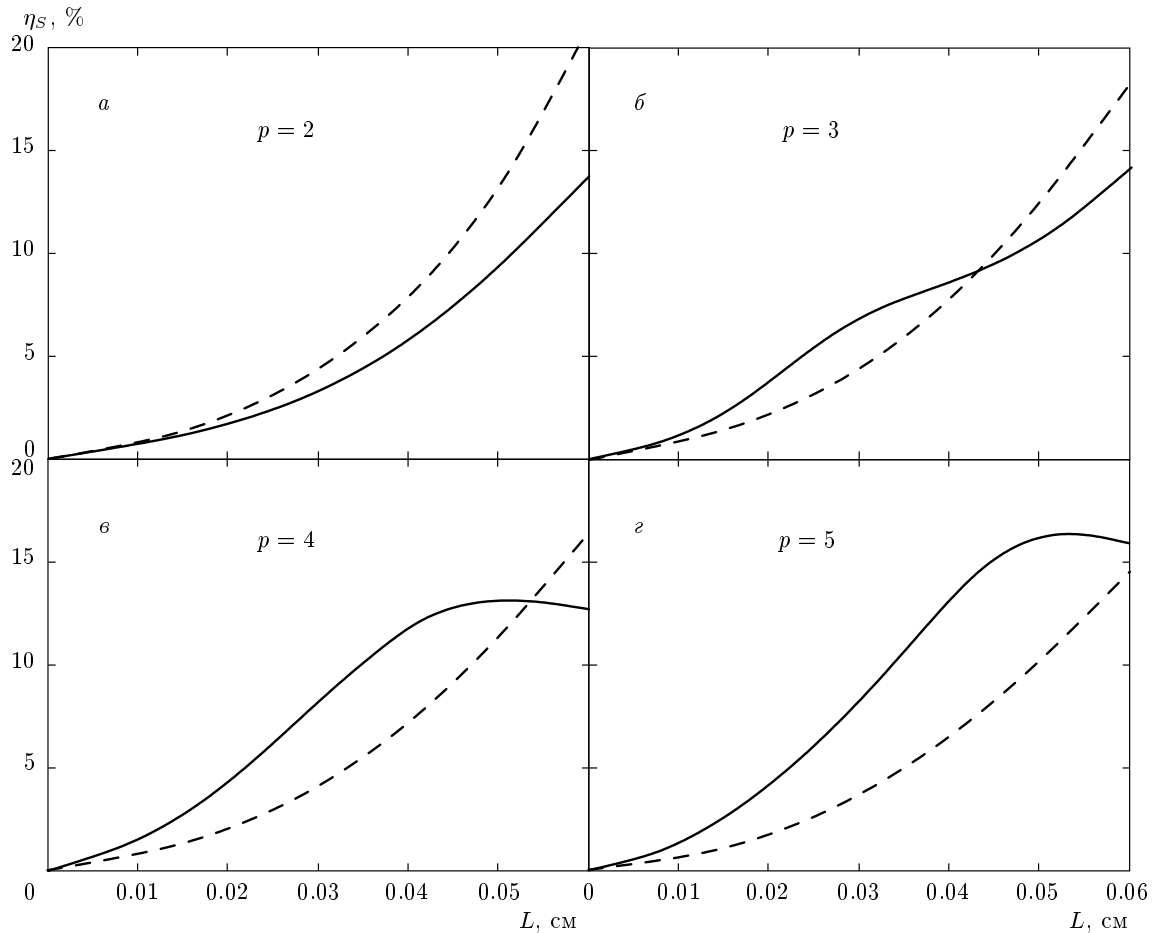


Рис. 6. Расчетные зависимости энергетической эффективности η_S генерации стоксовой волны от эффективной длины ВКР-взаимодействия L в кристалле BaWO_4 при $\Delta kL = 30$ (сплошные линии) и $\Delta kL \rightarrow \infty$ (штриховые линии) для разных значений превышения порога ВКР p

стоксовой генерации η_S при отсутствии стокс-антистоксовой параметрической связи (штриховая линия) оказывается выше, чем при ее наличии (сплошная линия). Однако увеличение превышения порога ВКР $p > 2$ кардинально меняет картину. Так, для $p = 3$ (рис. 6б) в области длин $L < 0.044$ см эффективность генерации η_S при наличии эффективной стокс-антистоксовой связи (сплошная линия) оказывается выше, чем при ее отсутствии (штриховая линия). Увеличение превышения порога ВКР до $p = 4$ (рис. 6в) и далее до $p = 5$ (рис. 6г) расширяет в сторону увеличения область эффективных длин ВКР-взаимодействия, в которой стокс-антистоксова параметрическая связь оказывается полезной, соответственно до $L < 0.054$ см и $L < 0.062$ см.

Таким образом, при малых длинах ВКР-взаимодействия, когда возбуждение колебаний приводит к подавлению ВКР, стокс-антистоксова параметриче-

ская связь при оптимальной волновой расстройке $\Delta kL = 30$ повышает эффективность частотного преобразования излучения накачки в стоксову волну, а также обеспечивает антистоксову генерацию.

5. ОБЕСПЕЧЕНИЕ ЭФФЕКТИВНОЙ СТОКС-АНТИСТОКСОВОЙ СВЯЗИ ПРИ ФЕМТОСЕКУНДНОМ ВКР С ПОМОЩЬЮ АКСИКОНА

Выше мы отметили, что эффективная длина ВКР-взаимодействия L ограничена проявлением конкурирующих эффектов, таких как фазовая самомодуляция и фазовая кросс-модуляция, которые уменьшают интенсивность импульсов излучения накачки и ВКР-излучения, распространяющихся по ВКР-среде. С другой стороны, мы нашли, что при короткой длине взаимодействия, когда возбуждение

колебаний приводит к подавлению ВКР, обеспечение оптимальных условий для стокс-антистоксовой связи может повысить эффективность частотного преобразования. Однако фазовая самомодуляция и фазовая кросс-модуляция и здесь представляют собой серьезную проблему, внося нелинейную волновую расстройку в процесс стокс-антистоксовой параметрической связи.

Стокс-антистоксова связь, задаваемая последними слагаемыми уравнений (22) и (23), имеет волновую расстройку

$$\Delta k = \Delta k_M + \Delta k_{NL}, \quad (27)$$

где Δk_M — материальная волновая расстройка из-за дисперсии показателя преломления ВКР-среды;

$$\Delta k_{NL} \approx \frac{\omega_L}{c} n_2 2I_L \quad (28)$$

— нелинейная волновая расстройка из-за фазовой кросс-модуляции (воздействие сильной волны накачки на фазы слабых стоксовой и антистоксовой волн), n_2 — нелинейный показатель преломления среды, I_L — интенсивность излучения накачки.

Так, для кристалла BaWO_4 ($n_2 = 8 \cdot 10^{-16} \text{ см}^2/\text{Вт}$ при $\lambda_L = 0.8 \text{ мкм}$ [23]) при его длине $L_{\text{BaWO}_4} = 0.3 \text{ см}$, длительности импульса накачки $t_L = 200 \text{ фс}$ и двукратном превышении порога ВКР на длине кристалла $I_L = 2I_L^{\text{th}} = 2 \cdot 216T_2/(gL_{\text{BaWO}_4}t_L) \approx 5 \text{ ГВт/см}^2$, согласно (28), получим нелинейную волновую расстройку $\Delta k_{NL} \approx 640 \text{ см}^{-1}$. Для эффективной стокс-антистоксовой параметрической связи, как мы выяснили ранее (см. рис. 5, 6), волновая расстройка должна иметь значение $\Delta k \approx 30/L$, поэтому согласно (27) материальная волновая расстройка из-за дисперсии показателя преломления должна быть отрицательной, $\Delta k_M \approx -540 \text{ см}^{-1}$. Это можно обеспечить, выбирая длину волны накачки в области отрицательной дисперсии групповых скоростей, что применяется в оптике солитонов.

Другим оригинальным способом уменьшения волновой расстройки (в том числе $\Delta k_M < 0$) в области положительной дисперсии является использование аксикона для фокусировки лазерного пучка накачки. Нужно отметить, что недавно [11, 12] фокусировка аксикона помогла экспериментально реализовать фемтосекундное ВКР в кристаллах, при котором наблюдалась не только осевая генерация стоксовой ВКР-компоненты, но также антистоксовы конусы [11].

На рис. 7 показаны различные схемы частично вырожденного четырехволнового взаимодействия

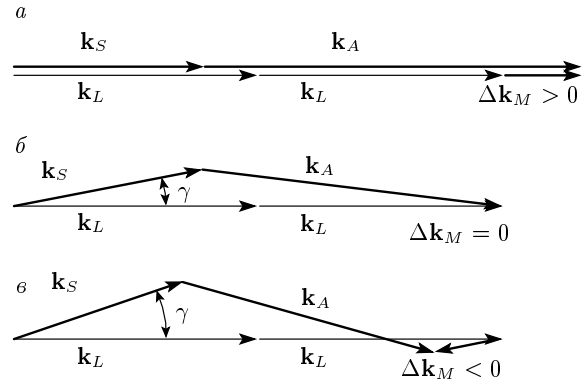


Рис. 7. Схемы стокс-антистоксова параметрического взаимодействия

излучения накачки, стоксовой и антистоксовой волн при ВКР. В коллинеарной схеме взаимодействия (рис. 7а) положительная дисперсия среды обуславливает положительную расстройку взаимодействующих волновых векторов ($\Delta k_M > 0$).

В работе [24] изучались возможности обеспечения синхронизма ($\Delta k_M = 0$) стокс-антистоксовой связи при ВКР в водороде под действием накачки бесселевым пучком с переменным углом схождения. Показано, что для реализации $\Delta k_M = 0$ требуется правильный выбор угла схождения бесселева пучка γ , который поддерживает векторный синхронизм взаимодействия, схема которого показана на рис. 7б.

Бесселев пучок обычно получают при фокусировке аксикона, тогда в приближении геометрической оптики угол схождения бесселева пучка находится как

$$\gamma = \arcsin(n_{ax} \sin \delta) - \delta \approx \delta(n_{ax} - 1), \quad (29)$$

где n_{ax} — показатель преломления материала аксикона, δ — базовый угол аксикона. Приближенное равенство в формуле (29) можно использовать при $\delta < 15^\circ$.

При дальнейшем увеличении угла схождения γ бесселева пучка схема векторного взаимодействия (рис. 7в) будет иметь отрицательную волновую расстройку ($\Delta k_M < 0$). Направление вектора антистоксовой волны \mathbf{k}_A соответствует равенству абсолютных величин проекций вектора волновой расстройки $\Delta \mathbf{k}_M$ на векторы стоксовой и антистоксовой волн, что обеспечивает наиболее эффективный энергообмен при стокс-антистоксовом взаимодействии. При этом в случае $\gamma < 10^\circ$ направление вектора волновой расстройки $\Delta \mathbf{k}_M$ оказывается очень близким к встречному относительно волнового вектора накачки \mathbf{k}_L , а проекция вектора $\Delta \mathbf{k}_M$ на векторы стоксо-

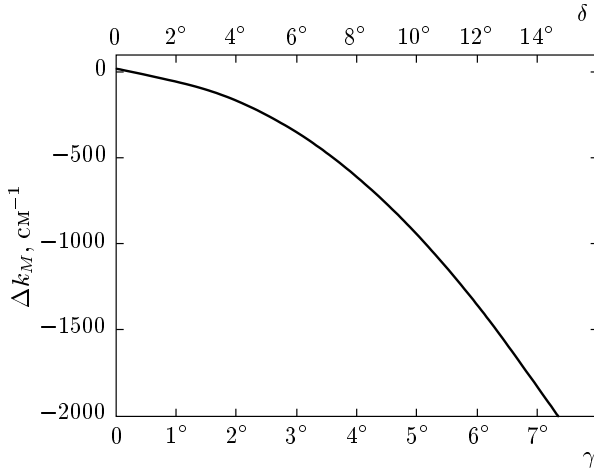


Рис. 8. Зависимость материальной волновой расстройки Δk_M от угла схождения бesselева пучка γ и от базового угла аксикона δ при показателе преломления материала аксикона $n_{ax} = 1.5$ для кристалла BaWO_4 под действием накачки излучением лазера на титан-сапфире с длиной волны $\lambda_L = 0.790$ мкм

вой \mathbf{k}_S и антистоксовой \mathbf{k}_A волн будет иметь величину

$$\Delta k_M \approx - \left(2k_L - k_S \cos \gamma - ((2k_L - k_S \cos \gamma)^2 - 4k_L^2 - k_S^2 + k_A^2 + 4k_L k_S \cos \gamma)^{1/2} \right) \cos \gamma, \quad (30)$$

где $k_{L,S,A}$ — модули векторов соответственно волны накачки, стоксовой и антистоксовой волн.

Проведем расчет для кристалла BaWO_4 ($\Omega/(2\pi c) = 926 \text{ см}^{-1}$), дисперсия показателя преломления которого известна из работы [25]. При накачке излучением лазера на титан-сапфире с длиной волны $\lambda_L = 0.790$ мкм длины волн стоксовой и антистоксовой ВКР-компонент составляют соответственно $\lambda_S = [\lambda_L^{-1} - \Omega/(2\pi c)]^{-1} = 0.852$ мкм и $\lambda_A = [\lambda_L^{-1} + \Omega/(2\pi c)]^{-1} = 0.736$ мкм. Показатели преломления для данных ВКР-компонент при распространении вдоль оптической оси кристалла BaWO_4 имеют значения $n_L = 1.8240$, $n_S = 1.8199$ и $n_A = 1.8277$. Тогда получаем значения модулей волновых векторов $k_L = 2\pi n_L/\lambda_L = 145067 \text{ см}^{-1}$, $k_S = 2\pi n_S/\lambda_S = 134152 \text{ см}^{-1}$ и $k_A = 2\pi n_A/\lambda_A = 155998 \text{ см}^{-1}$.

На рис. 8 показана зависимость материальной волновой расстройки Δk_M от угла схождения бesselева пучка γ , построенная по формуле (30) для кристалла BaWO_4 при накачке излучением лазера на титан-сапфире с длиной волны $\lambda_L = 0.790$ мкм.

С помощью верхней шкалы также показана зависимость от базового угла аксикона δ при показателе преломления материала аксикона $n_{ax} = 1.5$ (согласно выражению (29) зависимость угла γ от угла δ близка к линейной при $\delta < 15^\circ$).

На рис. 8 видно, что при увеличении угла схождения бesselева пучка накачки γ и базового угла аксикона δ материальная волновая расстройка Δk_M быстро уменьшается и становится отрицательной при $\gamma > 0.65^\circ$. Уже при $\gamma = 7.5^\circ$ и $\delta = 15^\circ$ материальная волновая расстройка имеет значение около $\Delta k_M \approx -2000 \text{ см}^{-1}$. Нужно отметить, что антистоксова генерация может происходить только при взаимной компенсации Δk_M и Δk_{NL} , т. е. положительная нелинейная волновая расстройка Δk_{NL} должна иметь тот же порядок величины, что и отрицательная материальная волновая расстройка Δk_M . Такие условия для эффективной стокс-антистоксовой генерации были экспериментально реализованы в работе [11] при фемтосекундной накачке, сфокусированной аксиконом с базовым углом $\delta = 15^\circ$.

Следовательно, подбирая базовый угол аксикона (изменяется Δk_M), либо изменяя интенсивность накачки (изменяется Δk_{NL}), можно получить оптимальную волновую расстройку $\Delta k = \Delta k_M + \Delta k_{NL} \approx \approx 30/L$ для эффективной стокс-антистоксовой связи, которая предотвращает подавление нестационарного ВКР при движении населенностей колебательных состояний.

6. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Таким образом, в данной работе проанализирован процесс нестационарного ВКР в кристаллах с учетом движения населенностей колебательных состояний под действием субпикосекундных (короче времени дефазировки) импульсов накачки. Найдены аналитические выражения, описывающие динамику возбуждения колебаний при ВКР. Установлено, что при малых длинах ВКР-взаимодействия и высоких интенсивностях излучения накачки, которые имеют место при фемтосекундном ВКР в кристаллах, лавинное возбуждение колебаний может являться причиной подавления ВКР. Показано, что обеспечение синхронизма стокс-антистоксовой параметрической связи при нестационарном ВКР позволяет повысить эффективность частотного преобразования в условиях движения населенностей колебательных состояний. Это объясняет недавние успешные

результаты [11, 12] экспериментальной реализации фемтосекундного ВКР в кристаллах при накачке бесселевым пучком, сформированным с помощью аксикона, позволяющего скомпенсировать нелинейную волновую расстройку стокс-антистоксовой параметрической связи при векторном частично вырожденном четырехволновом взаимодействии излучения накачки со стокссовой и антистоксовой волнами.

Автор благодарит А. Я. Карасика за обсуждение результатов работы. Работа выполнена при частичной финансовой поддержке РФФИ (грант № 13-02-00031).

ЛИТЕРАТУРА

1. R. L. Carman, F. Shimizu, C. S. Wang, and N. Bloembergen, *Phys. Rev. A* **2**, 60 (1970).
2. С. А. Ахманов, К. Н. Драбович, А. П. Сухоруков, А. С. Чиркин, *ЖЭТФ* **59**, 485 (1970).
3. M. D. Duncan, R. Mahon, L. L. Tankersley, and J. Reintjes, *J. Opt. Soc. Amer. B* **5**, 37 (1988).
4. М. С. Джиджоев, П. М. Михеев, В. Т. Платоненко, А. В. Савельев, *КЭ* **24**, 255 (1997).
5. Т. Т. Басиев, П. Г. Зверев, А. Я. Карасик, В. В. Осико, А. А. Соболев, Д. С. Чунаев, *ЖЭТФ* **126**, 1073 (2004).
6. N. Zhavoronkov, F. Noack, V. Petrov, V. P. Kalosha, and J. Herrmann, *Opt. Lett.* **26**, 47 (2001).
7. V. Krylov, O. Ollikainen, U. P. Wild, A. Rebane, V. G. Bespalov, and D. I. Staselko, *J. Opt. Soc. Amer. B* **15**, 2910 (1998).
8. L. L. Losev, J. Song, J. F. Xia, D. Strickland, and V. V. Brukhanov, *Opt. Lett.* **27**, 2100 (2002).
9. А. В. Конященко, Л. Л. Лосев, С. Ю. Теняков, *КЭ* **40**, 700 (2010).
10. S. Klewitz, S. Sogomonian, M. Woerner, and S. Herminghaus, *Opt. Comm.* **154**, 186 (1998).
11. A. S. Grabtchikov, R. V. Chulkov, V. A. Orlovich, M. Schmitt, R. Maksimenko, and W. Kiefer, *Opt. Lett.* **28**, 926 (2003).
12. V. A. Orlovich, Yu. I. Malakhov, Yu. M. Popov, D. N. Busko, M. B. Danailov, A. A. Demidovich, P. A. Apanasevich, and R. V. Chulkov, *Laser. Phys. Lett.* **9**, 770 (2012).
13. В. Т. Платоненко, Р. В. Хохлов, *ЖЭТФ* **46**, 555 (1964).
14. R. R. Alfano and S. L. Shapiro, *Phys. Rev. Lett.* **26**, 1247 (1971).
15. A. Laubereau, D. Von der Linde, and W. Kaiser, *Phys. Rev. Lett.* **27**, 802 (1971).
16. Э. М. Беленов, А. В. Назаркин, И. П. Прокопович, *Письма в ЖЭТФ* **55**, 223 (1992).
17. С. Г. Раутиан, Б. М. Черноброд, *ЖЭТФ* **72**, 1342 (1977).
18. R. H. Dicke, *Phys. Rev.* **93**, 99 (1954).
19. Т. Т. Басиев, В. В. Осико, А. М. Prokhorov, and E. M. Dianov, *Topics Appl. Phys.* **89**, 351 (2003).
20. V. A. Lisinetskii, S. V. Rozhok, D. N. Bus'ko, R. V. Chulkov, A. S. Grabtchikov, V. A. Orlovich, T. T. Basiev, and P. G. Zverev, *Laser Phys. Lett.* **2**, 396 (2005).
21. Н. Бломберген, *УФН* **97**, 307 (1969).
22. Т. Т. Басиев, С. Н. Сметанин, А. С. Шурыгин, А. В. Федин, *УФН* **180**, 639 (2010).
23. А. И. Vodchits, V. A. Orlovich, P. A. Apanasevich, T. T. Basiev, and P. G. Zverev, *Opt. Mater.* **29**, 1616 (2007).
24. S. Sogomonian, L. Niggel, and M. Maier, *Opt. Comm.* **162**, 261 (1999).
25. I. S. Voronina, L. I. Ivleva, T. T. Basiev, P. G. Zverev, and N. M. Polozkov, *J. Optoelectron. Adv. Mater.* **5**, 887 (2003).