

УДК 535.530.182,621.373.826,535.544

В. Ю. МАРКЕВИЧ, Р. В. ЧУЛКОВ

**ОПРЕДЕЛЕНИЕ СТАЦИОНАРНОГО КОЭФФИЦИЕНТА ВКР-УСИЛЕНИЯ КАЛИЙ-ГАДОЛИНИЕВОГО ВОЛЬФРАМАТА НА ДЛИНЕ ВОЛНЫ 532 нм***Институт физики им. Б. И. Степанова Национальной академии наук Беларуси, Минск, Беларусь,  
e-mail: vumarkevich@gmail.com*

Предложен метод определения стационарных коэффициентов усиления вынужденного комбинационного рассеяния (ВКР) в кристаллах, в основе которого лежит сопоставление данных численного моделирования и экспериментальных результатов по ВКР-генерации. Предложенный подход был протестирован для нитрата бария (BN) в поле спектрально ограниченных наносекундных лазерных импульсов. Его использование для калий-гадолиниевого вольфрамата (KGW) позволило установить значения коэффициентов ВКР-усиления  $14 \pm 3$  и  $11 \pm 3$  см/ГВт на длине волны 532 нм для ориентаций  $E \parallel N_m$  и  $E \parallel N_g$  соответственно.

*Ключевые слова:* вынужденное комбинационное рассеяние, стационарный коэффициент усиления вынужденного комбинационного рассеяния (ВКР), нитрат бария (BN), калий-гадолиниевый вольфрамат (KGW).

V. U. MARKEVICH, R. V. CHULKOV

**DETERMINATION OF THE STEADY-STATE RAMAN GAIN COEFFICIENTS OF POTASSIUM-GADOLINIUM TUNGSTATE AT A WAVELENGTH OF 532 nm***B. I. Stepanov Institute of Physics of the National Academy of Sciences of Belarus, Minsk, Belarus,  
e-mail: vumarkevich@gmail.com*

A method for determination of the steady-state Raman gain coefficients in crystals has been proposed. The method is based on comparing the numerical simulation data and the experimental Raman generation results. The proposed approach has been tested for barium nitrate in the field of spectrally limited nanosecond laser pulses. Its application for potassium-gadolinium tungstate has revealed the values of the Raman gain coefficients to be  $14 \pm 3$  and  $11 \pm 3$  cm/GW at a wavelength of 532 nm for the  $E \parallel N_m$  and  $E \parallel N_g$  sample orientations, respectively.

*Keywords:* stimulated Raman scattering, steady-state Raman gain coefficient, barium nitrate (BN), potassium-gadolinium tungstate (KGW).

**Введение.** Вынужденное комбинационное рассеяние (ВКР) традиционно используется для дискретного преобразования длины волны лазерного излучения в спектральные диапазоны, где прямая лазерная генерация затруднена либо невозможна. Использование твердотельных комбинационно-активных сред позволяет создать относительно дешевые, эффективные и компактные источники лазерного излучения [1–6]. Прогресс в разработке таких источников непосредственно связан с оптическими свойствами используемых комбинационно-активных кристаллов. Среди различных нелинейных оптических характеристик, определяющих порог ВКР и эффективность ВКР-преобразования, ключевую роль играет стационарный коэффициент усиления ВКР  $g_0$ . В настоящее время известно несколько подходов, используемых для определения его значений в кристаллах.

Первый подход включает в себя определение энергии накачки  $E_p^{th}$ , соответствующей порогу ВКР при однопроходной генерации. Значение  $E_p^{th}$  далее используется для расчета  $g_0$  [1, 7]. Данный метод довольно прост в реализации, но дает относительно большую ошибку вследствие произвольности определения значения  $E_p^{th}$ , а также значительных флуктуаций энергии стоковых импульсов  $E_S$ . Относительная дисперсия величины  $E_S$  может превышать 100 % вблизи порога ВКР [2]. Во втором подходе  $g_0$  определяется на основе зависимости  $E_S$  от энергии импульсов накачки  $E_p$  в условиях малого усиления [8, 9]. Указанный метод имеет хорошую точность, однако его реализация требует серьезных экспериментальных усилий, что препятствует его широкому использованию.

В настоящей работе предлагается альтернативный подход к определению значения  $g_0$ , который заключается в сравнении экспериментальных данных по ВКР-генерации с результатами численного моделирования. Предлагаемый подход тестируется на образце кристалла нитрата бария (BN). Далее мы используем этот метод для определения  $g_0$  в кристалле калий-гадолиниевого вольфрамата (KGW) на длине волны возбуждения 532 нм, для которой отсутствуют надежные данные по его значению.

**Экспериментальная установка.** Оптическая схема включала в себя ВКР-преобразователь и Nd:YAG-лазер с пассивной модуляцией добротности. На длине волны 532 нм лазер генерировал спектрально-ограниченные импульсы длительностью  $10,7 \pm 0,4$  нс на полувысоте с частотой 10 Гц. Расходимость пучка линейно-поляризованного излучения была близка к дифракционно-ограниченной ( $M^2 < 1,2$ ). Пучок накачки фокусировался линзой с фокусным расстоянием 85 см в центр исследуемых кристаллов. Поперечные размеры пучка накачки в его перетяжке составляли  $194 \pm 6$  и  $182 \pm 6$  мкм (ширина пучка на уровне  $1/e^2$ ) в горизонтальном и вертикальном направлениях соответственно, а длина Рэлея в воздухе достигала  $\sim 5$  см. Это значение сравнимо с длиной кристаллов, используемых в эксперименте, что обеспечивало относительно низкое число Френеля области ВКР-взаимодействия и доминирующее возбуждение основной моды стокового излучения. Система из полуволновой пластины на 532 нм и поляризатора позволяла плавно менять энергию импульсов накачки.

ВКР возбуждалось в схеме одно- и двухпроходного преобразователя, а также в схеме ВКР-лазера. Для формирования двухпроходной схемы преобразователя и резонатора ВКР-лазера использовались дополнительные зеркала. Пучок 1-й стоковой компоненты спектрально выделялся с помощью призмы Пеллин – Брока. Энергия импульсов накачки и 1-й стоковой компоненты регистрировалась измерителем энергии Ophir LaserStar с пироэлектрическими детекторами PE9 и PE10. Осциллограммы импульсов регистрировались цифровым осциллографом Tektronix TDS 5104 и скоростными рпн-фотодиодами. Полоса пропускания аналогового тракта составляла 1 ГГц. Измерения поперечного профиля пучка накачки выполнялись с применением монохромной ПЗС камеры Pixelink PL-B741U. С помощью спектрофотометра CARY измерялись спектральные характеристики исследуемых кристаллов.

**Численная модель.** В основе используемой модели лежит система дифференциальных уравнений для комплексных амплитуд оптических полей и нелинейной поляризации среды, описывающая в параксиальном приближении взаимодействие угловых компонент амплитуд полей при нестационарном ВКР в условиях оптической обратной связи на торцах активного элемента и зеркалах ВКР-преобразователя. Модель также учитывает развитие генерации с уровня спонтанных шумов. Детальное описание модели дано в работе [10].

**Тестирование метода.** Применимость разработанного подхода оценивалась на примере кристалла BN. Этот кристалл является изотропным. Спектр спонтанного комбинационного рассеяния (КР) BN имеет несколько узких линий, наиболее интенсивная из которых соответствует комбинационному сдвигу  $1047 \text{ см}^{-1}$  [11]. Образец BN имел длину 69 мм, его торцы были просветлены на длинах волн накачки и 1-й стоковой компоненты. Коэффициент поглощения образца не превышал  $0,2 \text{ м}^{-1}$  в спектральном диапазоне 532–563 нм. ВКР возбуждалось по однопроходной схеме без использования дополнительных зеркал. Основные значения параметров эксперимента, которые использовались в качестве входных данных численной модели, приведены в таблице. На рис. 1, а представлены результаты расчетов и измерений, полученные для этого случая. Экспериментально порог ВКР-генерации наблюдался при  $E_p^{th} \approx 90$  мкДж. При двукратном превышении порога энергия импульса 1-й стоковой компоненты в попутном направлении достигала  $\sim 55$  мкДж. Осциллограммы импульсов истощенной накачки и стокового излучения, зарегистрированных при  $E_p = 130$  мкДж, демонстрируют их ярко выраженную асимметрию (рис. 2, а), что объясняется оптической обратной связью на торцах кристалла. Этот вывод подтверждается сравнением численных результатов для условий возбуждения, реализованных в эксперименте (рис. 2, б) и при отсутствии обратной связи (рис. 2, в). Численные данные хорошо воспроизводят экспериментальные результаты при  $g_0 = 43 \pm 5 \text{ см/ГВт}$ . Это значение в пределах погрешности измерения находится в соответствии с известным из литературы  $g_0 = 48 \pm 7 \text{ см/ГВт}$  [8].

### Параметры численного моделирования

Параметр	Обозначение	KGW		
		BN	$E \parallel N_m$	$E \parallel N_g$
Геометрия возбуждения	—	—		
Расстояние между входным зеркалом и кристаллом, мм	$l_r$	—	22	22
Длина волны накачки, нм	$\lambda_p$	532	532	532
Длина волны 1-й стоксовой компоненты, нм	$\lambda_{1S}$	563	559	555
Коэффициент отражения входного зеркала на длине волны накачки	$R_1^P$	—	0,22	0,22
Коэффициент отражения входного зеркала на длине волны 1-й стоксовой компоненты	$R_1^S$	—	0,99	0,985
Коэффициент отражения от торца кристалла	$R_{cr}^{P,S}$	0,028	0,09	0,09
Время дефазировки доминирующего перехода КР, пс	$T_2$	25 [11]	2,0 [2, 12]	1,7 [2, 12]
Коэффициент поглощения кристалла на длине волны накачки, $m^{-1}$	$\gamma_p$	0,2	3,5	3,5
Коэффициент поглощения кристалла на длине волны 1-й стоксовой компоненты, $m^{-1}$	$\gamma_s$	0,2	3,6	3,6
Показатель преломления кристалла	$n_{p,s}$	1,57 [11]	2,06 [2]	2,09 [2]

Основной вклад в погрешность наших измерений вносили астигматизм пучка накачки, систематическая составляющая погрешности измерителя энергии импульсов, неточность позиционирования образца относительно центра перетяжки накачки, а также погрешность определения коэффициента отражения торцов кристалла. Так, нами было численно установлено, что определяемое значение  $g_0$  возрастает почти в два раза, если  $R_{cr}^P$  взять меньше на 2,8 % от экспериментально измеренной величины.

**Применение метода.** Измерения проводились для образца KGW длиной 46 мм, вырезанного вдоль кристаллографического направления [010] ( $b$ -срез). KGW является двусосным анизотропным кристаллом. Наиболее интенсивные линии спектра спонтанного КР в этом кристалле соответствуют комбинационным сдвигам 84, 767 и 901  $cm^{-1}$  [2]. ВКР наблюдалось в двух ортогональных ориентациях образца. Направление поляризации пучка накачки и стоксовых компонент в первой из них совпадало с главной осью  $N_m$  эллипсоида Френеля ( $E \parallel N_m$ ). При этом возбуждался фононный переход с частотой 901  $cm^{-1}$ , а длина волны 1-й стоксовой компоненты составляла  $\lambda_{1S} = 559$  нм. В другой ориентации направление поляризации совпадало с осью  $N_g$  ( $E \parallel N_g$ ). В этом случае ВКР развивалось преимущественно на переходе с 767  $cm^{-1}$ , при этом  $\lambda_{1S} = 555$  нм. Суммарные потери на деполяризацию в этих ориентациях не превышали 0,5 %. Торцы исследуемого образца имели диэлектрическое покрытие, коэффициент отражения которого составлял  $R_{cr}^{P,S} = 9$  % в диапазоне длин волн 532–560 нм. Вследствие наличия примесных ионов, кристалл имел относительно высокое поглощение  $\sim 16$  % в этой спектральной области.

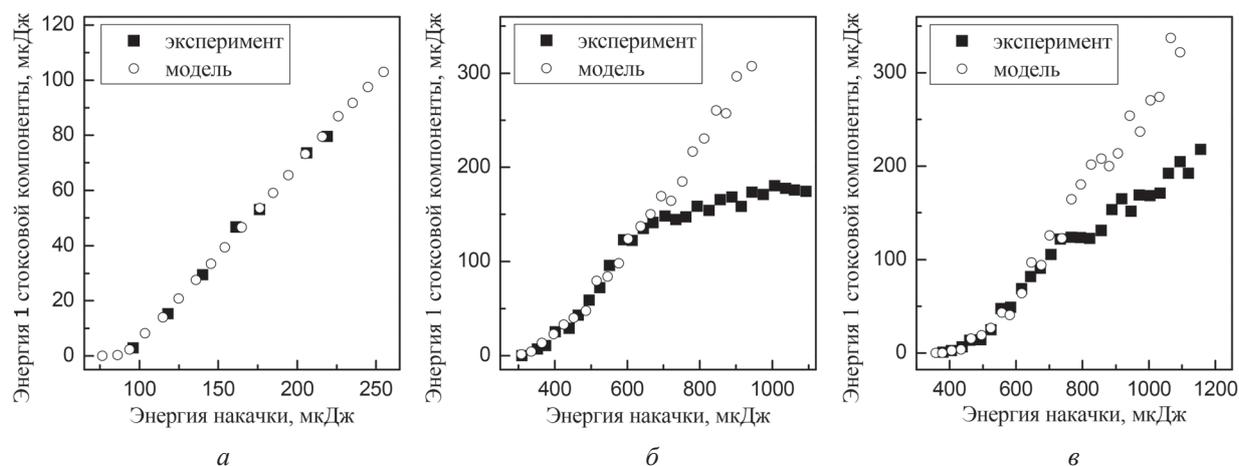


Рис. 1. Усредненные энергии импульсов 1-й стоксовой компоненты в зависимости от  $E_p$  при ВКР в BN (а), KGW для  $E \parallel N_m$  (б) и  $E \parallel N_g$  (в) ориентаций возбуждения

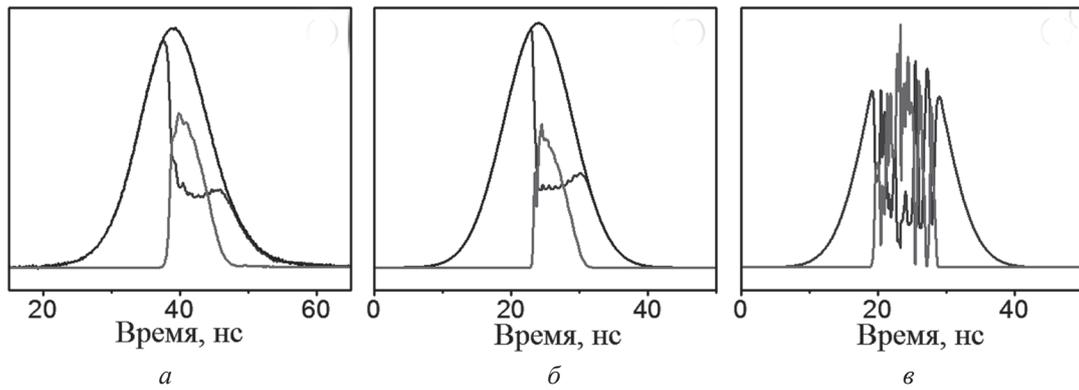


Рис. 2. Осциллограммы импульсов входной накачки (в черном), истощенной накачки (в темно-сером) и 1-й стоксовой компоненты (в светло-сером), измеренные (а) и смоделированные (б) для экспериментальных условий ВКР в ВН при  $E_p = 130$  мкДж, а также смоделированные при отсутствии обратной связи и  $E_p = 710$  мкДж (в)

Первоначально была рассмотрена схема ВКР-лазера, использование которой позволяло снизить порог ВКР и минимизировать риск повреждения активного элемента вследствие оптического пробоя. Входное зеркало резонатора имело высокий коэффициент отражения на длине волны 1-й стоксовой компоненты и пропускало 78 % энергии накачки. Выходное зеркало отражало 98 и 36 % энергии накачки и 1-й стоксовой компоненты соответственно. В данной схеме порог ВКР составил  $E_p^{th} \approx 300$  мкДж. При этом энергия импульсов 1-й стоксовой компоненты сильно флуктуировала от выстрела к выстрелу. Ее относительная дисперсия достигала  $\sim 50$  % при превышении порога ВКР в два раза. Отдельное исследование выявило четырехкратный рост разброса энергий импульсов накачки на выходе резонатора ВКР-лазера в отсутствие ВКР. Этот избыточный разброс был объяснен спектральным рассогласованием частоты накачки и частот собственных мод резонатора ВКР-лазера. Такое рассогласование должно проявляться, если ширина спектра накачки меньше области свободной дисперсии резонатора [12], что и соответствовало нашим экспериментальным условиям. На рис. 3 приведена численно смоделированная статистика энергий лазерных импульсов на выходе резонатора ВКР-лазера при трех различных коэффициентах отражения выходного зеркала  $R_2^p$ . Эти данные показывают, что первоначальный незначительный разброс энергий импульсов возрастает почти в 20 раз при проходе резонатора нашего ВКР-лазера. Такой избыточный разброс должен приводить к значительным флуктуациям внутрирезонаторной интенсивности накачки отдельных наблюдаемых событий и, как следствие, к большому разбросу импульсов ВКР-генерации.

Чтобы свести к минимуму этот эффект, дальнейшие измерения проводились в схеме ВКР-преобразователя без выходного зеркала. В указанных условиях относительная дисперсия энергии импульсов 1-й стоксовой компоненты составила 37 % при двукратном превышении порога ВКР. Результаты расчета хорошо согласуются с экспериментальными данными вплоть до  $E_p \approx 550$  мкДж при выборе значения  $g_0 = 14 \pm 3$  см/ГВт (см. рис. 1, б). При более высоких значениях  $E_p$  наблюдается расхождение расчетных и экспериментальных данных, что объясняется генерацией 2-й стоксовой компоненты, которая не учитывается нашей моделью. В случае ориентации образца КGW  $E \parallel N_g$ , пороговая энергия ВКР-генерации составила  $E_p^{th} \approx 350$  мкДж. Энергия импульса 1-й стоксовой компоненты достигала  $\sim 125$  мкДж при двойном превышении порога ВКР (см. рис. 1, в). При дальнейшем увеличении  $E_p$  рост энергии 1-й стоксовой компоненты замедлялся главным образом вследствие развития стоксовой генерации на конкурирующих комбинационных переходах. В условиях отсутствия конкурирующих стоксовых процессов результаты экспериментальных измерений воспроизводятся расчетными данными, если  $g_0 = 11 \pm 3$  см/ГВт.

**Заключение.** Таким образом, нами предложен метод определения стационарных коэффициентов ВКР-усиления в кристаллах, в котором используются результаты расчетов, полученных в рамках модели, учитывающей оптическую обратную связь, спонтанную инициацию ВКР, дифракционные эффекты, а также сопоставление расчетных данных с экспериментальными

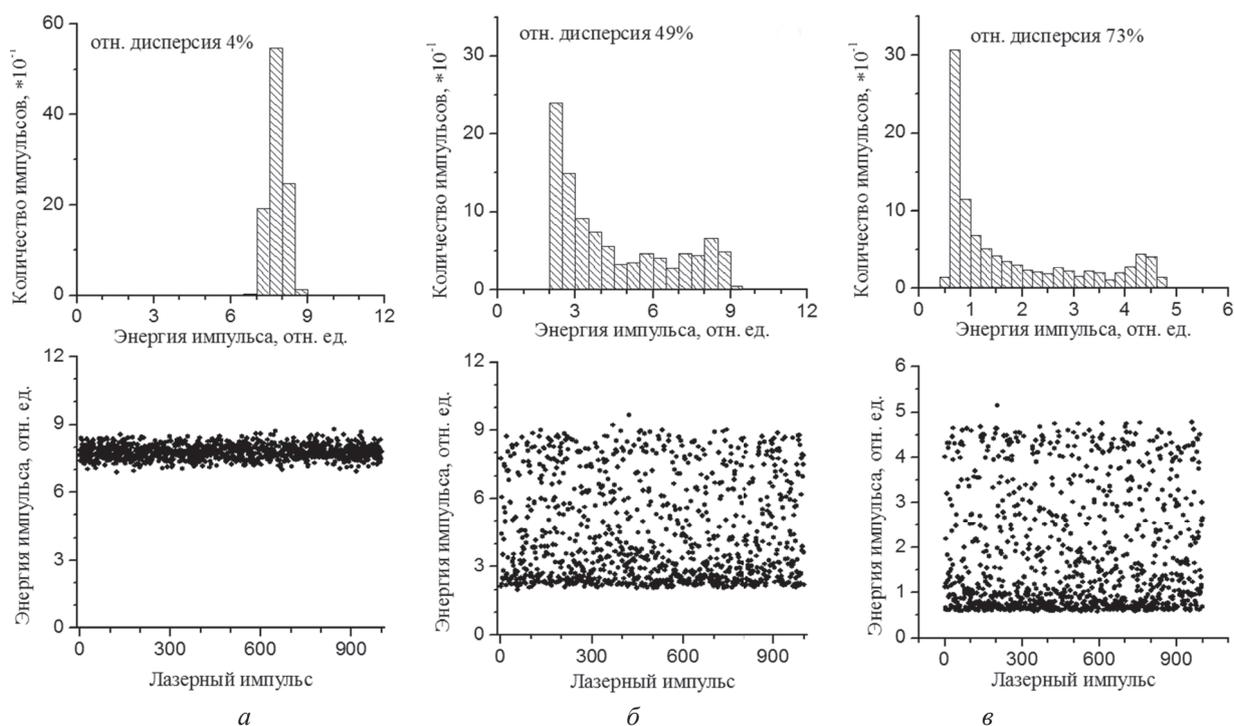


Рис. 3. Численно смоделированная статистика энергий лазерных импульсов на выходе резонатора ВКР-лазера при трех различных коэффициентах отражения выходного зеркала: *a* – 0 %; *б* – 9 %; *в* – 98 %

результатами по ВКР-генерации. Предложенный подход был протестирован для нитрата бария в поле спектрально ограниченных наносекундных лазерных импульсов. Определенное с помощью указанного метода значение  $g_0 = 43 \pm 5$  см/ГВт для кристалла ВН в пределах погрешности измерения находится в соответствии с ранее известным значением [8]. Применение данного метода для калий-гадолиниевого вольфрамата позволило установить значения коэффициентов ВКР-усиления на длине волны 532 нм равными  $14 \pm 3$  и  $11 \pm 3$  см/ГВт для  $E \parallel N_g$  ориентации образца соответственно.

### Список использованной литературы

1. Generation of radiation in a resonator under conditions of stimulated Raman scattering / N. Karpukhin [et al.] // Sov. J. Quantum Electronics. – 1986. – Vol. 16. – P. 1027–1031.
2. Statistical characteristics of the energies of pulses of forward and backward stimulated Raman scattering under linear, intermediate, and nonlinear scattering conditions / P. A. Apanasevich [et al.] // Sov. J. Quantum Electronics. – 1992. – Vol. 22. – P. 822–827.
3. Ring solid-state Raman laser at 1538 nm / V. I. Dashkevich [et al.] // Phys. Lett. – 2011. – Vol. 8. – P. 661–667.
4. The generation of high pulse and average power radiation in eye-safe spectral region by the third Stokes generation in barium nitrate Raman laser / V. A. Lisinetskii [et al.] // Opt. Commun. – 2008. – Vol. 281. – P. 2227–2232.
5. 20-Hz operation of an eye-safe cascade Raman laser with a  $\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$  crystal / N. Takei [et al.] // Appl. Phys. B. – 2002. – Vol. 74. – P. 521–527.
6. Thermal aberrations and high power frequency conversion in a barium nitrate Raman laser / R. Chulkov [et al.] // Appl. Phys. B. – 2012. – Vol. 106. – P. 867–875.
7. Mochalov, I. V. Laser and nonlinear properties of the potassium gadolinium tungstate laser crystal  $\text{KGd}(\text{WO}_4)_2:\text{Nd}^{3+}$  (KGW:Nd) / I. V. Mochalov // Opt. Eng. – 1997. – Vol. 36. – P. 1660–1669.
8. Raman gain coefficient of barium nitrate measured for the spectral region of Ti:sapphire laser / V. A. Lisinetskii [et al.] // J. Nonlinear Optical Physics & Materials. – 2005. – Vol. 14. – P. 1–8.
9. Measurement of Raman gain coefficients of hydrogen, deuterium, and methane / J. J. Ottush [et al.] // IEEE J. Quantum Electron. – 1988. – Vol. 24. – P. 2076–2080.
10. Self-mode locking at multiple Stokes generation in the Raman laser / V. A. Lisinetskii [et al.] // Opt. Commun. – 2010. – Vol. 283. – P. 1454–1458.
11. Physical, chemical and optical properties of barium nitrate Raman crystal / P. G. Zverev [et al.] // Opt. Mater. – 1999. – Vol. 11. – P. 315–334.
12. Born, M. Principles of Optics: Electromagnetic Theory of Propagation, Interference and Diffraction of Light / M. Born, E. Wolf. – 7th ed. – Cambridge University Press, 1999.

Поступила в редакцию 11.02.2016