Дисперсия антистоксовой полосы в спектре световой пули фемтосекундного филамента

А.Е. Дормидонов⁺¹), В.О. Компанец^{*}, С.В. Чекалин^{*}, В.П. Кандидов⁺

+ МГУ им. Ломоносова, физический факультет, 119992 Москва, Россия

*Институт спектроскопии РАН, 108840 Троицк, Москва, Россия

Поступила в редакцию 15 июня 2016 г. После переработки 27 июня 2016 г.

Установлена закономерность, определяющая дисперсионный сдвиг антистоксовой полосы суперконтинуума световой пули в филаменте фемтосекундного лазерного импульса в прозрачных диэлектриках. Теоретически полученное дисперсионное уравнение для антистоксова сдвига подтверждено спектроскопическими исследованиями филаментации импульсов ближнего и среднего ИК-диапазона в плавленом кварце и фторидах.

DOI: 10.7868/S0370274X16150066

Явление филаментации фемтосекундного лазерного излучения при нелинейно-оптическом взаимодействии с прозрачными средами охватывает эффекты пространственно-временной локализации светового поля, формирования широкополосного суперконтинуума (СК) и конической эмиссии [1–4]. Филаментация возникает при прохождении через прозрачный диэлектрик излучения мощностью, превышающей критическую мощность самофокусировки, и сопровождается генерацией лазерной плазмы, дефокусировка в которой ограничивает рост интенсивности. Суперконтинуум филамента является перспективным источником излучения фемтосекундной длительности для время-разрешенной спектроскопии, и его исследованию уделяется значительное внимание. Вид спектра СК существенно зависит от дисперсионных свойств диэлектрика. При филаментации импульса на длине волны в области нормальной дисперсии групповой скорости (ДГС) интенсивность спектральных компонент в антистоксовой области монотонно убывает с уменьшением их длины волны. В условиях аномальной ДГС (АДГС) спектр в антистоксовой области СК является существенно немонотонным [5-9].

В настоящее время накоплен обширный материал экспериментальных и теоретических исследований генерации изолированной антистоксовой полосы СК при филаментации в твердотельных диэлектриках фемтосекундных импульсов ближнего и среднего ИК-диапазонов [10–16]. Частотно-угловой спектр СК адекватно воспроизводит интерференционная модель [17], согласно которой формирование изолированной антистоксовой полосы является результатом конструктивной интерференции широкополосного излучения СК в условиях АДГС, а также близкая ей модель трехволнового смешения [18], которая описывает образование глобального максимума в спектре.

Антистоксово крыло СК неразрывно связано с формированием световых пуль – устойчивых образований с высокой пространственно-временной локализацией светового поля в объеме конденсированной среды при филаментации фемтосекундного излучения [19–21]. Формирование световых пуль в условиях слабой, средней и сильной АДГС экспериментально исследовано в [22], численно в [23].

В настоящей работе представлены результаты экспериментального и аналитического исследования общих закономерностей формирования антистоксовой полосы СК световых пуль при филаментации фемтосекундного лазерного излучения в условиях сильной АДГС. Установлено, что закон материальной дисперсии среды определяет антистоксов сдвиг изолированной полосы СК при филаментации импульсов на длине волны ближнего и среднего ИКдиапазонов в прозрачных твердотельных диэлектриках.

Эволюция напряженности светового поля E(r,t,z) линейно поляризованного фемтосекундного лазерного импульса в нелинейной среде описывается однонаправленным уравнением распространения (UPPE) [24]. В системе координат, движущейся с групповой скоростью импульса v_g , уравнение для

 $^{^{1)}{\}rm e\text{-}mail:\,dormidonov@gmail.com}$

компоненты $\tilde{E}(\theta, \omega, z)$ частотно-углового спектра светового поля может быть представлено в виде

$$i\frac{\partial \tilde{E}(\theta,\omega,z)}{\partial z} = \left(k(\omega)\cos\theta - \frac{\omega}{v_g}\right)\tilde{E}(\theta,\omega,z) + \frac{2\pi\omega^2}{c^2k(\omega)\cos\theta}\tilde{P}(\theta,\omega,z).$$
(1)

Здесь $k(\omega) = \frac{\omega n(\omega)}{c}$ – волновое число, ω – частота спектральной компоненты, θ – угол между направлением ее распространения и осью z, $\tilde{P}(\theta, \omega, z)$ – Фурьеобраз нелинейной поляризации P(r, t, z), c – скорость света, $n(\omega)$ – линейный показатель преломления среды [25].

При филаментации в условиях аномальной дисперсии групповой скорости, наряду с самофокусировкой фемтосекундного лазерного импульса, развивается его компрессия во времени, что приводит к образованию световой пули длительностью около двух оптических осцилляций и менее [19-21]. Нелинейная поляризация P(r, t, z), обусловленная керровской нелинейностью и нелинейностью самонаведенной лазерной плазмы, приводит к сильной фазовой самомодуляции поля экстремально сжатой световой пули, и, как следствие этого, к сверхуширению частотно-углового спектра излучения - генерации СК. Световая пуля является широкополосным источником СК, движущимся в среде со скоростью, близкой к групповой скорости импульса v_q. В рассматриваемых средах за время своего существования световая пуля проходит расстояние длиной *l* порядка 1 мм [13].

Спектральные компоненты СК $\tilde{E}(\theta, \omega, z)$ при значительной отстройке от центральной частоты импульса ω_0 имеют малую интенсивность, и их распространение описывается линейным уравнением распространения в диспергирующей среде:

$$i\frac{\partial \tilde{E}(\theta,\omega,z)}{\partial z} = \left(k(\omega)\cos\theta - \frac{\omega}{v_g}\right)\tilde{E}(\theta,\omega,z).$$
(2)

Положим z = 0 в точке начала генерации компонент СК световой пулей. Тогда решение уравнения (2) для компоненты $\tilde{E}(\theta, \omega, z)$ СК, излученной в точке z = 0, имеет следующий вид:

$$\tilde{E}(\theta,\omega,z) = \tilde{E}_0(\theta,\omega) \exp\left\{i\varphi(\theta,\omega,z) - i\varphi_0(0)\right\}, \quad (3)$$

где

$$\varphi(\theta, \omega, z) = \left(k(\omega)\cos\theta - \frac{\omega}{v_g}\right)z\tag{4}$$

– набег фазы спектральной компоненты при распространении на расстояние $z,\,\tilde{E}_0(\theta,\omega)$ – амплитуда

компоненты при генерации, $\varphi_0(0)$ – начальная фаза, определяемая текущей (z = 0) фазой излучения широкополосного источника СК.

При фазовой самомодуляции фаза излучения СК совпадает с фазой $\varphi(0, \omega_0, z)$ центральной спектральной компоненты, в которой сосредоточена основная часть энергии импульса. Без потери общности можно положить, что $\varphi(0, \omega_0, z = 0) = 0$. Тогда начальная фаза $\varphi_0(z)$ гармоники СК, излучаемой световой пулей в произвольной точке z, равна:

$$\varphi_0(z) = \varphi(0, \omega_0, z) = \left(k_0 - \frac{\omega_0}{v_g}\right) z, \qquad (5)$$

где $k_0 = k(\omega_0)$ – волновое число на центральной частоте ω_0 . В результате сдвиг фаз $\Delta \varphi(\theta, \omega, z)$ между спектральными компонентами СК $\tilde{E}(\theta, \omega)$, которые излучены световой пулей в начальной точке z = 0 и в произвольной точке z, равен

$$\Delta\varphi(\theta,\omega,z) = \left(k(\omega)\cos\theta - k_0 - \frac{\omega - \omega_0}{v_g}\right)z.$$
 (6)

В дальней зоне спектральная интенсивность $I(\theta, \omega)$ излучения СК, распространяющегося под углом θ , равна суперпозиции всех плоских волн $\tilde{E}(\theta, \omega)$, излученных световой пулей на отрезке ее существования длиной l:

$$I(\theta, \omega) \sim l^2 \operatorname{sinc}^2\left(\frac{\Delta\varphi(\theta, \omega, l)}{2}\right).$$
 (7)

Условием конструктивной интерференции, или "синхронизма" компонент СК, является равенство нулю сдвига фаз $\Delta \varphi(\theta, \omega, l)$:

$$k(\omega)\cos\theta - k_0 - \frac{\omega - \omega_0}{v_g} = 0.$$
 (8)

При малых углах распространения антистоксовых компонент ($\cos \theta \approx 1$) уравнение (8) определяет частоту ω_{SC} , на которой спектральная интенсивность в излучении СК максимальна:

$$k(\omega_{SC}) - k_0 - \frac{\omega_{SC} - \omega_0}{v_g} = 0,$$
 (9)

или, переходя к длинам волн,

$$\lambda_0 n(\lambda_{SC}) - \lambda_{SC} n_0 - \frac{c}{v_g} \left(\lambda_0 - \lambda_{SC}\right) = 0.$$
(10)

Здесь $\lambda_{SC} = \frac{2\pi c}{\omega}$ – длины волны максимума спектральной интенсивности в антистоксовой области СК, $\lambda_0 = \frac{2\pi c}{\omega_0}$ – центральная длина волны импульса, $n_0 = n(\lambda_0)$. Полученные выражения (9) или (10) являются дисперсионными уравнениями для антистоксовой полосы в спектре световой пули при фемтосекундной филаментации. Дисперсионные уравнения Дисперсия антистоксовой полосы в спектре световой пули...

1.0 0.5

(9), (10) определяют для любого диэлектрика с известной дисперсионной зависимостью $k(\omega)$ или $n(\lambda)$ положение максимума в спектре широкополосного СК, которое излучает световая пуля, сформировавшаяся при филаментации импульса на центральной длине волны λ_0 .

Формально соотношение (9) можно переписать в виде

$$\sum_{n=2}^{\infty} k_n \frac{\Omega^n}{n!} = 0, \tag{11}$$

где $k_n=\frac{d^nk}{d\omega^n}\big|_{\omega_0},\,\Omega=\omega-\omega_0$ – сдвиг частоты компоненты СК от центральной частоты импульса. При малой отстройке Ω в сумме (11) достаточно оставить первые два слагаемых. Тогда сдвиг частоты определяется соотношением:

$$\Omega = -3\frac{k_2}{k_3}.\tag{12}$$

Отсюда следует, что антистоксов сдвиг ($\Omega > 0$) в спектре СК возможен только при $k_2 < 0$, т.е. в режиме АДГС, поскольку $k_3 > 0$ для большинства прозрачных диэлектриков в ближнем и среднем ИКдиапазоне. При нормальной ДГС ($k_2 > 0$) световая пуля не образуется, и частотно-угловой спектр СК имеет характерную Х-образную форму, при которой антистоксовы компоненты распространяются под углом θ , величина которого возрастает с увеличением отстройки $|\Omega|$ [26]. При $k_2 = 0$ дисперсия групповой скорости отсутствует, и антистоксов сдвиг $\Omega = 0$.

Сдвиг $\Delta \lambda = \lambda_0 - \lambda_{SC}$ длины волны максимума λ_{SC} спектральной интенсивности в антистоксовой области СК от центральной длины волны лазерного импульса, рассчитанный по (10) для плавленого кварца, кристаллов LiF, CaF₂ и BaF₂, представлен на рис. 1 непрерывными линиями. Сдвиг $\Delta\lambda$ обращается в нуль на длине волны импульса $\lambda_0^{k_2=0}$, при которой отсутствует ДГС (
 $k_2=0).$ Длина волны $\lambda_0^{k_2=0}$ нулевой ДГС для плавленого кварца равна 1.27, для LiF - 1.23, $CaF_2 - 1.55$ и $BaF_2 - 1.92$ мкм [25].

Световая пуля формируется при согласованной компрессии лазерного излучения в пространстве и времени в филаменте [27]. Такой режим достигается при симметрии времени и пространственных переменных, которая имеет место при равенстве дисперсионной $L_{\rm dis} = rac{ au_0^2}{|k_2|}$ и дифракционной $L_{
m dif} = k_0 a_0^2$ длин, где τ_0 – половина длительности импульса, a_0 – радиус пучка, определяемые по уровню e^{-1} . Требование симметрии не является жестким, и световые пули образуются при $L_{\rm dis} \approx L_{\rm dif}$ в условиях АДГС при филаментации излучения, мощность которого превышает критическую мощность самофокусиров-



0.0 2.0 2.5 3.0 3.5 4.0 1.01.5 $\lambda_0 \ (\mu m)$ Рис. 1. (Цветной онлайн) Сдвиг $\Delta \lambda$ длины волны максимума λ_{SC} в антистоксовой области СК от центральной длины волны λ_0 лазерного импульса при филаментации в условиях АДГС в различных материалах. Рассчитанные по (10) зависимости $\Delta\lambda(\lambda_0)$ изображены непрерывными кривыми; тонкой пунктирной линией обозначена зависимость $\Delta\lambda(\lambda_0)$ для BaF₂, полученная с учетом поправки v_q. Экспериментально измеренные значения $\Delta \lambda$ представлены символами; символом

"*" обозначены данные из [16]

ки. Условие $L_{\rm dis} \approx L_{\rm dif}$ можно принять как определение сильной АДГС, при которой формируется устойчивая световая пуля, генерирующая СК с максимумом спектральной интенсивности в антистоксовой области на длине волны λ_{SC} , вычисляемой по (9) или (10). Из условия сильной АДГС следует область применимости уравнений (9) и (10) для СК в филаменте лазерного излучения с конкретными параметрами в диэлектрике с известной дисперсией $n(\lambda)$. При $L_{\rm dis} > L_{\rm dif}$ ДГС является слабой, импульс распадается в процессе образования световой пули, и спектр СК существенно зависит от энергии импульса.

Экспериментальные исследования спектра СК при филаментации импульсов в плавленом кварце и кристаллах LiF, CaF₂ и BaF₂ выполнены на спектрометрическом фемтосекундном комплексе на основе перестраиваемого параметрического усилителя ТОРАЅ, совмещенного с регенеративным усилителем Spitfire Pro. Длина волны импульсов λ_0 варьировалась в полосе от 1.2 до 4.8 мкм. Лазерные импульсы длительностью на половине высоты от 60 до 120 фс фокусировались тонкой CaF₂ линзой с фокусным расстоянием 20 см на переднюю грань образцов толщиной 30 мм. Диаметр пучка в перетяжке по уровню e^{-1} составлял 50–120 мкм, энергия импульсов измерялась датчиком Fieldmax с детектором PS-10 и варьировалась в диапазоне 0.5–18 мкДж для достижения режима одиночной световой пули при филаментации в рассматриваемых диэлектриках. В плавленом кварце световая пуля формировалась, например, в импульсе на длине волны $\lambda_0 = 1.4$ мкм при энергии 0.73 мкДж, пиковых значениях мощности 12.2 МВт и интенсивности $6.2 \cdot 10^{11} \,\mathrm{Bt/cm^2}$, в $\mathrm{CaF_2}$ – в импульсе на длине волны $\lambda_0 = 3.65$ мкм при энергии 16.5 мкДж. Для регистрации спектров использовались волоконный спектрометр ASP-100MF и спектрометр ASPIRHS (Avesta Ltd.) в спектральных диапазонах 0.2–1.1 мкм и 1.2–2.5 мкм соответственно. При записи интегральных спектров антистоксовой полосы СК излучение фокусировалось на тонкий диффузный рассеиватель, установленный непосредственно перед спектрометрами. В плавленом кварце, СаF₂ и ВаF₂ при рассматриваемых параметрах излучения не наблюдалась модификация материала, и запись спектров осуществлялась при частоте следования импульсов 1 кГц. В LiF при филаментации образуются центры окраски, и показатель преломления меняется с увеличением экспозиции, что качественно меняет структуру спектра СК. Поэтому при регистрации спектров в LiF образец с каждым импульсом перемещался перпендикулярно направлению его распространения.

На рис. 2, в качестве примера, приведены спектры СК в антистоксовой полосе, измеренные в LiF



Рис. 2. (Цветной онлайн) Экспериментальные спектры антистоксовой полосы СК световой пули при филаментации в режиме одиночного импульса на различной длине волны λ_0 в кристалле LiF. Длительность импульса 80–100 фс (FWHM), радиус пучка по уровню e^{-1} – 70–110 мкм, энергия импульса увеличивается от 4 мкДж при $\lambda_0 = 1.9$ мкм до 13 мкДж при $\lambda_0 = 3.3$ мкм

при филаментации в режиме одиночного импульса на ряде длин волн λ_0 . Видно, что с увеличением центральной длины волны импульса λ_0 возрастает антистоксов сдвиг $\Delta \lambda$ максимума спектральной полосы видимого света СК. Ширина антистоксова максимума составляет 20–25 нм при ширине спектра начального импульса 200–250 нм. Подобная трансформация спектров СК зарегистрирована во всех рассматриваемых материалах.

Значения антистоксова сдвига $\Delta\lambda$, полученные из экспериментальных спектров, близки к теоретически рассчитанным кривым $\Delta\lambda(\lambda_0)$ в области длин волн λ_0 , для которых выполняется условие формирования устойчивой световой пули (рис. 1). Для кристалла LiF экспериментальные значения $\Delta\lambda$ совпадают с рассчитанными во всем рассматриваемом диапазоне длин волн λ_0 . В плавленом кварце и кристалле CaF_2 отклонение измеренных значений $\Delta\lambda$ от теоретических не превышает 20% с приближением λ_0 к $\lambda_0^{k_2=0}$. При этом результаты измерения сдвига $\Delta\lambda$ в плавленом кварце, взятые из [16], лежат на теоретической кривой. Систематическое отклонение расчетных и экспериментальных значений сдвига $\Delta\lambda$ в ВаF₂ связано с заметным отличием групповых скоростей световой пули и импульса. Как показывает численное моделирование, выполненное относительно напряженности E(r, t, z) с нелинейной поляризацией P(r, t, z), описывающей керровскую нелинейность и нелинейность лазерной плазмы при фото- и лавинной ионизации среды, а также тормозное поглощение [24], скорость световой пули, сформировавшейся в импульсе на длине волны $\lambda_0 = 3$ мкм, составляет 0.996v_q. При подстановке данной поправки в выражение (10) расчетное положение максимума СК совпадает с экспериментальным (рис. 1).

При слабой ДГС ($L_{\rm dis} > L_{\rm dif}$), которая имеет место в импульсе с λ_0 , незначительно превышающей длину волны нулевой дисперсии $\lambda_0^{k_2=0}$, измеряемый спектр СК существенно зависит от энергии импульса. В этих условиях, как следует из численного решения задачи филаментации (1) с нелинейной поляризацией P(r,t,z), импульс при малой энергии распадается на субимпульсы, что приводит к сложной картине частотно-углового спектра, имеющей несколько максимумов.

На основе анализа фазовых соотношений для гармоник широкополосного СК, излучаемого световой пулей, образующейся при филаментации фемтосекундного импульса в условиях АДГС, установлено, что антистоксов сдвиг изолированной полосы СК определяется материальной дисперсией среды. Получено дисперсионное уравнение для антистоксовой полосы в спектре СК световой пули, которое позволяет аналитически рассчитать величину сдвига в зависимости от длины волны импульса и соотношения для материальной дисперсии среды. Полученное дисперсионное уравнение применимо для СК устойчивой световой пули, формирующейся в условиях сильной АДГС, при которой дисперсионная длина импульса близка к дифракционной. Установленная теоретически закономерность подтверждена экспериментально спектроскопическими исследованиями СК при филаментации в плавленом кварце и фторидах фемтосекундных импульсов на длине волны, перестраиваемой в широкой области ближнего и среднего ИК диапазонов. Таким образом, для любого диэлектрика с известной дисперсионной зависимостью можно предсказать положение максимума антистоксова крыла СК, которое излучает устойчивая световая пуля, формирующаяся в среде при аномальной дисперсии групповой скорости.

Работа проведена при поддержке грантов РФФИ 14-22-02025-офи_м и гранта Президента Российской Федерации НШ-9695.2016.2.

- V. P. Kandidov, O. G. Kosareva, I. S. Golubtsov, W. Liu, A. Becker, N. Aközbek, C. M. Bowden, and S. L. Chin, Appl. Phys. B 77, 149 (2003).
- S. L. Chin, S. A. Hosseini, W. Liu, Q. Luo, F. Théberge, N. Aközbek, A. Becker, V. P. Kandidov, O. G. Kosareva, and H. Schroederet, Can. J. Phys. 83, 863 (2005).
- A. Couairon and A. Mysyrowicz, Phys. Rep. 441, 47 (2007).
- В. П. Кандидов, С. А. Шленов, О. Г. Косарева, Квант. электроника **39**, 205 (2009).
- A. Saliminia, S.L. Chin, and R. Vallée, Opt. Express 13, 5731 (2005).
- M. L. Naudeau, R. J. Law, T. S. Luk, T. R. Nelson, and S. M. Cameron, Opt. Express 14, 6194 (2006).
- 7. J. Liu, R. Li, and Z. Xu, Phys. Rev. A 74, 043801 (2006).
- Е.О. Сметанина, В.О. Компанец, С.В. Чекалин, В.П. Кандидов, Квант. электроника 42, 913 (2012).
- Е.О. Сметанина, В.О. Компанец, С.В. Чекалин, В.П. Кандидов, Квант. электроника 42, 920 (2012).
- С.В. Чекалин, В.О. Компанец, Е.О. Сметанина, В.П. Кандидов, Квант. электроника 43, 326 (2013).

- E.O. Smetanina, V.O. Kompanets, S.V. Chekalin, A.E. Dormidonov, and V.P. Kandidov, Opt. Lett. 38, 16 (2013).
- J. A. Dharmadhikari, R. A. Deshpande, A. Nath, K. Dota, D. Mathur, and A. K. Dharmadhikari, Appl. Phys. B **117**, 471 (2014).
- A. E. Dormidonov, V. O. Kompanets, S. V. Chekalin, and V. P. Kandidov, Opt. Express 23, 29202 (2015).
- P. Vasa, J.A. Dharmadhikari, A.K. Dharmadhikari, R. Sharma, M. Singh, and D. Mathur, Phys. Rev. A 89, 043834 (2014).
- V. Jukna, J. Galinis, G. Tamošauskas, D. Majus, and A. Dubietis, Appl. Phys. B 116, 477 (2014).
- A. Couairon, V. Jukna, J. Darginavičius, D. Majus et al., in *Laser Filamentation*, ed. by A.D. Bandrauk, E. Lorin, J.V. Moloney, Springer International Publishing (2016), CRM Series in Mathematical Physics, p. 147.
- A. E. Dormidonov and V. P. Kandidov, Laser Phys. 19, 1993 (2009).
- M. Kolesik, E. M. Wright, and J. V. Moloney, Opt. Express 13, 10729 (2005).
- С. В. Чекалин, В. О. Компанец, А.Э. Докукина, А.Е. Дормидонов, Е.О. Сметанина, В.П. Кандидов, Квант. электроника 45, 401 (2015).
- S. V. Chekalin, A. E. Dokukina, A. E. Dormidonov, V. O. Kompanets, E. O. Smetanina, and V. P. Kandidov, J. Phys. B 48, 094008 (2015).
- I. Gražulevičiūtė, R. Šuminas, G. Tamošauskas, A. Couairon, and A. Dubietis, Opt. Lett. 40, 3719 (2015).
- I. Gražulevičiūtė, N. Garejev, D. Majus, V. Jukna, G. Tamošauskas, and A. Dubietis, J. Opt. 18, 025502 (2016).
- Е. Д. Залозная, А. Е. Дормидонов, В. П. Кандидов, Оптика атмосферы и океана 29, 184 (2016).
- M. Kolesik and J. V. Moloney, Phys. Rev. E 70, 036604 (2004).
- $25. \ http://refractive$ index.info.
- В. П. Кандидов, Е. О. Сметанина, А. Е. Дормидонов, В. О. Компанец, С. В. Чекалин, ЖЭТФ 140, 484 (2011).
- 27. Y. Silbergberg, Opt. Lett. 15, 1282 (1990).