

## Роль многофотонной ионизации в коротковолновом уширении спектра световой пули среднего ИК-диапазона

В. П. Кандидов<sup>+</sup>, В. О. Компанец\*, С. В. Чекалин<sup>\*1)</sup>

<sup>+</sup>МГУ им. М.В. Ломоносова, физический факультет, 119991 Москва, Россия

\*Институт спектроскопии РАН, 108840 Троицк, Москва, Россия

Поступила в редакцию 12 июля 2018 г.

Впервые исследована коротковолновая отсечка антистоксова крыла суперконтинуума в спектре световой пули при филаментации в плавленном кварце и фторидах фемтосекундного излучения на длине волны, перестраиваемой в широкой полосе среднего инфракрасного диапазона. Предложена физическая модель формирования спектра световой пули, которая основывается на уширении спектра вследствие фазовой самомодуляции светового поля на заднем фронте световой пули при генерации плазмы в процессе многофотонной ионизации. Построенная на основе модели функция, определяющая сдвиг длины волны коротковолновой отсечки в зависимости от порядка многофотонности, подтверждается экспериментальными результатами.

DOI: 10.1134/S0370274X18170022

**1. Введение.** Уширение спектра лазерного импульса в кристаллах и стеклах, зарегистрированное впервые в [1, 2], является средством получения суперконтинуума (СК) – широкополосного когерентного импульсного излучения. При филаментации фемтосекундного лазерного излучения СК формируется вследствие фазовой самомодуляции светового поля в нелинейной среде, которое усиливается дефокусировкой в наведенной лазерной плазме и эффектом возникновения ударной волны огibaющей (“self-steepening”) [3, 4]. Спектр СК при генерации плазмы в филаменте фемтосекундного импульса становится асимметричным, и его антистоксово уширение значительно превышает стоксово [5]. Эксперименты по филаментации импульсов на основной длине волны, второй и третьей гармонике излучения Ti:Sapphire лазера в различных конденсированных средах [6] показали, что антистоксово уширение спектра СК пропорционально отношению ширины запрещенной зоны  $U_i$  к энергии фотона  $h\omega$  излучения. При филаментации в условиях нормальной дисперсии групповой скорости (ДГС) спектр имеет унимодальный характер, и интенсивность спектральных компонент монотонно убывает с уменьшением их длины волны [4, 7]. При филаментации излучения среднего ИК (инфракрасного) диапазона, который лежит в области аномальной ДГС большинства прозрачных диэлектриков, спектр СК в антистоксовой области является суще-

ственно немонотонным [7–11]. Исследования филаментации в плавленном кварце импульсов при перестройке длины волны в полосе 800–2300 нм показали, что при аномальной ДГС формируются световые пули (СП) с высокой локализацией светового поля в пространстве и времени [12–14]. Образование СП с высоким градиентом интенсивности сопровождается “выбросом” антистоксова излучения, вызванного сильной фазовой самомодуляцией светового поля на заднем фронте СП [15–17]. В процессе распространения СП формируется изолированное крыло СК, сдвиг которого в антистоксову область возрастает, а спектральная ширина сокращается с увеличением длины волны импульса [15, 18–20]. Дисперсионное уравнение для сдвига максимума антистоксова крыла в зависимости от длины волны импульса, полученное в [21], обобщает результаты известных экспериментов по исследованию спектра СК при филаментации излучения среднего ИК-диапазона [8, 9, 15, 18, 20, 22–25].

Связь коротковолновой границы (КВ-отсечки) спектра антистоксова крыла СК с шириной запрещенной зоны диэлектрика при филаментации излучения среднего ИК-диапазона обсуждалась в [8, 23, 26], а сдвиг этой границы в сторону более коротких длин волн с увеличением порядка многофотонности в процессе генерации плазмы наблюдался и обсуждался в [13, 20, 25]. Однако закономерности формирования КВ-отсечки в спектре СП среднего ИК-диапазона и их связь с многофотонной ионизацией остались неизученными.

<sup>1)</sup>e-mail: chekalin@isan.troitsk.ru

В настоящем письме представлены результаты экспериментального и аналитического исследования процессов, определяющих КВ-отсечку антистоксова крыла СК в спектре СП среднего ИК-диапазона. Впервые измерения спектра антистоксова крыла спектра СП при филаментации в плавленом кварце и фторидах выполнены для фемтосекундных импульсов на длине волны, перестраиваемой от 1350 до 4100 нм. Предложена физическая модель формирования КВ-отсечки в спектре СП, которая основывается на представлении о фазовой самомодуляции светового поля на заднем фронте световой пули в плазме при многофотонной ионизации в диэлектрике.

**2. Эксперимент.** Экспериментальные исследования спектра СК при филаментации импульсов в плавленом кварце и кристаллах LiF, CaF<sub>2</sub> и BaF<sub>2</sub> выполнены на спектрометрическом фемтосекундном комплексе ИСАН [21]. Длина волны импульсов  $\lambda_0$  варьировалась от 1350 до 4100 нм. Лазерные импульсы длительностью на половине высоты от 60 до 120 фс фокусировались тонкой CaF<sub>2</sub> линзой с фокусным расстоянием 20 см на переднюю грань образцов толщиной 30 мм в пятно диаметром 50 ÷ 120 мкм, энергия импульсов варьировалась в диапазоне 0.5 ÷ 18 мкДж для достижения режима одиночной световой пули при филаментации в рассматриваемых диэлектриках. Для регистрации спектров использовались волоконный спектрометр ASP-100MF и спектрометр ASPIRHS (Avesta Ltd.) в спектральных диапазонах 200–1100 нм и 1200–2500 нм соответственно. При записи интегральных спектров антистоксовой полосы СК излучение фокусировалось на тонкий диффузный рассеиватель, установленный непосредственно перед спектрометрами. В плавленом кварце, CaF<sub>2</sub> и BaF<sub>2</sub>, при рассматриваемых параметрах излучения не наблюдалась модификация материала, и запись спектров осуществлялась при частоте следования импульсов 1 КГц. В LiF при филаментации образуются долгоживущие центры окраски, качественно меняющие структуру спектра СК [27]. Поэтому при регистрации спектров в LiF образец с каждым импульсом перемещался перпендикулярно направлению его распространения.

**3. Экспериментальные результаты.** В наших экспериментах, выполненных во фторидах и плавленом кварце, зарегистрировано независимо от материала образца возрастание коротковолнового сдвига и сокращение спектральной ширины антистоксовой полосы с увеличением длины волны действующего импульса среднего ИК-диапазона. Это наглядно демонстрирует рис. 1, где в качестве примера приведено изменение параметров видимой полосы спек-

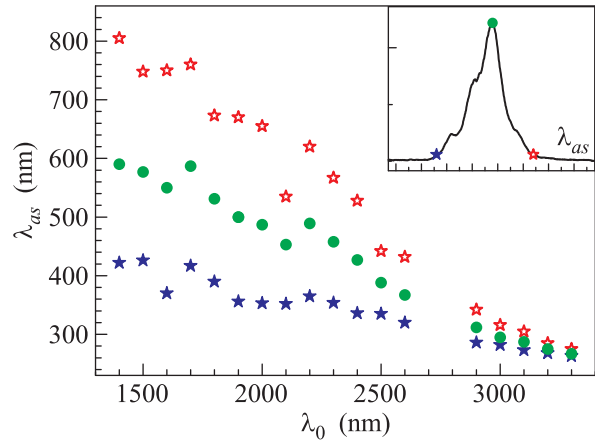


Рис. 1. (Цветной онлайн) Длины волн максимума и границ (см. вставку) спектральной полосы антистоксова крыла в спектре СК световой пули, измеренные в LiF при изменении длины волны действующего импульса от 1350 до 3300 нм

тра СК (положение максимума, а также длинноволновой и коротковолновой отсечек по уровню 0.01, см. вставку), измеренные для LiF. Ранее подобный эффект наблюдался в плавленом кварце также в [15, 18]. Из приведенных данных видно, что положение КВ-отсечки  $\lambda_{cut}$  имеет другую зависимость от длины волны действующего импульса, чем положение максимума антистоксова крыла, определяемое как уширением спектра, так и интерференционными эффектами при формировании спектра антистоксова крыла [21].

В результате обработки экспериментально измеренных спектров антистоксовой полосы СК при филаментации фемтосекундных импульсов в плавленом кварце, CaF<sub>2</sub>, BaF<sub>2</sub> и LiF определена зависимость сдвига  $\Delta\lambda_{as} = \lambda_0 - \lambda_{cut}$  КВ-отсечки  $\lambda_{cut}$  от порядка многофотонности  $K = [U_i/\eta\omega_0 + 1]$ , где  $\omega_0$  – центральная частота действующего излучения, символ  $[ ]$  означает выделение целой части числа (рис. 2). При монотонном уменьшении  $\lambda_{cut}$  в спектре СП с увеличением  $\lambda_0$  (рис. 1), рост ее сдвига  $\Delta\lambda_{as} = \lambda_0 - \lambda_{cut}$  с увеличением параметра  $K$  близок к линейному (рис. 2). Полученная экспериментально зависимость  $\Delta\lambda_{as}(K)$  позволяет предположить, что существенную роль в формировании коротковолновой отсечки играет многофотонная ионизация.

**4. Физическая модель.** Анализ экспериментальных результатов основывается на модели, согласно которой уширение спектра импульса при формировании СП происходит в результате фазовой самомодуляции светового поля при нелинейном взаимодействии со средой. В приближении однонаправ-

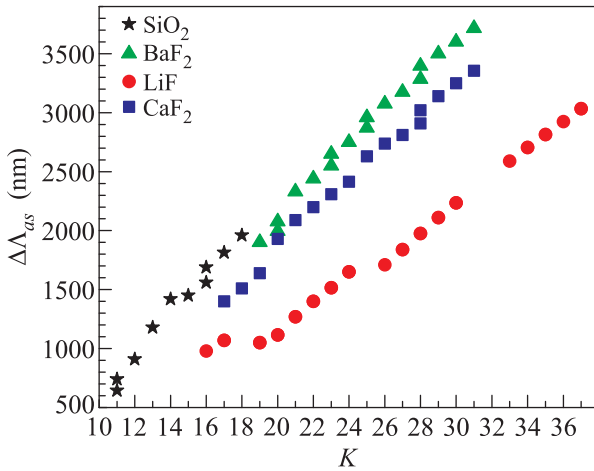


Рис. 2. (Цветной онлайн) Зависимости сдвига КВ-отсечки  $\Delta\Lambda_{as}$  от порядка многофотонности  $K$ , полученные по экспериментально измеренным спектрам для плавленого кварца,  $\text{CaF}_2$ ,  $\text{BaF}_2$  и  $\text{LiF}$

ленного распространения световое поле  $E(r, t, z)$  в нелинейной среде имеет вид:

$$E(r, t, z) = E_0(r, t, z) \times \exp\{i(\omega_0(t - t_0) - k_0z + \varphi_{nl}(r, t, z) + \text{const})\}, \quad (1)$$

где  $E_0(r, t, z)$  – комплексная амплитуда,  $\omega_0$ ,  $k_0 = 2\pi/\lambda_0$  – частота и волновое число воздействующего импульса,  $t_0$  – временной слой импульса. Пусть  $t_0 = 0$  соответствует центральному слою импульса. Раскладывая в ряд нелинейный набег фазы  $\varphi(r, t, z)$  в окрестности временного слоя  $t_0$  с точностью до первого порядка малости

$$\varphi_{nl}(r, t, z) = \varphi_{nl}(r, t_0, z) + \left. \frac{\partial \varphi}{\partial t} \right|_{t_0} (t - t_0), \quad (2)$$

можно представить световое поле  $E(r, t, z)$  в виде:

$$E(r, t, z) = E_0(r, t, z) \times \exp\{i((\omega_0 + \Delta\omega)(t - t_0) - k_0z + \text{const})\}, \quad (3)$$

где  $\Delta\omega(r, t_0, z) = \left. \frac{\partial \varphi}{\partial t} \right|_{t_0} (r, t_0, z)$  – нелинейное приращение частоты светового поля во временном слое импульса  $t_0$ . В СП нелинейный набег фазы  $\varphi_{nl}(r, t, z)$  определяется керровской нелинейностью  $\Delta n_k(r, z)$  и нелинейностью наведенной лазерной плазмы  $\Delta n_{pl}(r, t, z)$ :

$$\varphi_{nl}(r, t, z) = -k_0 \int_0^z (\Delta n_k(r, t, z') + \Delta n_{pl}(r, t, z')) dz', \quad (4)$$

где  $z$  – длина пробега СП. На переднем фронте СП ( $t_0 < 0$ ), где концентрация электронов в лазерной плазме пренебрежимо мала и доминирует керровская нелинейность ( $|\Delta n_k| \gg |\Delta n_{pl}|$ ), нелинейный сдвиг частоты равен:

$$\Delta\omega(r, t_0 < 0, z) = -k_0 n_2 \int_0^z \frac{\partial I}{\partial t}(r, t_0 < 0, z') dz', \quad (5)$$

где  $n_2$  – коэффициент кубичной нелинейности среды. Поскольку при  $t_0 < 0$  градиент интенсивности во времени  $\partial I/\partial t > 0$ , то  $\Delta\omega(r, t_0 < 0, z) < 0$ , что соответствует стоксову сдвигу частоты светового поля на переднем фронте СП.

На заднем фронте СП ( $t_0 > 0$ ), где преобладает вклад лазерной плазмы в изменение показателя преломления, нелинейный набег фазы  $\varphi_{nl}(r, t_0 > 0, z)$  определяется приращением действительной части показателя преломления плазмы, который можно представить в виде:

$$\Delta n_{pl}(r, t, z) = -\frac{1}{2} \left( \frac{\Omega}{\omega_0} \right)^2 \left( \frac{N_e(r, t, z)}{N_0} \right), \quad (6)$$

где  $N_e(r, t, z)$  – концентрация электронов на фронте плазменного канала, формирующегося на хвосте СП,  $N_0$  – концентрация нейтралов,  $\Omega^2 = e^2 N_0 / (\varepsilon_0 m_e)$  – квадрат плазменной частоты при степени ионизации, равной единице. Отсюда нелинейный сдвиг частоты на заднем фронте СП  $\Delta\omega_{as}(r, t_0 > 0, z)$  равен:

$$\Delta\omega_{as}(r, t_0 > 0, z) = \frac{k_0}{2} \left( \frac{\Omega}{\omega_0} \right)^2 \times \int_0^z \frac{\partial}{\partial t} \left( \frac{N_e(r, t_0 > 0, z')}{N_0} \right) dz'. \quad (7)$$

Так как  $\partial N_e(r, t_0 > 0, z)/\partial t > 0$ , то частотный сдвиг положительный  $\Delta\omega_{as}(r, t_0 > 0, z) > 0$ , и задний фронт СП является, таким образом, источником антистоксовых компонент СК.

Изменение концентрации электронов  $N_e(r, t, z)$  во времени определяется в общем случае фотоионизацией, лавинной ионизацией и процессами рекомбинации в плазме:

$$\frac{\partial N_e(r, t, z)}{\partial t} = W(I)(N_0 - N_e(r, t, z)) + \nu_i N_e(r, t, z) - \beta N_e^2. \quad (8)$$

Характерная частота  $\nu_i$  неупругих столкновений электронов с нейтралами равна:

$$\nu_i = \frac{1}{U_i} \frac{e^2 |E_0|^2}{2m_e(\omega_0^2 + \nu_c^2)} \nu_c, \quad (9)$$

где  $m_e$ ,  $e$  – масса и заряд электрона,  $U_i$  – ширина запрещенной зоны,  $\nu_c$  – частота упругих столкновений. В диэлектрике, например, с  $U_i \approx 10$  эВ и  $\nu_c \approx 10^{14} \text{ с}^{-1}$  при интенсивности  $I = 10^{13} \text{ Вт/см}^2$  излучения на длине волны  $\lambda_0 = 3$  мкм частота  $\nu_i$ , согласно оценкам, составляет около  $10^{15} \text{ с}^{-1}$ . Вследствие плазменной дефокусировки и возникновения ударной волны, огибающей СП, длительность ее заднего фронта, который является источником антистоксовых компонент СК, сокращается до нескольких фемтосекунд [14]. В этих условиях при относительной концентрации электронов в лазерной плазме, не превышающей десятой доли процента ( $N_e < 10^{-3} N_0$ ), вкладом лавинной ионизации в изменение концентрации электронов на заднем фронте СП можно пренебречь. Не влияют на концентрацию электронов  $N_e$  и процессы рекомбинации с характерным временем в несколько пикосекунд.

В СП пиковая интенсивность светового поля увеличивается от  $10^{10} \div 10^{11} \text{ Вт/см}^2$  до интенсивности насыщения (“*intensity clamping*”), порядка  $10^{13} \div 10^{14} \text{ Вт/см}^2$ . В плавленом кварце и фторидах на длине волны среднего ИК-диапазона параметр адиабатичности  $\gamma = \omega_0 \sqrt{2m_e U_i} / (e|A|)$  [28] при интенсивности насыщения  $10^{14} \text{ Вт/см}^2$  меньше единицы, что соответствует преобладанию туннельной ионизации. Однако на заднем фронте СП, где интенсивность порядка  $10^{13} \text{ Вт/см}^2$ , параметр  $\gamma \geq 1$ , и фотоионизация происходит в режиме, промежуточном между туннельной и многофотонной ионизацией. Характер зависимости сдвига длины волны отсечки  $\Delta\lambda_{as} = \lambda_0 - \lambda_{cut}$  от параметра многофотонности в спектре СП, полученный экспериментально (рис. 2), позволяет предполагать, что в изменении концентрации электронов на заднем фронте СП, где генерируются антистоксовы компоненты СК, доминирует многофотонная ионизация, при которой изменение концентрации электронов во времени описывается уравнением:

$$\partial N_e / \partial t = \sigma_K I^K N_0, \quad (10)$$

где  $\sigma_K$  – сечение многофотонной ионизации,  $I$  – интенсивность на заднем фронте СП. При этом частота коротковолновой отсечки  $\omega_{cut}$  в антистоксовой области спектра СК определяется наибольшей скоростью нарастания концентрации электронов, которая достигается именно при многофотонной, а не туннельной ионизации. Следует заметить, что согласно экспериментам, выполненным в различных материалах с импульсом на длине волны 1300 нм длительностью 110 фс [29], нелинейное поглощение в широкозонных диэлектриках с увеличением интенсивности

до  $5 \cdot 10^{13} \text{ Вт/см}^2$  растет пропорционально  $I^{K'}$ , где параметр  $K'$  незначительно меньше порядка многофотонности  $K$ . В принятых приближениях антистоксово уширение спектра  $\Delta\omega_{as}$ , определяемое по (7), (10) в предположении, что  $\partial N_e / \partial t = \text{const}$  на длине пробега СП, принимает вид:

$$\Delta\omega_{as} = \frac{\pi}{\lambda_0} \left( \frac{\lambda_0}{\Lambda} \right)^2 z \sigma_K I^K. \quad (11)$$

Поскольку сечение  $\sigma_K$  слабо зависит от интенсивности, длина пробега СП – от  $\lambda_0$  то, переходя от сдвига частоты  $\Delta\omega_{as}$  к сдвигу КВ-отсечки  $\Delta\lambda_{as} = \lambda_0 - \lambda_{cut}$ , можно найти такую функцию  $F(\Delta\lambda_{as}, \lambda_0)$ , которая пропорциональна  $K$ :

$$F(\Delta\lambda_{as}, \lambda_0) = \lg \left( \frac{\Delta\lambda_{as} \Lambda^2}{\lambda_0^3} \right) \propto K + \text{const},$$

где  $\Lambda = 2\pi c / \Omega$ . В твердотельных диэлектриках  $N_0 \approx 10^{22} \text{ см}^{-3}$ , и плазменная длина волны при полной ионизации составляет  $\Lambda \approx 0.34$  мкм.

Линейную зависимость функции от порядка многофотонности  $K$  подтверждают графики, которые построены по экспериментальным измерениям, выполненным для всех исследованных материалов при перестройке длины волны импульса среднего ИК-диапазона от 1350 до 4100 нм (рис. 3). При этом для

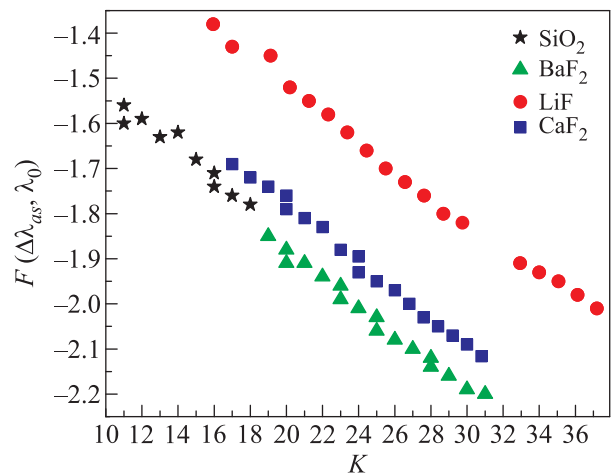


Рис. 3. (Цветной онлайн) Рассчитанная по экспериментальным данным зависимость функции  $F(\Delta\lambda_{as}, \lambda_0)$  от порядка многофотонности  $K$

расчета функции  $F(\Delta\lambda_{as}, \lambda_0)$ , определяющей КВ-отсечку в плавленом кварце, использованы экспериментальные данные, приведенные в [18]. Следует заметить, что, судя по рис. 1, при увеличении длины волны воздействующего импульса, когда, казалось бы, вклад туннельной ионизации должен возрастать,

роль многофотонной ионизации остается определяющей для всего антистоксова крыла СК.

Полученная линейная зависимость функции символическое написание ее  $F(\Delta\lambda_{as}, \lambda_0)$  от порядка многофотонности  $K$  убедительно свидетельствует о том, что длина волны отсечки  $\lambda_{cut}$  антистоксова крыла СК, генерируемого СП среднего ИК-диапазона, определяется многофотонным процессом генерации динамического фронта плазменного канала световым полем на заднем фронте СП. Таким образом, анализ полученных экспериментальных данных показывает, что сдвиг спектра СК в коротковолновую сторону или, иначе говоря, его коротковолновую отсечку определяет высокая скорость многофотонной ионизации плазмы, создаваемой задним фронтом СП.

Эксперименты выполнены на уникальной научной установке “Многоцелевой фемтосекундный лазерно-диагностический спектрометрический комплекс” Института спектроскопии РАН. Исследование выполнено за счет гранта Российского научного фонда (проект # 18-12-00422).

1. R. R. Alfano and S. L. Shapiro, *Phys. Rev. Lett.* **24**, 584 (1970).
2. Н. Г. Бондаренко, И. В. Еремина, В. И. Таланов, *Письма в ЖЭТФ* **12**, 125 (1970) [N. G. Bondarenko, I. V. Eremina, and V. I. Talanov, *JETP Lett.* **12**, 85 (1970)].
3. A. Brodeur and S. L. Chin, *JOSA B* **16**, 637 (1999).
4. V. P. Kandidov, O. G. Kosareva, I. S. Golubtsov, W. Liu, A. Becker, N. Aközbeq, C. M. Bowden, and S. L. Chin, *Appl. Phys. B* **77**, 149 (2003).
5. W. Liu, S. Petit, A. Becker, N. Aközbeq, C. M. Bowden, and S. L. Chin, *Opt. Commun.* **202**, 189 (2002).
6. C. Nagura, A. Suda, H. Kawano, M. Obara, and K. Midorikawa, *Appl. Opt.* **41**, 3735 (2002).
7. A. Dubietis, G. Tamošauskas, R. Šuminas, V. Jukna, and A. Couairon, *Lithuanian Journal of Physics* **57**, 113 (2017).
8. A. Salimonia, S. L. Chin, and R. Vallée, *Opt. Express* **13**, 5731 (2005).
9. M. L. Naudeau, R. J. Law, T. S. Luk, T. R. Nelson, and S. M. Cameron, *Opt. Express* **14**, 6194 (2006).
10. J. Liu, R. Li, and Z. Xu, *Phys. Rev. A* **74**, 043801 (2006).
11. L. Berge and St. Skupin, *Phys. Rev. Lett.* **100**, 113902 (2008).
12. Е. О. Сметанина, В. О. Компанец, С. В. Чекалин, В. П. Кандидов, *Квант. электроника* **42**, 913 (2012).
13. Е. О. Сметанина, В. О. Компанец, С. В. Чекалин, В. П. Кандидов, *Квант. электроника* **42**, 920 (2012).
14. E. O. Smetanina, V. O. Kompanets, A. E. Dormidonov, S. V. Chekalin, and V. P. Kandidov, *Laser Phys. Lett.* **22**, 1189 (2012).
15. E. O. Smetanina, V. O. Kompanets, S. V. Chekalin, A. E. Dormidonov, and V. P. Kandidov, *Opt. Lett.* **38**, 16 (2013).
16. S. V. Chekalin, A. E. Dokukina, A. E. Dormidonov, V. O. Kompanets, E. O. Smetanina, and V. P. Kandidov, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **48**, 094008 (2015).
17. С. В. Чекалин, А. Е. Докукина, А. Е. Дормидонов, Е. О. Сметанина, В. О. Компанец, В. П. Кандидов, *Квант. электроника* **45**, 401 (2015).
18. M. Durand, K. Lim, V. Jukna, E. McKee, M. Baudelet, A. Houard, M. Richardson, A. Mysyrowicz, and A. Couairon, *Phys. Rev. A* **87**, 043820 (2013).
19. P. Vasa, J. A. Dharmadhikari, A. K. Dharmadhikari, R. Sharma, M. Singh, and D. Mathur, *Phys. Rev. A* **89**, 043834 (2014).
20. A. E. Dormidonov, V. O. Kompanets, S. V. Chekalin, and V. P. Kandidov, *Opt. Express* **23**, 29202 (2015).
21. А. Е. Дормидонов, В. О. Компанец, С. В. Чекалин, В. П. Кандидов, *Письма в ЖЭТФ* **104**, 173 (2016).
22. J. Darginavicius, D. Majus, V. Jukna, N. Garejev, G. Valiulis, A. Couairon, and A. Dubietis, *Opt. Express* **21**, 25210 (2013).
23. J. A. Dharmadhikari, R. A. Deshpande, A. Nath, K. Dota, D. Mathur, and A. K. Dharmadhikari, *Appl. Phys. B* **117**, 471 (2014).
24. I. Grazuleviciute, N. Garejev, D. Majus, V. Jukna, G. Tamošauskas, and A. Dubietis, *J. Opt.* **18**, 025502 (2016).
25. N. Gareev, G. Tamosauskas, and A. Dubietis, *JOSA B* **34**, 88 (2017).
26. M. Bradler, P. Baum, and E. Riedle, *Appl. Phys. B* **97**, 361 (2009).
27. С. В. Чекалин, В. О. Компанец, А. Е. Дормидонов, В. П. Кандидов, *Квант. электроника* **47**, 259 (2017).
28. Л. В. Келдыш, *ЖЭТФ* **47**, 1945 (1964).
29. D. Grojo, S. Leyder, P. Delaporte, W. Marine, M. Sentis, and O. Utéza, *Phys. Rev. B* **88**, 195135 (2013).