Письма в ЖЭТФ, том 121, вып. 2, с. 87 – 92 © 2025 г. 25 января

Конкуренция нелинейных процессов третьего порядка в области нормальной и аномальной дисперсии фемтосекундных лазерных импульсов накачки при распространении в дистиллированной воде

П. А. Данилов[+1)], *Ю. С. Гулина*[+], *Ц. Чжу*[+2)], *И. Д. Матяев*[+*], *П. Я. Илюшин*[+×], *И. В. Ермолаев*[+*], *А. И. Смольский*[+*], *С. И. Кудряшов*[+]

[+]*Физический институт им. П. Н. Лебедева РАН, 119991 Москва, Россия*

[*]*Московский государственный технический университет им. Н. Э. Баумана, 105005 Москва, Россия*

[×]*Московский государственный университет имени М. В. Ломоносова, 119991 Москва, Россия*

Поступила в редакцию 20 ноября 2024 г.
После переработки 20 ноября 2024 г.
Принята к публикации 21 ноября 2024 г.

Проведены исследования генерации суперконтинуума и третьей гармоники в дистиллированной воде сфокусированными фемтосекундными лазерными импульсами коротковолнового инфракрасного диапазона в областях их нормальной и аномальной дисперсии. Обнаружена конкуренция соответствующих нелинейностей третьего порядка – для длин волн накачки 900–1200 нм (в области нормальной дисперсии) происходит генерация суперконтинуума с уширением спектра преимущественно в синюю область. При прохождении фемтосекундных лазерных импульсов с длиной волны 1300 нм в области аномальной дисперсии воды обнаружена генерация третьей оптической гармоники с уширением в красную область спектра. Насыщение и спад выхода третьей гармоники на длине волны 1300 нм с ростом энергии импульсов связывается с ухудшением фазового синхронизма в результате ионизации среды, что благоприятствует генерации суперконтинуума, нечувствительного к синхронизму.

DOI: 10.31857/S0370274X25010138, EDN: CUUDML

1. Высокая интенсивность ультракоротких лазерных импульсов (УКИ) позволяет использовать их для исследования нелинейных процессов, таких как фазовая самомодуляция (ФСМ), самофокусировка и филаментация [1, 2]. Мощное лазерное излучение может трансформироваться в импульсы белого света – суперконтинуума (СК) – при взаимодействии с различными оптическими средами [3–5]. Явление генерации СК обычно сопряжено с формированием филамента вследствие динамического равновесия между процессами керровской самофокусировки и дефокусировки на плазме, образующейся в результате многофотонной ионизации вещества [6–11]. Источники белого света активно применяются для картирования биологических образцов, многофотонной и нелинейной спектроскопии, детектировании химических соединений в атмосфере, генерации сверхкоротких световых импульсов, параметрической генерации [12–14].

В качестве жидкой активной среды для формирования СК часто используется вода. Многочисленные экспериментальные и теоретические работы показывают возможность генерации СК в режиме нормальной дисперсии групповых скоростей от ультрафиолетового (УФ) до ближнего инфракрасного (ИК) диапазонов при варьировании длины волны и мощности накачки. В настоящее время также проводятся исследования филаментации и генерации СК в условиях аномальной дисперсии. Отличительной особенностью белого света в этом случае является возникновение смещенного в синюю область спектрального максимума [15]. Вода в ближнем ИК-диапазоне имеет несколько сильных полос поглощения, одна из которых (с центром ~ 1460 нм), связана с симметричными и ассиметричными резонансными колебаниями молекулы H_2O [16]. Тем не менее, мощные УКИ на длинах волн более 1300 нм позволяют достичь значительного спектрального уширения в воде более чем на две октавы [15], и исследовать влияние различных режимов дисперсии групповых скоростей на спектр СК [5].

Помимо формирования СК процесс филаментации мощных УКИ в различных средах сопровождается генерацией оптических гармоник, механизм образования которых описан, например, в [17]. Ре-

1)e-mail: danilovpa@lebedev.ru
2)J. Zhu.

зультаты в этой области интересны для создания новых источников коротковолнового излучения, исследования особенностей нелинейно-оптического отклика плазмы в интенсивных световых полях [18]. О генерации третьей гармоники (ГТГ) и управлении ее параметрами при филаментации мощных УКИ в газах сообщается в работе [19]. Четные и нечетные оптические гармоники могут быть сформированы при оптическом пробое воздуха [20] в условиях жесткой фокусировки и филаментации УКИ [21]. Аналогичные эффекты могут наблюдаться в жидких средах. В работе [22] при формировании СК в воде под действием лазерных импульсов с длиной волны 1240 нм в режиме филаментации было зарегистрировано излучение с максимумом ~ 413 нм, что соответствует третьей оптической гармонике, спектральные характеристики которой не были исследованы. Также сообщалось об эффективной ГТГ при филаментации излучения с длиной волны 1300 нм в пяти различных жидкостях [23]. Для толуола было показано, что в процессе филаментации величина выхода третьей гармоники (ТГ) уменьшается по мере увеличения интенсивности импульсов накачки вплоть до образования СК. Кроме того, генерация гармоник в сфокусированных пучках может применяться как метод двухмерной высококонтрастной визуализации микроплазменных областей в твердых диэлектриках [24]. Тем не менее, вопрос конкуренции нелинейных процессов при переходе от ГТГ к формированию суперконтинуума в воде в процессе филаментации коротковолновых ИК УКИ в областях их нормальной и аномальной дисперсии в настоящее время все еще остается открытым.

В данной работе представлены результаты исследования спектральных характеристик ТГ и СК,генерация которых вызвана филаментацией лазерных импульсов с длинами волн 900–1300 нм и длительностью ~ 80–310 фс различной энергии в дистиллированной воде. Показано, что для длин волн накачки вблизи полосы поглощения воды наблюдается преимущественная генерация третьей оптической гармоники,интенсивность которой нелинейно зависит от мощности лазерных импульсов.

2. Система параметрической генерации (Parus, Авеста-Проект) с твердотельным иттербиевым лазером накачки (ТЕТА-20, Авеста-Проект), максимальной энергией в импульсе $E = 500$ мкДж, длительностью импульсов 250 фс и частотой следования 10 кГц использовалась для параметрической генерации с длинами волн 900–1300 нм. Излучение фокусировалось в кварцевую кювету с дистиллированной водой с длиной оптического пути 10 мм, толщиной стенок 1.2 мм объективом с числовой апертурой NA = 0.1 (ЛОМО) на глубину 3 мм в пятно радиусом по уровню энергии $1/e^2$ от 2.3 до 4.2 мкм (рис. 1). На выходе параметрического генератора устанавливался коротковолновый или длинноволновый пропускающий

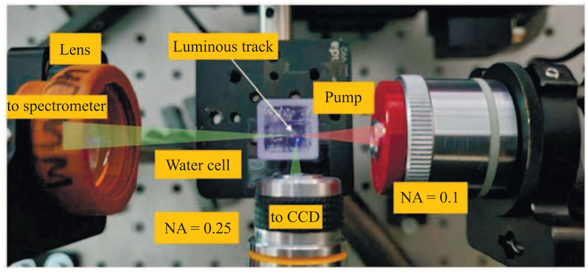

Рис. 1. (Цветной онлайн) Схема спектральных измерений

фильтр SP1000 (Фотооптик) или LP1050 (Фотооптик) с длиной волны отсечки 1000 и 1050 нм для длин волн 900 и 1105–1300 нм соответственно.Изменение энергии импульсов от 0.1 до 4.0 мкДж производилось путем поворота кристалла второй гармоники, которая используется для параметрической генерации. После прохождения кюветы с водой излучение собиралось флюоритовой линзой (CaF_2) с фокусным расстоянием 40 мм и фокусировалось на щели спектрометра видимого-ближнего ИК диапазона ASP-150TF (Авеста-Проект) с использованием коротковолновых пропускающих фильтров SP850-SP1000 (Фотооптик) для уменьшения интенсивности лазерной линии.

Энергия и мощность синего крыла СК, включая ТГ, были измерены с помощью кремниевого фотодиодного (Ophir PD10-C) и пироэлектрического (Ophir 3A-P) датчиков. Длительность импульсов на выходе параметрического генератора регистрировалась автокоррелятором ASF-30 (Авеста-Проект), и составляла от 80 до 310 фс. Измерения спектров лазерных импульсов в ближнем ИК-диапазоне (1105–1300 нм) проводились при помощи ИК-спектрометра ASP-IR-2.6 (Авеста-Проект). Коэффициент поглощения воды был определен путем измерения пропускания кварцевой кюветы с водой (длина пути 10 мм) с использованием спектрофотометра СФ2000 (ОКБ Спектр) и ИК-Фурье спектрометра Vertex 70v (Bruker).

3. Спектральные измерения СК и ТГ на выходе из кварцевой кюветы с дистиллированной водой проводились с использованием двух спектрометров и последующей сшивки сигналов по частично пере-

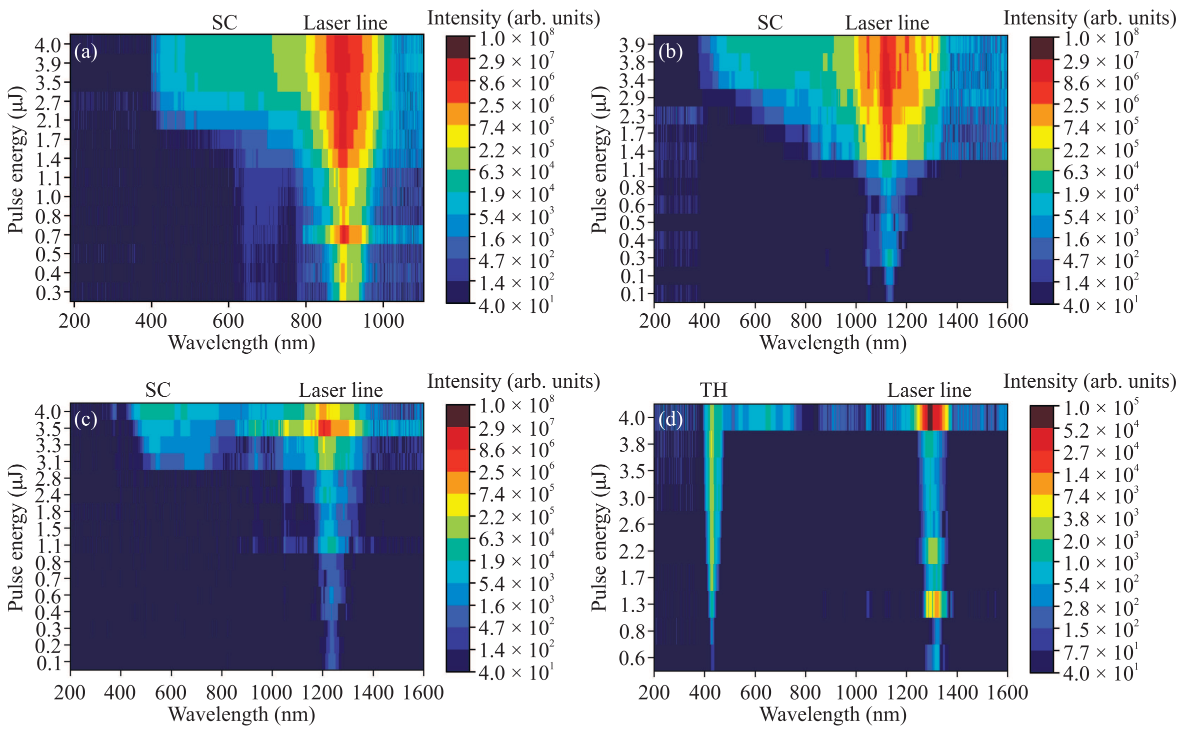

Рис. 2. (Цветной онлайн) Тепловые карты спектров суперконтинуума, третьей гармоники и лазерных импульсов после прохождения через кювету с водой для длин волн 900 нм (a), 1105 нм (b), 1200 нм (c) и 1300 нм (d) и энергиями в импульсе 0.1–4.0 мкДж

крывающимся рабочим диапазонам. Соответствующие тепловые карты представлены на рис. 2. Прохождение лазерных импульсов с длиной волны $\lambda =$ $= 900$ нм ($\tau \approx 180$ фс) и энергией $E = 0.3-1.7$ мкДж через кювету с водой сопровождается значительным (~ 200 нм) уширением и образованием синего крыла в диапазоне 600–800 нм. При энергии лазерных импульсов $E = 2.1$ мкДж визуально наблюдается появление конической эмиссии и устойчивой генерации белого света (СК) в диапазоне 400–1000 нм. Увеличение энергии лазерных импульсов до $E = 3.5$ мкДж приводит к увеличению интенсивности СК почти на порядок и последующему насыщению, так как при дальнейшем увеличении энергии накачки до 4 мкДж интенсивность СК не претерпевает заметных изменений (рис. 2a). Отметим, что интенсивность белого света практически постоянна в диапазоне от 450 до 800 нм при энергиях выше 3.5 мкДж.

Рассмотрим распространение лазерных импульсов с длиной волны $\lambda = 1105$ нм ($\tau \approx 310$ фс) через кварцевую кювету с дистиллированной водой. Значительное спектральное уширение в красную и синюю область достигается при энергии $E = 1.7$ мкДж (рис. 2b). Увеличение энергии лазерных импульсов до значений $E = 2.3-2.9$ мкДж приводит к эмиссии красного света с максимумом ~ 750 нм и синим крылом с интенсивностью на 1–2 порядка ниже. Генерация устойчивого СК наблюдается при энергии $E =$ 3.4 мкДж, когда происходит значительное увеличение интенсивности свечения в диапазоне 400–800 нм. Совокупная ширина спектра СК при этом составляет порядка 1000 нм (400–1400 нм). Увеличение энергии накачки от $E = 3.4$ мкДж до $E = 3.8-3.9$ мкДж усиливает синее крыло и обеспечивает практически постоянную интенсивность СК в диапазоне 500–800 нм.

Другая картина наблюдается при прохождении лазерных импульсов с длиной волны $\lambda = 1200$ нм ($\tau \approx 100$ фс) через дистиллированную воду. Лазерная линия уширяется ($\sim 50-100$ нм) практически симметрично в синюю и красную области с появлением отдельных компонент с максимумами ~ 930, 1050 и 1330 нм. Рост энергии накачки до значений $E = 2.8-3.1$ мкДж приводит к генерации СК с явным провалом вблизи 800 нм (рис. 2c). Увеличение энергии лазерных импульсов до величин $E =$ 3.3–4.0 мкДж усиливает СК, амплитуда которого становится на порядок выше. Спектр СК с общей шириной 400–1400 нм в видимом диапазоне не является плоским и имеет выраженное синее крыло с максимумом $\sim 500-530$ нм. Генерации излучения в

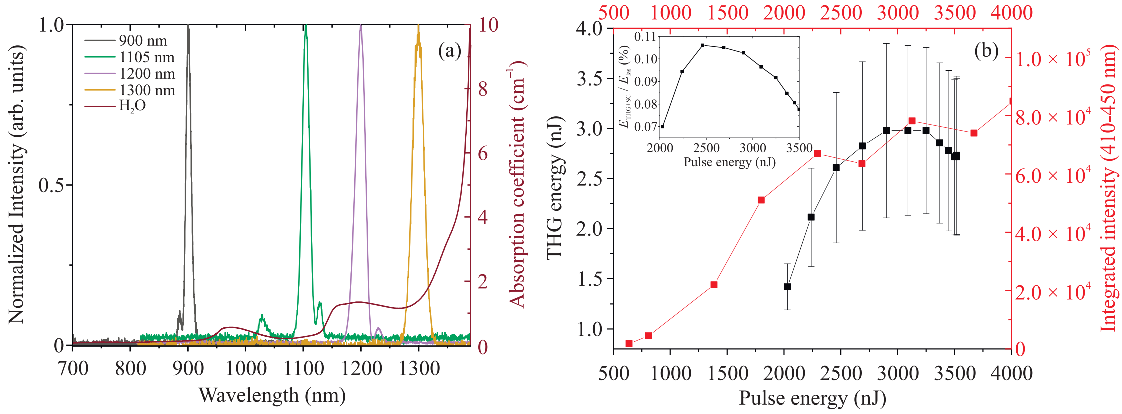

Рис. 3. (Цветной онлайн) (a) – Нормированные спектры лазерных линий накачки в диапазоне 900–1300 нм с наложением спектра поглощения воды (правая шкала); (b) – зависимость интегральной спектральной интенсивности (красная кривая) в диапазоне 410–450 нм и выхода ТГ (черная кривая) от энергии лазерных импульсов накачки $\lambda = 1300$ нм, на вставке изображена эффективность (в %) ГТГ в воде на длине волны $\lambda = 1300$ нм

УФ-диапазоне с длиной волны менее 400 нм не происходит.

Лазерные импульсы с длиной волны $\lambda = 1300$ нм ($\tau \approx 150$ фс) попадают в область сильного поглощения воды, что отражается в более низкой амплитуде спектров на выходе из кюветы. При самых низких энергиях лазерных импульсов $E = 0.6$ мкДж на выходе из кюветы наблюдается синее свечение, спектральный максимум которого (~ 433 нм) соответствует ТГ излучения накачки. Отметим, что излучение пропадает, если удалить воду из кюветы, т.е. ГТГ не вызвана прохождением лазерного излучения через стенки кюветы. Увеличение энергии накачки до $E = 3.8$ мкДж усиливает интенсивность ТГ, спектр которой практически симметрично уширяется в синюю и красную область,захватывая диапазон 400–480 нм (рис. 2d). Генерация слабого излучения СК наблюдается при $E = 4.0$ мкДж, перекрывая диапазон 390–800 нм с максимумом ~ 650 нм. Заметно, что амплитуда ТГ в спектре при этом уменьшается.

Основной причиной генерации СК в газообразных и жидких средах является ФСМ лазерного импульса в условиях нелинейного взаимодействия с веществом [25]. Этот процесс может ограничиваться за счет генерации большого количества свободных носителей заряда (электронов) при высоких интенсивностях излучения и образования критической плазмы (плазменная дефокусировка), а также другими конкурирующими нелинейными процессами. ФСМ связана с нелинейностью третьего порядка, которой обычно сопоставляется нелинейная восприимчивость $\chi^{(3)}(\omega;\omega,\omega,-\omega)$. В то же время, для ГТГ в среде с кубической нелинейностью типа $\chi^{(3)}(3\omega;\omega,\omega,\omega)$ необходимо выполнение условия фазового синхронизма, которое можно записать в виде $n(\omega) = n(3\omega)$. Его выполнение возможно, если одна из частот ω или 3ω попадает в область аномальной дисперсии,обычно вблизи сильных полос поглощения вещества. В нашем случае ГТГ наблюдается при накачке с длиной волны $\lambda = 1300$ нм, которая попадает на край сильной ($\alpha > 20\,\text{см}^{-1}$) полосы поглощения молекулы воды [16], т.е. в отличие от генерации СК ГТГ усиливается промежуточным резонансом. Действительно, отстройка накачки от края поглощения в область меньших длин волн (900–1200 нм) приводит к более стабильной генерации СК, интенсивность которого выше при сравнимых энергиях лазерных импульсов. Отсутствие ТГ в этом случае указывает на конкуренцию нелинейных процессов, связанных с $\chi^{(3)}(\omega;\omega,\omega,-\omega)$ (ФСМ, самофокусировка, генерация СК) и $\chi^{(3)}(3\omega;\omega,\omega,\omega)$ (ГТГ), вклад которых в нелинейную поляризацию среды зависит как от энергии накачки, так и от условий резонансного (вблизи полосы поглощения) и нерезонансного возбуждения.

Дополнительно в случае накачки с длиной волны $\lambda = 1300$ нм были установлены зависимости от энергии УКИ накачки для энергии выхода ТГ и синего крыла СК (410–450 нм), вырезанных набором фильтров (LP410 + SP450, Фотооптик), с использованием кремниевой ПЗС-линейки (диапазон работы 190–1100 нм). Зависимости энергии выхода ТГ (черные точки) и интегральной спектральной интенсивности ТГ + СК в диапазоне 410–450 нм (красные точки) представлены на рис. 3b. По мере увеличения энергии лазерных импульсов накачки обе кривые демонстрируют нелинейный рост с последующим насыщением в диапазоне энергий $E = 2.9{-}3.3$ мкДж. Дальнейший рост энергии накачки до значений $E = 3.5$ мкДж приводит к снижению выхода ТГ, в то время как интегральная спектральная интенсивность продолжает незначительно увеличиваться. При этом отношение энергии ТГ и СК к энергии накачки лазерных импульсов $E_{\mathrm{THG+SC}}/E_{\mathrm{las}}$ (рис. 3b, вставка), характеризующее эффективность генерации третьей гармоники демонстрирует максимальную эффективность преобразования $\sim 0.1\,\%$ ($E_{1300\,\mathrm{nm}} = 2.5$ мкДж) с энергией $E_{433\,\mathrm{nm}} = 3$ нДж и указывает на уменьшение вклада ТГ при $E_{1300\,\mathrm{nm}} >$ > 2.5 мкДж. Кроме того, продолжающийся рост интегральной спектральной интенсивности ТГ + СК при энергии накачки $E_{1300\,\mathrm{nm}} = 4$ мкДж, когда на выходе из кюветы наблюдается генерация белого света, и уменьшение эффективности ГТГ указывают на ухудшение условий фазового синхронизма и перераспределение энергии УКИ накачки в пользу ФСМ на основной частоте и генерации СК.

4. В заключение,в данной работе были исследованы особенности нелинейных процессов генерации СК и третьей оптической гармоники при фокусировке фемтосекундных коротковолновых ИК лазерных импульсов в дистиллированную воду. Использование излучения коротковолнового ИК-диапазона (900–1200 нм) приводит к значительному (порядка 1000 нм) синему уширению спектра и стабилизации интенсивности белого света в диапазоне 500–850 нм. Накачка лазерными импульсами с длиной волны 1300 нм вблизи сильной полосы поглощения воды приводит к генерации третьей оптической гармоники с максимальной эффективностью $\sim 0.1\,\%$ при энергии накачки $E_{1300\,\mathrm{nm}} = 2.5$ мкДж, при этом по мере увеличения энергии лазерных импульсов наблюдается постепенное насыщение выхода ТГ, связанное с ухудшением фазового синхронизма. Различный характер нелинейных процессов – ГТГ и СК – проявляющийся при отстройке длины волны накачки от края полосы сильного поглощения воды указывает на конкуренцию нелинейных процессов третьего порядка в условиях резонансного и нерезонансного возбуждения.

Финансирование работы. Исследование выполнено за счет гранта Российского научного фонда (проект # 23-22-00453),
https://rscf.ru/en/project/23-22-00453/.

Конфликт интересов. Авторы данной работы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

1. V. P. Kandidov, S. A. Shlenov, and O. G. Kosareva, Quantum Electron. **39**, 205 (2009).
2. A. Dubietis, G. Tamošauskas, I. Diomin, and A. Varanavičius, Opt. Lett. **28**, 1269 (2003).
3. F. Silva, D.R. Austin, A. Thai, M. Baudisch, M. Hemmer, D. Faccio, A. Couairon, and J. Biegert, Nat. Commun. **3**, 807 (2012).
4. J. Galinis, G. Tamošauskas, I. Gražuleviciūte, E. Keblytė, V. Jukna, and A. Dubietis, Phys. Rev. A **92**, 033857 (2015).
5. J. A. Dharmadhikari, G. Steinmeyer, G. Gopakumar, D. Mathur, and A. K. Dharmadhikari, Opt. Lett. **41**, 3475 (2016).
6. G. Fibich and B. Ilan, Phys. D **157**, 112 (2001).
7. N. G. Ivanov and V. F. Losev, Atmos. Oceanic Opt. **30**, 331 (2017).
8. K. Lim, M. Durand, M. Baudelet, and M. Richardson, Sci. Rep. **4**, 7217 (2014).
9. G. K. Krasin, N. G. Stsepuro, V. P. Martovitsky, and M. S. Kovalev, Opt. Spectrosc. **130**, 507 (2022).
10. G. K. Krasin, Y. S. Gulina, E. V. Kuzmin, V. P. Martovitskii, and S. I. Kudryashov, Photonics **10**, 106 (2023).
11. Y. S. Gulina, J. Zhu, G. K. Krasin, E. V. Kuzmin, and S. I. Kudryashov, Photonics **10**, 1177 (2023).
12. A. Howard, Y. Liu, and A. Mysyrowicz, J. Phys.: Conf. Ser. **497**, 012001 (2014).
13. J. Kasparian, M. Rodriguez, G. Méjean, J. Yu, E. Salmon, H. Wille, R. Bourayou, S. Frey, Y. B. Andre, A. Mysyrowicz, R. Sauerbrey, J. P. Wolf, and L. Wöste, Science **301**, 61 (2003).
14. S. L. Chin, S. A. Hosseini, W. Liu, Q. Luo, F. Theberge, N. Akozbek, A.!Becker, V. P. Kandidov, O. G. Kosareva, and H. Schroeder, Can. J. Phys. **83**, 863 (2005).
15. P. Vasa, J. A. Dharmadhikari, A. K. Dharmadhikari, R. Sharma, M. Singh, and D. Mathur, Phys. Rev. **89**, 043834 (2014).
16. S. Kedenburg, M. Vieweg, T. Gissibl, and H. Giessen, Opt. Mater. Express. **2**, 1588 (2012).
17. Y. R. Shen, *The Principles of Nonlinear Optics*, Wiley, N.Y. (1984).
18. A. N. Tcypkin, S. E. Putilin, M. V. Melnik, E. A. Makarov, V. G. Bespalov, and S. A. Kozlov, Appl. Opt. **55**, 8390 (2016).
19. A. B. Fedotov, N. I. Koroteev, M. M. T. Loy, X. Xiao, A. M. Zheltikov, Opt. Commun. **133**, 587 (1997).
20. C. W. Siders, N. C. Turner, M. C. Downer, A. Babine, A. Stepanov, and A. M. Sergeev, J. Opt. Soc. Am. B **13**, 330 (1996).
21. A. A. Ionin, S. I. Kudryashov, L. V. Seleznev, D. V. Sinitsyn, E. S. Sunchugasheva, and V. Yu. Fedorov, Laser Phys. **21**, 500 (2011).

22. F. V. Potemkin, E. I. Mareev, and E. O. Smetanina, Phys. Rev. A **97**, 033801 (2018).
23. G. Mao, Y. Wu and K. D. Singer, Opt. Express. **15**, 8 (2007).
24. E. I. Mareev, E. A. Migal, and F. V. Potemkin, Appl. Phys. Lett. **114**, 3 (2019).
25. E. O. Smetanina, V. O. Kompanets, S. V. Chekalin, and V. P. Kandidov, Quantum Electron. **42**, 913 (2012).