Письма в ЖЭТФ, том 109, вып. 7, с. 442 – 446

Филаментация ультракороткого лазерного импульса в среде с искусственной нелинейностью

С. И. Кудряшов[+*1)], *А. А. Самохвалов*[+], *Э. И. Агеев*[+], *В. П. Вейко*[+]

[+] *Университет информационных технологий, механики и оптики, 197101 С.-Петербург, Россия*

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

Поступила в редакцию 10 января 2019 г.
После переработки 28 января 2019 г.
Принята к публикации 30 января 2019 г.

Введение в воду небольших концентраций суб-волновых золотых наночастиц (коэффициент экстинкции ~ 0.01–$1\,\text{см}^{-1}$) позволяет за счет нелинейных диссипативных потерь первичного излучения ультракороткого лазерного импульса накачки и вторичного излучения широкополосного излучения (суперконтинуума, СК) эффективно управлять филаментацией, поскольку собственный коэффициент экстинкции в режиме множественной филаментации не превышает $0.04\,\text{см}^{-1}$. Методами оптической эмиссионной и фотоакустической спектроскопии показано, что увеличение потерь в коллоидном растворе сублинейно повышает уровень мощности ультракороткого лазерного импульса для нелинейной генерации суперконтинуума аналогичной интенсивности, а вблизи порога генерации суперконтинуума – также повышает и порог филаментации. Вместе с тем, в области плазмонного резонанса наночастиц на фоне широкополосного нелинейного поглощения наблюдается существенное усиление эмиссии суперконтинуума. Полученные результаты свидетельствуют о новых возможностях управления нелинейно-оптическими характеристиками сред для филаментационной генерации ультракоротких световых импульсов в различных спектральных диапазонах.

DOI: 10.1134/S0370274X19070026

1. Нелинейное распространение мощных ультракоротких лазерных импульсов (УКИ) в оптически прозрачных средах связано с их пороговой самофокусировкой и последующей филаментацией, пространственные, временные и спектральные характеристики которых управляются длиной волны, пиковой мощностью, параметрами модуляции амплитуды и фазы волнового фронта УКИ, а также их фокусировки [1–4]. В то же время, существуют возможности управления филаментацией УКИ путем использования сред распространения с перестраиваемыми узко- [5] или широкополосными [6–8] потерями варьируемой величины (включая, как частный случай, усиливающие среды [9]). В результате можно ожидать новые и пока не исследованные трансформации УКИ не только в пространственном, но и частотно-временном масштабах с более сложной динамикой распространения.

В настоящей работе показывается, что введение небольших концентраций коллоидных золотых наночастиц позволяет управлять выходом излучения суперконтинуума (СК), как нелинейно-оптического спектрального индикатора филаментации, с помощью нелинейных потерь излучения УКИ и усиления эмиссии в области плазмонного резонанса наночастиц.

2. В данной работе импульсы титан-сапфирового лазера (800 нм, 100 фс, 10 Гц) с пиковой мощностью $P \approx 10$ ГВт, варьируемой бинарным дифракционным ослабителем, фокусировались линзой (стекло К-8) с фокусным расстоянием ≈ 45 мм в лабораторную жидкостную кювету длиной 5 см через входное окно из стекла К-8 ближе ($\approx$ в 0.5 см) от выходного окна из плавленого кварца КУ-1 (рис. 1a). В качестве жидкостей использовалась дистилированная вода двойной перегонки и коллоидные растворы золотых наночастиц со средним размером ~ 100 нм и плазмонным резонансом около 520 нм, полученных наносекундной лазерной абляцией твердой золотой мишени (Сбербанк РФ, чистота – 99.99 %) в дистиллированной воде без стабилизаторов. Коллоидные растворы наночастиц с различным пропусканием в видимом диапазоне (рис. 1b, коэффициенты экстинкции в диапазоне 0.01–$1\,\text{см}^{-1}$), измеренным на спектрофотометре СФ-56 в ячейке шириной 1 см из плавленого кварца КУ-1, готовились бинарным разбавлением первоначального раствора максимальной концентрации (100 %) и даны ниже в относительных еди-

1)e-mail: sikudryashov@corp.ifmo.ru; kudryashovsi@lebedev.ru

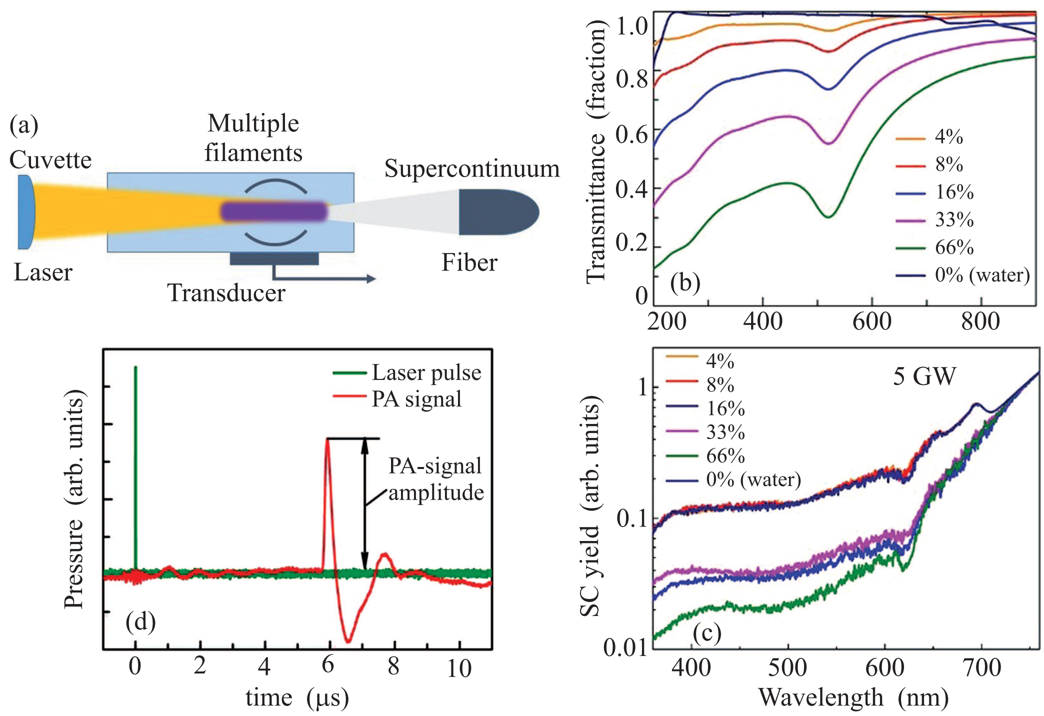

Рис. 1. (Цветной онлайн) (a) – Схема филаментационной генерации СК и ФА сигнала в коллоидных растворах золотых наночастиц. (b) – Коэффициент пропускания коллоидных растворов разной концентрации (отн. ед.). (c) – Выход излучения СК в коллоидных растворах разной концентрации (отн. ед.). (d) – Вид ФА сигнала с измеряемой амплитудой фазы сжатия

ницах (%). Спектры СК собирались за 100 импульсов в центральной части эмиссионного пятна на выходе кюветы с помощью оптического волокна из плавленого кварца (рис. 1c), соединенного с входом спектрометра AvaSpec-ULS3648-USB2 (диапазон – 200–760 нм, разрешение ~ 0.3 нм). Дно кюветы представляло собой входное окно ультразвукового датчика ШАРП-05 (полоса детектирования с предусилителем – 5 МГц, чувствительность – 100 В/атм), сигнал с которого (рис. 1d) подавался на 50-омный вход цифрового осциллографа TDS3052C (полоса регистрации – 500 МГц). Фаза сжатия отвечала объемной генерации фотоакустического (ФА) сигнала по термоакустическому механизму в цилиндрической геометрии филаментов, тогда как фаза разрежения возникала в результате дифракции расходящейся цилиндрической волны сжатия [10].

3. Спектры СК для чистой воды и коллоидных растворов золотых наночастиц для различных мощностей УКИ P в диапазоне 0.46–10 ГВт показывают пороговую эмиссию вторичного излучения при превышении величины 0.5 ГВт, но вместе с тем, для каждого значения P сильное подавление в случае диссипативных коллоидных сред по мере роста их коэффициента экстинкции μ (рис. 2). Сильный разрыв по интенсивности эмиссии отмечается при переходе от группы концентраций 0–8 % к группе 16–66 % при соответствующем линейном росте коэффициента экстинкции, что, возможно, отражает переход от собственного поглощения воды в филаментах к более сильному примесному поглощению коллоидов. Одновременно с ростом величины P эмиссия частично восстанавливается на уровне эмиссии СК в чистой воде, начиная от полосы лазерной генерации (рис. 2d). С ростом пиковой мощности "синий" край СК монотонно сдвигается от 700 нм ($P = 0.75$ ГВт) к 500 нм ($P = 10$ ГВт).

Количественный анализ спектров СК на рис. 2 в спектральных областях 450, 600 и 750 нм с учетом дополнительного поглощения эмиссии СК в области между филаментом и выходным окном ячейки был выполнен с целью влияния диссипативных потерь в коллоидных растворах на первичное излучение УКИ (≥ 750 нм), а также вторичное излучение СК с разной степенью конверсии – вблизи 450 и 600 нм (рис. 3a–c). Зависимости выхода СК в данных спектральных интервалах от P для разных концентраций коллоидных растворов и соответствующих коэффициентов экстинкции показывают сдвиг вверх порога выхода. Вместе с тем, в длинноволновом диапазоне с ростом

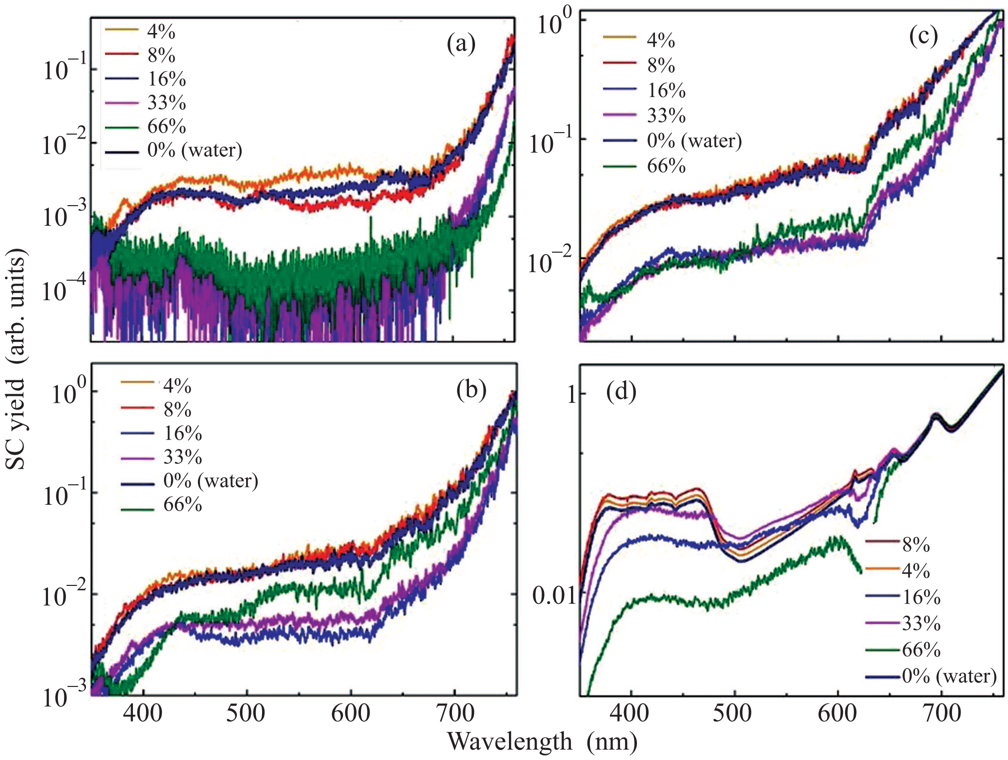

Рис. 2. (Цветной онлайн) Выход СК-излучения при филаментации УКИ в коллоидных растворах золотых наночастиц разной концентрации (отн. ед.) для пиковых мощностей $P = 0.75$ (a), 1.6 (b), 2.9 (c) и 10 (d) ГВт

P наклоны выхода СК уменьшаются от шестой до второй степени, возможно, отражая разные режимы генерации СК: 1) высокая нелинейность – появление и рост филаментов с нелинейной генерацией излучения СК в результате нелинейных четырехволновых взаимодействий и фазовой самомодуляции [2, 11] при низких сверхкритических значениях P (чуть выше порога генерации СК ≈ 0.5 ГВт), 2) слабая нелинейность – умножение числа самоподобных филаментов при средних сверхкритических значениях P с одновременным ростом диаметра и длины области множественной области (см., например, [12, 13]). Также, если при этом фазовая самомодуляция жестко конкурирует с отрицательным вкладом плазмы, высокая нелинейность при низких мощностях может отражать многофотонное формирование плазмы (P^6), а низкая нелинейность при высоких мощностях – ограничение генерации носителей в плотной плазме вследствие трехчастичной оже-рекомбинации (P^2). Спектральные диапазоны выхода СК вблизи 600 и 450 нм с более высокой степенью конверсии при более высоких значениях P (также интенсивности УКИ) соответствуют преимущественно второму режиму.

Прямо противоположная, но вполне ожидаемая тенденция наблюдается для зависимостей амплитуды акустического сигнала в зависимости от P (рис. 3d): с ростом концентрации коллоидных растворов наблюдается понижение порога акустической генерации и уменьшение степени нелинейности зависимостей от кубической до квадратичной, что отражает механизмы вложения и термализации энергии лазерного излучения. Поскольку для акустических источников аналогичной формы амплитуда сигнала отражает объемную плотность вложенной энергии, изменение нелинейности кривых на рис. 3d отражает, как уже предполагалось выше, переход от собственного поглощения воды в области множественной филаментации (не нелинейного поглощения воды внутри каждого из филаментов) к более высокому примесному поглощению в коллоидных растворах. Данный переход как для СК, так и для акустического сигнала имеет место в диапазоне концентраций коллоида 8–16 %, что отвечает собственному поглощению воды в филаментах 0.02–0.04 см$^{-1}$ (рис. 4).

Сопоставление значений пиковых мощностей P^* для выхода СК определенной интенсивности для разных спектральных интервалов (рис. 3a–c) в зависимости от концентрации коллоидных растворов (%) и соответствующих коэффициентов экстинкции последних приведено в двойных логарифмических координатах на рис. 4. Данные зависимости показывают ожидаемый линейный характер для коэффи-

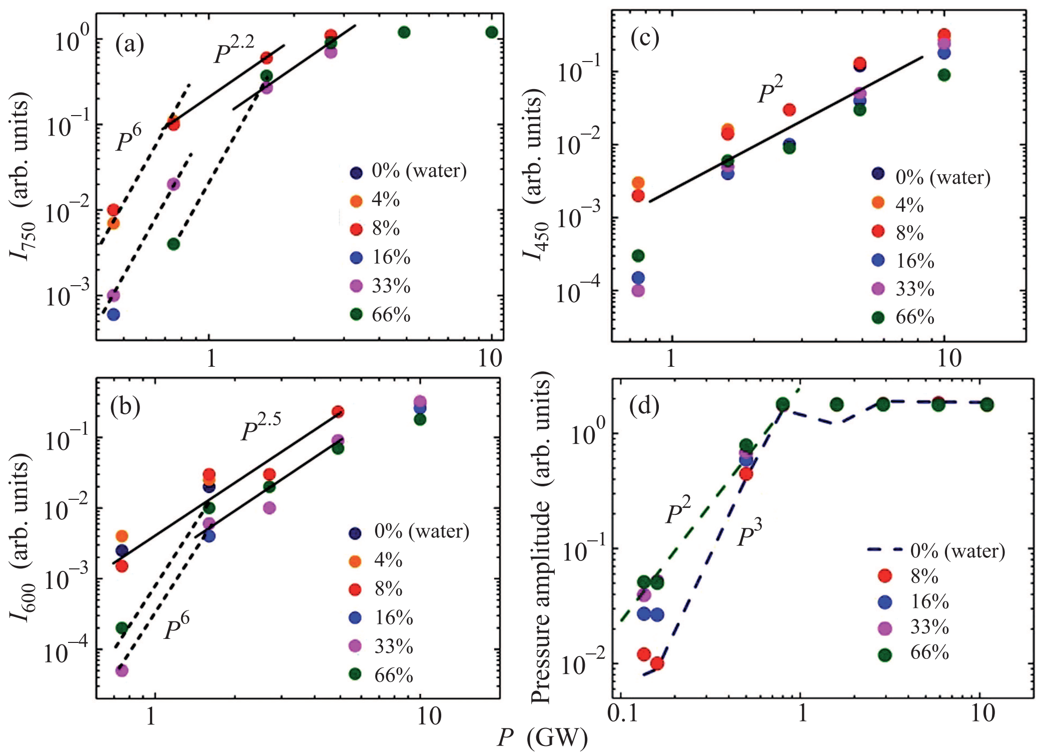

Рис. 3. (Цветной онлайн) Выход излучения СК при филаментации генерации УКИ в коллоидных растворах золотых наночастиц разной концентрации для спектральных интервалов 750, 600 и 450 нм (a)–(c) и амплитуда акустического давления (d) в зависимости от пиковой мощности УКИ

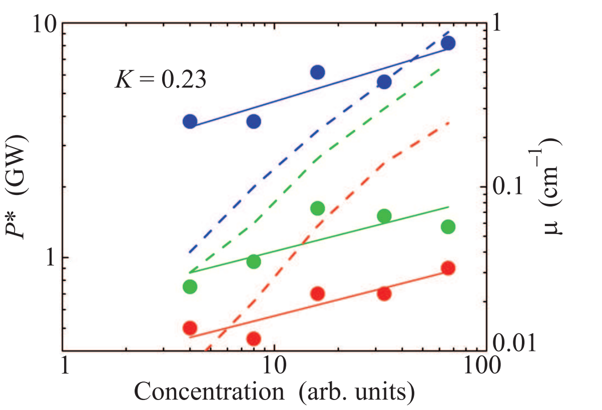

Рис. 4. (Цветной онлайн) Сопоставление значений P^* для выхода СК на определенном уровне для спектральных интервалов 750, 600 и 450 нм (круги красного, зеленого и синего цветов соответственно) в зависимости от концентрации коллоидных растворов (%) и соответствующих коэффициентов экстинкции растворов в данных интервалах (в двойных логарифмических координатах). Прямые линии представляют линейную аппроксимацию значений P^* с близкими угловыми наклонами 0.23 ± 0.06 (750 нм, красный цвет), 0.23 ± 0.10 (600 нм, зеленый цвет) и 0.23 ± 0.07 (450 нм, синий цвет). Оценка собственного поглощения воды в филаментах – 0.02–0.04 см$^{-1}$ (согласно данным рис. 2, 3)

циента экстинкции в соответствующих спектральных диапазонах и универсальный сублинейный характер (угловой наклон $K \approx 0.23$) в случае порогов P^*, что, напротив, в действительности для коллоидных растворов отражает высоко нелинейный характер генерации СК. Существенно, что с учетом филаментационного режима генерации СК, увеличение значения P^* для выхода излучения СК определенной интенсивности с ростом концентрации коллоидных растворов можно рассматривать также как индикатор влияния данного диссипативного фактора на параметры самофокусировки (длина самофокусировки, критическая мощность) и филаментации. Вполне возможно, что фактор диссипативной среды можно учесть в аналогичном параметрическом виде при описании других филаментационных явлений.

Наконец, в плане возможных нелинейных эффектов, связанных с золотыми плазмонными наночастицами в коллоидных растворах, можно отметить усиление эмиссии СК в области их плазмонного резонанса ($\approx$ 520 нм, рис. 1) для спектров СК для коллоидных растворов, нормированных на спектр СК в воде при той же величине P (рис. 5). При умеренных мощностях УКИ эффект проявляется очень слабо и становится заметным (30–70 % от уровня СК) для высоких концентраций коллоида только при максималь-

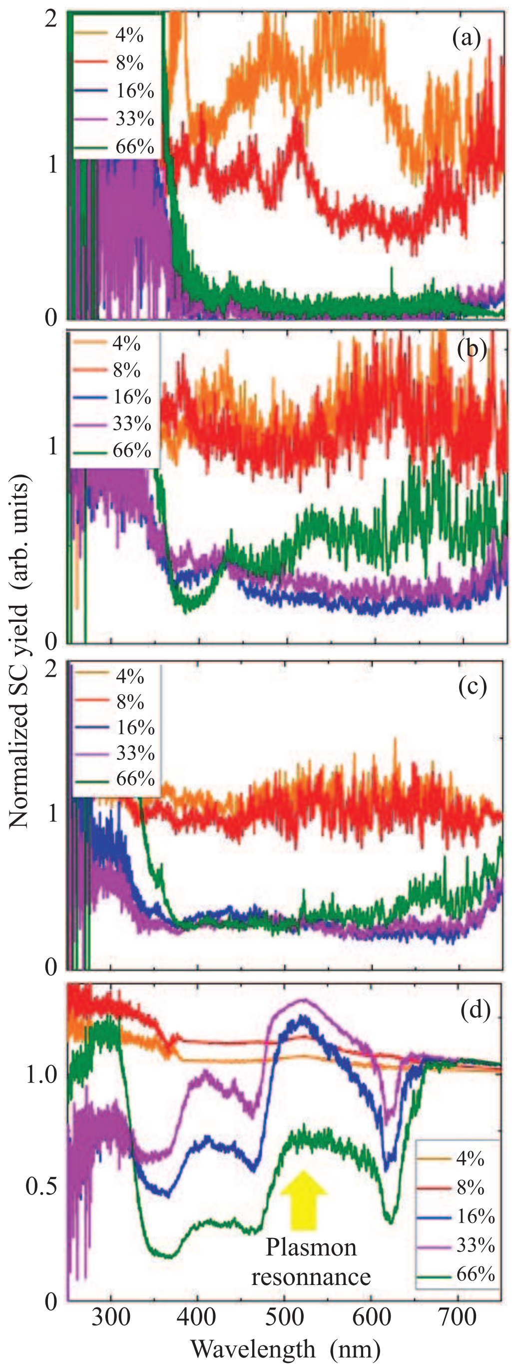

Рис. 5. (Цветной онлайн) Нормированные спектры эмиссии СК в коллоидных растворах золотых наночастиц различной концентрации для значений $P = 0.75$ (a), 1.6 (b), 2.9 (c) и 10 (d) ГВт. Уровень “1” соответствует выходу СК при генерации в чистой воде

ной $P = 10$ ГВт на фоне общего широкополосного роста относительного выхода СК (рис. 5), что можно скорее объяснить насыщением сильного межзонного поглощения золотых наночастиц (по аналогии, например, с титаном [14]) и усиления их плазмонного отклика.

4. Таким образом, в настоящей работе показан нелинейный от мощности лазерных импульсов выход излучения СК при множественной филаментации фемтосекундных лазерных импульсов с сверхкритической мощностью в поглощающих коллоидных растворах золотых наночастиц различной концентрации, а также увеличение пороговой мощности лазерных импульсов для генерации излучения СК с ростом концентрации коллоидных наночастиц. Наблюдаемые явления предполагают эффективное повышение пороговой мощности самофокусировки в диссипативных средах и возможности управления параметрами филаментации путем изменения концентрации поглощающей примеси.

Работа поддержана грантом Министерства высшего образования для Университета информационных технологий, механики и оптики (074-U01).

1. J. H. Marburger, Progress in quantum electronics **4**, 35 (1975).
2. В. П. Кандидов, С. А. Шленов, О. Г. Косарева, Квант. Электрон. **39**(3), 205 (2009).
3. D. E. Shipilo, D. V. Mokrousova, N. A. Panov, G. E. Rizaev, A. V. Shalova, E. S. Sunchugasheva, A. A. Ionin, A. Couairon, L. V. Seleznev, and O. G. Kosareva, JOSA B **36**(2), A66 (2019).
4. M. Manousidaki, V. Y. Fedorov, D. G. Papazoglou, M. Farsari, and S. Tzortzakis, Opt. Lett. **43**(5), 1063 (2018).
5. J. A. Dharmadhikari, G. Steinmeyer, G. Gopakumar, D. Mathur, and A. K. Dharmadhikari, Opt. Lett. **41**, 3475 (2016).
6. C. Wang, Y. Fu, Z. Zhou, Y. Cheng, and Z. Xu, Appl. Phys. Lett. **90**, 181119 (2007).
7. R. Driben, A. Husakou, and J. Herrmann, Opt. Lett. **34**(14), 2132 (2009).
8. P. Vasa, M. Singh, R. Bernard, A. K. Dharmadhikari, J. A. Dharmadhikari, and D. Mathur, Appl. Phys. Lett. **103**(11), 111109 (2013).
9. J. Philip, C. D’Amico, G. Cheriaux, A. Couairon, B. Prade, and A. Mysyrowicz, Phys. Rev. Lett. **95**, 163901 (2005).
10. В. Е. Гусев, А. А. Карабутов, *Лазерная оптоакустика*, Наука, М. (1991).
11. A. Couairon and A. Myzyrowicz, Phys. Rep. **441**, 47 (2007).
12. А. А. Ионин, С. И. Кудряшов, С. В. Макаров, Л. В. Селезнев, Д. В. Синицын, Письма в ЖЭТФ **90**, 471 (2009).
13. V. Mizeikis, S. Juodkazis, T. Balciunas, H. Misawa, S. I. Kudryashov, A. A. Ionin, and V. D. Zvorykin, J. Appl. Phys. **105**, 123106 (2009).
14. Е. В. Голосов, А. А. Ионин, Ю. Р. Колобов, С. И. Кудряшов, А. Е. Лигачев, Ю. Н. Новоселов, Л. В. Селезнев, Д. В. Синицын, ЖЭТФ **140**, 21 (2011).