Письма в ЖЭТФ, том 111, вып. 1, с. 27 – 31

Нелинейное усиление резонансного поглощения при филаментации импульса среднего инфракрасного диапазона в газах высокого давления

В. О. Компанец[+], *Д. Е. Шипило*[+*×], *И. А. Николаева*[*], *Н. А. Панов*[+*×], *О. Г. Косарева*[+*×1)], *С. В. Чекалин*[+]

[+] *Институт спектроскопии РАН, 108840 Троицк, Москва, Россия*

[*] *Физический факультет и Международный учебно-научный лазерный центр МГУ им. М. В. Ломоносова, 119991 Москва, Россия*

[×] *Физический институт им. П. Н. Лебедева РАН, 119333 Москва, Россия*

Поступила в редакцию 18 ноября 2019 г.
После переработки 22 ноября 2019 г.
Принята к публикации 23 ноября 2019 г.

В настоящей работе экспериментально обнаружено, что филаментация фемтосекундного импульса с центральной длиной волны 1.3 мкм в смеси азота при давлении 30 бар и паров воды при давлении 2 мбар приводит к длинноволновому сдвигу спектра импульса и обусловленному им усилению резонансного поглощения на линиях воды в окрестности 1.35 мкм. Реплика полосы резонансного поглощения зарегистрирована в спектральном континууме прошедшего через кювету импульса. Характерные линии поглощения воды, обнаруженные экспериментально, соответствуют результатам численного моделирования трехмерной нестационарной задачи с учетом резонансного и нерезонансного поглощения в молекулярных газах.

DOI: 10.31857/S0370274X20010051

1. Введение. Филаментация фемтосекундного лазерного излучения в атмосфере является сложной проблемой экспериментальной физики в связи с вероятностью пробоя оптики высокоинтенсивным излучением при выводе его на протяженную воздушную трассу, блуждания пучка вследствие неоднородностей фазы в турбулентной атмосфере и интенсивности пучка на выходе из решеточного компрессора [1–8]. Особый интерес представляет филаментация ультракоротких импульсов с центральной длиной волны в среднем и дальнем инфракрасном диапазоне [9–14]. В высокоинтенсивном канале такого излучения развивается эффективная генерация нечетных гармоник, переходящих с распространением в широкополосный суперконтинуум, простирающийся от ультрафиолетового до терагерцового диапазона.

Особенностью филаментации импульсов с центральной длиной волны в среднем инфракрасном диапазоне является высокая критическая мощность самофокусировки, растущая в атмосферном воздухе как квадрат длины волны. Для импульса с центральной длиной волны 3.9 мкм и длительностью около 100 фс энергия, необходимая для создания филамента на лабораторной трассе в воздухе, составляет порядка 30 мДж [15], т.е. критическая мощность самофокусировки составляет величину ~ 300 ГВт. С ростом давления критическая мощность уменьшается. Поэтому, если энергия входного импульса мала для формирования филамента на лабораторной трассе, превышение пиковой мощности импульса над критической и наблюдение филаментации может быть реализовано в кювете с газом повышенного давления. Так, авторы [16] получили формирование максимума в стоксовой области спектра импульса с центральной длиной волны 3.9 мкм в азоте и кислороде при давлении $\sim$4 бар. При атмосферном давлении такой стоксов сдвиг спектра наблюдался на воздушных трассах и в азоте атмосферного давления при филаментации импульса на длине волны 800 нм в коллимированном или слабо сфокусированном пучке [17, 18].

Основная причина стоксова сдвига в филаменте состоит в зависимости фазы импульса от интенсивности в керровской среде – атмосферных газах. Фазовый набег, пропорциональный интенсивности, обеспечивает изменение мгновенной частоты в импульсе, пропорциональное скорости роста интенсивности во времени. Таким образом, на переднем фронте импульса частота уменьшается, а на заднем – увеличивается, и спектр импульса оказывается разде-

1) e-mail: kosareva@physics.msu.ru

лен на две примерно равные по энергии стоксову и антистоксову части [19]. В условиях самофокусировки компоненты входного импульса, испытывающие максимальный стоксов сдвиг, оказываются максимально сжатыми и распространяются вдоль оси пучка. На каждом новом расстоянии вдоль филамента происходит обогащение приосевой части пучка на фронте импульса из энергии, запасенной на периферии пучка [20], которую также называют резервуаром филамента [21]. Соответственно, стоксов сдвиг накапливается с расстоянием, пока поддерживается высокая интенсивность в филаменте. Уширение спектра в высокочастотную область при этом сохраняется, однако задний фронт импульса дефокусируется в самонаведенной лазерной плазме [22]. Таким образом, локализованной и в пространстве, и в спектральной области остается лишь стоксова компонента.

Именно стоксов сдвиг спектра филаментирующего излучения является причиной усиления резонансного поглощения на молекулярных линиях воды и углекислого газа [13, 15, 23, 24]. Если стоксова часть спектра попадает в линию поглощения, теряется существенная доля энергии лазерного импульса. Это ведет к сокращению длины филамента и плазменного канала [24]. Зондирование атмосферы фемтосекундными импульсами среднего инфракрасного диапазона возможно, если центральная длина волны излучения находится в центре нелинейного окна прозрачности [24]. В лабораторных условиях определить нелинейное окно прозрачности можно при помощи широко перестраиваемых параметрических усилителей, накачиваемых лазерными системами на титан-сапфире. Энергия инфракрасного импульса в несколько сотен микроджоулей позволяет наблюдать филаментацию в газе при давлениях ниже 100 бар.

Наблюдение сверхуширения спектра фемтосекундных импульсов видимого диапазона в кюветах высокого давления [25] до 40 бар позволило установить, что критическая мощность самофокусировки газа обратно пропорциональна давлению газа в кювете. В последнее время были измерены зависимости коэффициента керровской нелинейности n_2 в ксеноне и углекислом газе от давления p до 100 бар [26] по уширению спектра основной гармоники хром-форстеритового лазера (центральная длина волны 1.24 мкм). Немонотонный характер зависимости $n_2(p)$ наиболее ярко проявлялся для CO_2 в сверхкритическом состоянии при небольшом (до 20 K или в относительных единицах до 6 %) превышении температуры над критической в короткой кювете длиной 11.6 см.

В настоящей работе экспериментально обнаружено явление усиления резонансного поглощения на молекулярных линиях воды импульса с центральной длиной волны 1.3 мкм, длительностью 100 фс и энергией от 10 до 200 мкДж. Газовая смесь состояла из водяного пара и молекулярного азота при давлении 30 бар. Парциальное давление водяного пара составляло 100–200 Па, температура кюветы 50–70 °C. В таких условиях на длине волны 1.3 мкм филаментация начинается уже при энергии 30 мкДж при давлении азота 100 бар, а при давлении 15 бар для филаментации и генерации суперконтинуума достаточно энергии 160 мкДж. Смещенный в длинноволновую часть спектр входного импульса испытывал поглощение на линии воды 1.35 мкм. Характерные линии поглощения воды явно проявились в длинноволновой части суперконтинуума, прошедшего через кювету импульса. Результаты численного моделирования филаментации в азоте с примесью водяного пара соответствуют экспериментальным данным. Получена зависимость от давления газа пороговой энергии генерации суперконтинуума и на ее основе – критической мощности самофокусировки и коэффициента керровской нелинейности n_2.

2. Эксперимент. Основой нашего экспериментального стенда является протяженная кювета высокого давления (см. рис. 1), специально сконструированная для исследования нелинейного распространения и филаментации лазерных импульсов в атомарных и молекулярных газах при давлениях от 10^{-3} до 120 бар и температурах до 150 °C. Длина кюветы составляет 75 см, перед входным окошком установлена линза с фокусным расстоянием 30 см.

Окна кюветы изготовлены из синтетического корунда, вырезанного перпендикулярно оптической оси кристалла для исключения эффекта двулучепреломления. Входное окно диаметром 13 мм, толщиной 3 мм и выходное окно диаметром 39 мм, толщиной 6.5 мм обеспечивают четырехкратный запас прочности для максимально возможного рабочего давления в кювете. Прочность и низкое температурное расширение лейкосапфира позволяют осуществлять измерения в широком диапазоне давлений и температур. Для регулировки температуры и защиты персонала от разрушения оптических окон кювета помещена в термостатированный бронешкаф.

Для управления дисперсией газов в кювете использовался резервуар для воды объемом 17 мл. Резервуар оборудован отдельной системой подогрева, его температура может на несколько десятков градусов превышать среднюю температуру кюветы. Высокая температура воды в резервуаре обеспечива-

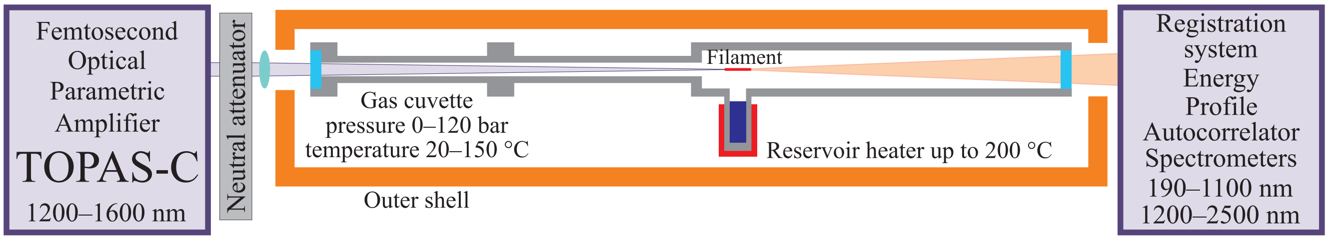

Рис. 1. (Цветной онлайн) Экспериментальная установка. Фемтосекундное излучение параметрического генератора Topas C фокусируется в кювету, заполненную газом под давлением до 120 бар. Длина кюветы 75 см. На выходе из кюветы располагается система диагностики энергии, поперечного профиля, спектра и длительности импульса

ет эффективное испарение/кипение жидкости в кювету высокого давления. Молекулы воды обладают колебательной полосой поглощения в окрестности 1.35 мкм, вследствие чего даже относительно небольшая концентрация водяного пара в воздухе существенно, вплоть до перехода в аномальный режим, меняет дисперсию газовой смеси в диапазоне 1.25–1.45 мкм. В наших экспериментах парциальное давление паров воды составляло 100–200 Па при температуре в резервуаре 50–70 °C. Давление азота в экспериментах с водяным паром устанавливалось равным 30 бар.

Для генерации фемтосекундного излучения в диапазоне 1.2–1.6 мкм использована сигнальная волна параметрического усилителя Topas-C (Light Conversion), накачиваемого титан-сапфировым лазером на базе усилителя Spitfire HP (Spectra Physics). Для измерений коэффициента керровской нелинейности выбраны длины волн 1.3–1.35 мкм, поскольку соответствующая им энергия импульса после параметрического усилителя близка к максимальной и составляет около 300 мкДж. Длительность (по половине высоты) импульса на длине волны 1.3 мкм на входе в кювету, измеренная с помощью одноимпульсного автокоррелятора ASF-20 (Авеста), составляла (105 ± 15) фс. Энергия импульса регулировалась нейтральным фильтром переменной оптической плотности и контролировалась детектором Fieldmax T0 с детектором PS10 (Coherent). Спектры на выходе из кюветы записаны с помощью волоконного спектрометра ASP-100MF (Авеста).

В целях исследования газа высокого давления как модельной среды для изучения филаментации в реальной атмосфере нами рассмотрены компрессия импульсов в филаменте [27, 28], генерация высокоэнергетичной стоксовой компоненты суперконтинуума [15, 17, 18, 24, 29] и поглощение этой компоненты на атмосферных линиях [13, 15, 23, 24] (конкретно изучена полоса воды в окрестности 1.35 мкм). Так, после распространения в кювете умеренного давления 13 бар импульс на длине волны 1.35 мкм вследствие нелинейного взаимодействия с газовой средой сжался с (90 ± 15) до (40 ± 15) фс в соответствии с исследованиями самосжатия в филаменте [28, 30].

Низкочастотная компонента суперконтинуума при филаментации в атмосфере смещается с расстоянием в длинноволновую область [17, 18] на десятки нанометров. Аналогичное смещение наблюдалось экспериментально и с ростом энергии [31]. В наших экспериментах изменение расстояния невозможно, однако при возрастании энергии фемтосекундного излучения, фокусируемого в кювету, с 10 до 190 мкДж зарегистрировано смещение низкочастотной компоненты континуума вплоть до (1.46 ± 0.05) мкм при накачке на (1.34 ± 0.02) мкм, см. рис. 2.

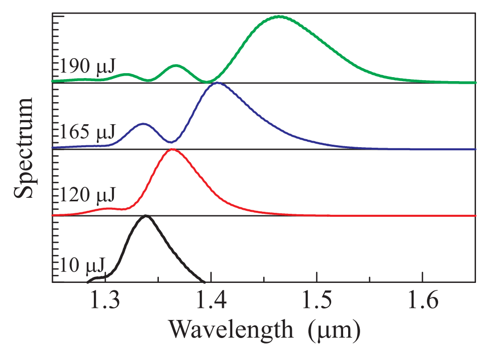

Рис. 2. (Цветной онлайн) Спектр импульса с центральной длиной волны 1.35 мкм после филаментации в кювете, наполненной азотом под давлением 15 бар. При наименьшей энергии 10 мкДж филаментация не развивается

Низкочастотная компонента суперконтинуума хорошо локализована в спектре по сравнению с широкополосным высокочастотным континуумом [23] и несет десятки процентов энергии [18]. Поэтому, когда центральная длина волны импульса на входе в нелинейную среду оказывается несколько короче, но близко к линии поглощения газовой среды (паров воды), уширение спектра в низкочастотную область неизбежно связано с увеличением поглощения.

В эксперименте зарегистрировано резонансное поглощение излучения парами воды (полоса около 1.35 мкм) в низкочастотной области спектра (рис. 3, левая колонка) при филаментации импульса с цен-

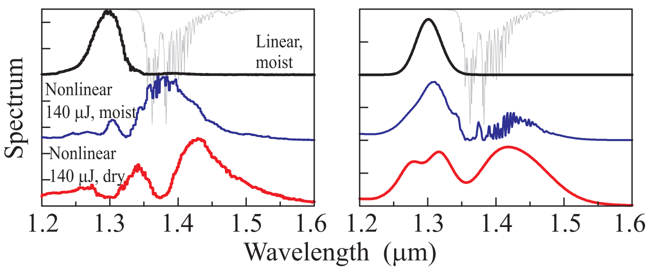

Рис. 3. (Цветной онлайн) Спектры импульса с центральной длиной волны 1.3 мкм на выходе из кюветы с азотом при давлении 30 бар в эксперименте (слева) и численном моделировании в условиях эксперимента (справа). Черные кривые – спектры при энергии импульса, недостаточной для развития нелинейных эффектов (менее 10 мкДж). Синие кривые – спектры импульса после филаментации в кювете с парами воды. Красные кривые – спектры импульса после филаментации в сухой кювете. Серая кривая сверху графиков — спектр поглощения водяного пара

тральной длиной волны 1.3 мкм в кювете с азотом при давлении 30 бар и температуре 70 °C. Численное моделирование, выполненное на основе модели [24], качественно воспроизводит результаты эксперимента (рис. 3, правая колонка).

Для определения зависимости коэффициента керровской нелинейности от давления газа в кювете эксперименты по филаментации проводились в аргоне и азоте. При фиксированном давлении газа и постепенном увеличении энергии импульса выше некоторого значения $W_{\text{blue}}(p)$, измеренного до входного окошка кюветы, наблюдалось пороговое возникновение протяженного высокочастотного крыла на выходе из кюветы. Энергия W_{blue} (рис. 4a, левая ось) с учетом потерь на оптических элементах между измерителем средней мощности и средой высокого давления в кювете позволяет получить оценку критической мощности самофокусировки P_{cr}, показанную на правой оси рис. 4a.

Зависимость коэффициента керровской нелинейности $n_2 = 3.77\lambda^2/8\pi P_{cr}$ от давления (рис. 4b), где $\lambda = 1.35$ мкм – длина волны излучения, в области малых давлений прямо пропорциональна давлению $n_2(p) = n_2(p = 1\,\text{bar}) \times p$, однако насыщается с приближением давления к величине, соот-

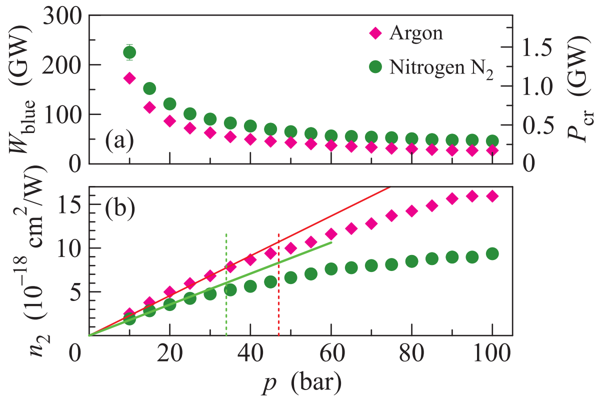

Рис. 4. (Цветной онлайн) (a) – Зависимость от давления p пороговой энергии наблюдения высокочастотного крыла суперконтинуума W_{blue} (левая вертикальная ось) и соответствующей ей критической мощности самофокусировки P_{cr} (правая вертикальная ось) в азоте (зеленые точки) и аргоне (сиреневые точки). (b) – Коэффициенты керровской нелинейности азота и аргона n_2 в зависимости от давления (точки) и аппроксимации прямо пропорциональной зависимостью от давления (см. текст, сплошная линия). Вертикальные штриховые линии показывают критическое давление газов

ветствующей переходу в сверхкритическое состояние (47 бар для аргона и 34 бар для азота), что можно связать с усилением межмолекулярных взаимодействий в веществе. Полученная из экспериментальных данных оценка коэффициента керровской нелинейности при атмосферном давлении $n_2(p = 1\,\text{bar})$ составляет для аргона $(2.3 \pm 0.5) \times 10^{-19}$ см^2/Вт, для азота – $(1.8\pm0.3)\times10^{-19}$ см^2/Вт. Полученные величины $n_2(p = 1\,\text{bar})$ примерно вдвое ниже оценок [32] и вдвое выше недавних экспериментальных [33] и численных [34] результатов.

3. Заключение. При филаментации фемтосекундного импульса с длиной волны 1.3 мкм в газе высокого давления с полосой поглощения на 1.35 мкм, обусловленной примесью паров воды, получено нелинейное усиление резонансного поглощения вследствие формирования стоксова крыла спектра входного импульса. Появление эффективно поглощаемой средой стоксовой компоненты суперконтинуума при филаментации, зарегистрированное в эксперименте и подтвержденное численным расчетом, важно для определения окна прозрачности в задачах зондирования атмосферы.

В рамках апробации экспериментального стенда получены результаты по компрессии импульса в филаменте и спектральному сдвигу низкочастотного крыла континуума в соответствии с данными экспериментов на протяженных трассах в воздухе [16–18].

Измеренные коэффициенты керровской нелинейности азота и аргона при давлении 1 бар, $(1.8 \pm 0.3) \times$ $\times 10^{-19}$ см^2/Вт и $(2.3 \pm 0.5) \times 10^{-19}$ см^2/Вт, соответствуют интерферометрическим измерениям [33].

Исследование выполнено на уникальной научной установке "Многоцелевой фемтосекундный лазерно-диагностический спектрометрический комплекс" за счет гранта Российского научного фонда (проект # 18-12-00422).

1. S. L. Chin, S. A. Hosseini, W. Liu, Q. Luo, F. Théberge, N. Aközbek, A. Becker, V. P. Kandidov, O. G. Kosareva, and H. Schroeder, Can. J. Phys. **83**, 863 (2005).
2. A. Couairon and A. Mysyrowicz, Phys. Rep. **441**, 47 (2007).
3. V. P. Kandidov, S. A. Shlenov, and O. G. Kosareva, Quantum Electron. **39**(3), 205 (2009).
4. S. L. Chin, T. Wang, C. Marceau, J. Wu, J. Liu, O. Kosareva, N. Panov, Y. Chen, J. Daigle, S. Yuan, A. Azarm, W. Liu, T. Seideman, H. Zeng, M. Richardson, R. Li, and Z. Xu, Laser Phys. **22**(1), 1 (2012).
5. V. P. Kandidov, O. G. Kosareva, M. P. Tamarov, A. Brodeur, and S. L. Chin, Quant. Electron. **29**(10), 911 (1999).
6. J. Kasparian, R. Sauerbrey, and S. L. Chin, Appl. Phys. B **71**, 877 (2000).
7. D. Pushkarev, E. Mitina, D. Uryupina, R. Volkov, A. Karabytov, and A. Savel'ev, Laser Phys. Lett. **15**(2), 025401 (2018).
8. S. V. Chekalin and V. P. Kandidov, Physics-Uspekhi **56**(2), 123 (2013).
9. B. Shim, S. E. Schrauth, and A. L. Gaeta, Opt. Express **19**(10), 9118 (2011).
10. D. Kartashov, S. Ališauskas, A. Pugžlys, A. A. Voronin, A. M. Zheltikov, and A. Baltuška, Opt. Lett. **37**(12), 2268 (2012).
11. E. O. Smetanina, V. Y. Fedorov, A. E. Dormidonov, and V. P. Kandidov, J. Phys. Conf. Ser. **541**(1), 012071 (2014).
12. A. V. Mitrofanov, A. A. Voronin, D. A. Sidorov-Biryukov, A. Pugžlys, E. A. Stepanov, G. Andriukaitis, S. Ališauskas, T. Flöry, A. B. Fedotov, A. Baltuška, and A. M. Zheltikov, Sci. Rep. **5**, 8368 (2015).
13. H. Liang, D. L. Weerawarne, P. Krogen, R. I. Grynko, C.-J. Lai, B. Shim, F. X. Kärtner, and K.-H. Hong, Optica **3**(7), 678 (2016).
14. S. Tochitsky, E. Welch, M. Polyanskiy, I. Pogorelsky, P. Panagiotopoulos, M. Kolesik, E. M. Wright, S. W. Koch, J. V. Moloney, J. Pigeon, and C. Joshi, Nat. Photonics **13**(1), 41 (2019).
15. V. Shumakova, S. Ališauskas, and P. Malevich, C. Gollner, A. Baltuška, D. Kartashov, A. M. Zheltikov, A. V. Mitrofanov, A. A. Voronin, D. A. Sidorov-Biryukov, and A. Pugžlys, Opt. Lett. **43**(9), 2185 (2018).
16. D. Kartashov, S. Ališauskas, A. Pugžlys, A. Voronin, A. Zheltikov, M. Petrarca, P. Bejot, J. Kasparian, W. Jérôme, J.-P. Wolf, and A. Baltuška, Opt. Lett. **38**(16), 3194 (2013).
17. Y. Chen, F. Théberge, C. Marceau, H. Xu, N. Aközbek, O. Kosareva, and S. L. Chin, Appl. Phys. B **91**(2), 219 (2008).
18. D. Uryupina, N. Panov, M. Kurilova, and A. Mazhorova, R. Volkov, S. Gorgutsa, O. Kosareva, and A. Savel'ev, Appl. Phys. B **110**(1), 123 (2013).
19. S. A. Akhmanov, V. A. Vysloukh, and A. S. Chirkin, *Optics of femtosecond laser pulses*, American Institute of Physics, N.Y. (1992).
20. V. P. Kandidov, O. G. Kosareva, and A. A. Koltun, Quantum Electron. **33**(1), 69 (2003).
21. M. Mlejnek, M. Kolesik, J. V. Moloney, and E. M. Wright, Phys. Rev. Lett. **83**, 2938 (1999).
22. O. G. Kosareva, V. P. Kandidov, A. Brodeur, C. Y. Chien, and S. L. Chin, Opt. Lett. **22**(17), 1332 (1997).
23. N. A. Panov, D. E. Shipilo, V. A. Andreeva, O. G. Kosareva, A. M. Saletsky, H. Xu, and P. Polynkin, Phys. Rev. A **94**(4), 041801 (2016).
24. N. A. Panov, D. E. Shipilo, A. M. Saletsky, W. Liu, P. G. Polynkin, and O. G. Kosareva, Phys. Rev. A **100**(2), 023832 (2019).
25. P. B. Corkum, C. Rolland, and T. Srinivasan-Rao, Phys. Rev. Lett. **57**(18), 2268 (1986).
26. E. Mareev, V. Aleshkevich, F. Potemkin, V. Bagratashvili, N. Minaev, and V. Gordienko, Opt. Express **26**(10), 13229 (2018).
27. C. P. Hauri, W. Kornelis, F. W. Helbing, A. Heinrich, A. Couairon, A. Mysyrowicz, J. Biegert, and U. Keller, Appl. Phys. B **79**(6), 673 (2004).
28. D. Uryupina, M. Kurilova, A. Mazhorova, N. Panov, R. Volkov, S. Gorgutsa, O. Kosareva, A. Savel'ev, and S. L. Chin, J. Opt. Soc. Am. B **27**(4), 667 (2010).
29. N. A. Panov, D. E. Shipilo, V. A. Andreeva, D. S. Uryupina, A. B. Savel'ev, O. G. Kosareva, and S. L. Chin, Appl. Phys. B **120**, 383 (2015).
30. G. Stibenz, N. Zhavoronkov, and G. Steinmeyer, Opt. Lett. **31**(2), 274 (2006).
31. M. Volkov, D. Uryupina, N. Panov, O. Kosareva, M. Kurilova, R. Volkov, and A. Savel'ev, J. Phys. B **48**(9), 094017 (2015).
32. V. Y. Fedorov and V. P. Kandidov, Laser Phys. **18**(12), 1530 (2008).
33. S. Zahedpour, J. K. Wahlstrand, and H. M. Milchberg, Opt. Lett. **40**(24), 5794 (2015).
34. J. M. Brown, A. Couairon, and M. B. Gaarde, Phys. Rev. A **97**(6), 063421 (2018).