

# Фазовая самомодуляция в тонком кварце в сходящемся пучке отрицательно chirпированного фемтосекундного излучения

Я.В.Грудцын, И.Г.Зубарев, А.В.Корибут, И.Е.Кучик, С.Б.Мамаев, Л.Д.Михеев, С.Л.Семёнов, С.Г.Степанов, В.А.Трофимов, В.И.Яловой

*Экспериментально и теоретически изучен механизм уширения спектра и самокомпрессии отрицательно chirпированных фемтосекундных импульсов видимого диапазона (475 нм) при нелинейном взаимодействии сходящегося гауссова пучка с плавленым кварцем толщиной 1 мм. Экспериментально обнаружено, что при увеличении интенсивности и возникновении плазмы в образце режим расщепления фемтосекундных импульсов при нелинейном взаимодействии переходит в режим формирования одиночных импульсов. При этом в результате самокомпрессии длительность исходного спектрально ограниченного импульса уменьшилась в три раза. На основе численного решения обобщенного нелинейного уравнения Шредингера без учета плазмообразования показано, что импульс, спектр и временная фаза излучения, прошедшего через образец, приобретают стационарную форму за фокальной плоскостью фокусирующего зеркала. Получено хорошее согласие расчетов с экспериментальными данными. Обсуждается также возможность параметрического усиления спектральных компонент импульса в условиях проводимых экспериментов.*

**Ключевые слова:** отрицательно chirпированный фемтосекундный импульс, самокомпрессия, фазовая самомодуляция, четырехволновое смешение.

## 1. Введение

В настоящей работе исследуется механизм уширения спектра и самокомпрессии отрицательно chirпированных фемтосекундных импульсов видимого диапазона (473 нм) при нелинейном взаимодействии сходящихся пучков с плавленым кварцем. Впервые это явление наблюдалось в [1] с использованием расходящихся пучков фемтосекундного излучения. Данные исследования направлены на разработку новых сравнительно простых методов самокомпрессии фемтосекундных импульсов, расширяющих экспериментальные возможности сокращения их длительности и позволяющих сдвинуть границу применимости этих методов в область более высоких энергий импульса. Для уже известных наряду с исследуемым методов самокомпрессии на основе филаментации излучения в газах и твердых телах (см., напр., [2–5]) и ионизационной самокомпрессии в газонаполненных капиллярах (см., напр., [6, 7]) имеются ограничения по энергии импульса (несколько мДж и несколько десятков мДж соответственно).

**Я.В.Грудцын, С.Б.Мамаев, С.Г.Степанов, В.И.Яловой.** Физический институт им. П.Н.Лебедева РАН, Россия, 119991 Москва, Ленинский просп., 53

**И.Г.Зубарев, Л.Д.Михеев.** Физический институт им. П.Н.Лебедева РАН, Россия, 119991 Москва, Ленинский просп., 53, Национальный исследовательский ядерный университет «МИФИ», Россия, 115409 Москва, Каширское ш., 31;

e-mail: zubarev@sci.lebedev.ru, mikheev@sci.lebedev.ru

**А.В.Корибут.** Московский физико-технический институт (государственный университет), Россия, Московская обл., 141707 Долгопрудный, Институтский пер., 9

**И.Е.Кучик, В.А.Трофимов.** Московский государственный университет им. М.В.Ломоносова, Россия, 119991 Москва, Воробьевы горы  
**С.Л.Семёнов.** Научный центр волоконной оптики РАН, Россия, 119333 Москва, ул. Вавилова, 38; e-mail: sls@fo.gpi.ru

Поступила в редакцию 29 января 2015 г., после доработки – 12 февраля 2015 г.

## 2. Схема проведения экспериментов

На рис.1 приведена оптическая схема экспериментальных исследований. Исходные спектрально ограниченные импульсы излучения длительностью 70 фс на длине волны 473 нм генерировались с помощью удвоения частоты излучения титан-сапфирового лазерного комплекса (ООО «Авеста-Проект»). Затем, после внесения отрицательной квадратичной фазы с помощью призменной пары и пространственной фильтрации излучения, формировались отрицательно chirпированные импульсы длительностью ~130 фс с энергией до 0.6 мДж и шириной спектра ~3 нм, соответствующей спектрально ограни-

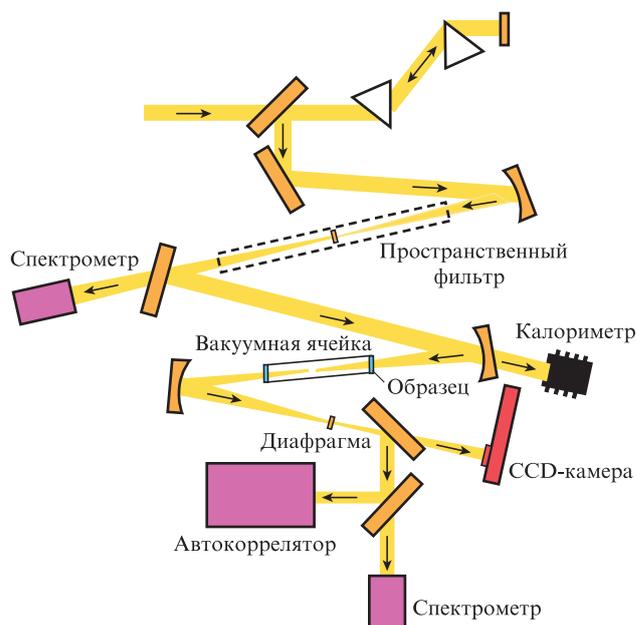


Рис.1. Оптическая схема проведения экспериментов.

ченным импульсам длительностью 80 фс (в приближении формы импульса, описываемой функцией  $\text{sech}^2$ ). Полученное излучение фокусировалось на образец из плавленного кварца марки КУ-1 толщиной 1 мм, который служил входным окном вакуумной ячейки длиной 45 см. При этом фокальная плоскость фокусирующего зеркала находилась за образцом, внутри вакуумной камеры. Интенсивность падающего излучения варьировалась путем перемещения образца вдоль лазерного пучка; диаметр пятна на образце (по уровню  $1/e^2$ ) изменялся от 0.15 до 0.27 мм, что позволяло получать интенсивности до  $20 \text{ ТВт/см}^2$ . С помощью другого сферического зеркала увеличенные изображения различных сечений пучка внутри вакуумной ячейки проецировались на диафрагму диаметром 1 мм. Измерялись спектр, профиль пучка и энергия излучения, падающего на образец, профиль пучка и спектр излучения на различных расстояниях от оси пучка на выходе из вакуумной камеры, а также пространственный профиль, спектр и автокорреляционная функция излучения, прошедшего через диафрагму, положение которой выбиралось таким образом, чтобы длительность импульса излучения была минимальной.

### 3. Результаты экспериментальных исследований

Благодаря пространственной фильтрации пучок излучения, падающего на образец, был близок к гауссову. Спектр излучения представлен на рис.2. На рис.3 приве-

ден профиль пучка в плоскости диафрагмы, представляющий собой сравнительно однородное ядро, окруженное дифракционными кольцами. Такая картина обусловлена добавлением зависящей от радиуса нелинейной фазы к исходной пространственной фазе сферически сходящейся волны [8, 9]. При этом уширение спектра и самокомпрессия импульса наблюдались только в ядре пучка. Спектр излучения в дифракционном кольце практически не отличался от спектра исходного излучения, падающего на образец. Диафрагма вырезала центральную часть пучка, заключенную внутри белого кольца на рис.3. Профиль пучка в ближней зоне после диафрагмы приведен на рис.4.

На рис.5 приведены спектры и автокорреляционные функции, измеренные за диафрагмой при различных интенсивностях. Существенное уширение спектра в образце наблюдалось при интенсивностях, превышающих  $3-4 \text{ ТВт/см}^2$ . При интенсивностях до  $5-6 \text{ ТВт/см}^2$  имело место почти симметричное уширение спектра относительно центральной длины волны излучения и расщепление фемтосекундного импульса (рис.5,а). С увеличением интенсивности спектр смещается в коротковолновую область, а расщепление импульса исчезает (рис.5,б,в), что является следствием образования плазмы в кварце при высоких интенсивностях. Минимальная длительность одиночного импульса, наблюдавшаяся при образовании плазмы, втрое меньше исходной длительности спектрально ограниченного импульса (рис.5,в).

Образование плазмы при высоких интенсивностях подтверждается заметным поглощением в образце (рис.6),

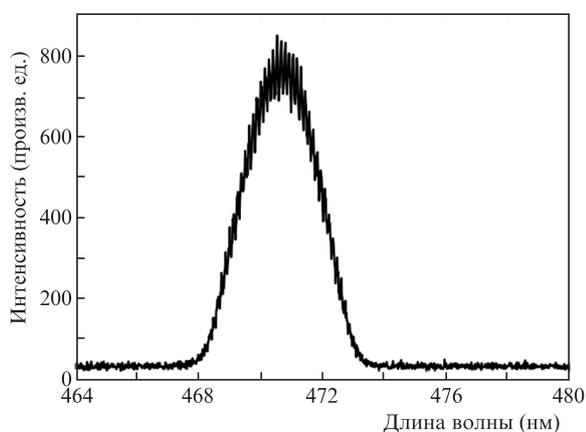


Рис.2. Спектр излучения, падающего на образец.

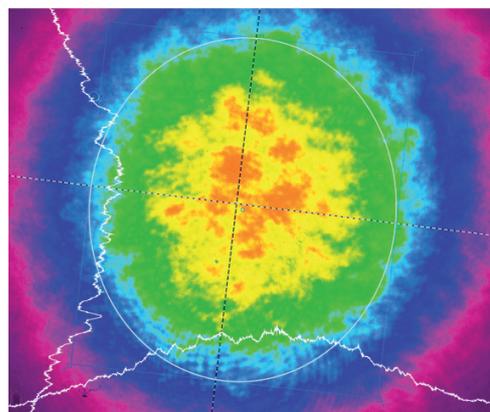


Рис.4. Профиль пучка, прошедшего через диафрагму, в ближней зоне.

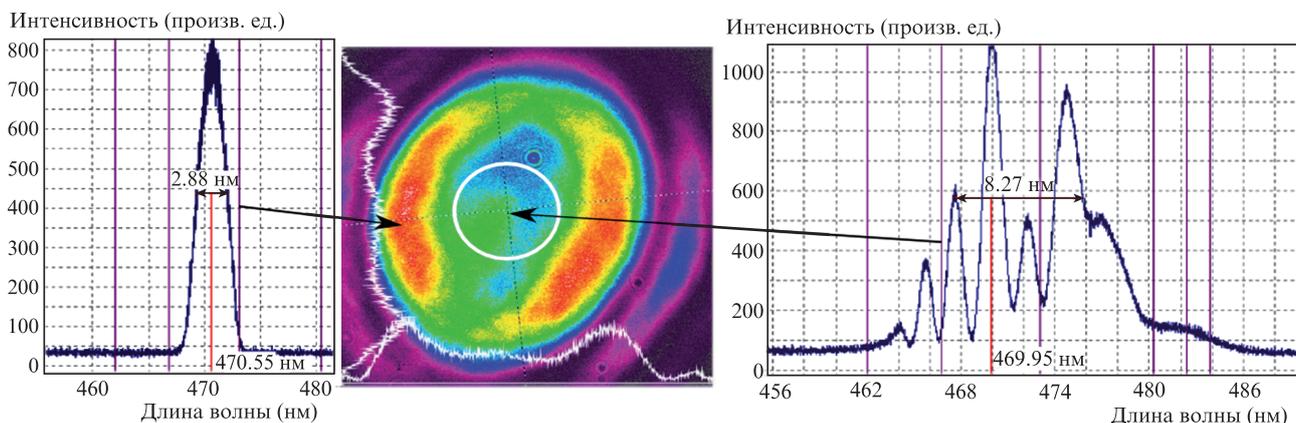


Рис.3. Профиль пучка в плоскости диафрагмы и спектры излучения в дифракционном кольце и центре пучка при интенсивности  $5 \text{ ТВт/см}^2$ .

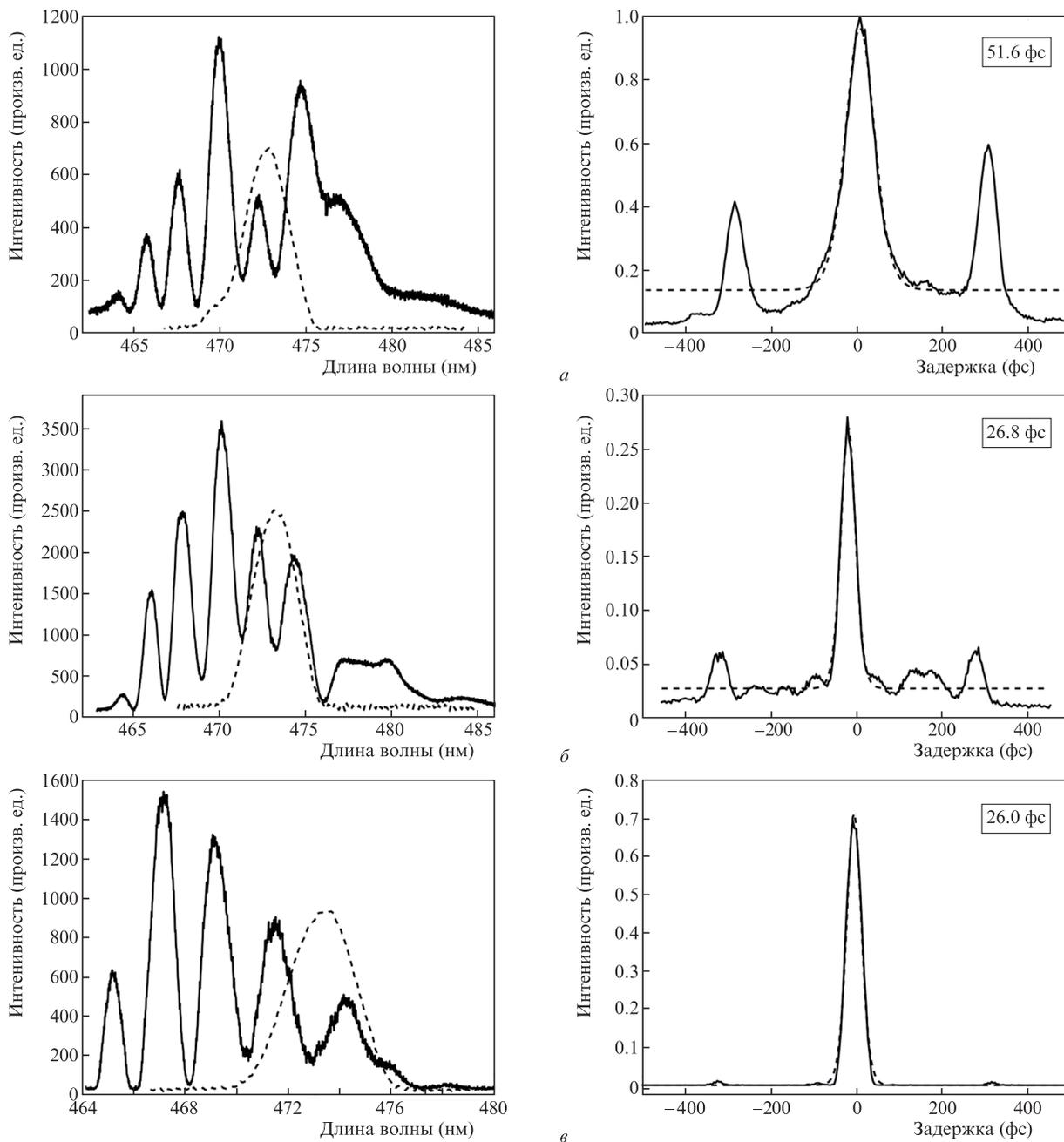


Рис.5. Уширенные (сплошные кривые) и исходные (штриховые кривые) спектры (слева), а также автокорреляционные функции (справа), полученные с помощью автокоррелятора, при интенсивностях 5 (а), 10 (б) и 15 ТВт/см<sup>2</sup> (в).

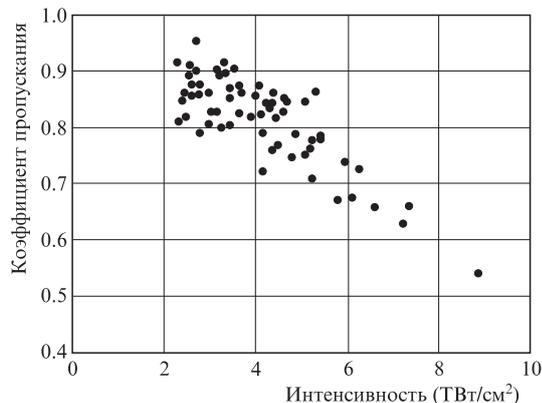


Рис.6. Зависимость поглощения в плавленом кварце толщиной 1 мм от интенсивности излучения.

которое при ширине запрещенной зоны 9 эВ и энергии кванта 2.6 эВ обусловлено четырехфотонными процессами [10, 11].

Эффективность самокомпрессии, определяемая как отношение энергии импульса за диафрагмой к энергии излучения, падающего на образец, составляет 10%–15%.

#### 4. Обсуждение полученных результатов

##### 4.1. Численное моделирование с помощью нелинейного уравнения Шредингера

Нелинейное взаимодействие фемтосекундного излучения с кварцем моделировалось на основе численного решения трехмерного обобщенного нелинейного уравнения Шредингера

$$\frac{\partial A(r, t)}{\partial z'} = \left[ \frac{i}{2k_0} \nabla_{\perp}^2 - \frac{i}{2} k_2 \frac{\partial^2}{\partial t^2} + \frac{i 2\pi n_2}{\lambda} \left( 1 + \frac{i}{\omega_0} \frac{\partial}{\partial t} \right) \right] \times \int_0^{\infty} R(t') I(r, t - t') dt' A(r, t).$$

Здесь первое слагаемое в правой части отвечает за дифракцию, второе – за дисперсию второго порядка, третье учитывает нелинейность среды и дисперсию нелинейного отклика. Функция нелинейного отклика  $R(t)$  учитывает как быструю (электронную), так и медленную (молекулярную) составляющие:

$$R(t) = (1 - f_R)\delta(t) + f_R h_R(t),$$

где молекулярная составляющая описывается функцией

$$h_R(t) = \frac{\tau_1 + \tau_2}{\tau_1 \tau_2} \exp\left(-\frac{t}{\tau_2}\right) \sin \frac{t}{\tau_1}$$

при  $\tau_1 = 12.2$  фс,  $\tau_2 = 32$  фс [12]. Вклад этой составляющей в нелинейность  $f_R = 0.18$  [13, 14].

Расчеты проводились для сходящегося гауссова пучка:

$$A(r, z = 0, t) = \sqrt{I_{\max}} \exp\left(-\frac{r^2}{4\rho^2}\right) \exp\left(-ik \frac{r^2}{2R}\right) \times \exp\left[-\frac{2 \ln 2 (1 + iC) t^2}{T_{1/2}^2}\right],$$

где  $R = 4.5$  см;  $\rho = 65$  мкм;  $T_{1/2} = 123$  фс;  $C = -1.2$  (отрицательный чирп);  $I_{\max} = 4$  ТВт/см<sup>2</sup>. При этом они разбивались на два этапа: взаимодействие сходящегося отрицательно чирпированного пучка с кварцем и свободное распространение в пространстве. Для кварца дисперсия групповых скоростей  $k_2 = 80$  фс<sup>2</sup>/мм, нелинейный показатель преломления  $n_2 = 2.5 \times 10^{-16}$  см<sup>2</sup>/Вт [15].

Результаты расчета приведены на рис.7, из которого видно, что спектр, профиль импульса и временная фаза приобретают стационарную форму на расстоянии около

10 см от образца, т.е. за фокальной плоскостью фокусирующего зеркала.

На рис.8 приведены численно рассчитанный спектр излучения на оси пучка на расстоянии 20 см от образца и экспериментально полученный спектр за диафрагмой при интенсивности 5 ТВт/см<sup>2</sup>. Их хорошее согласие говорит о том, что основным механизмом формирования спектра при данной интенсивности является фазовая самомодуляция. Расчет демонстрирует также наблюдаемое экспериментально расщепление импульса.

Расщепление импульса в приосевой области пучка при сравнительно низких интенсивностях, когда влияние плазмы мало, обусловлено пространственным перераспределением излучения, при котором излучение вблизи максимума временного профиля импульса, подвергнувшись наименьшей фазовой самомодуляции, испытывает сильную рефракцию за счет образования керровской линзы и вытесняется на периферию пучка за фокальной плоскостью фокусирующей линзы. Это излучение не попадает в диафрагму, выделяющую центральную часть пучка, в которой содержится излучение, соответствующее переднему и заднему фронтам импульса и поэтому испытывающее наиболее сильную фазовую самомодуляцию. В отсут-

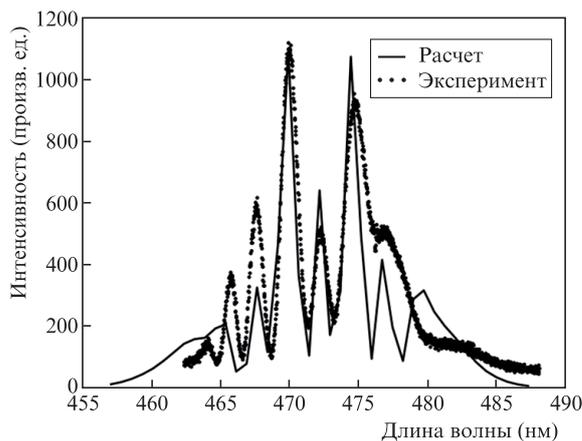


Рис.8. Сравнение рассчитанного и экспериментального спектров излучения за образцом.

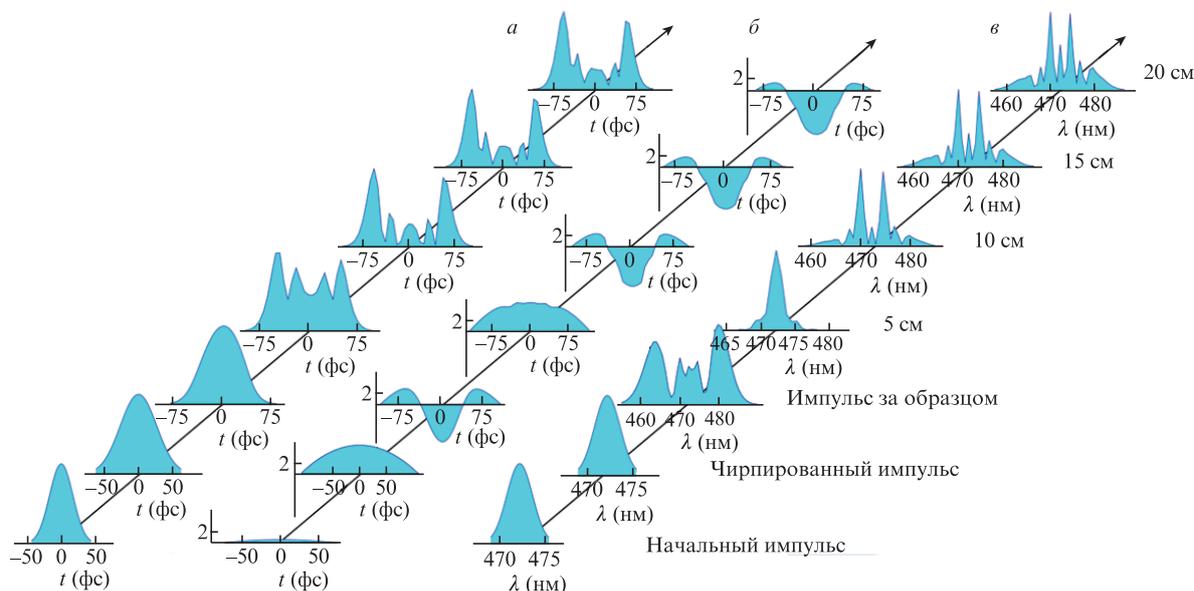


Рис.7. Результаты численного моделирования: форма импульса (а), временная фаза (б) и спектр (в) в зависимости от расстояния от образца.

ствии плазмы нелинейность имеет главным образом электронный характер и обуславливает самовоздействие импульса, сравнительно симметричное относительно его максимума, в связи с чем следует ожидать его расщепления на два сравнимых по амплитуде импульса. Это подтверждают результаты измерения спектра в центре пучка и на его периферии (см. рис.3), демонстрирующие, что несмещенная компонента спектра в основном содержится на периферии пучка.

Образование плазмы приводит, с одной стороны, к отрицательной добавке к показателю преломления, а с другой – к несимметричному (относительно максимума импульса) самовоздействию из-за большого (~150 фс [16]) времени электронной релаксации, приводящему к селекции одного импульса. Для более детального исследования поведения спектра и формы импульса при интенсивностях излучения свыше 10 ТВт/см<sup>2</sup> предполагается включить в численную модель образование плазмы.

#### 4.2. Четырехволновое смещение

При рассмотрении нелинейного взаимодействия фемтосекундного излучения с кварцем нельзя исключить также влияния четырехволнового смещения на формирование спектральных и временных характеристик излучения при возникновении изолированных спектральных компонент. С целью выяснения принципиальной возможности участия этого процесса в формировании указанных характеристик были численно решены уравнения для выржденного случая:

$$\frac{dA_p}{dz} = i\gamma_p |A_p|^2 A_p + 2i\gamma_p (|A_s|^2 + |A_i|^2) A_p + 2i\gamma_p A_s A_i A_p^* \exp(i\Delta\beta z),$$

$$\frac{dA_s}{dz} = i\gamma_s |A_s|^2 A_s + 2i\gamma_s (|A_p|^2 + |A_i|^2) A_s + 2i\gamma_s A_p^2 A_i^* \exp(-i\Delta\beta z),$$

$$\frac{dA_i}{dz} = i\gamma_i |A_i|^2 A_i + 2i\gamma_i (|A_p|^2 + |A_s|^2) A_i + 2i\gamma_i A_p^2 A_s^* \exp(-i\Delta\beta z),$$

где  $\Delta\beta = k_s + k_i - 2k_p$ ;  $A_p$ ,  $A_s$ ,  $A_i$  и  $k_p$ ,  $k_s$ ,  $k_i$  – комплексные амплитуды, нормированные на  $(|A_{p0}|^2)^{1/2}$ , и волновые векторы волн накачки, сигнальной и холостой волн соответственно;  $z$  – продольная координата, нормированная на толщину образца  $L = 0.2$  см;  $\gamma_s \approx \gamma_i \approx \gamma_p = \omega_p n_2 L |A_{p0}|^2 / c$  – параметр нелинейности.

В отличие от широко распространенного метода заданной амплитуды накачки, справедливого лишь на начальном этапе взаимодействия волн и не учитывающего влияние генерируемой волны на амплитуду накачки, в используемом нами подходе к моделированию учитывается взаимное влияние волн и выполняются законы сохранения (инварианты взаимодействия волн) рассматриваемого взаимодействия. Для этого использовался метод, предложенный в [17] для решения нелинейных уравнений, описывающих различные процессы преобразования частоты лазерного излучения (генерацию второй и третьей гармоник, суммарной и разностной частот), который

применялся для анализа режимов генерации второй гармоникой с ненулевой начальной амплитудой [18], при удвоении частоты в фотонных структурах [19] и в ряде других случаев. Выводы, сделанные на основе этого анализа, подтверждены компьютерным моделированием, выполненным на основе численного решения соответствующих систем нелинейных уравнений Шредингера.

Суть данного метода состоит в получении из системы исходных дифференциальных уравнений алгебраического уравнения для разности фаз взаимодействующих волн. Для этого вместо обычно используемого дифференциального уравнения относительно разности фаз взаимодействующих волн применяется гамильтониан (инвариант) рассматриваемых уравнений. В этом случае система уравнений, описывающая процесс взаимодействия волн, будет состоять из уравнений относительно действительных амплитуд, равных корню квадратному из их интенсивностей, и алгебраического уравнения относительно разности фаз (вместо дифференциального уравнения, в правой части которого содержатся интенсивности взаимодействующих волн). Используя связь между интенсивностями взаимодействующих волн, которая следует из соотношений Менли–Роу, удается получить одно уравнение относительно интенсивности любой из волн и его проинтегрировать.

Это уравнение содержит полином четвертой степени относительно интенсивности анализируемой волны. Поэтому при определенных соотношениях между коэффициентами полинома, которые зависят от интенсивности входной волны, от разности фаз взаимодействующих волн (в случае ненулевых входных интенсивностей всех взаимодействующих волн), а также от расстройки волновых чисел, возможны четыре действительных корня, при которых этот полином обращается в нуль. Тогда интенсивность выбранной волны будет изменяться в пределах определенной пары корней, соответствующих максимальному и минимальному значениям интенсивности волны, т.е. будет иметь место бистабильный режим взаимодействия волн. Эволюция же изменения интенсивности описывается эллиптическими функциями.

Важно подчеркнуть, что часто имеет место множественность решений, т.е. для одних и тех же безразмерных параметров могут существовать два решения, что соответствует бистабильному процессу взаимодействия волн. Переключение из одного режима взаимодействия в другой зависит от параметров задачи. Так, при некоторых значениях амплитуд взаимодействующих волн (и других параметров задачи) эти два решения имеют близкие значения в некоторых сечениях среды: максимальная интенсивность для нижней ветви решения близка к минимальному значению интенсивности для верхней ветви решения. В этом случае переключение обусловлено влиянием шумов. Аналогичный бистабильный режим существует при генерации второй гармоникой в условиях действия кубической нелинейности [17, 18]. Он состоит в том, что при превышении входной интенсивности волны накачки (и некоторых других условиях) возможны два режима генерации волны второй гармоникой – низкоэффективный и высокоэффективный. Полученное решение определяется начальной интенсивностью сигнальной волны и разностью фаз взаимодействующих волн на входе в среду.

На рис.9 приведены примеры решений для коэффициента усиления сигнальной волны  $R = \max(|a_s(z)|^2 / a_{s0}^2)$  при четырехволновом смещении в зависимости от соотноше-

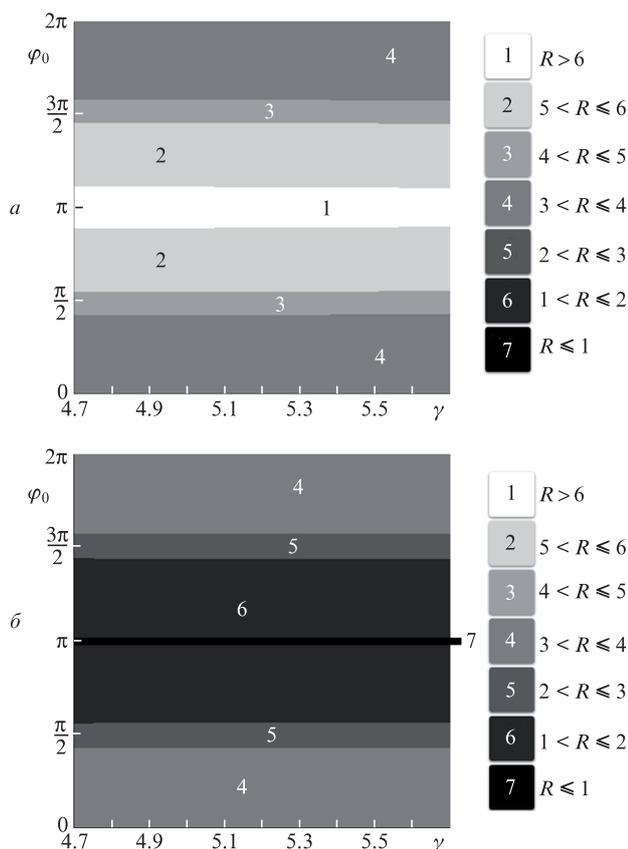


Рис.9. Коэффициент усиления  $R$  сигнальной волны в зависимости от соотношения начальных фаз  $\varphi_0$  взаимодействующих волн при  $\gamma_s = \gamma = 4.7-5.7$  для первой (а) и второй (б) ветвей.

ния начальных фаз  $\varphi_0 = \varphi_{s0} + \varphi_{i0} - 2\varphi_{p0}$  при  $\gamma_s = \gamma = 4.7-5.7$ ,  $a_{s0} = a_{i0} = \sqrt{0.2} a_{p0}$  и  $\Delta\beta = 0.12$  для двух ветвей. Здесь  $a_{j0}$  и  $\varphi_{j0}$  ( $j = s, i, p$ ) – начальные значения ( $z = 0$ ) действительных амплитуд и фаз взаимодействующих волн в представлении  $A_{j0} = a_{j0}\exp(i\varphi_{j0})$ .

Полученные результаты показывают, что в широком диапазоне начальных фаз имеется принципиальная возможность заметного параметрического усиления в направлении распространения фемтосекундного импульса. Это может приводить к перераспределению интенсивностей полос в спектре излучения без изменения его структуры, которая формируется за счет фазовой самомодуляции. Генерация новых частот и возникновение дополнительных спектральных компонент вследствие усиления спонтанного шума исключены, поскольку при низких интенсивностях сигнальной и холостой волн не выполняются условия фазового синхронизма [20]. Однако, как показывают результаты вычислений, при достаточно высоких начальных интенсивностях этих волн вызываемая ими фазовая само- и кросс-модуляция приводят к согласованию фаз и к параметрическому усилению.

## 5. Заключение

В результате экспериментальных и теоретических исследований нелинейного взаимодействия с плавным кварцем отрицательно chirпированных фемтосекундных импульсов излучения видимого диапазона (473 нм) в сходящихся гауссовых пучках установлено следующее:

1. Существенное уширение спектра в образце возникает при интенсивностях, превышающих 3–4 ТВт/см<sup>2</sup>, при-

чем уширение спектра неоднородно по сечению пучка, прошедшего через образец, и достигает максимума в центральной его части, где наблюдается также самокомпрессия импульса.

2. Стационарные профили интенсивности, фазы и спектра в приосевой области пучка формируются за фокальной плоскостью сферического зеркала, фокусирующего излучение на образец.

3. Как и в случае методов самокомпрессии на основе филаментации и в газонаполненных капиллярах, важную роль в формировании одиночных импульсов играет плазма, образование которой подтверждается наличием многофотонного поглощения в образце.

В реализованном в настоящей работе методе самокомпрессии режим филаментации излучения не достигается. Ему препятствуют, главным образом, малая толщина образца и высокая начальная интенсивность падающего на образец излучения, которое за счет многофотонной ионизации приводит к возникновению плазмы, препятствующей самофокусировке. В этих условиях достигнуто трехкратное уменьшение длительности импульса (до 26 фс) по сравнению с исходной длительностью спектрально ограниченного импульса (80 фс).

Теоретически показано, что на стадии формирования полосатой структуры спектра за счет фазовой самомодуляции при нелинейном взаимодействии отрицательно chirпированных фемтосекундных импульсов с кварцем на относительное распределение интенсивностей полос может оказывать влияние четырехволновое смешение.

Режим широкоапертурного нелинейного взаимодействия требует более детального теоретического и экспериментального изучения с целью оптимизации условий самокомпрессии фемтосекундных импульсов для достижения максимальной энергетической эффективности рассматриваемого метода и минимальной, приближающейся к предельной, длительности импульса.

Авторы выражают признательность В.И.Ковалеву за полезные обсуждения и Т.Ю.Москалеву за помощь в работе. Работа выполнена при финансовой поддержке Программ Президиума РАН «Экстремальные световые поля и их приложения» (Проект 1.3) и «Фундаментальные проблемы импульсной силовоточной электроники», а также РФФИ (грант № 13-02-01171а).

1. Аристов А.И. и др. *Квантовая электроника*, **42**, 1097 (2012).
2. Varela O. et al. *Opt. Lett.*, **35**, 3649 (2010).
3. Курилова М.В. и др. *Квантовая электроника*, **39**, 879 (2009).
4. Chen X. et al. *Opt. Commun.*, **259**, 331 (2006).
5. Blonskyi I.V. et al. *Ukr. J. Phys. Opt.*, **14**, 85 (2013).
6. Скобелев С.А. и др. *Письма в ЖЭТФ*, **89**, 641 (2009).
7. Skobelev S.A. et al. *Phys. Rev. Lett.*, **108**, 123904 (2012).
8. Nascimento C.M. et al. *J. Opt. A: Pure Appl. Opt.*, **8**, 947 (2006).
9. Villafranca A.B. et al. *J. Opt. A: Pure Appl. Opt.*, **11**, 125202 (2009).
10. Stuart B.C. et al. *Phys. Rev. Lett.*, **74**, 2248 (1995).
11. Stuart B.C. et al. *Phys. Rev. B*, **53**, 1749 (1996).
12. Blow K. J., Wood D. *IEEE J. Quantum Electron.*, **25**, 2665 (1989).
13. Stolen R.H. *J. Opt. Soc. Am. B*, **6**, 1159 (1989).
14. Agrawal G.P. *J. Opt. Soc. Am. B*, **28**, A1 (2011).
15. Artiglia M. *Opt. Fiber Technol.*, **2**, 75 (1996).
16. Audebert P. et al. *Phys. Rev. Lett.*, **73**, 1990 (1994).
17. Лысак Т.М., Трофимов В.А. *Журн. выч. мат. и мат. физ.*, **42**, 1275 (2001).
18. Лысак Т.М., Трофимов В.А. *Оптика и спектроскопия*, **93**, 709 (2002).
19. Trofimov V.A. *Opt. Eng.*, **50**, 084201 (2011).
20. Agrawal G.P. *Nonlinear Fiber Optics* (San Diego, Cal.: Elsevier, 2007).