

Федеральное государственное бюджетное учреждение науки

Физический институт им. П. Н. Лебедева

Российской академии наук

На правах рукописи

Корибут Андрей Валериевич

**ФАЗОВАЯ САМОМОДУЛЯЦИЯ И ВЫНУЖДЕННОЕ  
КОМБИНАЦИОННОЕ РАССЕЯНИЕ В КРИСТАЛЛЕ  
ВОЛЬФРАМАТА БАРИЯ И ПЛАВЛЕНОМ КВАРЦЕ**

1.3.19 – Лазерная физика

Диссертация на соискание ученой степени  
кандидата физико-математических наук

Научный руководитель:  
кандидат физико-математических наук  
Киняевский Игорь Олегович

Москва – 2024

## Оглавление

|  |    |
|--|----|
| Введение.....  | 3  |
| Глава 1. Особенности распространения фемтосекундных импульсов в среде .....                                | 14 |
| 1.1 Дисперсия групповых скоростей .....  | 15 |
| 1.2 Самофокусировка, нелинейное поглощение, филаментация.....  | 18 |
| 1.3 Фазовая самомодуляция.....   | 21 |
| 1.4 Вынужденное комбинационное рассеяние фемтосекундных импульсов .....                                    | 23 |
| 1.5 Выводы.....  | 33 |
| Глава 2. Экспериментальная часть .....   | 35 |
| 2.1 Лазерный комплекс.....   | 35 |
| 2.2 Приборы.....   | 36 |
| 2.3 Кристалл вольфрамата бария $BaWO_4$ .....  | 37 |
| Глава 3. Уширение спектра сфокусированных субпикосекундных импульсов в<br>плавном кварце .....             | 44 |
| 3.1 Схема эксперимента .....   | 44 |
| 3.2 Результаты эксперимента.....   | 45 |
| 3.3 Расчетная модель .....   | 49 |
| 3.4 Выводы.....  | 57 |
| Глава 4. Уширение спектра сфокусированных субпикосекундных импульсов в<br>кристалле вольфрамата бария..... | 59 |
| 4.1 Длина волны 515 нм .....   | 59 |
| 4.2 Длина волны 1030 нм .....  | 65 |
| 4.3 Выводы.....  | 68 |
| Глава 5. Нестационарное ВКР и ФСМ в кристалле $BaWO_4$ .....   | 69 |
| 5.1 Формирование ВКР компонент.....  | 69 |
| 5.2 Факторы, влияющие на эффективность преобразования .....  | 76 |
| 5.3 Выводы.....  | 85 |
| Заключение .....   | 87 |
| Список литературы .....  | 89 |

## **Введение**

### **Актуальность темы и степень ее разработанности**

С момента создания первого лазера в 1960 году, в силу уникальных свойств генерируемого им излучения, таких как когерентность и монохроматичность, он стал незаменимым инструментом для решения множества фундаментальных и прикладных задач. Вместе с развитием лазерных источников, различающихся характеристиками активной среды и конструкцией резонатора, активно разрабатываются различные техники на основе нелинейно-оптических эффектов для перестройки их частоты излучения. Одной из таких техник является оптическая параметрическая генерация света, использующая нелинейность среды второго порядка, при которой излучение накачки преобразуется в две различные волны: холостую и сигнальную. Преимуществами данного подхода является возможность плавной перестройки частоты излучения холостой и сигнальной волн, однако для достижения высокой эффективности нелинейная среда (кристалл) должен обладать достаточным двулучепреломлением для выполнения фазового синхронизма взаимодействующих волн, высокой нелинейностью и высоким порогом оптического разрушения. Также оптический параметрический генератор требует резонатор для осуществления обратной связи для сигнальной волны, что усложняет его конструкцию.

Другой метод базируется на эффекте вынужденного комбинационного рассеяния (ВКР). Суть метода заключается в том, что излучение накачки приводит к возбуждению колебательных или вращательных движений молекул, или к колебанию решетки (фононов) в твердотельных образцах, в результате чего происходит неупругое рассеяние света, при котором энергия фотона (частота излучения) изменяется. Сдвиг по частоте излучения в этом случае фиксированный и его величина определяется частотой ВКР-активных колебаний среды, при этом условия синхронизма удовлетворяются автоматически, а КПД преобразования излучения накачки в смещенное по частоте (стоксовое) излучение может достигать практически 100% квантовой эффективности.

Однако поскольку время установления колебательного возбуждения конечно, то выделяют два случая: стационарный и переходной (нестационарный) режим ВКР. Данное разделение определяется отношением длительности лазерного импульса накачки ( $T_p$ ) и временем релаксации колебаний среды ( $T_2$ ). При  $T_p \gg T_2$  ВКР проходит в стационарном режиме. Когда длительность импульса меньше или сравнима с  $T_2$ , то наблюдается нестационарное ВКР. В нестационарном режиме эффективный коэффициент ВКР усиления уменьшается по сравнению со стационарным режимом, поэтому при равных интенсивностях лазерного импульса в нестационарном режиме эффективность ВКР существенно меньше [1,2]. Для кристаллов время  $T_2$  обычно составляет единицы – десятки пикосекунд, поэтому для лазерных импульсов наносекундного диапазона длительностей высокие эффективности ВКР преобразования достигаются без существенных трудностей [3]. Однако для ультракоротких, пико- и фемтосекундных, импульсов ВКР реализуется в нестационарном режиме, и достижение высокой эффективности затруднено. Более того, для ультракоротких лазерных импульсов увеличение ВКР усиления за счет увеличения длины кристалла невозможно из-за дисперсии среды, которая приводит к рассогласованию групповых скоростей. Увеличение интенсивности накачки приводит к возникновению других нелинейных эффектов, таких как фазовая самомодуляция (ФСМ) и самофокусировка (СФ). Зачастую отмечается, что СФ позволяет снизить пороговую интенсивность ВКР, но она так же может привести к заметному нелинейному поглощению и образованию плазмы, что приведет к уменьшению эффективности. Поэтому разработка методов эффективного ВКР преобразования ультракоротких лазерных импульсов является нетривиальной задачей.

Среди известных работ [4–13], в которых исследовалось ВКР фемтосекундных импульсов, выделяется работа [11], в которой в схеме с одним проходом излучения через кристалл была получена аномально высокая эффективность ВКР преобразования субпикосекундных импульсов (длительность

импульса 0,3 пс, длина волны 515 нм) в кристалле вольфрамата бария  $BaWO_4$  (BWO). Данный режим достигался при фокусировке излучения в толщину кристалла и значительном уширении спектра. Авторы предположили, что высокая эффективность ВКР в этих условиях связана с формированием затравочного излучения в результате уширения спектра за счет ФСМ. Отметим, что ранее такой эффект в кристаллах не наблюдался, однако похожий эффект, известный как солитонный сдвиг частоты [14,15], ранее наблюдался в оптических волокнах. Необходимо отметить, что в [11] наблюдалась генерация только одной самой сильной стоксовой ВКР компоненты, которая при интенсивности накачки  $\sim 1$  ТВт/см<sup>2</sup>, длине образца 0,8 см и коэффициенте усиления  $\sim 40$  см/ГВт могла развиваться из спонтанного комбинационного рассеяния. Также необходимо отметить, что исходя из полученного в [11] значения нелинейного показателя преломления, мощность излучения в этих условиях превышала критическую мощность СФ, однако влияние СФ на распространение излучения внутри образца не рассматривалось. Поскольку BWO в настоящий момент является единственным кристаллом, в котором наблюдалась аномально высокая, до 20%, эффективность ВКР в условиях значительного уширения импульса, то взаимосвязь эффектов ВКР и ФСМ в этом материале требует проверки и исследования. Таким образом, для развития эффективных методов ВКР ультракоротких лазерных импульсов необходимо исследование физических процессов и факторов, которые приводят к аномально высокой эффективности ВКР 0,3 пс 515 нм лазерных импульсов в кристалле BWO.

### **Цели и задачи**

Целью диссертационной работы являлось определение физических факторов, ответственных за высокую эффективность вынужденного комбинационного рассеяния сфокусированных субпикосекундных импульсов в кристалле вольфрамата бария.

Для достижения цели были поставлены и решены следующие задачи:

1) Исследование уширения спектра сфокусированных субпикосекундных импульсов за счет фазовой самомодуляции при мощностях излучения меньше и больше критической мощности самофокусировки в плавленом кварце, как эталонном материале;

2) Исследование уширения спектра сфокусированных субпикосекундных импульсов за счет фазовой самомодуляции в кристалле вольфрамата бария;

3) Определение взаимного влияния вынужденного комбинационного рассеяния и фазовой самомодуляции при значительном уширении спектра субпикосекундных импульсов в кристалле вольфрамата бария;

4) Исследование влияния параметров фокусировки на эффективность генерации ВКР мод в кристалле вольфрамата бария при мощности излучения больше критической мощности самофокусировки.

### **Научная новизна**

1) Разработана численная модель на основе матричной оптики для описания распространения сфокусированных лазерных импульсов с учетом влияния самофокусировки, которая позволяет описать спектральное уширение, вызванное фазовой самомодуляцией, в трёх режимах распространения сфокусированных фемтосекундных импульсов: а) линейное распространение – при мощности излучения меньше 0,6 от критической мощности самофокусировки; б) нелинейное распространение – при мощности от 0,6 до 1 от критической мощности самофокусировки, характеризуется резким увеличением ширины спектра из-за увеличения интенсивности в фокальной плоскости за счет самофокусировки при отсутствии нелинейного поглощения; в) филаментация – при мощности излучения больше критической мощности самофокусировки, характеризуется близкой к линейной зависимостью ширины спектра от энергии лазерного импульса.

2) Обнаружен первый неорганический кристалл – вольфрамат бария, в котором для субпикосекундных лазерных импульсов доминирует «медленная» кубическая нелинейность с субпикосекундным временем отклика.

3) Описана конструктивная интерференция эффектов фазовой самомодуляции и вынужденного комбинационного рассеяния субпикосекундных лазерных импульсов с длиной волны 515 нм в кристалле вольфрама бария: уширение в стоксовое крыло, вызванное фазовой самомодуляцией формирует затравочное излучения для его последующего ВКР усиления на модах  $\nu_1=925 \text{ см}^{-1}$  и  $\nu_2=330 \text{ см}^{-1}$ , при этом порядок генерации ВКР-линий определяется их частотным сдвигом, а не коэффициентом усиления.

4) Продемонстрировано эффективное вынужденное комбинационное рассеяние субпикосекундных лазерных импульсов в кристалле вольфрамата бария на вторичной моде  $\nu_2=330 \text{ см}^{-1}$ .

5) Определены параметры фокусировки, позволяющие максимизировать эффективность ВКР субпикосекундных лазерных импульсов в кристалле вольфрама бария на модах  $\nu_1=925 \text{ см}^{-1}$  и  $\nu_2=330 \text{ см}^{-1}$ .

### **Практическая значимость**

Показано, что в режиме филаментации зависимость уширения спектра для сфокусированного лазерного импульса от его энергии имеет близкий к линейному характер с наклоном, который можно описывать в приближении геометрической оптики (без учета самофокусировки), что может быть использовано для определения величины нелинейного показателя среды.

Продемонстрировано вынужденное комбинационное рассеяние субпикосекундных импульсов на колебательных модах кристалла вольфрамата бария  $\nu_1=925 \text{ см}^{-1}$  и  $\nu_2=330 \text{ см}^{-1}$  с высокой эффективностью, позволяющее формировать «двухцветные» субпикосекундные импульсы, которые могут в дальнейшем применяться для решения различных задач, требующих излучение на

двух различных частотах, таких как генерация излучения на разностной частоте или в схемах накачка-зондирование.

Обнаружено, что в кристалле вольфрама бария для субпикосекундных лазерных импульсов доминирует «медленная» (с субпикосекундным временем отклика) керровская нелинейность, которая способствует конструктивной интерференции эффектов вынужденного комбинационного рассеяния и фазовой самомодуляции в нем. Это дает основание ожидать, что существуют и другие твердотельные материалы с доминирующей «медленной» керровской нелинейностью, которые окажутся эффективными для вынужденного комбинационного рассеяния субпикосекундных лазерных импульсов.

### **Положения, выносимые на защиту**

1) Уширение спектра сфокусированного субпикосекундного импульса при его филаментации в плавленом кварце с продольным размером меньшим, чем дисперсионная длина, и большим, чем длина Релея, определяется эффектом фазовой самомодуляции с таким же распределением интенсивности как в геометрической оптике.

2) Спектральное уширение субпикосекундных лазерных импульсов в кристалле вольфрамата бария, вызванное эффектом фазовой самомодуляции, является несимметричным с доминированием уширения в стоксовую область, что связано с инерционностью кубической нелинейности этого кристалла с субпикосекундным временем отклика.

3) При филаментации субпикосекундных импульсов с длиной волны 515 нм в кристалле вольфрамата бария, обладающего инерционностью отклика кубической нелинейности, за счёт фазовой самомодуляции формируется излучение с частотным сдвигом, соответствующим колебательным модам  $\nu_1$  и  $\nu_2$  этого кристалла, которое эффективно усиливается за счет вынужденного комбинационного рассеяния в этом же кристалле.

4) Эффективность вынужденного комбинационного рассеяния сфокусированного субпикосекундного лазерного импульса на колебательных модах  $\nu_1$  и  $\nu_2$  кристалла вольфрамата бария при затравке излучением, возникающим вследствие эффекта фазовой самомодуляции в этом же кристалле, увеличивается при смещении линейного фокуса излучения в сторону задней грани кристалла, что обусловлено увеличением эффективной длины взаимодействия (расстояния между линейным и нелинейным фокусами), пока она не ограничивается временным рассогласованием импульсов.

### **Личный вклад автора**

Все используемые в диссертации экспериментальные результаты были получены автором лично или при его непосредственном участии. Автор непосредственно производил обработку и анализ полученных экспериментальных данных, участвовал в обсуждении и интерпретации полученных результатов, написании статей, выступал на конференциях с полученными научными результатами. Программа для вычисления распространения сфокусированного пучка (Глава 3) была написана непосредственно автором. Идея о немгновенности отклика кубической нелинейности кристалла вольфрамата бария и связанное с ним различие в уширении спектра в стоксовую и антистоксовую области была предложена д.ф.-м.н. Ковалевым В.И.

### **Достоверность результатов**

Достоверность результатов диссертационного исследования подтверждена хорошим согласием экспериментальных результатов с результатами теоретических расчетов и моделирования. В эксперименте использовались высокоточные откалиброванные измерительные приборы, что обеспечило достоверность измерений пространственного профиля излучения, энергетических и спектральных характеристик.

### **Апробация работы**

Результаты работы были лично представлены на 5 международных конференциях:

- 1) V International Conference on Ultrafast Optical Science «UltrafastLight-2021», Москва, Россия, 2021;
- 2) XI International Conference Photonics and Information Optics, Москва, Россия, 2022;
- 3) VI International Conference on Ultrafast Optical Science «UltrafastLight-2022», Москва, Россия, 2022;
- 4) VII International Conference on Ultrafast Optical Science «UltrafastLight-2023», Москва, Россия, 2023;
- 5) XIX Международная конференция «Лазерные, Плазменные Исследования и Технологии» ЛАПЛАЗ-2023, Москва, Россия, 2023.

Часть представленных в диссертационной работе результатов была включена в цикл работ «Нестационарное вынужденное комбинационное рассеяние ультракоротких сине-зеленных лазерных импульсов в кристалле  $\text{BaWO}_4$  для генерации двух-цветного излучения с разностью частот  $\sim 900\text{--}1000\text{ см}^{-1}$ », который был удостоен премии Басова в 2021 г (ФИАН, ОКРФ) в составе участников Киняевский И.О., Ковалев В.И., Корибут А.В.

Часть представленных в диссертационной работе результатов была включена в цикл работ «Вынужденное комбинационное рассеяние и фазовая самомодуляция фемтосекундных лазерных импульсов в различных кристаллах», который был удостоен премии им. С.И. Вавилова в конкурсе молодежных научных работ ФИАН 2024.

Результаты научной работы докладывались на научных семинарах ФИАН (семинары Отделения Квантовой Радиофизики им. Н.Г. Басова и семинары Центра лазерных и нелинейно-оптических технологий).

## Публикации

Результаты, полученные в диссертационной работе, были опубликованы в 6 научных статьях в рецензируемых научных журналах, индексируемых в базах данных Web of Science и Scopus:

1. Kinyaevskiy I., Danilov P., Smirnov N., Kudryashov S., Koribut A., Dunaeva E., Voronina I., Andreev. Yu., Ionin A., Ablation of BaWO<sub>4</sub> crystal by ultrashort laser pulses //Crystals. – 2020. – Т. 10. – №. 9. – С. 754.

<https://doi.org/10.3390/cryst10090754>

2. Kinyaevskiy I., Kovalev V., Danilov P., Smirnov N., Kudryashov S., Koribut A., Ionin A., Asymmetric spectral broadening of sub-picosecond laser pulse in BaWO<sub>4</sub> crystal: interplay of self-phase modulation, stimulated Raman scattering, and orientational Kerr nonlinearity //Optics Letters. – 2021. – Т. 46. – №. 3. – С. 697-700.

<https://doi.org/10.1364/OL.417661>

3. Kinyaevskiy I. O., Kovalev V.I., Koribut A.V., Danilov P.A., Smirnov N.A., Kudryashov S.I., Grudtsyn Ya.V., Dunaeva E.E., Trofimov V.A., Ionin A.A., Asymmetric Spectral Broadening of 0.3 ps, 1030 nm Laser Pulse in BaWO<sub>4</sub> Crystal //Journal of Russian Laser Research. – 2022. – Т. 43. – №. 3. – С. 315-318.

<https://doi.org/10.1007/s10946-022-10053-2>

4. Киняевский И. О., Корибут А.В., Гриценко И.В., Сагитова А.М., Ионин М.В., Дунавеева Е.Э., Ионин А.А., Влияние фокусировки на нестационарное ВКР 0.3 ps лазерных импульсов в кристалле BaWO<sub>4</sub> с самозаправкой ФСМ //Оптика и спектроскопия. – 2023. – Т. 131. – №. 2. – С. 202-206.

<http://dx.doi.org/10.21883/OS.2023.02.55006.6-23>

5. Kinyaevskiy I., Kovalev V., Danilov P., Smirnov N., Kudryashov S., Koribut A., Ionin A., Highly efficient transient stimulated Raman scattering on secondary vibrational mode of BaWO<sub>4</sub> crystal due to its constructive interference with self-phase modulation //Chinese Optics Letters. – 2023. – Т. 21. – №. 3. – С. 031902.

<http://dx.doi.org/10.3788/COL202321.031902>

6. Kinyaevskiy I.O., Koribut A.V., Danilov P.A., Kudryashov S.I., Self-focusing and Self-phase Modulation of Focused Femtosecond Laser Beam in Fused Silica at Near-critical Peak Power //JETP Letters. – 2024. – Т. 119. – №. 1. – С. 10-15.

<https://doi.org/10.1134/S0021364023603585>

## **Объем и структура диссертации**

Диссертационная работа состоит из введения, пяти глав и заключения. Полный объём диссертации составляет 101 страницу, включая 43 рисунка и 1 таблицу. Список литературы содержит 99 наименований.

Во **Введении** кратко описана актуальность проводимого исследования, сформулированы цели и задачи, научная новизна, практическая значимость и защищаемые положения.

В **Главе 1** рассмотрены эффекты связанные с распространением фемтосекундных импульсов в среде и обзор работ по вынужденному комбинационному рассеянию пико- и фемтосекундных импульсов.

В **Главе 2** кратко описано устройство и основные характеристики используемой лазерной установки, и характеристики диагностического оборудования: спектрометр, измерители энергии/мощности, ПЗС-камера. Отдельным разделом приводится описание свойств кристалла вольфрамата бария и параметры исследуемого образца кристалла.

В **Главе 3** представлены результаты исследования уширения спектра сфокусированных субпикосекундных импульсов на второй гармонике лазерного комплекса (515 нм) в плавленом кварце, а так же численная модель на основе матричной оптики, которая описала результаты эксперимента.

В **Главе 4** представлены результаты исследования уширения спектра сфокусированных субпикосекундных импульсов на первой (1030 нм) и второй (515 нм) гармониках лазерного комплекса в кристалле вольфрамата бария, в котором была выявлена несимметричность уширения спектра с доминированием в стоксовую область.

В **Главе 5** представлены результаты исследования взаимного влияния эффектов фазовой самомодуляции и вынужденного комбинационного рассеяния для субпикосекундных импульсов в кристалле вольфрамата бария. Представлены результаты исследования влияния геометрии взаимодействия на эффективность нестационарного вынужденного комбинационного рассеяния субпикосекундных импульсов при самозатравке в результате уширения их спектра за счёт фазовой самомодуляции, и приведена геометрия взаимодействия при которой реализуется наибольшая эффективность.

В **Заключении** приведены основные результаты работы.

## **Глава 1. Особенности распространения фемтосекундных импульсов в среде**

С момента создания первого лазера в 1960 году Т. Мейманом ведутся активные исследования, направленные на уменьшение длительности лазерных импульсов и повышение пиковой мощности излучения. Первые импульсные лазеры работали в режиме свободной генерации с длительностью импульсов сопоставимой с длительностью накачки активной среды,  $\sim 1$  мс. Для повышения пиковой мощности и укорочения длительности импульса была осуществлена модуляция добротности резонатора, позволяющая получить нано- и микросекундные импульсы с увеличенной на порядки пиковой мощностью [16]. Реализация режима синхронизации мод, модуляция резонатора с частотой обхода светового импульса по резонатору, позволила перейти в пикосекундный диапазон длительности импульса [17,18]. Современные лазеры с большой шириной контура усиления, такие как титан-сапфировый лазер, в режиме синхронизации мод позволяют получить импульсы фемтосекундной длительности с пиковой мощностью вплоть до мультипетаваттного уровня [19–22]. Менее мощные фемтосекундные лазерные системы активно применяются во множестве задач, таких как модификация поверхности и объема материалов [23–30], сверхбыстрая спектроскопия [31], ускорение частиц [32–36] и другие. Высокая пиковая мощность фемтосекундных импульсов вызывает ряд особенностей их распространения в среде. В данной главе, на основе литературных данных будут рассмотрены основные такие особенности: фазовая самомодуляции (ФСМ), самофокусировка (СФ), дисперсионное расплывание импульса, нелинейное поглощение, а также особенности вынужденного комбинационного рассеяния (ВКР) для фемтосекундных импульсов. Достижение цели диссертационной работы, «определение физических процессов, которые приводят к аномально высокой эффективности ВКР преобразования фемтосекундных импульсов в кристалле вольфрамата бария в режиме значительного уширения спектра»,

наблюдаемое в [11], требует исследования этого явления с учетом особенностей фемтосекундной оптики.

### 1.1 Дисперсия групповых скоростей

Под действием внешнего электрического поля, в том числе световой волны, диэлектрическая среда поляризуется. Поле вызывает смещение электронных оболочек атомов относительно ядер; в результате атомы приобретают электрический дипольный момент. Количественно поляризованность среды описывают вектором поляризации  $\vec{P}$ , представляющим собой электрический дипольный момент единицы объема среды, наведенный внешним полем. Когда вектор поляризации линейно пропорционален напряженности электрического поля, линейная оптика, распространение фемтосекундного лазерного импульса в среде с дисперсией уже отличается от непрерывного излучения или «длинного» наносекундного импульса. Большая ширина спектра фемтосекундного импульса приводит к существенному различию скоростей распространения на его различных частотах, что приводит к значительному (сравнимому с исходной длительностью) временному расплыванию импульса при прохождении небольшого, порядка сантиметра, расстояния. Для описания этого эффекта в качестве характеристики материала вводится величина  $GVD$  (задержка групповых скоростей) и типичные единицы измерения  $\text{фс}^2/\text{мм}$ . Данную величину можно вычислить, зная зависимость показателя преломления от частоты [37]:

$$GVD(\omega_0) \equiv \frac{2}{c} \left( \frac{\partial n}{\partial \omega} \right) \Big|_{\omega=\omega_0} + \frac{\omega_0}{c} \left( \frac{\partial^2 n}{\partial \omega^2} \right) \Big|_{\omega=\omega_0}. \quad (1.1)$$

Зная данную величину для материала, можно вычислить увеличение длительности спектрально ограниченного импульса с начальной длительностью  $T_{нач}$  (уровень  $FWHM$ ) при распространении на расстояние  $L$  в среде с дисперсией [37]:

$$\tau = T_{нач} \sqrt{1 + \left( \frac{GVD \times L \times 4 \ln 2}{T_{нач}^2} \right)^2}. \quad (1.2)$$

Для лазерного импульса и среды дополнительно вводится характеристика, называемая дисперсионной длиной, по аналогии с дифракционной длиной (длина Релея), расстояние при прохождении которого изначально спектрально ограниченный импульс увеличит свою длительность в  $\sqrt{2}$  раз  $L_{дисп} = T_{нач}^2 / (GVD \times 4 \ln 2)$ . На рис. 1.1 представлена зависимость дисперсионной длины от длительности лазерного импульса с центральной длиной волны 515 нм при распространении в плавленом кварце (зависимость показателя преломления от длины волны [38]).

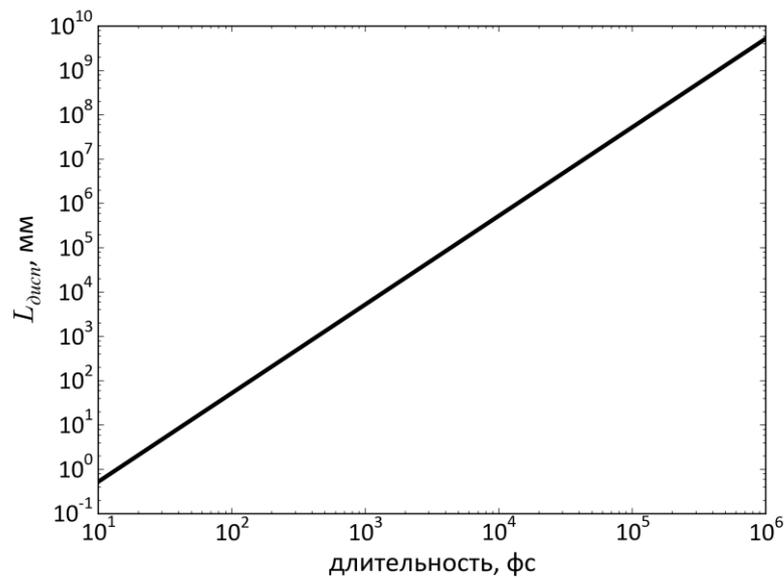


Рис. 1.1 Зависимость дисперсионной длины от длительности импульса с центральной длиной волны 515 нм при распространении в кварце.

Для примера, используя дисперсионные уравнения для показателей преломления кварца [38] и формулы (1.1) и (1.2) можно оценить, что спектрально ограниченный лазерный импульс длительностью 100 фс с центральной длиной волны 515 нм пройдя через пластину кварца толщиной 10 см уширится до 215 фс, а импульс длительностью 1 пс всего до 1,00018 пс. При увеличении длительности

уменьшается пиковая мощность импульса, а его несущая частота становится переменной во времени, и такой импульс называют чирпированным. Необходимо отметить, что использование чирпированных импульсов для их более эффективного усиления (Chirped pulse amplification (CPA)) [39], предложенное Муру и Стрикленд в 1985 году, привело к существенному скачку мощности фемтосекундных лазерных систем, за что в 2018 году они были удостоены Нобелевской премии. В этом методе для увеличения и последующего сжатия длительности используются такие оптические конструкции, как стретчер и компрессор, которые состоят из призм или дифракционных решеток, в результате прохождения через которые синие и красные компоненты спектра проходят различные оптические пути (рис. 1.2).

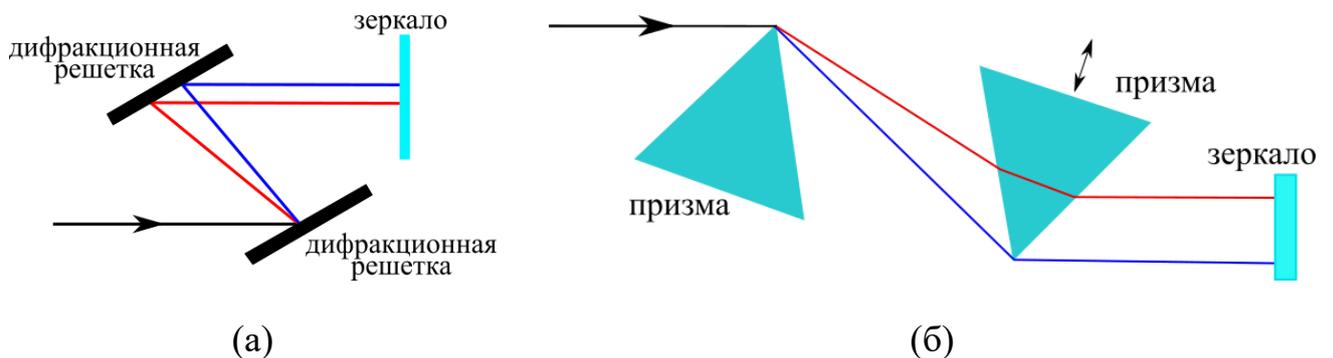


Рис. 1.2. Оптическая схема компрессора на основе: а) дифракционных решеток; б) призм.

Наравне с величиной  $GVD$  для описания характеристик конкретного образца встречается величина  $GDD = GVD \times L$ , которая, по сути, является вносимой дисперсией второго порядка образца целиком. Так же величины  $GVD(GDD)$  можно использовать для оценки временного разбегания двух импульсов на разных длинах волн (расстояние между центральными компонентами  $\Delta\nu$ ) при распространении в одной среде:

$$\Delta\tau_{разб} = 2\pi \Delta\nu GVD \times L = 2\pi \Delta\nu GDD. \quad (1.3)$$

## 1.2 Самофокусировка, нелинейное поглощение, филаментация

В сильной световой волне, что характерно для мощного фемтосекундного импульса, отклик среды становится отличным от линейного. Нелинейность поляризации среды может быть обусловлена ангармонизмом электронного и колебательного откликов атомов и молекул, изменением поляризуемости за счет ориентации анизотропных молекул в электромагнитном поле, изменением плотности среды из-за электрострикции и нагрева. Данные механизмы различаются вкладом и характерными временами установления и для импульсов фемтосекундной длительности определяющим является нелинейность, связанная с перераспределением электронной плотности в атомах и молекулах среды [40].

Таким образом, в общем случае поляризация среды  $\vec{P}$  зависит нелинейно от приложенного поля  $\vec{E}$  и ее можно разложить в ряд по степеням  $\vec{E}$ :

$$\vec{P}(r,t) = \varepsilon_0 \left[ \chi^{(1)} \vec{E} + \chi^{(2)} \vec{E} \vec{E} + \chi^{(3)} \vec{E} \vec{E} \vec{E} + \dots \right], \quad (1.4)$$

где  $\varepsilon_0$  – диэлектрическая проницаемость вакуума,  $\chi^{(j)}$  ( $j=1,2,\dots$ ) – тензор восприимчивости  $j$ -го порядка. Определяющий вклад в поляризацию среды вносит линейная восприимчивость  $\chi^{(1)}$ , и влияние ее дисперсии на распространение фемтосекундных импульсов приведено выше. Восприимчивость второго порядка  $\chi^{(2)}$  отвечает за такие явления, как генерация второй гармоники и ненулевая только в средах без центральной симметрии. Для изотропных сред основной добавкой является нелинейность третьего порядка  $\chi^{(3)}$ , которая приводит к зависимости показателя преломления не только от частоты, но и от интенсивности падающего излучения  $I(r,t)$ :

$$n(\omega, I) = n_0(\omega) + n_2 I(r,t), \quad (1.5)$$

где  $n_0(\omega)$  – коэффициент преломления среды,  $n_2$  – нелинейный показатель преломления, связанный с нелинейностью третьего порядка как:

$$n_2 = \left( \frac{2\pi}{n_0} \right)^2 \chi^{(3)}. \quad (1.6)$$

При распространении лазерного излучения с гауссовым профилем интенсивность в среде с  $n_2 > 0$ , нелинейная добавка к показателю преломления максимальна на оси и спадает к периферии пучка. В результате центральная часть распространяется медленнее, чем края пучка, что приводит к искривлению волнового фронта, аналогичному собирающей линзе с увеличивающейся оптической силой по мере распространения импульса в среде из-за увеличения пиковой интенсивности на оси. Данное явление называется самофокусировкой (СФ). Мощность, при которой дифракционное расхождение пучка будет компенсироваться нелинейной фокусировкой, вызванной керровской линзой (СФ), называют критической мощностью СФ, и согласно [41] выражается как:

$$P_{cr} = \frac{3,77\lambda^2}{8\pi n_0 n_2}, \quad (1.7)$$

где  $\lambda$  – длина волны излучения. При мощности излучения превышающей  $P_{cr}$ , керровская линза превалирует над дифракционной расходимостью, что в итоге, приводит к «схлопыванию пучка в точку», коллапсу пучка. Расстояние, на котором это произойдет, зависит от мощности излучения и описывается формулой [42]:

$$z_{fil} = \frac{0,367L_d}{\sqrt{(\sqrt{P/P_{cr}} - 0,852)^2 - 0,0219}}, \quad (1.8)$$

где  $L_d = k_0 a_0^2$  – дифракционная длина,  $k_0$  – волновое число,  $a_0$  – радиус пучка по уровню  $1/e$ . Дополнительная фокусировка с помощью линз или сферических зеркал с фокусным расстоянием  $f$  приводит к смещению точки коллапса в сторону фокусирующего элемента. Новое положение  $z_{fil}'$  определяется [43]:

$$\frac{1}{z_{fil}'} = \frac{1}{f} + \frac{1}{z_{fil}}. \quad (1.9)$$

В прозрачных средах, излучение распространяется без линейного поглощения. При коллапсе пучка резко возрастает интенсивность излучения, что приводит к нелинейному поглощению и фотоионизации среды, которая может происходить за счет многофотонного поглощения или туннельной ионизации. В зависимости от параметров излучения может происходить преобладание одного процесса над другим. В теоретической работе [44] получен критерий (адиабатический параметр или параметр Келдыша) для разграничения этих процессов:

$$\gamma = \frac{\omega}{e} \sqrt{m_e U_i \frac{cn_0 \epsilon_0}{I}}, \quad (1.10)$$

где  $\omega$  – частота лазерного излучения,  $m_e$  и  $e$  – приведенные масса и заряд электрона,  $U_i$  – потенциал ионизации среды,  $c$  – скорость света в вакууме,  $n_0$  – показатель преломления среды,  $I$  – интенсивность излучения. При  $\gamma \gg 1$  доминирующим процессом является многофотонная ионизация, а при  $\gamma \ll 1$  – туннельная. Дополнительно с увеличением длительности импульса в общее поглощение вносит вклад лавинообразная ионизация [45].

Образовавшаяся плазма приводит к изменению диэлектрической проницаемости среды и согласно модели Друде:

$$\varepsilon(\omega) = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2}, \quad (1.11)$$

где  $\omega_p = \sqrt{\frac{4\pi\rho e^2}{m_e}}$  – плазменная частота,  $\omega$  – частота падающего излучения. В

терминах плотностей плазмы выражение принимает вид:

$$\varepsilon(\rho) = 1 - \frac{\rho}{\rho_c}, \quad (1.12)$$

где  $\rho_c = \frac{m_e \omega^2}{4\pi e^2}$  - критическая плотность плазмы. Показатель преломления связан с диэлектрической проницаемостью как  $n = \sqrt{\varepsilon}$ , и изменение показателя преломления из-за плазмы можно оценить, как (взяв первый член разложения):

$$\Delta n_{pl} = \sqrt{\varepsilon(\rho)} - 1 = \left( 1 - \frac{\rho}{2\rho_c} - \dots \right) - 1 = -\frac{\rho}{2\rho_c}. \quad (1.13)$$

Поскольку добавка к показателю преломления от плазмы отрицательна, а плотность плазмы пропорциональна интенсивности, то в центре пучка уменьшение будет больше, чем на краях, что приведет к дефокусировке излучения. В итоге, СФ приводит к увеличению интенсивности, и начиная с некоторого значения, среда активно ионизируется, что приводит к последующей дефокусировке излучения на образовавшейся плазме и препятствует дальнейшему схлопыванию пучка. В пространственно-временном представлении распространение излучение представляет собой нить (филамент), где передний фронт импульса ионизирует среду, а задний фронт импульса сильно дефокусируется образовавшейся плазмой. Как результат, образуется протяженный плазменный канал – филамент.

### 1.3 Фазовая самомодуляция

Нелинейность третьего порядка помимо изменения пространственного профиля приводит к изменениям в частотно-временной области. Далее для простоты будем рассматривать импульс с гауссовым распределением интенсивности во времени с длительностью импульса существенно превышающую время установления нелинейного отклика среды (что характерно для конденсированных сред):

$$I(t) = I_0 \exp(-4 \ln 2 t^2 / T_{FWHM}^2). \quad (1.14)$$

Так при прохождении импульса через среду возникает дополнительный набег фазы  $\varphi = k_0 n_2 I(t) dz$ , который зависит от интенсивности и приводит к генерации новых частот:

$$\delta\omega = -\frac{\partial\varphi}{\partial t} = -k_0 n_2 dz \frac{\partial I}{\partial t} = -k_0 n_2 dz I_0 \left( -\frac{8t \ln 2}{T_{FWHM}^2} \right) \exp\left( -\frac{4 \ln 2 t^2}{T_{FWHM}^2} \right). \quad (1.15)$$

В отсутствии дисперсии среды вблизи максимума интенсивности ( $t=0$ ) зависимость частоты от времени имеет почти линейный характер, что приводит к линейному чирпированию импульса без увеличения его длительности и может быть использовано для дополнительной временной компрессии импульса (Compression after Compression Approach (CafCA)) [46]. Максимум уширения достигается в точках с наибольшим градиентом интенсивности  $t = \pm \frac{T_{FWHM}}{\sqrt{8 \ln 2}}$ .

Максимальное уширение и спектральная плотность излучения могут быть рассчитаны по формулам [40]:

$$\Delta\omega_{ск} = \sqrt{1 + (0,88\varphi_{\max})^2} \Delta\omega_{ск, нач}, \quad (1.16)$$

$$S(\Omega = \omega - \omega_0) = (2\pi)^{-1} \left| \int_{-\infty}^{+\infty} \sqrt{I(t)} \exp(-i[\Omega t - \varphi(t, z)]) dt \right|^2. \quad (1.17)$$

На рис. 1.3 приведены примеры спектров при различных максимальных значениях набега фазы  $\varphi_{\max} = \varphi(t=0)$  [40].

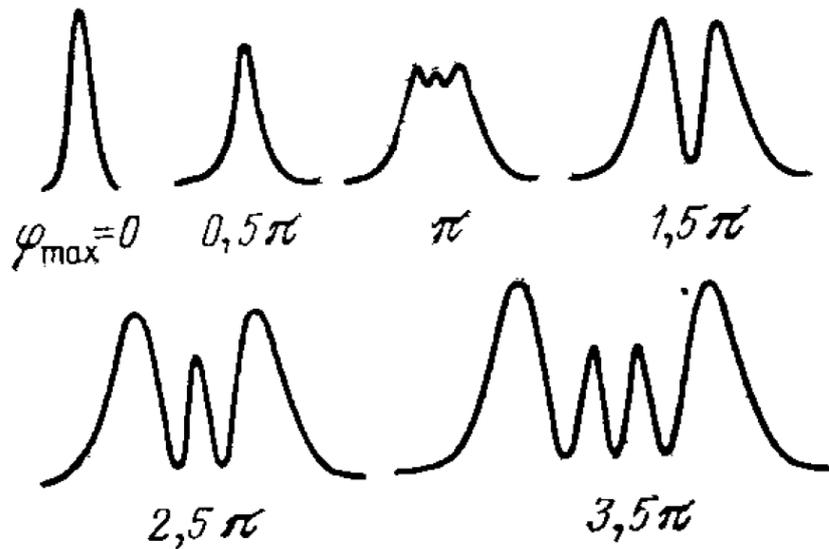


Рис. 1.3. Спектры гауссового импульса при различных максимальных значениях набега фазы [40].

Описанное самовоздействие импульса при прохождении через нелинейную среду получило название фазовая самомодуляция (ФСМ).

При времени установления нелинейности  $\tau_{нл}$  большей или сопоставимой с длительностью импульса нелинейная фаза определяется выражением [40]:

$$\varphi(\eta, z) = -\frac{\omega_0 n_2 z}{2c \tau_{нл}} \int_{-\infty}^{\eta} I(t) \exp \frac{t-x}{\tau_{нл}} dx. \quad (1.18)$$

При подстановке (1.14) и (1.18) в (1.17) получим сильно не симметричную картину уширения (рис. 1.4) с доминированием уширения в красную область. Амплитуды стоксовой и антистоксовой компонент заметно отличаются, в то время, как для мгновенного отклика наблюдалась полностью симметричная картина. Максимальные набег фазы и уширение спектра в этом случае определяются, как  $\varphi_{\max} = \max |\varphi| = \pi^{1/2} I_0^2 \tau_0 \omega_0 n_2 z / 2c \tau_{нл}$  и

$$\delta\omega_{\max} = -I_0^2 \omega_0 n_2 z / 2c \tau_{нл}.$$

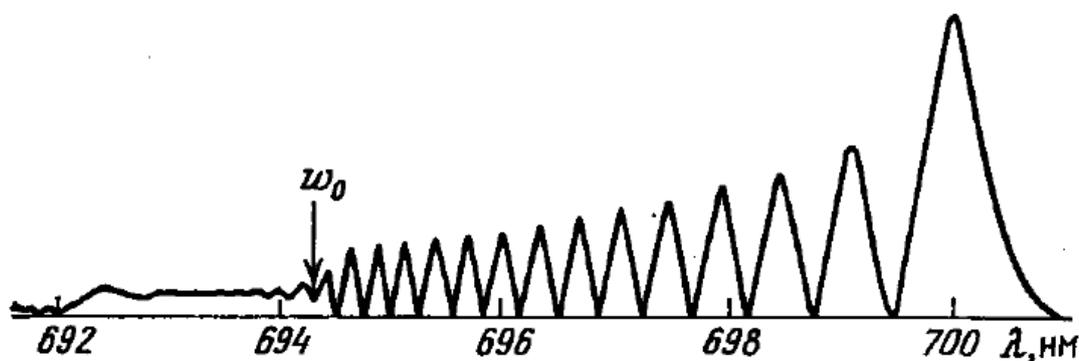


Рис. 1.4. Вид уширенного спектра для гауссового импульса с длительностью 2,7 пс и временем установления нелинейности 9 пс при нелинейном фазовом набеге  $265\pi$  [47].

#### 1.4 Вынужденное комбинационное рассеяние фемтосекундных импульсов

Нелинейный оптический эффект вынужденного комбинационного рассеяния (ВКР) лазерного излучения был впервые описан в 1962 году [48] и стал одним из основных инструментов для решения научных и технологических задач.

Благодаря этому явлению стало возможно расширение традиционных методов спектроскопии комбинационного рассеяния [49,50], преобразование лазерного излучения с целью освоения новых спектральных диапазонов и управление длительностью и формой импульса, а также увеличение их энергии и направленности [51–56]. Кроме того, эффект ВКР используется для охлаждения атомов [57], обращения волнового фронта света [58] и выполнения ряда других задач.

Для пико- и наносекундных импульсов ВКР может достигать высокой эффективности, вплоть до близкой к 100% квантовой эффективности [59]. Однако, когда длительность импульса меньше времен дефазировки колебаний среды  $T_2$ , которое для кристаллических сред порядка единиц и десятков пикосекунд, данный эффект происходит в нестационарном режиме. В этом случае коэффициент ВКР усиления резко уменьшается [1] при уменьшении длительности импульсов. В дополнении к этому с ростом интенсивности импульса накачки, ВКР может подавляться другими практически безинерционными нелинейными эффектами, обусловленными электронной поляризуемостью. Так в газах [60] было показано, что ФСМ и СФ являются ограничивающими факторами, которые приводят к уширению спектра и портят фазовый фронт импульса накачки, и как следствие, к уменьшению его интенсивности. При мощности накачки меньше критической мощности СФ можно уменьшить нелинейное многофотонное поглощение среды путем использования длиннофокусной оптики, однако дисперсия среды для фемтосекундных импульсов может приводить к временному рассогласованию импульса накачки и рассеянного импульса. В работах по ВКР фемтосекундных импульсов в твердых телах [5,8] также наблюдалось подавление ВКР другими нелинейными эффектами, в частности, в этих работах отмечается генерация конической эмиссии на выходе из ВКР-кристалла. Это приводило к тому, что при повышении мощности/энергии импульса накачки происходило насыщение амплитуды стоксовой ВКР компоненты вблизи «порога» её генерации.

Для уменьшения влияния других нелинейных эффектов предложена техника ВКР преобразования чирпированных импульсов. В этой технике исходный фемтосекундный импульс растягивается во времени до длительности превышающее время дефазировки среды, что позволяет перевести из нестационарного по времени в квазистационарный. В работе [61] спектрально-ограниченный 500 фс импульс растягивался до 2,4 пс и преобразовывался в ячейке с метаном при давлении 30 атмосфер. В работе показано, что стоксов импульс дублирует чирп импульса накачки, что свидетельствует о возможности последующего сжатия во времени после преобразования. Эффективность преобразования составила 20% и длительность стоксового импульса после компрессии 120 фс. В работе [6] отмечается, что при таком подходе сложно получить стоксов импульс с длительностью меньше 100 фс из-за сужения спектра стоксового импульса при нелинейном взаимодействии обусловленное тем, что передний фронт импульса, участвующий в возбуждении среды, не преобразуется. Авторы предлагают использовать двух импульсную накачку, где первый импульс вызывает возбуждение, а второй эффективно рассеивается. В эксперименте с двумя импульсами наблюдалось увеличение эффективности преобразования (по сравнению с одиночным импульсом) когда время между ними не превосходило времени дефазировки среды. Для одиночного импульса была получена эффективность 20% при преобразовании в ячейке метана при давлении 60 атмосфер и длительности растянутого импульса накачки 1-1,5 пс (длительность спектрально-ограниченного импульса 50 фс), однако ширина спектра стоксового импульса составила 10 нм, что существенно уже спектра импульса накачки (18 нм), и ожидаемая длительность стоксового импульса после временной компрессии составила 170 фс. При использовании двух импульсной накачки общая эффективность была лишь немного выше, но эффективность преобразования только по энергии второго импульса составила 47%. Спектр стоксового импульса оказался значительно шире и его ширина составила 28 нм, а длительность импульса после временной компрессии составила 68 фс.

В работе [10] приводится оценка на минимальную длительность импульса для нестационарного ВКР в случае совместного действия с ФСМ. Нелинейная добавка к показателю преломления приводит к нарушению условий синхронизма, однако при определенных длинах волн накачки и стоксового импульса ( $\lambda_{ст} = 2\lambda_{нак}$ ) влияние нелинейной фазовой модуляции на процесс развития стоксовой волны снижается, и возможна генерация стоксового излучения при более коротком импульсе накачки по сравнению с накачкой на других длинах волн. Так было реализовано ВКР преобразование 300 фс импульса (начальная ширина спектра 8 нм) с центральной длиной волны 1030 нм в ячейке с водородом при давлении 25 атм при существенном уширении спектра импульса накачки (40 нм) за счет ФСМ. При использовании другой лазерной системы с центральной длиной волны 800 нм такой же длительности, наблюдалось только уширение спектра за счет ФСМ.

Использование газовых сред в качестве ВКР среды связано с некоторыми сложностями. Из-за низкой плотности необходимо обеспечивать большие длины взаимодействия, или использовать газовые ячейки высокого давления. Для работы с высокой частотой повторения из-за низкой теплопроводности газа, необходимы сложные системы с протеканием газа, что сложно реализуемо для ячеек с большим давлением. Другими техническими сложностями и недостатками являются требования к герметичности ячеек высокого давления, их разрушение, и возможные химические реакции после взаимодействия с мощным лазерным излучением. Частично эти проблемы решаются путем использования твердотельных сред, которые обладают лучшими термическими и механическими характеристиками, высокой концентрацией/плотностью частиц, что приводит к уменьшению требуемой длины взаимодействия. Поэтому, несмотря на большее влияние сопутствующих нежелательных нелинейных эффектов, различными группами проводятся исследования по ВКР фемтосекундных импульсов в кристаллических средах, в виду их компактности и технологичности.

Так в работе [7] исследовалось ВКР преобразование чирпированных импульсов в кристалле  $\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$ . Растянутый во времени импульс делился на два пучка с отношением энергий 1:100 (Рис. 1.5). «Слабый» пучок использовался для формирования затравочного излучения в первом кристалле  $\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$ . Затем с помощью линии задержки импульсы сводились во времени и пропускались через второй такой же кристалл, где второй пучок представлял собой волну накачки. В результате двух проходов через второй кристалл затравочный импульс усиливался до энергии 6 мДж, при начальной энергии импульса накачки 30 мДж.

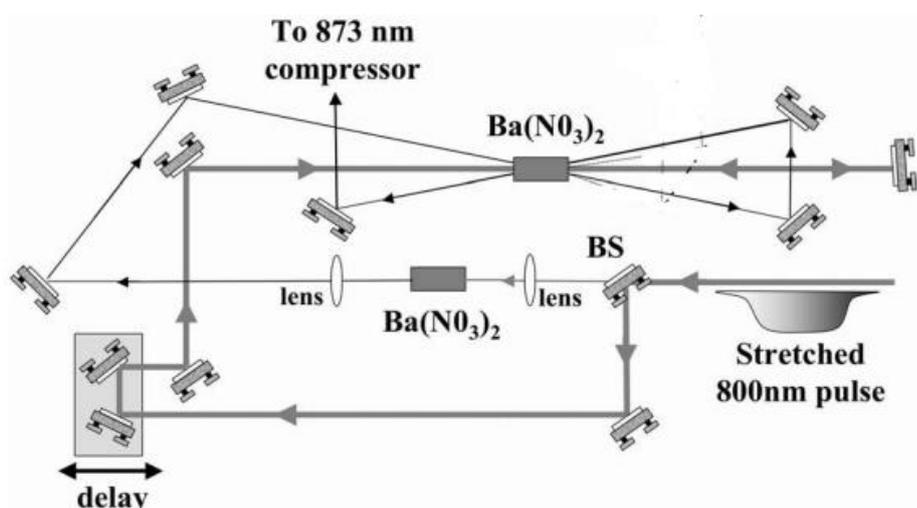


Рис. 1.5. Схема эксперимента с формированием затравки и последующим усилением [7].

В работе [12] реализовано ВКР преобразование чирпированного импульса с помощью многопроходной ячейки (Рис. 1.6). Увеличение количества проходов позволяет многократно увеличить длину взаимодействия и как следствие уменьшить мощность накачки, тем самым уменьшить влияние других нелинейных эффектов. В итоге в 3-мм кристалле KGW, установленном в многопроходную ячейку, эффективность преобразования составила 44,6% при энергии импульса накачки 112 мкДж. Дополнительно в результате большого количества проходов через ВКР активную среду наблюдалось улучшение качества пучка.

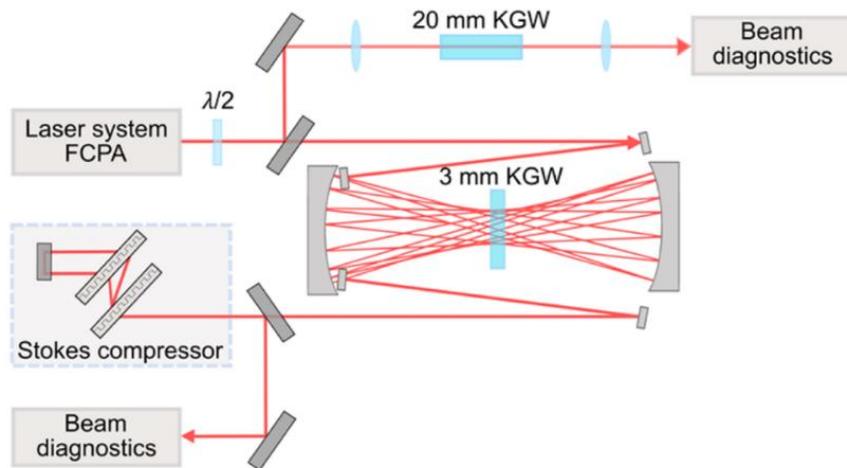


Рис. 1.6. ВКР преобразование chirпированного импульса с помощью многопроходной ячейки [12].

В работе [13] в однопроходной схеме была достигнута 3% эффективность для растянутого до 200 пс лазерного импульса (спектрально-ограниченная длительность 90 фс) (Рис. 1.7). Такая высокая эффективность для однопроходной схемы была достигнута за счет высокого уровня затравочного излучения, являющегося спонтанным излучением лазерного усилителя. Из-за смещенной центральной длины волны импульса накачки 744 нм, сильнейшая ВКР мода кристалла BWO попадала в район длины волны  $\sim 800$  нм, что совпадает с максимумом полосы усиления кристалла Ti:Sa.

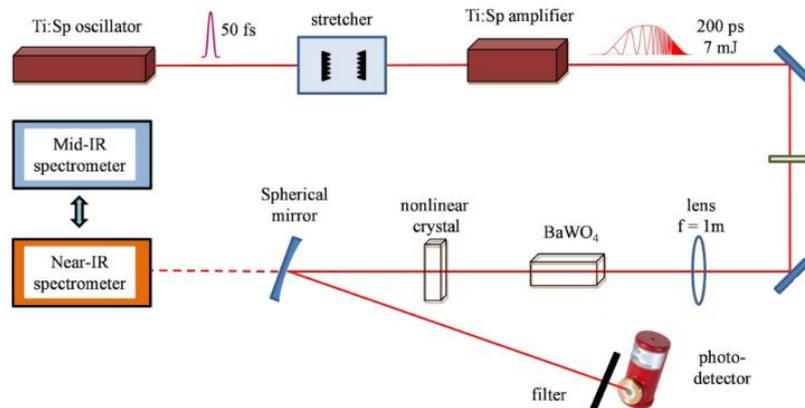


Рис. 1.7. ВКР преобразование chirпированного импульса с затравкой спонтанным излучением из усилителя [13].

Существует и другой подход, позволяющий получить высокую эффективность ВКР преобразования ультракоротких лазерных импульсов, который заключается в синхронной накачке ВКР-кристалла в резонаторе [62–65]. Длина резонатора с ВКР активным элементом должна совпадать с длиной резонатора лазера накачки. Это необходимо, чтобы время обхода резонатора совпадало со временем между импульсами накачки, и ВКР импульс усиливался последовательными импульсами накачки. Данный метод называется методом синхронной накачки. Преимущество этого метода заключается в том что, как и в случае многопроходной схемы, для достижения порога ВКР генерации можно уменьшить мощность накачки, тем самым уменьшить вклад сопутствующих нелинейных эффектов. В работе [9] с использованием данного метода была получена 32% эффективность ВКР генерации 140 фс импульсов на длине волны 796 нм в алмазе длиной 8 мм (Рис. 1.8а). Начальный импульс был немного чирпирован и растянут до 194 фс. Стоксовый импульс на выходе из резонатора имел длительность 362 фс и после дополнительного временного сжатия в призматическом компрессоре имел длительность 65 фс. Авторы связывают большой положительный чирп у стоксового импульса с положительной дисперсией среды и влиянием ФСМ, которая дополнительно усиливает чирп и увеличивает ширину спектра (Рис. 1.8б). Авторами проведено численное моделирование и получено, что фазовая кроссмодуляция вносит незначительный вклад по сравнению с ФСМ самого стоксового импульса.

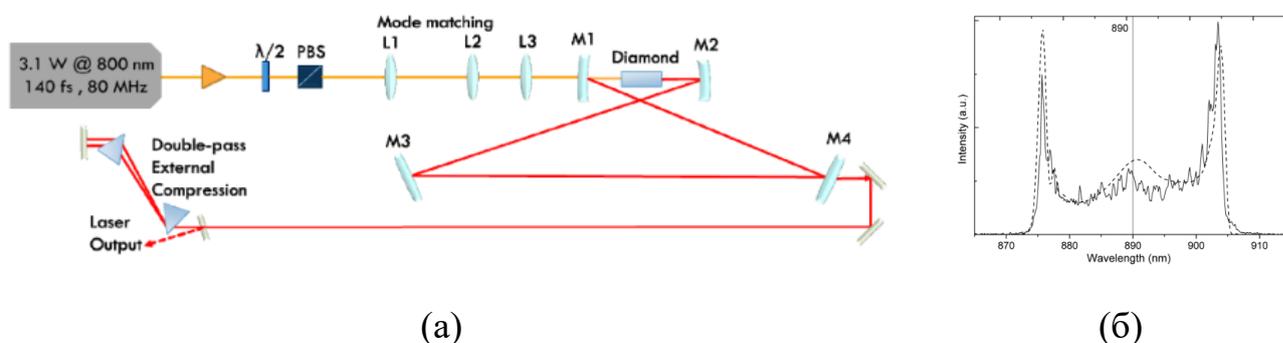


Рис. 1.8. а) Схема синхронной накачки резонатора с ВКР активным кристаллом; б) Спектр стоксового импульса [9].

Альтернативный способ подавить нежелательные нелинейные эффекты при ВКР ультракоротких импульсов заключается в изменении геометрии взаимодействия. Так в работе [4] реализовано ВКР преобразование 100 фс импульсов в жидкости. При фокусировке сферической линзой происходила только генерация суперконтинуума (Рис. 1.9а), но при фокусировке с помощью аксикона на оси распространения наблюдалась ВКР генерация. При повышении мощности накачки так же наблюдалась генерация суперконтинуума, но она соответствовала не импульсу накачки, а стоксовому (Рис. 1.9б). Аксикон представляет собой коническую призму с углом  $\alpha$  при основании и показателем преломления  $n_{ак}$ , образующий линейный фокус длиной  $L=R/\sin[\alpha(n_{ак}-1)]$  с поперечным распределением амплитуд, описываемых функцией Бесселя нулевого порядка [66], пространственный спектр которого состоит из волновых векторов лежащих на поверхности конуса с углом  $\gamma$  к оси распространения, взаимная интерференция которых формирует максимум интенсивности, распространяющийся вдоль оси конуса с групповой скоростью  $U=c/\cos(\gamma)$ . Таким образом варьируя параметры аксикона в среде с нормальной дисперсией можно изменять величину рассогласования групповых скоростей накачки и стоксового импульса, что приводило к уменьшению порога ВКР генерации [4]. Еще одним важным преимуществом является подавление ФСМ. Это происходит в силу того, что после прохождения аксикона, взаимодействие парциальных плоских волн, составляющих Бесселев пучок, происходит неколлинеарно и ограничено узкой и протяженной бездифракционной областью вокруг оси конуса, что приводит к уменьшению ФСМ, так как длина взаимодействия, на которой излучение накачки подвергается ФСМ, составляет несколько десятков микрометров. Авторы так же приводят оценку подавления ФСМ при фокусировке аксиконом по сравнению с обычной линзой  $K=(IL)_{гаусс}/(IL)_{Бессель}=\pi D \sin \gamma / 2\lambda \sim 10^3$ , где  $D$  – диаметр пучка,  $\gamma$  – угол схождения конуса, и для увеличения коэффициента подавления стоит использовать пучки большего диаметра.

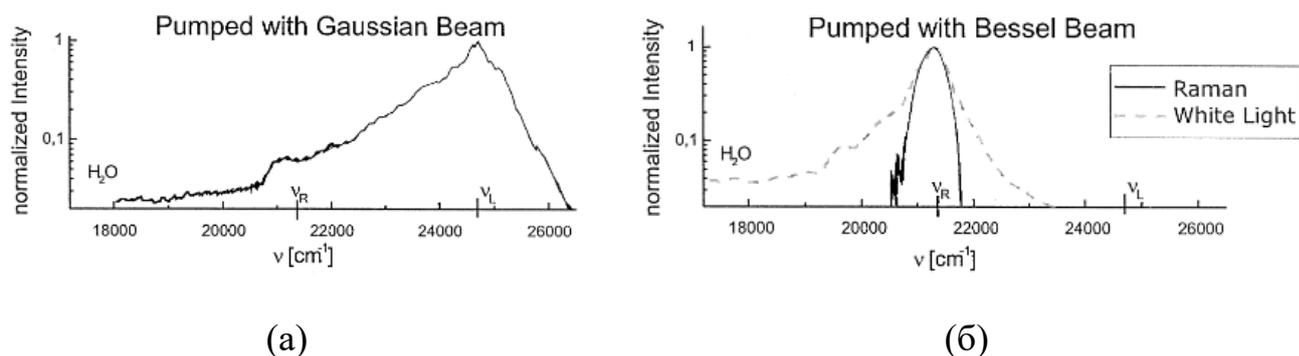


Рис. 1.9. Спектр излучения на выходе жидкостной ячейки: а) фокусировка гауссовым пучка; б) фокусировка бесселевым пучком (аксикон) [4].

На фоне известных работ по ВКР фемтосекундных импульсов, в особенности в твердых телах, выделяется работа [11]. В работе [11] в простой оптической схеме с одним проходом сфокусированного 300 фс лазерного импульса через кристалл ВВО (Рис. 1.10а) была достигнута высокая, до 20%, эффективность преобразования в стоксовую ВКР компоненту с частотным сдвигом  $925 \text{ см}^{-1}$ . При этом, максимальная эффективность достигалась в режиме значительного уширения спектра за счёт ФСМ, что во всех выше описанных работах отмечалось и рассматривалось как негативный эффект, подавляющий ВКР. Примеры спектров излучения, вышедшего из кристалла ВВО представлены на рис. 1.10б. В результатах эксперимента авторы приводят линейную зависимость уширения спектра от энергии лазерных импульсов, что согласуется с распространением сфокусированного лазерного излучения в отсутствие СФ, но оцененное значение нелинейного показателя преломления ВВО свидетельствует о мощности излучения превышающую критическую мощность СФ. Авторы полагают, что высокая эффективность ВКР преобразования связана с уширением спектра за счет ФСМ, которое формирует затравочное излучение со сдвигом соответствующим сильнейшей ВКР моде кристалла  $925 \text{ см}^{-1}$ , которое затем усиливается. В общем случае теоретическая возможность такого взаимодействия ВКР и ФСМ в одномерной геометрии при отсутствии других нелинейных

эффектов и дисперсии среды была рассмотрена в работе [67], однако на практике в кристаллах это не наблюдалось.

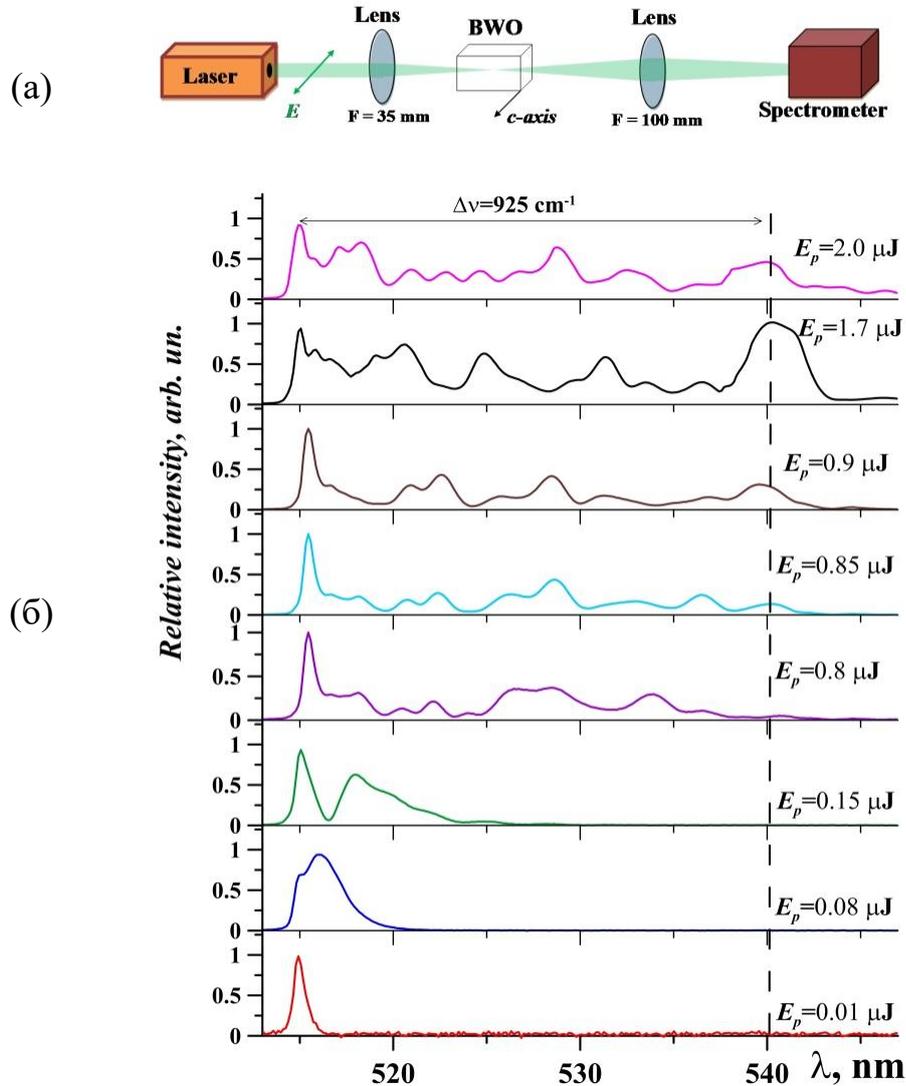


Рис. 1.10. а) Схема эксперимента по ВКР генерации в режиме значительного уширения спектра; б) Примеры спектров в зависимости от энергии [11].

Похожий эффект конструктивного взаимодействия эффектов ВКР и ФСМ, известный как солитонный сдвиг частоты [14,15], ранее наблюдался только в оптических волокнах. Этот эффект представляет собой постепенный сдвиг центральной частоты импульса в длинноволновую область спектра при распространении оптического солитона в среде с запаздывающей нелинейностью. В спектральном представлении этот эффект интерпретируется как ВКР-усиление

низкочастотной части спектра импульса за счёт его высокочастотной части [68]. Например, этот эффект наглядно продемонстрирован в газонаполненных волокнах [69] (Рис. 1.11). В этой работе для лазерного импульса с длиной волны 1030 нм реализовано постепенное уширение спектра при увеличении давления газа (азот), и при давлении 4,5 атм спектр уширился до 1730 нм (Рис. 1.11б). Используя спектральный фильтр для пропускания необходимой (длинноволновой) части спектра и последующей временной компрессией был получен импульс длительностью  $\sim 57$  фс (длительность импульса накачки 170 фс) с центральной длиной волн 1510 нм с эффективностью преобразования 8%.

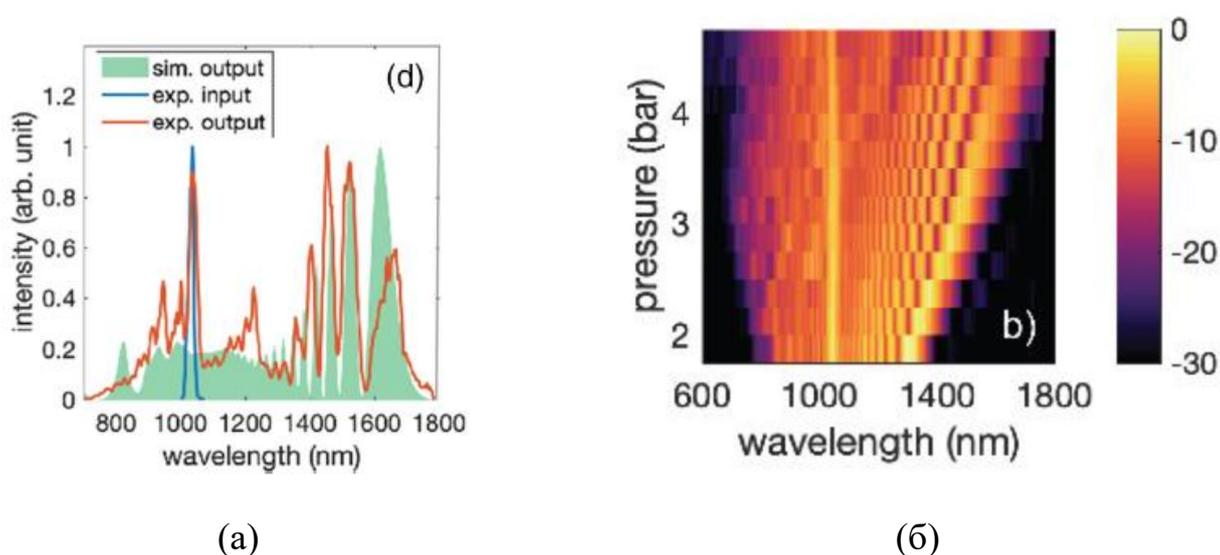


Рис. 1.11. (а) Спектры начального импульса и импульса прошедшего через волокно, полученные в эксперименте и расчётах; (б) Экспериментальная зависимость спектра от давления [69].

## 1.5 Выводы

В настоящее время активно разрабатываются различные схемы и методы эффективного ВКР преобразования ультракоротких лазерных импульсов для различных применений. Проблема заключается в том, что для фемтосекундных импульсов, длительность которых меньше или сопоставима с временем дефазировки колебаний среды  $T_2$ , коэффициент усиления существенно ослаблен из-за нестационарности рассеяния. При этом другие нелинейные эффекты,

характерные для фемтосекундных импульсов (СФ, нелинейное поглощение, ФСМ и другие), подавляют или ограничивают эффективность ВКР. На фоне известных работ в этом направлении выделяется работа [11], где в простой оптической схеме с одним проходом сфокусированного 300 фс лазерного импульса через кристалл BWO была достигнута высокая, до 20%, эффективность преобразования в режиме существенного уширения спектра из-за ФСМ. В этой работе предполагается, что аномально высокая эффективность преобразования в стоксовую компоненту связана с конструктивным взаимодействием эффектов ВКР и ФСМ. Однако, несмотря на то, что похожий эффект, известный как солитонный сдвиг частоты, наблюдался в оптических волокнах, в кристаллах ранее конструктивное взаимодействие эффектов ВКР и ФСМ не наблюдалось. Поэтому для развития методики эффективного ВКР преобразования фемтосекундных лазерных импульсов необходимо определение физических процессов, которые приводят к аномально высокой эффективности ВКР преобразования фемтосекундных импульсов в кристалле BWO в режиме значительного уширения спектра.

## Глава 2. Экспериментальная часть

### 2.1 Лазерный комплекс

Экспериментальная работа проводилась с использованием лазерного комплекса (Satsuma, Amplitude Systemes), который состоял из волоконного фемтосекундного лазера на ионах иттербия и генератора гармоник на основе нелинейного кристалла ВВО (Рис. 2.1). Волоконный лазер обладал следующими характеристиками: центральная длина волны 1030 нм, длительность импульсов 200-300 фс, энергия в импульсе до 10 мкДж в TEM<sub>00</sub>-режиме. Акустооптический модулятор, встроенный в комплекс, позволял изменять частоту следования импульсов от 1 Гц (режим одиночных импульсов) до 2 МГц. С помощью генератора гармоник осуществлялась генерация второй гармоники с параметрами: центральная длина волны 515 нм, длительность импульсов 300 фс, энергия в импульсе до 3,4 мкДж.

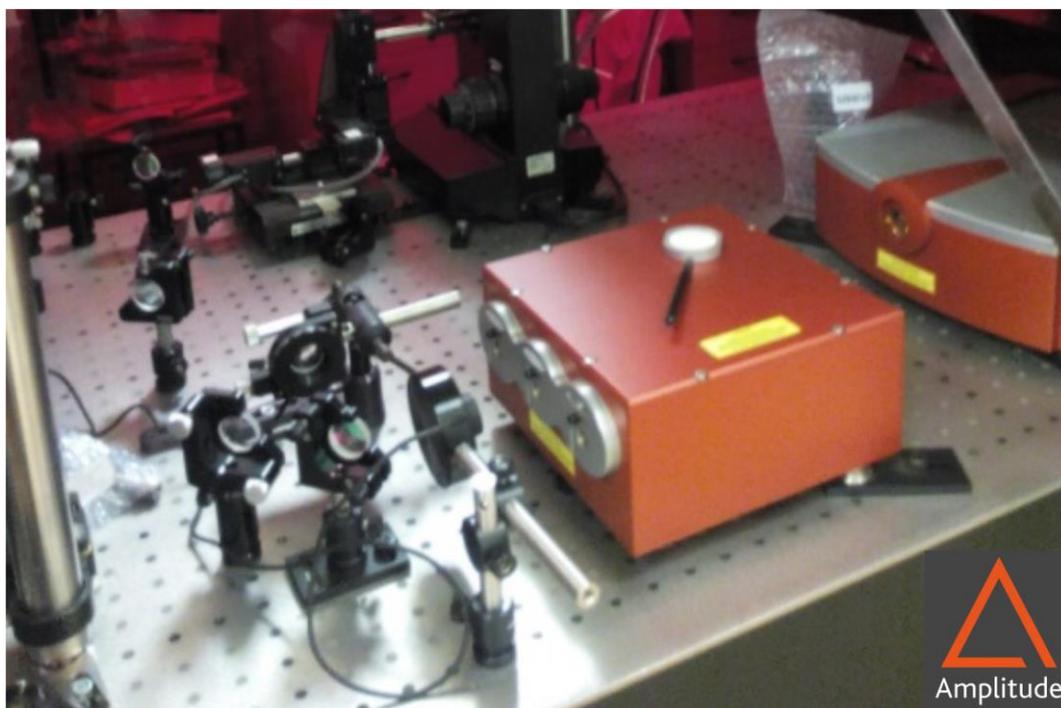


Рис. 2.1. Лазерный комплекс Satsuma и генератор гармоник

С помощью плавной перестройки компрессора длительность импульсов могла изменяться от 0,3 пс до 17 пс. Автокорреляционные функции при различном расстоянии между решетками приведены на рис. 2.2.

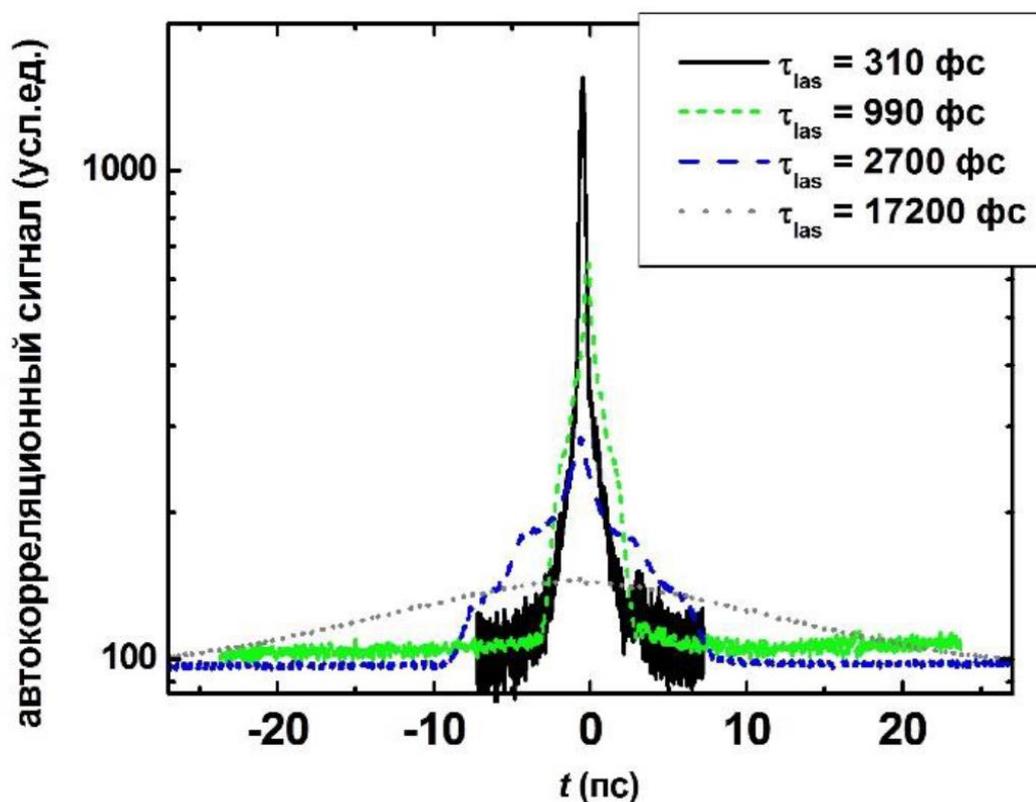


Рис. 2.2. Автокорреляционные функции ПГ лазерного комплекса при различных расстояниях между решетками.

## 2.2 Приборы

Для измерений спектральных характеристик излучения использовался спектрометр Avesta ASP-150FT, имеющий спектральный диапазон области регистрации от 190 нм до 1100 нм и спектральное разрешение до 0,03 нм. Высокая ширина области измерений достигается за счет подвижной дифракционной решетки, смещающаяся микрометрическим винтом. Область регистрации при измерении спектров на второй гармоники лазерного комплекса составляла от 390 нм до 880 нм.

Энергия лазерных импульсов измерялась двумя способами: 1) пироэлектрическим измерителем энергии Ophir PD10-C (диапазон энергии:

от 1 нДж до 13 мкДж; спектральный диапазон: от 190 нм до 1100 нм);  
 2) рассчитывалась по значениям средней мощности излучения, измеренной с помощью термоэлектрического датчика Ophir 3A (диапазон мощности: от 10 мкВт до 3 Вт; спектральный диапазон: от 0,19 мкм до 20 мкм).

Для измерения поперечного профиля излучения использовалась ПЗС камера Spiricon SP620U. Разрешение 1600×1200 пикселей, размер пикселя 4,4 мкм, спектральный диапазон от 190 до 1100 нм.

### 2.3 Кристалл вольфрамата бария $BaWO_4$

Кристалл  $BaWO_4$ , имеющий структуру шеелита, в конце 1990-х годов привлек к себе внимание как материал, перспективный для ВКР преобразования лазерных импульсов [70]. В спектре спонтанного КР кристалла  $BaWO_4$  можно идентифицировать тринадцать КР-активных линий [71], среди которых следует отметить моду  $\nu_1(A_g)$  с частотой  $926\text{ см}^{-1}$  (Рис. 2.3). Ширина этой линии составляет  $1,6\text{ см}^{-1}$ , что соответствует времени дефазировки  $T_2 = 6,6\text{ пс}$ .

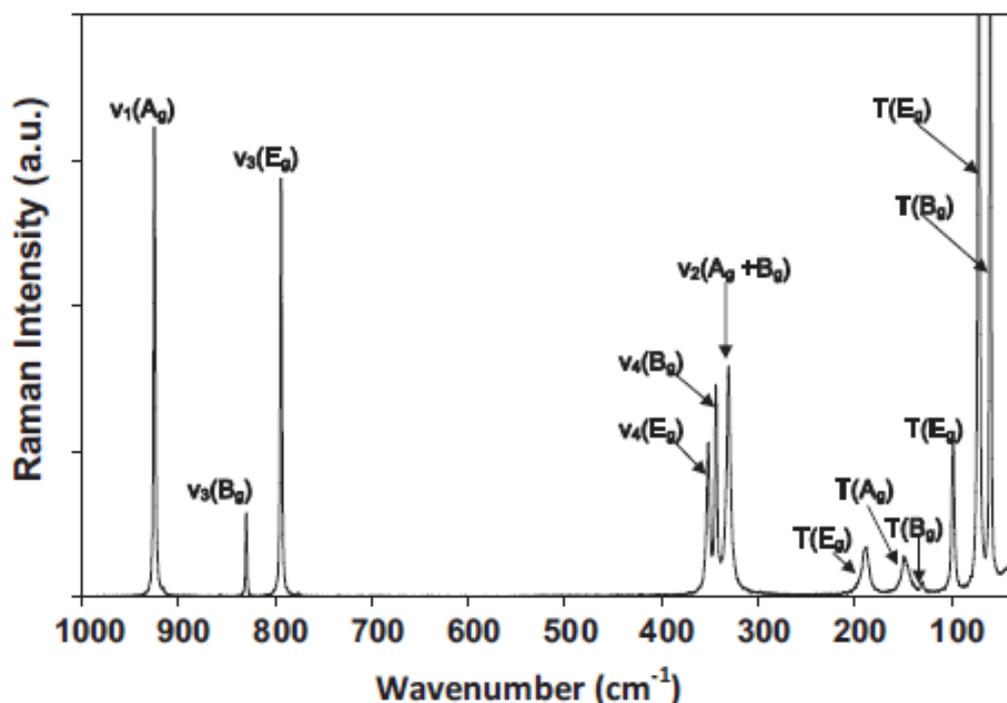


Рис. 2.3. Спектр спонтанного КР кристалла  $BaWO_4$  [71].

Коэффициент усиления для этой линии, измеренный на основной ( $\lambda=1064$  нм), второй ( $\lambda=532$  нм), и третьей ( $\lambda=355$  нм), гармониках Nd:YAG лазера составил 8,5 см/ГВт [72], 36 см/ГВт [72] и 38 см/ГВт [73], соответственно. Таким образом, кристалл BWO сочетает в себе одновременно высокое значение как пиковой, так и интегральной интенсивностей линии КР, что позволяет его эффективно использовать для ВКР как в стационарном, так и нестационарном режимах [70]. Уже в первых экспериментах по ВКР с накачкой 12-нс импульсами основной гармоники Nd:YAG лазера была получена эффективность  $\sim 20\%$  в 31-мм образце BWO, которая оказалась сопоставима с наиболее эффективным для наносекундных импульсов кристаллом нитрата бария ( $\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$ ) [72]. В экспериментах по ВКР 35-пс импульсов второй гармоники Nd:YAG лазера в двухпроходной схеме через кристалл BWO продемонстрирована эффективность ВКР до 85%, которая близка к максимально возможной, то есть 100% квантовой эффективности [59].

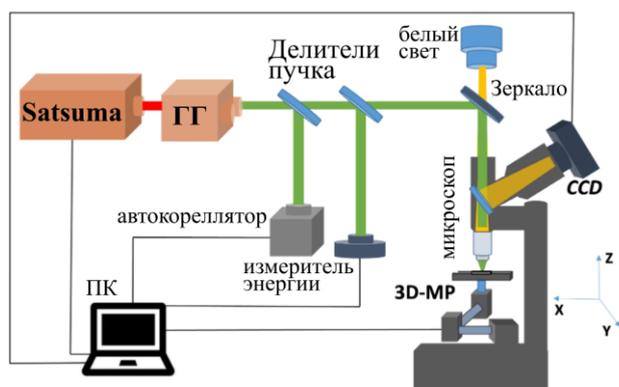
Необходимо отметить, что кристалл BWO не является гигроскопичным, обладает высокой теплопроводностью и твердостью, а также широкими диапазоном прозрачности 0,26-5 мкм [74] и шириной запрещенной зоны 5,28 эВ [75]. Также необходимо отметить, что кристалл BWO является одноосным и имеет следующие зависимости показателя преломления для обыкновенной и необыкновенной волн от длины волны [76]:

$$\begin{aligned} n_o^2(\lambda) &= 3,3550 + \frac{0,01738}{\lambda^2 - 0,08176} - 0,0965\lambda^2 \\ n_e^2(\lambda) &= 3,3460 + \frac{0,01770}{\lambda^2 - 0,08197} - 0,0962\lambda^2 \end{aligned} \quad (2.1)$$

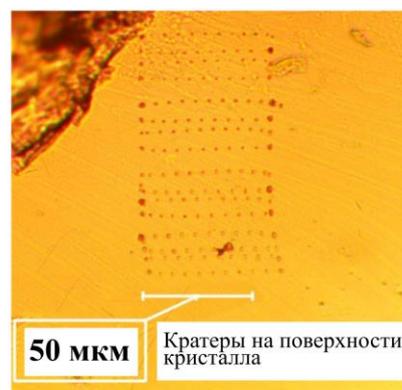
Данные зависимости приводят к следующим значениям дисперсий на длинах волн используемых в экспериментах:  $\text{GVD}(515 \text{ нм})=306 \text{ фс}^2/\text{мм}$ ,  $\text{GVD}(1030 \text{ нм})= -43 \text{ фс}^2/\text{мм}$ . Для 300 фс импульса накачки можно пренебречь увеличением длительности в 8 мм кристалле, который использовался в экспериментах. Параметр группового разбегания накачки и стоксовой

компоненты  $d = v_{гр.нак.}^{-1} - v_{гр.сток.}^{-1}$  на длинах волн используемых в экспериментах:  $d(515 \text{ нм}) = 50 \text{ фс/мм}$ ,  $d(1030 \text{ нм}) = -0,1 \text{ фс/мм}$ . Нелинейный показатель преломления кристалла ВВО измерялся в работе [77] методом Z-сканирования с применением лазерных импульсов длительностью 1 пс, который составил  $\sim 0,8 \times 10^{-15} \text{ см}^2/\text{Вт}$  и  $1,7 \times 10^{-15} \text{ см}^2/\text{Вт}$  на длине волны 790 нм и 395 нм, соответственно.

Экспериментальные образцы кристалла вольфрамата бария были выращены в Институте общей физики РАН методом Чохральского из расплава, из платиновых тиглей в атмосфере воздуха. Подробно методика роста описана в [76]. Нам были предоставлены два кристалла с различным содержанием примесей. Кристалл с большим количеством примесей обладал желтым окрасом, а с меньшим был более прозрачным. Для данных кристаллов были определены пороги оптического разрушения в диапазоне длительностей 0,3 до 10 пс, и на длинах волн 515 нм и 1030 нм. Схема эксперимента представлена на рис. 2.4а.



(а)



(б)

Рис. 2.4. а) Оптическая схема эксперимента по исследованию оптического разрушения поверхности кристалла ВВО; б) Серия кратеров на поверхности кристалла ВВО.

Часть излучения использовалась для контроля длительности и энергии лазерного импульса, а оставшаяся часть фокусировалась на поверхность

кристалла в пятно радиусом  $\sim 1,7$  мкм и  $\sim 2,5$  мкм (уровень  $1/e$ ) на длине волны 515 и 1030 нм, соответственно. Для получения серии кратеров на поверхности кристалла лазерный луч перемещался таким образом, чтобы каждый последующий импульс попадал на свободное от повреждений место (Рис. 2.4б). Затем с помощью оптического микроскопа измерялись размеры кратеров.

Пороговое значение плотности энергии разрушения для пучка с гауссовым профилем интенсивности определялось как:

$$F_{\text{пор.разр.}} = \frac{E_{\text{пор.разр.}}}{\pi w_0^2}, \quad (2.2)$$

где  $E_{\text{пор.разр.}}$  – пороговое значение энергии при которой происходит разрушение при фокусировке в пятно радиусом  $w_0$  (уровень  $1/e$ ). Для определения  $w_0$  и  $E_{\text{пор.разр.}}$  выполнялась линейная аппроксимация зависимости квадрата радиуса кратера от логарифма энергии ( $R^2 - \ln E$ ).

На рис. 2.5 представлены измеренные зависимости порогов оптического разрушения кристаллов (плотность энергии и интенсивность) для лазерных импульсов на длине волны 515 нм от длительности импульса. При длительностях импульса от 0,6 пс до 1,6 пс порог оптического разрушения поверхности кристалла ВВО в единицах плотности энергии не изменялся и составил  $4,2 \pm 0,5$  Дж/см<sup>2</sup> и  $3,5 \pm 0,5$  Дж/см<sup>2</sup> для прозрачного и окрашенного кристаллов, соответственно. Небольшие различия порогов разрушения могут быть связаны с более высоким оптическим качеством прозрачного кристалла. При уменьшении длительности импульса до 0,3 пс, порог оптического разрушения резко уменьшился до  $2,6 \pm 0,4$  Дж/см<sup>2</sup> и  $2,2 \pm 0,4$  Дж/см<sup>2</sup> для прозрачного и окрашенного кристалла соответственно, что обусловлено возросшим вкладом многофотонного поглощения в ионизацию из-за увеличения интенсивности излучения (8 ТВт/см<sup>2</sup>).

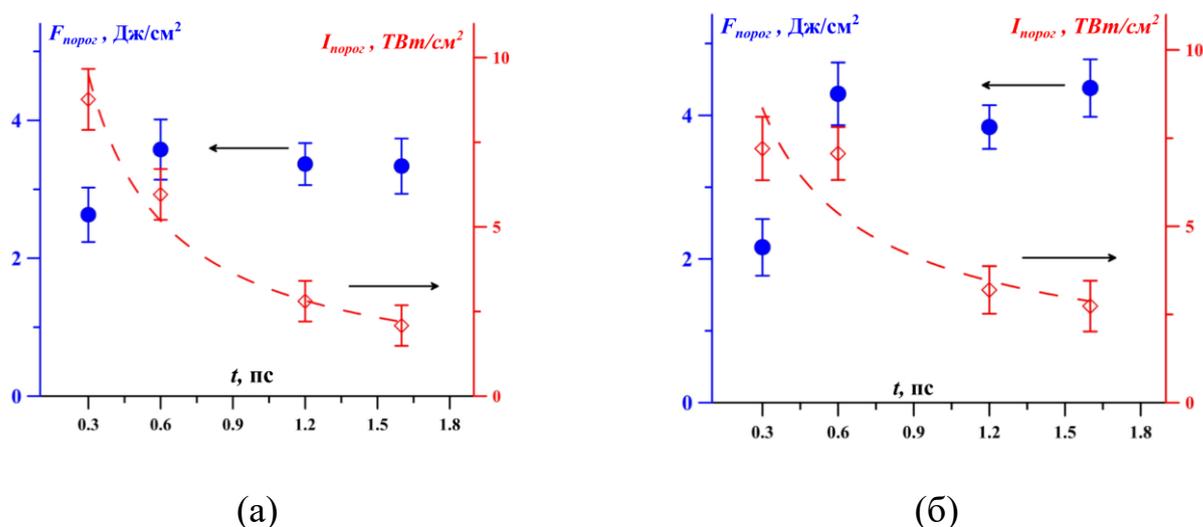


Рис. 2.5. Зависимость порога оптического разрушения (флюенс и интенсивность) поверхности от длительности импульса на длине волны 515 нм для:  
а) окрашенного кристалла; б) прозрачного кристалла.

Зависимость порога оптического разрушения на длине волны 1030 нм от длительности импульса имеет другой характер (Рис. 2.6). Для окрашенного кристалла, порог оптического разрушения в единицах плотности энергии практически не зависел от длительности импульса и равнялся  $1,4 \pm 0,4$  Дж/см<sup>2</sup> (Рис. 2.6а). Для прозрачного кристалла, порог оптического разрушения уменьшался с  $3,0 \pm 0,4$  Дж/см<sup>2</sup> до  $1,3 \pm 0,3$  Дж/см<sup>2</sup> при уменьшении длительности от 1,6 пс до 0,3 пс (Рис. 2.6б). Данное уменьшение может быть связано с многофотонным поглощением. Неожиданным результатом является то, что порог оптического разрушения на длине волны 1030 нм оказался примерно в 2 раза меньше, чем для излучения с длиной волны 515 нм, что не может быть связано с межзонным поглощением. Возможной причиной может являться резонансное поглощение на микро-нанодфектах поверхности, которое сложно зарегистрировать при измерении поглощения на всей длине кристалла. Подтверждением данного предположения может являться наличие сколов поверхности окрашенного кристалла при воздействии излучением на длине волны

1030 нм, которые не наблюдались для прозрачного кристалла и при воздействии на кристаллы излучением на длине волны 515 нм.

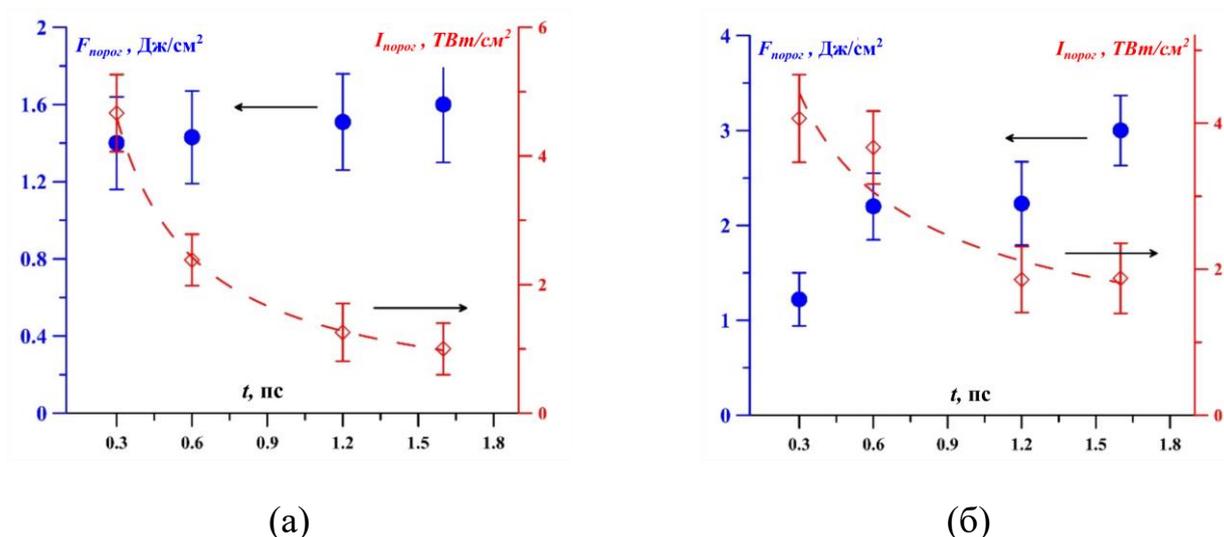


Рис. 2.6. Зависимость порога оптического разрушения (флюенс и интенсивность) поверхности от длительности импульса на длине волны 1030 нм для:  
а) окрашенного кристалла; б) прозрачного кристалла.

В последующих экспериментах исследовался прозрачный кристалл с меньшим количеством примесей длиной 8 мм, для которого с помощью КР спектрометра Confotec 350-MR были измерены спектры спонтанного комбинационного рассеяния для параллельной и перпендикулярной ориентации поляризации излучения по отношению к оптической  $c$ -оси кристалла (Рис. 2.7), который хорошо согласуется с [71]. Отметим, что помимо сильнейшей моды  $\nu_1=925 \text{ см}^{-1}$  наблюдаются и другие  $332 \text{ см}^{-1}$ ,  $346 \text{ см}^{-1}$ ,  $795 \text{ см}^{-1}$ ,  $831 \text{ см}^{-1}$ . Моды со сдвигом менее  $50 \text{ см}^{-1}$  не наблюдались, поскольку излучения в соответствующем спектральном диапазоне отсекалось фильтром для возбуждающего излучения.

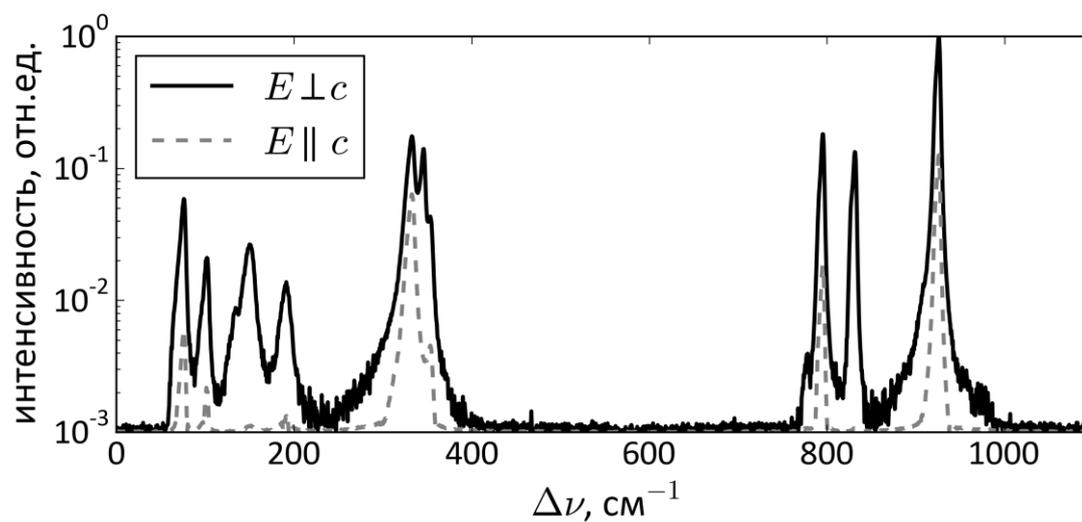


Рис. 2.7. Спектр спонтанного комбинационного рассеяния кристалла вольфрамата бария для двух ориентаций по отношению к оси кристалла: параллельная и перпендикулярная.

### Глава 3. Уширение спектра сфокусированных субпикосекундных импульсов в плавленом кварце

В третьей главе представлены результаты исследования уширения спектра, вызванного эффектом ФСМ, сфокусированного субпикосекундного импульса при около критической мощности СФ в плавленом кварце в схеме, при которой наблюдалась аномально высокая эффективность ВКР на моде  $\nu_1=925\text{ см}^{-1}$  [11]. Обнаружено три режима уширения спектра: 1) линейный, когда влияние СФ мало, и зависимость уширения спектра от энергии импульса имеет линейный характер; 2) переходной, когда СФ приводит к уменьшению размера пучка в фокальной плоскости без регистрируемого нелинейного поглощения, что приводит к резкому росту уширения спектра за счет ФСМ; 3) нелинейный режим, филаментация, характеризующийся близкой к линейной зависимостью спектрального уширения за счет ФСМ от энергии импульса накачки.

#### 3.1 Схема эксперимента

В работе [11] режим аномально высокой эффективности ВКР генерации достигался при фокусировке в толщину кристалла и значительном уширении спектра за счет ФСМ. Исходя из значения нелинейного показателя преломления, приведенного в работе, мощность излучения превышала критическую мощность СФ, и поэтому СФ может приводить к изменению пространственной формы пучка и как следствие к отклонению от линейной зависимости уширения спектра от энергии лазерных импульсов. Поэтому для исследования взаимного влияния ФСМ и СФ в такой же схеме было исследовано уширение спектра в плавленом кварце. Данный материал был выбран, так как значения нелинейностей и их природа хорошо изучены [45,78–82]. Излучение второй гармоники лазерного комплекса фокусировалось линзой с фокусным расстоянием  $f=40\text{ мм}$  в образец плавленого кварца длиной  $l=10\text{ мм}$ , так чтобы геометрический фокус находился в центре образца (Рис. 3.1). За образцом с помощью второй линзы ( $f=90\text{ мм}$ )

излучение фокусировалось на входную щель спектрометра (ASP-150 FT), которое ослаблялось посредством отражений от клиньев (на схеме не указаны). Проведены серии измерений спектральных и энергетических характеристик излучения, прошедшего через образец, в зависимости от энергии падающего лазерного импульса, которая изменялась с помощью отстройки кристалла второй гармоники от фазового синхронизма. Также за образцом кварца устанавливалась ПЗС-камера (Spiricon SP-620U) для наблюдения изменения пространственного распределения излучения.

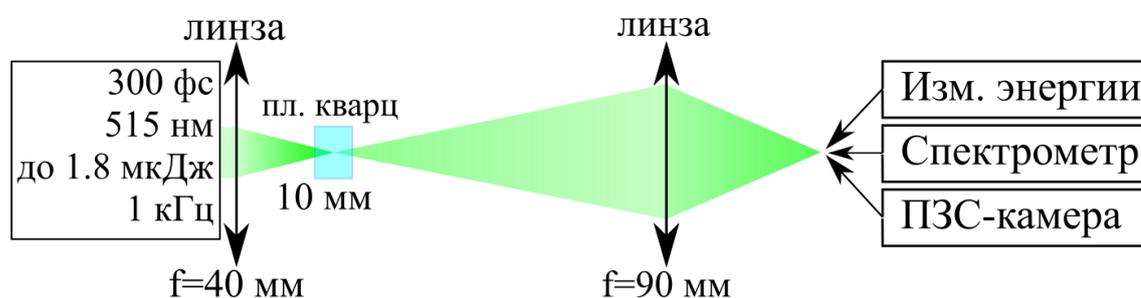


Рис. 3.1. Оптическая схема эксперимента.

### 3.2 Результаты эксперимента

Примеры измеренных спектров импульса и профилей интенсивности пучка за образцом представлены на рис. 3.2 для нескольких значений энергии импульса накачки. С увеличением энергии импульса накачки наблюдалось практически симметричное уширение спектра обусловленное ФСМ. При энергии более 0,3 мкДж радиус пучка уменьшался, что вызвано действием СФ. При энергии более 0,5 мкДж наблюдалось увеличение отношения амплитуды сигнала на периферии пучка к центральной части (формирование пьедестала). Появление пьедестала связано с плазмообразованием, вызывающим рассеяние излучения. Профиль пучка при энергии более 0,5 мкДж соответствует типичным профилям излучения в режиме филаментации (нелинейная фокусировка) [83].

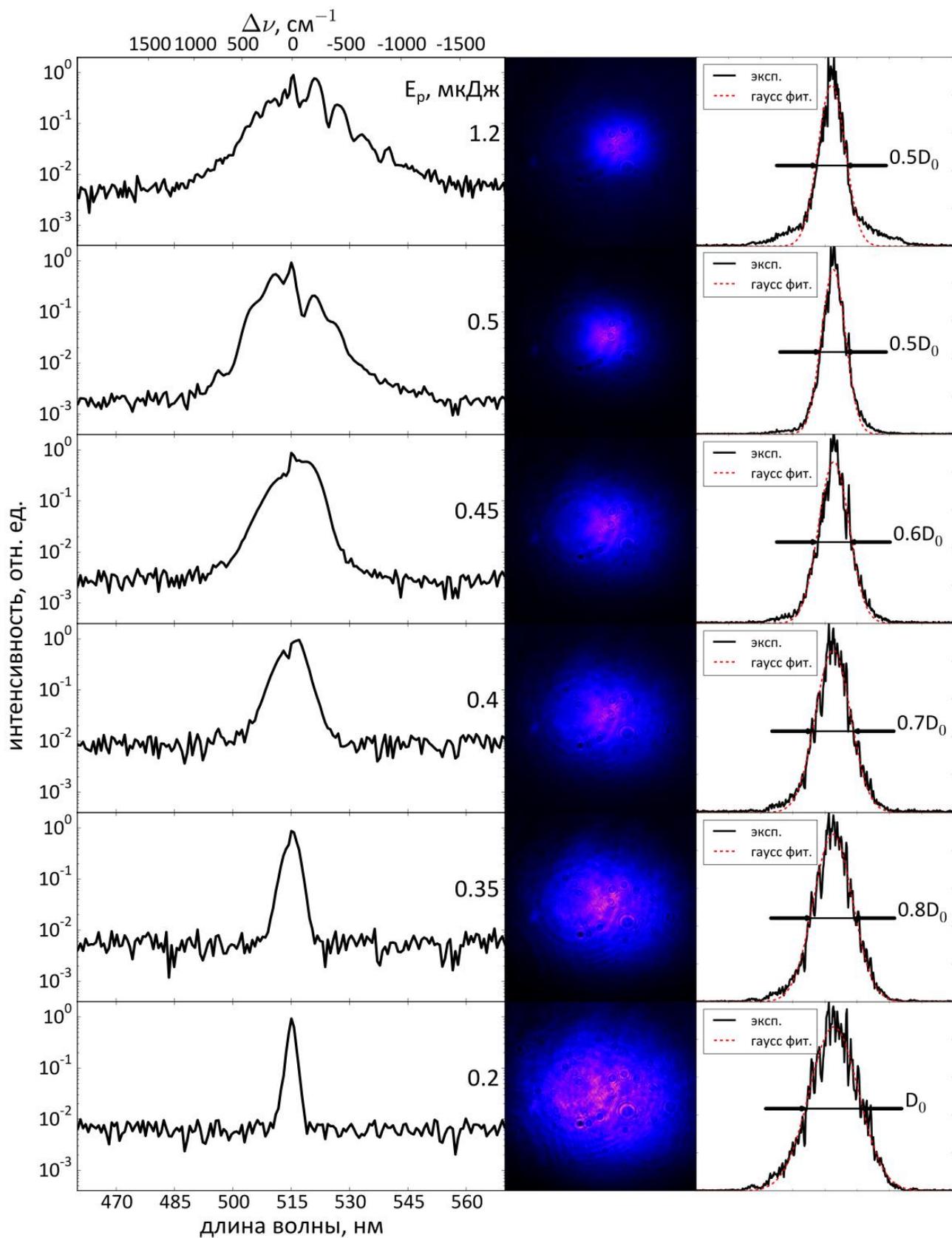


Рис. 3.2. Спектр и профили излучения за образцом кварца при различных энергиях.

Уширение спектра в стоксовую и антистоксовую области в зависимости от энергии лазерного импульса, падающего на кристалл, представлены на рис. 3.3а. Энергия лазерного импульса прошедшего через образец измерялась одновременно с измерениями спектра импульса, и ее зависимость от энергии импульса накачки показана на рис. 3.3б. На рис. 3.3а можно выделить три области с различным характером зависимости от энергии импульса накачки. Первая соответствует диапазону энергий от 0 до 0,3 мкДж и соответствует случаю линейного распространения лазерного импульса, который описывается геометрической оптикой. Регистрируемое уширение спектра наблюдалось при энергии более 0,2 мкДж и имело линейный характер при увеличении энергии импульса накачки, что хорошо согласуется с теорией ФСМ [40]. Вторая область (от 0,3 мкДж до 0,5 мкДж) характеризуется резким увеличением ширины спектра, что свидетельствует об увеличении интенсивности излучения в образце из-за активации дополнительной нелинейной (само-)фокусировки, что подтверждается уменьшением радиуса пучка при увеличении энергии (Рис. 3.2). Стоит отметить, что в данном диапазоне энергий не было зарегистрировано нелинейное поглощение, и образование плазмы соответственно. Таким образом, во второй области нелинейная подфокусировка увеличивает интенсивность излучения, что приводит к усилению уширения спектра за счет ФСМ, но интенсивности недостаточно для появления значительного нелинейного поглощения и появления плазмы, влияющей на лазерный импульс. Третья область (энергия более 0,5 мкДж) характеризуется близкой к линейной зависимостью уширения спектра с увеличением энергии, которое происходит при мощности излучения выше критической мощности СФ. При мощности выше критической, СФ преобладает над дифракцией и, соответственно, резко возрастает интенсивность излучения, что приводит к сильному нелинейному поглощению и образованию плазмы и последующему рассеянию на ней. Совместное действие этих эффектов приводит к стабилизации интенсивности излучения и образованию филамента. Процесс филаментации излучения хорошо исследован [84,85], однако стоит отметить, что

наклон прямых на участках 1 (линейный режим) и 3 (нелинейный режим) (Рис. 3.3а) совпадают в пределах погрешности измерений. Это не является заранее очевидным фактом, так как в нелинейном режиме существенно изменяется радиальное и продольное распределение интенсивности излучения. В итоге, наклон зависимости уширения спектра за счет ФСМ от энергии лазерного импульса накачки можно использовать для определения нелинейного показателя преломления в режиме филаментации сфокусированного лазерного импульса, если вклад других нелинейных эффектов, таких как самоукручение [86], незначителен. Однако режим филаментации очень чувствителен к начальной энергии импульса, что приводит к увеличению ошибки измерений из-за нестабильности лазерной установки.

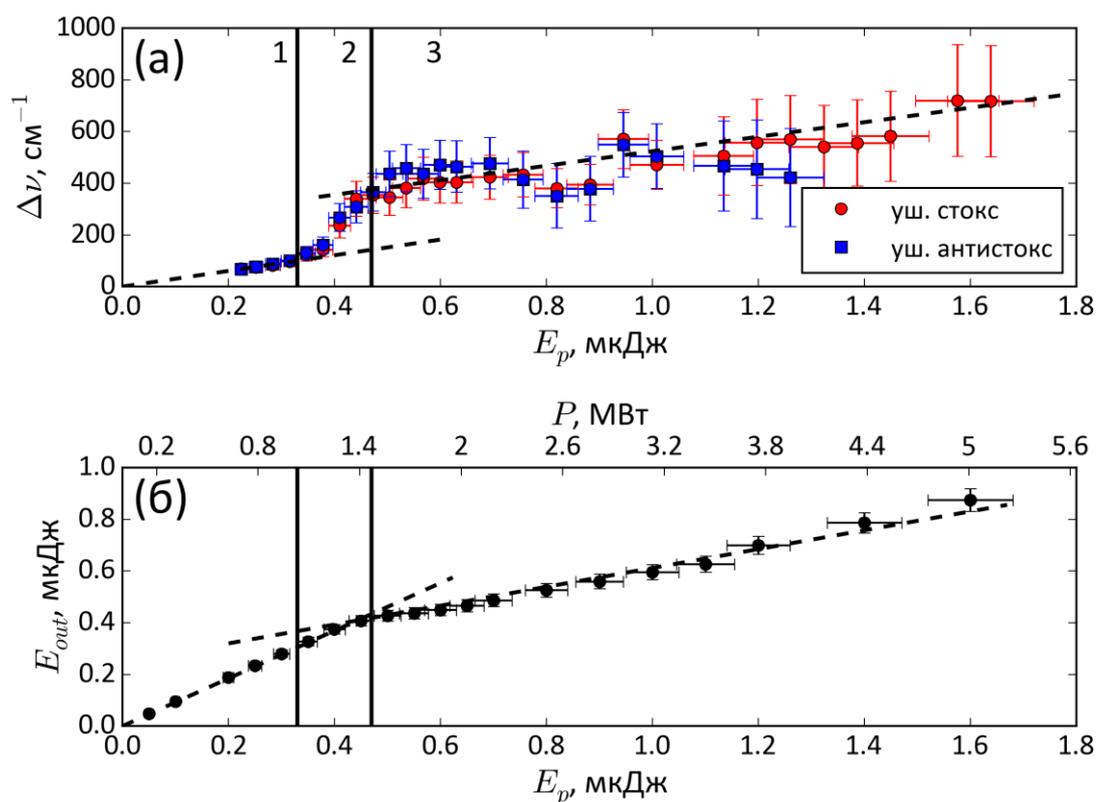


Рис. 3.3. а) Уширение спектра в стоксовую и антистоксовую области и пропускание образца. Кружки – уширение в стоксовую область, квадраты – уширение в антистоксовую область. б) Пропускание образца в зависимости от энергии.

Для проверки экспериментальных результатов было проведено численное моделирование прохождения сфокусированного лазерного пучка и соответствующее уширение спектра за счет ФСМ при распространении в образце плавленого кварца.

### 3.3 Расчетная модель

Распределение интенсивности задавалось гауссовой зависимостью по времени и радиусу, в силу  $TEM_{00}$  – моды лазера:

$$I(r,t) = I_0 \exp(-2r^2 / r_0^2) \exp(-4 \ln 2 t^2 / T_{FWHM}^2), \quad (3.1)$$

где  $r_0=0,85$  мм – радиус пучка по уровню  $1/e^2$ ,  $T_{FWHM}=0,3$  пс – длительность импульса (полная ширина на полувысоте),  $I_0$  – пиковая интенсивность, которая вычисляется по формуле:

$$I_0 = E / ((\pi r_0^2 / 2)(T_{FWHM} \sqrt{\pi / \ln 16})). \quad (3.2)$$

При линейном режиме распространения (в отсутствии СФ), когда геометрический фокус находится в центре образца ( $z=0$ ), зависимость интенсивности от положения внутри образца задается следующим образом:

$$I_0(z) = \frac{I_{\max}}{1 + (z / z_{dif})^2}, \quad (3.3)$$

где  $z_{dif}=\pi n w_0^2/\lambda$  дифракционная длина для пучка с радиусом  $w_0$  (уровень  $1/e^2$ ) в плавленом кварце.

В нелинейном режиме, СФ приводит к дополнительному поджатию пучка. В воздухе, влиянием СФ можно пренебречь, так как критическая мощность СФ в воздухе ( $P_{cr} \sim 10^9$  Вт [87], что соответствует энергии импульса 0,4 мДж для установки, используемой в эксперименте) намного больше мощности лазерных импульсов в эксперименте. Таким образом, после прохождения линзы ( $f=40$  мм) и расстояния  $z=36,43$  мм (чтобы линейный фокус находился в центре образца), размер пучка и радиус кривизны волнового фронта на передней грани кристалле будут равны:

$$\begin{aligned}
 w &= r_0 \sqrt{(1 - z/f)^2 + (z/z_d)^2} \\
 R &= z_d \frac{(1 - z/f)^2 + (z/z_d)^2}{z/z_d - z(1 - z/f)/f}
 \end{aligned}
 \tag{3.4}$$

где  $z_d = \frac{\pi r_0^2}{\lambda}$  – дифракционная длина для начального пучка. Для последующего описания распространения воспользуемся подходом матричной ( $ABCD$  матрицы) оптики с начальным комплексным радиусом кривизны:

$$q_0 = \left( \frac{1}{R} + i \frac{\lambda}{\pi w^2} \right)^{-1}.
 \tag{3.5}$$

Преломление на границе воздух/плавленый кварц соответствует  $q_{ref} = n q_0$ , и для вычисления нового радиуса кривизны волнового фронта и радиуса пучка:

$$R = \operatorname{Re} \left( \frac{1}{q_{ref}} \right)^{-1}; \quad r = \sqrt{\frac{\lambda}{\pi n} \frac{1}{\operatorname{Im} \left( \frac{1}{q_{ref}} \right)}}.
 \tag{3.6}$$

Нелинейный фазовый набег при распространении в плавленом кварце на расстояние  $dz$  равен  $\varphi_{nl} = k_0 n_2 I dz$ , где  $k_0 = 2\pi/\lambda$ ,  $n_2$  – нелинейный показатель преломления. Зависимость интенсивности излучения от радиальной координаты приводит к СФ. Вблизи оси распространения экспоненциальный множитель, отвечающий за радиальное распределение набег фазы, можно разложить в ряд, и тогда в первом порядке малости нелинейный фазовый набег, зависящий от радиальной координаты, будет иметь вид  $\varphi_{nl} = k_0 n_2 I_0 \exp(-4 \ln 2 t^2 / T_{FWHM}^2) \frac{2r^2}{w^2} dz$ ,

что совпадает с фазой  $\varphi_{линза} = \frac{k r^2}{2F}$  вносимой собирающей линзой с фокусным

расстоянием  $F = \frac{n w^2}{4n_2 I_0 dz}$ . Таким образом, заменим влияние СФ эффективными

линзами (Рис. 3.4). Разобьем длину образца на шаги  $dz$  так, чтобы нелинейный набег фазы не превышал  $\pi/100$ . Для каждого шага получим следующую матрицу

распространения  $\begin{pmatrix} A & B \\ C & D \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 1 - \frac{dz}{F} & dz \\ -\frac{1}{F} & 1 \end{pmatrix}$ , и новый комплексный радиус кривизны

вычисляется следующим образом  $q_{out} = \frac{Aq_{in} + B}{Cq_{in} + D}$ .

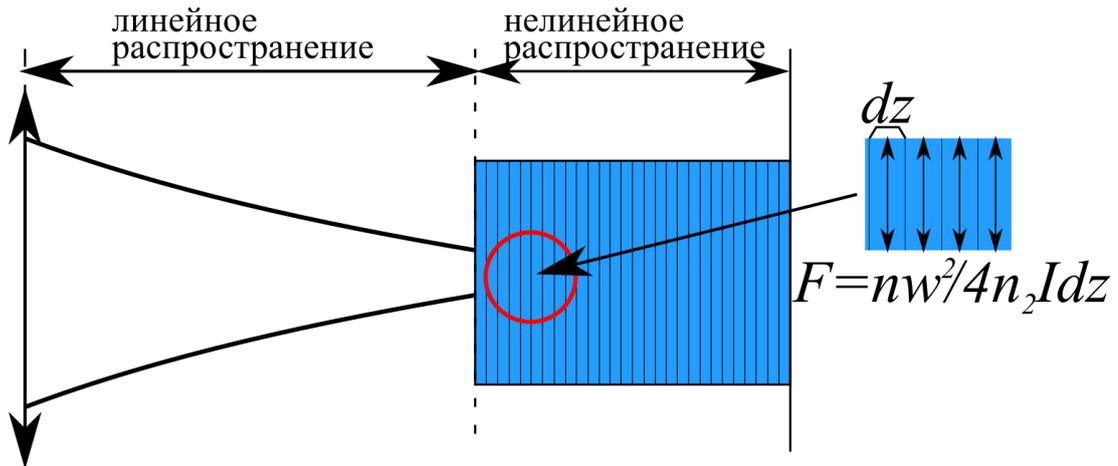


Рис. 3.4. Визуализация модели распространения внутри образца;

При мощности излучения выше критической мощности СФ, СФ преобладает над дифракцией и возникает коллапс пучка на некотором расстоянии, поэтому описывать изменение формы пучка в рамках такой модели можно только до координаты коллапса. Положение коллапса определялось достижением интенсивности  $\sim 10^{13}$  Вт/см<sup>2</sup>, которая соответствует интенсивности излучения в филаменте в плавленом кварце [88,89]. Проверка данной модели для коллимированного пучка, показала, что она даёт заниженное значение критической мощности СФ по сравнению с формулой (1.7), поэтому осуществлена корректировка модели. Для согласования модели с формулой (1.7)

эффективное фокусное расстояние должно равняться  $F = \frac{nw^2}{4n_2I_0z} k_{eff}$ , где  $k_{eff} = 3,77$

(Рис. 3.5). Отметим, что данный коэффициент не зависит от диаметра коллимированного пучка, линейных и нелинейных показателей преломления среды.

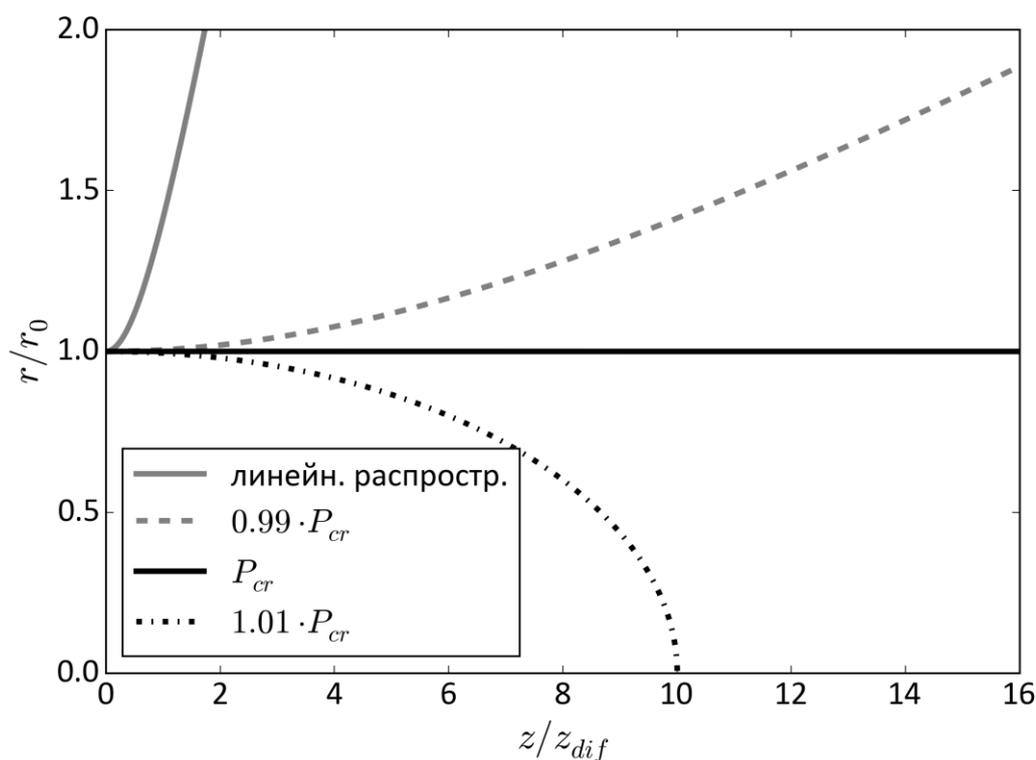


Рис. 3.5. Распространение коллимированного пучка при различных мощностях.

Как дополнительная проверка для сфокусированных пучков было проведено сравнение данного подхода с результатами работы [90], где представлено выражение, связывающее энергию импульса и пиковую интенсивность сфокусированного лазерного луча с учетом влияния СФ:

$$E_p = \frac{I_{\max} \tau \lambda^2}{\pi(NA)^2 + I_{\max} \lambda^2 / P_{cr}}. \quad (3.7)$$

Решив данное равенство в предположении неизвестной интенсивности, получим зависимость максимальной интенсивности от энергии лазерного импульса:

$$I_{\max} = \frac{E_p \pi(NA)^2}{\lambda^2 (\tau - E_p / P_{cr})}. \quad (3.8)$$

Зависимость интенсивности в фокусе пучка ( $NA=0,021$ ) от энергии импульса накачки, рассчитанная методом матричной оптики (линия 1) и с помощью

формулы (3.8) (линия 2), представлена на рис. 3.6, где наблюдается хорошее согласие двух методов. На рис. 3.6 приведена так же зависимость интенсивности в фокусе от энергии для случая линейного распространения (линия 3), что свидетельствует о неприменимости геометрической оптики для определения интенсивности излучения при мощностях лазерных импульсов около критической мощности СФ.

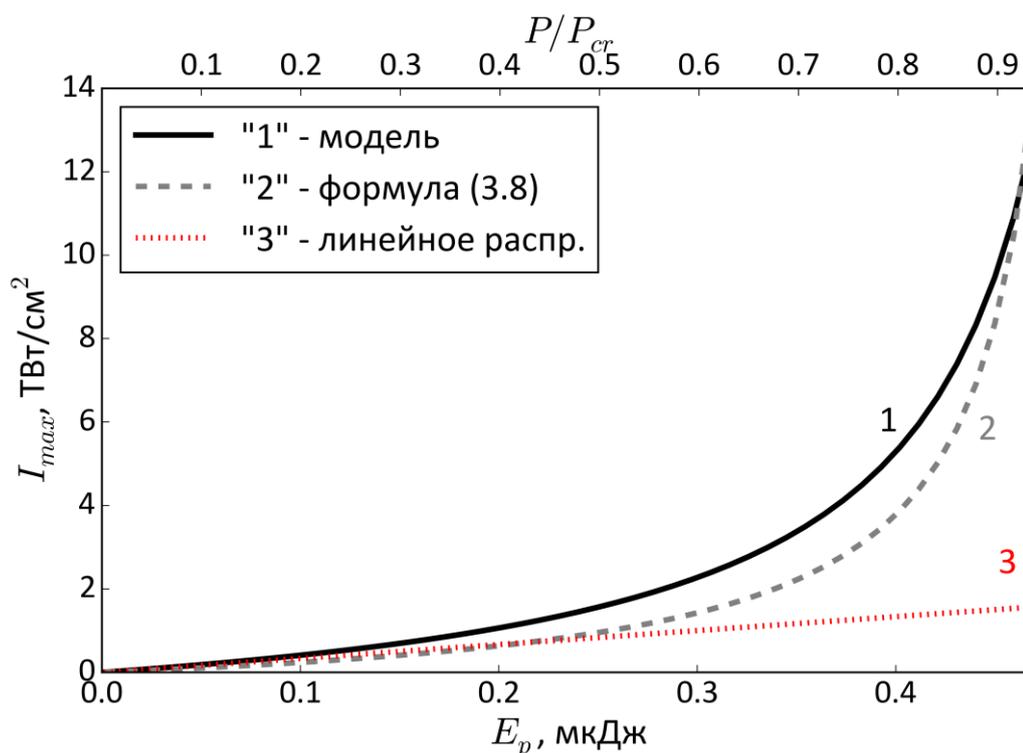


Рис. 3.6. Зависимость максимальной интенсивности от энергии лазерных импульсов в плавленом кварце при наличии фокусировки: 1 – модель (сплошная кривая); 2 – формула (3.8); 3 – линейный режим.

Используя разработанную модель, была рассчитана зависимость радиуса пучка от координаты  $z$  внутри образца с учетом начальной фокусировки линзой  $f=40$  мм. В зависимости от мощности излучения наблюдались различные варианты распространения. При маленьких мощностях, когда СФ не оказывает существенного влияния, распространение близко к линейному (Рис. 3.7 пунктир). При постепенном повышении мощности лазерных импульсов до значения

критической мощности СФ, увеличивается вклад керровской нелинейности и уменьшается радиус пучка в сравнении с линейным случаем распространения (Рис. 3.7 сплошная линия). При мощности  $0,8P_{cr}$  радиус пучка в фокусе был примерно в 2 раза меньше, чем в линейном случае из-за действия СФ. При мощностях превышающих критическую мощность СФ, пучок коллапсирует перед геометрическим фокусом и поэтому расчет останавливается на этой координате.

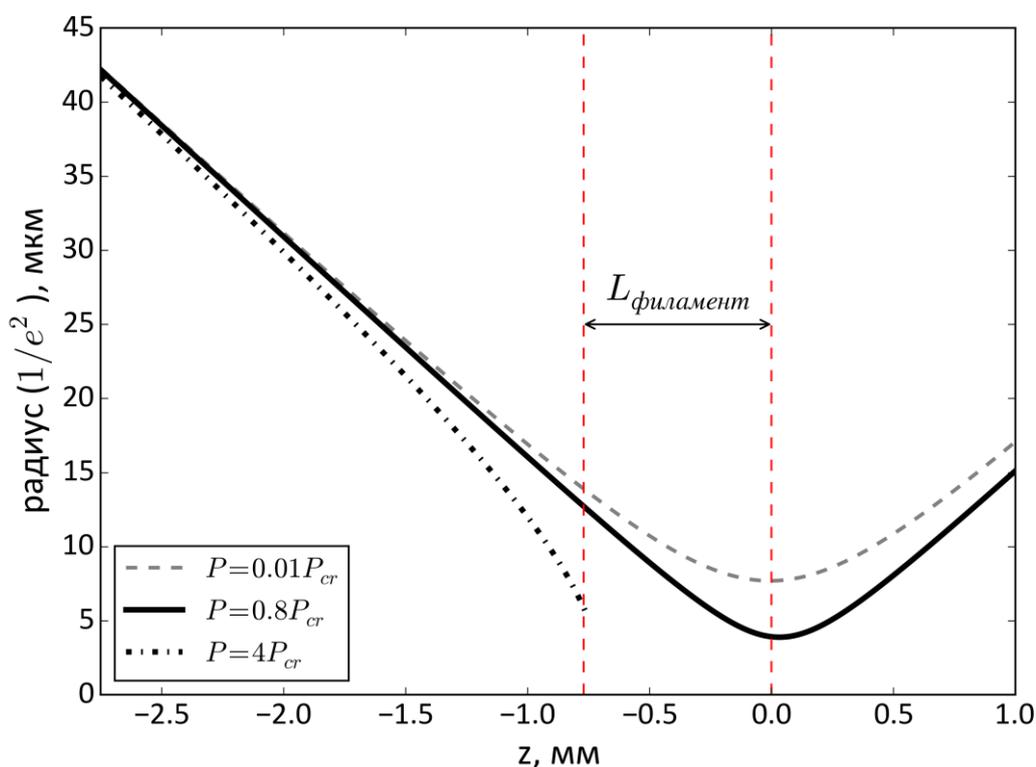


Рис. 3.7. Зависимость радиуса пучка от координаты внутри образца. Излучение распространяется слева направо и  $z=0$  соответствует центру образца.

Для вычисления уширения спектра использован следующий подход. Нелинейный набег фазы в среде с нелинейным показателем преломления  $n_2$  при распространении на расстояние  $dz$  равен  $\delta\varphi = k_0 n_2 I(t) dz$ , что приводит к появлению новых частот:

$$\delta\omega = -\frac{\partial \delta\varphi}{\partial t} = -k_0 n_2 dz \frac{\partial I}{\partial t} = -k_0 n_2 dz I_0 \left( -\frac{8t \ln 2}{T_{FWHM}^2} \right) \exp\left( -\frac{4 \ln 2 t^2}{T_{FWHM}^2} \right), \quad (3.9)$$

и максимальное смещение достигается при  $\frac{\partial \delta \omega}{\partial t} = 0$ , что соответствует

положению по времени  $t = \pm \frac{T_{FWHM}}{\sqrt{8 \ln 2}}$ , и  $|\delta \omega_{\max}| = k_0 n_2 I_0 dz \sqrt{8 \ln 2 / e} / T_{FWHM}$ , где  $I_0$

максимальная интенсивность излучения на оси, зависящая от координаты  $z$  внутри образца, которая определяется геометрической фокусировкой и СФ. Тогда уширение на всей длине образца можно вычислить как:

$$\Delta \omega_{\max} = \frac{k_0 n_2 \sqrt{8 \ln 2 / e} l}{T_{FWHM}} \int_0^l I_0(z) dz, \quad (3.10)$$

и для линейного случая распространения (когда вклад СФ пренебрежимо мал) используя формулу (3.3) его можно вычислить аналитически:

$$\Delta \nu_{\max} [\text{см}^{-1}] = \frac{16 \ln 2 \sqrt{2 / \pi e} n n_2 E}{T_{FWHM}^2 \lambda^2 c} \arctg \left( \frac{l}{2z_{dif}} \right). \quad (3.11)$$

Для нелинейного случая вблизи критической мощности СФ возможны два варианта: 1)  $P < P_{cr}$ ; 2)  $P > P_{cr}$ . В первом случае можно использовать зависимость интенсивности от координаты внутри образца, полученные в рамках модели, на всей длине образца. Во втором случае длина образца разбивается на три участка: 1) до коллапса пучка; 2) филамент (расстояние между нелинейным и линейным фокусами, Рис. 3.7); 3) за линейным фокусом. На первом участке используется зависимость интенсивности от координаты, полученная в рамках нашей модели. На втором участке мы оцениваем  $\int I(z) dz$  как  $I_{\text{филамент}} \times L_{\text{филамент}}$ , где средняя интенсивность излучения в филаменте  $I_{\text{филамент}}$  по порядку составляет  $\sim 10^{13}$  Вт/см<sup>2</sup> [88,89]. После линейного фокуса, как оценку используем значение, полученное на первом участке, с учетом уменьшения мощности в филаменте (умножаем на коэффициент пропускания (Рис. 3.3б)).

Свободными параметрами в рамках данной модели остаются значения нелинейного показателя преломления и интенсивности внутри филамента. При значениях  $n_2 = 1,7 \times 10^{-16}$  см<sup>2</sup>/Вт и  $I_{\text{филамент}} = 1,3 \times 10^{13}$  Вт/см<sup>2</sup> было получено наилучшее согласие с экспериментом (Рис. 3.8). Значение нелинейного показателя

преломления влияло на положение точки перегиба по горизонтали ( $E_{in} \sim 0,5$  мкДж), а интенсивности излучения в филаменте – по вертикали (спектральное уширение перед коллапсом). Данные значения хорошо согласуются с данными по  $n_2$  [91] и  $I_{филамент}$ , полученными в других экспериментах [88,89]. Также расчет подтверждает, что при  $P > P_{cr}$  наклон зависимости уширения спектра от энергии импульса накачки близок к линейному режиму (описываемому (3.11)), но возникает дополнительный спектральный сдвиг за счет уширения спектра вне филамента.

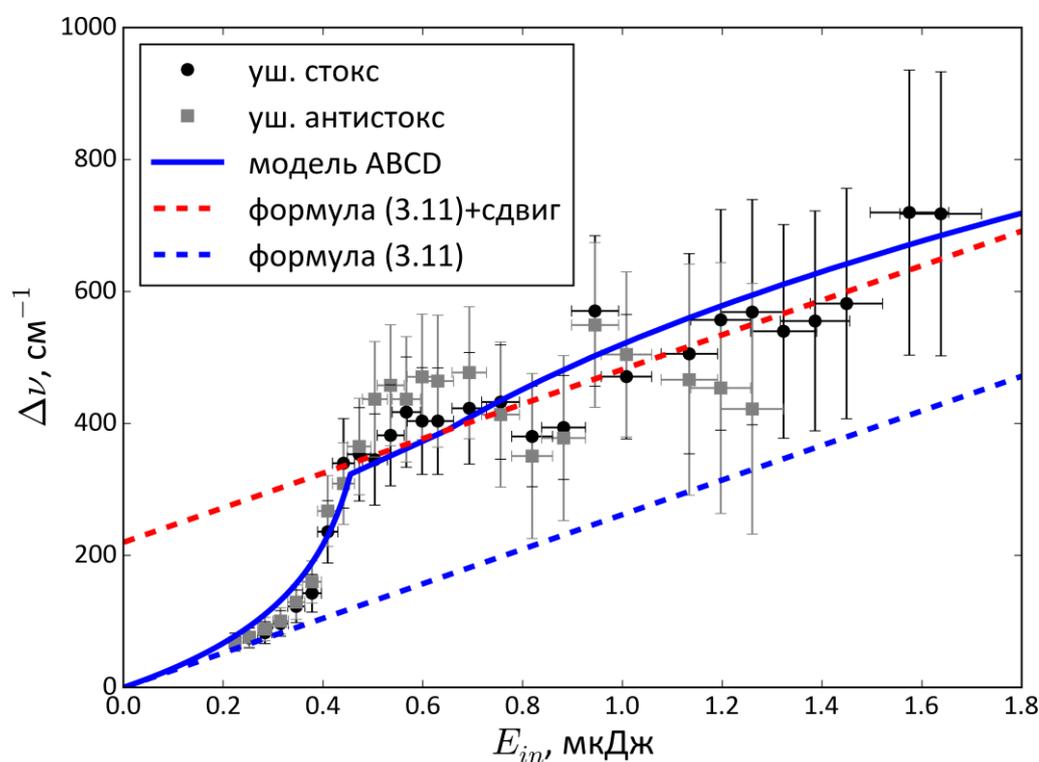


Рис. 3.8. Расчетная (сплошная линия) и экспериментальная (точки) зависимости ширины спектра лазерного импульса, прошедшего через образец плавленного кварца, от энергии импульса накачки. Пунктирная линия соответствует наклону для линейного режима.

На рис. 3.9 представлена зависимость  $I(z) \times z$  интеграла при мощности выше критической мощности СФ в филаменте и на всей длине образца. Стоит отметить, что при увеличении мощности излучения после коллапса пучка, основной вклад в

уширение спектра вносит образование филамента, длина которого зависит от мощности излучения. Разница между уширением спектра на всей длине образца и в филаменте слабо изменяется при изменении мощности излучения (Рис. 3.9), и, следовательно, уширение спектра вне филамента (Рис. 3.7) соответствует некоторому постоянному сдвигу.

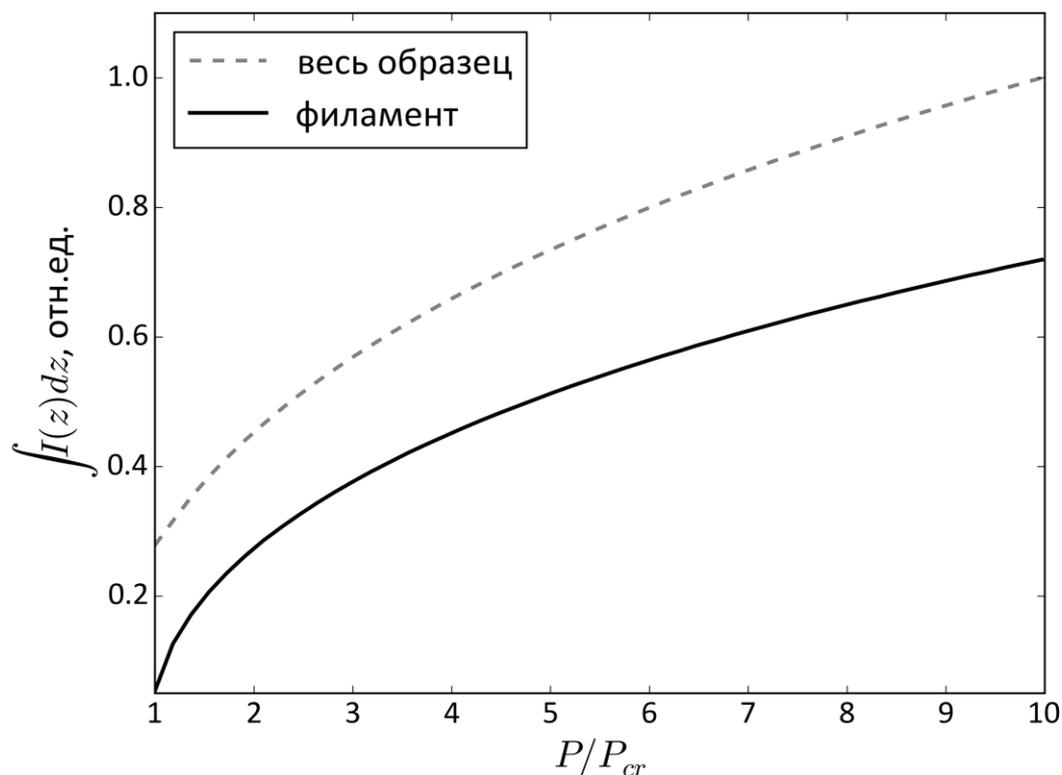


Рис. 3.9. Зависимость уширения спектра в филаменте (сплошная) и на всей длине образца (пунктир) от мощности лазерного излучения.

### 3.4 Выводы

Экспериментально и численно исследовано распространение сфокусированного субпикосекундного лазерного импульса в плавленом кварце. В зависимости от мощности излучения наблюдалось три режима распространения. Первый, при мощности менее  $0,6P_{cr}$  характеризуется линейным уширением спектра от энергии лазерных импульсов, что соответствует, близкому к линейному распространению внутри образца. Второй ( $0,6P_{cr} < P < P_{cr}$ ), характеризуется резким уширением спектра, что связано с уменьшением радиуса

пучка за счет СФ, и возрастанием интенсивности при отсутствии поглощения. Третий ( $P > P_{cr}$ ), СФ преобладает над дифракцией и возникает коллапс пучка, при котором резкий рост интенсивности приводит к заметному нелинейному поглощению и образованию плазмы, и последующей рефракции на ней. Совместное действие данных нелинейных эффектов приводит к формированию филамента и стабилизации интенсивности. Предложена и апробирована численная модель, использующая методы матричной оптики, которая описывает зависимость уширения спектра за счет ФСМ от энергии лазерного импульса во всех трех рассмотренных режимах распространения. Показано, что наклон в зависимости уширения спектра от энергии лазерного импульса накачки для линейного и нелинейного режимов одинаков в пределах погрешности измерений, поэтому нелинейный показатель преломления в режиме филаментации сфокусированного лазерного импульса можно определить по наклону зависимости уширения спектра от энергии, если вклад других нелинейных эффектов незначителен.

## Глава 4. Уширение спектра сфокусированных субпикосекундных импульсов в кристалле вольфрамата бария

В четвертой главе представлены результаты исследования уширения спектра, вызванного эффектом ФСМ, сфокусированного субпикосекундного импульса в кристалле вольфрамата бария в условиях, в которых наблюдалась аномально высокая эффективность ВКР на моде  $\nu_1=925\text{ см}^{-1}$  [11]. Обнаружена явная асимметрия уширения с доминированием стоксового крыла, которая не наблюдалась в плавленом кварце (см. Главу 3). Наблюдаемая асимметрия объясняется доминирующим «медленным» (инерционным) откликом керровской нелинейности кристалла BWO, что является благоприятным условием для конструктивной интерференции эффектов ВКР и ФСМ, также как и при солитонном сдвиге частоты в оптических волокнах [69].

### 4.1 Длина волны 515 нм

Уширение спектра в кристалле вольфрамата бария исследовалось в тех же условиях накачки и геометрии взаимодействия, при которых в работе [11] наблюдалась аномально высокая эффективности ВКР в кристалле BWO. Излучение второй гармоники лазерного комплекса (длина волны 515 нм, длительность импульса 0,3 пс) фокусировалось в объём образца BWO длиной 8 мм линзой с фокусным расстоянием 35 мм (Рис. 4.1).

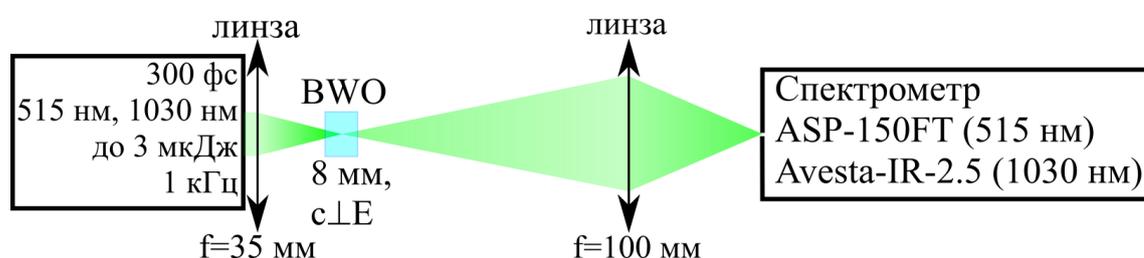


Рис. 4.1. Схема эксперимента.

Лазерное излучение, вышедшее из кристалла BWO, ослаблялось посредством отражений от клиньев (на схеме не указаны), и с помощью

дополнительной линзы фокусировалось в спектрометр. Примеры спектров излучения, прошедшего через кристалл ВВО, измеренные при различных энергиях импульса накачки, приведены на рис 4.2 в логарифмическом масштабе. Детектируемое уширение спектра появлялось при энергии  $\sim 0,03$  мкДж, при энергии 3,4 мкДж уширение в стоксовую сторону достигало длины волны  $\sim 600$  нм, в антистоксовую сторону  $\sim 450$  нм. Из Рис. 4.2 наглядно видно, что уширение в кристалле ВВО было несимметричным с доминированием стоксового крыла. В этих же условиях в плавленом кварце (см. Рис. 3.2), также как и во многих других твердых материалах в различных условиях [92], уширение спектра, вызванное ФСМ было симметричным, если эффект самоукручения импульса [86] не проявлялся. При этом необходимо отметить, что эффект самоукручения импульса приводит к резкому уширению спектра в антистоксовую область, в то время как в ВВО доминирует уширение в стоксовую область.

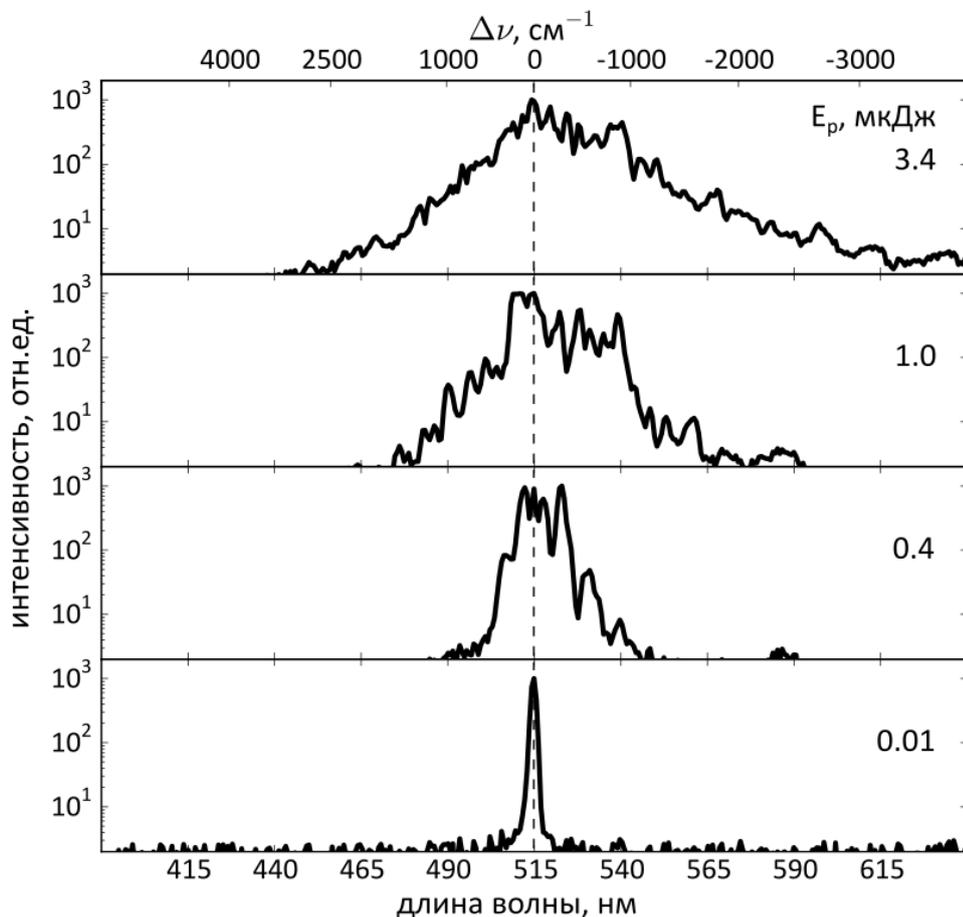


Рис. 4.2. Спектры излучения за кристаллом ВВО при различных энергиях.

Далее при плавном повышении энергии лазерных импульсов накачки измерена ширина стоксового и антистоксового крыла относительно центральной длины волны 515 нм (Рис. 4.3). Обнаружено, что ширина стоксового крыла в единицах  $\text{см}^{-1}$  примерно в два раза больше, чем у антистоксового. При этом зависимость на рис. 4.3 имеет «ступенчатую» форму: когда ширина стоксового крыла достигала частот  $\sim 330 \text{ см}^{-1}$  или  $925 \text{ см}^{-1}$ , она практически не менялась в широком диапазоне энергий импульса накачки. Этот факт может быть связан с активацией ВКР на соответствующих модах кристалла ВВО (Рис. 2.6), что приводило к замедлению уширения, вызванного ФСМ.

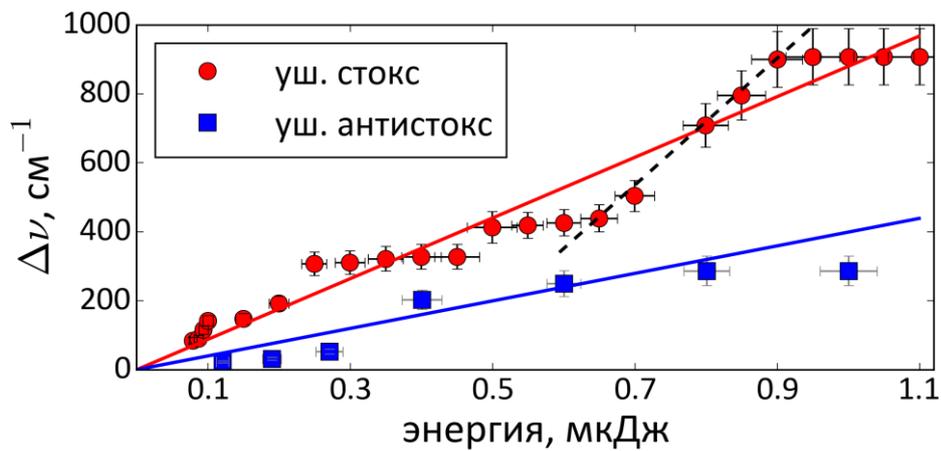


Рис. 4.3. Уширение спектра в стоксовую и антистоксовую области в зависимости от энергии лазерных импульсов на второй гармонике лазерного комплекса.

Для сфокусированного пучка по аналогии с плавленным кварцем (см. Главу 3), используя формулы (3.11), можно оценить нелинейный показатель преломления ВВО. На основе усредненного наклона для зависимости уширения в стоксовую часть от энергии импульса накачки (Рис. 4.3) нелинейный показатель преломления составляет  $n_2^{(0)} = (1,3 \pm 0,2) \times 10^{-15} \text{ см}^2/\text{Вт}$ . Однако, поскольку зависимость на рис. 4.3 имеет сложный, ступенчатый, характер, а само уширение не симметрично, то такой подход для кристалла ВВО оказывается некорректным. Для корректного описания наблюдаемых эффектов д.ф.-м.н. Ковалевым Валерием Ивановичем предложена физическая модель, основанная на инерционном

(«медленном») отклике керровской нелинейности. Эта модель позволяет объяснить асимметрию спектра, и была использована для оценки величины  $n_2$  кристалла ВВО. В этом случае для вычисления уширения спектра, вызванного ФСМ, необходимо воспользоваться формулой [40]:

$$\Delta\nu_{tr}(t) = \frac{n^2 n_2}{t_p \tau_{NL} \lambda^2 c} E_p \int_{-\infty}^t e^{-(1,67x/t_p)^2} e^{-(t-x)/\tau_{NL}} dx, \quad (4.1)$$

где  $\tau_{NL}$  – время отклика керровской нелинейности. На рис. 4.4 приведен относительный сдвиг частоты, вызванный эффектом ФСМ, в зависимости от координаты по времени, рассчитанный по формуле (4.1) для различных значений времени отклика керровской нелинейности. Также на рис. 4.4 пунктирной линией отмечено распределение интенсивности импульса во времени.

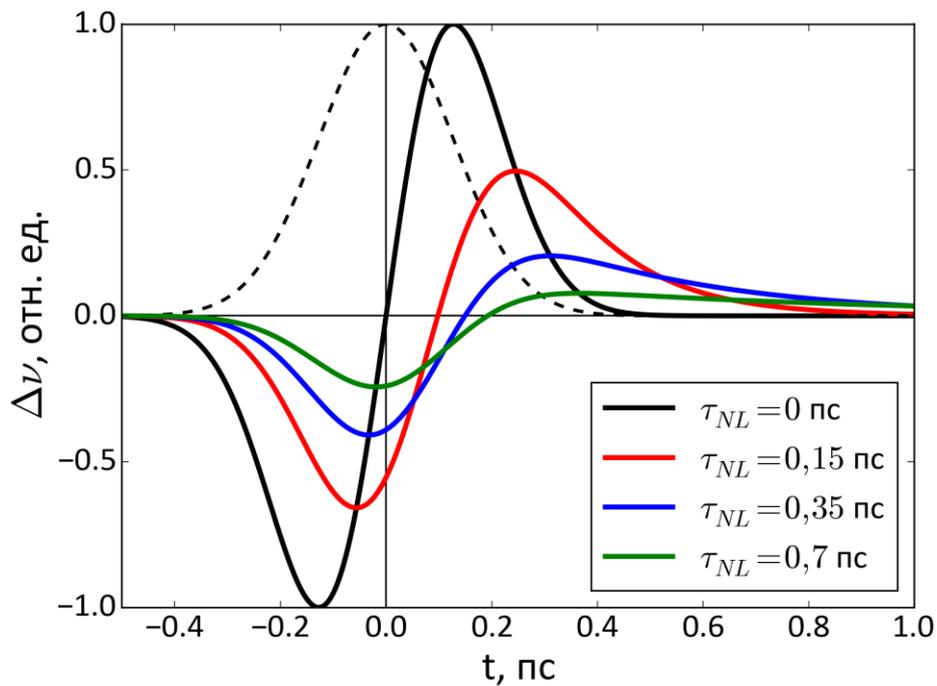


Рис. 4.4. Смещение частоты от времени для различных значений времени отклика. Пунктиром приведен начальный гауссов импульс.

При мгновенном отклике ( $\tau_{NL}=0$ ) уширение спектра в стоксовую и антистоксовую области равны и максимум уширения достигается примерно на полувысоте импульса. Поскольку в твердых телах отклик керровской

нелинейности обычно обусловлен поляризацией связанных электронов, с характерной величиной  $\tau_{NL} \sim 1-10$  фс (см. Табл. 1), то уширение симметрично, что наблюдалось в плавленом кварце в Главе 3. При увеличении времени отклика  $\tau_{NL}$ , максимальный сдвиг частоты в стоксовую и антистоксовую области уменьшается, а их положение смещается к заднему фронту импульса. Более того, с увеличением времени отклика  $\tau_{NL}$  максимальный сдвиг частоты в стоксовую область растет по отношению к антистоксовой области. При величине  $\tau_{NL}=0,35$  пс и длительности импульса 0,3 пс отношение максимального уширения в стоксовую и антистоксовую область составляет  $\approx 2$ , как и в эксперименте с кристаллом BWO (Рис. 4.2). При  $\tau_{NL}=0,35$  пс максимальное уширение в стоксовую область оказываться в 2,5 раза меньше, чем для мгновенного отклика  $\tau_{NL}=0$  при той же самой величине  $n_2$ . Поэтому для учета инерционности керровской нелинейности значение  $n_2^{(0)}=(1,3\pm 0,2)\times 10^{-15}$  см<sup>2</sup>/Вт, полученное в предположении мгновенного отклика необходимо умножить на этот коэффициент – 2,5. Тогда новое значение будет равно  $n_2^{(1)}=2,5\times n_2^{(0)}=(3,2\pm 0,5)\times 10^{-15}$  см<sup>2</sup>/Вт.

Таблица 1. Восприимчивость третьего порядка  $\chi^{(3)}$ , время отклика  $\tau$  и их отношение при различных механизмах, которыми обусловлена нелинейность [93].

| Механизм                            | $\chi^{(3)}$ , СГСЭ   | $\tau$ , с         | $\chi^{(3)}/\tau$     |
|-------------------------------------|-----------------------|--------------------|-----------------------|
| Нерезонансный                       |                       |                    |                       |
| Ангармонизм связанных электронов    | $\sim 10^{-10}$       | $2\times 10^{-15}$ | $5\times 10^4$        |
| Релеевский ангармонизм              |                       |                    |                       |
| - ориентационный                    | $\sim 10^{-1}$        | $\sim 10^{-1}$     | 1-5                   |
| - стрикционный                      | $\sim 10^{-7}$        | $\sim 10^{-1}$     | $\sim 10^{-6}$        |
| - тепловой                          | $\sim 10^{-5} \alpha$ | $\sim 10^{-3}$     | $\sim 10^{-2} \alpha$ |
| Нелинейность свободных электронов   |                       |                    |                       |
| -непараболичность зоны проводимости | $\sim 10^{-7}$        | $\sim 10^{-11}$    | $\sim 10^4$           |
| -генерация свободных электронов     | $\sim 10^{-5}$        | $\sim 10^{-9}$     | $\sim 10^4$           |

Так же необходимо учесть, что в зависимости ширины спектра от энергии лазерного импульса имеются области, при которых наблюдается «замедление» уширение спектра с ростом энергии лазерных импульсов: от 0,25 мкДж до 0,45 мкДж; более 0,9 мкДж. В этих диапазонах энергий наблюдалось формирование ВКР линий, подробно о которых будет описано в Главе 5. В диапазоне энергий от 0,6 мкДж до 0,9 мкДж формирование ВКР компонент не наблюдалось и спектр лазерного импульса изменялся только за счёт эффекта ФСМ. Поскольку ВКР может замедлять уширение спектра за счёт ФСМ, то для оценки  $n_2$  использовались участки графика на рис. 4.2, где данный эффект незначителен. Исходя из отношений углов наклона получим значение нелинейного показателя преломления  $n_2 = 2 \times n_2^{(1)} = (6,4 \pm 1,2) \times 10^{-15} \text{ см}^2/\text{Вт}$ .

Таким образом, на основе экспериментальных данных по уширению спектра лазерного импульса с длиной волны 515 нм и длительностью 0,3 пс сфокусированного в кристалл ВВО, определена амплитуда и время отклика нелинейного показателя преломления этого материала:  $n_2 = (6,4 \pm 1,2) \times 10^{-15} \text{ см}^2/\text{Вт}$  ( $\chi^{(3)} = 25 \times n_2 \times n^2 = 5,3 \times 10^{-13} \text{ СГС}$ ) и  $\tau_{NL} = 0,35 \text{ пс}$ . Эти величины не характерны для «быстрой» нелинейности, обусловленной поляризацией связанных электронов в твердом теле, и механизм «медленной» и «сильной» нелинейности, ответственной за наблюдаемое ассиметричное уширение в ВВО, имеет иную природу. Параметром, позволяющим выявить механизм нелинейности, является отношение  $\chi^{(3)}/\tau_{NL}$  [93]. Для кристалла ВВО величина  $\chi^{(3)}/\tau_{NL} \sim 1,5 \text{ СГС/с}$  указывает на ориентационную природу керровской нелинейности (см. Таблицу 1 и [93]). Необходимо отметить, что ранее такой механизм керровской нелинейности в твердых телах не наблюдался. Проявление этого механизма в кристалле ВВО может быть связано с особенностями его структуры: в кристаллической решетке ВВО анионные группы  $(\text{WO}_4)_2^-$  разупорядочены, под действием поля лазерного импульса происходит взаимная переориентация катион-анионных групп:  $\text{Ba}^{2+}$  и  $(\text{WO}_4)^{2-}$ , которые представляют собой диполи приводящие к проявлению нелинейности ориентационного типа. Подобный механизм возникает в

органических кристалла [94], когда под действием поля возникает перераспределение электронной плотности, и в нематических жидких кристаллах [95], когда внешнее поле приводит к смещению «директора», который изменяет величину показателя преломления для необыкновенной волны и вызывает ориентационную нелинейность, которая может превышать на 9 порядков керровскую нелинейность в обычных жидкостях.

#### 4.2 Длина волны 1030 нм

Для проверки «медленной» и «сильной» ориентационной природы керровской нелинейности в ВВО, ответственной за асимметричное уширение, исследовано уширение спектра лазерных импульсов на основной частоте лазерного комплекса ( $\lambda=1030$  нм,  $t_p=0,3$  пс) в той же геометрии взаимодействия. Отметим, что в ходе этих экспериментов не наблюдалось формирование и усиление отдельных линий, что позволяет исключить влияние ВКР на ФСМ, а также исключить влияние кроссмодуляции между импульсами накачки и стоксовым, которое могло приводить к увеличенному в два раза уширению спектра [96]. Подавление ВКР в этих условиях обусловлено уменьшенным в 4 раза коэффициентом усиления за счет увеличения длины волны в 2 раза. Таким образом, проведение эксперимента по уширению спектра за счет ФСМ в кристалле вольфрамата бария излучения на основной частоте лазерного комплекса позволяет исключить другие нелинейные эффекты.

Лазерное излучение ( $\lambda=1030$  нм,  $t_p=0,3$  пс) фокусировалось линзой с фокусным расстоянием 35 мм в толщину кристалла, а за кристаллом прошедшее излучение ослаблялось путем отражением от клиньев и с помощью второй линзы с фокусным расстоянием 100 мм фокусировалось на входную щель сканирующего спектрометра (Avesta-IR-2.5). Использование данного спектрометра позволило расширить регистрируемый спектральный диапазон в длинноволновую область. Энергия импульса накачки определялась по средней мощности (частота

следования импульсов 1 кГц), измеренной термоэлектрическим датчиком Ophir-3A.

Примеры спектров лазерных импульсов, прошедших через образец ВВО, при увеличении энергии импульса накачки представлены на рис. 4.5 в логарифмическом масштабе. Как и в экспериментах на второй гармонике наблюдалось несимметричное уширение спектра с преобладанием в стоксовую область.

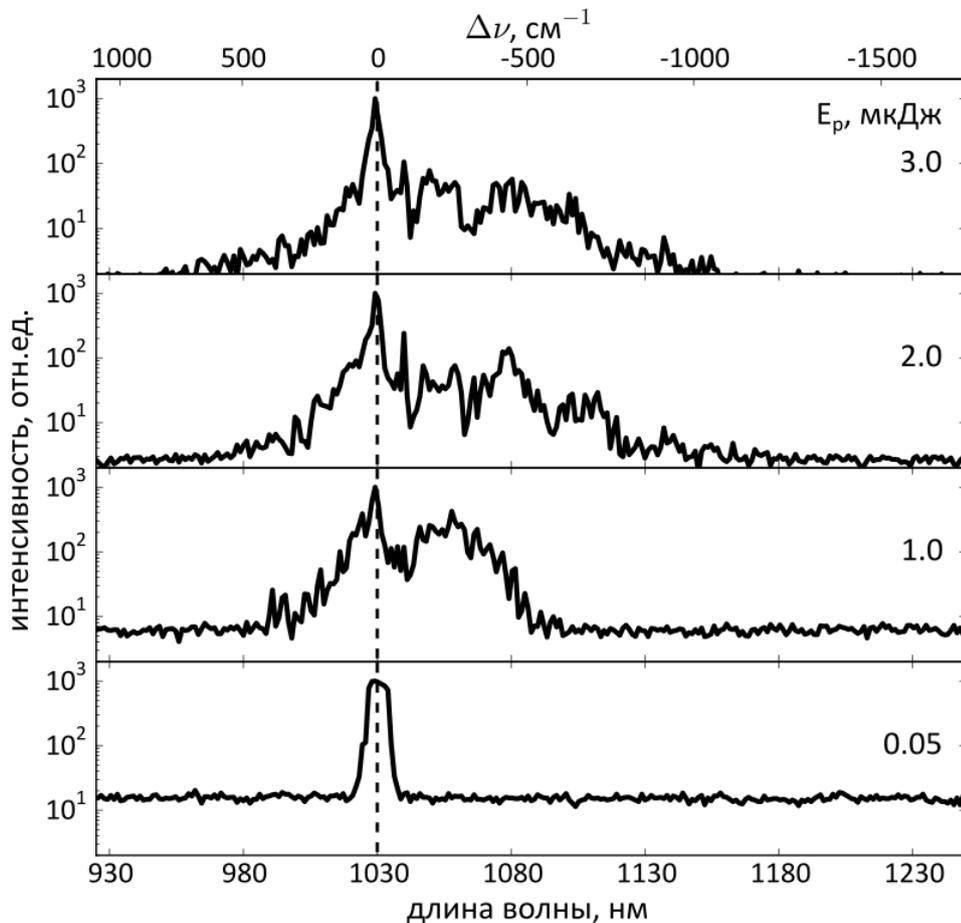


Рис. 4.5. Спектры излучения за кристаллом ВВО при различных энергиях.

Ширина стоксового и антистоксового крыла относительно центральной длины волны 1030 нм в единицах  $\text{см}^{-1}$ , измеренная при плавном повышении энергии импульса накачки, представлена на рис 4.6. Ширина спектра измерялась по фиксированному уровню сигнала, соответствующему отношению сигнал/шум

равному 6 после усреднения шумов, а динамический диапазон измерений спектра составлял  $\sim 10^3$ .

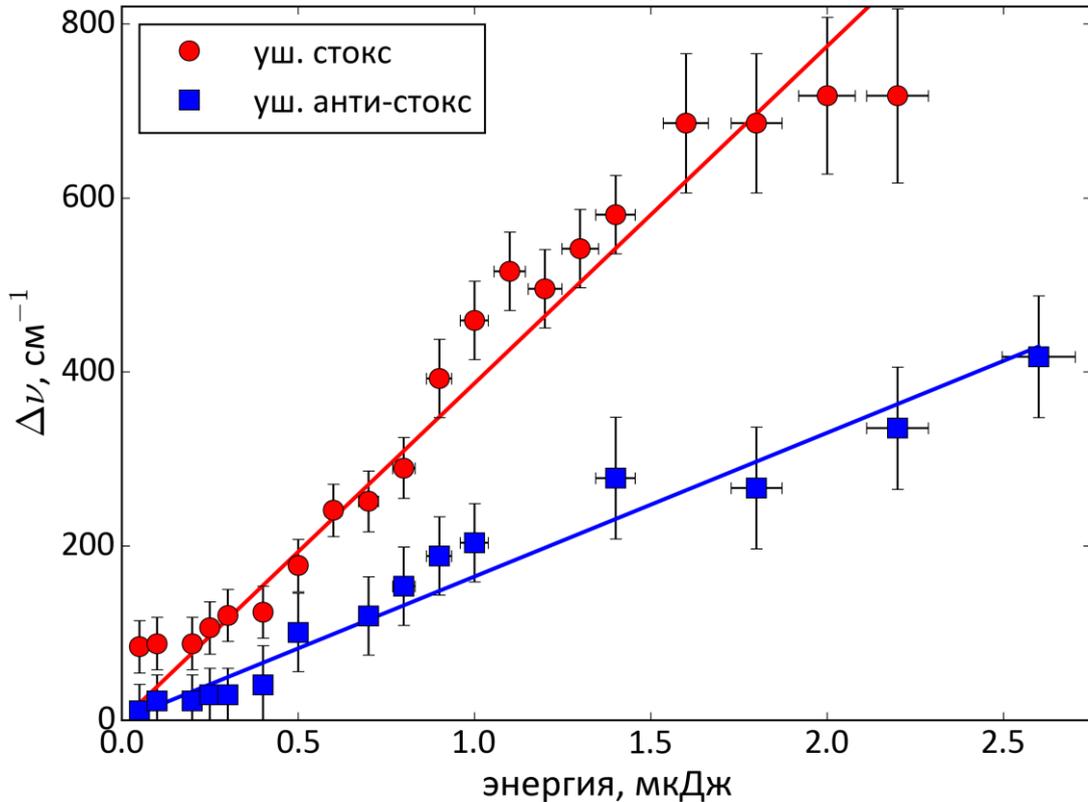


Рис. 4.6. Уширение спектра в стоксовую и антистоксовую области в зависимости от энергии лазерных импульсов на первой гармонике лазерного комплекса.

Характер зависимости уширения спектра от энергии импульса накачки оказался близким к линейному, и используя результаты Главы 3 по исследованию эффекта ФСМ, можно оценить нелинейный показатель преломления ВВО для этих условий. Аппроксимируя зависимости на рис. 4.6 было получено, что угол наклона для уширения в стоксовую область в  $2,3 \pm 0,3$  раза больше, чем в антистоксовую область. Так как уширение спектра обусловлено ФСМ в отсутствии заметного вклада других нелинейных эффектов (например ВКР), то такое отличие обусловлено инерционностью керровской нелинейности с временем отклика порядка длительности импульса. Расчёты, проведенный по формуле (4.1), показали, что для длительности импульса 0,3 пс и отношении

уширения в стоксовую и антистоксовую области  $\sim 2,3$ , время отклика составляет  $0,44 \pm 0,06$  пс, что близко к полученному  $0,35$  пс времени отклика на второй гармонике. Угол наклона уширения в стоксовую область соответствует значению нелинейного показателя преломления  $\sim 2 \times 10^{-15}$  см<sup>2</sup>/Вт в предположении мгновенного отклика (3.11). Учитывая уменьшение амплитуды уширения при увеличении времени отклика (Рис. 4.4) и величину отклика  $0,44$  пс, получим значение нелинейного показателя преломления для кристалла ВВО на длине волны  $1030$  нм равное  $(6,3 \pm 0,8) \times 10^{-15}$  см<sup>2</sup>/Вт, которое с точностью измерений совпадает с величиной определенной в эксперименте для второй гармонике. В рамках погрешности измерений, определить дисперсию нелинейного показателя преломления, характерную для оптически прозрачных сред [96], не удалось.

### 4.3 Выводы

Проведенное экспериментальное и теоретическое исследование ассиметричного уширения спектра сфокусированных субпикосекундных лазерных импульсов в кристалле вольфрамата бария показало, что природа керровской нелинейности, ответственная за эффект фазовой самомодуляции в этом материале, является ориентационного типа. Определены значения нелинейного показателя преломления и время отклика керровской нелинейности, которые составили  $(6,4 \pm 1,2) \times 10^{-15}$  см<sup>2</sup>/Вт и  $\tau_{NL} = 0,35$  пс;  $(6,3 \pm 0,8) \times 10^{-15}$  см<sup>2</sup>/Вт и  $\tau_{NL} = 0,44$  пс на длинах волн  $515$  нм и  $1030$  нм, соответственно. Таким образом значение нелинейного коэффициента преломления и время отклика кубической нелинейности для кристалла вольфрамата бария, усредненные по измерениям на длинах волн  $515$  нм и  $1030$  нм, составляют  $(6,4 \pm 1,6) \times 10^{-15}$  см<sup>2</sup>/Вт и  $0,4$  пс, соответственно.

## Глава 5. Нестационарное ВКР и ФСМ в кристалле ВаWO<sub>4</sub>

В пятой главе представлены результаты исследования по формированию и затуханию выделенных, не объясняемых в рамках только эффекта ФСМ, спектральных линий при уширении спектра сфокусированных субпикосекундных импульсов в кристалле вольфрамата бария. Положение этих линий согласуется со сдвигом, соответствующего модам  $\nu_1=925 \text{ см}^{-1}$  и  $\nu_2=330 \text{ см}^{-1}$  спектра спонтанного КР кристалла WVO (Рис. 2.7). Особенностью формирования этих линий является их последовательность, которая определяется величиной частотного сдвига (сначала формируются линии с меньшим частотным сдвигом), а не величиной коэффициента ВКР усиления. Данный факт подтверждает, что уширение спектра за счет ФСМ формирует затравочное излучение, которое затем усиливается за счет ВКР. Во второй части главы приведены результаты по исследованию эффективности генерации этих линий в зависимости от параметров фокусировки, таких как, фокусное расстояние и положение линейного фокуса внутри кристалла.

### 5.1 Формирование ВКР компонент

Как было отмечено в Главе 4 зависимость уширения спектра сфокусированных субпикосекундных лазерных импульсов с длиной волны 515 нм в кристалле WVO от энергии имеет «ступенчатую форму», причем положение «ступенек» согласуется с модами  $\nu_1=925 \text{ см}^{-1}$  и  $\nu_2=330 \text{ см}^{-1}$  спектра КР кристалла (Рис. 2.6). В этой главе сначала более детально был исследован процесс формирования первой «ступеньки», соответствующей частотному сдвигу  $\nu_2=330 \text{ см}^{-1}$ .

На рис. 5.1 приведены спектры лазерных импульсов, прошедших через кристалл WVO, в диапазоне энергий от 0,06 мкДж до 0,5 мкДж. При постепенном повышении энергии до 0,1 мкДж наблюдалось несимметричное уширение спектра в стоксовую и антистоксовую области. При энергии импульса накачки 0,12 мкДж на длине волны 524 нм наблюдалось формирование выделенной линии, которая

имеет частотный сдвиг  $\sim 300 \text{ см}^{-1}$  относительно центральной длины волны лазера накачки 515 нм. Увеличение энергии в  $\sim 3$  раз не приводило к явному смещению данной линии. Отметим, что максимум эффективности генерации этой линии, определяемый как отношение площади контура под ней к полной площади спектра прошедшего лазерного импульса (подробнее см. раздел 5.3), достигался при энергии 0,19 мкДж. Последующее повышение энергии до 0,5 мкДж приводило к плавному уменьшению амплитуды данной спектральной компоненты.

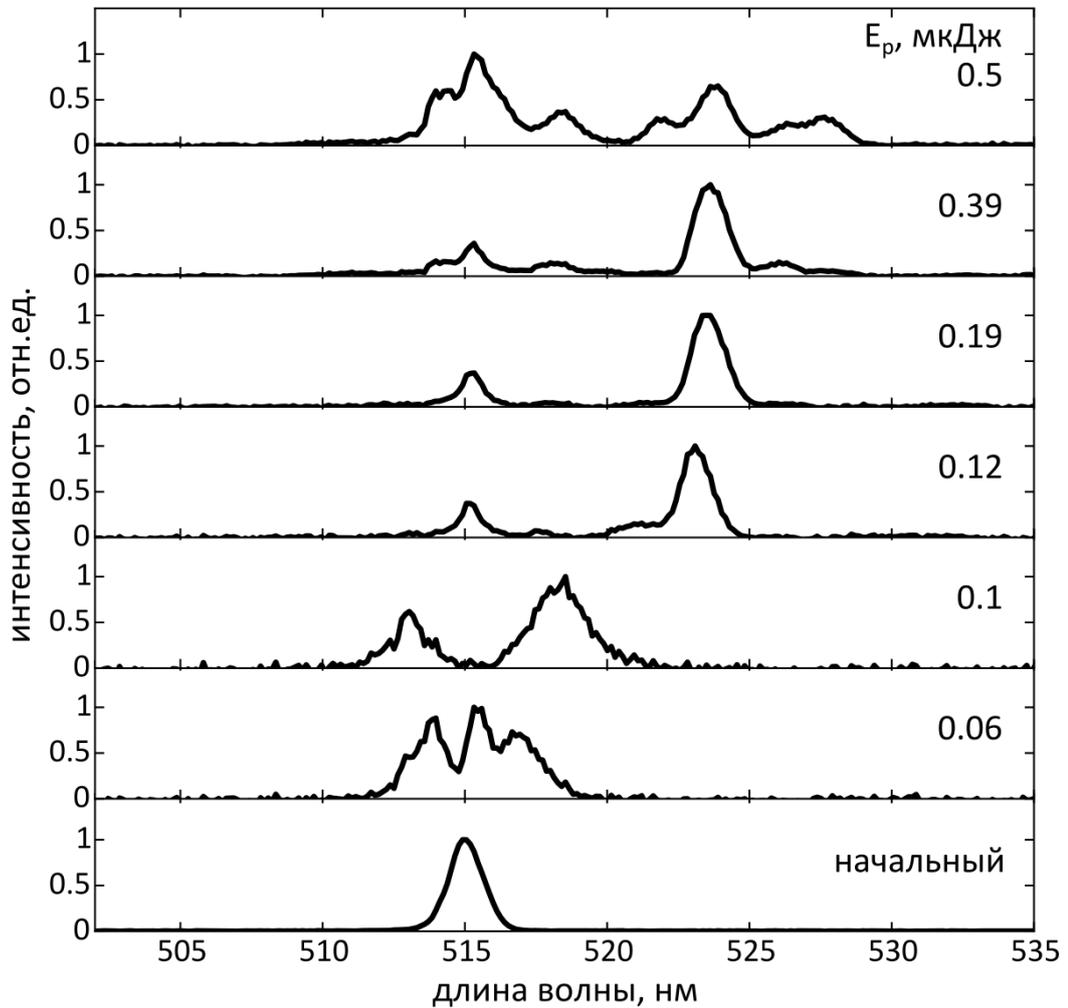


Рис. 5.1. Спектры излучения за кристаллом BWO при различных энергиях.

Для определения природы генерации выделенной линии на длине волны 524 нм, был проведен расчет влияния ФСМ на спектр лазерных импульсов в

рамках распространения плоской волны с интенсивностью  $I_0$  в кристалле ВВО, который учитывал инерционность отклика керровской нелинейности (см. Главу 4), приводящей к временной зависимости добавки в показатель преломления от времени:

$$\Delta n(t) = \frac{1}{\tau_{NL}} \int_{-\infty}^t I_0 \exp\left[-\frac{2x^2}{\tau_p^2}\right] \exp\left[-\frac{t-x}{\tau_{NL}}\right] n_2 dx, \quad (5.1)$$

где  $\tau_{NL}=350$  фс – время отклика Керровской нелинейности,  $2\tau_p$  – длительность импульса на уровне  $1/e^2$ ,  $n_2$  – нелинейный показатель преломления. Нелинейный фазовый набег волны при распространении на расстояние  $L$  будет равен:

$$\Delta\varphi(t) = \frac{\omega_0}{c} \Delta n(t)L, \quad (5.2)$$

где  $\omega_0$  – несущая частота излучения перед кристаллом.

Нелинейный фазовый набег пропорционален произведению интенсивности излучения на длину взаимодействия. В рамках расчета используется зависимость интенсивности от координаты соответствующая случаю распространения сфокусированного лазерного пучка в кристалле ВВО без учета влияния эффекта СФ (см. Главу 3):

$$\begin{aligned} I_0 L &= \int_{-l/2}^{l/2} I(z) dz = \int_{-l/2}^{l/2} \frac{I_{\max}}{1 + (z/z_{dif})^2} dz = \\ &= 4I_{\max} \pi w_0^2 \frac{n}{\lambda} \arctg\left(\frac{l}{2z_{dif}}\right) = 4P \frac{n}{\lambda} \arctg\left(\frac{l}{2z_{dif}}\right), \end{aligned} \quad (5.3)$$

где  $n$  – показатель преломления ВВО,  $l$  – длина кристалла,  $I_{\max}$  – интенсивность в геометрическом фокусе,  $w_0$  – радиус пучка в геометрическом фокусе по уровню  $1/e$ ,  $z_{dif}=2\pi n w_0^2/\lambda$  – дифракционная длина,  $P$  – мощность излучения. Таким образом, нелинейный фазовый набег пропорционален мощности излучения и, соответственно, зависит только от энергии лазерного импульса. Для вычисления спектра импульса за кристаллом использовалось Фурье преобразование от поля импульса, с учетом накопленного нелинейного набега фазы [40]:

$$S(\omega) = \left| \int_{-\infty}^{+\infty} e^{i\Delta\varphi(t)} e^{i(\omega-\omega_0)t} \sqrt{I_0 \exp\left(-\frac{2t^2}{t_p^2}\right)} dt \right|^2. \quad (5.4)$$

На рис. 5.2 приведены примеры спектров, полученные в расчете при различной энергии лазерных импульсов. В силу инерционности отклика, как было указано в Главе 1, уширение спектра в стоксовую и антистоксовую области несимметрично, с доминированием стоксового крыла. Постепенное увеличение энергии импульса накачки приводит к плавному смещению максимума в стоксовую область.

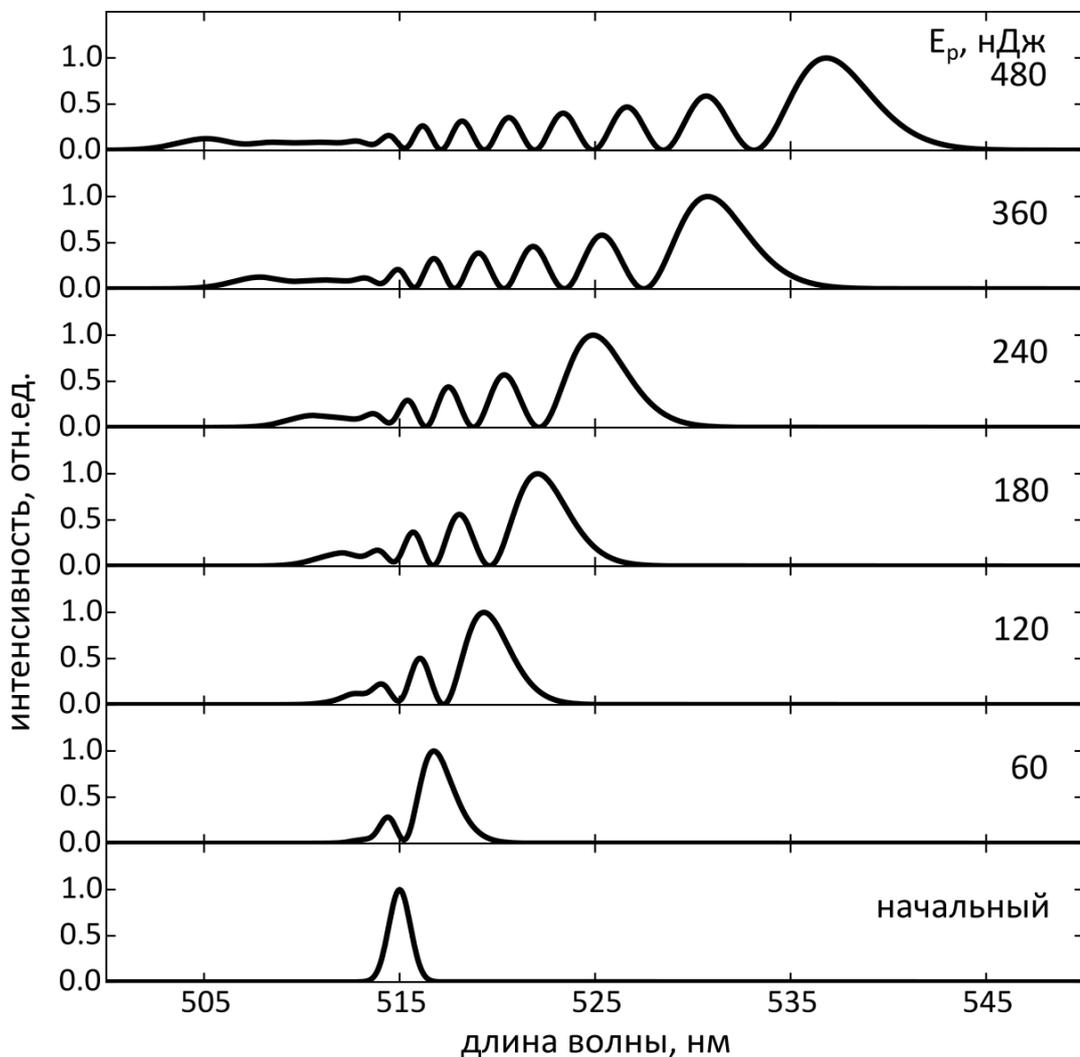


Рис. 5.2. Спектры излучения, полученные при моделировании прохождения плоской волны через кристалл BWO.

На рис. 5.3 приведено сравнение спектров измеренных в эксперименте (сплошная линия) и рассчитанных по формулам (5.1-5.4), пунктирная линия. При малых энергиях (до 100 нДж) наблюдается хорошее согласие между рассчитанным и экспериментальным спектрами. Повышение энергии до 120 нДж в эксперименте приводило к формированию выделенной линии с длиной волны  $\sim 524$  нм (частотный сдвиг  $\Delta\nu \sim 300$  см $^{-1}$ ), в то время как в расчете наблюдалось незначительное уширение спектра до этой длины волны. Положение этой линии согласуется с частотой КР моды ВВО  $\nu_2 = 330$  см $^{-1}$ . Таким образом, появление линии  $\lambda = 524$  нм может быть связано со следующим процессом: уширение спектра за счет ФСМ создает затравочное излучение, а за счёт ВКР происходит резкое увеличение амплитуды излучения в районе этой длины волны. В эксперименте при энергии 0,19 мкДж достигалась максимальная эффективность генерации этой линии и в расчете это соответствует случаю, когда положение максимума спектра, уширенного за счет ФСМ, совпадает с  $\lambda = 524$  нм.

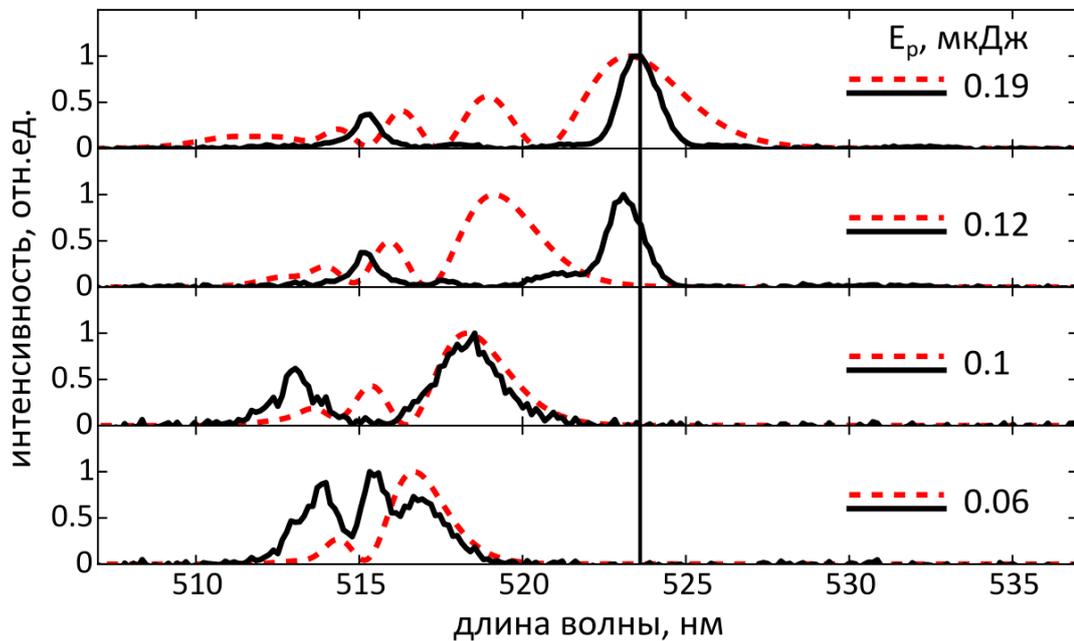


Рис. 5.3. Сравнение экспериментально измеренных спектров (сплошные линии) и полученных в расчете в приближении плоской волны (пунктиры).

Последующее увеличение энергии в эксперименте (более 0,19 мкДж) приводило к уменьшению эффективности генерации линии на длине волны 524 нм. В этом случае последующее сравнение измеренных и рассчитанных спектров при одинаковой энергии лазерных импульсов оказалось невозможным (Рис. 5.4), поскольку расчётная модель не учитывала эффект появления «ступеньки» в зависимости ширины спектра от энергии лазерного импульса (см. Рис. 4.3), который связан с замедлением уширения за счет ФСМ при эффективном ВКР. Поэтому приведено сравнение экспериментального спектра, измеренного при энергии 0,5 мкДж, и рассчитанного при энергии 0,26 мкДж. Это сравнение демонстрирует уменьшение амплитуды сигнала на соответствующем частотном сдвиге, что приводит к затуханию линии на длине волны 524 нм. Стоит отметить, что последующее повышение энергии может привести к совпадению последующих более слабых максимумов ФСМ с положением линий  $\nu_2$ , однако в силу инерционности отклика они обладают меньшим временным перекрытием с лазерным импульсом накачки (см Рис. 4.4), и, соответственно, худшими условиями для усиления.

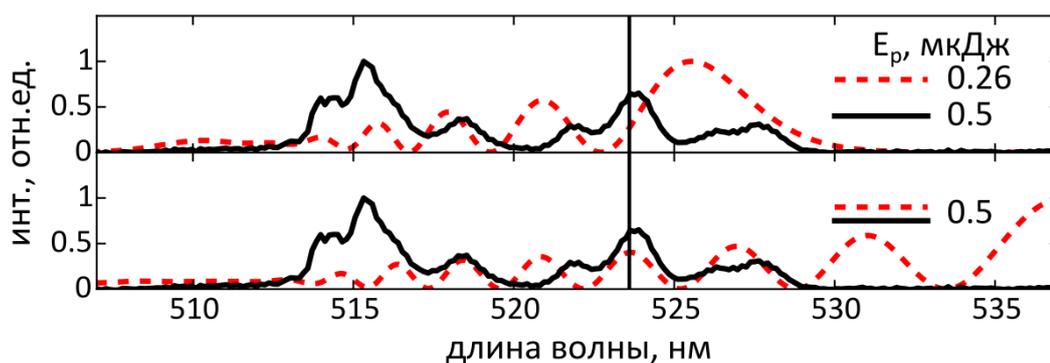


Рис. 5.4. Сравнение экспериментально измеренного спектра (сплошная линия) при энергии 0,5 мкДж и полученных в расчете в приближении плоской волны (пунктир) при энергии 0,26 мкДж и 0,5 мкДж.

Для наглядности моментов формирования выделенных линий с длиной волны 524 нм ( $\nu_2 \sim 330 \text{ см}^{-1}$ ) и 540 нм ( $\nu_1 \sim 925 \text{ см}^{-1}$ ), спектры, измеренные во всей

области энергии лазерных импульсов, были сопоставлены со спектром спонтанного КР кристалла ВВО. Для удобства анализа по горизонтальной оси откладывалось смещение в обратных сантиметрах от центральной длины волны импульса перед кристаллом ( $\lambda=515$  нм) (Рис. 5.5).

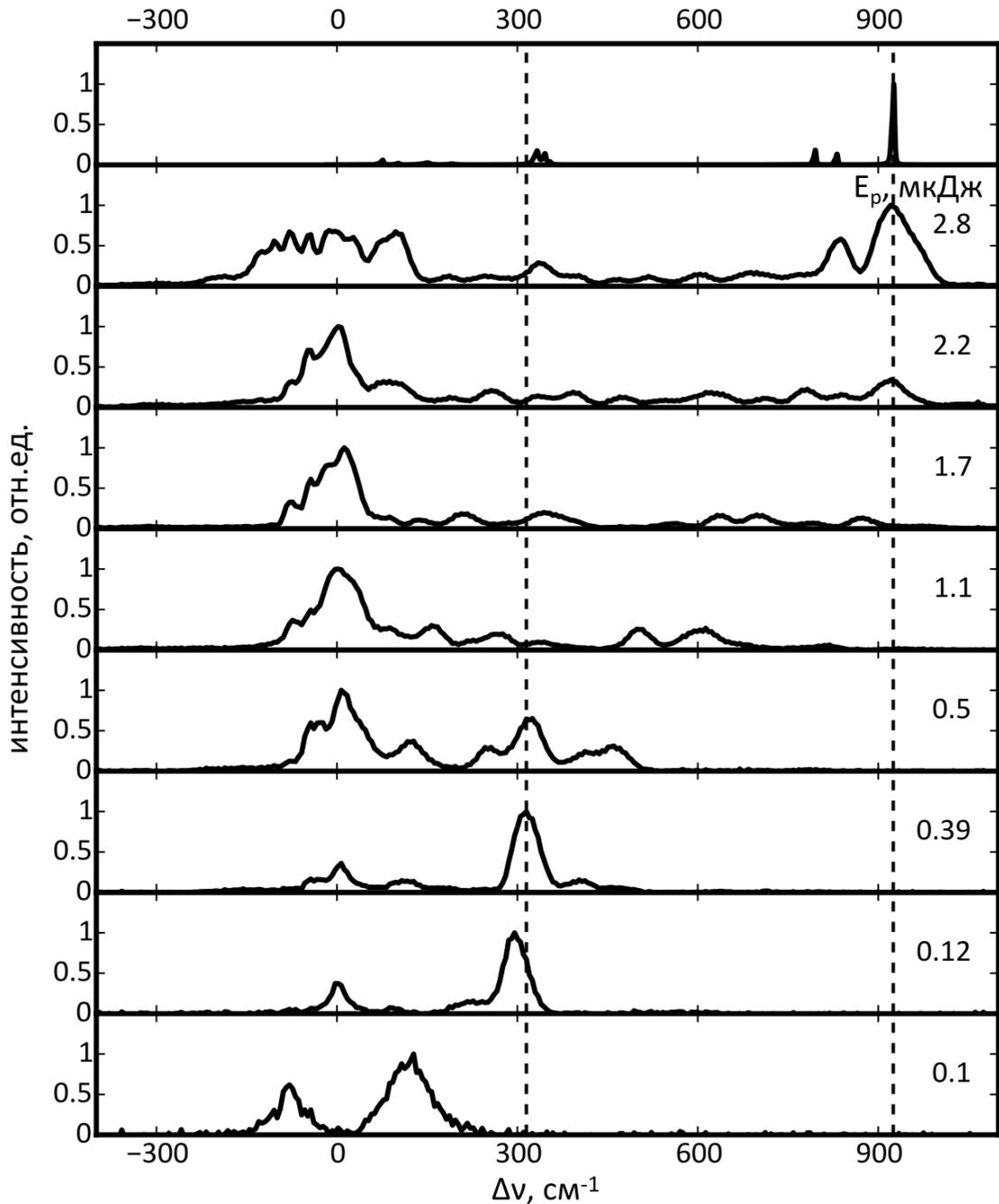


Рис. 5.5. Сравнение спектров излучения на выходе из кристалла со спектром спонтанного КР кристалла ВВО.

При таком рассмотрении хорошо видно, что когда уширение достигает сдвига соответствующего модам  $\nu_1$  и  $\nu_2$  спектра спонтанного рассеяния ВВО, то последующее повышение энергии приводит к усилению данных компонент. При этом более слабая (с меньшим сечением рассеяния) КР линия  $\nu_2 \sim 330 \text{ см}^{-1}$  формируется при меньшей энергии, в то время как более сильная линия  $\nu_1 \sim 925 \text{ см}^{-1}$  формируется при большей энергии. Это подтверждает, что последовательное формирование и усиление компонент со сдвигами соответствующими ВКР модам кристалла связано с формированием затравочного излучения за счет ФСМ. Процесс уширения спектра происходит постепенно, и соответственно сначала формируются компоненты с меньшим частотным сдвигом, а не с большим коэффициентом усиления.

## 5.2 Факторы, влияющие на эффективность преобразования

Исследование ФСМ, формирование и затухания ВКР линий, а также определение нелинейного коэффициента преломления в кристалле вольфрамата бария проводились в одной конфигурации оптической схемы при фокусировке излучения в толщину образца линзой с фокусным расстоянием 35 мм, в такой же схеме, как и в [11]. В этом разделе исследуется влияние геометрии фокусировки, определяемое как числовой апертурой фокусировки, так и положением фокуса излучения, на эффективность ВКР генерации в кристалле ВВО.

Схема эксперимента представлена на рис. 5.6, которая была такая же, как и в предыдущих экспериментах за исключением использования различных линз для фокусировки. Для варьирования остроты фокусировки использовались линзы с фокусными расстояниями 40 мм и 90 мм, а также объектив с фокусным расстоянием 20 мм. Величины фокусных расстояний 90 мм и 20 мм были выбраны, как более «мягкая»/«острая» фокусировка по отношению к [11]. Отметим, что объектив вносил дополнительные потери на отражение (20%) по сравнению с линзами, поэтому максимальная энергия лазерного импульса, падающая на кристалл, в экспериментах с объективом не превышала 2,5 мкДж.

Для варьирования положения линейного фокуса внутри кристалла, последний закреплялся на подвижной платформе, сдвиг которой осуществлялся шаговым двигателем. Положение линейного фокуса внутри кристалла определяется по оси  $z$  и измеряется в миллиметрах (Рис. 5.6);  $z=0$  соответствует положению фокуса в середине кристалла, отрицательные значения  $z$  соответствуют смещению линейного фокуса в сторону задней грани.

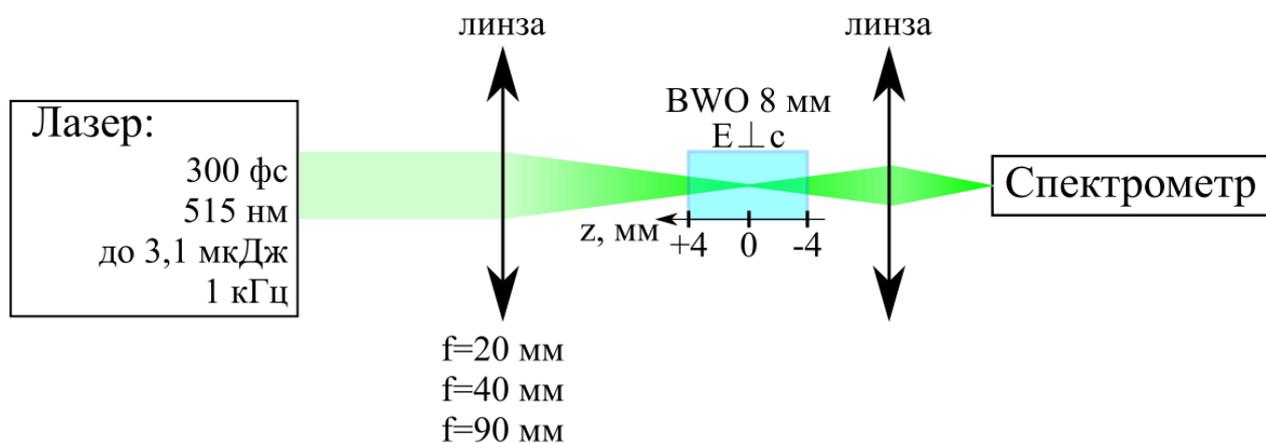


Рис. 5.6. Оптическая схема эксперимента. Ось  $z$  указывает положение линейного фокуса внутри кристалла.

На рис. 5.7а приведены примеры спектров лазерных импульсов, прошедших через BWO, при их фокусировке в центр кристалла ( $z=0$ ), которые соответствуют случаю наибольшей эффективности ВКР генерации сильнейшей ВКР моды кристалла BWO ( $\nu_l = 925 \text{ см}^{-1}$ ), измеренные при остроте фокусировки  $f=20$  мм, 40 мм и 90мм. Также измерена и представлена на рис. 5.7б эффективность генерации этой моды ( $\nu_l = 925 \text{ см}^{-1}$ ) в зависимости от энергии лазерного импульса для различной остроты фокусировок при  $z=0$  мм. Эффективность генерации определялась тем же путем, что и в работе [11]: как отношение площади контура ВКР компоненты к полной площади спектра прошедшего лазерного импульса. Погрешности измерения энергии лазерного импульса соответствуют стабильности лазерной системы и определяются как среднеквадратичное отклонение энергии лазерных импульсов на выходе лазерной системы.

Погрешность измерения эффективности связана со стабильностью амплитуды сигнала и точностью определения положения границ ВКР компоненты. Отметим, что отношение длины Релея ( $2\pi n \omega_0^2 / \lambda$ , где  $\omega_0$  – радиус пучка в перетяжке по уровню  $1/e$ ,  $n$  – показатель преломления ВВО,  $\lambda$  – длина волны) к длине кристалла при фокусных расстояниях 20 мм, 40 мм и 90 мм составили: 0,02; 0,08 и 0,41, соответственно. Таким образом, как и в работе [11] при всех фокусировках длина кристалла не ограничивала наиболее интенсивную часть пучка (перетяжку), определяющую эффективную длину нелинейного взаимодействия.

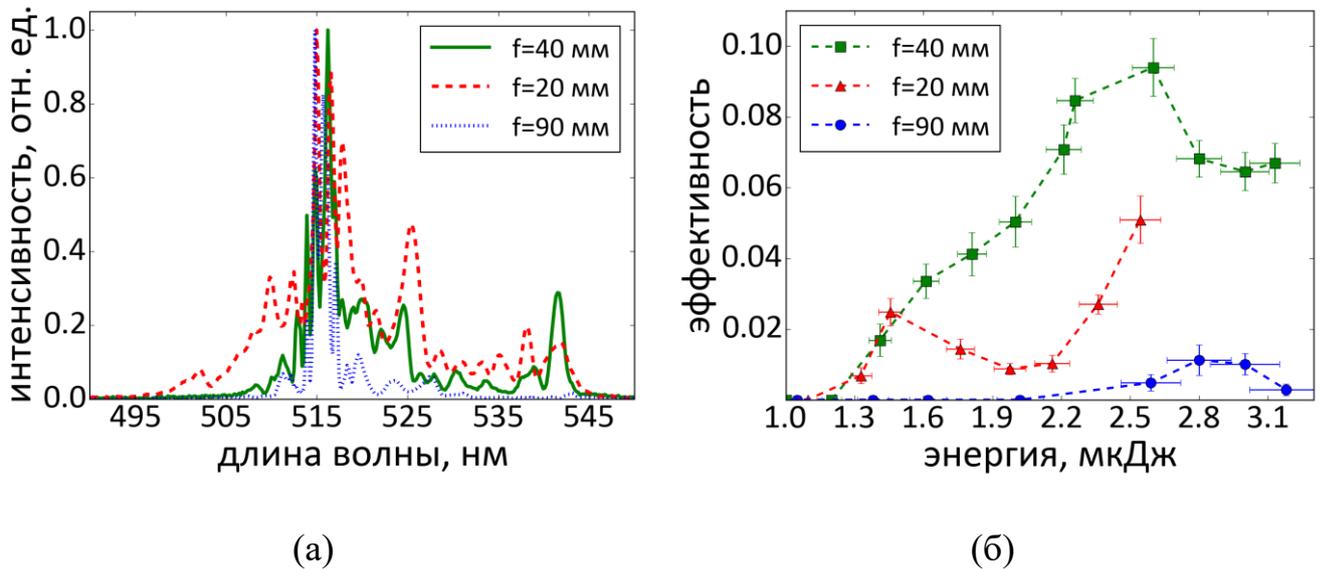


Рис. 5.7. а) Спектры излучения, прошедшего через кристалл ВВО, при максимальной эффективности генерации ВКР компоненты  $925 \text{ см}^{-1}$  при  $z=0 \text{ мм}$  и различной остроте фокусировки:  $f=20 \text{ мм}$ ,  $40 \text{ мм}$  и  $90 \text{ мм}$ ; б) Эффективность генерации ВКР компоненты  $\nu_l=925 \text{ см}^{-1}$  кристалла ВВО в зависимости от энергии лазерного импульса и различной остроте фокусировки:  $f=20 \text{ мм}$ ,  $40 \text{ мм}$  и  $90 \text{ мм}$ .

При «мягкой» фокусировке ( $f=90 \text{ мм}$ ) эффективность генерации ВКР линии оказалась наименьшей и составила  $\sim 1\%$ . При фокусировке линзой с фокусным расстоянием  $40 \text{ мм}$  была получена наибольшая эффективность преобразования ( $10\%$ ). При фокусировке объективом с фокусным расстоянием  $20 \text{ мм}$  эффективность достигала  $5\%$  при энергии  $2,5 \text{ мкДж}$ , при этом не

наблюдался спад эффективности при увеличении энергии. Поэтому, вероятно, при фокусировке  $f=20$  мм эффективность преобразования могла быть выше, но параметры используемого лазера не позволили реализовать режим с большей энергией.

В работе [11] эффективность ВКР генерации моды  $\nu_1$  достигала 20% при фокусировке линзой с фокусным расстоянием 35 мм, что в два раза больше полученной нами эффективности при  $f=40$  мм и  $z=0$ . В силу близости фокусных расстояний использованных линз данное различие может быть связано с другим фактором, например, с положением линейного фокуса в образце, что не указывалось в работе [11]. Для исследования влияния данного фактора была измерена зависимость эффективности ВКР генерации от положения линейного фокуса в кристалле. Смещая кристалл вдоль сфокусированного луча от исходного положения ( $z=0$ ) при энергии импульсов 2,6 мкДж (максимальная эффективность генерации при фокусировке линзой 40 мм), определялась амплитуда сильнейшей ВКР моды, измеренная спектрометром, в зависимости от положения линейного фокуса, где отрицательные значения  $z$  соответствуют смещению линейного фокуса в сторону задней грани (Рис. 5.8). В положениях отмеченными «молниями» наблюдалось появление плазменного факела, свидетельствующее о повреждении передней или задней грани кристалла. При смещении линейного фокуса от центра кристалла к его передней грани, наблюдалось уменьшение амплитуды ВКР линии, а при смещении к задней грани – достижение максимума при  $z \approx -1,8$  мм, и резкий спад при дальнейшем смещении фокуса к задней грани кристалла.

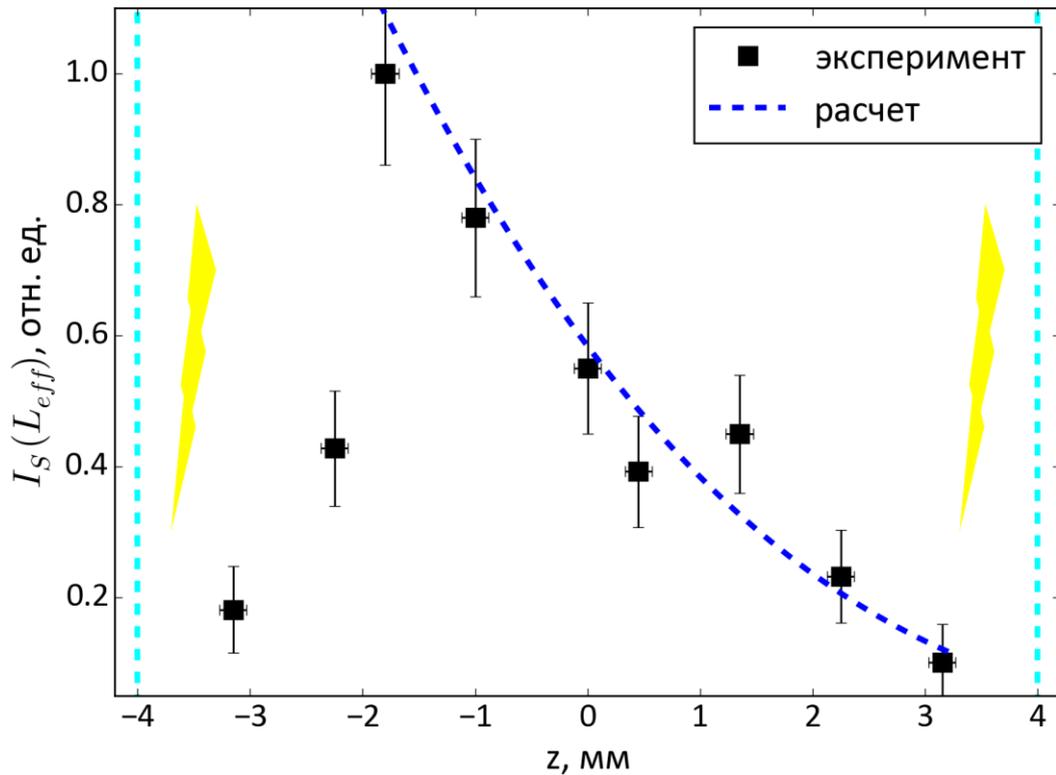


Рис. 5.8. Зависимость амплитуды сильнейшей ВКР моды от положения линейного фокуса внутри кристалла. Пунктир – расчет эффективности преобразования в зависимости от положения линейного фокуса с учетом изменения длины филамента.

Затем была измерена зависимость эффективности ВКР преобразования для моды  $\nu_1=925 \text{ см}^{-1}$  от энергии лазерных импульсов для двух положений: линейный фокус в центре кристалла ( $z=0$ ), и в положении  $z=-1,8$  мм, при котором наблюдалась максимальная амплитуда этой ВКР моды, зависимости представлены на рис. 5.9. Отметим, что при смещении координаты линейного фокуса изменилась оптимальная энергия лазерного импульса, при которой достигается максимальная эффективность ВКР преобразования. Так при сдвиге из  $z=0$  мм в положение  $z=-1,8$  мм, оптимальная энергия лазерного импульса для генерации моды со сдвигом  $925 \text{ см}^{-1}$  увеличилась с 2,6 мкДж до 2,8 мкДж. Максимальная эффективность генерации ВКР компоненты со сдвигом  $925 \text{ см}^{-1}$

составила 23%, что хорошо согласуется с результатами работы [11]. Эффективность генерации ВКР компоненты со сдвигом  $330 \text{ см}^{-1}$  при аналогичном смещении фокуса была увеличена с 40% до 70%. Для определения коэффициента преобразования по энергии был проведен дополнительный эксперимент. За кристаллом устанавливалась дифракционная решетка 1200 штр/мм, а с помощью диафрагмы в первом порядке дифракции выделялась часть спектра, соответствующая ВКР модам  $\nu_1$  или  $\nu_2$ . Отношение энергии стоксового импульса со сдвигом  $330 \text{ см}^{-1}$ , прошедшего через диафрагму, к энергии всего излучения, отраженного от дифракционной решетки в этом же порядке дифракции, составило 0,35, в то время как эффективность генерации этой ВКР компоненты, измеренная спектрометром, составила  $\sim 70\%$ . Таким образом, получено, что эффективности преобразования по спектральной яркости и по энергии отличаются в 2 раза.

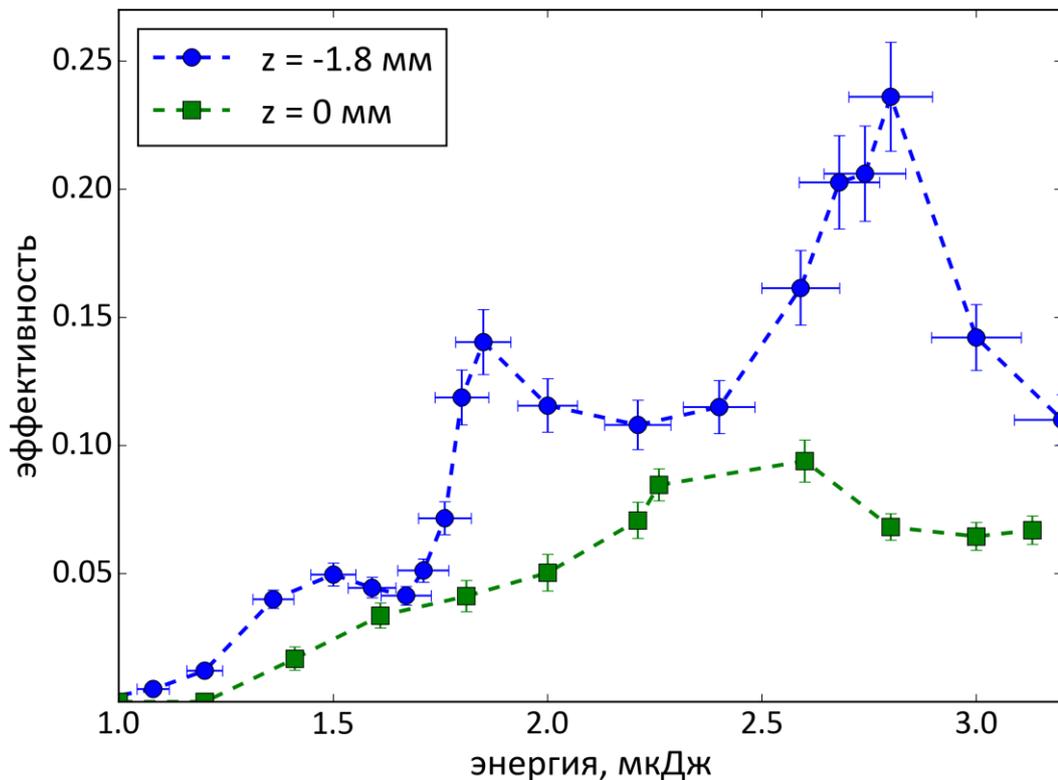


Рис. 5.9. Зависимость эффективности генерации моды  $925 \text{ см}^{-1}$  для двух положений  $z=0 \text{ мм}$  и  $z=-1,8 \text{ мм}$  от энергии лазерных импульсов.

Необходимо отметить, что экспериментальные зависимости эффективности ВКР преобразования от положения геометрического фокуса не могут быть объяснены в приближении, где область взаимодействия определяется только геометрической оптикой. В случае линейного распространения лазерного импульса в кристалле (учёт изменения размеров пучка только за счет фокусировки линзой) наибольшая эффективность ВКР преобразования достигается при  $z=0$  мм. Поскольку отношение длины Релея к длине кристалла равно 0,08 при фокусировке линзой с фокусным расстоянием 40 мм, то при смещении линейного фокуса на 1,8 мм в сторону задней грани эффективность должна уменьшаться незначительно (на  $\sim 3\%$ ). Таким образом, при рассмотрении конструктивной интерференции ВКР и ФСМ в кристалле ВВО необходимо учитывать также эффект СФ.

Вклад СФ в распределение интенсивности внутри кристалла, задаваемое линзой, будет зависеть от отношения мощности излучения к критической мощности СФ (Рис. 3.6). Для определения критической мощности СФ необходимо значение нелинейного показателя преломления, которое было нами измерено по характеру уширения спектра (Глава 4), однако отклик керровской нелинейности оказался немгновенным со временем отклика сопоставимым с длительностью импульса ( $\sim 300$  фс). Для кристалла ВВО в работе [77] проведено измерение нелинейного показателя преломления  $n_2=1,7 \times 10^{-15}$  см<sup>2</sup>Вт с помощью техники Z-сканирования с ограниченной апертурой [97], которая заключается в измерении изменения пространственного профиля излучения и не учитывает время отклика.

Используя выражение (1.7) мы получили, что критическая мощность СФ для наших условий составила:  $P_{cr}=0,13$  МВт, что соответствует энергии лазерного импульса  $E=40$  нДж. Следовательно, эффективная генерация ВКР компоненты со сдвигом  $925$  см<sup>-1</sup> реализуется при мощности лазерных импульсов значительно выше критической мощности СФ, что оказывает существенное влияние на геометрию взаимодействия.

Как отмечалось в Главе 3, СФ возникает только в образце ВВО поскольку критическая мощность СФ в воздухе ( $P_{cr}(\text{воздух}) \sim 10^9$  Вт [87], которая соответствует энергии лазерного импульса 0,4 мДж) значительно выше, чем энергия/мощность импульсов в нашем эксперименте.

При смещении образца вдоль сфокусированного луча, изменяется его размер на входной грани в образец и положение линейного фокуса внутри образца. Используя формулы (3.4), вычисляем радиус пучка при известном смещении образца от линзы, и подставляем в формулы (1.8) и (1.9) для определения координаты нелинейного фокуса, где  $f$  соответствует положению линейного фокуса внутри образца.

Смещение линейного фокуса от передней к задней грани кристалла приводит к увеличению нелинейного набега фазы и, как следствие, к более раннему коллапсу пучка (началу филамента). Исходя из модели движущихся фокусов конец филамента определяется линейным фокусом, так как нелинейный фокус соответствует схождению центральной части пучка (наиболее интенсивной), а между ним и линейным фокусом располагаются нелинейные фокуса менее интенсивных частей пучка. В этом случае длину филамента можно оценить как разность расстояний от линейного до нелинейного фокусов  $L_{eff} = f - z_{fil}$ . График зависимости длины филамента от положения линейного фокуса при энергии импульса 2,6 мкДж представлен на Рис. 5.10.

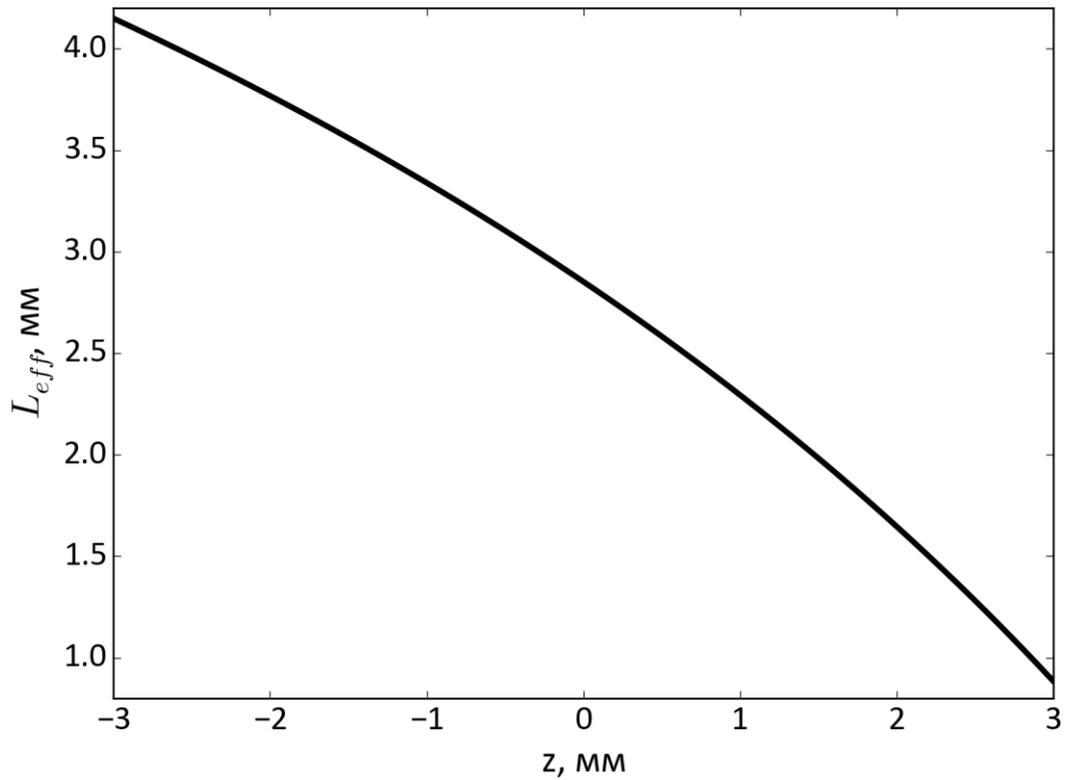


Рис. 5.10. Рассчитанная длина филамента от положения линейного фокуса внутри кристалла BWO длиной 8 мм при энергии лазерного импульса 2,6 мкДж.

При постоянных энергии лазерного импульса и параметрах фокусировки, интенсивность излучения внутри филамента можно считать постоянной (эффект «intensity clamping») [98]. При смещении линейного фокуса в сторону задней грани происходит увеличение длины филамента до  $\sim 4$  мм (Рис. 5.10), то есть увеличение длины нелинейного взаимодействия. Интенсивность излучения ВКР компоненты для нестационарного случая взаимодействия определяется формулой [1]:  $I_S(L_{eff}) = I_S(0) \exp\left(\sqrt{8gI_p t_p L_{eff}} / T_2\right)$ , где  $I_S(0)$  и  $I_S(L_{eff})$  – интенсивности стоксовой компоненты перед нелинейным фокусом и за линейным фокусом,  $I_p$  – интенсивность накачки,  $t_p$  – длительность импульса,  $T_2$  – время дефазировки среды,  $L_{eff}$  – эффективная длина взаимодействия (расстояние между нелинейным и линейным фокусом). Используя это выражение, проведён расчёт интенсивности ВКР линии от положения линейного фокуса, влияющего на длину филамента

(учитывается изменение длины взаимодействия за счет смещения кристалла, остальные параметры при вычислении не изменяются). Расчёт (Рис. 5.8 пунктир) показал хорошее согласие с экспериментом для  $z \geq -1,8$  мм. Однако при дальнейшем приближении линейного фокуса к задней грани  $z < -1,8$  мм в эксперименте наблюдался резкий спад амплитуды стоксовой ВКР компоненты, что не объясняется в представленной модели. Этот спад эффективности может быть связан со следующими факторами: 1) рассогласованием групповых скоростей импульсов ВКР и накачки, которое составляет 50 фс/мм для наших условий (на длине 4 мм временное «разбегание» между импульсами с длиной волны 515 нм и 540 нм составляет  $\sim 0,2$  пс, что сопоставимо с длительностью импульса накачки); 2) повреждением задней грани кристалла без появления яркого плазменного факела; 3) сохранением интенсивной части излучения за линейным фокусом лазерного луча (постфиламентационный канал [99]), который может давать вклад в ВКР усиление, но при смещении линейного фокуса в сторону задней грани кристалла постфиламентационный канал может быть ограничен геометрическими размерами кристалла.

### 5.3 Выводы

При филаментации субпикосекундных импульсов с длиной волны 515 нм в кристалле вольфрамата бария наблюдается последовательное формирование, усиление и затухание стоксовых компонент с частотным сдвигом соответствующим колебательным модам  $\nu_1$  и  $\nu_2$  этого кристалла. Последовательность формирования определяется величиной частотного сдвига, а не коэффициентом усиления, что свидетельствует о следующем механизме их генерации: сначала происходит формирование затравочного излучения за счет уширения спектра, вызванного фазовой самомодуляцией, которое при достижении частотного сдвига, соответствующего колебательным модам  $\nu_1$  и  $\nu_2$ , усиливается за счёт эффекта ВКР в этом же кристалле. Необходимо отметить, что в силу инерционности отклика кубической нелинейности ( $\sim 0,4$  пс), максимум

уширения спектра в стоксовое крыло находится по времени приблизительно в максимуме интенсивности импульса накачки (при длительности импульса 0,3 пс), а не на полувысоте (как при мгновенном отклике). Такая согласованность по времени и создает благоприятные условия для ВКР усиления сформированного затравочного излучения.

Варьирование параметров фокусировки указывает на сильный вклад СФ при распространении. Обнаружено, что наибольшая эффективность ВКР преобразования достигается при смещении линейного фокуса от передней грани кристалла в сторону задней грани, что приводит к увеличению нелинейного фазового набега, что, в свою очередь, приводит к увеличению расстояния между нелинейным и линейным фокусами. Данное расстояние определяет эффективную длину взаимодействия и, соответственно, величину ВКР усиления.

## Заключение

Данная работа посвящена исследованию физических факторов приводящих к аномально высокой эффективности вынужденного комбинационного рассеяния субпикосекундных импульсов в кристалле вольфрамата бария. В рамках подготовки диссертации получены следующие основные результаты:

1) Для описания распространения гауссового пучка с мощностью вплоть до критической мощности самофокусировки в среде с учетом влияния эффекта самофокусировки применим метод ABCD матриц при разбиении нелинейной среды на малые участки и действия дополнительных линз с фокусными расстояниями  $F=3,77nw^2/(4n_2I_0dz)$ , где  $n$  – показатель преломления среды,  $w$  – радиус пучка по уровню  $1/e^2$ ,  $n_2$  – нелинейный показатель преломления,  $I_0$  – интенсивность на оси,  $dz$  – шаг разбиения.

2) Значение нелинейного коэффициента преломления и время отклика кубической нелинейности для кристалла вольфрамата бария, усредненные по измерениям на длинах волн 515 нм и 1030 нм, составляют  $(6,4\pm 1,6)\times 10^{-15}$  см<sup>2</sup>/Вт и 0,4 пс, соответственно.

3) Максимальная эффективность вынужденного комбинационного рассеяния на колебательной моде  $\nu_2=330$  см<sup>-1</sup> в кристалле вольфрамата бария длиной 8 мм для лазерного импульса с длиной волны 515 нм и длительностью 300 фс достигается при фокусировке ( $NA\sim 0,02-0,04$ ), энергии импульса 0,19 мкДж, и смещению линейного фокуса излучения на 1,8 мм от центра в сторону задней грани кристалла, при этом энергия на частоте рассеянного излучения достигает ~35% от энергии всего импульса, прошедшего через кристалл.

4) Максимальная эффективность вынужденного комбинационного рассеяния на колебательной моде  $\nu_1=925$  см<sup>-1</sup> в кристалле вольфрамата бария длиной 8 мм для лазерного импульса с длиной волны 515 нм и длительностью 300 фс достигается при фокусировке ( $NA\sim 0,02-0,04$ ), энергии импульса 2,8 мкДж,

и смещению линейного фокуса излучения на 1,8 мм от центра в сторону задней грани кристалла, при этом энергия на частоте рассеянного излучения достигает ~10% от энергии всего импульса, прошедшего через кристалл.

**Благодарности.** Автор выражает глубокую благодарность и признательность своему научному руководителю Киняевскому Игорю Олеговичу за всестороннюю поддержку, помощь и научное руководство. Также автор благодарит Ковалева Валерия Ивановича за ценные обсуждения.

Особую благодарность автор выражает коллегам Данилову Павлу Александровичу и Смирному Никите Александровичу из лаборатории «Лазерной нанопластики и биомедицины» за помощь в проведении экспериментов. Также автор благодарит всех коллег из лаборатории «Фемтомекундной нелинейной оптики» за полезные обсуждения и за переданный бесценный опыт и навыки.

## Список литературы

1. Carman R.L., Shimizu F., Wang C.S., Bloembergen N. Theory of Stokes pulse shapes in transient stimulated Raman scattering // *Physical Review A*. – 1970. – Т. 2, – № 1. – С. 60.
2. Akhmanov S., Drabovich K., Sukhorukov A., Shchednova A. Combined Effects of Molecular Relaxation and Medium Dispersion in Stimulated Raman Scattering of Ultrashort Light Pulses // *Soviet Journal of Experimental and Theoretical Physics*. – 1972. – Т. 35, – № 2. – С. 279.
3. Maier W., Kaiser M. Stimulated Rayleigh, Brillouin and Raman spectroscopy // *Laser Handbook Vol.2*. – 1972. – Т. 2. – С. 1077.
4. Klewitz S., Sogomonian S., Woerner M., Herminghaus S. Stimulated Raman scattering of femtosecond Bessel pulses // *Optics Communications*. – 1998. – Т. 154, – № 4. – С. 186–190.
5. Grabtchikov A.S. и др. Observation of Raman conversion for 70-fs pulses in KGd(WO<sub>4</sub>)<sub>2</sub> crystal in the regime of impulsive stimulated Raman scattering // *Optics Letters*. – 2003. – Т. 28, – № 11. – С. 926.
6. Konyashchenko A. V., Losev L.L., Tenyakov S.Y. Raman frequency shifter for laser pulses shorter than 100 fs // *Optics Express*. – 2007. – Т. 15, – № 19. – С. 11855.
7. Grigsby F.B., Dong P., Downer M.C. Chirped-pulse Raman amplification for two-color, high-intensity laser experiments // *Journal*

- of the Optical Society of America B. – 2008. – Т. 25, – № 3. – С. 346.
8. Orlovich V.A. и др. Raman conversion of femtosecond laser pulses in crystals // *Laser Physics Letters*. – 2012. – Т. 9, – № 11. – С. 770–774.
  9. Murtagh M. и др. Efficient diamond Raman laser generating 65 fs pulses // *Optics Express*. – 2015. – Т. 23, – № 12. – С. 15504.
  10. Конященко А.В., Кострюков П.В., Лосев Л.Л., Пазюк В.С. Минимально возможная длительность лазерного импульса при ВКР // *Квантовая электроника*. – 2017. – Т. 47, – № 7. – С. 593–596.
  11. Kinyaevskiy I.O. и др. Highly efficient stimulated Raman scattering of sub-picosecond laser pulses in BaWO<sub>4</sub> for 10.6 μm difference frequency generation // *Optics Letters*. – 2020. – Т. 45, – № 8. – С. 2160.
  12. Daher N. и др. Raman wavelength conversion in a multipass cell // *Optics Letters*. – 2021. – Т. 46, – № 14. – С. 3380.
  13. Kinyaevskiy I.O. и др. Frequency down-conversion of a chirped Ti:sapphire laser pulse with BaWO<sub>4</sub> Raman shifter and second-order nonlinear crystal // *Laser Physics Letters*. – 2022. – Т. 19, – № 9. – С. 095403.
  14. Mitschke F.M., Mollenauer L.F. Discovery of the soliton self-frequency shift // *Optics Letters*. – 1986. – Т. 11, – № 10. – С. 659.
  15. Gordon J.P. Theory of the soliton self-frequency shift // *Optics Letters*. – 1986. – Т. 11, – № 10. – С. 662.

16. McClung F.J., Hellwarth R.W. Giant Optical Pulsations from Ruby // *Applied Optics*. – 1962. – Т. 1, – № S1. – С. 103.
17. Mocker H.W., Collins R.J. Mode competition and self-locking effects in a q-switched ruby laser // *Applied Physics Letters*. – 1965. – Т. 7, – № 10. – С. 270–273.
18. Demaria A.J., Stetser D.A., Heynau H. Self mode-locking of lasers with saturable absorbers // *Applied Physics Letters*. – 1966. – Т. 8, – № 7. – С. 174–176.
19. Sung J.H. и др. 4.2 PW, 20 fs Ti: sapphire laser at 0.1 Hz // *Optics letters*. – 2017. – Т. 42, – № 11. – С. 2058–2061.
20. Kiriya H. и др. Petawatt femtosecond laser pulses from titanium-doped sapphire crystal // *Crystals*. – 2020. – Т. 10, – № 9. – С. 1–20.
21. Li R. и др. 339 J high-energy Ti:sapphire chirped-pulse amplifier for 10 PW laser facility // *Optics Letters*. – 2018. – Т. 43, – № 22. – С. 5681–5684.
22. Lureau F. и др. 10 petawatt lasers for extreme light applications // *Solid State Lasers XXIX: Technology and Devices*. – SPIE, – 2020. – С. 53.
23. Chichkov B.N. и др. Femtosecond, picosecond and nanosecond laser ablation of solids // *Applied Physics A: Materials Science and Processing*. – 1996. – Т. 63, – № 2. – С. 109–115.
24. Ionin A.A. и др. Femtosecond laser modification of titanium surfaces: direct imprinting of hydroxylapatite nanopowder and wettability tuning

- via surface microstructuring // *Laser Physics Letters*. – 2013. – Т. 10, – № 4. – С. 045605.
25. Ionin A.A. и др. Direct femtosecond laser fabrication of antireflective layer on GaAs surface // *Applied Physics B: Lasers and Optics*. – 2013. – Т. 111, – № 3. – С. 419–423.
26. Sugioka K., Cheng Y. Ultrafast lasers-reliable tools for advanced materials processing // *Light: Science and Applications*. – 2014. – Т. 3, – № 4. – С. e149–e149.
27. Malinauskas M., Lukoševičius L., Butkus S., Paipulas D. Femtosecond pulse light filament-assisted microfabrication of biodegradable polylactic acid (PLA) material // *Journal of Laser Micro Nanoengineering*. – 2015. – Т. 10, – № 2. – С. 222–228.
28. Malinauskas M. и др. Ultrafast laser processing of materials: From science to industry // *Light: Science and Applications*. – 2016. – Т. 5, – № 8. – С. e16133–e16133.
29. Kolobov Y.R. и др. Structural transformation and residual stresses in surface layers of  $\alpha + \beta$  titanium alloys nanotextured by femtosecond laser pulses // *Applied Physics A: Materials Science and Processing*. – 2015. – Т. 119, – № 1. – С. 241–247.
30. Ionin A.A., Kudryashov S.I., Samokhin A.A. Material surface ablation produced by ultrashort laser pulses // *Uspekhi Fizicheskikh Nauk*. – 2017. – Т. 187, – № 2. – С. 159–172.

31. Hannaford P. Femtosecond laser spectroscopy // Springer Science & Business Media. – 2005. – 1–334 с.
32. Lundh O. и др. Few femtosecond, few kiloampere electron bunch produced by a laser-plasma accelerator // Nature Physics. – 2011. – Т. 7, – № 3. – С. 219–222.
33. Marceau V., Varin C., Brabec T., Piché M. Femtosecond 240-keV electron pulses from direct laser acceleration in a low-density gas // Physical Review Letters. – 2013. – Т. 111, – № 22. – С. 224801.
34. Breuer J., Hommelhoff P. Laser-based acceleration of nonrelativistic electrons at a dielectric structure // Physical Review Letters. – 2013. – Т. 111, – № 13. – С. 134803.
35. Leedle K.J. и др. Dielectric Laser Acceleration of Sub-100keV Electrons with Silicon Dual Pillar Grating Structures // Optics InfoBase Conference Papers. – 2016. – Т. 40, – № 18. – С. 4344–4347.
36. Wootton K.P. и др. Demonstration of acceleration of relativistic electrons at a dielectric microstructure using femtosecond laser pulses // Optics Letters. – 2016. – Т. 41, – № 12. – С. 2696.
37. Wollenhaupt M., Assion A., Baumert T. Femtosecond Laser Pulses: Linear Properties, Manipulation, Generation and Measurement // Springer Handbook of Lasers and Optics. – 2007. – С. 937–983.
38. Malitson I.H. Interspecimen Comparison of the Refractive Index of Fused Silica // Journal of the Optical Society of America. – 1965. – Т.

- 55, – № 10. – С. 1205.
39. Strickland D., Mourou G. Compression of amplified chirped optical pulses // *Optics Communications*. – 1985. – Т. 56, – № 3. – С. 219–221.
40. Ахманов С.А., Выслоух В.А., Чиркин А.С. Оптика фемтосекундных лазерных импульсов. – 1988.
41. Chiao R.Y., Garmire E., Townes C.H. Self-trapping of optical beams // *Physical Review Letters*. – 1964. – Т. 13, – № 15. – С. 479–482.
42. Marburger J.H. Self-focusing: Theory // *Progress in Quantum Electronics*. – 1975. – Т. 4, – № 1. – С. 35–110.
43. Таланов В.И. О фокусировке света в кубичных средах // *Письма в ЖЭТФ*. – 1970. – Т. 116, – № 6. – 303–305 с.
44. Келдыш Л.В. Ионизация в поле сильной электромагнитной волны // *Журнал экспериментальной и теоретической физики*. – 1964. – Т. 47, – № 5. – С. 1945–1958.
45. Grudtsyn Y. V. и др. Multiphoton and plasma absorption measurements in CaF<sub>2</sub> and UV fused silica at 473 nm // *Laser Physics Letters*. – 2021. – Т. 18, – № 3. – С. 035401.
46. Khazanov E.A., Mironov S.Y., Mourou G. Nonlinear compression of high-power laser pulses: compression after compressor approach // *Uspekhi Fizicheskikh Nauk*. – 2019. – Т. 189, – № 11. – С. 1173–1200.
47. Gustafson T.K. и др. Self-Modulation, Self-Steepening, and Spectral

- Development of Light in Small-Scale Trapped Filaments // *Physical Review*. – 1969. – Т. 177, – № 1. – С. 306.
48. Woodbury E., Nag W. First demonstration of stimulated Raman scattering // *Proc. IRE*. – 1962. – Т. 50, – № 6. – С. 2347.
49. Ахманов С.А., Коротеев Н.И. Методы нелинейной оптики в спектроскопии. – 1981.
50. Akhmanov S.A. Coherent Raman spectroscopy: From statics to dynamics and kinetics, progress in nonlinear methods // *Hyperfine Interactions*. – 1987. – Т. 38, – № 1–4. – С. 553–583.
51. Грасюк А.З. Комбинационные лазеры (обзор) // *Квантовая электроника*. – 1974. – Т. 1, – № 3. – С. 485–509.
52. Grasiuk A.Z., Zubarev I.G. High-power tunable IR Raman lasers // *Applied Physics*. – 1978. – Т. 17, – № 3. – С. 211–232.
53. Losev L.L., Soskov V.I. High-contrast ratio subpicosecond Nd:Glass laser with Raman master oscillator // *Optics Communications*. – 1997. – Т. 135, – № 1–3. – С. 71–76.
54. Dianov E.M., Prokhorov A.M. Medium-power CW Raman fiber lasers // *IEEE Journal on Selected Topics in Quantum Electronics*. – 2000. – Т. 6, – № 6. – С. 1022–1028.
55. Буфетов И.А. Докторская диссертация // ИОФАН. – 2002.
56. Желтиков А.М. Комбинационное рассеяние света в фемто- и

- аттосекундной физике // Успехи физических наук. – 2011. – Т. 181, – № 1. – С. 33–58.
57. Reichel J. и др. Raman cooling of cesium below 3 nK: New approach inspired by Lévy flight statistics // Physical Review Letters. – 1995. – Т. 75, – № 25. – С. 4575–4578.
58. Zel'dovich B.Y., Mel'nikov N.A., Pilipetskii N.F., Ragul'skii V. V. Observation of wave-front inversion in stimulated Raman scattering of light // JETP Lett. – 1977. – Т. 25, – № 1. – С. 36.
59. Černý P., Jelínková H. Near-quantum-limit efficiency of picosecond stimulated Raman scattering in BaWO<sub>4</sub> crystal // Optics Letters. – 2002. – Т. 27, – № 5. – С. 360.
60. Krylov V. и др. Femtosecond stimulated Raman scattering in pressurized gases in the ultraviolet and visible spectral ranges // Journal of the Optical Society of America B. – 1998. – Т. 15, – № 12. – С. 2910.
61. Jordan C., Stankov K.A., Marowsky G., Canto-Said E.J. Compression of femtosecond light pulses by stimulated Raman scattering // Conference on Lasers and Electro-Optics Europe - Technical Digest. – 1994. – Т. 59, – № 4. – С. 471–473.
62. Grigoryan G.G., Sogomonyan S.B. Synchronously pumped picosecond Raman laser utilizing an LiIO<sub>3</sub> crystal // Soviet Journal of Quantum Electronics. – 1989. – Т. 19, – № 11. – С. 1402–1404.

63. Frank M. и др. Synchronously-pumped all-solid-state SrMoO<sub>4</sub> Raman laser generating at combined vibrational Raman modes with 26-fold pulse shortening down to 1.4 ps at 1220 nm // Optics & Laser Technology. – 2019. – Т. 111. – С. 129–133.
64. Frank M. и др. Highly efficient picosecond all-solid-state Raman laser at 1179 and 1227 nm on single and combined Raman lines in a BaWO<sub>4</sub> crystal // Optics Letters. – 2018. – Т. 43, – № 11. – С. 2527.
65. Frank M. и др. Multi-wavelength picosecond BaWO<sub>4</sub> Raman laser with long and short Raman shifts and 12-fold pulse shortening down to 3 ps at 1227 nm // Laser Physics. – 2018. – Т. 28, – № 2. – С. 025403.
66. Herman R.M., Wiggins T.A. Production and uses of diffractionless beams // Journal of the Optical Society of America A. – 1991. – Т. 8, – № 6. – С. 932.
67. Gersten J.I., Alfano R.R., Belic M. Combined stimulated Raman scattering and continuum self-phase modulations // Physical Review A. – 1980. – Т. 21, – № 4. – С. 1222.
68. Желтиков А.М. Да будет белый свет: генерация суперконтинуума сверхкороткими лазерными импульсами // Успехи физических наук. – 2006. – Т. 176, – № 6. – С. 623–649.
69. Carpeggiani P.A. и др. Extreme Raman red shift: ultrafast multimode nonlinear space-time dynamics, pulse compression, and broadly tunable frequency conversion // Optica. – 2020. – Т. 7, – № 10. – С. 1349.

70. Basiev T.T. и др. Comparative spontaneous Raman spectroscopy of crystals for Raman lasers // *Applied Optics*. – 1999. – Т. 38, – № 3. – С. 594.
71. Suda J., Zverev P.G. Investigation of the phonon band gap effect on Raman-active optical phonons in BaWO<sub>4</sub> crystal // *Vibrational Spectroscopy*. – 2012. – Т. 62. – С. 85–91.
72. Зверев П.Г. и др. Вынужденное комбинационное рассеяние в кристаллах щелочноземельных вольфраматов // *Квантовая электроника*. – 2000. – Т. 30, – № 1. – С. 55–59.
73. Cerný P., Jelínková H., Zverev P.G., Basiev T.T. Solid state lasers with Raman frequency conversion // *Progress in Quantum Electronics*. – 2004. – Т. 28, – № 2. – С. 113–143.
74. Басиев Т.Т. Новые кристаллы для лазеров на вынужденном комбинационном рассеянии // *Физика твердого тела*. – 2005. – Т. 47, – № 8. – С. 1354–1358.
75. Lacomba-Perales R. и др. Optical absorption of divalent metal tungstates: Correlation between the band-gap energy and the cation ionic radius // *Europhysics letters*. – 2008. – Т. 83, – № 3. – С. 37002.
76. Ivleva L.I. и др. Growth of optically homogeneous BaWO<sub>4</sub> single crystals for Raman lasers // *Journal of Crystal Growth*. – 2007. – Т. 304, – № 1. – С. 108–113.
77. Vodchits A.I. и др. Nonlinear optical properties of BaWO<sub>4</sub> crystal //

- Optical Materials. – 2007. – Т. 29, – № 12. – С. 1616–1619.
78. Blow K.J., Wood D. Theoretical Description of Transient Stimulated Raman Scattering in Optical Fibers // IEEE Journal of Quantum Electronics. – 1989. – Т. 25, – № 12. – С. 2665–2673.
79. Kim Y.P., Hutchinson M.H.R. Intensity-induced nonlinear effects in UV window materials // Applied Physics B Photophysics and Laser Chemistry. – 1989. – Т. 49, – № 5. – С. 469–478.
80. Smith W.L., Bechtel J.H., Bloembergen N. Dielectric-breakdown threshold and nonlinear-refractive-index measurements with picosecond laser pulses // Physical Review B. – 1975. – Т. 12, – № 2. – С. 706–714.
81. DeSalvo R. и др. Infrared to ultraviolet measurements of two-photon absorption and  $n_2$  in wide bandgap solids // IEEE Journal of Quantum Electronics. – 1996. – Т. 32, – № 8. – С. 1324–1333.
82. Shimada T., Kurnit N.A., Sheik-Bahae M. Measurement of nonlinear index by a relay-imaged top-hat z-scan technique // 27th Annual Boulder Damage Symposium: Laser-Induced Damage in Optical Materials: 1995. – SPIE. – 1996. – Т. 2714. – С. 52.
83. Reyes D., Baudelet M., Richardson M., Rostami Fairchild S. Transition from linear- to nonlinear-focusing regime of laser filament plasma dynamics // Journal of Applied Physics. – 2018. – Т. 124, – № 5. – С. 53103.

84. Chekalin S. V, Kandidov V.P. From self-focusing light beams to femtosecond laser pulse filamentation // *Uspekhi Fizicheskikh Nauk.* – 2013. – Т. 183, – № 2. – С. 133–152.
85. Couairon A., Mysyrowicz A. Femtosecond filamentation in transparent media // *Physics Reports.* – 2007. – Т. 441, – № 2–4. – С. 47–189.
86. DeMartini F., Townes C.H., Gustafson T.K., Kelley P.L. Self-steepening of light pulses // *Physical Review.* – 1967. – Т. 164, – № 2. – С. 312–323.
87. Nibbering E.T.J. и др. Determination of the inertial contribution to the nonlinear refractive index of air, N<sub>2</sub>, and O<sub>2</sub> by use of unfocused high-intensity femtosecond laser pulses // *Journal of the Optical Society of America B.* – 1997. – Т. 14, – № 3. – С. 650.
88. Tzortzakis S. и др. Self-guided propagation of ultrashort ir laser pulses in fused silica // *Physical Review Letters.* – 2001. – Т. 87, – № 21. – С. 213902-1-213902–213904.
89. Tian Y., Gong C., Kong D., Hu X. Avalanche ionization during UV filamentation in fused silica: suppression of blueshifted spectra extent // *Journal of the Optical Society of America B.* – 2022. – Т. 39, – № 9. – С. 2435.
90. Schaffer C.B., Brodeur A., García J.F., Mazur E. Micromachining bulk glass by use of femtosecond laser pulses with nanojoule energy // *Optics Letters.* – 2001. – Т. 26, – № 2. – С. 93.

91. Milam D. Review and assessment of measured values of the nonlinear refractive-index coefficient of fused silica // *Applied Optics*. – 1998. – T. 37, – № 3. – С. 546.
92. Dubietis A., Couairon A. Ultrafast Supercontinuum Generation in Transparent Solid-State Media // *The Supercontinuum Laser Source*. – 2019. – 377–398 с.
93. Kovalev V.I. Dispersion of characteristics of optical nonlinear response used for phase conjugation // *Journal of Russian Laser Research*. – 1997. – Т. 18, – № 1. – С. 1–16.
94. George M. и др. Synthesis and third order optical nonlinearity studies of toluidine tartrate single crystal supported by photophysical characterization and vibrational spectral analysis // *Journal of Photochemistry and Photobiology A: Chemistry*. – 2020. – Т. 393. – С. 112413.
95. Zel'dovich B.Y., Tabiryán N. V. Orientational optical nonlinearity of liquid crystals // *Soviet Physics Uspekhi*. – 1985. – Т. 28, – № 12. – С. 1059–1083.
96. Boyd R.W., Gaeta A.L., Giese E. *Nonlinear Optics* // *Springer Handbooks*. – 2008. – С. 1097–1110.
97. Sheik-bahae M., Said A.A., Van Stryland E.W. High-sensitivity, single-beam  $n_2$  measurements // *Optics Letters*. – 1989. – Т. 14, – № 17. – С. 955.

98. Кандидов В.П. и др. Насыщение интенсивности в филаменте фемтосекундного лазерного излучения // Квантовая электроника. – 2011. – Т. 41, – № 4. – С. 382–386.
99. Geints Y., Minina O., Zemlyanov A. Self-channeling of spatially modulated femtosecond laser beams in the post-filamentation region // Journal of the Optical Society of America B. – 2022. – Т. 39, – № 6. – С. 1549.