УДК 535.2

Н.Ю. Вислобоков

Генерация континуального излучения в кварцевом стекле

Динамичное развитие наукоемких технологий, особенно в последние годы, и, в частности, создание лазерных систем, способных генерировать тераваттные импульсы фемтосекундной (менее 200 фс.) длительности, привело к возрождению интереса у исследователей к проблемам генерации суперконтинуума в сплошных оптических средах [1]. Это явление впервые наблюдали Альфано и Шапиро еще в шестидесятые годы прошлого века, сфокусировав мощный пикосекундный импульс в газе; впоследствии оно не раз наблюдалось учеными в газах, жидкостях и твердых телах [2–4].

Особый интерес представляет генерация континуального излучения в широко распространенных прозрачных диэлектриках типа сапфир, кварцевое стекло, которые являются сравнительно недорогими и широко распространенными диэлектрическими материалами. В то же время лазер с широкой спектральной полосой найдет применение в спектроскопии [4], устройствах компрессии импульсов [5], оптоволоконной олтике [6], оптической когерентной томографии, частотной метрологии. Причем следует заметить, что чем шире частотный диапазон лазерного излучения, тем больше поле потенциальных возможностей применения такого излучения.

Известно, что среди механизмов, влияющих на частотную континуацию, выделяют такие, как фазовая самомодуляция, самоукручение, четырехволновое смешение, ионизационные процессы. В ходе ряда исследований [4] было установлено, что генерация суперконтинуума мощным ультракоротким (УК) лазерным излучением в сплошной прозрачной среде – следствие скачкообразного изменения нелинейной фазы светового поля и возникновения ее временного градиента, обусловленного воздействием индуцированных фотоионизационных процессов (многофотонная, лавинная и туннельная ионизации) на распространяющееся лазерное излучение. В частности, генерация суперконтинуума пикосекундными импульсами обусловлена, по большей части, лавинным образованием электронной плазмы, что резко затрудняет применение диэлектриков, облучаемых импульсным оптическим излучением пикосекундной длительности, в качестве источников широкодиапазонного лазерного излучения, так как при формировании лавины плотность плазмы свободных электронов (ПСЭ) резко возрастает до критических значений, при которых происходит повреждение кристалла диэлектрика. В то же время при распространении в диэлектрике фемтосекундного лазерного импульса из-за его малой длительности электронная лавина не успевает развиться. Превалирующими плазмаобразующими процессами в этом случае являются многофотонная (МФИ) и туннельная ионизации, поэтому генерация континуального излучения возможна при плотности ПСЭ меньше критической, когда в кристалл диэлектрика не вносится структурных изменений [1, 3–4].

Заметим, что при этом далеко не всегда наблюдалось уширение спектра и в область высоких, и в область низких частот. В частности, при генерации континуального излучения в прозрачных диэлектриках, как правило, наблюдается широкий пьедестал спектра в сторону ультрафиолета и почти отсутствующее уширение в обратную сторону (в сторону низких частот) [1, 3, 4, 6], что является существенным недостатком. По аналогии с рядом современных работ в этой области, в случае, если речь идет о значительном уширении спектра излучения только в сторону высоких частот (уширение в сторону низких частот отсутствует либо незначительно), или же об уширении спектра излучения только в сторону высоких частот (уширение в сторону низких частот отсутствует либо незначительно), или же об уширении спектра излучения только в сторону низких частот (уширение в сторону высоких частот отсутствует либо незначительно), будем говорить о генерации континуального спектра; а в случае, если речь идет о заметном уширении частотного диапазона лазерного излучения как в область высоких, так и низких частот – о генерации суперконтинуума.

При выборе диэлектрика для численного исследования мы руководствовались в основном известными отличиями и преимуществами твердотельных материалов для генерации континуального излучения. Известно, например, что в ходе ряда экспериментов [1] была выявлена роль ширины запрещенной зоны диэлектрика как фактора, ограничивающего возможность генерации широкодиапазонного лазерного излучения. Отмечается [1], что при экспериментах по генерации суперконтинуума в различных жидкостях и твердых телах наблюдать значимое уширение спектра удавалось лишь в средах, ширина запрещенной зоны которых $U \ge 4.7 \text{ eB}$. При переходе от материалов с меньшей шириной запрещенной зоны к материалам с большей U отмечено небольшое увеличение ширины генерируемого спектра, но заметный рост минимальной мощности генерации суперконтинуума. Кварцевое стекло обладает большой для прозрачного диэлектрика запрещенной зоной ($U = 9 \, {
m eB}$) и в то же время является распространенным и недорогим материалом. В нем можно получить континуальное излучение с практически непрерывной спектральной полосой, обладающее узкой направленностью [3–4]. Индуцированный импульсом самоволноводный механизм обуславливает почти волноводное распространение «белого» пучка в среде [1]. Соответственно, кварцевое стекло, видимо, будет одним из наиболее перспективных материалов для генерации суперконтинуума.

Основным недостатком уже наблюдавшихся в кварцевом стекле континуальных спектров является резкая асимметричность: большое уширение спектра в область высоких частот и почти отсутствующее уширение в низкочастотную область [1, 3, 4, 6].

В данной работе мы представляем результаты исследования по генерации суперконтинуума (заметное уширение спектра как в сторону высоких, так и в сторону низких частот) сверхмощным фемтосекундным лазерным импульсом в кварцевом стекле и анализируем физическую природу этого явления. Полученное высоко- и низкочастотное уширение спектра становится возможным благодаря резкому изменению фазы после распада лазерного импульса на субимпульсы под воздействием фотоионизационных процессов.

Эволюция мощного ($P_{in}/P_{cr} > 1$, P_{in} – начальная мощность импульса, P_{cr} – критическая мощность самофокусировки) ультракороткого лазерного импульса, распространяющегося в диэлектрике с положительной нелинейно-

стью по большей части обусловлена воздействием на этот лазерный импульс двух постоянно конкурирующих между собой процессов: самофокусировки, обусловленной нелинейностью среды, и дефокусировки за счет электронной плазмы. Довольно сложным для исследования и в то же время очень интересным является случай динамической конкуренции между двумя этими эффектами, когда в процессе распространения то первый, то второй процесс оказывается доминирующим. Получить режим динамической конкуренции можно, облучая образец кварцевого стекла сверхмощным ($P_{in}/P_{cr} > 10$) УКИ. Длительность импульса при этом должна быть достаточно малой для того, чтобы не допустить развития электронной лавины, последствием которой будет оптический пробой материала. Интересен этот случай во многом тем, что заметные изменения претерпевает не только пространственно-временной профиль импульса, но и его спектр. Возможно наблюдение эффекта значительного уширения частотного диапазона излучения как в сторону высоких, так и в сторону низких частот – генерации суперконтинуального излучения.

Для корректного описания рассматриваемого процесса необходимо использовать модифицированное уравнение Шредингера, в котором учтены не только такие эффекты, как дифракция, дисперсия, керровская нелинейность, но и нелинейность пятого порядка, а также многофотонная, лавинная и туннельная ионизации [7–10].

Соответствующее уравнение для поля УКИ, распространяющегося в образце:

$$\frac{\partial E}{\partial z} = \frac{i}{2\mathbf{k}} \left(\frac{\partial^2}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \right) \hat{T}^{-1} E - i \frac{\beta_D}{2} \frac{\partial^2 E}{\partial \tau^2} + P_{nl} , \qquad (1)$$

$$P_{nl} = ik_0 n_2 \hat{T} |E|^2 E + ik_0 n_4 \hat{T} |E|^4 E - \frac{\sigma_{IBS}}{2} \hat{T}^{-1} (1 + i\omega_0 \tau_c) \rho E - \frac{1}{2} \frac{W_{PI}U}{|E|^2} E, \quad (2)$$
$$\hat{T} = \left(1 + \frac{i}{\omega_0} \frac{\partial}{\partial \tau}\right),$$

где E – напряженность электрического поля, z – продольная координата, r – поперечная координата, $\tau = t - z/v_g$ – время в движущейся с импульсом системе координат, $v_g = \partial \omega / \partial k |_{\omega_0}$ – групповая скорость, $k_0 = n_0 \omega / c$ – волновой вектор на входе в среду, $\beta_D = \partial^2 k / \partial \omega^2 |_{\omega_0}$ – коэффициент дисперсии групповой скорости, n_0 – линейная часть показателя преломления, n_2 и n_4 – нелинейные части показателя преломления, σ_{IBS} – поперечное сечение обратного тормозного излучения, следуя модели Друдде-Стюарта [11] $\sigma_{IBS} = k\omega_0 \tau_c / [n_0^2 \rho_{cr} (1 + \omega_0^2 \tau_c^2)]$, ω – частота лазерного излучения, ω_0 – частота лазерного излучения, ρ_0 – частота лазерного в среде, ρ_{cr} – критическая плотность ПСЭ, $W_{PI}(|E|)$ – скорость фотонной ионизации, U – ширина запрещенной зоны диэлектрика.

В модели также следует учесть изменение плотности свободных электронов, обусловленное действием поля проходящего импульса. Соответствующее эволюционное уравнение для плотности ПСЭ, учитывающее многофотонную ионизацию, туннелирование электронов из валентной зоны в зону проводимости, через запрещенную зону диэлектрика, лавинную ионизацию можно представить в виде:

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} = W_{PI} + \eta \rho \left| E \right|^2 - \frac{\rho}{\tau_r}.$$
(3)

В уравнении (3) $\eta = \sigma_{IBS} / U_+ \tau_r$ – время релаксации среды.

Первое слагаемое в правой части (3) описывает вклад фотонной ионизации в генерацию свободных электронов, в то время как влияние лавинного образования ПСЭ представлено в уравнении вторым слагаемым. Третье слагаемое учитывает рекомбинацию электронов.

Согласно результатам проведенных исследований [10], наилучшее согласование численных расчетов с экспериментальными данными при сверхвысоких интенсивностях ($I \approx 3.5 \cdot 10^{13}$ Вт/см²) было достигнуто при вычислении $W_{_{PI}}$ способом, который предложил Келдыш [12].

Для решения самосогласованной системы уравнений (1–3) использовалась составленная автором численная схема. При верификации компьютерной модели был проведен ряд расчетов, моделирующих известные эксперименты [1, 3, 4, 6]. Результаты, полученные нами при численном моделировании, соответствовали результатам этих экспериментов [1, 3, 4, 6]. Так, например, при расчетах был получен континуальный спектр для импульса с $\tau_p = 140 \, {\rm cm}$ в кварцевом стекле (модель эксперимента из [1]). Полученный спектр изображен на рис. 1, видно, что он асимметричен; обладает большим высокочастотным «крылом» и почти отсутствующим низкочастотным, что согласуется с экспериментальными наблюдениями [1].

В ходе проведенного нами численного исследования изучалась динамика изменения пространственно-временного профиля интенсивности сверхмощного УК импульса, распространяющегося в кварцевом стекле совместно с эволюцией его спектра. Полученные при компьютерном моделировании данные позволяют узнать пространственно-временной профиль импульсного пучка, определить его основные параметры и характеристики, в том числе спектральные, практически в любой точке на пути его распространения в диэлектрике. В численных расчетах использовались параметры среды, соответствующие кварцевому стеклу. Используемые параметры сверхмощного импульсного излучения согласованы с реальными возможностями современных лазеров. На вход в кристалл кварцевого стекла подавался гауссов импульс.

Обратимся к одному из наиболее интересных результатов исследования. Рассмотрим подробнее эволюцию УКИ с $w_0 = 30$ мкм и $\tau_p = 100$ фс в кварцевом стекле при условиях, когда мощность импульса на входе значительно превосходит критическую мощность самофокусировки ($P_m / P_{cr} = 30$). Попадая в кристалл кварцевого стекла, такой импульс начинает фокусироваться. Эффект самофокусировки оказывает значительное воздействие уже на передний фронт импульса, его крутизна резко увеличивается. В то же время, благодаря энергии, полученной электронами от лазерного импульса за счет ионизации, резко возрастает плотность электронной плазмы. Вклад дефокусировки на электронной плазме довольно быстро увеличивается настолько,

Далее лазерное излучение распространяется в условиях динамической конкуренции между фокусирующими и дефокусирующими силами, когда преобладающими являются то одни, то другие и, соответственно, фазы фокусировки сменяются фазами дефокусировки. Форма пространственно-временной

что она может конкурировать с самофокусировкой.

огибающей интенсивности импульсного пучка при этом претерпевает заметные изменения. Распространяющийся в таких условиях импульсный пучок, потеряв более 40% своей начальной энергии, расслаивается на три субимпульса 2а), каждый из которых, за исключением первого, распространяется в диэлектрической среде, ионизированной предыдущим(и) субимпульсом(и). При дальнейшем распространении в кристалле первый субимпульс продолжает фокусироваться (рис. 26). Пиковая интенсивность второго, идущего на небольшом удалении от первого и находящегося в сильном поле образованной им ЛСЭ, в процессе распространения уменьшается. В то же время интенсивность третьего субимпульса, который «идет» на большем расстоянии от первого, чем второй и, соответственно, распространяется в поле с меньшей плотностью ПСЭ, также достигает достаточно больших значений (рис. 2в). Постепенно пространственно-временная огибающая интенсивности импульса принимает специфическую форму [13]: большая часть энергии локализована в двух осевых филаментах. Такая энергетическая структура распространяется в диэлектрике на протяжении некоторого времени.

Особенно интересно то, что распространение такого специфического импульсного пучка сопровождается резким уширением спектра импульса. Это хорошо видно на рис. 3. Причем следует заметить: низкочастотное уширение спектра на рис. 3 сравнимо с высокочастотным, в отличие от континуального спектра, изображенного на рис. 1 (спектральные портреты, аналогичные изображенному на рис. 1, уже наблюдались в кварцевом стекле). Наблюдается так называемая суперконтинуация спектра лазерного излучения. Деформация такой специфической формы пространственно-временной огибающей интенсивности приводит к тому, что спектр импульса распадается на отдельные гармоники.



Рис. 1. Высокочастотный континуальный спектр, генерируемый 140фс импульсом в кварцевом стекле, полученный автором при численном моделировании ($P_{in}/P_{cr} = 1.1$, пунктирной кривой изображен исходный спектр лазерного импульса, $\omega' = 1/\lambda$, $\omega'_0 = 12500$ см⁻¹).



Рис. 2. Временной профиль огибающей интенсивности в центре пучка при а) $\zeta = 0.19$, б) $\zeta = 0.25$, е) $\zeta = 0.31$ (продольная координата ζ нормирована на дифракционную длину, $w_0 = 30$ мкм, $\tau_p = 100$ фс, $P_{in}/P_{cr} = 30$).



Рис. 3. Континуальный спектр, генерируемый 100 фс импульсом в кварцевом стекле при $P_{in}/P_{cr} = 30$ (сплошная кривая); пунктирной кривой изображен исходный спектр лазерного импульса (ω' = 1/λ, ω'₀ = 12500 см⁻¹).

Напомним, что генерация континуального излучения при филаментации фемтосекундных лазерных импульсов в сплошной прозрачной среде является следствием самомодуляции фазы светового поля в условиях сильной его локализации в пространстве и времени. Частотный сдвиг излучения в каждой точке пространства и времени определяется величиной временного градиента нелинейной фазы φ_{nl} [1]. Скорость изменения φ_{nl} , а следовательно, и уширение спектра лазерного излучения в кристалле диэлектрика обусловлено наведенным изменением показателя преломления Δn . В частности, уширение частотного спектра импульсного пучка в сторону низких частот определяется скоростью роста фазы на переднем фронте импульса, а высокочастотная континуация частотного диапазона обусловлена крутизной заднего фронта.

Это позволяет объяснить, почему при генерации континуального излучения в диэлектриках, как правило, наблюдается заметный высокочастотный пьедестал, а низкочастотное уширение почти отсутствует: крутизна переднего фронта импульса такова, что уширение спектра за счет скачка фазы здесь оказывается весьма незначительным, а изменение фазы на заднем фронте импульса обусловлено преимущественно ионизацией и здесь φ_{nl} спадает в несколько раз быстрее (за $\tau_{f_{-}} \approx 1.5 \, \text{фc}$), чем возрастало ($\tau_{f_{-}} \ge 10 \, \text{фc}$), и скорость изменения фазы оказывается весьма незначителя в полне достаточной для генерации континуального излучения в сторону высоких частот.

Когда через кристалл диэлектрика проходит сверхмощный УК импульсный пучок, после распространения в режиме динамической конкуренции между нелинейными и ионизационными эффектами при определенных условиях он распадается на субимпульсы, распространяющиеся в непосредственной близости друг от друга; такой процесс деформации лазерного импульса качественно аналогичен процессу филаментации мощного лазерного излучения в воздухе, который, как известно [5], в ряде случаев также сопровождается генерацией суперконтинуального излучения.

Так, передний фронт первого субимпульса распространяется в нейтральной среде и рост фазы, обусловленный, преимущественно, самофокусировкой, здесь происходит довольно медленно (в наших расчетах – $10 \div 35 \,$ фс), в отличие от заднего фронта, где изменение фазы обусловлено фотоионизационными процессами, и φ_{nl} спадает за время порядка 1.5 фс. В то же время хвостовой субимпульс образовался в результате взаимодействия мощного светового излучения с диэлектриком и электронной плазмой и распространяется в поле первого субимпульса, поэтому ионизационные процессы играют ведущую роль в формировании как его переднего фронта, так и заднего (для хвостового субимпульса $\tau_{f_+} \approx \tau_{f_-} \approx 1.5 \div 3 \,$ фс). Именно за счет большой кру-

тизны переднего фронта последнего субимпульса мы и наблюдаем на рис. 3 суперконтинуальное уширение частотного диапазона лазерного импульса в сторону низких частот.

Отметим, что сравнительный анализ расчетов, с учетом ионизации только за счет МФИ и трех основных фотоионизационных механизмов (МФИ, лавинная ионизация, туннельный эффект), показал, что причиной генерации континуального спектра излучения являются ионизационные процессы, индуцированные высокоинтенсивным импульсным лазерным излучением, распространяющимся в кристалле диэлектрика. Кроме того, получение суперконтинуального спектра стало возможным только тогда, когда были учтены не только туннельная и лавинная ионизации, но и нелинейность пятого порядка.

Максимальное значение, достигаемое плотностью ПСЭ, не превышало критической плотности, превышение которой влечет за собой внесение изменений в кристалл диэлектрика [10].

Таким образом, в ходе нашего исследования изучен ряд особенностей распространения мощных ($P_{in} / P_{cr} > 10$) УК импульсов фемтосекундной длительности в кварцевом стекле в условиях динамической конкуренции самофокусировки и дефокусировки, обусловленной фотоионизацией.

Показано, что для $P_{in}/P_{cr} \approx 30$, при определенных параметрах, возможна генерация суперконтинуального излучения в кварцевом стекле (значительное уширение спектра как в сторону высоких, так и в сторону низких частот, в то время как ранее, как нам известно, при облучении диэлектриков 800 нм. лазерным излучением наблюдалась генерация континуального спектра в кварцевом стекле с заметным уширением спектра только в высокочастотную область).

Анализируются воздействие индуцированных процессов на распространяющееся лазерное излучение, в частности, связь эволюционных изменений пространственно-временной огибающей интенсивности лазерного импульса в кварцевом стекле, скорости изменения нелинейной фазы и генерируемого им спектра. Полученное уширение частотного диапазона излучения становится возможным за счет скачкообразного изменения фазы, обусловленного наведенными фотоионизационными процессами в кварцевом стекле.

ЛИТЕРАТУРА

1. Brodeur, A. Ultrafast white-light continuum generation and self-focusing in transparent condensed media / A. Brodeur , S.L. Chin // J. Opt. Soc. Am. B. – 1999. – № 16(4). – P. 637–650.

- Alfano, R.R. Emission in the region 4000 to 7000 Å via four photon coupling in glass / R.R. Alfano, S.L. Shapiro // Phys. Rev. Lett. – 1970. – № 24. – P. 584–587.
- 3. Dharmadhikari, A.K. Highly efficient white light generation from barium fluoride / A.K. Dharmadhikari [et al.] // Opt. Express. 2004. № 12. P. 695–700.
- 4. Dharmadhikari, A.K. Systematic study of highly efficient white light generation in transparent materials using intense femtosecond laser pulses / A.K. Dharmadhikari, F.A. Rajgara, D. Mathur // Appl. Phys. B. 2005. № 80. P. 61–66.
- 5. Желтиков, А.М. Да будет белый свет: генерация суперконтинуума сверхкороткими лазерными импульсами / А.М. Желтиков // УФН. 2006. № 176. Р. 623–649.
- 6. Salimínia, A. Ultra-broad and coherent white light generation in silica glass by focused femtosecond pulses at 1.5 um / A. Saliminia, S.L. Chin, R. Vallée // Optics Express. 2005. № 13(15). P. 5731–5738.
- Tzortzakis, S. Self-Guided Propagation of Ultrashort IR Laser Pulses in Fused Silica / S. Tzortzakis [et al.] // Phys. Rev. Lett. – 2001. – № 87. – P. 213902–213905.
- 8. *Gaeta, A.L.* Catastrophic collapse of ultrashort pulses / A.L. Gaeta // Phys. Rev. Lett. 2000. № 84. P. 3582–3585.
- 9. Sudrie, L. Femtosecond Laser-Induced Damage and Filamentary Propagation in Fused Silica / L. Sudrie [et al.] // Phys. Rev. Lett. 2002. № 89(18). P. 186601–186604.
- 10. Couairon, A. Filamentation and damage in fused silica induced by tightly focused femtosecond laser pulses / A. Couairon [et al.] // Phys. Rev. B. 2005. № 71(12). P. 125435–125445.
- Stuart, B.C. Nanosecond-to-femtosecond laser-induced breakdown in dielectrics / B.C. Stuart [et al.] // Phys. Rev. B. – 1996. – № 53. – P. 1749–1761.
- 12. *Келдыш, Л.В.* Ионизация в поле сильной электромагнитной волны / Л.В. Келдыш // ЖЭТФ. 1964. № 47. Р. 1945–1957.
- 13. **Вислобоков, Н.Ю.** Генерация низко- и высокочастотного континуального излучения фемтосекундными импульсами в кварцевом стекле / Н.Ю. Вислобоков, А.П. Сухоруков // Квантовая электроника. 2007. № 37. С. 1015–1020.

SUMMARY

We report a numerical investigation of continuum generation by powerful ultrashort laser pulse under the high photo-ionization conditions in fused silica. The process of such pulse shattering in fused silica accompanied by and high- and low frequency continuum generation has been simulated. Used mechanism of frequency spectrum extending seems the most perspective for the wide-range radiation generation.

Поступила в редакцию 11.03.2008