

**ГЕНЕРАЦИЯ СУПЕРКОНТИНУУМА В РЕЖИМЕ
ФИЛАМЕНТАЦИИ МОЩНЫМИ ФЕМТОСЕКУНДНЫМИ
ЛАЗЕРНЫМИ ИМПУЛЬСАМИ В СВЕРХКРИТИЧЕСКОМ
КСЕНОНЕ И ДИОКСИДЕ УГЛЕРОДА**

**¹В. Н. Баграташвили, ²В. М. Гордиенко, ²Е. И. Мареев*,
³Н. В. Минаев, ²А. В. Рагульская, ²Ф. В. Потемкин**

¹*Московский государственный университет им. М.В. Ломоносова, химический факультет,
Москва, Россия*

²*Московский государственный университет им. М.В. Ломоносова, физический факультет
и Международный лазерный центр, Москва, Россия*

³*Институт проблем лазерных и информационных технологий РАН,
Троицк (Москва), Россия*

*mareev.evgeniy@physics.msu.ru

Поступила в редакцию 21.10.2015 г.

Установлено, что сверхкритические (СК) флюиды являются уникальным источником мультиоктавного излучения суперконтинуума, возникающего при филаментации мощного фемтосекундного лазерного излучения. При мощностях лазерных импульсов, существенно превышающих критическую мощность самофокусировки, достигнута генерация суперконтинуума шириной в три с половиной октавы (от 350 до 2000 нм) в СК ксеноне. В СК-СО₂ красное крыло суперконтинуума простирается в виде плато от 1400 до 1900 нм при практически полном ослаблении синего крыла в спектре.

Ключевые слова: сверхкритические флюиды, фемтосекундная филаментация, генерация суперконтинуума.

ВВЕДЕНИЕ

Нелинейные взаимодействия сверхкоротких лазерных импульсов с жидкостями и газами традиционно привлекают внимание исследователей в силу их высокой однородности и возможности простого управления геометрическими размерами среды. В этих взаимодействиях основными управляющими параметрами являются интенсивность лазерного излучения, состав и плотность среды, а также длина нелинейного взаимодействия [1]. При этом плотность среды можно менять лишь для газов и, как правило, в ограниченных пределах. Новые возможности возникают при использовании для исследования нелинейного взаимодействия мощного лазерного излучения с плотной средой сверхкритических флюидов (СКФ) [2], состав которых характеризуется наличием как свободных молекул (атомов), так и слабосвязанных молекулярных (атомных) кластеров. Поскольку в общем случае проявление нелинейных процессов зависит от концентрации частиц в единице объема, то уникальная возможность плавного управления плотностью частиц в СКФ путем изменения давления и/или температуры (когда атомный или молекулярный состав среды остается неизменным [3—5]) является весьма

интересной для изучения процессов распространения в плотной среде фемтосекундного лазерного излучения и эффективных нелинейных процессов фазовой самомодуляции, генерации спектрального суперконтинуума и филаментации. Генерация суперконтинуума представляет интерес для спектроскопии фотохимических процессов [6], синтеза аттосекундных импульсов [7], создания фемтосекундных часов [8], ИК параметрических усилителей и др.

При использовании полых волноводов, заполненных сверхкритическим ксеноном, в работе [6] наблюдался процесс генерации сверхширокого спектра оптического излучения (суперконтинуума) в условиях, когда нелинейный показатель среды находился на уровне нелинейного показателя твердого тела (кварца). В реализованной схеме плотность энергии в волокне, однако, была ограничена на уровне $0,6 \text{ Дж/см}^2$ при интенсивности не более 4 ТВт/см^2 при мощности фемтосекундного лазерного импульса, примерно в 6 раз превышающей критическую мощность самофокусировки. Проведение подобных экспериментов в свободном объеме (а не в условиях полого световода с близкорасположенными стенками, как в [6]) позволяет реализовать режим филаментации фемтосекундного лазерного импульса, т. е. самоканалирования лазерного излучения за счет динамического баланса между керровской самофокусировкой, плазменной дефокусировкой, дифракцией и дисперсией. В результате энергия локализуется в тонких каналах диаметром $\sim 80 \text{ мкм}$. Это приводит к существенному увеличению длины нелинейно-оптического взаимодействия за счет самоканалирования лазерного импульса, что является определяющим для генерации суперконтинуума. Кроме того, изменение плотности СКФ (за счет нагрева или увеличения давления) также важно для эффективного управления нелинейно-оптическими свойствами среды.

Таким образом, использование оптически прозрачных сред, которые допускают переход из газообразного состояния в сверхкритическое, дает возможность изменять в свободном объеме величину макроскопической нелинейности и, тем самым, ход нелинейных процессов в широких пределах за счет изменения интенсивности лазерного излучения и при различных условиях проявления дисперсии групповых скоростей вплоть до смены ее знака [1].

Целью настоящей работы является изучение особенностей нелинейно-оптических процессов (фазовая самомодуляция, генерация суперконтинуума и филаментация), возникающих при взаимодействии мощного фемтосекундного лазерного излучения ближнего ИК диапазона с ксеноном и диоксидом углерода при высоких плотностях газов и в СКФ условиях.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

Сверхкритические флюиды сочетают в себе свойства газов и жидкостей, имея высокие плотности и нелинейные оптические свойства [3, 9, 10]. Для исследования процессов взаимодействия мощного фемтосекундного лазерного излучения с СКФ средами нами были выбраны ксенон и диоксид углерода. Ввиду того, что ксенон является атомарным газом, а углекислый газ — молекулярным, в исследованиях можно определить также роль молекулярных колебаний в нелинейном формировании спектра суперконтинуума.

Достаточно высокие плотности среды, характерные для СКФ, обеспечивают сравнимые с твердотельными (и даже иногда их превосходящие) величины нелинейного показателя преломления (n_2). На рис. 1 (см. цв. вкладку) приведена зависимость n_2 от давления при температуре 293 К для Хе и 311 К для CO_2 ,

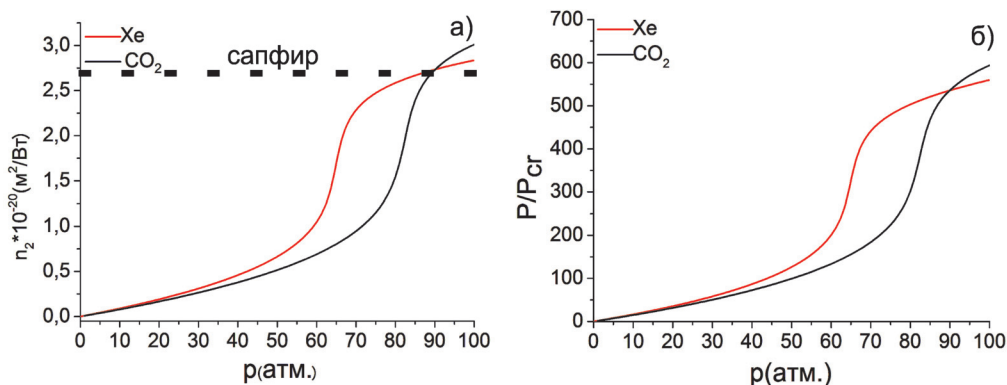


Рис. 1. Зависимость нелинейного показателя преломления n_2 (а) и отношения мощности лазерного излучения к критической мощности самофокусировки (б) от давления для ксенона и углекислого газа. Значения n_2 получены, считая нелинейный показатель преломления пропорциональным плотности среды. Пунктиром на рис. 1а отмечено значение n_2 для сапфира [15]

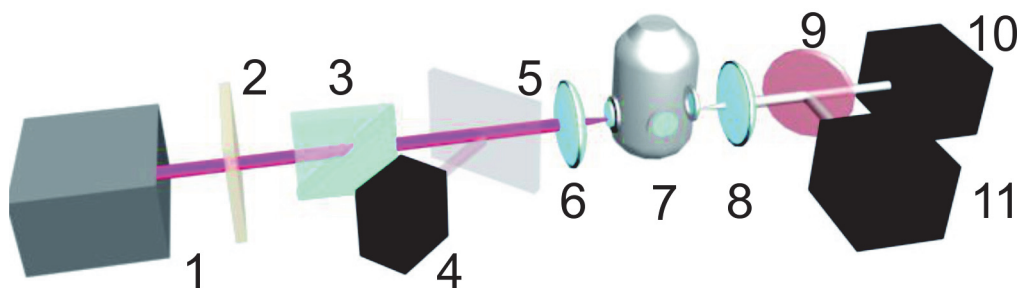


Рис. 2. Схема экспериментальной установки:

1 — хром-форстеритовая лазерная система; 2 — полуволновая пластина; 3 — призма Глана; 4 — фотодетектор; 5, 9 — светоделительные пластины; 6 — фокусирующая линза с фокусным расстоянием 6 см; 7 — СКФ кювета; 8 — коллимирующая линза; 10 — спектрометр на видимый диапазон; 11 — спектрометр ИК диапазона

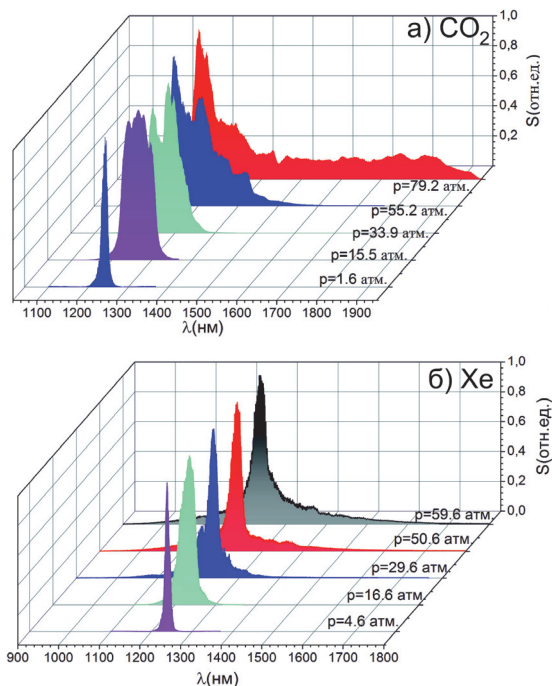


Рис. 3. Эволюция спектра суперконтинуума при филаментации фемтосекундного импульса в диоксиде углерода (а) и ксеноне (б) в ближнем ИК диапазоне (все спектры нормированы на максимальное значение амплитуды; спектры при максимальных давлениях соответствуют СК состоянию среды)

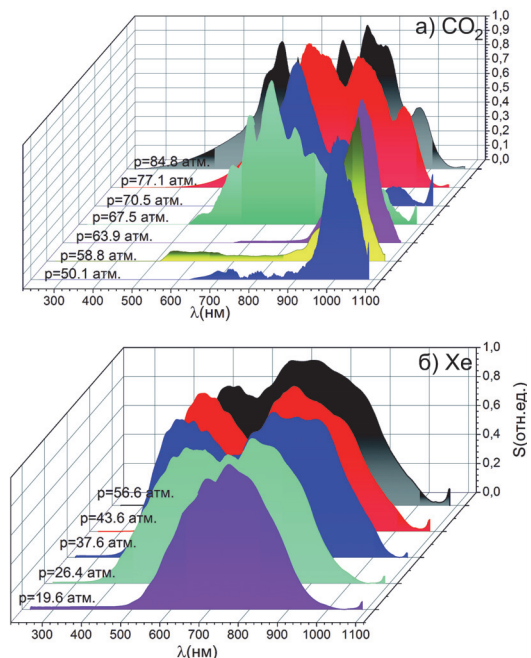


Рис. 4. Эволюция спектра суперконтинуума при филаментации фемтосекундного импульса в диоксиде углерода (а) и ксеноне (б) в видимом диапазоне длин волн (все спектры нормированы на максимальное значение амплитуды; спектры при максимальных давлениях соответствуют СК состоянию среды)

рассчитанная с учетом того, что нелинейный показатель преломления пропорционален плотности среды [9, 11, 12]. Здесь же для сравнения пунктиром показано значение величины n_2 для сапфира. Видно, что нелинейность у этих газов резко возрастает вблизи критического перехода, а существенное увеличение плотности ведет к тому, что нелинейный показатель преломления начинает превышать твердотельный. Вследствие этого критическая мощность самофокусировки существенно понижается, тем самым позволяя перейти через несколько режимов филаментации, начиная с порога образования одиночного филамента при низких давлениях (рис. 1б) до суперфиламентации [13, 14].

В настоящей работе использовалось излучение фемтосекундного хром-форстеритового лазера с длиной волны 1240 нм, длительностью импульса 140 фс, частотой повторения импульсов 10 Гц и энергией в импульсе до 1 мДж. С помощью полуволновой пластины и призмы Глана энергия импульса могла быть плавно изменена на входе в систему. Излучение фокусировалось линзой с фокусным расстоянием 6 см в оптическую кювету, заполненную либо углекислым газом, либо ксеноном (см. рис. 2, цв. вкладка). Входные и выходные окна были изготовлены из сапфира толщиной 8 см. Энергия импульса подбиралась таким образом, чтобы в материале окна не происходили процессы обогащения спектра. После прохода через кювету излучение собиралось широкоапертурной линзой (фокусное расстояние 10 см) на входном окне волоконного спектрометра (SDH-IV для ИК части спектра и SL40-2 для видимого диапазона длин волн) либо на кремниевом фотодетекторе (PDA-100A), перед которым был предварительно установлен ИК фильтр для измерения энергии в видимом диапазоне длин волн. Давление в кювете могло изменяться в диапазоне до 100 атм, а температура — вплоть до 340 К. Температура и давление в кювете регистрировались с точностями 0,1 К и 1 бар соответственно.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

При мощности лазерного излучения, превышающей критическую мощность самофокусировки ($P_{cr} \sim \lambda_0^2 / 2\pi n_0 n_2$, где λ_0 — длина волны; n_0 — показатель преломления в среде; n_2 — нелинейный показатель преломления, значения которого представлены на рис. 1), за счет динамического баланса между самофокусировкой, плазменной дефокусировкой, дифракцией и дисперсией в среде наблюдается филамент (см. также рис. 1) [1]. На всем протяжении филамента выполняются условия фазового согласования за счет квазиволноводного режима распространения, что ведет к существенному уширению и модификации спектра [16], причем чем больше превышение интенсивности лазерного импульса над критической, тем ярче суперконтинуум и тем большую длину имеет филамент [1, 16]. В случае филаментации разные компоненты спектра имеют разную расходимость, в результате чего спектр имеет вид разноцветных колец с белой областью в центре и поэтому носит название конической эмиссии. Коротковолновые компоненты обладают большей расходимостью, поэтому внешние кольца обычно имеют фиолетово-голубую окраску [1]. Таким образом, интенсивный суперконтинуум возникал при значительном превышении мощности импульса над критической мощностью самофокусировки P_{cr} [17].

Использование СКФ позволило нам достичь высоких значений нелинейного показателя преломления n_2 и, как следствие, существенного уменьшения критической мощности самофокусировки. Это, в свою очередь, дало возможность на несколько порядков превзойти величину P_{cr} при умеренных энергиях импульса. Так, для использованной в наших экспериментах энергии лазерного импульса

600 мкДж (мощность порядка 4,3 ГВт) в ксеноне при давлении 70 атм и температуре 294 К отношение $P/P_{\text{кр}} \approx 600$.

Кроме того, варьирование плотности среды позволило нам реализовать различные режимы взаимодействия. В режиме, когда мощность импульса составляет $(3-5)P_{\text{кр}}$, в среде стабильно «зажигался» филамент. В эксперименте в случае газовой среды это достигалось при давлении ~ 5 атм в ксеноне и 7 атм в диоксиде углерода. Пороговые значения возникновения филамента получены с использованием измерений по нелинейному пропусканию лазерного излучения средой. Как в случае ксенона, так и в случае диоксида углерода, в сверхкритических условиях получена генерация широкого суперконтинуума. В СК ксеноне (при 310 К и 72 атм) и CO_2 (363 К, 102 атм) суперконтинуум эффективно генерировался примерно в области от 350 до 1900 нм при мощности лазерного импульса $P \sim (400-600)P_{\text{кр}}$. При низких же давлениях (< 7 атм) спектр уширяется лишь за счет фазовой самомодуляции на нелинейности n_2 , которая пропорциональна произведению $n_2 \cdot L \cdot I$ (L — длина оптического пути в среде; I — интенсивность лазерного импульса).

В ксеноне сопровождающие процесс филаментации электроны лазерно-индуцированной плазмы ведут к появлению синего крыла спектра, в то время как с керровской нелинейностью связано появление красного крыла [1]. Оба крыла растут с увеличением давления (синее — за счет увеличения числа свободных электронов в единице объема, красное — за счет роста n_2) [18], причем чем ближе к критической точке, тем сильнее выражается «перекося» в красную область. Это, вероятнее всего, связано с «насыщением интенсивности излучения», ограничивающим величину интенсивности и концентрацию электронов на оптической оси. В то же время рост красного крыла в данном случае не ограничен (см. рис. 3б на цв.вкладке) [19, 20]. При переходе в СК режим наблюдается рост красного крыла, связанный с увеличением плотности, а значит, и увеличением n_2 . При дальнейшем росте как давления, так и температуры среды никаких существенных особенностей в спектре суперконтинуума ксенона не наблюдается — происходит лишь низкоинтенсивное плавное увеличение ширины в красную область вплоть до 2 мкм при температуре 310 К и давлении 72 атм.

В отличие от атомарного ксенона, в газе CO_2 картина несколько иная. Наличие молекулярных (комбинационно-активных) колебаний (в диоксиде углерода — 1388 см^{-1}) ведет к эффективной (более 50 % по спектру лазерного импульса) перекачке энергии в эти колебания и подавлению синего крыла, а также резкому росту красного крыла (см. рис. 3а на цв.вкладке). Аналогичное подавление синего крыла спектра ранее наблюдалось при использовании излучения среднего ИК диапазона в молекулярных газах при давлениях порядка атмосферного [21]. При переходе через критическую точку происходит значительный рост нелинейного показателя преломления и появляется плато в спектре суперконтинуума (от 1400 до 1900 нм). Ограничение в ширине плато связано с наличием поглощения на составных колебаниях молекулами CO_2 в окрестности 1900 нм, делающего невозможным дальнейшее уширение спектра [22]. Из существенных особенностей спектра суперконтинуума в диоксиде углерода стоит отметить наличие хорошо выраженной линии колебания 1388 см^{-1} и ее обертонов, которые, однако, несколько «замазываются» суперконтинуумом при увеличении давления и, как следствие, нелинейного показателя преломления.

Спектр суперконтинуума в видимом диапазоне длин волн выглядит несколько иначе. Коническая эмиссия, наблюдаемая в эксперименте, носит голубовато-белую окраску в случае ксенона и красно-желтую в случае CO_2 , что подтверждается спектральными данными, представленными на рис. 4 (см цв.вкладку). Заметно,

что в CO_2 суперконтинуум неоднороден и смещен в область спектра лазерного импульса, в то время как спектр суперконтинуума, генерируемый в ксеноне, однороден и более отдален от центра тяжести спектра лазерного импульса.

С ростом давления спектр суперконтинуума в CO_2 заметно расширяется до границы чувствительности используемого спектрометра (~ 350 нм). Отметим, что эффективная генерация суперконтинуума начинается от уровня давлений 45 атм для CO_2 и 18 атм для ксенона. Установлено, что в области от 1000 до 1100 нм в спектре суперконтинуума наблюдается провал.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В результате выполненных исследований процессов взаимодействия мощного фемтосекундного лазерного излучения ближнего ИК диапазона с ксеноном и диоксидом углерода, проведенных при высоких плотностях газов и СКФ условиях, нами установлено, что:

— при мощности фемтосекундного лазера $P \gg P_{\text{cr}}$ развитие нелинейно-оптических процессов приводит к уширению спектра, в котором синее крыло растет быстрее красного, что вызвано увеличением концентрации свободных электронов, возникающих при филаментации лазерного импульса;

— для диоксида углерода в спектре суперконтинуума сильно выражены линии комбинационного рассеяния (КР) при практически полном подавлении в спектре синего крыла, что вызвано эффективной ($\sim 50\%$) перекачкой лазерной энергии в КР-активные колебания;

— при изотермическом переходе из газа в сверхкритическую область плотность среды быстро растет, что приводит к более быстрому росту красного крыла в спектре суперконтинуума за счет увеличения нелинейного показателя преломления;

— в сверхкритическом CO_2 и ксеноне при мощности фемтосекундного лазера $P \gg P_{\text{cr}}$ развивается процесс филаментации фемтосекундного импульса ближнего ИК диапазона;

— в режиме, когда лазерная мощность $P \gg P_{\text{cr}}$ в сверхкритическом CO_2 и ксеноне генерируется суперконтинуум шириной в три с половиной октавы (от 300 нм до 2 мкм);

— в спектре суперконтинуума сверхкритического углекислого газа присутствует плато, простирающееся от 1500 до 1900 нм и ограниченное лишь сильным поглощением в окрестности 1900 нм за счет дипольно-разрешенных переходов на составных колебаниях;

— в видимой области присутствует крыло, «оторванное» от основной части суперконтинуума, энергия которого увеличивается с ростом нелинейного показателя преломления.

Авторы благодарят РФФИ (грант 14-33-00017) за поддержку работы; разработка методики измерения спектров в видимом и ИК диапазонах поддержана грантом РФФИ 14-02-00819.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Couairon A., Mysyrowicz A. Phys. Rep. 2007. Vol. 441. P. 47.
2. Леменовский Д.А., Баграташвили В.Н. Российский химический журнал. 1999. Т. XLIII. С. 93.
3. Bagratashvili V.N., Bestemyanov K.P., Gordiyenko V.M., Kononov A.N., Popov V.K., Tsygina S.I. Proc. SPIE 2002. Vol. 4705. P. 129.

4. Новицкий А.А., Хоу М., Перес Е., Ке Д., Ву В., Баграташвили В.Н., Полякофф М. СКФ-ТП. 2009. Т. 4. № 1. С. 49.
 5. Авдеев М.В., Баграташвили В.Н., Коновалов А.Н., Попов В.К., Цыпина С.И., Соколова М.В., Ке Д., Полиакофф М., Ву В.З., Ванг Б., Хан Б.Х. СКФ-ТП. 2007. Т. 2. № 1. С. 28.
 6. Fuji T., Horio T., Suzuki T. Opt. Lett. 2007. Vol. 32. P. 2481.
 7. Reiter F., Graf U., Serebryannikov E.E., Schweinberger W., Fiess M., Schultze M., Azzeer A.M., Kienberger R., Krausz F., Zheltikov A.M., Goulielmakis E. Phys. Rev. Lett. 2010. Vol. 105. P. 1.
 8. Korel I.I., Nyushkov B.N., Denisov V.I., Pivtsov V.S., Koliada N.A., Sysoliatin A.A., Ignatovich S.M., Kvashnin N.L., Skvortsov M.N., Bagayev S.N. Laser Phys. 2014. Vol. 24. P. 074012.
 9. Azhar M., Joly N.Y., Travers J.C., Russell P.S. Appl. Phys. B. Lasers Opt. 2013. Vol. 112. P. 457.
 10. NIST database <http://webbook.nist.gov/>
 11. Börzsönyi A., Heiner Z., Kovács A.P., Kalashnikov M.P., Osvay K. Opt. Express. 2010. Vol. 18. P. 25847.
 12. Hahn J.W., Lee E.S. J. Opt. Soc. Am. B. 1995. Vol. 12. P. 021.
 13. Lim K., Durand M., Baudalet M., Richardson M. Sci. Rep. 2014. Vol. 4. P. 7217.
 14. Potemkin F.V., Mareev E.I., Podshivalov A.A., Gordienko V.M. New J. Phys. 2015. Vol. 17. P. 053010.
 15. Major A., Yoshino F., Nikolakakos I., Aitchison J.S., Smith P.W. Opt. Lett. 2004. Vol. 29. P. 602.
 16. Coen S., Chau A.H., Leonhardt R., Harvey J.D., Knight J.C., Wadsworth W.J., Russell P.S.J. J. Opt. Soc. Am. B. 2002. Vol. 19. P. 753.
 17. Liu W., Kosareva O., Golubtsov I.S., Iwasaki A., Becker A., Kandidov V.P., Chin S.L. Appl. Phys. B. Lasers Opt. 2003. Vol. 76. P. 215.
 18. Corkum P.B., Rolland C., Srinivasan-Rao T. Phys. Rev. Lett. 1986. Vol. 57. P. 2268.
 19. Bowden C.M., Chin S.L. Opt. Commun. 2002. Vol. 202. P. 189.
 20. Liu X-L., Lu X., Liu X., Xi T-T., Liu F., Ma J-L., Zhang J. Opt. Express. 2010. Vol. 18. P. 26007.
 21. Kartashov D., Alisauskas S., Pugzlys A., Voronin A., Zheltikov A., Petrarca M., Béjot P., Kasparian J., Wolf J-P., Baltuska A. Opt. Lett. 2012. Vol. 37. P. 3456.
 22. Lea A.S., Higgins S.R., Knauss K.G., Rosso K.M. Rev. Sci. Instrum. 2011. Vol. 82. P. 043709.
-
-

SUPERCONTINUUM GENERATION UNDER FILAMENTATION DRIVEN BY INTENSE FEMTOSECOND PULSE IN SUPERCRITICAL XENON AND CARBON DIOXIDE

**¹V.N. Bagratashvili, ²V.M. Gordienko, ²E.I. Mareev, ³N.V. Minaev,
²A.V. Ragulskaia, ²F.V. Potemkin**

¹*Lomonosov Moscow State University, Chemistry Department, Moscow, Russia*

²*Lomonosov Moscow State University, Faculty of Physics and International Laser Center,
Moscow, Russia*

³*Institute on Laser and Information Technologies of the Russian Academy of Sciences,
Troitsk (Moscow), Russia*

It is found that supercritical fluids are unique source of multi-octave supercontinuum generated under filamentation driven by intense femtosecond laser pulse. When the laser pulse power exceeds by far the critical power of self-focusing, a supercontinuum with three and half octaves spectrum width (from 350 to 2000 nm) in supercritical xenon is generated. In supercritical carbon dioxide, red wing of supercontinuum has a plateau-like shape in the spectral range from 1400 up to 1900 nm; the blue wing in the spectrum strongly attenuated.

Key words: supercritical fluids, femtosecond filamentation, supercontinuum generation.