

# Периодическая структура из центров окраски, наведенная при филаментации фемтосекундного лазерного излучения среднего ИК диапазона в кристалле LiF

А.В.Кузнецов, В.О.Компанец, А.Е.Дормидонов, С.В.Чекалин, С.А.Шленов, В.П.Кандидов

*Представлены результаты экспериментального и теоретического исследования структуры из центров окраски, сформированной в кристалле LiF при филаментации фемтосекундного излучения среднего ИК диапазона с мощностью, незначительно превышающей критическую мощность самофокусировки. Впервые зарегистрированы строго периодические осцилляции концентрации центров окраски, наведенных в изотропном кристалле LiF при филаментации излучения на длине волны, перестраиваемой в полосе 2600–3350 нм. Установлено, что период структуры составляет около 30 мкм. С увеличением длины волны лазерного излучения период осцилляций уменьшается и возрастает их амплитуда. Максимум концентрации центров окраски, обнаруженный при филаментации излучения на длине волны 3100 нм, связан с увеличением вклада прямой генерации центров окраски при поглощении целого числа фотонов экситонной полосой. Численно показано, что периодическая структура из центров окраски в LiF возникает вследствие периодического изменения амплитуды светового поля в образующейся при филаментации световой пуле длительностью в 1.5 оптических периода.*

**Ключевые слова:** филаментация, фемтосекундные импульсы, аномальная дисперсия, световые пули, центры окраски, LiF.

## 1. Введение

Развитие лазерных установок высокой мощности позволило реализовать локализацию светового поля без каких-либо волноводных систем, при которой формируются протяженные филаменты с высокой плотностью энергии [1–4]. Следует отметить, что российские исследователи сыграли значительную роль на всех этапах исследования явлений самофокусировки и филаментации лазерного излучения [5].

Концентрация энергии лазерного излучения в протяженном филаменте, генерация суперконтинуума и терагерцевого излучения, образование плазменных каналов и другие эффекты, сопровождающие фемтосекундную филаментацию, сразу же привлекли внимание исследователей своими возможными практическими применениями. Эффекты, возникающие при фемтосекундной филаментации, расширяют возможности применения новых лазерных технологий в экологии, биофизике, атмосферной оптике, микрооптике и других областях. Для примера можно привести такие направления, как передача энергии на километровые расстояния для получения плазмы оптического пробоя и люминесцентного сигнала при удаленном мониторинге загрязнений, лазерное широкопо-

лосное зондирование окружающей среды [6, 7], использование плазменных каналов для направленной передачи микроволнового излучения [8] и формирование элементов микрооптики [9, 10].

Значительное внимание привлекает режим филаментации, при котором происходящие одновременно самофокусировка пучка и самокомпрессия импульса приводят к формированию так называемых световых пульс (СП) [11]. Необходимым условием для существования этого режима является аномальная дисперсия групповой скорости (ДГС), которая при положительной самомодуляции фазы светового поля в среде с керровской нелинейностью может вызывать формирование СП – волнового пакета, сжатого в пространстве и во времени. В случае аномальной ДГС фазово-модулированное световое поле «стягивается» к центральным временным слоям импульса от его фронтов [12]. Сжатие импульса во времени и в пространстве вследствие его компрессии при аномальной ДГС и самофокусировке за счет керровской нелинейности, самообострение фронтов и дефокусировка хвоста импульса в наводимой плазме создают в филаменте СП [13–15]. Как показано в [13–15], пиковая интенсивность в пуле достигает  $5 \times 10^{13}$  Вт/см<sup>2</sup>, а ее диаметр (в плавленом кварце) равен 20 мкм. Форма огибающей поля СП существенно отличается от гауссовой. На центральной длине волны  $\lambda_0 = 1800$  нм длительность СП составляет 13.5 фс, т. е. около двух периодов колебаний светового поля. Эволюция пространственно-временной структуры СП на  $\lambda_0 = 1800$  нм в сапфире исследовалась в [16], где был предложен сценарий, по которому СП состоит из высокоинтенсивного ядра, содержащего более 25% всей энергии, и низкоинтенсивной периферии, подобно бесселеву пучку.

Остается дискуссионным вопрос, является ли распространение СП в среде квазистационарным [17] или рекуррентным [13–15]. В [17] длинный светящийся канал рассеянного излучения суперконтинуума в видимом диапазо-

А.В.Кузнецов. Иркутский филиал Института лазерной физики СО РАН, Россия, 664033 Иркутск, ул. Лермонтова, 130а; e-mail: a.v.kuznetsov@bk.ru

В.О.Компанец, С.В.Чекалин. Институт спектроскопии РАН, Россия, 108840 Москва, Троицк, ул. Физическая, 5; e-mail: chekalin@isan.troitsk.ru

А.Е.Дормидонов, С.А.Шленов, В.П.Кандидов. Московский государственный университет им. М.В.Ломоносова, физический факультет; Международный учебно-научный лазерный центр МГУ им. М.В.Ломоносова, Россия, 119991 Москва, Воробьевы горы

Поступила в редакцию 8 февраля 2016 г.

не, образующийся при филаментации на  $\lambda_0 = 1900$  нм в плавленом кварце, интерпретирован как долгоживущий квазисолитон, который сохраняется на расстоянии в несколько сантиметров. Возможность формирования последовательности СП при филаментации в условиях аномальной ДГС численно исследована в [18]. Согласно [19] образование следующих СП в цепочке может нарушаться как при малой ДГС вследствие недостаточной компрессии фазово-модулированного поля, так и при большой ДГС вследствие значительного уширения импульса при его распространении до возникновения филамента. Формирование последовательности короткоживущих СП подтверждено экспериментально автокорреляционными измерениями, а также теоретически [14, 15, 20]. В [21, 22] установлено, что формирование каждой СП в последовательности сопровождается «выбросом» равного количества энергии суперконтинуума в видимом диапазоне. Энергия СП трансформируется в энергию суперконтинуума во всем спектральном диапазоне, и это является основным каналом деградации СП. Установлено, что СП является устойчивым самоорганизующимся образованием, не зависящим от входных параметров, таких как пространственно-временная форма и фаза импульса. Важная и все еще слабо изученная сторона филаментации связана с влиянием абсолютной фазы [23] при распространении в прозрачной среде СП, содержащих малое число периодов световой волны [24].

В настоящей статье представлены результаты экспериментального и теоретического исследования периодической структуры из центров окраски (ЦО), наведенной в изотропном кристалле LiF единичной СП, которая формируется в режиме одиночной филаментации фемтосекундного лазерного излучения среднего ИК диапазона (2600–3350 нм) с мощностью, незначительно превышающей критическую мощность самофокусировки. На основе численного моделирования показано, что зарегистрированная структура из ЦО образуется вследствие периодических осцилляций максимальной амплитуды светового поля в СП длительностью в 1.5 оптических колебания при ее распространении в среде с дисперсией.

## 2. Экспериментальный метод

Для исследования динамики СП использовался предложенный в [25] метод, основанный на генерации стабильных люминесцентных ЦО в кристалле LiF под действием лазерного излучения. Фоточувствительность LiF оказывается достаточно высокой для записи треков СП при филаментации одиночных фемтосекундных лазерных импульсов. Пространственное распределение интенсивности люминесценции записанных ЦО воспроизводит концентрацию лазерно-индуцированных электронных возбуждений в филаменте. Для анализа распределений интенсивности люминесценции наведенных ЦО применяются методы оптической микроскопии с подсветкой на длине волны поглощения этих ЦО.

Фториды щелочных металлов являются перспективными материалами для исследования филаментации в среднем ИК диапазоне, поскольку здесь ДГС аномальна, что необходимо для формирования СП. Спектральные окна прозрачности фторидов перекрывают УФ и ИК диапазоны, что важно для генерации суперконтинуума. Генерация широкополосного суперконтинуума исследована при филаментации излучения с  $\lambda_0 = 2000$  нм в CaF<sub>2</sub>

[26] и с  $\lambda_0 = 800, 1380$  и  $2200$  нм, перекрывающими области нормальной, нулевой и аномальной ДГС в BaF<sub>2</sub> и CaF<sub>2</sub> [27]. В работе [28] при филаментации излучения на  $\lambda_0 = 3900$  нм в CaF<sub>2</sub> и в других кристаллах зарегистрировано излучение в виде суперконтинуума видимого диапазона без уширения спектра в окрестности основной частоты, что авторы объясняют люминесценцией ЦО. При филаментации излучения среднего ИК диапазона в BaF<sub>2</sub> и CaF<sub>2</sub> обнаружена [29] изолированная полоса в видимой области спектра, сдвиг которой в голубую область возрастает, а ширина полосы сужается от 50–70 нм до 14 нм при увеличении длины волны излучения от 3000 до 3800 нм.

Выбор LiF в качестве материала для изучения динамики СП обусловлен наиболее интенсивной люминесценцией ЦО в нем по сравнению с другими щелочно-галогидными кристаллами (ЩГК), что позволяет регистрировать лазерно-индуцированную модификацию материала при филаментации в режиме одиночного импульса. Кроме того, LiF характеризуется высокой термической и оптической стабильностью ЦО при комнатной температуре, что позволяет исследовать структуры из ЦО различными методами после их записи. Наконец, LiF менее гигроскопичен и имеет более удобные для механической обработки свойства по сравнению со многими другими ЩГК.

В LiF наиболее подходящими для изучения филаментации являются центры F<sub>2</sub> и F<sub>3</sub><sup>+</sup>, излучающие в видимом диапазоне. Эти центры представляют собой соответственно пару и тройку анионных вакансий в соседних узлах решетки, захвативших пару электронов. Полосы люминесценции данных центров имеют максимумы вблизи  $\lambda = 650$  и  $550$  нм соответственно [30]. Оба типа центров возбуждаются излучением синей области спектра. Известно [31], что при воздействии фемтосекундным лазерным излучением с  $\lambda_0 = 800$  нм преобладает генерация F<sub>3</sub><sup>+</sup>-центров, а при рентгеновском возбуждении – генерация F<sub>2</sub>-центров.

Механизмы, приводящие к окрашиванию, можно объяснить как нелинейным фотовозбуждением электронной подсистемы материала с созданием экситонов и электронно-дырочных пар через лавинную, туннельную и многофотонную ионизацию, так и прямым возбуждением экситонов [32–34]. Распад экситонов и электронно-дырочных пар приводит к появлению простейших F-центров, представляющих собой одиночные анионные вакансии с захваченным электроном [35]. Этот процесс в ЩГК имеет характерное время порядка пикосекунд [36], поэтому протекает уже после прохождения фемтосекундного лазерного импульса. После объединения различного числа анионных вакансий и F-центров образуются люминесцентные агрегатные ЦО, в том числе центры F<sub>2</sub> и F<sub>3</sub><sup>+</sup>, люминесцирующие при засветке в синей области.

## 3. Экспериментальные результаты

Эксперименты выполнены с использованием источника лазерного излучения на основе фемтосекундного генератора Tsunami (Ti: сапфировый лазер) с непрерывным твердотельным лазером накачки Millenia Vs, регенеративного усилителя Spitfire Pro с накачкой твердотельным лазером Empower 30 и перестраиваемого параметрического усилителя TOPAS. Длительность импульсов на полувывоте была равна 100 фс, полуширина спектра – 200–250 нм. Частота следования импульсов варьировалась от 1 кГц до минимальной (режим одиночных импульсов). Энергия импульсов измерялась датчиком Field-

тах с детектором PS-10 и составляла порядка 10 мкДж. Лазерные импульсы фокусировались тонкими линзами из  $\text{CaF}_2$  с фокусным расстоянием  $F = 15$  или 10 см внутрь образца LiF длиной 40 мм на расстоянии несколько миллиметров от его входной грани. При записи ЦО в режиме одноимпульсной экспозиции образец после каждого импульса перемещался в направлении, перпендикулярном лазерному пучку. Запись ЦО в образцах LiF осуществлялась излучением на трех длинах волн, 2600, 3100 и 3350 нм, при поочередном использовании обеих линз. Для получения режима одиночной филаментации при варьировании длины волны энергия импульсов изменялась так, чтобы их пиковая мощность незначительно превышала критическую мощность самофокусировки. Энергия импульсного излучения на  $\lambda_0 = 2600, 3100$  и 3350 нм составляла 10.1, 11.5 и 13.5 мкДж соответственно. Кроме того, было проведено облучение образца на  $\lambda_0 = 3100$  нм при изменении энергии от 9 до 15.6 мДж.

Для качественного анализа записанной структуры из ЦО использовался микроскоп Eurotech Oхiон 5<sup>x</sup> с подсветкой непрерывным лазерным излучением на  $\lambda = 450$  нм и регистрацией люминесценции цифровой камерой Nikon D800. Рассеянное возбуждающее излучение отсекалось вспомогательным желто-зеленым светофильтром. Фотографии ряда люминесцентных структур, наведенных в LiF при  $\lambda_0 = 3100$  нм, показаны на рис.1. При облучении неподвижного кристалла и частоте следования импульсов 100 Гц создавались интенсивные люминесцентные треки в образце, видимые на рис.1 как наиболее яркие горизонтальные линии большой толщины и протяженности. При перемещении образца между точками его остановки получены наведенные одиночными импульсами люминесцентные структуры из ЦО, видимые на рис.1 как тонкие горизонтальные линии с периодически меняющейся яркостью. Случайное продольное смещение наведенных структур вдоль филамента связано с флуктуациями энергии лазерных импульсов. Характерная длина структур составляет около 1 мм, их поперечный размер равен 2–3 мкм.

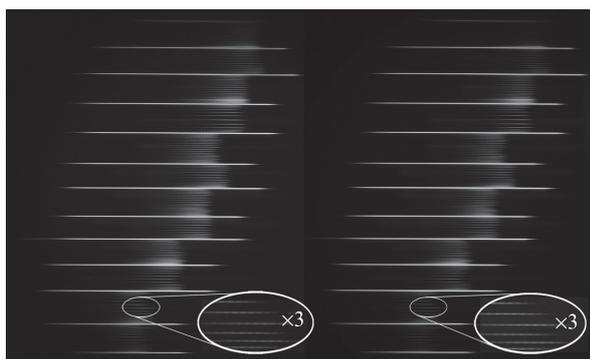


Рис.1. Фотографии одной и той же серии люминесцентных структур, наведенных в LiF лазерным излучением с  $\lambda_0 = 3100$  нм и различной энергией (от 9 мкДж в нижнем фрагменте изображения до 15.6 мкДж в верхнем). Яркие линии, разделяющие фрагменты, соответствуют записям ЦО при многоимпульсной экспозиции, тонкие линии во фрагментах – записям ЦО при экспозиции одиночными импульсами. Люминесценция возбуждается излучением непрерывного лазера на  $\lambda = 450$  нм (в правой колонке мощность больше, чем в левой). Внизу показаны увеличенные втрое фрагменты изображения, где видны периодические изменения яркости люминесцентных структур, наведенных одиночными импульсами. Цветной вариант рис.1 помещен на сайте нашего журнала <http://www.quantum-electron.ru>.

Регистрация двух цветов люминесценции ЦО (рис.1) подтверждает наличие в записанных структурах центров  $F_2$  и  $F_3^+$ . Излучение с  $\lambda = 450$  нм возбуждает одновременно  $F_2$ - и  $F_3^+$ -ЦО. При малой интенсивности возбуждения преобладает люминесценция  $F_3^+$ -ЦО с максимумом на  $\lambda \approx 550$  нм, а люминесценция  $F_2$ -ЦО с максимумом на  $\lambda \approx 650$  нм вносит малый вклад в общее свечение. При большой интенсивности возбуждения проявляется эффект, связанный с переходом  $F_3^+$ -ЦО в метастабильное неизлучающее состояние, имеющее время жизни порядка нескольких секунд. Это приводит к снижению наблюдаемой интенсивности люминесценции  $F_3^+$ -ЦО по сравнению с  $F_2$ -ЦО, которые не переходят в неизлучающее состояние, и люминесценция последних становится преобладающей. Правая колонка на рис.1 получена при большей интенсивности возбуждающего излучения на  $\lambda = 450$  нм, чем левая, что привело к различным цветам свечения лазерно-индуцированных структур: оранжевый цвет справа и зеленый слева.

## 4. Обработка экспериментальных результатов

### 4.1. Период осцилляций концентрации ЦО

Для детального исследования периодических изменений в структурах ЦО, наведенных в LiF при экспозиции одиночными импульсами, использовались микроскоп Olympus IX 71 с объективом 10<sup>x</sup> и цифровая фотокамера Olympus E520 с желто-зеленым фильтром, отсекающим рассеянное возбуждающее излучение на  $\lambda = 450$  нм. Время экспозиции при регистрации фотокамерой рядов люминесцентных структур выбрано достаточно коротким, чтобы избежать насыщения ее фоточувствительной матрицы сигналом люминесценции. Для определения периода осцилляций концентрации ЦО в наведенных структурах выполнена цифровая обработка полученных фотографий, при которой цветное двумерное изображение трансформировалось в монохромное суммированием красной и зеленой компонент пикселей в оцифрованных фотографиях (синяя компонента отбрасывалась, поскольку она не содержит полезного сигнала) и затем суммировались значения для пикселей в сечении, перпендикулярном оси структуры. Из суммарного сигнала люминесценции вычитался фон, который принимался равным сигналу для пикселей, находящихся вне изображения структуры. Полученные таким образом профили сигнала люминесценции для отдельных структур, наведенных фемтосекундными импульсами, приведены на рис.2 (сплошные кривые). Под каждым профилем расположено исходное изображение соответствующей структуры. Сигнал люминесценции пропорционален линейной концентрации ЦО в структурах. На продольных профилях интенсивности люминесценции видны осцилляции концентрации ЦО на фоне регулярных медленных изменений, полученных сглаживанием соответствующих профилей структур (штриховые кривые). Следует отметить, что амплитуда осцилляций концентрации ЦО существенно возрастает с увеличением длины волны от 2600 до 3350 нм. Длина, на которой генерируются ЦО, составляет  $\sim 1$  мм, что соответствует интервалу, на котором существует СП, образующаяся при филаментации [21, 22].

На рис.3 представлены отклонения концентрации ЦО от регулярного фона для структуры, наведенной при  $\lambda_0 = 3100$  нм (сплошная кривая). Видно, что амплитуда осцил-

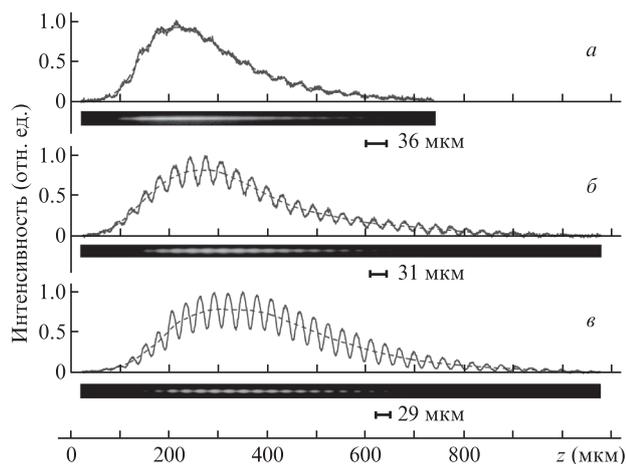


Рис.2. Продольные профили интенсивности люминесценции структур из ЦО (сплошные кривые), наведенных в LiF одиночными импульсами длительностью 100 фс, а также регулярные медленные изменения интенсивности (штриховые кривые) и соответствующие исходные изображения структур (внизу) при длине волны излучения  $\lambda_0 = 2600$  нм, энергии импульсов  $W = 10.1$  мкДж (а),  $\lambda_0 = 3100$  нм,  $W = 11.5$  мкДж (б) и  $\lambda_0 = 3350$  нм,  $W = 13.5$  мкДж (в). Лазерное излучение распространялось слева направо. Фокусное расстояние линзы  $F = 10$  см.

ляций концентрации ЦО максимальна в области наибольшей интенсивности люминесценции и, следовательно, светового поля в СП. Для измерения периода осцилляций концентрации ЦО вдоль оси структур осуществлялось автоматизированное сравнение их с соответствующей синусоидой (штриховая кривая). Представленный на рис.3 результат такой процедуры демонстрирует строгую периодичность осцилляций концентрации ЦО вдоль филамента практически на всем интервале существования СП на примере структуры, наведенной при  $\lambda_0 = 3100$  нм и  $F = 10$  см (импульс распространялся слева направо).

Период измерялся для выборок из 25 люминесцентных структур для каждой длины волны фемтосекундного лазерного излучения и двух фокусных расстояний линзы. Период наведенных структур равен  $36.5 \pm 0.5$ ,  $31.2 \pm 0.1$  и  $29.0 \pm 0.1$  мкм при фокусировке линзой с  $F = 10$  см для  $\lambda_0 = 2600$ , 3100 и 3350 нм соответственно и  $36.2 \pm 0.5$  и  $31.0 \pm 0.2$  мкм при фокусировке линзой с  $F = 15$  см для  $\lambda_0 = 2600$  и 3100 нм соответственно. Из проведенного анализа следует, что период наведенных структур возрастает с уменьшением длины волны излучения и не зависит от фокусного расстояния линзы в пределах погрешности измерений. Измерение периода структур, наведенных при  $\lambda_0 = 3100$  нм и энергии импульса, изменяемой в интервале 9 – 15.6 мкДж, показало, что период с точностью 3% ос-

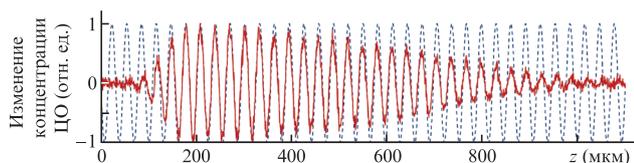


Рис.3. Определение периода осцилляций концентрации ЦО на примере структуры, наведенной излучением с  $\lambda_0 = 3100$  нм при фокусировке линзой с  $F = 10$  см (импульс распространялся слева направо). Сплошная осциллирующая кривая – быстро меняющиеся отклонения концентрации ЦО от регулярной зависимости (см. рис.2). Штриховая синусоида демонстрирует периодичность изменения концентрации ЦО вдоль филамента.

тается неизменным. Таким образом, период осцилляций концентрации ЦО в наведенных структурах является функцией длины волны воздействующего излучения и практически не зависит от условий внешней фокусировки и энергии импульсов. Это является подтверждением того, что наведенные в филаменте структуры из ЦО индуцированы СП, которые являются устойчивыми образованиями светового поля [21, 22].

Глубина модуляции продольных профилей наведенных люминесцентных структур убывает с уменьшением длины волны фемтосекундного излучения (рис.2). В наиболее ярких частях структур, наведенных при  $\lambda_0 = 2600$ , 3100 и 3350 нм, измеренная глубина модуляции интенсивности люминесценции  $(I_{\max} - I_{\min}) / (I_{\max} + I_{\min})$  составила около 5%, 20% и 30% соответственно.

#### 4.2. Пиковая концентрация ЦО и диаметр наведенных структур

Детальное исследование наведенных структур проведено с использованием конфокального лазерного люминесцентного микроскопа PicoQuant MicroTime 200 с объективом  $20\times$  и возбуждающего ЦО излучения на  $\lambda = 470$  нм. Данный прибор позволил получить изображения наведенных структур с разрешением 6.4 пиксель/мкм на масштабе 80 мкм, что ограничивалось рабочим диапазоном пьезосканера конфокального микроскопа. На рис.4 представлено изображение люминесцентной структуры, наведенной в филаменте при  $\lambda_0 = 3100$  нм. В результате обработки поперечных профилей изображений получены зависимости концентрации ЦО на оси структуры и ее диаметра, определяемого на полувысоте, от продольной координаты (рис.4). Видно, что диаметр структуры осциллирует вдоль оси, причем со сдвигом по фазе относительно осцилляций концентрации ЦО на оси. Аналогичный сдвиг фазы осцилляций диаметра и осевой концентрации обнаружен в изображениях структур, наведенных в филаменте излучением с  $\lambda_0 = 2600$  и 3350 нм.

На рис.5 приведены поперечные профили концентрации ЦО ( $\lambda_0 = 3100$  нм), измеренные в сечениях с максимальным (линия 3 на рис.4) и минимальным (линия 4 на рис.4) диаметрами. Среднеквадратичные отклонения ширины профилей, полученных усреднением по пяти измерениям, не превышают 0.5%. Средние значения диаметра структур, наведенных при  $\lambda_0 = 2600$ , 3100 и 3350 нм, со-

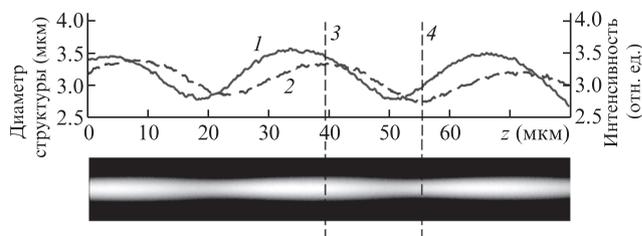


Рис.4. Тоновое изображение люминесцентной структуры, наведенной в LiF одиночным лазерным импульсом длительностью 100 фс при  $\lambda_0 = 3100$  нм (внизу), и полученные из него зависимости осевой интенсивности люминесценции (1) и диаметра структуры по полувысоте (2) от продольной координаты  $z$ . Кривая 1 нормирована так, чтобы обеспечить визуальное совмещение с кривой 2. Вертикальные линии 3 и 4 указывают точки на оси, соответствующие максимальным и минимальным диаметрам. Лазерный импульс распространяется слева направо.

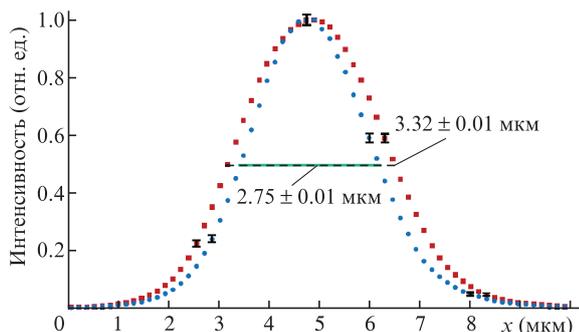


Рис.5. Нормированные профили поперечного сечения люминесцентной структуры из ЦО, наведенной фемтосекундным излучением с  $\lambda_0 = 3100$  нм, которые измерены в сечениях с максимальным (1) и минимальным (2) диаметрами (см. вертикальные линии 3 и 4 на рис.4). На горизонтальных линиях указаны ширины профилей на полувысоте.

ставляют соответственно около 1.9, 3.0 и 3.2 мкм, что близко к длинам волн излучения.

### 4.3. Влияние длины волны лазерного излучения на концентрацию наведенных ЦО

Как показывает анализ, концентрации ЦО в структурах, наведенных при  $\lambda_0 = 3100$  нм, достигает больших значений, чем в структурах, наведенных при  $\lambda_0 = 2600$  и  $3350$  нм. На рис.6 приведены зависимости от продольной координаты осевой интенсивности люминесценции, полученные при равных интенсивностях излучения, используемого для возбуждения люминесценции ЦО, записанных при различных длинах волн  $\lambda_0$ . При этом в каждой структуре выбран участок с наибольшей концентрацией ЦО. Видно, что наибольшая концентрация ЦО достигается в структуре, записанной при  $\lambda_0 = 3100$  нм. Возможно, это является следствием прямой генерации экситонов при поглощении лазерного излучения в среде. Известно, что эффективность прямого экситонного канала создания ЦО в ЩГК сопоставима с эффективностью электронно-дырочного канала [35]. Мы предполагаем, что в случае многофотонного поглощения излучения ИК диапазона имеет место резонанс при совпадении суммы энергий целого числа  $K$  фотонов ИК излучения с энергией экситонной полосы поглощения  $E_{ex}$ :

$$K \frac{hc}{\lambda_0} = E_{ex}, \tag{1}$$

где  $h$  – постоянная Планка;  $c$  – скорость света. Тогда концентрация генерируемых экситонов и, соответственно,

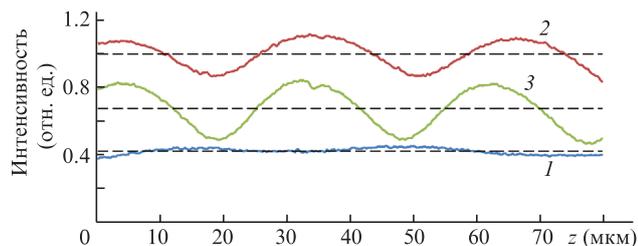


Рис.6. Интенсивность люминесценции ЦО на оси структур, полученная при равных интенсивностях излучения для возбуждения люминесценции в структурах, наведенных фемтосекундным излучением с  $\lambda_0 = 2600$  (1),  $3100$  (2) и  $3350$  нм (3). Штриховые линии – средние значения интенсивности.

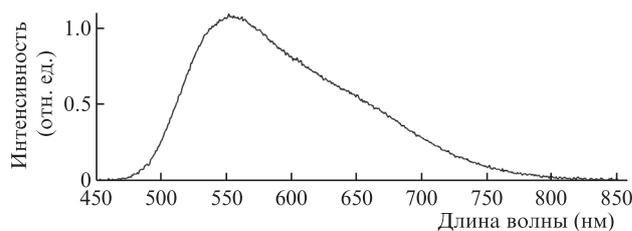


Рис.7. Спектр люминесценции при возбуждении на  $\lambda = 405$  нм центров окраски  $F_3^+$  и  $F_2$  в структуре, наведенной СП в LiF.

концентрация ЦО должны периодически изменяться с ростом энергии квантов излучения. Согласно [36] максимум энергии экситонной полосы поглощения  $E_{ex}$  составляет 12.8 эВ, а ее ширина равна 0.25 эВ. Излучению с длинами волн  $\lambda_0 = 2600, 3100$  и  $3350$  нм соответствуют числа фотонов  $K = 25.8, 32.0$  и  $33.6$ . Отклонение  $\Delta K$  при учете ширин экситонной полосы и спектра импульсов составляет  $\pm 0.5$ . Для  $\lambda_0 = 3100$  нм  $K$  наиболее близко к целому числу. Следовательно, излучение на этой длине волны ближе к резонансу (1), чем на  $\lambda_0 = 2600$  и  $3350$  нм.

### 4.4. Спектры люминесценции наведенных структур

С использованием конфокального микроскопа PicoQuant MicroTime 200 и оптического спектрометра Ocean Optics QE65000 получены спектры люминесценции наведенных структур в LiF. На рис.7 представлен спектр люминесценции структуры, наведенной при  $\lambda_0 = 3100$  нм. Для фотовозбуждения выбран лазер с достаточно малой длиной волны излучения  $\lambda = 405$  нм, не попадающей в область люминесценции ЦО. Спектр содержит две перекрывающиеся полосы люминесценции ЦО: одна с центром на  $\lambda \approx 550$  нм для  $F_3^+$ -ЦО и другая с центром на  $\lambda \approx 650$  нм для  $F_2$ -ЦО.

## 5. Численное моделирование

Численное моделирование раскрывает сценарий формирования временной структуры СП, приводящего к наблюдаемой модуляции концентрации ЦО. При моделировании формирования и распространения в среде СП использовалось уравнение для медленно меняющейся комплексной амплитуды поля  $A(r, z, t)$  с минимальной аппроксимацией [37, 38], справедливой для волновых пакетов, длительность которых сравнима с периодом оптических осцилляций. При формализации рассматриваемой задачи [22] учитывались дифракция и дисперсия волнового пакета, керровская самофокусировка, фотоионизация и лавинная ионизация среды, дефокусировка и поглощение света в индуцируемой плазме, а также эффект самообострения импульса. Материальная дисперсия LiF вычислялась по формуле Селлмейера, а скорость фотоионизации – по формализму Келдыша [39]. В качестве начального условия при моделировании был задан импульс с гауссовым распределением интенсивности по времени и пространству, параметры которого отвечают экспериментальным: длительность импульса 100 фс (по полувысоте), энергия – 10.5, 15.5 и 18.0 мкДж при  $\lambda_0 = 2600, 3100$  и  $3350$  нм соответственно, что отвечает пиковой мощности около  $1.5P_{cr}$ , где  $P_{cr}$  – критическая мощность самофокусировки в LiF.

Рассчитанное распределение интенсивности светового поля  $I(r, \tau) \propto |A(r, \tau)|^2$  при  $\lambda_0 = 3100$  нм на расстояниях  $z =$

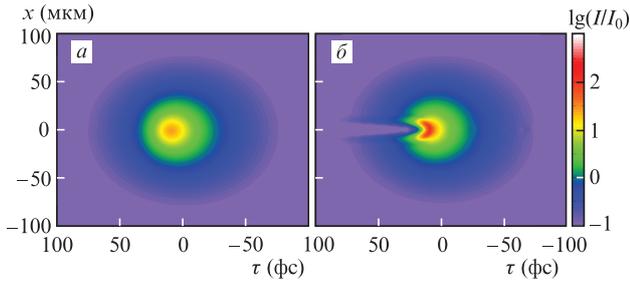


Рис.8. Пространственно-временное распределение интенсивности  $I$  в СП, сформировавшейся из импульса длительностью 100 фс с энергией 15.5 мкДж при  $\lambda_0 = 3100$  нм: начало формирования СП при  $z = 7.26$  мм (пиковая интенсивность  $3 \times 10^{13}$  Вт/см<sup>2</sup>, длительность на полувысоте 25 фс) (а) и завершение формирования СП при  $z = 7.56$  мм ( $2 \times 10^{14}$  Вт/см<sup>2</sup>, 10 фс) (б). Цветной вариант рис.8 помещен на сайте нашего журнала <http://www.quantum-electron.ru>.

7.26 и 7.59 мм от входа в среду показано на рис.8 в локальной системе отсчета импульса с координатой  $\tau = t - z/v_g$ , где  $v_g$  – групповая скорость импульса. Для расширения диапазона воспроизводимой интенсивности до четырех порядков величины использовалась логарифмическая цветовая шкала. На расстоянии  $z = 7.26$  мм (рис.8,а) пиковая интенсивность импульса начинает быстро расти – происходит формирование СП. На расстоянии  $z = 7.56$  мм пиковая интенсивность импульса достигает  $\sim 2 \times 10^{14}$  Вт/см<sup>2</sup> (в 150 раз больше начальной интенсивности  $I_0$ ), что достаточно для многофотонной и лавинной ионизаций и генерации экситонов [34] в среде. В режиме сильной аномальной ДГС интенсивность светового поля возрастает вследствие одновременной пространственной самофокусировки и временной самокомпрессии импульса, что приводит к формированию экстремально сжатой СП [21, 22] (рис.8,б). Длительность СП на полувысоте интенсивности становится равной около 10 фс, что составляет около 10% начальной длительности импульса. Сформировавшаяся СП является устойчивым волновым пакетом, содержащим несколько осцилляций светового поля и распространяющимся с групповой скоростью в среде на расстоянии порядка 1 мм.

Выражение для напряженности электрического поля световой волны  $E(r, z, \tau)$  в волновом пакете СП может быть представлено в виде [37, 40]

$$E(r, z, \tau) = \frac{1}{2} A(r, z, \tau) \times \exp \left[ i\omega_0 \tau + iz\omega_0 \left( \frac{1}{v_g} - \frac{1}{v_{ph}} \right) \right] + \text{компл. сопр.}, \quad (2)$$

где  $A(r, z, \tau) = |A(r, z, \tau)| \exp[i\xi(r, z, \tau)]$  – рассчитанная комплексная огибающая импульса;  $\omega_0 = 2\pi c/\lambda_0$  – несущая частота импульса;  $v_{ph} = c/n(\lambda_0)$  – фазовая скорость. Это уравнение описывает эволюцию светового поля в волновом пакете при изменении амплитуды огибающей  $|A(r, z, \tau)|$ , ее фазы  $\xi(r, z, \tau)$  и фазы  $\varphi(z) = z\omega_0(1/v_g - 1/v_{ph})$ . Фаза огибающей  $\xi(r, z, \tau)$  определяет пространственно-временное распределение сдвига фазы осцилляций электрического поля  $E(r, z, \tau)$  в волновом пакете, вызванного нелинейно-оптическим преобразованием излучения, тогда как фаза  $\varphi(z)$  определяет временной сдвиг осцилляций светового поля относительно пика огибающей, который возникает из-за разности скоростей – групповой скорости волнового пакета в среде  $v_g$  и фазовой скорости  $v_{ph}$  на частоте  $\omega_0$  в диспергирующей среде. Следует отметить, что согласно [1, 3, 4] генерация суперконтинуума при филаментации происходит вследствие фазового самодулиции светового поля, при которой уширение частотного спектра импульса связано с временным градиентом фазы огибающей  $\xi(r, z, \tau)$ , а уширение углового спектра – с пространственным градиентом  $\xi(r, z, \tau)$ .

На рис.9,а показана напряженность электрического поля световой волны на оси волнового пакета  $E(r = 0, \tau)$  на расстоянии  $z = 7.26$  мм, соответствующем начальной стадии формирования СП (см. рис.8,а). Огибающая импульса содержит несколько циклов световой волны, а пиковая амплитуда электрического поля возрастает примерно в пять раз. При  $z \approx 7.56$  мм происходит экстремальное сжатие импульса и формируется волновой пакет из одной оптической осцилляции (рис.9,б–з). Из-за раз-

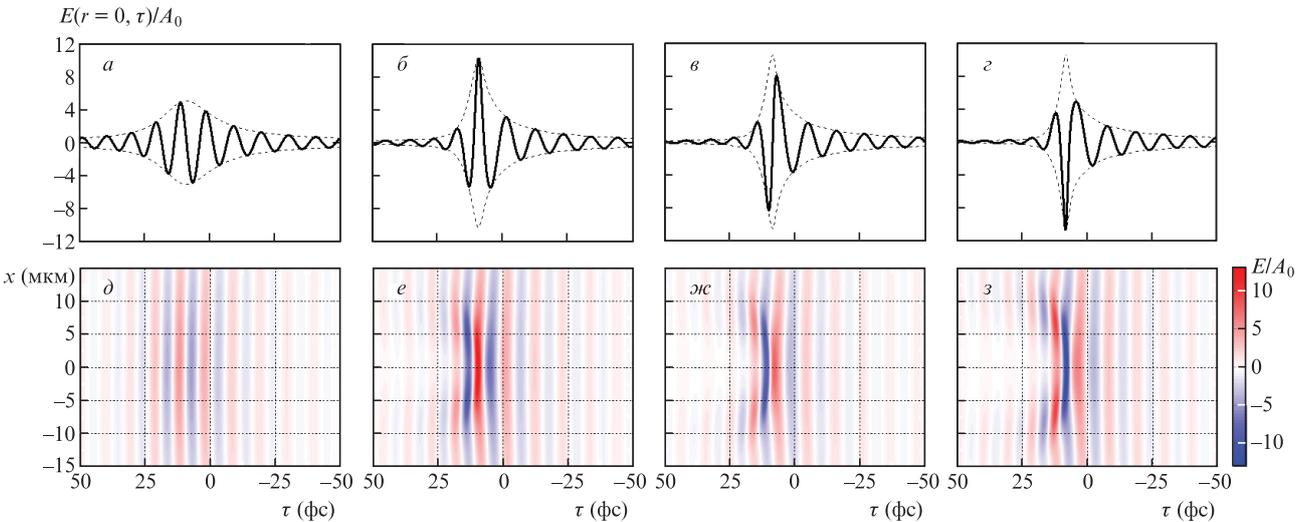


Рис.9. Профили светового поля на оси СП (а–з) и тоновые изображения распределения напряженности светового поля  $E(x, y = 0, \tau)$  при расстояниях от входа в среду  $z_0 = 7.26$  мм (начальный этап формирования СП) (а, д),  $z_1 = 7.559$  мм (максимум огибающей волнового пакета СП совпадает с максимумом амплитуды световой волны) (б, е),  $z_2 = 7.579$  мм (максимум огибающей волнового пакета СП совпадает с нулем поля в световой волне) (в, ж) и  $z_3 = 7.596$  мм (максимум огибающей волнового пакета СП совпадает с минимумом амплитуды световой волны) (з, з);  $A_0 = |A(0, 0, 0)|$ . Цветной вариант рис.9 помещен на сайте нашего журнала <http://www.quantum-electron.ru>.

ности фазовой и групповой скоростей  $\Delta v = v_{ph} - v_g$  световая волна перемещается быстрее, чем огибающая волнового пакета. Видно, что при  $z_1 = 7.559$  мм (рис.9,б) максимум огибающей волнового пакета СП совпадает с максимумом амплитуды световой волны, а при  $z_2 = 7.579$  мм (рис.9,в) световая волна смещается на четверть периода и результирующая пиковая амплитуда напряженности светового поля в СП уменьшается более чем на 20%. При  $z_3 = 7.596$  мм (рис.9,г) максимум огибающей волнового пакета СП совпадает с минимумом амплитуды световой волны и амплитуда напряженности электрического поля снова становится максимальной. Таким образом, при распространении СП как волнового пакета, состоящего из одного периода световой волны, амплитуда поля периодически меняется из-за разности групповой и фазовой скоростей. Эти колебания пиковой амплитуды электрического поля продолжаются на всем интервале существования СП.

На рис.9,д–з представлены соответствующие тоновые изображения распределения напряженности светового поля  $E(x, y = 0, t)$  в поперечном сечении волнового пакета. Видно, что в приосевой области сформировавшейся СП происходит искривление волнового фронта светового поля, которое определяется фазой  $\xi(r, z, t)$  огибающей. При этом кривизна волнового фронта первых и центральной осцилляций поля в СП отрицательна, что соответствует положительной керровской нелинейности среды, и положительна для осцилляций поля на хвосте СП из-за дефокусировки в самонаведенной лазерной плазме.

Диаметр СП по уровню амплитуды 80% от максимальной составляет около 5 мкм, что соответствует поперечному размеру структур ЦО, зарегистрированных в эксперименте (рис.4). Из сравнения изображений на рис.9,е, ж, з видно, что поперечный размер СП, как и максимальная амплитуда светового поля на оси СП, периодически меняется при ее распространении.

При  $\lambda_0 = 3100$  нм ширина запрещенной зоны между состоянием сильносвязанного экситона и валентной зоной (12.8 эВ [36]) соответствует энергии 32 лазерных фотонов. Поэтому относительно малое изменение светового поля вызывает значительные колебания концентрации ЦО. Эти регулярные изменения амплитуды светового поля в СП из-за изменения фазы  $\varphi(z)$  при распространении СП в среде приводят к появлению периодической структуры из ЦО в режиме филаментации в среднем ИК диапазоне. Фаза  $\varphi(z)$  влияет на нелинейно-оптическое взаимодействие лазерного импульса, содержащего один период колебаний поля, со средой с характерным временем, сопоставимым с периодом оптических колебаний [40]. Согласно численному моделированию период  $\Delta z = \bar{z}_3 - \bar{z}_1$  осцилляций пиковой амплитуды светового поля в СП составляет  $37.0 \pm 0.5$  мкм при  $\lambda_0 = 3100$  нм, при  $\lambda_0 = 3350$  нм он уменьшается до  $34.0 \pm 0.5$  мкм, а при  $\lambda_0 = 2600$  нм возрастает до  $42 \pm 1$  мкм. Изменение полученных значений периода  $\Delta z$  при варьировании длины волны соответствует экспериментально измеренному (см. п.4.1). Количественное отличие рассчитанного периода от измеренного связано с возможным отклонением параметров среды, рассматриваемых при моделировании, от реальных.

Простая аналитическая оценка периода осцилляций пиковой амплитуды светового поля в СП может быть найдена из условия  $\varphi(\Delta z^*) = \pi$ , не учитывающего влияние нелинейности на групповую скорость и модуляцию фазы волнового пакета:

$$\Delta z^* = \frac{\lambda_0}{2n(\lambda_0)\Delta v} v_g. \quad (3)$$

При  $\lambda_0 = 3100$  нм формула (3) дает  $\Delta z^* = 35$  мкм, что хорошо совпадает со значением, полученным при численном моделировании, а при  $\lambda_0 = 2600$  и  $3350$  нм имеем  $\Delta z^* = 42.6$  и  $32.4$  мкм соответственно, что совпадает с экспериментально измеренными периодами структур из ЦО, наведенных в LiF филаментами.

Происхождение рассмотренных периодических структур в изотропном кристалле LiF отличается от природы наблюдаемых ранее структур в других средах. В двулучепреломляющих средах осцилляции интенсивности вдоль филамента обусловлены периодическим изменением поляризации импульса и разными сечениями многофотонного поглощения для линейной и круговой поляризации [41]. В этом случае период осцилляций интенсивности вдоль филамента увеличивается с длиной волны лазерного излучения, в отличие от структур, наведенных в изотропном LiF. В близком к волноводному распространению при нормальной ДГС режиме филаментации, который изучен численно для конденсированной среды [42] и для воздуха [43], период изменения интенсивности вдоль филамента, вызванного рефокусировкой, уменьшается с уменьшением мощности лазерного импульса по сравнению с критической мощностью самофокусировки. В квазипериодической последовательности СП, сформированной при филаментации в условиях аномальной ДГС, интервал между пулями не является строго периодическим, причем его величина существенно превышает период изменения концентрации ЦО в структуре, наведенной в LiF при филаментации излучения среднего ИК диапазона. Физической причиной обнаруженной периодической модуляции концентрации ЦО в LiF является циклическая трансформация светового поля в СП, распространяющейся в LiF, которая обусловлена изменением сдвига фаз несущей волны и огибающей импульса из-за разности групповой и фазовой скоростей СП.

## 6. Заключение

Периодические изменения концентрации ЦО в структуре, наведенной в изотропном кристалле LiF при филаментации излучения среднего ИК диапазона, порождены регулярными изменениями амплитуды светового поля в СП длительностью в 1.5 оптического периода, которые возникают вследствие различия между групповой скоростью огибающей СП и фазовой скоростью световой волны. Периодические структуры из ЦО, диаметр которых близок к длине волны излучения, создаются СП на всем интервале ее существования протяженностью около 1 мм. Период изменения концентрации ЦО и диаметра наведенных структур составляет около 30 мкм. Период наведенных структур не зависит от условий внешней фокусировки и энергии импульсов, что подтверждает концепцию устойчивости СП, которая является результатом самоорганизации интенсивного светового поля при его нелинейно-оптическом взаимодействии со средой в условиях аномальной ДГС. В результате исследования структур из ЦО, записанных в LiF при филаментации на различных длинах волн, установлено, что с увеличением длины волны период осцилляций концентрации ЦО в наведенных структурах уменьшается, а их амплитуда возрастает. При этом наибольшая концентрация ЦО достигается при фи-

ламентации на длине волны 3100 нм, что обусловлено увеличением вклада прямой генерации ЦО при поглощении целого числа фотонов экситонной полосой.

На основе численных исследований эволюции светового поля в СП длительностью в 1.5 оптических периода установлено, что периодическое изменение амплитуды напряженности световой волны при распространении СП вызывает модуляцию концентрации ЦО в LiF. Результаты численного моделирования согласуются с результатами экспериментальных измерений. Генерация стабильных люминесцентных ЦО в изотропном кристалле LiF, характеризующемся высокой термической и оптической стабильностью ЦО, позволяет исследовать пространственно-временную эволюцию СП, которые формируются при филаментации фемтосекундного излучения среднего ИК диапазона.

Авторы благодарны Т.Глушковой за проведение измерений оптических параметров образцов LiF.

Работа проведена при поддержке грантов РФФИ № 14-22-02025-офи\_м и 15-32-50193-мол\_нр, а также гранта Президента РФ по государственной поддержке ведущих научных школ РФ № НШ-9695.2016.2.

- Chin S.L., Hosseini S.A., Liu W., Luo Q., Theberge F., Akozbek N., Becker A., Kandidov V., Kosareva O., Schroeder H. *Can. J. Phys.*, **83**, 863 (2005).
- Couairon A., Mysyrowicz A. *Phys. Rep.*, **441**, 47 (2007).
- Кандидов В.П., Шленов С.А., Косарева О.Г. *Квантовая электроника*, **39**, 205 (2009).
- Chin S.L. *Femtosecond Laser Filamentation* (New York: Springer, 2009).
- Чекалин С.В., Кандидов В.П. *УФН*, **183** (2), 133 (2013).
- Kasparian J., Wolf J.-P. *Opt. Express*, **16**, 466 (2008).
- Chin S.L., Xu H.L., Luo Q., Théberge F., Liu W., Daigle J.-F., Kamali Y., Simard P.T., Bernhardt J., Hosseini S.A., Sharifi M., Méjean G., Azarm A., Marceau C., Kosareva O.G., Kandidov V.P., Aközbek N., Becker A., Roy G., Mathieu P., Simard P.T., Châteauneuf M., Dubois J. *Appl. Phys. B: Lasers Opt.*, **95**, 1 (2009).
- Валуев В.В., Дормидонов А.Е., Кандидов В.П., Шленов С.А., Корниенко В.Н., Черепенин В.А. *Радиотехника и электроника*, **55** (2), 222 (2010).
- Davis K.M., Miura K., Sugimoto N., Hirao K. *Opt. Lett.*, **21**, 1729 (1996).
- Gattass R.R., Cerami L.R., Mazur E. *Opt. Express*, **14**, 5279 (2006).
- Silberberg Y. *Opt. Lett.*, **15**, 1282 (1990).
- Баранова Н.Б., Быковский Н.Е., Сенатский Ю.В., Чекалин С.В. *Труды ФИАН*, **103**, 84 (1978).
- Smetanina E.O., Dormidonov A.E., Kandidov V.P. *Laser Phys.*, **22**, 1189 (2012).
- Smetanina E.O., Kompanets V.O., Dormidonov A.E., Chekalin S.V., Kandidov V.P. *Laser Phys. Lett.*, **10**, 105401 (2013).
- Чекалин С.В., Компанец В.О., Сметанина Е.О., Кандидов В.П. *Квантовая электроника*, **43**, 326 (2013).
- Majus D., Tamošauskas G., Gražulevičiūtė I., Garejev N., Lotti A., Couairon A., Faccio D., Dubietis A. *Phys. Rev. Lett.*, **112**, 193901 (2014).
- Durand M., Jarnac A., Houard A., Liu Y., Grabielle S., Forget N., Durécu A., Couairon A., Mysyrowicz A. *Phys. Rev. Lett.*, **110**, 115003 (2013).
- Berge L., Skupin S. *Phys. Rev. E*, **71**, 065601 (2005).
- Залозная Е.Д., Дормидонов А.Е. *Труды VI Всерос. молодежной конф. по фундаментальным и инновационным вопросам современной физики* (М.: ФИАН, 2015, с. 33).
- Smetanina E.O., Kompanets V.O., Chekalin S.V., Dormidonov A.E., Kandidov V.P. *Book of Abstracts 4th Int. Symp. on Filamentation* (Tucson, Arizona, USA, 2012, p.129).
- Чекалин С.В., Компанец В.О., Докукина А.Е., Дормидонов А.Е., Сметанина Е.О., Кандидов В.П. *Квантовая электроника*, **45**, 401 (2015).
- Chekalin S.V., Dokukina A.E., Dormidonov A.E., Kompanets V.O., Smetanina E.O., Kandidov V.P. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, **48**, 094008 (2015).
- Krausz F., Ivanov M. *Rev. Mod. Phys.*, **81**, 163 (2009).
- Gražulevičiūtė I., Šuminas R., Tamošauskas G., Couairon A., Dubietis A. *Opt. Lett.*, **40**, 3719 (2015).
- Мартьянович Е.Ф., Кузнецов А.В., Кирпичников А.В., Пестряков Е.В., Багаев С.Н. *Квантовая электроника*, **43**, 463 (2013).
- Darginavičius J., Majus D., Jukna V., Garejev N., Valiulis G., Couairon A., Dubietis A. *Opt. Express*, **21**, 25210 (2013).
- Dharmadhikari J.A., Deshpande R.A., Nath A., Dota K., Mathur D., Dharmadhikari A.K. *Appl. Phys. B*, **117**, 471 (2014).
- Alisauskas S., Kartashov D.V., Pugzlys A., Faccio D., Zheltikov A.M., Voronin A., Baltuska A. *Techn. Dig. CLEO'2013* (San Jose, USA, 2013, QW1E.6).
- Dormidonov A., Kompanets V., Chekalin S., Kandidov V. *Opt. Express*, **23**, 29202 (2015).
- Baldacchini G. *J. Lumin.*, **100**, 333 (2002).
- Kurobori T., Kawamura K., Hirano M., Hosono H. *J. Phys.: Condens. Matter.*, **15**, L399 (2003).
- Stuart B.C., Feit M.D., Rubenchik A.M., Shore B.W., Perry M.D. *J. Opt. Soc. Am. B*, **13**, 459 (1996).
- Kaiser A., Rethfeld B., Vicanek M., Simon G. *Phys. Rev. B*, **61**, 11437 (2000).
- Mao S.S., Quéré F., Guizard S., Mao X., Russo R.E., Petite G., Martin P. *Appl. Phys. A*, **79**, 1695 (2004).
- Лущик Ч.Б., Лущик А.Ч. *Распад электронных возбуждений с образованием дефектов в твердых телах* (М.: Наука, 1989).
- Rohlfing M., Louie S.G. *Phys. Rev. Lett.*, **81**, 2312 (1998).
- Brabec T., Krausz F. *Phys. Rev. Lett.*, **78**, 3282 (1997).
- Couairon A., Brambilla E., Corti T., Majus D., de J. Ramírez-Góngora O., Kolesik M. *Eur. Phys. J. Spec. Top.*, **199**, 5 (2011).
- Келдыш Л.В. *ЖЭТФ*, **47**, 1945 (1964).
- Brabec T., Krausz F. *Rev. Mod. Phys.*, **72**, 545 (2000).
- Blonskyi I., Kadan V., Shynkarenko Y., Yarusevych O., Korenyuk P., Puzikov V., Grin' L. *Appl. Phys. B*, **120**, 705 (2015).
- Henz S., Herrmann J. *Phys. Rev. A*, **59**, 2528 (1999).
- Fedorov V.Y., Tverskoy O.V., Kandidov V.P. *Appl. Phys. B*, **99**, 299 (2010).