

ВКР ультракоротких лазерных импульсов при нелинейной фазовой модуляции

А.В.Конященко, Л.Л.Лосев, В.С.Пазюк

Экспериментально исследован процесс ВКР в режиме нелинейной фазовой модуляции волн лазерного и стоксова излучений. Установлено влияние соотношения лазерной и стоксовой длин волн на величину минимальной длительности лазерного импульса, при которой возможен эффективный процесс ВКР. Показана возможность получения максимально широкополосных импульсов стоксова излучения при согласовании групповых скоростей лазерного и стоксова импульсов.

Ключевые слова: вынужденное комбинационное рассеяние, фемтосекундный лазер, нелинейная фазовая модуляция, компрессия импульсов.

1. Введение

Основными конкурирующими процессами, снижающими эффективность ВКР-преобразования лазерных импульсов с длительностью менее 10 пс в газовых средах, являются многофотонная фотоионизация молекул активной среды, самофокусировка излучения накачки и нелинейная фазовая модуляция, приводящая к уширению спектров излучения накачки и стоксова излучения. Для исключения фотоионизации, эффективность которой определяется интенсивностью накачки, может использоваться длиннофокусная оптика, позволяющая увеличить поперечный размер области взаимодействия и, следовательно, снизить интенсивность лазерного излучения. Критическая мощность самофокусировки, обратно пропорциональная давлению газа, может быть выбрана большей мощности накачки посредством выбора давления активной среды. Уширение спектра импульса лазерного излучения вследствие нелинейной фазовой самомодуляции, равное отношению ширины спектра импульса излучения на выходе из среды к ширине спектра на входе в нее, определяется следующим выражением [1]:

$$B \approx \frac{2\pi n_2 EL}{\lambda \tau S} \quad (\text{при } B > 1),$$

где n_2 – нелинейная часть показателя преломления; λ – длина волны излучения; E – энергия импульса; τ – длительность импульса; S – площадь сечения светового пучка; L – длина взаимодействия. В свою очередь, комбинационный инкремент усиления M при длительности импульса накачки, меньшей времени дефазировки когерентных колебаний активной среды T_2 (при нестационарном ВКР), описывается выражением [2]

$$M = \frac{gEL}{T_2 S},$$

А.В.Конященко, Л.Л.Лосев, В.С.Пазюк. Физический институт им. П.Н.Лебедева РАН, Россия, 119991 Москва, Ленинский просп., 53; e-mail: llosev@mail.ru

Поступила в редакцию 16 декабря 2020 г.

где g – стационарный коэффициент комбинационного усиления. Поскольку показатель преломления n_2 пропорционален давлению газа, а время T_2 обратно пропорционально ему, то единственным способом подавления процесса нелинейной самомодуляции при сохранении комбинационного инкремента усиления является увеличение длительности лазерного импульса. С этой целью была разработана методика преобразования, заключающаяся в удлинении импульса накачки путем частотного chirпирования, ВКР chirпированного импульса и последующей временной компрессии стоксова импульса [3, 4]. По данной методике был получен стоксов импульс с длительностью, близкой к длительности исходного лазерного импульса [5].

Для расширения области применения комбинационных преобразователей ультракоротких импульсов весьма перспективным представляется процесс ВКР, протекающий одновременно с процессом нелинейной фазовой модуляции. В этом случае появляется возможность генерации широкополосных стоксовых импульсов, длительность которых после временной компрессии будет значительно меньше длительности импульса накачки. Для генерации широкополосного стоксова излучения требуется спектрально уширенный в процессе фазовой самомодуляции импульс накачки. Поскольку величина уширения спектра импульса в процессе фазовой самомодуляции пропорциональна интенсивности излучения, то при фиксированной энергии импульса для получения более широкого спектра необходимо уменьшать его длительность. Однако, как было показано в [6], при длительности импульса накачки, меньшей определенного значения, эффективность процесса ВКР резко падает, несмотря на то что интенсивность излучения ниже порога многофотонной фотоионизации, а мощность импульса излучения меньше критической мощности самофокусировки. В наших предыдущих работах [7, 8] была предложена интерпретация этого эффекта на основе влияния нелинейной самомодуляции излучения накачки и стоксовой волны на процесс ВКР. Она заключается в следующем. При распространении мощных импульсов в активной среде возникают нелинейные добавки к модулям волновых векторов излучений накачки k_p и стоксовой компоненты k_s [8]:

$$k_p^{NL}(t) = \frac{2\pi n_2 I_p(t)}{\lambda_p}, \quad k_s^{NL}(t) = \frac{4\pi n_2 I_p(t)}{\lambda_s},$$

где $I_p(t)$ – интенсивность излучения накачки; λ_p и λ_s – длины волн излучений накачки и стоксовой волны. Нелинейная добавка к волновому вектору излучения накачки обусловлена процессом нелинейной фазовой самомодуляции, а к стоксовой волне – процессом кросс-модуляции, т. к. при развитии стоксовой волны с уровня спонтанного рассеяния ее интенсивность много меньше интенсивности излучения накачки. Различающиеся значения добавок приводят к появлению волновой расстройки взаимодействующих в разные моменты времени волн накачки и стоксова излучения. Это вызывает уменьшение комбинационного инкремента усиления при нестационарном ВКР и срыв генерации стоксовой волны. На основе данного предположения было получено выражение для минимально возможной длительности импульса накачки, которая зависит от параметров газовой среды и лазерного излучения следующим образом [8]:

$$\tau_{\min} \approx \frac{160 T_2 n_2}{g} \left| \frac{2}{\lambda_s} - \frac{1}{\lambda_p} \right|. \quad (1)$$

При выводе этого выражения не учитывались эффекты, связанные с дисперсией активной среды, такие как изменение формы импульса и возникновение временного сдвига между импульсом накачки и стоксовым импульсом. Поскольку максимальное значение коэффициента комбинационного усиления в области ударного уширения линии спонтанного комбинационного рассеяния не зависит от давления газа, то минимальная длительность импульса накачки также от него не зависит. Поэтому минимальная длительность импульса накачки не будет изменяться при изменении его энергии и варьировании давления газа и, следовательно, комбинационного инкремента усиления для достижения максимальной эффективности преобразования. Кроме того, вследствие зависимости комбинационного коэффициента усиления от длины волны излучения вида $g \propto \lambda_s^{-1}$ [2] минимальная длительность импульса зависит от длины волны излучения как

$$\tau_{\min} \propto \left| 2 - \frac{\lambda_s}{\lambda_p} \right|. \quad (2)$$

Отсюда следует, что влияние нелинейной фазовой модуляции на процесс комбинационного усиления ослабевает, и минимальная длительность импульса накачки уменьшается при приближении к выполнению условия $\lambda_s = 2\lambda_p$. В этом случае становятся равными нелинейные части волновых векторов излучения накачки и стоксовой волны, и волновая расстройка исчезает.

Предварительные эксперименты по ВКР при нелинейной фазовой модуляции были выполнены с использованием излучения накачки на длине волны 1.03 мкм. Импульс иттербиевого лазера длительностью 250 фс был преобразован при ВКР в водороде с эффективностью ~10% в импульс стоксовой компоненты с длиной волны 1.8 мкм и длительностью 30 фс [9, 10]. Детальное исследование зависимости минимально возможной длительности импульса накачки от параметров лазерного излучения и активной среды не проводилось. Подобные исследования являются частью настоящей работы.

Известно [11], что при ВКР широкополосного стоксова сигнала в поле широкополосной накачки, в частности при ВКР в условиях нелинейной фазовой модуляции, эффективность преобразования зависит от разности групповых скоростей импульсов накачки и стоксовой компоненты. При использовании волноводных структур появляется возможность обеспечить равенство групповых скоростей и таким образом повысить инкремент усиления и получить максимально широкополосные стоксовы импульсы. Результаты этих исследований также представлены в настоящей работе.

2. Экспериментальные результаты и их обсуждение

Схема эксперимента по исследованию ВКР в случае нелинейной фазовой модуляции показана на рис.1. Источниками излучения накачки служили фемтосекундная лазерная система на сапфире с титаном (REUS-3m1k, Avesta) с центральной длиной волны 0.8 мкм и иттербиевая лазерная система с длиной волны излучения 1.03 мкм (ТЕТА-3-НЕ, Avesta). Обе лазерные системы были построены по схеме генератор–регенеративный усилитель. Частота следования импульсов была равна 1 кГц, энергия одиночного импульса достигала 2 мДж в обеих системах. Длительность выходного импульса излучения могла варьироваться путем изменения расстояния между решетками временного компрессора на выходе системы. Минимальная длительность импульса составляла 30 фс для лазера на сапфире с титаном и 250 фс – для иттербиевого лазера.

Эксперименты проводились с использованием кварцевого капилляра, помещенного в заполненную газом камеру длиной 120 см. Длина капилляра равнялась 80 см, внутренний диаметр составлял 250 мкм. Активным веществом являлся газообразный водород.

Перед входом в камеру была установлена двулучепреломляющая пластина из кальцита толщиной 1 см и полуволновая фазовая пластина. Данная система позволяла реализовать как режим моноимпульсной накачки, так и режим с разделенными во времени двумя импульсами с ортогональными поляризациями излучения, в котором возможно получение более широкополосных импульсов по сравнению со случаем моноимпульсной накачки [10]. На выходе камеры с водородом размещались коллимирующая линза, широкополосный фильтр для выделения стоксова излучения и призмный поляризатор для выбора импульса с необходимой поляризацией. Спектры импульсов регистрировались с помощью сканирующего спектрометра ASP-IR-2.6 (Avesta).



Рис.1. Оптическая схема установки:

$\lambda/2$ – полуволновая фазовая пластина; Φ – широкополосный фильтр для выделения стоксова излучения; Π – призмный поляризатор; значки над импульсами обозначают направления поляризации излучения.

Эксперименты выполнялись с импульсами лазерного излучения, мощность которых была ниже критической мощности самофокусировки. Для излучений с длинами волн 0.8 и 1.03 мкм критические мощности самофокусировки (в ГВт) в водороде составляют $P_{cr}^{0.8} \approx 12/H$ и $P_{cr}^{1.03} \approx 19/H$, где H – давление водорода в атмосферах [12]. Возникновение самофокусировки при варьировании мощности излучения фиксировалось по резкому уменьшению пропускания капилляра.

Зависимости эффективности преобразования от длительности импульса в моноимпульсном режиме представлены на рис.2. При накачке с длиной волны 0.8 мкм эффективность преобразования выходит на насыщение для импульсов с длительностью свыше 2 пс. Для более коротких импульсов наблюдается снижение эффективности. Давление водорода в капилляре равнялось 15 атм. Длина волны стоксова излучения составляла 1.2 мкм, а энергия импульса излучения – 0.5 мДж. В данных условиях критическая мощность самофокусировки не была превышена.

При переходе к излучению накачки с большей длиной волны (1.03 мкм) эффективность преобразования насыщается при длительностях импульсов свыше 0.8 пс. Длина волны стоксова излучения была равна 1.8 мкм. Зависимости снимались при давлениях водорода 34 и 9 атм, при этом энергии импульсов накачки составляли 0.3 и 1.2 мДж соответственно. Из рис.2 видно, что зависимости совпадают в обоих случаях. Это служит подтверждением независимости минимальной длительности импульса накачки от давления газа.

Следует отметить, что аналогичная зависимость эффективности преобразования в водороде от длительности импульса излучения с длиной волны 1 мкм наблюдалась в работе [13], где исследовался процесс ВКР в микроструктурированном волокне при энергии импульсов ~ 10 мкДж. Эффективность преобразования насыщалась при длительностях импульсов более 0.7 пс.

Соотношение полученных значений минимально возможных длительностей импульсов накачки для нестационарного ВКР достаточно хорошо согласуется с соотношением величин, рассчитанных по формуле (2), из которой следует, что в водороде минимальная длительность импульса накачки при переходе от длины волны 0.8 мкм к 1.03 мкм уменьшается примерно в 2.5 раза. Оценка минимально возможной длительности импульса накачки с использованием выражения (1) для накачки с длиной вол-

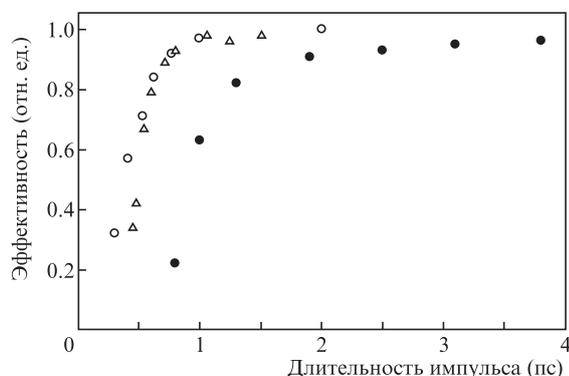


Рис.2. Зависимости эффективности ВКР-преобразования от длительности импульса при накачке излучениями с длинами волн 1.03 мкм (давление водорода 9 (о) и 34 атм (Δ)) и 0.8 мкм (давление водорода 15 атм (●)).

ны 1.03 мкм дает значение ~ 0.5 пс, что находится в согласии с экспериментально измеренной величиной.

Для получения широкополосных стоксовых импульсов и, следовательно, наиболее коротких импульсов после временной компрессии необходимо реализовать режим ВКР, при котором осуществляется эффективное преобразование на протяжении всего chirпированного в процессе самомодуляции импульса накачки. Это может быть достигнуто при использовании схемы с двухимпульсной накачкой и согласовании групповых скоростей импульсов накачки и стоксова излучения. Ранее разработанный метод двухимпульсной накачки двумя последовательными ортогонально поляризованными импульсами [4] заключается в том, что первый импульс создает в активной среде при ВКР когерентную волну колебаний молекул, на которой происходит эффективное рассеяние задержанного импульса накачки на всем его протяжении. Выравнивание групповых скоростей импульсов накачки и стоксовых импульсов может быть достигнуто в газонаполненных волноводах.

Используя для модуля волнового вектора излучения основной моды в газонаполненном полем световоде выражение [14]

$$k = \frac{2\pi}{\lambda} \left[n - \frac{1}{2} \left(\frac{2.4\lambda}{\pi d} \right)^2 \right]$$

(где n – показатель преломления газа, d – внутренний диаметр волновода), а для показателя преломления газа при давлении в одну атмосферу выражение [15]

$$n - 1 = A + \frac{D}{\lambda^2}$$

(где A и D – константы для конкретного газа), можно вычислить разность групповых скоростей импульса накачки и стоксова импульса и получить давление, при котором групповые скорости выравниваются:

$$H_v \approx \frac{0.1\lambda_s^2 \lambda_p^2}{Dd^2}$$

При ВКР в водороде излучения с длиной волны 1.03 мкм для капилляра с внутренним диаметром 250 мкм групповые скорости выравниваются при давлении водорода 5.2 атм (для водорода $D = 10^{-14}$ см² [15]).

На рис.3 приведены спектры импульсов излучения накачки и стоксова излучения на выходе из капилляра. В данном случае для достижения максимальной ширины спектра стоксова излучения использовался режим двухимпульсной накачки импульсами с одинаковой энергией [10]. Длительности одиночных импульсов накачки были равны 400 фс. Эксперименты проводились при давлениях газа 9 и 34 атм. Энергии двойных импульсов накачки при этом составляли 1200 и 300 мкДж соответственно. При данных энергиях импульсов накачки и давлениях газа для задержанного импульса накачки наблюдается ВКР-преобразование с эффективностью 9% при давлении 34 атм и 11% при давлении 9 атм. Для первого импульса накачки эффективность преобразования не превышала 1%. Спектр уширенного при фазовой самомодуляции первого импульса накачки показан на рис.3,а. Спектры импульсов накачки имеют похожие формы в двух исследо-

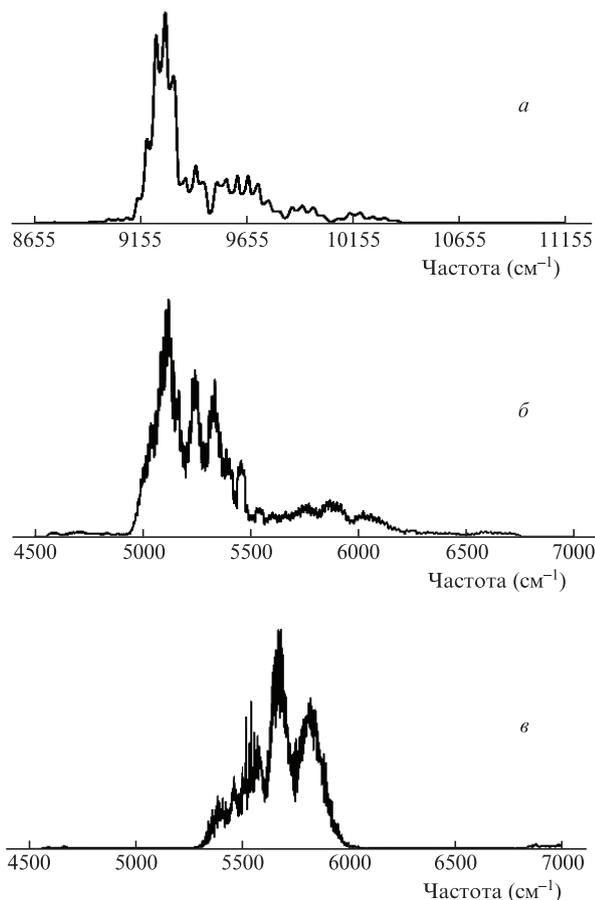


Рис.3. Спектры импульсов излучения накачки (*a*), а также стоксова излучения при давлениях водорода 9 (*б*) и 34 атм (*в*) на выходе из капилляра (для наглядности горизонтальные оси сдвинуты на величину стоксова сдвига в водороде).

ванных режимах преобразования, т. к. величины уширения спектров V совпадают в обоих случаях. В спектрах стоксова излучения имеется заметное различие. Данная особенность в формировании спектра стоксова импульса может быть связана с различием групповых скоростей импульсов. При давлении 9 атм, близком к давлению, при котором групповые скорости совпадают, рассчитанная временная задержка между импульсом накачки и стоксовым импульсом при прохождении их через капилляр длиной 80 см составляет 20 фс, что значительно меньше длительности импульса. Ширина и форма спектра стоксова импульса (рис.3,б) близки к таковым для спектра импульса излучения накачки. При давлении 34 атм временная задержка возрастает до 160 фс. Импульсы распространяются в режиме нормальной дисперсии. Стоксов импульс опережает импульс накачки, и наиболее эффективное преобразование происходит на заднем фронте положительно chirпированного стоксова импульса, в области высоких частот. Вследствие этого спектр стоксова импульса сужается и смещается в коротковолновую область (рис.3,в).

Временная компрессия положительно chirпированных стоксовых импульсов может быть осуществлена при их распространении в материалах с аномальной дисперсией в области 1.8 мкм, например в плавленом кварце [9, 11]. На рис.4 представлены рассчитанные формы спектрально ограниченных импульсов (предельно коротких импульсов после временной компрессии), соответствующие

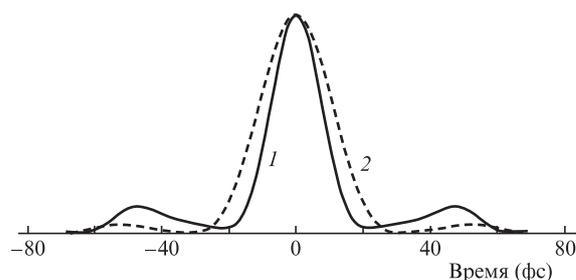


Рис.4. Рассчитанные формы спектрально ограниченных стоксовых импульсов, спектры которых представлены на рис.3,б и в, для давлений водорода 9 (*1*) и 34 атм (*2*).

экспериментальным спектрам стоксовых импульсов. Импульс с длительностью 18 фс можно получить при компрессии более широкополосного стоксова импульса в случае ВКР в режиме согласования групповых скоростей импульсов накачки и стоксовой компоненты при давлении 9 атм. При давлении водорода 5 атм, соответствующем точному согласованию групповых скоростей, порог ВКР не был превышен в условиях нашего эксперимента при максимально возможной энергии импульса накачки 2 мДж. При увеличении давления водорода и возрастании разности групповых скоростей происходит сужение спектра стоксовой компоненты, и рассчитанная длительность спектрально ограниченного стоксова импульса увеличивается до 25 фс.

3. Заключение

В настоящей работе приводятся результаты экспериментальных исследований, подтверждающие предложенный в [8] механизм влияния нелинейной фазовой модуляции на процесс нестационарного ВКР. Показано, что минимально возможная длительность импульса излучения накачки при фиксированной длине волны зависит только от соотношения комбинационного коэффициента усиления и нелинейного показателя преломления активной среды. При этом достижение наименьшей длительности импульса накачки возможно в том случае, когда длина волны стоксова излучения в два раза превышает длину волны излучения накачки. Экспериментально при ВКР в водороде минимальная длительность импульса накачки составила ~ 0.8 пс для длин волн излучений накачки 1.03 мкм и стоксовой компоненты 1.8 мкм и ~ 2 пс для длин волн 0.8 и 1.2 мкм соответственно. Также показано, что наиболее широкополосные chirпированные стоксовы импульсы могут быть получены в волноводе при выравнивании групповых скоростей импульсов накачки и стоксовой компоненты.

Исходя из полученных в настоящей работе и в ранее проведенных исследованиях [9, 10] экспериментальных данных по эффективности ВКР-преобразования и ширине спектра стоксова излучения, весьма перспективной представляется схема генерации импульсов излучения в области 2 мкм с длительностью ~ 20 фс и энергией ~ 100 мкДж на основе ВКР излучения широко применяемого фемтосекундного иттербиевого лазера. Световые импульсы с длительностью в несколько периодов световой волны и мощностью ~ 5 ГВт могут использоваться в экспериментах по нелинейной оптике среднего ИК диапазона. Также, на основе зависимости минимальной длительности импульса накачки от длины волны (2), можно

предположить, что наиболее короткие стоковые импульсы излучения среднего ИК диапазона с длиной волны 2.6 мкм могут быть получены при ВКР излучения хром-форстеритного лазера с длиной волны 1.25 мкм в сжатом водороде. Стабильность работы таких ВКР-преобразователей при оптимальных условиях может приближаться к стабильности лазера накачки [16].

Следует также отметить возможность реализации схемы ВКР-преобразования фемтосекундных лазерных импульсов в микроструктурированных полых волокнах, в частности в полых волокнах револьверного типа [17]. Малый коэффициент ослабления излучения позволяет использовать для преобразования волокна с длиной в несколько метров. В данных волокнах посредством выбора давления газа можно реализовать режим равенства групповых скоростей импульса накачки и стокового импульса. Тогда во входной части волокна будет уширяться спектр импульса излучения накачки и будет увеличиваться длительность импульса вследствие его дисперсионного расплывания. При дальнейшем распространении импульса, когда его длительность превысит минимально возможную длительность импульса, начнется процесс ВКР широкополосного излучения накачки. Согласование групповых скоростей позволит обеспечить эффективное преобразование в широкополосное стоково излучение.

1. Pinault S.C., Potasek M.J. *J. Opt. Soc. Am. B*, **2**, 1318 (1985).
2. Зельдович Б.Я., Пилипецкий Н.Ф., Шкунов В.В. *Обращение волнового фронта* (М.: Наука, 1985).
3. Jordan C., Stankov K.A., Marowsky G., Canto-Said E.J. *Appl. Phys. B*, **59**, 471 (1994).
4. Konyashchenko A.V., Losev L.L., Tenyakov S.Yu. *Opt. Express*, **15**, 11855 (2007).
5. Диденко Н.В., Конященко А.В., Кострюков П.В., Лосев Л.Л., Пазюк В.С., Теняков С.Ю., Молчанов В.Я., Чижигов С.И., Юшков К.Б. *Квантовая электроника*, **45**, 1101 (2015) [*Quantum Electron.*, **45**, 1101 (2015)].
6. Losev L.L., Song J., Xia J.F., Strickland D., Brukhanov V.V. *Opt. Lett.*, **27**, 2100 (2002).
7. Конященко А.В., Кострюков П.В., Лосев Л.Л., Пазюк В.С. *Квантовая электроника*, **47**, 1 (2017) [*Quantum Electron.*, **47**, 1 (2017)].
8. Конященко А.В., Кострюков П.В., Лосев Л.Л., Пазюк В.С. *Квантовая электроника*, **47**, 593 (2017) [*Quantum Electron.*, **47**, 593 (2017)].
9. Konyashchenko A.V., Losev L.L., Pazyuk V.S. *Opt. Lett.*, **44**, 1646 (2019).
10. Конященко А.В., Лосев Л.Л., Пазюк В.С. *Квантовая электроника*, **49**, 845 (2019) [*Quantum Electron.*, **49**, 845 (2019)].
11. Бельдюгин И.М., Зубарев И.Г., Михайлов С.М. *Квантовая электроника*, **7**, 1471 (1980) [*Sov. J. Quantum Electron.*, **10**, 847 (1980)].
12. Lehmeier H.J., Leupacher W., Penzkofer A. *Opt. Commun.*, **56**, 67 (1985).
13. Loranger S., Russell P.S.J., Novoa D. *J. Opt. Soc. Am. B*, **37**, 3550 (2020).
14. Im S., Husakou A., Herrmann J. *Opt. Express*, **17**, 13050 (2009).
15. Борн М., Вольф Э. *Основы оптики* (М.: Наука, 1973).
16. Диденко Н.В., Конященко А.В., Лосев Л.Л. *Квантовая электроника*, **50**, 834 (2020) [*Quantum Electron.*, **50**, 834 (2020)].
17. Gladyshev A., Yatsenko Y., Kolyadin A., Kompanets V., Bufetov I. *Opt. Mater. Express*, **10**, 3081 (2020).