МОСКОВСКИЙ ГОСУДАРСТВЕННЫЙ УНИВЕРСИТЕТ

имени М.В. ЛОМОНОСОВА

ФИЗИЧЕСКИЙ ФАКУЛЬТЕТ

На правах рукописи

Потёмкин Фёдор Викторович

ШИРОКОДИАПАЗОННЫЕ ФЕМТОСЕКУНДНЫЕ ИК ЛАЗЕРНЫЕ ИСТОЧНИКИ НОВОГО ПОКОЛЕНИЯ И НЕЛИНЕЙНЫЕ ПРЕОБРАЗОВАНИЯ В КОНДЕНСИРОВАННЫХ И ПЛОТНЫХ ГАЗОВЫХ СРЕДАХ

1.3.19. Лазерная физика

ДИССЕРТАЦИЯ

на соискание ученой степени

доктора физико-математических наук

Москва – 2023

Оглавление

Введение и постановка цели и задач исследований ***6***

Глава 1. Мощные источники фемтосекундного лазерного излучения ближнего и среднего инфракрасного диапазонов с пиковой мощностью до 100 ГВт на основе параметрических генераторов и твердотельных лазеров накачки ***24***

§1.1. Современные лазеры ультракоротких импульсов **24**

1.1.1. Обзор существующих твердотельных мощных лазерных источников 24

1.1.1. Перестраиваемые фемтосекундные ИК лазерные источники на основе параметрического преобразования частоты в нелинейных кристаллах 28

§1.2. Мультигигаваттный хром-форстеритовый лазерный комплекс с длиной волны 1,24 мкм на основе многопроходных усилителей **32**

1.2.1. Принципиальная схема фемтосекундной лазерной системы на хром-форстерите 32

1.2.2. Исследование возможности использования кристаллов хром-форстерита для усиления фемтосекундных импульсов до мультигигаваттной мощности 34

1.2.3. Экспериментальное исследование усиления стретчированного импульса в многопроходном усилителе на кристаллах хром-форстерита 35

1.2.4. Термооптическая линза в кристалле хром-форстерита 37

1.2.5. Оптическая схема многопроходного усилителя (МПУ) 39

§1.3. Генерация широкополосных фемтосекундных затравочных импульсов ближнего и среднего ИК-диапазона **42**

1.3.1. Генерация широкополосных фемтосекундных спектральных суперконтинуумов от мощных импульсов с длиной волны 1,24 мкм 42

1.3.2. Параметрическая генерация широкополосных импульсов среднего ИК-диапазона в кристаллах LBO и DCDA при оптимизации длины волны накачки 49

§1.4. Параметрические генераторы гигаваттного уровня мощности среднего ИК-диапазона с накачкой хром-форстеритовым лазером **56**

1.4.1. Теория и численное моделирование процесса параметрического усиления 57

1.4.2. Параметрическое усиление света в кристалле KTA с накачкой основным излучением и второй гармоникой хром-форстеритового лазера: аномалия перестроечной кривой вблизи края поглощения 60

1.4.3. Высокоэффективная генерация фемтосекундного излучения среднего инфракрасного диапазона (3–5 мкм) в процессе параметрического усиления света в кристалле AGS с накачкой основным излучением хром-форстеритового лазера 65

1.4.4. Генерация широкополосных импульсов среднего ИК-диапазона при параметрическом усилении в кристалле LGS с накачкой основным излучением хром-форстеритового лазера 69

1.4.5. Сравнение усилительных свойств кристаллов AGS и LGS для получения выходных импульсов с длительностью до 100 фс и энергией 20–30 мкДж в диапазоне длин волн 4 – 5 мкм 72

1.4.6. Высокоэффективный параметрический усилитель на кристалле LGS для получения выходных импульсов с длительностью до 100 фс и энергией 20–30 мкДж в диапазоне длин волн 4–8 мкм 73

1.4.7. Численное моделирование процесса параметрического усиления в трехкаскадном параметрическом усилителе на основе кристалла LGS 75

1.4.8. Характеризация импульсов среднего ИК-диапазона (4–8 мкм) на выходе трехкаскадного параметрического усилителя на кристалле LGS с накачкой основным излучением хром-форстеритового лазера 77

Выводы по главе 1 ***78***

Глава 2. Мощная фемтосекундная лазерная система среднего ИК-диапазона (4-5 мкм) на основе многопроходного усиления чирпированного импульса инжекции в активной халькогенидной среде Fe:ZnSe ***81***

§2.1. Лазерные источники среднего ИК-диапазона: применения **81**

§2.2. Лазерные свойства халькогенидов, легированных ионами Fe^{2+} 83
2.2.1. Спектроскопические и физические характеристики лазерной среды Fe:ZnSe 84
2.2.2. Лазерная генерация в Fe:ZnSe: текущее состояние 87
2.2.3. Ростовые методы для кристаллов Fe:ZnSe. 89
2.2.4. Возможности по наращиванию энергии в моно- и поликристаллах 90

§2.3. Разработка мощных импульсных твердотельных лазеров с длиной волны 3 мкм и активной модуляцией добротности в качестве источников излучения накачки кристалла Fe:ZnSe 92
2.3.1. Усиление в 3-мкм лазерных кристаллах 94
2.3.2. Генерация гигантских импульсов в лазерном резонаторе YSGG: Cr^{3+}:Yb^{3+}:Ho^{3+} на основе нового типа электрооптического затвора на кристалле KTP 95
2.3.3. Акустооптическая модуляция добротности в 3-мкм диапазоне длин волн с помощью нового типа кристаллов KYW/KGW 96
2.3.5. Оптико-механическая модуляция добротности 3-мкм эрбиевого лазера на основе вращающегося зеркала 100
2.3.6. Исследование работы лазеров в режиме свободной генерации и модуляции добротности с активными элементами Er:YLF, Er:YSGG и Er:YAG с импульсной диодной боковой накачкой 102

§2.4. Экспериментальное исследование режимов усиления широкополосных 4 мкм импульсов в многопроходном усилителе, компрессия усиленных импульсов 106
2.4.1. Разработка и создание полностью автоматизированной системы управления и контроля твердотельной лазерной системой в вакуумном корпусе для предотвращения поглощения излучения на 4,3 мкм (линия CO_2) 106
2.4.2. Усиление чирпированных импульсов (~230 пс) в многопроходном усилителе на кристалле Fe:ZnSe с концентрацией ионов железа $\sim 3 \cdot 10^{18}$ $см^{-3}$ с оптической накачкой 3-мкм лазером 107
2.4.3. Компрессия 4-мкм излучения в решеточном компрессоре до фемтосекундной длительности 115
2.4.4. Исследование возможностей использования кристаллов Fe:ZnSe с высоким уровнем легирования ионами железа (до 10^{20} $см^{-3}$) 117

§2.5. Исследование кристалла Fe:CdSe в качестве возможной активной среды для расширения диапазона усиления в область 5-6 мкм 122
2.5.1. Исследование температурной зависимости времени жизни верхнего лазерного уровня 123
2.5.2. Измерение температурной и спектральной зависимости коэффициента усиления фемтосекундной инжекции на проход при накачке на 2,85 мкм и 2,94 мкм 125
2.5.3. Определение оптимальной плотности энергии излучения накачки 125
2.5.4. Многопроходное усиление в Fe:CdSe 125
2.5.5. Компрессия мощных 5-мкм лазерных импульсов 130
2.5.6. Спектральный синтез полос усиления халькогенидных лазерных сред Fe:ZnSe/Fe:CdSe 132

Выводы по главе 2 133

Глава 3. Нелинейно-оптические преобразования высокоинтенсивного лазерного излучения ближнего и среднего ИК-диапазонов в твердотельных и плотных газовых средах с синтезированной нелинейностью 137

§3.1. Физические основы взаимодействия высокоинтенсивного лазерного излучения с веществом 137
3.1.1. Филаментация мощного фемтосекундного лазерного излучения 137
3.1.2. Нелинейно-оптическое обогащение спектра при распространении мощного лазерного излучения в газовой среде 142
3.1.3. Генерация оптических гармоник при взаимодействии высокоинтенсивного лазерного излучения с газовой средой 145

§3.2. Генерация оптических гармоник излучения ближнего и среднего ИК диапазонов в конденсированных и плотных газовых средах 146
3.2.1. Генерация оптических гармоник при взаимодействии высокоинтенсивного лазерного излучения ближнего и среднего ИК диапазонов с плотными газовыми средами в условиях плазмообразования 148

3.2.2. Генерация оптических гармоник при взаимодействии высокоинтенсивного лазерного излучения с длиной волны 4,6 мкм с ламинарной газовой струей высокой плотности 151
3.2.3. Генерация оптических гармоник при взаимодействии высокоинтенсивного лазерного излучения с длиной волны 4,6 мкм с плотными газовыми средами в режиме филаментации 152
3.2.4. Повышение эффективности преобразования высокоинтенсивного излучения ближнего и среднего инфракрасного диапазона в комбинированных газовых средах с резонансами 154

§3.3. Генерация терагерцового излучения при оптическом выпрямлении высокоинтенсивного ИК лазерного излучения в органических кристаллах 157

§3.4. Генерация сверхширокополосных оптических суперконтинуумов и малопериодного излучения с использованием мощных фемтосекундных импульсов ИК-диапазона 162
3.4.1. Генерация широкополосного когерентного излучения (до 2 мкм) при взаимодействии мощного лазерного излучения ближнего ИК-диапазона (1,24 мкм) с газовой средой 164
3.4.2. Временная компрессия мощного излучения ближнего ИК-диапазона в газе высокого давления 166
3.4.3. Создание широкополосных когерентных фемтосекундных излучателей среднего ИК-диапазона вне области генерации источника накачки (4,4 мкм) с использованием режима филаментации в сжатых газах 173
3.4.3.1. Генерация суперконтинуума при распространении мощного излучения среднего ИК-диапазона в газах 174
3.4.3.2. Использование смеси газов для расширения спектра мощных фемтосекундных импульсов среднего инфракрасного диапазона в режиме самоканалирования. Посткомпрессия 176

Выводы по главе 3 180

Глава 4. Экстремальные состояния вещества в объеме конденсированных сред при воздействии сфокусированным излучением ИК-диапазона: способы создания и методы диагностики 182

§4.1. Экстремальное состояние вещества 182

§4.2. Методы и особенности создания лазерно-индуцированного экстремального состояния вещества в объеме конденсированной среды 185
4.2.1. Острая фокусировка лазерного излучения 185
4.2.2. Филаментация мощного лазерного излучения в конденсированных средах 186
4.2.3. Влияние аберраций при острой фокусировке фемтосекундного лазерного излучения в объем конденсированной среды 187
4.2.4. Особенности локализованного воздействия на объем полупроводниковых материалов 188

§4.3. Физическая картина процессов при взаимодействии остросфокусированного фемтосекундного лазерного излучения с объемом прозрачной конденсированной среды 189
4.3.1. Диэлектрики и полупроводники 190

§4.4. Диагностика лазерной плазмы, созданной в объеме конденсированной среды 191
4.4.1. Определение размеров области лазерного воздействия по люминесценции 193
4.4.2. Теневое фотографирование микроплазмы 194
4.4.3. Трехмерное картирование микроплазмы с помощью микроскопии третьей гармоники 196
4.4.4. Диагностика области лазерного воздействия с использованием методики трехмерной визуализации распространения лазерного импульса 201
4.4.5. Диагностика микроплазмы и объемного энерговклада с помощью оптико-акустического метода 203
4.4.6. Определение порогов плазмообразования и поглощенной энергии при воздействии высокоинтенсивного лазерного излучения на объем конденсированных сред 208

§4.5. Диагностика остаточных лазерно-индуцированных микромодификаций в объеме конденсированных сред 209

§4.6. Исследование влияния условий фокусировки и параметров лазерного излучения на характеристики формируемой микроплазмы в объеме конденсированных сред 211
4.6.1. Влияние условий фокусировки на режимы распространения лазерного излучения в конденсированной среде 211

4.6.2. Влияние длины волны и длительности воздействующего лазерного излучения на ионизацию и эффекты нагрева электронов в лазерном поле в диэлектриках и полупроводниках _____217
4.6.3. Влияние длины волны и длительности воздействующего лазерного излучения на характер распространения высокоинтенсивного фемтосекундного лазерного импульса в объеме кремния _____229

§4.7. Двухцветное воздействие остросфокусированной парой фемтосекундных лазерных импульсов на объем конденсированной среды _____ 240

4.7.1. Определение размеров области взаимодействия по сигналу люминесценции плазмы и третьей гармоники _____244
4.7.2. Экспериментальная схема двухцветного воздействия остросфокусированных фемтосекундных лазерных импульсов на объем конденсированной среды во встречной геометрии пучков _____245
4.7.3. Тандемное воздействие двухцветной парой остросфокусированных фемтосекундных лазерных импульсов на объем конденсированной среды: теория и эксперимент _____247

§4.8. Время-разрешенная диагностика когерентных фононов как индикатора лазерно-индуцированных быстрых фазовых переходов в конденсированных средах _____ 273

4.8.1. Влияние лазерной плазмы на процессы энергопереноса и генерации когерентных фононов во фториде магния и кремнии _____276

Выводы по главе 4 _____ 287

Заключение _____ 290

Публикации автора по теме диссертации_____ 293

Благодарности_____ 301

Список литературы _____ 302

Введение и постановка цели и задач исследований

С момента создания первого лазера в 60-х годах XX века лазерная техника быстро развивалась как с точки зрения сокращения длительности, так и наращивания энергии лазерных импульсов [1]. Этому способствовал поиск новых перспективных и широкополосных лазерных сред, позволяющих генерировать и усиливать излучение фемтосекундной (1 фс = 10^{-15} с) длительности в различных спектральных диапазонах от ультрафиолетового (УФ) до инфракрасного (ИК). Настоящим прорывом в фемтосекундной технике явилось изобретение метода усиления чирпированных импульсов (УЧИ), известного в англоязычной литературе как CPA (*англ*. chirped pulse amplification), за что её изобретатели Ж. Муру и Д. Стрикленд в 2018 году были удостоены Нобелевской премии. После этого фемтосекундные лазеры смогли «шагнуть» в суб-джоулевый диапазон энергий лазерных импульсов, достигнув рекордных пиковых мощностей петаваттного уровня (1 ПВт = 10^{15} Вт) [2–4]. Развитие специальных адаптивных технологий в оптике позволило сфокусировать лазерный пучок такой мощности в дифракционный предел (~λ^3), что для доступных на тот момент источников составляло порядка нескольких микрометров в пространстве. Тем самым были достигнуты интенсивности выше 10^{16} Вт/см^2 и было создано сверхсильное световое поле, недоступное для получения другими способами в лабораторных условиях (при интенсивности $I \geq 10^{16}\ ^{\text{Вт}}/_{\text{см}^2}$ напряженность светового поля превышает напряженность поля в атоме водорода E_a>10^9 В/см).

Создание мощных лазерных систем фемтосекундной длительности на многие годы вперёд определило вектор на исследование нелинейного отклика различных сред, возникающего в полях интенсивного лазерного излучения. Эти разработки позволили провести новые виды экспериментов [5] – ускорение заряженных частиц сильными лазерными полями [6] и лазерное инициирование ядерных реакций [7]. Они также продемонстрировали новые методы генерации рентгеновского излучения [8], в частности, генерацию предельно коротких рентгеновских импульсов [9]. К 1990 году были разработаны и созданы уникальные пико- и фемтосекундные лазерные системы, позволяющие получать высокоинтенсивное лазерное излучения (10^{12} –10^{16} Вт/см^2) в УФ, видимом и ИК-диапазонах [10,11]. Позже были продемонстрированы уникальные подходы по наращиванию пиковой мощности в гибридных лазерных системах, основанных на твердотельных генераторах и газовых усилителях [12].

Интерес исследователей к использованию более длинноволнового излучения среднего и дальнего ИК диапазонов в первую очередь связан с существенным повышением эффективности нелинейно-оптических процессов [13]. Увеличение пондеромоторной энергии электрона ~(~ $I \times \lambda^2$) приводит к тому, что возникают новые режимы ускорения частиц [14], генерации яркого рентгеновского [15] и терагерцевого излучений [16]. Релятивистский режим взаимодействия электрона с полем лазерной волны для излучения с длиной волны 4 мкм достигается уже при $I_{rel} = 1{,}37 \times 10^{18}\ ^{\text{Вт}}/_{\text{см}^2} \times \left(1\ ^{\text{мкм}}/_{\lambda}\right)^2 \cong 10^{17}\ ^{\text{Вт}}/_{\text{см}^2}$, что в условиях формирующейся плазмы меньшей плотности позволяет уменьшить эффекты плазменной экранировки и довести большую

часть энергии лазерного излучения до мишени. Отметим, что именно изменение баланса между ионизационным и нелинейным вкладами в сочетании с выраженным пондеромоторным действием поля при распространении длинноволнового мощного лазерного излучения в среде обеспечивает рост эффективности нелинейно-оптических процессов. Рост критической мощности самофокусировки позволяет доставлять в управляемом режиме одиночной филаментации больше энергии, что важно для удаленного мониторинга и других практических приложений [17]. Филаментация мощных лазерных импульсов среднего ИК-диапазона за счёт уменьшения влияния дисперсии на распространение лазерных импульсов позволяет получать многооктавный суперконтинуум, простирающийся от УФ до среднего и дальнего ИК диапазонов [18]. Это гарантирует в посткомпрессии импульсы с малым числом периодов светового поля [19]. Произведение интенсивности лазерного поля на квадрат длины волны также определяет частоту отсечки гармоник высокого порядка, генерирующихся на плато, что в применении к среднему ИК диапазону говорит о возможности получения гармоник в диапазоне энергий на уровне кэВ, столь важном для развития лазеров на свободных электронах [15]. Наличие молекулярных полос поглощения в средней ИК области спектра позволяет с использованием источников среднего ИК-диапазона исследовать кинетику молекул и создавать на этой основе мощные лазерные источники [20,21], разрабатывать новые методы спектроскопии и микроскопии физических, химических и биологических объектов, а также получать новую информацию о природе оптических нелинейностей в этом спектральном диапазоне.

Несмотря на перспективность и значимость проведения исследований в средней ИК-области спектра, практически все оптические эксперименты, нацеленные на изучение сверхбыстрых процессов в веществе на фемтосекундном масштабе времени, ограничены в основном видимой и ближней ИК-областью спектра, так как здесь были разработаны эффективные коммерческие лазерные источники сверхкоротких импульсов. Существующие уникальные фемтосекундные лазерные установки среднего и дальнего ИК диапазонов в России и за рубежом громоздки, сложны в обслуживании и построены на схеме параметрического усиления чирпированных импульсов или основаны на CO_2 усилителях высокого давления [22,23]. Использование новых конденсированных лазерных материалов [24,25], способных усиливать широкополосное излучение в среднем ИК-диапазоне, позволило бы получать мощные ИК лазерные импульсы более простым способом, используя стандартную технологию УЧИ, и расширило бы спектр применения таких лазерных источников.

Развитие методов высокоэффективного оптико-терагерцового преобразования позволило достичь сильного поля (>10 МВ/см) в терагерцевом диапазоне, что сделало возможным наблюдение в нем нелинейных эффектов [26–29]. Разработка подходов, позволяющих создать источник, генерирующий мощные лазерные импульсы в различных спектральных диапазонах, открывает для решения новый класс задач, а именно мультиспектральное воздействие на конденсированные и газовые среды в условиях сильного поля как в оптическом, так и в терагерцовом диапазонах. Это позволяет рассмотреть когерентные и некогерентные эффекты в

физике взаимодействия лазерного излучения с веществом, а также исследовать вопрос нелинейного отклика вещества в условиях воздействия сильного квазистационарного поля, что может открыть новые режимы ускорения заряженных частиц и сформировать условия на генерацию гармоник высокого порядка с энергиями фотонов в кэВ-диапазоне. Это, в свою очередь, может стать основой для получения предельно коротких аттосекундных и в перспективе позволит осуществить первую экспериментальную генерацию зептосекундных импульсов [30].

Исследованию нелинейно-оптических процессов взаимодействия интенсивного лазерного излучения с веществом посвящена большая часть многолетних исследований в России и мире, что связано со стремлением ученых к пониманию фундаментальных механизмов формирования нелинейного отклика вещества, что невозможно без создания эффективных методов расширения спектра [31,32]. Однако необходимость поддержания интенсивности на уровне более 1 ТВт/см^2 при узком выборе источников и ограниченном доступе к управлению параметрами лазерного излучения не позволяло обеспечить широкий спектральный охват генерируемого когерентного излучения, что также было связано с наличием в системе чаще всего лишь одного мощного канала лазерного излучения с фиксированной длиной волны. Предлагаемый в диссертации подход к созданию двух синхронизированных мощных каналов лазерного излучения в ближнем (1,24 мкм) и среднем (4–5 мкм) ИК-диапазонах учитывает преимущества каждого из разработанных источников. В результате удалось разработать методы по эффективному преобразованию излучения в УФ, средний ИК и ТГц диапазоны длин волн и создать широкодиапазонный источник когерентного излучения. Это закладывает на долгие годы вперёд конкурентное преимущество МГУ имени М.В. Ломоносова в развитии фотоники ближнего и среднего ИК диапазонов с возможностью создания новых устройств нелинейной оптики.

Совершенствование лазерных технологий позволило выйти на новый уровень исследований в области неравновесных состояний вещества и физики высоких плотностей энергий и интенсивностей. В режиме сверхсильного светового поля оказывается возможным изучать фундаментальные свойства вещества в экстремальных состояниях, характеризующихся высокими значениями температуры (~10^5 К) и давления (~1 ТПа), то есть *экстремальные состояния вещества* [33,34]. Создание такого рода состояний имеет существенное значение, например, для задач, связанных с высокотемпературной лазерной плазмой и термоядерными процессами, что, в свою очередь, имеет отношение к моделированию ряда астрофизических процессов [35,36]. Лазерно-индуцированные экстремальные состояния в объёме конденсированных сред интересны по причине возможности наблюдения быстрых фазовых переходов и новых лазерно-индуцированных фаз вещества, не регистрируемых в стационарных условиях, а также находят применение в создании микро- и наноструктур в объёме материалов, что может рассматриваться как основа для новой компонентной базы оптоэлектроники и ИК фотоники.

Характер взаимодействия высокоинтенсивного (~10^{13}-10^{14} Вт/см^2) лазерного излучения с веществом может кардинальным образом отличаться в зависимости от *энергии лазерных*

импульсов, свойств материала, условий фокусировки (мягкая, жёсткая фокусировка), используемой *длины волны* и *длительности* лазерного воздействия [37]. В первую очередь это связано с тем, что воздействие высокоинтенсивных (~10^{13}–10^{14} Вт/см^2) фемтосекундных лазерных импульсов на вещество приводит к ионизации вещества [38,39] и генерации микроплазмы (концентрация электронов близкая и даже выше критической, средняя температура электронов до 10 эВ) [40]. Для относительно длинных лазерных импульсов (τ~100 фс для ближнего ИК-диапазона) доминирует ударная ионизация, в которой затравочные электроны формируются в процессах полевой ионизации. При уменьшении длительности лазерного импульса до нескольких осцилляций светового поля (τ<10 фс для ближнего ИК-диапазона) механизм ионизации становится туннельным, что позволяет реализовать режимы абляции материалов с нанометровой точностью [41]. Такая локализованность лазерного воздействия определяется режимом сильного поля, который достигается при значениях параметра Келдыша $\gamma = \sqrt{\frac{2E_g}{E_{osc}}} \leq 1$, где E_g – ширина запрещённой зоны материала, E_{osc} – средняя кинетическая энергия, набираемая электроном в поле лазерной волны, или пондеромоторная энергия электрона. Можно заметить, что параметр Келдыша $\gamma \sim \frac{1}{\lambda}$ обратно пропорционален длине волны воздействующего излучения, поэтому другим способом достижения режима сильного поля может служить увеличение длины волны лазерного излучения. Переход к более длинным волнам кардинальным образом изменяет скорость нагрева электронов $\sigma_{1PA} = \frac{\tau_{coll}}{\omega^2\tau_{coll}^2+1} \times \frac{e^2}{c \cdot n_0 \cdot \varepsilon_0 \cdot m_c} \sim \lambda^2$, что влияет на приобретаемую электронами энергию в поле длинноволнового лазерного излучения. В условиях роста электронной концентрации это позволяет значительно увеличить объёмную поглощённую плотность энергии (энерговклад) в среду при ограничении области формирующегося затравочного электронного облака с использованием коротковолнового воздействующего лазерного излучения. Отметим, что рост энерговклада при мультиспектральном воздействии на вещество также открывает путь к увеличению эффективности нелинейно-оптических процессов.

Дальнейшие стадии эволюции *экстремального состояния вещества* включают в себя передачу энергии от электронной к ионной подсистеме по различным каналам: от лазерного излучения плазме – за счет ионизации и нагрева электронов плазмы на временах длительности лазерного импульса; от лазерного излучения к ионной подсистеме - на временах длительности лазерного импульса, и от плазмы фононам – на временах термализации электронной плазмы, – с последующей генерацией ударных волн и формированием остаточной микромодификации [42]. Отметим, что частота электрон-электронных, электрон-ионных, электрон-нейтральных и электрон-фононных столкновений зависит от энергии электрона, динамика набора которой определяется длиной волны лазерного излучения, что для корректного физического рассмотрения требует построения более сложных скоростных моделей, описывающих динамику концентрации электронов микроплазмы. Таким образом, процесс формирования

микромодификаций в конденсированных средах, широко использующийся на практике, с точки зрения фундаментальной науки представляет собой каскад сложных взаимосвязанных процессов передачи энергии возбуждения, происходящих на разных масштабах времени. Понимание работы этих сложных фундаментальных процессов в динамике важно для потенциальных приложений фемтосекундных лазеров. Экспериментально идентифицировать отдельные процессы довольно сложно, но получение информации об объёмной плотности поглощённой энергии или *энерговкладе* имеет решающее значение для лазерного воздействия, структурирования и обработки различных материалов, а также для онлайн-диагностики этих процессов и поиска методов повышения энерговклада.

Локализация в пространстве поглощённой лазерной энергии обычно достигается за счёт жесткой фокусировки (NA>0,3) в объём вещества, что приводит к созданию объёмного энерговклада до нескольких кДж/см^3 и наблюдению новых эффектов: ангармонизму фононных колебаний, сильному изменению частоты фононных колебаний, фазовым переходам с изменением частоты фононов и лазерно-индуцированным объёмным модификациям вещества с различной морфологией [43,44]. Изменение условий фокусировки кардинальным образом сказывается на характере распространения лазерного излучения в среде. Так, мягкая фокусировка (NA <0.3) мощного ($P > P_{cr}$) фемтосекундного лазерного излучения в объём прозрачной конденсированной среды обеспечивает баланс между линейными и нелинейными потерями, позволяя получить эффект самоканалирования или филаментации лазерного излучения в среде [18,45]. С практической точки зрения это приводит к возможности создания протяжённых (более десятков миллиметров) плазменных каналов в среде, а наведённые таким образом изменения показателя преломления вдоль оси филамента находят широкое применение в различных прикладных областях [46]. Однако ввиду ограничения интенсивности в одиночном филаменте (*англ*. intensity clamping) доставка энергии в объём среды ограничена. Таким образом, крайне актуальным становится исследование распространения фемтосекундного лазерного излучения, пиковая мощность которого многократно превосходит критическую мощность фокусировки ($P >> P_{cr}$) в среде. За счёт модуляционной нестабильности в поперечном профиле лазерного излучения или флуктуаций, имеющихся в среде, при распространении лазерный пучок такой пиковой мощности разбивается на множество филаментов, что может приводить к потере пространственной когерентности излучения. Правильный выбор условий фокусировки может обеспечить режим эффективного слияния многих филаментов в области взаимодействия, формирования суперфиламента и нелинейного роста энерговклада [47]. Новые подходы к увеличению объёмного энерговклада возникают при использовании двухцветной пары остросфокусированных низкоэнергетичных (~мкДж) фемтосекундных лазерных импульсов в объёме конденсированной среды [48], преимущество которых заключается в значительном повышении локальности лазерного воздействия.

Отметим, что на сегодняшний день влияние параметров воздействующих импульсов на механизмы пробоя и на морфологию формируемых модификаций остаются на уровне

«оценочных» представлений, хотя развитие лазерных технологий, покрывающих всё больший диапазон длин волн за пределами видимого и ближнего ИК диапазонов, требует этого понимания, что связано с развитием технологий объёмного структурирования полупроводниковых материалов. Трудности исследователей связаны, в первую очередь, с необходимостью разработки новых методов диагностики процессов взаимодействия высокоинтенсивного лазерного излучения с объёмом прозрачной конденсированной среды, позволяющих с высоким пространственным (~мкм) и временным (~фс) разрешением получать информацию об эволюции лазерно-индуцированного экстремального состояния вещества и, следовательно, лучше управлять процессом лазерного воздействия.

Таким образом, круг проблем нелинейной оптики и лазерной физики, рассматриваемых в диссертационной работе, связан с исследованием процессов параметрического и лазерного усиления, а также нелинейных процессов, возникающих при взаимодействии высокоинтенсивного (более 1 ТВт/см^2) ИК лазерного излучения с конденсированной и плотной газовой средой, в том числе, лазерно-индуцированного экстремального состояния вещества, что представляет собой **актуальную научную задачу**.

Подтверждением этой **актуальности** является ряд положений. *Во-первых*, поиск новых лазерных сред и развитие твердотельных фемтосекундных лазерных источников ближнего и среднего ИК диапазонов позволит расширить спектр применения таких источников и создать новую технологическую платформу для объёмной микрообработки полупроводниковых материалов. С помощью компактных, «настольных» лазерных источников сверхширокополосного излучения от УФ до ТГц диапазона можно планировать время-разрешенные эксперименты типа накачка-зондирование в различных материалах и спектральных диапазонах и на различных временных шкалах, создавая перспективы к мультиспектральному, многоимпульсному воздействию с одновременным контролем за происходящими процессами. *Во-вторых*, исследование процессов, протекающих при взаимодействии фемтосекундных лазерных импульсов с конденсированной средой, предполагает развитие новых методов создания и диагностики этого воздействия на микромасштабах по пространству и на фемтосекундной шкале по времени. *В-третьих*, исследование микроплазмы и процессов энергопереноса с использованием время-разрешенных методов необходимо для лучшего понимания механизмов пробоя и формирования объёмных микромодификаций под воздействием высокоинтенсивного излучения ИК-диапазона, что актуально для создания новой компонентной базы в области ИК фотоники.

Степень разработанности исследуемых проблем

Создание фемтосекундных источников ближнего и среднего ИК диапазонов с высокой пиковой и средней мощностью важно для развития междисциплинарных научных направлений на стыке лазерной физики, нелинейной оптики, физики конденсированного состояния, физической химии и физики высоких энергий. Наиболее активно в мире развиваются подходы, основанные на титан-сапфировых (длина волны 0,8 мкм) и иттербиевых (1,03 мкм и 1,05 мкм)

фемтосекундных лазерах и соответствующих схемах параметрического преобразования для генерации фемтосекундного излучения в других спектральных диапазонах. Однако наличие двухфотонного поглощения в большинстве тройных полупроводниковых нелинейно-оптических кристаллов не позволяет использовать такой способ накачки для расширения спектрального диапазона генерации параметрических источников [49]. Лазерная среда на хром-форстерите, спектр люминесценции которой поддерживает усиление фемтосекундных лазерных импульсов на центральной длине волны 1,24–1,25 мкм, рассматривалась как подходящий кандидат для ухода от этих проблем [50,51]. В 2002 году в МГУ впервые в России был создан хром-форстеритовый генератор фемтосекундных импульсов [52,53], а уже через четыре года на его основе был разработан фемтосекундный лазерный комплекс, генерирующий высокоинтенсивное (до 10^{16} Вт/см^2) излучение в ближнем ИК-диапазоне (1,24 мкм) [54]. Позднее, несмотря на стремительное развитие иттербиевых лазерных источников, получение сверхкоротких лазерных импульсов в таких системах было затруднено, что сохранило интерес исследователей к хром-форстеритовой технологии, а достижение тераваттного уровня пиковой мощности позволило расширить класс решаемых научных задач [55]. Таким образом, определился потенциал подобных систем для создания на их основе высокоэффективных и высокоэнергетичных параметрических источников малопериодного фемтосекундного излучения в среднем ИК-диапазоне. Системное исследование генерационных и усилительных свойств лазерной среды на хром-форстерите, оптимизация выходных параметров созданной лазерной системы с точки зрения увеличения выходной энергии и расширение её возможностей при создании новых схем стретчирования и компрессии, достижения пиковой мощности до 100 ГВт при одновременном сокращении длительности, – всё это определило вектор на исследование нелинейно-оптических процессов, происходящих при взаимодействии высокоинтенсивного лазерного излучения с конденсированными и газовыми средами [43,44,47,48,56–58].

Повышение пиковой мощности лазерных источников в ближнем и среднем ИК-диапазонах важно для увеличения эффективности нелинейно-оптических процессов и до сих пор реализовывалось с применением технологий оптического параметрического усиления чирпированных импульсов, техник двойного чирпирования, либо с использованием мощных CO_2 газовых усилителей [23,59–62]. Эти направления активно развивались в МГУ имени М.В. Ломоносова на кафедре волновых процессов, впоследствии трансформировавшейся в кафедру общей физики и волновых процессов. Так, были предложены и реализованы конкретные схемы параметрических генераторов и усилителей света, развиты теоретико-экспериментальные подходы по созданию эффективных схем параметрической генерации вблизи групповых синхронизмов в нелинейных кристаллах [63]; особый интерес связывался с областью 10 мкм [63,64] с точки зрения генерации сверхмощных пикосекундных лазерных импульсов дальнего инфракрасного диапазона [65]. Подходы оптического параметрического усиления чирпированных импульсов, развиваемые в мире, сразу показали свою эффективность с точки зрения наращивания выходной энергии лазерных импульсов, однако требовали пикосекундных

источников накачки с практически идеальными пространственными и временными характеристиками [66,67]. Выходная энергия и перестройка по длине волны были ограничены из-за апертурных эффектов при использовании «длинных» нелинейно-оптических кристаллов. Использование газовых CO_2 лазеров было выгодно по причине отсутствия ограничения на достигаемую выходную энергию из-за простоты увеличения апертуры «активных газовых элементов», но недостаточная полоса усиления, конструктивная громоздкость и сложность электрической накачки останавливали их широкое распространение. Разработанные A_2B_6 халькогенидные лазерные кристаллы быстро продемонстрировали свои возможности по получению наносекундного, микросекундного и непрерывного излучения в среднем ИК-диапазоне [68–71]. Фемтосекундная генерация низкоэнергетичных лазерных импульсов была получена ранее на кристаллах селенида цинка, легированного ионами хрома (Cr:ZnSe), в спектральном диапазоне 2–3 мкм в режиме синхронизации мод [72]. Дальнейшему продвижению в область больших (4–5 мкм) длин волн и получению мощных и высокоэнергетичных фемтосекундных лазерных импульсов в этом диапазоне длин волн на основе твердотельных лазерных сред препятствовала нехватка знаний о генерационных и усилительных свойствах халькогенидных сред, легированных ионами железа, которые к тому же сильно зависели от выбора матрицы, уровня легирования ионами активатора и температуры активного элемента. Процессы затруднялись также отсутствием мощных 3-мкм лазерных источников наносекундной длительности и потерей в 90-х годах прошлого столетия неразрывной связи между ростовыми и лазерными лабораториями. Решение этих задач определило направление исследований первой части диссертационной работы (***Главы 1, 2***).

Начиная с пионерских работ по нелинейной оптике Р.В. Хохлова, С.А. Ахманова и П. Франкена [33,73] увеличение эффективности нелинейно-оптических преобразований стало предметом интенсивных исследований, что диктуется интересом к созданию ярких источников когерентного излучения в сверхширокoм диапазоне длин волн от рентгеновского до ТГц диапазона. С прикладной точки зрения это важно для развития современных методов мультиспектральной спектроскопии, в том числе с временным разрешением, что повышает достоверность получаемых результатов [74]. С точки зрения фундаментальной науки это даёт возможность лучше понять физические механизмы, которые лежат в основе взаимодействия сверхсильного светового поля с веществом, и открывает путь к генерации аттосекундных импульсов [15]. До сих пор нелинейно-оптические процессы в большей степени исследовались с использованием широко распространённого титан-сапфирового лазерного источника. Использование источников среднего ИК-диапазона предпочтительнее по ряду причин: во-первых, пондеромоторная энергия электрона увеличивается пропорционально квадрату длины волны; во-вторых, дисперсия газов в среднем ИК-диапазоне уменьшается; в-третьих, появляется возможность использовать резонансы молекулярных газов, большая часть которых собрана именно в этом диапазоне длин волн. Эти предпосылки послужили основой для развития второй части диссертационного исследования (***Глава 3***).

С физикой сверхсильного светового поля неразрывно связана задача получения экстремального состояния вещества [35,75]. Острая фокусировка фемтосекундного лазерного излучения в объём конденсированной среды позволяет создавать такие состояния в лабораторных условиях [76]. Особый интерес с фундаментальной точки зрения представляет эволюция лазерно-индуцированного экстремального состояния вещества, которая может включать быстрые фазовые переходы, недостижимые в стационарных условиях. Большая часть исследований в мире либо направлена на исследование морфологии остаточных микромодификаций, либо затрагивает начальную стадию создания свободных электронов при взаимодействии высокоинтенсивного лазерного излучения с веществом. Для исследования структурной перестройки материала чаще всего используются рентгеновские методы, причём для получения информации о переходных процессах требуются установки класса мегасайенс – лазеры на свободных электронах и источники синхротронного излучения [77], что ограничивает общность и универсальность подходов для решения таких задач. Развитие лазерных методов создания и диагностики экстремального состояния вещества, работающих в широком временном окне (от фемтосекунд до наносекунд) и применимых для широкого класса сред (диэлектрики, полупроводники), определило и расширило направление исследований второй части диссертационной работы (***Глава 4***).

Основной **целью диссертационной работы** является разработка экспериментальных подходов к генерации мощных широко перестраиваемых от ближнего до среднего ИК-диапазона фемтосекундных лазерных импульсов и их применение к исследованию нелинейных процессов, инициируемых в конденсированных и плотных газовых средах при интенсивности более 1 ТВт/см^2. Для достижения основной цели были поставлены **следующие задачи**:

1. Создание на основе новых активных сред эффективных (до 10%) фемтосекундных лазерных источников нового поколения ближнего (1-2 мкм) и среднего (4-5 мкм) ИК диапазонов с пиковой мощностью порядка и более 10^9 Вт.
2. Разработка эффективных методов управления спектрально-временными свойствами мультигигаваттного фемтосекундного ИК излучения в интересах создания широкодиапазонного источника ультракоротких импульсов в диапазоне длин волн от УФ до ТГц на основе конденсированных и плотных газовых сред.
3. Оптимизация энерговклада и диагностика экстремального состояния вещества, инициируемого в объёме конденсированной среды в области её прозрачности под воздействием фемтосекундного лазерного излучения ближнего и среднего ИК-диапазона с интенсивностью более 1 ТВт/см^2.

Объектом исследования являются лазерные источники ИК-диапазона и нелинейный отклик среды под воздействием интенсивного лазерного излучения. **Предметом исследования** выступают процессы параметрического и лазерного усиления, а также нелинейно-оптические процессы, которые инициируются при взаимодействии интенсивного (более 1 ТВт/см^2)

лазерного излучения ближнего и среднего ИК диапазонов с конденсированными и газовыми средами.

Методология диссертационной работы состоит в проведении экспериментальных исследований, разработке теоретических моделей, их верификации на получаемом экспериментальном материале, получении и интерпретации результатов. Исследования проводились на основе оригинальных разработанных экспериментальных схем.

При исследовании лазерных характеристик кристаллов экспериментально определялась зависимость их спектролюминесцентных свойств от температуры и степени легирования, определялись такие параметры как коэффициент однопроходного усиления и оптимальная плотность энергии накачки, далее выбиралась оптимальная схема многопроходного усиления и измерялась динамика коэффициента усиления при прохождении импульса инжекции через активную среду, из этого определялась плотность энергии насыщения и коэффициент усиления лазерной среды. Полученные экспериментальные результаты сравнивались с расчетами по расширенной модели Франца-Нодвика для чирпированных импульсов. При разработке оптических параметрических усилителей с накачкой хром-форстеритовым лазером осуществлялся отбор нелинейно-оптических кристаллов с точки зрения параметра качества преобразования, измерялись перестроечные зависимости и с помощью широкополосного оптического стробирования с разрешением по частоте определялись характеристики сверхкоротких лазерных импульсов на выходе реализованного параметрического усилителя. Для расширения спектра созданных мощных ИК источников в коротковолновую область спектра, вплоть до УФ, использовалась методика генерации оптических гармоник в условиях оптимизации длины среды, давления и состава газовой смеси, для чего также был разработан пакет специализированных программ. Для управления спектральными свойствами излучения в среднем ИК-диапазоне использовалось явление филаментации лазерного пучка в газовой среде, дисперсионные и нелинейные свойства которой могли управляться за счёт давления и использования бинарных смесей молекулярного и инертного газов. Генерация интенсивного малопериодного ТГц излучения осуществлялась в процессе оптического выпрямления в органических кристаллах при их накачке фемтосекундными импульсами ближнего ИК-диапазона. Для изучения взаимодействия высокоинтенсивного импульсного излучения с объёмом прозрачной конденсированной среды на микронном пространственном масштабе применялся разработанный комплекс теоретических и экспериментальных методов, обеспечивший возможность регистрации переходных процессов в эволюции лазерно-индуцированного состояния вещества, включая динамические фазовые переходы, с фемтосекундным временным разрешением.

Основные положения, выносимые на защиту:

1. Параметрическое преобразование частоты *мощного фемтосекундного излучения хром-форстеритового лазера* при реализации частотно невырожденных групповых

синхронизмов и в условиях отсутствия влияния паразитных преобразований в нелинейно-оптических полупроводниковых кристаллах позволяет *эффективно* (до 10%) генерировать перестраиваемые от ближнего (~ 1 мкм) до среднего ИК (~8 мкм) диапазона фемтосекундные лазерные импульсы *субгигаваттного* уровня мощности.

2. Генерация *мультигигаваттного* (более 20 ГВт) фемтосекундного лазерного излучения в *среднем ИК-диапазоне* (4-5 мкм) может быть реализована в легированных ионами железа халькогенидных средах по схеме *многопроходного усиления* чирпированных *широкополосных импульсов инжекции* микроджоульного уровня энергии при накачке мегаваттными наносекундными 3-мкм лазерными импульсами с плотностью энергии ~1 Дж/см^2.
3. Двухволновая мультигигаваттная фемтосекундная лазерная система ближнего и среднего ИК диапазонов в сочетании с разработанными нелинейными *методами расширения спектра* в конденсированных и газовых средах с синтезированной нелинейностью и управляемыми дисперсионными свойствами позволяет создать высокоэффективный (1-10%) и широкодиапазонный (от УФ до ТГц) источник когерентного излучения.
4. Сочетание процессов генерации затравочной микроплазмы коротковолновым излучением за счет полевой ионизации и последующего нагрева электронов микроплазмы длинноволновым лазерным излучением при использовании *двухцветной пары* остросфокусированных (NA=0,5) фемтосекундных низкоэнергетичных (~мкДж) лазерных импульсов обеспечивает управление объёмным энерговкладом (до уровня 10 кДж/см^3) в конденсированную среду в области её прозрачности.
5. Нелинейное взаимодействие остросфокусированного (NA=0,86) низкоэнергетичного (~мкДж) фемтосекундного лазерного излучения среднего ИК-диапазона (λ=4,6 мкм) с объёмом монокристаллического высокоомного кремния позволяет достигнуть объёмного энерговклада более 5 кДж/см^3 и обеспечивает лазерную модификацию кристалла в микрообъёме в режиме однократного воздействия.
6. Острая фокусировка (NA=0,5) фемтосекундного низкоэнергетичного (~мкДж) лазерного изучения в объём конденсированной кристаллической среды (на примере кремния и фторида лития) в области её прозрачности приводит к созданию микроплазмы, термализация которой сопровождается возбуждением когерентных *терагерцевых фононов*, а их регистрируемый скачкообразный временной спектр отражает динамические *фазовые переходы*.

Научная новизна работы

В диссертационной работе впервые получены следующие научные результаты:

1. Созданы высокоэффективные (~10%) схемы генерации субтераваттного фемтосекундного излучения ближнего ИК-диапазона (λ=1,24 мкм) на основе разработанных методов *компенсации термооптических искажений*, контроля параметров лазерного излучения в

режиме реального времени и проведённых исследований усилительных свойств кристаллов хром-форстерита в зависимости от *уровня легирования*.

2. Предложены и разработаны высокоэффективные (до 10%) схемы генерации перестраиваемого от ближнего ИК (~1 мкм) до среднего ИК (~8 мкм) диапазона фемтосекундного излучения субгигаваттной пиковой мощности при параметрическом усилении *затравочного излучения суперконтинуума* в неоксидных полупроводниковых нелинейно-оптических кристаллах *вблизи вертикального участка перестроечной кривой* с накачкой излучением хром-форстеритового лазера.
3. Экспериментально показано, что генерация 3-мкм излучения в импульсно-периодическом режиме с высокой энергией (~100 мДж), высокой пиковой (~МВт) и средней (~Вт) мощностями требует тщательного согласования *активного метода модуляции* добротности и выбранной матрицы, легированной ионами эрбия, в условиях компенсации термооптических искажений в лазерном элементе.
4. Предложен и экспериментально обоснован подход к генерации малопериодного (до 4-х периодов поля) мультигигаваттного (более 20 ГВт) излучения среднего ИК-диапазона (4–5 мкм) по схеме усиления чирпированных импульсов в *халькогенидных средах, легированных ионами железа,* с широкими возможностями к управлению спектрально-временными свойствами излучения: перестройкой по спектру генерации за счёт *изменения уровня легирования и матрицы*, в которой расположены легирующие ионы, расширением полосы генерации за счёт *спектрального синтеза* полос халькогенидных сред Fe:CdSe/Fe:ZnSe, *расширением спектра* лазерного излучения в процессе фазовой самомодуляции в смеси инертного и молекулярного газов и посткомпрессии в среде с *отрицательной* дисперсией групповой скорости.
5. Показано, что нелинейное распространение высокоинтенсивного лазерного излучения среднего ИК-диапазона (λ=4,6 мкм) в *бинарной смеси* молекулярного и инертного газов с синтезированными нелинейными и дисперсионными свойствами позволяет управлять генерационными свойствами *суперконтинуума* с равномерным уширением как в длинноволновую (>5 мкм), так и коротковолновую (< 4 мкм) области спектра, а также способствует повышению эффективности нелинейно-оптического процесса *генерации оптических гармоник* (до 1% в третью, до 0,3% в пятую и до 0,5% суммарно в более высокие гармоники вплоть до 11-й) за счёт существенного изменения профиля показателя преломления вблизи перекрывающихся резонансных линий.
6. Экспериментально установлено, что микроплазма субкритической плотности, генерируемая при взаимодействии лазерного излучения ближнего ИК-диапазона (λ=1,24 мкм) с вакуумной интенсивностью ~10^{14}-10^{15} Вт/см^2 с плотной газовой средой, позволяет осуществлять эффективное (до 0,1%) нелинейно-оптическое преобразование излучения ИК-диапазона в *оптические гармоники*.

7. Экспериментально установлено, что *сочетание* разработанных методов мультиспектрального силового воздействия, а также методов диагностики микроплазмы и процессов переноса энергии позволяет реализовать режимы высокого (до ~10 кДж/см^3) объёмного энерговклада при взаимодействии остросфокусированного (NA=0,5;0,86) фемтосекундного лазерного излучения с интенсивностью более 1 ТВт/см^2 с диэлектрическими и полупроводниковыми средами в области их прозрачности. Это позволило впервые осуществить объёмную микромодификацию монокристаллического высокоомного кремния при однократном воздействии на него остросфокусированного (NA=0,86) фемтосекундного излучения среднего ИК-диапазона (λ=4,6 мкм), открыв путь к трёхмерной функционализации полупроводниковых материалов.
8. Установлено, что использование метода генерации несинхронной третьей гармоники в остросфокусированных (NA=0,5) лазерных пучках при время-разрешённой нелинейно-оптической диагностике динамики когерентных терагерцевых фононов, индуцированных в процессе лазерно-плазменного возбуждения в микрообъёме диэлектрика/полупроводника, позволяет, в сочетании с атомистическими расчётами, зарегистрировать каскад быстрых динамических *фазовых переходов*, происходящих на пикосекундном временном масштабе.

Практическая значимость работы определяется следующим:

1. На основе отечественной элементной базы создана двухдиапазонная фемтосекундная лазерная система *ближнего (1,24 мкм) и среднего ИК диапазонов (4–5 мкм) настольного типа* с использованием кристаллов хром-форстерита и легированного ионами железа селенида цинка; достигнуты близкие к рекордным показателям значения пиковой мощности и сверхкороткой длительности. Нелинейно-оптическое преобразование этого излучения при взаимодействии с конденсированными и плотными газовыми средами позволило создать лабораторный широкодиапазонный источник когерентного излучения (от УФ до ТГц). Развитие методов преобразования мощного ИК излучения в оптические гармоники низкого порядка (до 160 нм) обеспечивает, в перспективе, возможность применения методов инжекции для повышения временной когерентности излучения в источниках СИ с ультрамалым эмиттансом. Подобные «настольные» источники могут быть применены для стационарной и время-разрешенной мультиспектральной спектроскопии обратимых и необратимых структурных изменений в различных материалах.
2. Создание перестраиваемых в среднем ИК-диапазоне (2667-2851 нм) наносекундных лазерных источников с активной модуляцией добротности высокой пиковой (~6 МВт) и средней (~1,6 Вт) мощности позволило использовать их в качестве накачки фемтосекундных ИК лазерных систем. Их применение возможно в процессах

взаимодействия 3 мкм излучения с веществом в интересах создания экстремальных состояний в жидкостях и твердотельных средах при реализации новых подходов в микрообработке материалов. Экстремальное (более 10^4 $см^{-1}$) поглощение в области 3 мкм в воде позволяет использовать разработанные лазерные источники при микрообработке поверхности материалов методом лазерно-индуцированного жидкостного травления.

3. Разработан метод фемтосекундного двухцветного лазерного воздействия на твердотельную среду, что открывает возможности для прецизионной объёмной управляемой микрообработки прозрачных материалов с контролем процесса взаимодействия по сигналу третьей гармоники. В результате такого воздействия становится возможным увеличение объёмной плотности поглощённой энергии при меньшей, по сравнению с одноимпульсным воздействием, энергии лазерного излучения, что обеспечивает условия ударно-волнового возмущения с давлением порядка нескольких гигапаскалей, что важно для развития фемтосекундных микротехнологий.
4. Создание нового класса фемтосекундных лазерных источников среднего ИК-диапазона (λ>4 мкм) при использовании режима острой фокусировки (NA=0,86) открывает путь к трёхмерной объёмной микрообработке узкозонных полупроводников и знаменует собой начало нового подхода к трёхмерной лазерной функционализации полупроводниковых материалов. В перспективе это может привести к разработке новых подходов в ИК фотонике для прототипирования фотонных интегральных схем, интегрированных в один чип миниатюрных лазерных источников, оптоэлектронных устройств, оптоэлектронных переходов и высокоскоростных оптических каналов передачи данных.

Работа выполнялась при финансовой поддержке РФФИ (гранты № 21-52-50005, № 21-32-70021, № 18-02-40018-мега, № 18-32-20016, № 18-52-50019, № 17-02-01065 а, № 14-29-07235 офи_м, № 14-02-00819, № 11-02-01323а, в которых соискатель выполнял роль руководителя; гранты № 19-29-12030, № 18-52-41007, № 18-29-20090, № 18-29-20074, № 18-29-06035, № 17-52-04062, № 15-32-20961, № 14-02-00814, № 12-02-11500, № 12-02-01367-а , № 12-02-01207-а, № 11-02-12197-офи-м-2011, № 11-02-05055-б, № 10-02-01465-а, № 09-02-12219-офи_м, № 09-02-09609-моб_з, № 09-02-01063-а, № 08-02-00673-а, № 06-02-16872-а, в которых соискатель выполнял роль исполнителя) и РНФ (грант № 17-72-20130, в котором соискатель выполнял роль руководителя; гранты № 14-12-00520, № 20-19-00148, в котором соискатель выполнял роль исполнителя). Также исследования были поддержаны Советом по грантам Президента Российской Федерации для государственной поддержки молодых учёных и по государственной поддержке ведущих научных школ Российской Федерации (стипендии Президента Российской Федерации молодым учёным и аспирантам, осуществляющим перспективные научные исследования и разработки по приоритетным направлениям модернизации российской экономики СП-274.2013.1 и СП-378.2018.4).

Объём и структура диссертации

Диссертационная работа включает в себя Введение, Основную часть в виде 4-х оригинальных глав, каждая из которых содержит обзор литературы, Заключение, содержащее выводы, Список литературы. Общий объём диссертации – 327 страниц, включая 148 рисунков и 12 таблиц. Библиография включает 424 наименования на 26 страницах.

В первой части (первая и вторая главы) диссертационной работы описываются методы получения фемтосекундных лазерных импульсов мультигигаваттной импульсной мощности в перспективном ближнем и среднем ИК-диапазонах. В *первой главе* в первой ее части описывается созданный многофункциональный фемтосекундный лазерный комплекс ближнего инфракрасного диапазона (1,24 мкм) на кристалле хром-форстерита с рекордными для нынешнего уровня подобных лазерных систем выходными параметрами, а именно мультигигаваттной (~100 ГВт) пиковой и высокой (более 1 Вт) средней мощностью. Во второй части рассматриваются подходы по расширению спектра созданной фемтосекудной лазерной системы ближнего ИК-диапазона на основе генераторов суперконтинуума в конденсированных средах и их широкополосного усиления в процессах параметрического усиления в нелинейно-оптических кристаллах. Предложенные схемы высокоэффективного параметрического преобразования частоты излучения хром-форстеритового лазера в нелинейно-оптических кристаллах позволили получить перестраиваемое от ~1 мкм до ~8 мкм излучение фемтосекундной длительности субгигаваттного уровня мощности, что стало основой для проведения спектрально чувствительных исследований.

Вторая глава диссертации посвящена созданию фемтосекундного лазерного комплекса среднего ИК-диапазона на основе семейства халькогенидных активных лазерных сред, легированных ионами железа. Обсуждаются вопросы влияния профиля легирования активного элемента, остаточного давления углекислого газа в трассе лазерного пучка и температуры активной среды (вплоть до температуры жидкого азота) на её генерационные и усилительные свойства. Отдельное внимание уделяется разработке мощных (~МВт) и высокоэнергетичных (~50-100 мДж) трехмикронных лазерных источников, работающих в импульсно-периодическом режиме (до 20 Гц) с наносекундной длительностью импульсов, на основе эрбиевых кристаллов как с ламповой, так и с боковой диодной накачкой. Обсуждаются способы увеличения энергии инжектируемых стретчированных импульсов в среднем ИК-диапазоне в многопроходных усилителях и методы их временной компрессии. Рассматриваются возможности расширения спектра созданного фемтосекундного лазерного источника среднего ИК-диапазона (4–5 мкм) в область больших длин волн (5–6 мкм) на основе усиления в кристалле Fe:CdSe. Для увеличения ширины полосы лазерного усиления в диссертации демонстрируются результаты по спектральному синтезу полос усиления Fe:ZnSe и Fe:CdSe. В результате, обосновывается концепция создания уникального широкополосного фемтосекундного источника среднего ИК-диапазона на основе твердотельной лазерной среды по схеме усиления чирпированных импульсов.

Вторая часть (третья и четвертая глава) диссертации посвящена исследованию нелинейно-оптических преобразований высокоинтенсивного фемтосекундного лазерного излучения ближнего и среднего ИК диапазонов в конденсированных и плотных газовых средах. В *третьей главе* представлены результаты по генерации оптических гармоник при взаимодействии сфокусированного излучения ближнего и среднего ИК диапазонов с газовой средой, включая смеси газов. Последовательно рассматривается вопрос влияния длины волны воздействующего лазерного излучения, давления и длины газовой среды на энергетические и спектральные характеристики генерируемых оптических гармоник. Обсуждаются и реализуются способы повышения эффективности преобразования в оптические гармоники при использовании молекулярных резонансов в смеси газов. Для расширения спектра излучения созданных источников ближнего и среднего ИК диапазонов в более длинноволновый диапазон отдельно рассматриваются способы генерации ТГц излучения в органических кристаллах в процессах оптического выпрямления интенсивного ИК лазерного излучения. Также за счет использования смеси газов (молекулярного и атомарного) высокого давления демонстрируются возможности компрессии мощных фемтосекундных ИК-импульсов. Как результат, делается вывод о создании широкодиапазонного источника (от УФ по ТГц) когерентного излучения на основе разработанных источников фемтосекундной длительности ближнего и среднего ИК диапазонов.

В *четвертой главе* обсуждаются способы создания и диагностики экстремального состояния вещества, возникающего при острой (NA>0,3) фокусировке низкоэнергетичного (~мкДж) фемтосекундного лазерного излучения в объем конденсированной среды в области её прозрачности. Отметим, что в качестве объектов в диссертации рассматриваются как диэлектрики, так и полупроводники для демонстрации различий и особенностей создания лазерно-индуцированного экстремального состояния вещества в них. Подробно описывается весь комплекс разработанных методов стационарной и время-разрешённой диагностики лазерной микоплазмы и лазерно-индуцированного экстремального состояния вещества, включая теневую фотографию, оптоакустическую диагностику, трёхмерную визуализацию распространения лазерного импульса, нелинейно-оптическую методику зондирования пробным импульсом третьей гармоники. Обсуждаются результаты экспериментов по генерации когерентных фононов в объеме кристаллов фторида магния и кремния в режиме формирования плазмы остросфокусированным фемтосекундным лазерным излучением ближнего и среднего ИК диапазонов (1,24 мкм, 4,6 мкм). Делается вывод о доминирующем влиянии плазмы на процесс генерации когерентных фононов в кристаллах при экстремально высоких интенсивностях возбуждающего лазерного излучения 10^{12}~10^{13} Вт/см^2. Установлено, что формирование лазерно-индуцированной микроплазмы, созданной в объеме кристаллической среды в области её прозрачности остросфокусированным высокоинтенсивным (~10^{12}~10^{13} Вт/см^2) фемтосекундным лазерным излучением, приводит к возбуждению когерентных фононов, обмену энергией между когерентными фононными модами и изменению частоты фононных мод. Сочетание предложенных экспериментальных подходов с теоретическими расчётами с

использованием программных пакетов молекулярной динамики позволяет впервые обосновать разработанный метод время-разрешенной регистрации быстрых фазовых переходов по спектру когерентных ТГц фононов, генерируемых при широкополосном лазерно-плазменном возбуждении в диэлектриках и полупроводниках на примере фторида магния и кремния.

Степень достоверности и апробация результатов

Представленные в диссертационной работе результаты получены с использованием современных методов экспериментальной физики. При выполнении экспериментальной части диссертационной работы отдельное внимание было уделено повторяемости регистрируемых эффектов, что обеспечивало необходимый уровень достоверности результатов. Вместе с тем, в диссертации для усиления защищаемых экспериментальных выводов были разработаны теоретические и численные модели, которые обеспечили более глубокий уровень физического понимания рассматриваемых явлений и повысили научную ценность полученных экспериментальных результатов.

Достоверность представленных в диссертационной работе результатов подтверждается также публикациями в ведущих научных журналах и выступлениями на профильных научных конференциях. Основные результаты диссертационной работы были представлены автором лично на следующих международных конференциях:

- ***в рамках приглашённых докладов***: SPIE Optics and Optoelectronics-2017 (Прага, Чехия); UltrafastLight-2017, UltrafastLight-2019 (Москва, Россия) (Москва, Россия); 18th International Conference on Laser Optics «ICLO 2018» (Санкт-Петербург, Россия); UltrafastLight-2018 (Москва, Россия); ALT’19, ALT’21 (Прага, Чехия; Москва, Россия, онлайн), ALPS-2021 (Япония, онлайн); SPIE Laser Damage 2021 (Рочестер, США, онлайн); IEEE Photonics Conference 2021 (Квебек, Канада, онлайн); ALT’22 (Москва, Россия);

- ***в рамках устных докладов***: XIV Школа молодых учёных «Актуальные проблемы физики-2012» (Звенигород, Россия); ICONO-LAT 2013 (Москва, Россия); ATL’13, ALT’21 (Будва, Черногория; Москва, Россия, онлайн); ILLA 2014 (Шатура, Россия); HILAS-2014 (Берлин, Германия); Laser Optics 2014, 2018 (Санкт-Петербург, Россия); PHOTOPTICS-2015 (Берлин, Германия); Conference on Lasers and Electro-Optics-2015 (Сан-Хосе, США); CLEO Europe & EQEC 2015, CLEO Europe & EQEC 2017, CLEO Europe & EQEC 2019 (Мюнхен, Германия); (Мюнхен, Германия); 15-ая Международная научно-техническая конференция «Оптические методы исследования потоков - ОМИП 2015» (Москва, Россия); PALS-2015 (Саратов, Россия); XVII научная школа «Нелинейные волны – 2016» (Нижний Новгород, Россия); FLAMN-16, FLAMN-19 (Санкт-Петербург, Россия); PIERS 2017 (Санкт-Петербург, Россия); X Международная конференция молодых учёных и специалистов «Оптика-2017» (Санкт-Петербург, Россия); VII международная конференция по фотонике и информационной оптике (Москва, Россия); XXV Международная научная конференция студентов, аспирантов и

молодых учёных «Ломоносов-2018» (Москва, Россия); ICLO 2018, ICLO 2020 (Санкт-Петербург, Россия); 7th International Summer School «Trends and new developments in Laser Technology 2018» (Дрезден, Германия); 7th International Conference on Mathematical Modeling in Physical Sciences-2018 (Москва, Россия); UltrafastLight-2018, UltrafastLight-2019, UltrafastLight-2020, UltrafastLight-2021 (Москва, Россия); VIII Международная конференция по фотонике и информационной оптике (Москва, Россия); ЛаПлаз-2019, ЛаПлаз-2021 (Москва, Россия); SPIE Optics + Optoelectronics-2019 (Прага, Чехия); ICPPP20 (Москва, Россия); Laser Congress 2019 (Вена, Австрия); ASSL-2019 (Вена, Австрия); 63-я Всероссийская научная конференция МФТИ (Москва, Россия); XI Международная конференция по фотонике и информационной оптике-2022 (Москва, Россия).

Публикации

По теме диссертации опубликовано **54** работы в рецензируемых научных периодических журналах: Materials Today Communications, European Physical Journal D, Laser Physics Letters, Quantum Electronics, Journal of Russian Laser Research, New Journal of Physics, Bulletin of the Russian Academy of Sciences: Physics, Optics Letters, Journal of Optics, Applied Physics Letters, Письма в журнал экспериментальной и теоретической физики, Physical Review A, Scientific Reports, Optical Materials, Measurement Science and Technology, Photonics, International Journal of Molecular Sciences; **13** статей, изданных по результатам конференций, в сборниках: Journal of Physics: Conference Series, Proceedings of the 3rd International Conference on Photonics, Optics and Laser Technology, OSA Technical Digest, Proceedings Nonlinear Optics and Applications XI, Proceedings SPIE , IEEE Proceedings of International Conference Laser Optics, 2021 IEEE Photonics Conference (IPC), **2** учебно-методических пособия; оформлен **1** патент.

Общее количество индексируемых публикаций по данным Web of Science Core Collection – **70**. Это позволяет считать, что результаты диссертационной работы соответствуют современному мировому уровню исследований в области лазерной физики, являются обоснованными и достоверными.

Личный вклад автора

Все результаты, представленные в диссертационной работе, получены лично автором или при его непосредственном участии. Вклад автора в исследования, на результатах которых подготовлена диссертационная работа, является определяющим, это касается как постановки решаемых задач, так и основных идей, расчётов и выводов. Диссертация является законченным научным исследованием и по своему содержанию соответствует специальности 1.3.19 — лазерная физика по физико-математическим наукам.

Глава 1. Мощные источники фемтосекундного лазерного излучения ближнего и среднего инфракрасного диапазонов с пиковой мощностью до 100 ГВт на основе параметрических генераторов и твердотельных лазеров накачки

В *первой главе* в первой ее части описывается созданный многофункциональный фемтосекундный лазерный комплекс ближнего инфракрасного диапазона (1,24 мкм) на кристалле хром-форстерита с рекордными для нынешнего уровня подобных лазерных систем выходными параметрами, а именно мультигигаваттной (~100 ГВт) пиковой и высокой (более 1 Вт) средней мощностью. Во второй части рассматриваются подходы по расширению спектра созданной фемтосекудной лазерной системы ближнего ИК-диапазона на основе генераторов суперконтинуума в конденсированных средах и их широкополосного усиления в процессах параметрического усиления в нелинейно-оптических кристаллах. Предложенные схемы высокоэффективного параметрического преобразования частоты излучения хром-форстеритового лазера в нелинейно-оптических кристаллах позволили получить перестраиваемое от ~1 мкм до ~8 мкм излучение фемтосекундной длительности субгигаваттного уровня мощности, что стало основой для проведения спектрально чувствительных исследований.

§1.1. Современные лазеры ультракоротких импульсов

1.1.1. Обзор существующих твердотельных мощных лазерных источников

С момента появления первого поколения импульсных источников когерентного излучения с длительностью импульса меньше времени обхода лазерного резонатора [78], произошел огромный прогресс в разработке генераторов ультракоротких лазерных импульсов. Движущей силой прогресса стали быстрорастущие области применения таких источников в физике, технике, биологии и химии. Короткая длительность импульса, высокая пиковая мощность и воспроизводимость параметров лазерных импульсов были сформулированы как основные требования к создаваемым источникам.

Разработка новых материалов для твердотельных лазеров привела к созданию на их основе целого класса новых твердотельных фемтосекундных лазерных систем тераваттного уровня мощности, базирующихся на технологии усиления чирпированного импульса (УЧИ). С использованием этих систем сегодня проводится подавляющее большинство экспериментов по взаимодействию ИК излучения с мишенями при сверхвысоких (до ~10^{21}-10^{22} Вт/см^2) интенсивностях: ускорение заряженных частиц в лазерной плазме, исследования по физике высоких плотностей энергии, лабораторное моделирование астрофизических явлений, лазерный термоядерный синтез (ЛТС) и т. п. Важнейшим вопросом при разработке таких лазерных систем является выбор усиливающей среды. Наиболее распространенными представителями этого класса являются системы на Yb:YAG, Ti:Sapphire [79–81], работающие в ближнем ИК-диапазоне длин волн, и Cr:ZnSe в среднем ИК, а также незаслуженно не нашедший популярности

Cr:Forsterite на длине волны 1,24 мкм, и находящийся в фазе становления Fe:ZnSe в средней ИК области. Лазеры на ионах переходных металлов (Ti, Cr, Fe) демонстрируют более сильную связь электронных уровней с кристаллическим полем матрицы кристалла, что выражается в электронно-колебательном характере спектров поглощения и люминесценции. Это обеспечивает широкие полосы поглощения и люминесценции, упрощает способы накачки таких лазерных сред, позволяет генерировать ультракороткие лазерные импульсы и получать перестраиваемое в широкой полосе лазерное излучение.

Лазерные системы на титан-сапфире отличаются возможностью усиливать ультракороткие импульсы. В настоящее время подобные системы 10-100 тераваттного уровня работают при длительности импульсов ~20-100 фс с частотой повторения 10 Гц [81], тогда как лазерные системы на хром-форстерите тераваттного уровня мощности работают при длительности от ~80-150 фс с частотой повторения 10 Гц [55] и гигаваттного уровня мощности при длительности ~50 фс с частотой повторения до 1 кГц [82].

Теоретический максимум плотности мощности импульса, который может быть получен в лазерном материале, определяется плотностью энергии насыщения и минимальной достижимой длительностью импульса. Теоретический максимум плотности мощности импульсов систем на Nd-стекле, Ti:Sapphire и Cr:Forsterite лежит в пределах 100 ТВт/см^2 на апертуру кристалла (см. ***Таблица 1***):

$$I_{макс} = \frac{h\nu}{\sigma \tau_{мин}} = \frac{F_{нас}}{\tau_{мин}} \qquad (1)$$

В ***Таблица 1*** приведены максимально достижимые параметры современных твердотельных лазерных систем.

Таблица 1. Характерные параметры современных твердотельных фемтосекундных лазерных систем.

Материал	**$\tau_{мин}$, фс**	**σ, см^2**	**λ, нм**	**Уровень пиковой мощности, ТВт**	**Частота повторения импульсов, Гц**	**dn/dT, К$^{-1}$**	**Теплопроводность, Вт/(м·К)**	**$F_{нас}$, Дж/см^2**
Nd-стекло (фосфатное)	>400	3x10^{-19}	1054	1500	~1 раз в час	9,9x10^{-6}	11-13	8
Yb:YAG	>700 >400	2x10^{-20}	1030 1030	1 0,001	1-2 10^6	9x10^{-6}	11	10
Ti:Sapphire	20 21	4,1x10^{-19}	800 800	10-1000 0,66	10 10^3	13x10^{-6}	33	0,8
Cr:Forsterite	80 54	2x10^{-19}	1250 1250	1-2 0,001	10 10^3	9,5x10^{-6}	8	0,3
Cr:ZnSe	100	9x10^{-19}	2400	0,1	10^3	7x10^{-5}	18	0,3
Fe:ZnSe	150	1x10^{-18}	4400	0,02	10	4,7x10^{-5}	18	0,04

Как видно из ***Таблица 1***, по сравнению с Cr:Forsterite значения выходной мощности лазера на титан-сапфире при одинаковой частоте повторения импульсов на порядок больше ввиду

большей теплопроводности, однако это не снижает достоинств хром-форстеритовых систем, главное преимущество которых заключается в длине волны, составляющей 1,24 мкм.

На ***Рис. 1*** в двойном логарифмическом масштабе построена зависимость обратного значения произведения плотности энергии насыщения на минимальную длительность лазерного импульса $F_{sat} \times \tau_{\text{мин}}$ от времени жизни люминесценции в современных лазерных материалах, что может служить величиной, характеризующей способность активной среды к генерации лазерных импульсов высокой пиковой мощности. Как можно будет увидеть, генерационные и усилительные свойства рассматриваемых в диссертации лазерных сред – Cr:Forsterite и Fe:ZnSe – позволяют рассчитывать на создание на их основе мощных источников лазерного излучения в ближнем и среднем ИК-диапазонах.

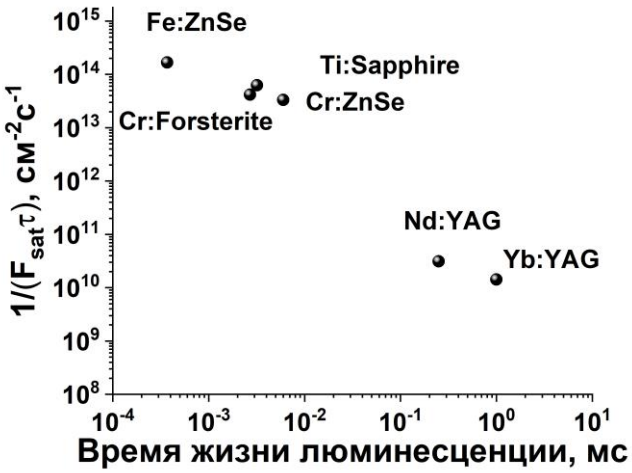


Рис. 1 Зависимость обратного значения произведения плотности энергии насыщения на минимальную длительность лазерного импульса $F_{sat} \times \tau_{\text{мин}}$ от времени жизни люминесценции в современных лазерных материалах.

На данный момент существует несколько технологий, обеспечивающих получение лазерных импульсов ультракороткой длительности в среднем ИК-диапазоне. Халькогениды, легированные хромом и железом, давно признаны перспективными материалами для прямой генерации и усиления в спектральных диапазонах 2–3 мкм и 3–7 мкм соответственно, однако они долгое время не рассматривались на практике (см. ***Таблица 1***). Развитие технологий роста кристаллов халькогенидов (ZnS, ZnSe, CdSe и т.п.), легированных ионами переходных металлов, привело к существенному прогрессу лазерных источников на их основе [70,71,83]. Полоса усиления таких активных материалов достаточна для генерации и усиления импульсов с длительностью до нескольких десятков фемтосекунд, что было реализовано в Cr:ZnSe/ZnS и Fe:ZnSe [84–88]. В лазерном генераторе на кристалле Cr:ZnS с пассивной синхронизацией мод на основе керровской линзы были получены ультракороткие импульсы с длительностью до 26 фс и энергией 6,3 нДж на центральной длине волны 2,3 мкм [72]. Первая полноценная Cr:ZnSe система на основе УЧИ, состоящая из задающего генератора, пары стретчер-компрессор, регенеративного усилителя и двух однопроходных усилителей, описана в работе [89], где были

получены импульсы длительностью 184 фс с энергией 1 мДж на длине волны 2,5 мкм (пиковая мощность 5 ГВт). В дальнейшем пиковая мощность систем на основе УЧИ была существенно повышена за счет использования подхода гибридного усиления параметрической инжекции в халькогенидных кристаллах. Впервые этот подход для халькогенидов был предложен для кристалла Fe:ZnSe, что является основой данного диссертационного исследования. Такой подход позволил получить импульсы с длительностью до 150 фс и энергией 3,5 мДж на длине волны 4,4 мкм (20 ГВт) [87]; а также до 44 фс и энергией 4 мДж на длине волны 2,5 мкм (90 ГВт) [90]; до 100 фс и энергией 7 мДж на длине волны 2,4 мкм (70 ГВт) [91].

В последние годы возрос интерес к разработке и созданию сверхмощных лазерных систем, генерирующих в десятимикронном диапазоне импульсы сверхкороткой длительности с релятивисткой интенсивностью [22,92–94]. Известные схемы мощных лазерных систем, работающих в таком режиме, включают генератор затравочного сверхкороткого 10-микронного импульса, регенеративный CO_2 -усилитель высокого давления, и оконечные CO_2 -усилители либо высокого (8–10 атм.) давления [93], в которых спектр усиления является квазинепрерывным из-за перекрытия колебательно-вращательных переходов в молекулах CO_2, либо промежуточного (2–3 атм) давления, при котором усиление происходит в дискретном спектре [22]. Однако в силу ограниченной полосы усиления длительность выходных импульсов составляет единицы пикосекунд, что сужает круг задач, которые могут решать подобные лазерные системы. Разработка и создание схем нелинейно-оптической компрессии мощного 10-мкм лазерного излучения позволили сократить длительность генерируемых импульсов в границах субпикосекундного диапазона (~0,5 пс) [95]. Другой альтернативой твердотельных систем УЧИ и мощных 10-мкм лазерных систем на основе CO_2 усилителей являются лазерные KrF-системы, работающие в УФ диапазоне и с которыми в 90-е годы прошлого века связывались большие ожидания в связи с перспективой использования их в ЛТС [12]. Большое распространение получили и компактные импульсно-периодические лазерные системы с усилением ультракоротких (УКИ) импульсов в электроразрядных KrF-усилителях, которые давали при более коротких субпикосекундных импульсах энергию излучения в десятки и сотни миллиджоулей. Разработанная в ФИАН имени П.Н. Лебедева не имеющая аналогов лазерная система «Гарпун» строится на принципах, аналогичных используемым при построении лазерных систем высокой пиковой мощности, но использует прямое усиление затравочного излучения третьей гармоники титан-сапфирового лазерного комплекса в каскаде широкоапертурных KrF предусилителя и оконечного усилителя[96]. Наибольшая энергия УКИ, усиленных в такой схеме, достигает 0,6 Дж при длительности менее 1 пс, что говорит о получении тераваттной пиковой мощности УКИ в УФ диапазоне и демонстрирует перспективность данного подхода.

1.1.1. Перестраиваемые фемтосекундные ИК лазерные источники на основе параметрического преобразования частоты в нелинейных кристаллах

Для осуществления плавной перестройки длины волны генерации широкополосных источников когерентного излучения в ближнем и среднем ИК-диапазонах активно используются схемы параметрического преобразования частоты, а именно параметрические генераторы (ПГС), усилители (ОПУ) и схемы генерации разностной частоты (ГРЧ), отличающиеся различными начальными условиями. В то время как для процесса параметрического усиления на входе в нелинейный кристалл помимо интенсивной волны накачки требуется слабоинтенсивное затравочное излучение (параметрическая флуоресценция, генерация суперконтинуума), в схеме параметрической генерации процесс запускается из шумов. Процесс генерации разностной частоты, который может быть реализован при внутриимпульсном смешении частот одного и того же широкополосного источника, схож с процессом параметрического усиления, однако в случае ГРЧ интенсивности двух взаимодействующих в нелинейном кристалле волн отличаются слабо.

С технологической точки зрения разработка высокоэнергетического параметрического источника в ИК-диапазоне сильно зависит от наличия подходящих нелинейно-оптических кристаллов. В частности, для эффективного параметрического усиления необходимы кристаллы с большим (более 1 пм/В) коэффициентом нелинейности второго порядка и широким фазовым синхронизмом в спектральных окнах ближнего и среднего ИК-диапазонов. Кроме того, для обеспечения высокой мощности накачки необходимо использовать кристаллы прозрачные в области спектра сигнального и холостого импульсов, с высокой теплопроводностью и низкими потерями на поглощение на длине волны накачки.

Развитие ПГС неразрывно связано с совершенствованием технологий создания лазеров накачки, поэтому большинство ПГС в ближнем ИК-диапазоне основаны на β-BaB_2O_4 (BBO) в качестве нелинейного кристалла и титан-сапфирового лазера в качестве накачки. Ряд других материалов, принадлежащих к семейству оксидов, можно назвать идеальными кандидатами для параметрического усиления в ближней ИК области, например, KH_2PO_4 (KDP), $KTiOAsO_4$ (KTA), $KTiOPO_4$ (KTP), LiB_3O_5 (LBO) и $LiNbO_3$. Однако до сих пор их эксплуатация была ограничена трудностями, связанными с процессом изготовления, не позволяющими выращивать кристаллы больших размеров с высоким оптическим качеством. Отметим ряд публикаций авторов, которые заслуживают отдельного внимания ввиду достигнутых выходных параметров. Параметрическое усиление затравочного излучения суперконтинуума, сгенерированного в пластине YAG, в четырех неколлинеарных каскадах усиления в кристалле KTA с накачкой титан-сапфировым лазером позволило достичь эффективности генерации 5,2% (520 мкДж) на длине волны 2,8 мкм с шириной полосы ~0,5 мкм [97]. Аналогичный подход применялся в [98], где были получены импульсы с энергией 149 мкДж (эффективность 3,5%) и длительностью 120 фс на длине волны 3,5 мкм. Использование кристаллов $KNbO_3$ [97], $LiIO_3$ [99], $PPLiTaO_3$ [100], позволило расширить диапазон генерации вплоть до 5 мкм, однако эффективность преобразования была уже существенно ниже. Большинство стандартных нелинейных оксидных кристаллов, широко

используемых во всех областях нелинейной оптики, имеют ограниченный до 5 мкм диапазон прозрачности из-за собственного многофононного поглощения. Таким образом, распространение параметрических процессов на всю среднюю ИК-область требует обращения к неоксидным материалам – бинарным и тройным нецентросимметричным неорганическим кристаллам. В целом, эти материалы требуют более сложных процессов роста, чем оксиды, что неизбежно приводит к увеличению дефектов роста и появлению нежелательных потерь. Тем не менее, за последние два десятилетия интенсивный поиск новых нелинейных материалов, подходящих для среднего ИК-диапазона, привел к улучшению существующих кристаллов, а также к синтезу новых материалов [49].

Процесс ГРЧ между сигнальной и холостой волной промежуточного ОПУ позволяет расширить область перестройки параметрических источников, используя преимущества нового поколения неоксидных полупроводниковых материалов, способных обеспечить оптическую прозрачность до десятков микрон, среди которых $AgGaSe_2$ (AGSe), $ZnGeP_2$ (ZGP), GaSe, GaP и ZnTe. Так, при использовании в качестве накачки титан-сапфирового лазера перестройка от 3 мкм вплоть до 13,5 мкм и 20 мкм была получена в кристаллах AGS ($AgGaS_2$) и GaSe с эффективностью преобразования, не превышающей 1%, хотя длительность импульсов составляла 50–70 фс [101].

Проведенный анализ позволяет заключить, что высокоэффективная параметрическая генерация достигается в области 3–3,5 мкм при использовании в качестве накачки излучение титан-сапфирового лазера. Для повышения эффективности подхода прямого параметрического усиления на длинах волн, превышающих 3–3,5 мкм, используются длинноволновые источники накачки (>0,8 мкм). В таком случае более высокая эффективность преобразования, присущая схеме прямого усиления, может сочетаться с широким диапазоном перестройки и высокой нелинейностью полупроводниковых нелинейных кристаллов. Так, использование иттербиевого лазерного источника на длине волны 1 мкм обеспечило перестройку ОПУ до 7 мкм при эффективности преобразования 1,6% и длительности импульса 160 фс [102]. Одним из недостатков использования Yb-лазеров в схемах ОПУ, генерирующих излучение дальше 7 мкм, является большой квантовый дефект, который сильно ограничивает их эффективность преобразования. Еще одним ограничением является то, что существует лишь несколько широкозонных нелинейно-оптических кристаллов, прозрачных в этом спектральном диапазоне, которые можно накачивать фемтосекундными импульсами около 1 мкм без нелинейного поглощения и оптического пробоя. Единственным коммерчески доступным неоксидным материалом с такими свойствами является $AgGaS_2$ (AGS), но его относительно узкая ширина запрещенной зоны 2,7 эВ и низкая теплопроводность приводят к низкому порогу повреждения при накачке вблизи 1 мкм. Поэтому традиционный подход заключается в использовании схемы каскадного смешения частот, основанной на оптическом параметрическом усилении в широкозонном оксидном кристалле с последующей генерацией разностной частоты сигнального и холостого импульсов в неоксидном кристалле. Примером реализации такого подхода является

генерация перестраиваемых широкополосных импульсов в среднем ИК-диапазоне, где была предложена схема с двумя различными ОПУ, один из которых создает 30 фс импульсы накачки на длине волны 1,8 мкм, а другой – инжекцию в области 2 – 4 мкм. ГРЧ этих импульсов позволяет получить перестраиваемое излучение от 3 до 13 мкм с шириной спектра более 370 нм (соответствует длительности спектрально-ограниченных импульсов менее 70 фс). Несмотря на использование неоксидных кристаллов с высоким параметром качества нелинейно-оптического преобразования, каскадная схема на их основе дает крайне низкую эффективность преобразования по энергии (~0,1%) [103]. Таким образом, несмотря на надежность и широкую распространенность иттербиевых фемтосекундных лазерных систем, реализация параметрических источников на их основе не является простой и требует дополнительных усилий для получения достаточно коротких импульсов с высокой эффективностью преобразования.

В последние несколько лет $LiGaS_2$ (LGS) рассматривается в качестве нового широкозонного материала для широкополосных оптических параметрических преобразователей в среднем ИК-диапазоне. Этот кристалл имеет ширину запрещенной зоны 4,15 эВ, а его край инфракрасного поглощения составляет ~ 12 мкм [104]. Благодаря короткой длине волны УФ-отсечки LGS кристалл успешно используется как в ОПУ с накачкой в области 1 мкм, так и в блоках внутриимпульсной ГРЧ, поддерживающих широкополосную генерацию. Совсем недавно $BaGa_4S_7$ (BGS) стал еще более многообещающим материалом для масштабирования мощности благодаря его доступности в монокристаллах большего размера, чем LGS, при этом обладая аналогичными линейными и нелинейными оптическими свойствами, большей лучевой стойкостью и более длинноволновым краем ИК-поглощения по сравнению с LGS [105]. Несмотря на то, что эффективная нелинейность LGS и BGS значительно ниже, чем у коммерчески доступных узкозонных неоксидных кристаллов, таких как GaSe, $AgGaSe_2$ и AGS, использование LGS и BGS продемонстрировало значительное увеличение общей эффективности преобразования по сравнению с каскадными схемами, что в том числе подтверждается высокоэффективной (2–4 %) генерацией малопериодных (3–4 оптических цикла поля) импульсов в диапазоне длин волн 6,5–11,5 мкм [106].

Добавление дополнительных каскадов параметрического преобразования и наращивание энергии лазера накачки позволяет генерировать ИК импульсы на выходе ОПУ с миллиджоульной выходной энергией. Благодаря наличию лазерных систем высокой мощности развиваются новые подходы к созданию параметрических усилителей. Развитие этого направления мотивировано, в первую очередь, сложностью использования мультимиллиджоульного и тераваттного излучения для накачки параметрических усилителей. Важными ограничениями здесь становятся эффекты самовоздействия и кросс-воздействия при распространении мощного излучения в нелинейных средах, а также технологические ограничения по росту широкоапертуных нелинейно-оптических кристаллов, необходимых на конечных каскадах параметрического преобразования. В связи с этим недавно для создания эффективных тераваттных параметрических усилителей был

разработан подход двойного чирпирования («double chirped optical parametric amplifier») [60], который позволяет избежать нежелательных нелинейных эффектов благодаря чирпированию импульсов накачки и сигнальной волны. Успешное применение этого подхода позволило получить импульсы с энергией 0,1 Дж и длительностью 31 фс на длине волны 1,7 мкм при использовании титан-сапфирового лазера накачки (0,77 Дж, 25 фс) [59] и даже расширить спектральный диапазон генерации вплоть до 18 мкм с использованием схемы ОПУ с последующей ГРЧ, причем на длине волны 10 мкм энергия составила 120 мкДж [107].

Альтернативным подходом к получению мощных лазерных импульсов в ближнем и среднем ИК-диапазонах является оптическое параметрическое усиление чирпированных импульсов (ОПУЧИ) с использованием узкополосного, обычно пико- или наносекундного лазера накачки [66]. Такие системы строятся на иттербиевых лазерных системах (1,030 мкм), на лазерах Nd:YAG (1,064 мкм), Ho:YAG (2 мкм), и Ho:YLF (2 мкм). Основная сложность таких схем заключена в лазере накачки, который должен обладать высокой энергией (десятки миллиджоулей) и высоким качеством пучка, а также в схеме синхронизации, так как источники накачки и инжекции, как правило, независимы и должны стартовать от одного задающего генератора. Этот подход позволяет усиливать импульсы в широком диапазоне длин волн от ближнего до среднего ИК, сохраняя при этом возможность генерации малопериодного излучения благодаря поддержанию широкой полосы усиления и уменьшению эффектов группового разбегания импульсов при взаимодействии импульсов пикосекундной и субнаносекундной длительности.

В последнее время также появляются работы по вынужденному комбинационному рассеянию (ВКР) фемтосекундных импульсов в газовых кюветах и капиллярах для перехода в область среднего ИК-диапазона. Для фемтосекундных импульсов процесс ВКР протекает в нестационарном режиме, в связи с чем необходимо достижение высоких интенсивностей для преодоления порога генерации. Однако в силу малой длительности импульса высокая интенсивность приводит к проявлению других нелинейных процессов (фазовая самомодуляция, самофокусировка), что подавляет ВКР сигнал. Во избежание нежелательных процессов была предложена схема с предварительным чирпированием импульса для понижения его пиковой мощности. С помощью аналогичной схемы (с дополнительным усовершенствованием) в работе [108] было продемонстрировано преобразование излучения титан-сапфирового лазера с эффективностью 8,5% во вторую стоксову компоненту с длиной волны 2,3 мкм при ВКР в сжатом водороде с выходной энергией до 0,6 мДж. Генерация субпикосекундных импульсов (920 фс, 10 мкДж) была достигнута в полом револьверном волокне, заполненном дейтерием, на длине волны второй стоксовой компоненты (2,68 мкм) иттербиевого лазера (1,03 мкм) [109]. Полностью твердотельный подход к получению пикосекундных импульсов в среднем ИК-диапазоне с использованием ВКР в кристалле был продемонстрирован недавно в работе [110], где применялась схема для преобразования частоты чирпированного и растянутого до 200 пс импульса ближнего ИК-диапазона 90 фс Ti:Sapphire лазера в средний ИК-диапазон путем

генерации разностной частоты в кристалле GaSe или $LiGaS_2$. Накачка кристалла осуществлялась лазерным излучением, прошедшим через кристалл $BaWO_4$, где посредством ВКР генерировалось стоксово сдвинутое по частоте излучение (сигнальная волна). Сгенерированный импульс среднего ИК-диапазона с энергией ~60 нДж имел центральную длину волны 11,1 мкм и ширину спектра на полувысоте около 0,2 мкм, что позволило после его компрессии достичь длительности импульса ~0,9 пс [110]. Отметим, что для получения перестраиваемого излучения в среднем ИК-диапазоне необходим перестраиваемый источник накачки, что ограничивает применимость данного подхода.

Проблемы, стоящие перед исследователями при создании перестраиваемого от ближнего до среднего ИК-диапазона источника когерентного излучения, мотивируют на поиск более простых схем генерации с использованием фемтосекундных лазеров накачки с длиной волны более 1 мкм. Для этих целей хорошо подходит хром-форстеритовый лазер, центральная длина волны генерации которого сдвинута дальше в ИК область (1,24 мкм), длительность составляет до 100 фс, а пиковая мощность может быть увеличена до тераваттного уровня на частоте повторения 10 Гц. В ранних работах уже демонстрировались преимущества использования излучения хром-форстеритового лазера для параметрической генерации и усиления фемтосекундных ИК импульсов. Использование смешанных неоксидных кристаллов $Cd_{0,65}Hg_{0,35}Ga_2S_4$ позволило увеличить угол синхронизма, приблизив геометрию к некритической с возможностью работать с близким к максимальному значением d_{eff} при низких значениях расстройки групповых скоростей, и получить перестраиваемые от 5,5 до 8 мкм импульсы с длительностью менее 200 фс [111]. В кристалле $LiInS_2$ (LIS) с накачкой хром-форстеритовым лазером была достигнута рекордная эффективность преобразования ~1% в диапазон длин волн 8–10 мкм [64]. В работах группы В. Петрова наибольшая эффективность генерации составила 2% на центральной длине волны 6 мкм в кристалле HGS [112]. В диссертационной работе впервые рассмотрены вопросы высокоэффективной генерации перестраиваемых от ~1 до ~8 мкм ИК импульсов при оптимальном выборе параметров хром-форстеритового излучения (плотность энергии, чирп) и кристалла.

§1.2. Мультигигаваттный хром-форстеритовый лазерный комплекс с длиной волны 1,24 мкм на основе многопроходных усилителей

1.2.1. Принципиальная схема фемтосекундной лазерной системы на хром-форстерите

Ниже приведено описание фемтосекундной системы на основе хром-форстеритового лазера, работающей на частоте повторения импульсов до 50 Гц, включая описание ее основных узлов и режимов работы, а также методики измерения параметров выходного излучения.

Типичная энергия выходного импульса непрерывных твердотельных лазеров с керровской синхронизацией мод (лазеры на Ti:Sa, LiSaF и хром-форстерите) составляет несколько наноджоулей. Для повышения энергии фемтосекундного импульса используется схема усиления чирпированных импульсов с одним или несколькими каскадами усиления. В

регенеративном усилителе энергия предварительно растянутого импульса повышается до уровня 100–500 мкДж, а затем до миллиджоульной энергии на последующих каскадах многопроходного усиления [113,114]. После усиления длительность импульса восстанавливается в компрессоре практически до первоначальной.

На сегодняшний день в мире реализованы несколько систем регенеративного усиления фемтосекундных импульсов на основе кристалла хром-форстерита с уровнем энергии выходного импульса порядка 100 мкДж [82,115–118]. Каждая из них характеризуется своей геометрией оптической схемы, источником накачки, частотой повторения импульсов, типом электрооптического затвора и другими особенностями. В ходе разработки нашей системы был проведен анализ всех этих сложных установок для выработки оптимальной схемы, реализующей мультигигаваттный уровень пиковой мощности выходного импульса при минимизации затрат и характеризующейся надежностью и удобством в эксплуатации.

В результате проведенного анализа и предварительных экспериментов была выработана структурная схема фемтосекундной системы мультигигаваттного уровня пиковой мощности, представленная на ***Рис. 2***.

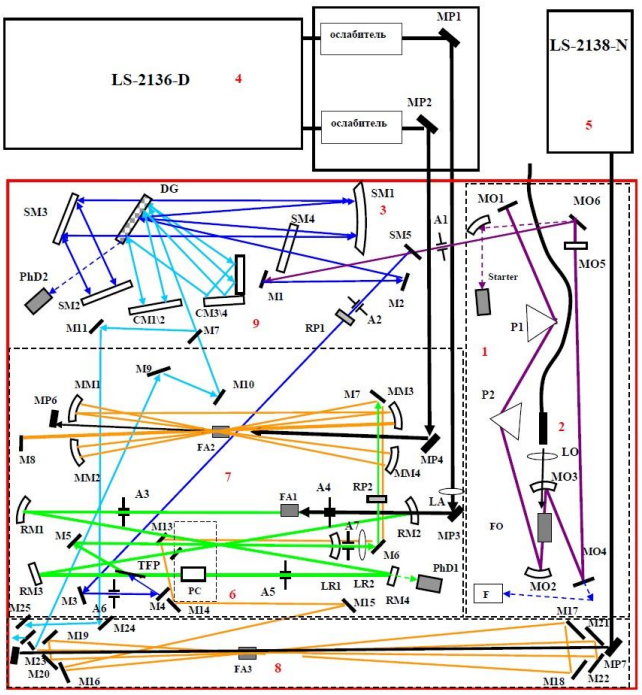


Рис. 2 Структурная схема хром-форстеритового фемтосекундного лазера. 1 – задающий генератор фемтосекундных импульсов на хром-форстерите с накачкой излучением волоконного лазера; 2– лазер накачки задающего генератора – одномодовый иттербиевый волоконный лазер мощностью 10 Вт в линейной поляризации; 3 – стретчер на дифракционной решетке; 4 – источник накачки регенеративного и многопроходного усилителя – импульсно-периодический Nd:YAG с модуляцией добротности и частотой повторения импульсов 1-50 Гц (опция до 100 Гц); 5 – источник накачки 5-ти-проходового усилителя – импульсно-периодический Nd:YAG с модуляцией добротности и частотой повторения импульсов 1-100 Гц; 6 – регенеративный усилитель на хром-форстерите с импульсной накачкой; 7 – 10-ти-проходный усилитель на хром-форстерите с импульсной накачкой; 8 – 4-х-проходный усилитель на хром-форстерите с импульсной накачкой; 9 – компрессор на дифракционной решетке.

1.2.2. Исследование возможности использования кристаллов хром-форстерита для усиления фемтосекундных импульсов до мультигигаваттной мощности

Если лазерные системы на хром-форстерите гигаваттного уровня мощности (энергия импульса 0,1 мДж, длительность 100 фс) на базе конфигурации задающий генератор + регенеративный усилитель являются уже коммерческими, то реализация системы с уровнем энергии выходного импульса 5–10 мДж (пиковая мощность 50–100 ГВт) при высокой частоте повторения импульсов является достаточно нетривиальной задачей. Для ее решения прежде всего необходимо было исследовать кристаллы хром-форстерита как усиливающей широкополосной среды и оптимизировать конструкцию многопроходного усилителя (МПУ). Применять схемные решения по аналогии с широко распространенными МПУ на кристалле титан-сапфира нельзя в силу большого различия в генерационных и термооптических свойствах этих двух кристаллов.

Основной критерий при выборе схемы МПУ – это высокий КПД преобразования излучения накачки при максимальном сохранении спектра и пространственной моды усиливаемого излучения, а также минимизация числа проходов через активную среду, что вполне естественно, так как при большом числе проходов возникают чисто технические трудности, связанные с геометрией размещения большого количества оптических элементов на оптической плите, с юстировкой, с механической и термической устойчивостью МПУ и т. п. В оптимальной схеме МПУ желательно также реализовать максимальный коэффициент усиления на проход. При заданной величине энергии импульса накачки этого можно добиться, увеличивая до определенного предела плотность энергии накачки путем более жесткой фокусировки излучения накачки в активный элемент. С другой стороны, при уменьшении диаметра перетяжки пучка накачки уменьшается и размер усиливаемого пучка, что, с учетом эффекта насыщения усиления, ведет к уменьшению энергии усиленного импульса. Таким образом, задача оптимизации схемы МПУ является многопараметрической: для каждой конкретной величины энергии усиливаемого импульса и энергии импульса накачки существует своя конкретная оптимальная схема МПУ.

Для расчета оптимальной схемы МПУ необходимо знать величину коэффициента усиления на проход и плотность энергии насыщения усиления. Хотя эти данные и известны из литературных источников [50,117], они имеют значительный разброс, к тому же точные их значения для конкретного активного элемента зависят в сильной степени от его оптического качества, концентрации ионов четырехвалентного хрома в нем и т. д. Поэтому перед выбором оптической схемы МПУ величины коэффициента усиления на проход и плотности энергии насыщения для нескольких активных элементов из различных кристаллов хром-форстерита разного оптического качества и разной степени легирования были определены в ходе экспериментов, изложенных ниже.

1.2.3. Экспериментальное исследование усиления стретчированного импульса в многопроходном усилителе на кристаллах хром-форстерита

Для оптимизации параметров МПУ была проведена серия предварительных экспериментов, в ходе которых были измерены: а) зависимости коэффициента усиления слабого сигнала от плотности мощности накачки и от концентрации ионов хрома в различных кристаллах, б) зависимость коэффициента усиления от плотности мощности усиливаемого сигнала. На основании этих измерений были определены значения величин насыщения плотности энергии накачки и усиливаемого сигнала соответственно, которые, в конечном итоге, позволили оптимизировать параметры усилителя.

Методика измерения зависимостей коэффициента усиления в кристалле хром-форстерита показана на ***Рис. 3***.

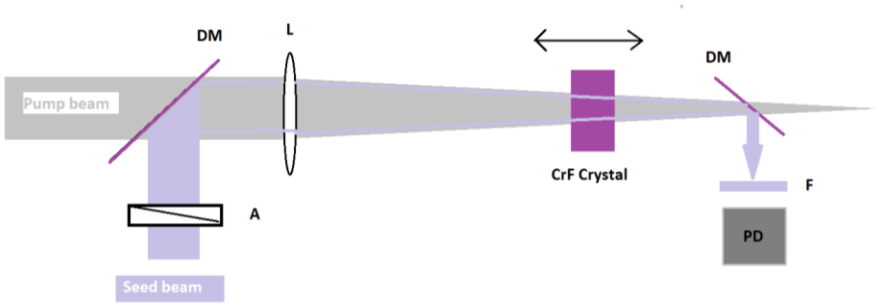
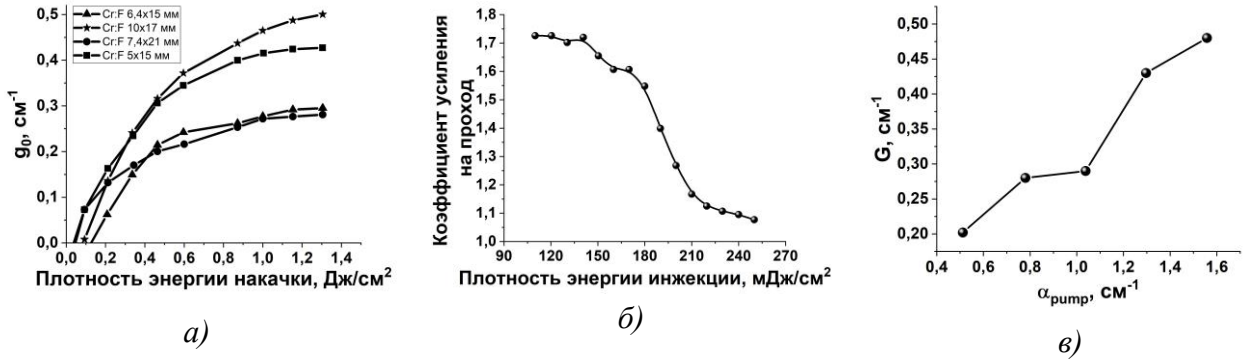


Рис. 3. Схема измерения зависимости коэффициента усиления в кристалле хром-форстерита от плотности мощности накачки. DM-дихроичное зеркало, A- аттенюатор, F – фильтр, PD-фотодетектор.

Для создания инверсии населённостей в кристаллах хром-форстерита с максимальным уровнем легирования 0,5-0,7% использовался Nd:YAG лазер с длиной волны 1,06 мкм, длительностью 10-50 нс, энергией до 300 мДж в импульсе и частотой повторения импульсов до 100 Гц. С помощью дихроичного зеркала DM широкоапертурные пучки накачки и усиливаемого сигнала одинакового размера сводятся параллельно и фокусируются длиннофокусной линзой. Перемещая исследуемый кристалл вдоль пучка, можно изменять плотность энергии импульса накачки на торце кристалла в большом диапазоне (интересующий нас диапазон от 0,1 до 3,0 Дж/см^2), а изменение энергии пробного импульса при этом может осуществляться аттенюатором *A*. Коэффициент усиления определяется как отношение сигналов с фотодетектора при открытом и закрытом пучке накачки.

Типичные зависимости коэффициента усиления слабого импульса (плотность энергии пробного импульса 0,001 Дж/см^2) от плотности энергии накачки приведены на ***Рис. 4 (а)***.



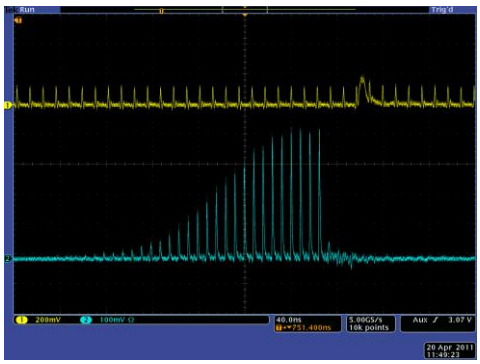
а) *б)* *в)*

Рис. 4 а) Зависимость коэффициента усиления слабого сигнала в различных элементах из кристалла хром-форстерита; б) зависимость коэффициента усиления пробного импульса от плотности его энергии; в) коэффициент усиления G излучения на длине волны 1,24 мкм в кристаллах хром-форстерита различной степени легирования (различной оптической плотности), как функции поглощения накачки на длине волны 1,06 мкм.

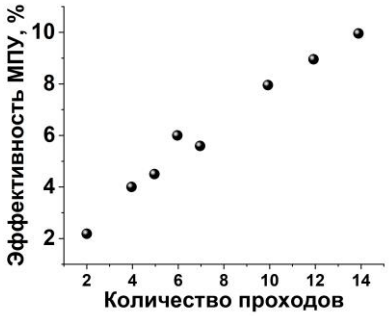
Во всех исследованных кристаллах наблюдалось явное насыщение усиления при плотности мощности накачки свыше 1 Дж/см^2. Явление это объясняется, по-видимому, поглощением накачки с верхнего возбужденного лазерного уровня [50]. Об этом косвенно свидетельствует также слабая флуоресценция желтого цвета, появляющаяся в лазерном треке внутри кристалла при таком уровне накачки.

Затем при плотности энергии накачки выше плотности насыщения (1,5–2,0 Дж/см^2) проводилось измерение усиления в зависимости от уровня энергии входного сигнала путем изменения пропускания аттенюатора. Типичная зависимость приведена на ***Рис. 4 (б)***. Коэффициент усиления пробного импульса резко падал при плотности его энергии более величины 200–350 мДж/см^2 для всех имеющихся образцов кристаллов хром-форстерита. Также из измерений коэффициента усиления в кристаллах с различной концентрацией хрома (соответственно, различной оптической плотности) было выявлено, что коэффициент усиления в условиях насыщенной накачки в некоторых пределах практически линейно увеличивается с увеличением степени легирования кристалла (см. ***Рис. 4 (в)***).

Оптимальное число проходов МПУ для каждого выбранного кристалла хром-форстерита можно рассчитать, основываясь на полученных данных, а также оценить экспериментально. Для этого кристалл хром-форстерита помещался в резонатор регенеративного усилителя, и наблюдалась осциллограмма развития внутрирезонаторного цуга при оптимальной накачке на кристалле, близкой к плотности энергии насыщения. Типичный вид осциллограммы развития внутрирезонаторного цуга приведен на ***Рис. 5***. Из линейного участка осциллограммы можно определить коэффициент усиления на проход, а число импульсов на нелинейном участке будет примерно соответствовать числу проходов в МПУ, которое необходимо для достижения максимального его КПД.



а)



б)

Рис. 5 а) Осциллограмма энергии внутрирезонаторного импульса в процессе регенеративного усиления, плотность энергии накачки 1 Дж/см², внутрирезонаторные потери 10%. Из вида этой зависимости можно оценить число проходов N через активную среду, требуемое для усиления импульса с амплитудой 10% от максимальной до 90% от максимальной (усиление в 9 раз, практически до уровня насыщения); б) зависимость эффективности МПУ, $(E_{out}\text{-}E_{in})\ /E_{pump}$, от числа проходов через активный элемент для различных экспериментальных реализаций.

Дальнейшие эксперименты также показали, что при числе проходов через МПУ более 10 достигается насыщение энергии усиленного импульса, обусловленное как истощением инверсии в активной среде, так и ростом пассивных потерь. До этого момента при прочих равных условиях эффективность МПУ, определяемая как отношение прироста энергии усиливаемого импульса к энергии поглощенной накачки, растет пропорционально числу проходов (см. ***Рис. 5 (б)***).

1.2.4. Термооптическая линза в кристалле хром-форстерита

Термооптическая линза возникает в активном элементе при поглощении цилиндрического пучка накачки с гауссовым (гипергауссовым, flat-top) профилем мощности по его сечению. Фокусное расстояние термооптической линзы выражается формулой [118]

$$f = \frac{2 \times K}{\frac{\partial n}{\partial T} \times F_{abs} \times \nu}, \qquad (2)$$

где K – теплопроводность кристалла, F_{abs} – поглощенная плотность энергии, Дж/см^2, ν – частота повторения импульсов накачки, $\frac{\partial n}{\partial T}$ – изменение показателя преломления кристалла от температуры.

Подставляя значения теплопроводности для форстерита $K = (6 \div 10)\,\frac{\text{Вт}}{\text{м}\times\text{К}}$ и считая, что зависимость $\frac{\partial n}{\partial T}$ такая же, как у большинства силикатов, получим оценку

$$f(\text{м}) = \frac{200}{P\left(\frac{\text{Вт}}{\text{см}^2}\right)}, \qquad (3)$$

Предварительные эксперименты по измерению силы термооптической линзы, выполненные при помощи пропускания через накачиваемый кристалл форстерита пробного излучения гелий-неонового лазера, дали значение

$$f_{\text{эксп}}(\text{м}) = \frac{100 \div 300}{P\left(\frac{\text{Вт}}{\text{см}^2}\right)}, \qquad (4)$$

Для реализации энергии выходного импульса порядка 10 мДж и при эффективности МПУ 5% требуемая энергия импульса накачки составляет 200 мДж, при этом при частоте повторения 50 Гц и диаметре пучка 5 мм плотность мощности накачки 50 Вт/см^2 и фокусное расстояние тепловой линзы составит 2–2,6 метра. Использовать в МПУ плоскую оптику при такой сильной линзе не представляется возможным, поскольку через несколько проходов усиливаемый пучок схлопнется. Необходимо компенсировать расходимость пучка после каждого прохода либо корректирующими телескопами, что технически сложно при большом числе проходов, либо с использованием сферических отражательных зеркал. Последнее решение использовано в схеме хром-форстеритового МПУ с компенсацией термооптической линзы в активном элементе.

Таким образом, результаты экспериментов по усилению пробного излучения в кристаллах хром-форстерита при импульсной накачке Nd:YAG лазером показали, что:

- Коэффициент усиления слабого сигнала на проход зависит от плотности энергии накачки (F) и при $F > (1-1{,}5)$ Дж/см^2 для всех кристаллов (максимальный уровень легирования 0,5-0,7%) наблюдается эффект насыщения коэффициента усиления на проход на уровне $К = (1{,}38 - 1{,}75)$ ($g_0 = 0{,}28 - 0{,}5$ см$^{-1}$), вызванный, скорее всего, поглощением накачки из возбужденного состояния.
- При увеличении энергии усиливаемого импульса коэффициент его усиления падает вследствие эффекта насыщения усиления из-за выравнивания населенностей уровней рабочего перехода. Плотность энергии насыщения усиления для исследованных кристаллов форстерита составила $0{,}2 - 0{,}3$ Дж/см^2.
- При плотности энергии накачки $F > (1-1{,}5)$ Дж/см^2, необходимой для реализации максимального усиления, и при частоте повторения импульсов накачки $50 - 100$ Гц в кристалле хром-форстерита возникает термооптическая линза с оптической силой $0{,}4 - 1{,}0$ диоптрии.
- Оптимальное с точки зрения энергосъема число проходов МПУ для имеющихся кристаллов хром-форстерита составляет 12–14.

Из полученных данных, основываясь на имеющемся источнике накачки, определяются оптимальные размеры пучков накачки и усиливаемого излучения на кристалле, геометрия МПУ и число проходов через него для реализации максимальной энергии усиленного импульса. В силу вышеуказанных причин требовалось найти такую геометрию МПУ на хром-форстерите, которая бы реализовала большое количество проходов через активный элемент с одновременной компенсацией искажений пространственной структуры пучка вследствие существенной термооптической линзы в активном элементе.

Таким образом, в диссертации предложена и реализована в эксперименте оригинальная оптическая схема многопроходного усилителя, позволяющая реализовать до 14 проходов усиливаемого импульса через цилиндрический активный элемент с апертурой 6 мм при диаметре усиливаемого пучка до 3 мм. Использование двух пар софокусных зеркал позволило компенсировать наведенную в активном элементе тепловую линзу с оптической силой до

1,5 дптр. и получать на выходе усиленный гауссов пучок при средней мощности накачки до 25 Вт.

1.2.5. Оптическая схема многопроходного усилителя (МПУ)

Оптическая схема МПУ с компенсацией термооптической линзы в активном элементе (***Рис. 6 (а)***) образована двумя парами вогнутых сферических зеркал с радиусом кривизны $R = -700$ мм в почти конфокальной геометрии, т. е. когда расстояние между противоположными зеркалами равно их радиусу кривизны (или, проще говоря, когда они имеют общий фокус).

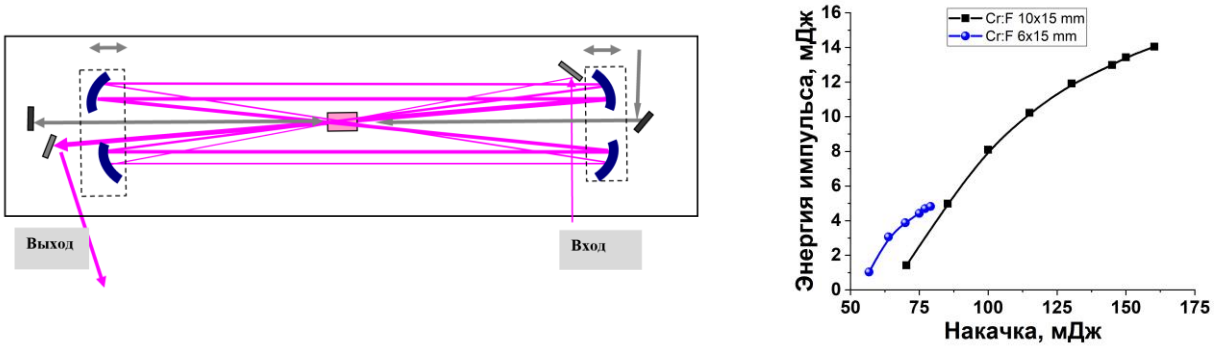
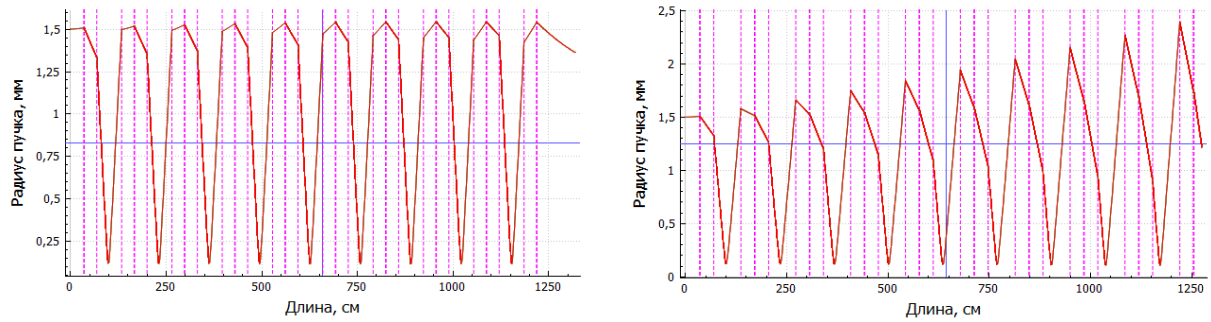


Рис. 6. (а) Оптическая схема многопроходного усилителя со сферическими зеркалами ММ1-ММ4 в конфокальной геометрии, реализующая 3-5-7 проходов. Показан ход лучей для 5-проходовой конфигурации. Схема симметричная, вход и выход можно менять местами. МР6 – зеркало, отражающее назад непоглощенное в активном элементе излучение накачки, М7 и М8 – заводные/выводные зеркала. (б) Зависимость энергии усиленного импульса в 6-ти проходном усилителе для кристалла 10 мм х15мм и энергии на входе 0,5 мДж (-●-) и кристалла 6,4х15 мм и энергии на входе 1 мДж (-▪-) от энергии импульса накачки.

Обе пары зеркал располагаются на трансляторах и могут синхронно перемещаться вдоль оси усилителя в небольших пределах. Активный элемент устанавливается примерно посредине между зеркалами в месте пересечения параллельных лазерных пучков и пучков накачки. Схема с четырьмя конфокальными зеркалами отличается простотой юстировки (даже в случае пучков невидимого ИК излучения) и стабильностью, к тому же в такой схеме гораздо проще технически компенсировать расходимость усиливаемого пучка и тепловую линзу, наведенную в активном элементе, меняя общую кривизну системы путем синхронного перемещения каждой пары зеркал относительно общего центра с помощью трансляторов. Также в такой геометрии очень легко изменять число проходов, просто смещая выводное зеркало в поперечном направлении. Если на входе в МПУ имеется лазерный пучок с дифракционной расходимостью, то он будет после каждого прохода фокусироваться в перетяжку между зеркалами, но затем будет снова восстанавливать свои размеры и расходимость, т. е. на активный элемент на каждом проходе падает параллельный пучок с диаметром, примерно равным входному. Подбором расстояния между парами зеркал можно изменять в некоторых пределах диаметр моды усиливаемого пучка от прохода к проходу, таким образом можно избежать насыщения усиления на последних проходах и получить большую выходную энергию усиленного импульса.

Для демонстрации такой возможности в диссертации были проведены расчеты с использованием открытого программного пакета *reZonator*, разрабатываемого для проектирования лазерных резонаторов и расчета распространения лазерных пучков в сложных

оптических системах. В качестве входных параметров использовались следующие данные. Интенсивность в пучке изменялась по гауссовому закону и диаметр пучка по уровню $1/e^2$ по интенсивности на входе в МПУ составляет 1,5 мм. Также учитывалась тепловая линза с эквивалентным фокусным расстоянием ~2 метров, которая возникает в активном элементе при поглощении излучения накачки. Ниже приведена эволюция радиуса пучка в МПУ при различном расстоянии между зеркалами (см. ***Рис. 7***). Штриховые вертикальные линии на графиках соответствуют положению лазерного кристалла и сферических зеркал по пути распространения лазерного излучения. Из представленных зависимостей можно заключить, что небольшая расстройка ~3 см относительно оптимального расстояния между сферическими зеркалами (в данном случае ~650 мм) позволяет изменять диаметр моды усиливаемого пучка от 3 мм на входе до ~5 мм на выходе МПУ, сохраняя при этом более ~2 мм диаметр пучка на элементах оптической схемы, что позволяет избежать оптического пробоя их поверхности.



а) *б)*

Рис. 7. Эволюция лазерного пучка в МПУ при различном расстоянии между сферическими зеркалами с радиусом кривизны –700 мм. а) 650 мм, б) 670 мм.

Максимальное число проходов в такой схеме МПУ определяется размерами лазерных пучков и зеркал. Максимальное количество проходов ограничивается количеством «пятен», укладывающихся на апертуру зеркала, причем минимальное расстояние между центрами лазерных пучков определяется их размерами и минимальным расстоянием между пучками накачки и инжекции, а также размерами активного элемента. При диаметре пучков инжекции 3-4 мм, минимальное расстояние между их центрами на зеркалах составляет 8–10 мм, поэтому при размере сферического зеркала в 20 мм на нем укладывается 2 пятна, т. е. реализуется пятипроходный МПУ, при диаметре сферического зеркала МПУ 30 мм укладывается 3 пятна, т. е. можно реализовать 7 проходов, со сферическим зеркалом диаметром 50 мм можно реализовать 9-проходный МПУ.

Следует отметить, что предложенная схема может компенсировать наведенную в активном элементе тепловую линзу, оптическая сила которой не превышает обратную величину фокусного расстояния сферических зеркал (в метрах). Число проходов через МПУ можно удвоить, если с помощью зеркала слегка приподнять/опустить выходной пучок и направить его точно обратно, но чуть выше, или ниже входного. При радиусе кривизны сферических зеркал R= -700–500 мм и их диаметре 30–32 мм можно реализовать до 7 проходов через активный элемент

с диаметром моды усиливаемого пучка до 3 мм при диаметре активного элемента 6 мм, а при использовании обратного отражателя – реализовать до 14 проходов. Оптическая схема МПУ с четырьмя сферическими зеркалами была реализована в 2012–2022 гг. для усиления чирпированных пикосекундных импульсов хром-форстеритового лазера. В качестве накачки использовалось излучение импульсных Nd:YAG лазеров с частотой повторения 10–100 Гц. Средняя плотность мощности накачки на активный элемент достигала 90 Вт/см^2 (плотность энергии до 2 Дж/см^2). Параметры реализованных МПУ на кристаллах хром-форстерита приведены в ***Таблица 2.*** Типичная зависимость энергии усиленного импульса от энергии импульса накачки приведена на ***Рис. 6 (б)***.

Таблица 2. Многопроходные усилители на хром-форстерите.

Размер активного элемента, мм	**Энергия накачки, мДж**	**Плотность энергии накачки, Дж/см^2**	**Плотность мощности накачки, Вт/см^2**	**Частота повторения импульсов, Гц**	**Кол-во проходов**	**Коэф. усиления**	**Энергия усиленного импульса, мДж**	**КПД, %**
Ø5.5·15	90	1,6	18	10	10		8,2	**9,0**
Ø6.4·21	95	1,2	70	50	5	11	4,6	4,5
Ø7.4·19	105	0,8	50	50	5	3,5	5,7	4,0
Ø7.4·19	80	0,7	50	50	7	4,0	8,0	7,5
Ø5.5·15	60	1,8	12	10	10	13	5,2	**8,7**
Ø10·17	*200*	1,0	*120*	100	*2*	2,3	7,4	2,4
Ø6.4·21	95	1,2	70	100	6		6.5	6,8
Ø10·17 + ***Ø6.4·21***	285			100	12		24	**8,4**

В качестве источников накачки МПУ на хром-форстерите применялись импульсные Nd:YAG лазеры с ламповой накачкой Lotis 2136 с длиной волны излучения 1064 нм и с энергией импульса от 35 до 200 мДж. В большинстве случаев использовалась частота повторения импульсов 10 Гц, однако работоспособность выбранной схемы МПУ была исследована при частоте повторения до 100 Гц при средней мощности падающего на кристалл излучения вплоть до 25 Вт.

В конечном итоге выбор остановился на схеме 10-проходового МПУ с обратным ходом пучка, наиболее практичной с точки зрения юстировки и стабильности и показавшей лучшую эффективность. Дальнейшее увеличение выходной энергии было произведено за счет добавления еще одного 4-х-проходового усилителя в схему хром-форстеритового фемтосекундного лазерного комплекса, на этапе модернизации состоящего из регенеративного и 10-ти проходного усилителя. Плотность энергии накачки на кристалле хром-форстерита составляла порядка 1,5 Дж/см^2, что обеспечивало коэффициент усиления на проход порядка 1,5. Это позволило увеличить энергию с 6 мДж до порядка 16–20 мДж на входе в компрессор, что при 80% пропускания компрессора обеспечивает энергию на выходе из системы порядка 12–16 мДж.

Спектр на выходе из системы соответствовал 22 нм по полувысоте, что говорит об отсутствии эффектов обужения спектра при усилении в разработанной конструкции усилителя. Компрессия усиленного мощного излучения была выполнена с использованием разработанного вакуумного компрессора на основе дифракционных решеток с размерами 100x100 мм с углом дифракции 22^0 (Richardson Gratings Inc., «НПО ГИПО» Казань). После юстировки компрессора и уменьшения влияния чирпов различной природы (временной, пространственный) удалось получить фемтосекундный импульс на выходе длительностью ~100 фс (см. ***Рис. 8***).

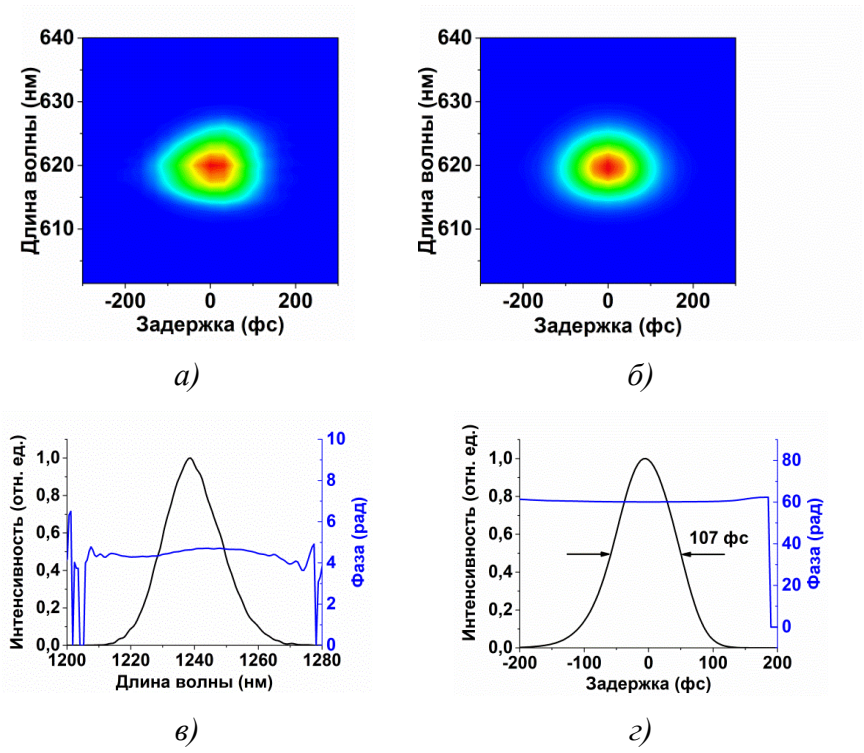


Рис. 8. Экспериментальная (а) и восстановленная (б) SH-FROG спектрограммы хром-форстеритового лазерного импульса. Восстановленная форма спектра (в) и огибающая импульса (г). Ошибка восстановления 0,8%.

Таким образом, разработанные подходы по увеличению пиковой и средней мощности фемтосекундного излучения ближнего ИК-диапазона хром-форстеритового лазера позволили достигнуть уровня пиковой мощности ~100 ГВт при средней мощности более 1 Вт, что говорит о перспективности использования этого источника в решении задач нелинейной оптики и физики сверхсильных световых полей.

§1.3. Генерация широкополосных фемтосекундных затравочных импульсов ближнего и среднего ИК-диапазона

1.3.1. Генерация широкополосных фемтосекундных спектральных суперконтинуумов от мощных импульсов с длиной волны 1,24 мкм

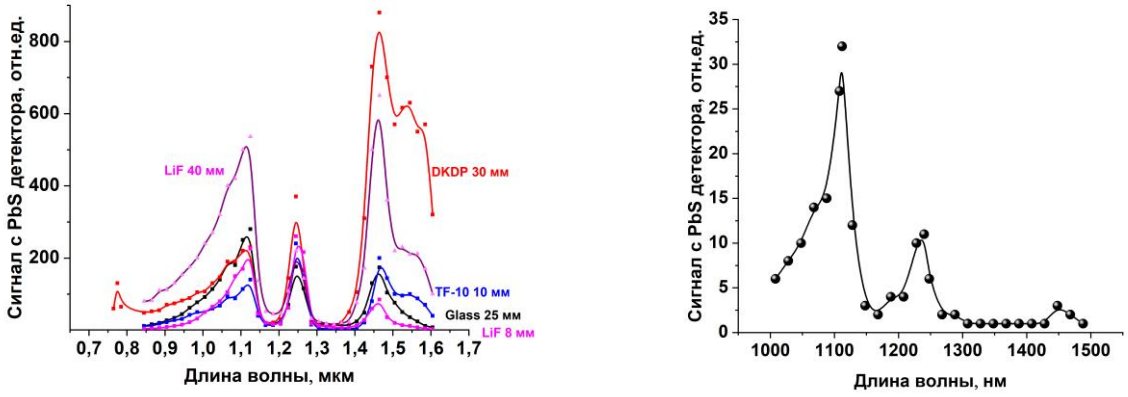
При большой интенсивности накачки параметрическая генерация происходит из спонтанных шумов, однако максимум спектра генерируемого излучения в этом случае совпадает с максимумом спектральной кривой усиления ПГС бегущей волны, определяемой условиями согласования групповых скоростей взаимодействующих импульсов. Более эффективно

использовать не параметрическую генерацию, а параметрическое усиление, когда на вход нелинейного кристалла подается достаточно мощный затравочный импульс на частоте сигнальной (холостой) волны. Для этой цели можно использовать излучение дополнительного лазера, либо широкополосное излучение фемтосекундного суперконтинуума (СК), генерируемое в прозрачной среде с кубической нелинейностью при интенсивностях накачки порядка 10–500 ГВт/см^2. Та часть излучения СК, которая попадет в полосу усиления оптического параметрического усилителя (ПУ) на частоте сигнальной (холостой) волны, будет эффективно усиливаться одновременно с генерацией излучения на частоте холостой (сигнальной) волны, и тогда диапазон перестройки ПГС определяется спектральной яркостью СК.

1.3.1.1. Генерация суперконтинуума в области 1,1 мкм

В рассматриваемом случае необходимая часть излучения СК должна лежать в диапазоне спектра 1,1 мкм, которая выступит в качестве сигнальной волны для получения холостой в области 1,6 мкм в параметрическом преобразовании с накачкой второй гармоникой хром-форстеритового излучения (см далее пункт ***1.3.2***). Генерация фемтосекундного СК осуществлялась при фокусировке линзой с фокусным расстоянием $f = 100$ мм небольшой части излучения накачки, отраженной от непросветленной подложки (примерно 4%), в образцы из различных материалов. Прошедшее излучение коллимировалось линзой $f = 50$ мм и диафрагмировалось (использовалась центральная часть пучка). Спектр полученного излучения измерялся с помощью спектрометра с решеткой 600 штр./мм. и приемником на сульфиде свинца (спектральная область чувствительности 0,7–2,5 мкм).

На ***Рис. 9*** приведены спектры фемтосекундных СК из различных образцов. Провал в центральной части спектров обусловлен спектральной кривой пропускания диэлектрического зеркала, помещенного в выходной пучок СК в качестве спектрального фильтра для ослабления излучения накачки.



а) *б)*

Рис. 9. а) Спектры суперконтинуума из различных образцов, длина волны накачки 1240 нм; б) скорректированный спектр суперконтинуума из сапфира, используемый в качестве инжекции первого каскада параметрического усилителя ближнего ИК-диапазона.

Следует отметить, что в спектральной полосе измерения 1,05–1,15 мкм максимальная энергия СК достигалась для длины волны 1,1 мкм и составляла 60–150 нДж (КПД 0,2–0,5%), что

говорит об импульсной мощности затравочного излучения на уровне 0,5–1 МВт. На практике такой уровень сигнала инжекции сложно создать другими источниками.

Наилучшим из всех исследованных образцов с точки зрения эффективности преобразования в 1,1 микронную область спектра явилась 3 мм пластинка сапфира, вырезанная вдоль оптической оси. С помощью дихроичного зеркала и цветного фильтра СС-4 из спектра СК вырезалась область 1,05–1,15 мкм (см. ***Рис. 9 (б)***), и этот пучок направлялся коллинеарно с пучком накачки на кристалл первого каскада параметрического усилителя ближнего ИК-диапазона.

1.3.1.2. Генерация суперконтинуума в области 1,5–1,9 мкм

Схема прямого параметрического усиления для получения излучения в среднем ИК-диапазоне (3–8 мкм) требует наличия эффективного источника СК в диапазоне длин волн 1,5–1,9 мкм. Одним из наиболее перспективных кандидатов для создания инжекции является кристалл Nd:YAG, к числу преимуществ которого относится изотропность, высокое значение порога оптического пробоя и большая твердость, которые позволяют использовать его для достаточно длительной генерации без повреждения. В работах [61,119] экспериментально показано, что кристалл Nd:YAG демонстрирует большую спектральную яркость по сравнению с кристаллами сапфира и фторида кальция.

Для эффективной генерации затравочного излучения параметрического усилителя были проведены измерения спектра и энергии СК, генерируемого в кристалле Nd:YAG различной длины. В эксперименте для фокусировки излучения накачки использовалась линза с фокусным расстоянием $f = 110$ мм, а для коллимации $f = 60$ мм. Перед кристаллом была установлена диафрагма с диаметром ~ 1,5–2 мм. Спектр наблюдался в диапазоне длин волн 1,35–2,55 мкм с использованием ИК спектрометра. Для спектральной селекции излучения перед ним был установлен фильтр СЗС-21. Относительные изменения энергии были проведены с помощью пироэлектрического приемника МГ-32.

В эксперименте наблюдалось увеличение спектральной яркости генерируемого СК в области 1,5–1,6 мкм при использовании кристалла длиной 2 см (по сравнению с кристаллом длиной 4 см) при одной и той же энергии накачки (15–20 мкДж). Было обнаружено, что при такой входной энергии в кристалле длиной 4 см формируется хаотичный режим генерации, так что стабильный СК можно получить при меньших энергиях – около 7–10 мкДж. При таких же энергиях СК генерировался и в кристалле длиной 2 см, но с меньшей спектральной яркостью. Для этого кристалла энергия лазерного излучения ~ 20 мкДж и выше являлась оптимальной, что хорошо видно из ***Рис. 10***. При такой энергии накачки удавалось получить стабильное затравочное излучение во всем необходимом диапазоне длин волн от 1,5 мкм до 1,9 мкм.

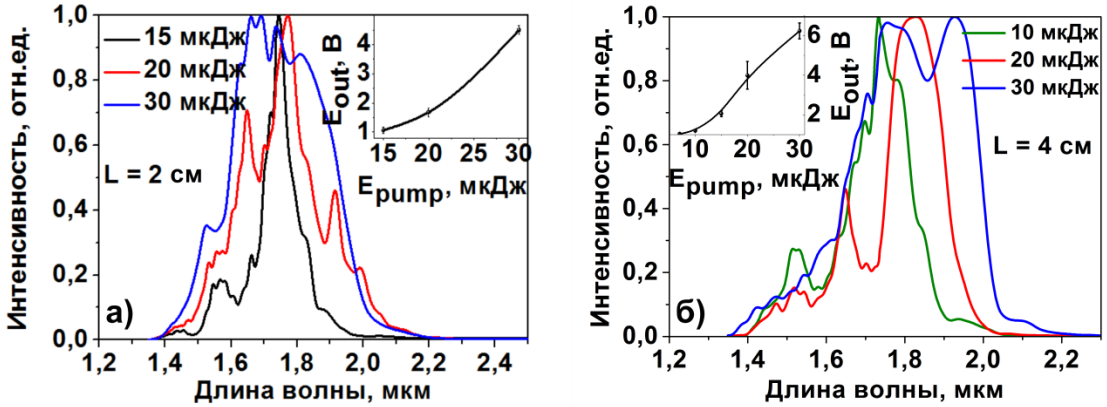


Рис. 10. Спектры суперконтинуума, полученные с кристаллом Nd:YAG длиной 2 см (а) и 4 см (б), при различных энергиях накачки. На вставке энергия суперконтинуума в зависимости от энергии накачки.

Используя кристалл длиной 1 см, удалось добиться генерации СК при энергии накачки ~ 20 мкДж, однако для получения значительной ширины спектра требовались тщательная юстировка кристалла, положения фокуса относительно его торца и контроль расходимости излучения. При более острой фокусировке излучения (линзой с фокусным расстоянием 60 мм) добиться улучшения энергии в требуемой области длин волн не удалось.

Исходя из полученных экспериментальных данных, было принято решение, что использование кристалла длиной 4 см оказывается наиболее целесообразным, так как в этом случае минимизируются энергетические затраты на генерацию СК в требуемом диапазоне длин волн без потери стабильности излучения.

1.3.1.3. Управление спектральной яркостью суперконтинуума при филаментации излучения хром-форстеритового лазера в конденсированных средах

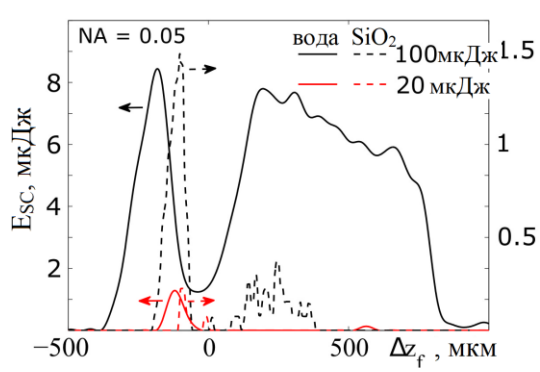
Для получения мощных фемтосекундных импульсов в процессе параметрического усиления в нелинейно-оптических кристаллах определяющими становятся спектр и энергия инжектируемого импульса затравочного излучения. Поэтому диссертационные исследования были направлены на выявление условий эффективной генерации СК сфокусированными фемтосекундными лазерными импульсами в конденсированной среде на примере кюветы с дистиллированной водой. Как экспериментально, так и численно исследовались различные условия фокусировки фемтосекундного лазерного излучения: кювета с водой устанавливалась до и после фокальной плоскости линзы, таким образом, лазерный пучок на входе в кювету с водой имел расходящуюся или сходящуюся пространственную фазу соответственно. В эксперименте варьировались энергия лазерного импульса, положение фокуса и числовая апертура, чтобы найти наиболее благоприятные условия для эффективной генерации СК.

В экспериментах использовалось излучение хром-форстеритового лазера, энергия которого изменялась полуволновой пластинкой и призмой Глана и измерялась калиброванным детектором на основе германия (Thorlabs PDA50-B). Для пространственной фильтрации лазерного излучения использовалась ирисовая диафрагма, размер которой настраивался один раз и не изменялся во всех экспериментах. Лазерный пучок фокусировался в кювету с водой (на

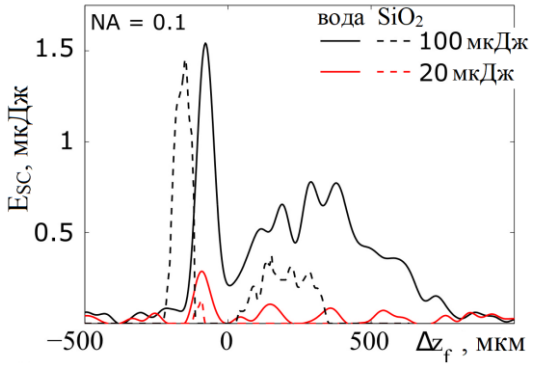
открытую границу вода-воздух) линзами и объективами с различной числовой апертурой (NA) в диапазоне 0,03–0,5, что приводило к филаментации лазерного излучения, сопровождающейся генерацией широкополосного излучения СК и конической эмиссии (КЭ). При использовании в качестве конденсированных сред диэлектриков (YAG, тяжелая вода, плавленый кварц, LiF, CaF_2) положение образца варьировалось во избежание влияния накопленных (за время одного измерения) структурных изменений на последующие измерения. Сканирующий щелевой фотодетектор использовался для регистрации фотоэмиссии из плазменных каналов, сформированных вдоль оси филамента. Излучение СК и КЭ коллимировалось и с помощью внеосевой параболы вводилось в кремниевый фотоприемник для измерения суммарной энергии СК и КЭ в видимом диапазоне длин волн E_{SC}.

Кювета с водой длиной 20 мм устанавливалась на шаговый двигатель для изменения положения ее входной поверхности относительно фокальной плоскости линзы. Энергия видимой части СК, E_{SC} и соответствующий спектр измерялись для различных входных энергий лазерного излучения E и расстояний Δz_f между границей воздух-вода z_{in} и фокальной плоскости линзы z_{fp}: $\Delta z_f = z_{in} - z_{fp}$. В первом случае (С1) фокальная плоскость линзы расположена перед границей раздела воздух-вода ($\Delta z_f < 0$), и входной пучок имеет расходящийся волновой фронт при взаимодействии с конденсированной средой. Во втором случае (С2) фокальная плоскость расположена после границы раздела воздух-вода ($\Delta z_f > 0$), а входной пучок имеет сходящийся волновой фронт.

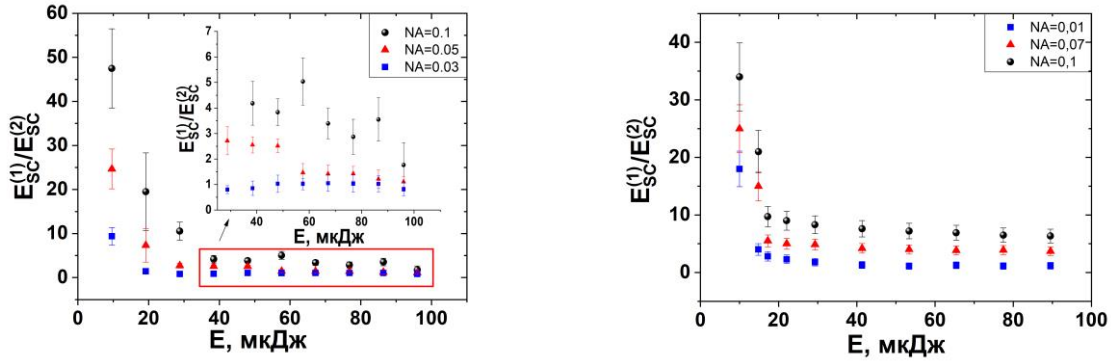
При достаточно невысокой числовой апертуре ($NA = 0{,}05; 0{,}1$) были проведены измерения энергии СК в видимой области спектра при различных энергиях падающего импульса E = 5-450 мкДж и положениях кюветы с водой относительно фокальной плоскости линзы ($\Delta z_f \in [-500{,}1000]$ мкм). При фокусировке лазерного излучения на границу раздела воздух-вода в пятно размером 10 мкм с пиковой интенсивностью $\approx 10^{13}$ Вт/см^2 достигается высокая концентрация электронной плазмы ($n_e \approx 10^{22}$см$^{-3}$), создается плазменное зеркало. Оно начинает отклонять падающий лазерный пучок и существенно искажает временную форму лазерного импульса в центральной и хвостовой его частях. В этом режиме генерация СК неэффективна, и наблюдается широкий провал в окрестности $\Delta z_f = 0$ (см. ***Рис. 11 (а, б)***).



(а)



(б)



(в) *(г)*

Рис. 11. Энергия суперконтинуума $E_{SC}(\Delta z_f)$ в зависимости от положения фокальной плоскости линзы относительно границы воздух-образец при фиксированных входных энергиях лазерного импульса E (а,б): а)– NA=0,05; б) NA=0,1. На рисунках а), б) красная и черная линии соответствуют энергиям лазерного импульса E=20 мкДж и E=100 мкДж соответственно; сплошные и штриховые линии соответствуют воде и плавленому кварцу соответственно. На рисунке а) значения энергии СК представлены по левой оси для воды и по правой оси для плавленого кварца. Отношение $E^{(1)}sc$ /$E^{(2)}sc$ для различных входных энергий лазерного излучения E и фокусировки NA представлено на в) и г) для воды и плавленого кварца соответственно. На рисунках в), г) положение образца относительно фокальной плоскости линзы определяется значениями $|\Delta z_f| \cong 200 \div 300$ мкм, что соответствует наиболее эффективной генерации СК как в случае C1, так и в случае C2.

Чем острее фокусировка или чем больше входная энергия лазерного импульса, тем глубже провал в зависимости энергии суперконтинуума от положения фокальной плоскости линзы относительно границы раздела воздух-вода. Это объясняется ростом интенсивности лазерного излучения на поверхности воды, что приводит к формированию плазменного зеркала с более высокими значениями концентрации электронов плазмы и двугорбой структуре в энергии СК. При использовании кюветы с водой энергия СК E_{SC} в случае C2 больше для меньших значений NA (***Рис. 11 (а, б)***). Однако при малых входных энергиях лазерного излучения ($E < 100$ мкДж) энергия СК, генерируемая лазерным пучком с расходящимся волновым фронтом $E^{(1)}_{SC}$, больше, чем энергия СК, генерируемая сходящимся лазерным пучком накачки $E^{(2)}_{SC}$ (***Рис. 11 (а, б)***). При более высоких энергиях ($E > 100$ мкДж) эффективность генерации СК практически одинаковая для расходящегося и сходящегося лазерных пучков накачки.

Схожий режим эффективной генерации СК в случае C1 по сравнению с C2 наблюдался в YAG, тяжелой воде, плавленом кварце, LiF и CaF_2, что позволяет говорить об общности наблюдаемых особенностей генерации СК в конденсированных средах при использовании расходящегося лазерного пучка накачки. Пространственные профили энергии СК $E_{SC}(\Delta z_f)$, который генерируется в образце плавленого кварца при фиксированных энергиях лазерного импульса 20 мкДж и 100 мкДж, представлены на ***Рис. 11 (а, б)*** штриховыми линиями.

Режим эффективной генерации СК при использовании расходящегося лазерного излучения достигается для узкого диапазона положений образца относительно фокальной плоскости линзы: $\Delta z_f \cong -400 \div -100$ мкм, а менее эффективный режим генерации СК с использованием сходящегося лазерного излучения может быть реализован в широком диапазоне положений фокуса $\Delta z_f \cong 100 \div 1000$ мкм. Чтобы показать практическую значимость генерации

СК в С1, сравним соотношение энергии в видимой части СК в случае С1 и С2 $E_{SC}^{(1)}/E_{SC}^{(2)}$, измеренное для диапазона энергий лазерного импульса E = 10 - 100 мкДж и различных значений *NA* в воде и в плавленом кварце (***Рис. 11* (*в, г*)**). Энергия СК в С1 значительно больше, чем в С2, для больших значений NA и меньшей энергии лазерного импульса E (близка к порогу, необходимому для преодоления керровской нелинейностью дифракции, поглощению в плазме и дефокусировки на ней в С1). Действительно, при энергии лазерного импульса E = 10 мкДж отношение $E_{SC}^{(1)}/E_{SC}^{(2)}$ равно 40 для $NA = 0{,}1$ и падает ниже 20 для наименьшего из рассматриваемых значений NA как для воды, так и для образца плавленого кварца. Для энергий E > 40 мкДж $E_{SC}^{(1)}/E_{SC}^{(2)}$ уже меньше 10 для всех рассматриваемых NA и материалов. Абсолютное значение энергии генерируемого СК E_{sc} увеличивается с увеличением энергии лазерного импульса в рассматриваемом спектральном диапазоне. E_{sc} больше при меньшей числовой апертуре для воды, а для плавленого кварца E_{sc} существенно не изменяется при изменении числовой апертуры от 0,05 до 0,1 (***Рис. 11* (*а, б*)**).

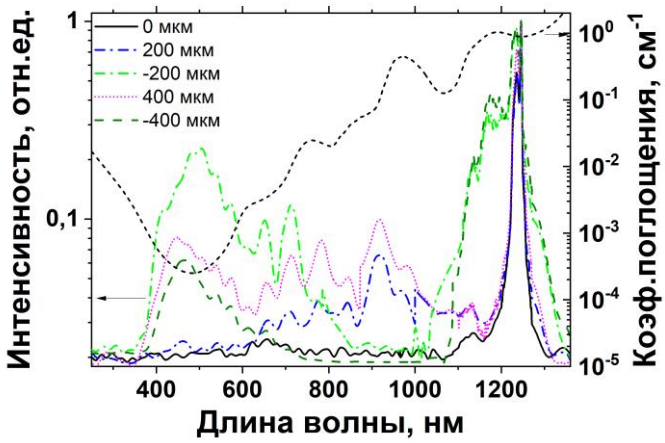


Рис. 12. Спектры СК при воздействии 100-мкДж лазерного импульса ближнего ИК-диапазона (λ=1,24 мкм) на воду для различных Δz_f в рассматриваемом спектральном диапазоне. С1 представлен зелеными и синими линиями, С2 представлен красными и розовыми линиями. Соответствующий Δz_f указан на рисунке.

Спектры СК, генерируемые лазерным импульсом с энергией 100 мкДж в кювете с водой в С1 и С2 при $NA = 0{,}1$, были измерены, чтобы показать распределение энергии СК в видимой области спектра (см. ***Рис. 12***). Спектр СК изменяется в зависимости от Δz_f, что иллюстрирует наблюдаемые особенности энергетических зависимостей СК (***Рис. 11* (*а, б*)**). Генерация СК подавляется за счет плазменного зеркала, когда поверхность образца находится в фокальной плоскости линзы $\Delta z_f = 0$ (черная линия на ***Рис. 12***), и измеренная энергия видимой части СК E_{sc} также близка к нулю. В случае С1 ($\Delta z_f < 0$) наибольшие амплитуды спектральных составляющих в видимом диапазоне частот достигаются при $\Delta z_f = 200$ мкм (***Рис. 12***, синяя линия). В соответствии с энергетической зависимостью СК амплитуды видимой части спектра СК уменьшаются при изменении Δz_f от 200 мкм до 400 мкм (***Рис. 12***, зеленая линия). В случае С2 ($\Delta z_f > 0$) видимая часть СК не развита при $\Delta z_f = 200$ мкм (***Рис. 12***, красная линия), а

спектральные амплитуды достигают более высоких значений при $\Delta z_f = 400$ мкм (***Рис. 12***, розовая линия). Максимально достигнутые амплитуды СК выше в С1, чем в С2, что соответствует измеренному соотношению энергий СК $E_{SC}^{(1)}/E_{SC}^{(2)}$ (***Рис. 11 (в)***). Поглощение воды слабо влияет на спектральную область от 300 до 500 нм (***Рис. 12***, пунктирная линия), где развиваются наиболее интенсивные коротковолновые компоненты СК. Спектральные компоненты СК на более длинных волнах сильно поглощаются водой, что приводит к нелинейно-усиленному линейному поглощению этой спектральной области СК в процессе филаментации и к дополнительным потерям энергии лазерного импульса.

При достаточно высокой числовой апертуре ($NA = 0{,}2; 0{,}5$) экспериментально измерялся спектр коротковолнового крыла СК для случаев С1 и С2 при энергии лазерного импульса E = 100 мкДж. С увеличением числовой апертуры NA эффективность генерации СК в обоих случаях снижается. В случае $NA > 0{,}2$ СК генерируется только в режиме С1. Для исследования пространственного распределения источников СК, т. е. областей высокой интенсивности вдоль филамента, регистрировалась фотоэмиссия из плазменного канала для С1 и С2. Как в С1, так и в С2 плазменные каналы стартуют с границы раздела воздух-вода, а фотоэмиссия от них затухает с увеличением z. Продвигаясь дальше вдоль оси филамента (в область больших значений z), в С1 фотоэмиссионный сигнал начинает нарастать при $z \geq 2$ мм, что свидетельствует о том, что вклад керровской самофокусировки становится сильнее, чем дефокусировка и дифракция на плазме, а в С2 фотоэмиссия плазмы продолжает уменьшаться с увеличением z без формирования следующих плазменных каналов. Таким образом, в С2 не формируются дополнительные нелинейные фокусы вдоль оси филамента.

В результате, в рамках диссертационного исследования экспериментально были выявлены два режима фемтосекундной филаментации в воде. Эти режимы различаются положением кюветы с водой относительно фокальной плоскости линзы: кювета с водой располагается перед (С2) и после фокальной плоскости (С1). В С1 обнаружен узкий диапазон положений фокуса перед поверхностью воды, обеспечивающих эффективную генерацию СК. Плазменный канал в С1 длиннее, а концентрация электронов в этом канале ниже, чем в С2. В С1 энергия эффективно преобразуется в СК, распространяющийся вдоль оптической оси. Различие между С1 и С2 более четко проявляется при более жестких условиях фокусировки и меньшей энергии лазерного импульса. Если $NA > 0{,}2$, то в С2 генерация СК при более высоких энергиях отсутствует, а С1 по-прежнему обеспечивает генерацию СК в этих условиях.

1.3.2. Параметрическая генерация широкополосных импульсов среднего ИК-диапазона в кристаллах LBO и DCDA при оптимизации длины волны накачки

Генерация сверхширокополосных фемтосекундных импульсов, а также развитая в последние годы техника генерации оптического суперконтинуума в нелинейных световодах, позволяет получить излучение в спектральной области в несколько спектральных октав: от ультрафиолета до ближнего ИК [120,121]. Однако мощность таких источников мала,

спектральное распределение мощности излучения очень неоднородно и основная доля энергии суперконтинуума в силу нелинейности процесса генерации обычно сдвинута в синюю область спектра относительно длины волны возбуждающего импульса. Вместе с тем, задача получения мощного широкополосного излучения в ИК-области спектра (особенно с шириной спектра в октаву и больше) является весьма актуальной в задачах метрологии, усиления предельно-коротких импульсов и в перспективных задачах генерации одиночных аттосекундных импульсов [122–124].

Длины волн традиционных источников накачки фемтосекундных усилителей – титан-сапфирового, неодимового и иттербиевого лазеров и их гармоник – не позволяют реализовать такой широкополосный режим коллинеарного ПУ в большинстве эффективных нелинейно-оптических кристаллов. Исключение составляет лишь кристалл BiBO с накачкой излучением титан-сапфирового лазера на длине волны 780 нм [125,126]. Достичь реализации группового синхронизма взаимодействующих импульсов в ПУ с накачкой «стандартным» фемтосекундным лазером можно искусственным образом, применяя неколлинеарную схему взаимодействующих волн, на основе которой достигнуты выдающиеся результаты, приведшие к генерации рекордно-коротких световых импульсов в видимой области спектра [127,128]. Увеличить ширину полосы усиления коллинеарного ПУ в области длин волн, близкой к вырожденному режиму, можно также при использовании наклонных фронтов взаимодействующих волн [129], углового ахроматизма усиливаемого пучка [130] и широкополосной чирпированной накачки [131].

Вместе с тем, коллинеарная схема ПУ более предпочтительна с практической точки зрения, особенно в случае маломощных остро сфокусированных пучков. Для увеличения полосы усиления в ПУ коллинеарной геометрии возможно оптимизировать длину волны накачки [132,133]. Изменяя длину волны накачки для определенного нелинейно-оптического кристалла, можно подобрать такую спектральную область, в которой, в силу специфики изменения показателя преломления кристалла с длиной волны, разность групповых скоростей всех взаимодействующих импульсов будет минимальной, а, следовательно, полоса усиления максимальной [132] даже в коллинеарной геометрии. Отметим, что сверхширокие полосы параметрической люминесценции при возбуждении импульсом основного излучения и второй гармоники пикосекундного неодимового лазера наблюдались еще в конце 70-х – в начале 80-х годов в кристаллах KDP и в ниобате лития [134], однако все возможности сверхширокополосного ПУ как источника стабильного оптического суперконтинуума ультракороткой длительности смогли реализоваться в полной мере только с появлением высокостабильных источников фемтосекундных импульсов.

Расчеты спектральной ширины синхронизма ПУ, опубликованные в [122,125,133], а также проведенные в рамках выполнения диссертационного исследования, показывают, что в целом ряде нелинейно-оптических кристаллов можно реализовать очень широкие полосы усиления вплоть до октавы в ближней ИК-области спектра, используя коллинеарную схему ПУ и оптимизируя только длину волны источника накачки («magic wavelength»). В ***Таблица 3***

приведены оптимальные длины волн накачки, при которых реализуется режим сверхширокополосного параметрического усиления в ближней ИК-области спектра в ряде нелинейно-оптических кристаллов. Данные взяты из работ [125,133] и дополнены собственными расчетами.

Таблица 3. Список кристаллов, в которых возможно сверхширокополосное параметрическое усиление в ближней ИК-области спектра при оптимальной длине волны накачки.

Кристалл	**Оптимальная длина волны накачки, нм**	**Спектральная область усиления, нм***	**Δλ / λ, %**	**d_{eff}, пм/В**	**Углы синхронизма θ, φ**	**Возможный источник накачки**
KDP	475	780-1250	47	0,27	41,3; 45	ПГС, ВГ Nd:YAG @946 нм
DKDP	560	920-1430	45	0,2	36,0; 45	ПГС, лазер на красителе
CDA	570	950-1420	40	0,39	80,1; 45	ПГС, лазер на красителе
DCDA	630	1000-1610	43	0,35	70,5; 45	ВГ Cr:Forsterite
BBO	700-720	950-2240	90	2,0	20,0; 90	Ti:Sa , рубиновый лазер
	716	1121-1982	56			
	665	982-2060	71		20,7	ВГ Nd:YAG
LBO	585	920 -1560	49	0,8	90; 1.4	ПГС, лазер на красителе
	599	944-1625	53			
	585	872-1780			90; 4.5	
CLBO	600-620	910-1740	70	0,33	28; 45	ВГ Cr:Forsterite
	629	995-1710	56			
BiBO	800	1200-2100	67			Ti:Sa
$LiIO_3$	920	1250-3200	90	1,2	19,5	ПГС, Nd:YAG @946 нм
	970	1609-2940	58			
	970	1410-3100			19,2	
LiNbO3	900	1310-2820	72	4	45	ПГС, Ti:Sa
	949	1690-2166	25			

* для кристалла оптимальной толщины.

Как видно из ***Таблица 3***, для параметрических усилителей на кристаллах DCDA и CLBO, а также частично и для LBO, длина волны второй гармоники фемтосекундного хром-форстеритового лазера (620–630 нм) близка к оптимальной длине волны накачки.

Целью данной части диссертационного исследования являлось экспериментальное исследование режима сверхширокополосного параметрического усиления в вышеуказанных кристаллах при инжекции суперконтинуума в область перестройки сигнальной волны и при

накачке параметрического усилителя излучением второй гармоники фемтосекундного хром-форстеритового лазера (620 нм).

В ***Таблица 4*** приведены расчетные параметры широкополосных усилителей при накачке излучением с длиной волны второй гармоники лазера на хром-форстерите (620 нм), а на ***Рис. 13*** приведены соответствующие контуры спектральной ширины полосы усиления.

Таблица 4. Расчетные параметры параметрических усилителей с накачкой излучением второй гармоники лазера на хром-форстерите (длина волны 620 нм).

Кристалл	**Толщина кристалла, мм**	**Порог пробоя ГВт/см^2 (для 10 нс)**	d_{eff}, **пм/В**	**Инкремент усиления на проход при** $I = I_{max}$	**Диапазон усиления, нм**	**Полоса усиления, см$^{-1}$**	**Предельная длительность усиливаемого импульса, период колебаний**
DCDA	10	0,3	0,37	7,5	1015-1600	3700	2,0
LBO	2	4	0,83	11,2	1040-1550	3000	2,5
CLBO	2	2,5	0,36	4,3	960-1750	4500	1,6

Контуры спектральной ширины полосы усиления ПУ строился по точкам. Для каждой длины волны рассчитывалась спектральная ширина синхронизма исходя из разности групповых скоростей сигнального и холостого импульсов, при этом диапазон изменения длин взаимодействующих волн ограничивался только условиями углового синхронизма взаимодействия при заданной толщине кристалла ПУ в заданном направлении волнового вектора. Инкремент усиления, приведенный в пятой колонке, вычислялся при величине интенсивности накачки I_{max}, близкой к порогу пробоя для каждого кристалла.

Результаты расчетов показывают, что ширина полосы ПУ для всех кристаллов при данной длине волны накачки позволяет эффективно усилить световой импульс с длительностью, соответствующей двум периодам световых колебаний в центре полосы усиления (1240 нм). Пунктиром на каждом графике указан масштаб спектра импульса длительностью 2 периода световых колебаний на центральной длине волны 1240 нм (3600 см$^{-1}$ по обеим осям). Уменьшением толщины кристалла DCDA не удается достичь еще большей ширины полосы усиления, так как полоса прозрачности этого водорастворимого кристалла ограничивается с длинноволновой стороны спектра значениями 1,45–1,65 мкм вследствие сильного поглощения остаточных OD радикалов. Это принципиально ограничивает полосу усиления ПУ на этом кристалле и делает потенциально невозможным усиление импульса короче двух световых периодов даже при оптимальной длине волны накачки и очень малой толщине кристалла.

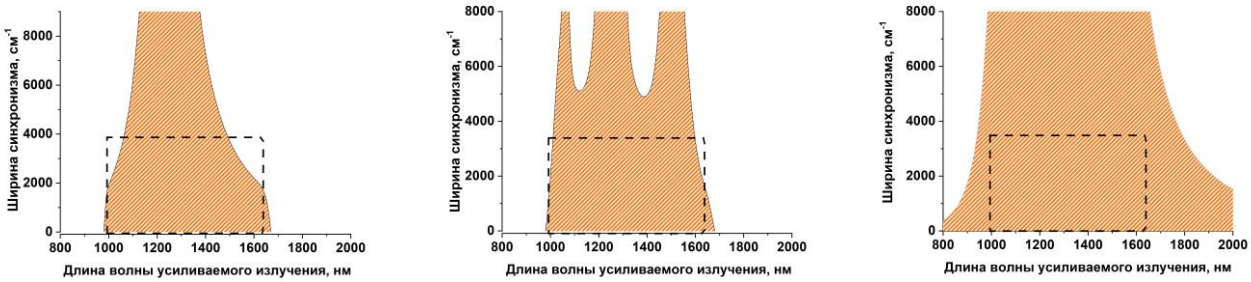


Рис. 13. Расчетные контуры спектральной ширины параметрического усиления на различных кристаллах при накачке излучением с длиной волны 620 нм: (а) кристалл LBO толщиной 2 мм, (б) кристалл DCDA толщиной 10 мм, (в) кристалл CLBO толщиной 1,6 мм.

Схема экспериментальной установки для изучения генерации сверхширокополосных импульсов приведена на ***Рис. 14*** и представляет собой однопроходовый параметрический усилитель бегущей волны с импульсной накачкой и широкополосной инжекцией в область перестройки сигнальной волны. Инжектируемым излучением являлся импульс суперконтинуума, генерируемый в пластинке из сапфира частью импульса (3 мкДж) основного излучения лазера на хром-форстерите (длина волны 1240 нм, длительность импульса 110 фс). Спектр суперконтинуума имел максимум на 1240 нм и простирался от 430 нм до 1500 нм. С помощью дихроичного зеркала и цветных фильтров СС4 и ФС6 из этого спектра вырезалась область 750–1150 нм, при этом также удалось добиться относительно равномерного распределения энергии суперконтинуума по спектру. Далее пучок инжекции с помощью дихроичного зеркала совмещался коллинеарно с пучком накачки 620 нм и направлялся в кристалл ПУ. Интенсивность накачки составляла 50–120 ГВт/см^2, наблюдение спектров усиленного излучения в коротковолновой области в процессе настройки и юстировки ПУ осуществлялось спектрометром с InGaAs линейкой (модель SDH-IV, Solar LS, спектральное разрешение 4 нм, область чувствительности 900–1675 нм); окончательно спектр генерируемого сверхширокополосного импульса измерялся либо при усреднении по 50 реализациям, либо по точкам с помощью сканирующего монохроматора с PbS детектором (спектральное разрешение 6 нм, область чувствительности 800–2750 нм).

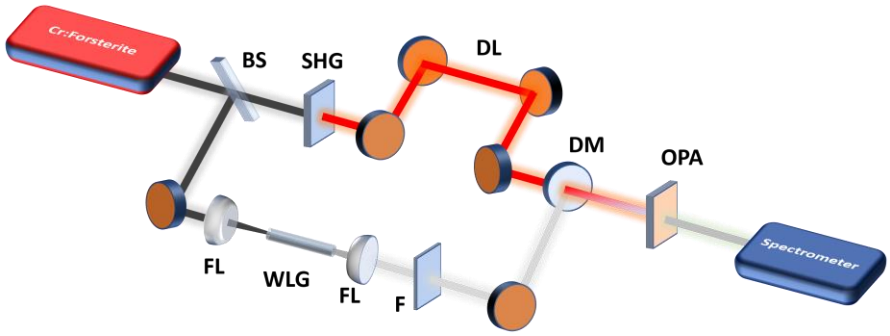
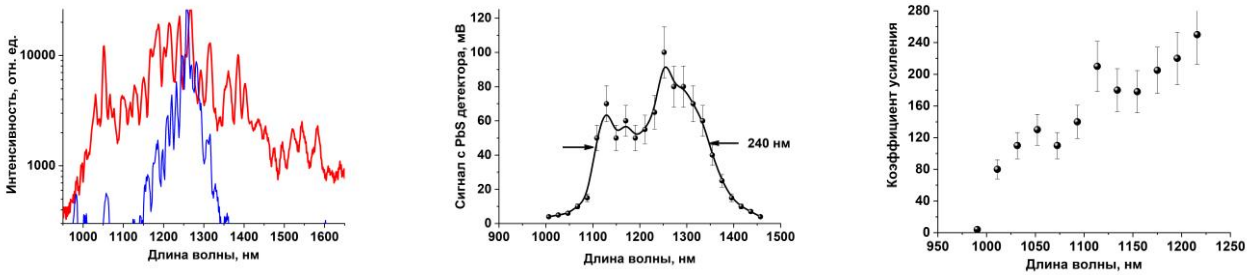


Рис. 14. Схема экспериментальной установки. BS делитель пучка; DL линия задержки; DM дихроичное зеркало; WLG сапфировая пластина; FL фокусирующие линзы; F светофильтр.

В первой серии экспериментов использовались кристаллы LBO первого типа (o-ee взаимодействие) размерами 5×5×5 мм, и 5×5×4 мм, вырезанные вдоль оси X ($\theta=90^0$, $\varphi=0^0$), без просветляющего покрытия. Кристалл ПУ слегка поворачивался в плоскости XZ в диапазоне

углов θ = 86^0–90^0 и в плоскости XY в диапазоне углов 0^0–3^0 для получения максимально широких спектров усиливаемого излучения. Кристаллы помещались в перетяжку пучка при фокусировке его линзой с фокусным расстоянием $f = 150$ мм. При настройке на точный синхронизм и при отсутствии пробного сигнала из обоих кристаллов наблюдалось усиленное излучение суперфлуоресценции. После этого энергия накачки уменьшалась до порога возникновения флуоресценции, открывался оптический тракт затравочного импульса и проводились измерения спектров усиленного суперконтинуума. Типичный спектр фемтосекундного суперконтинуума на выходе ПУ, измеренный за одну лазерную вспышку приведен на ***Рис. 15 (а)***, спектральная ширина его составляла 200–350 нм, что хорошо соотносится с расчетом для 5 мм кристалла.



а) *б)* *в)*

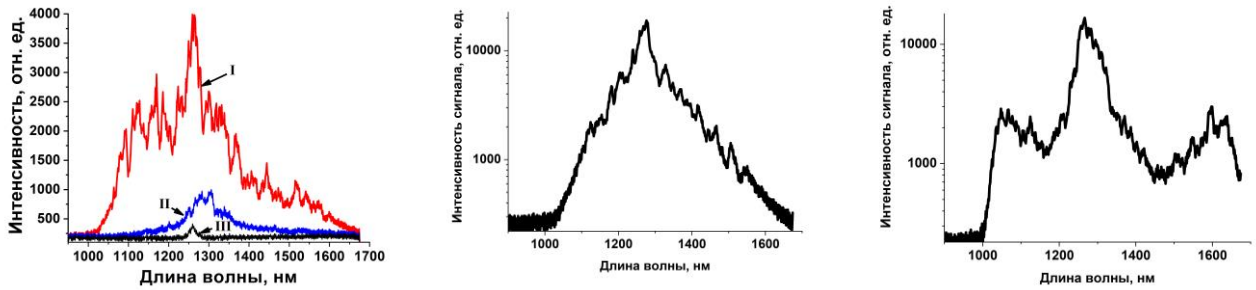
Рис. 15 (а) Спектр выходного излучения ПУ на основе кристалла LBO(I) толщиной 4 мм. Усиление в сигнальной ветви ПУ составляло 80-150. Детектор – InGaAs спектрометр с волоконным входом и диапазоном чувствительности 900-1675 нм. Синим цветом выделен спектр суперфлуоресценции из этого же кристалла при большей энергии накачки и в отсутствии усиливаемого импульса. (б) Усредненный спектр излучения на выходе параметрического усилителя на кристалле LBO толщиной 5 мм (θ=88^0, φ=0^0) с инжекцией суперконтинуума в область сигнальной волны. Накачка излучением с длиной волны 620 нм, усиление в максимуме 250. Измерение спектра – сканирующий монохроматор с PbS детектором, усреднение по 20 импульсам в каждой точке. (в) Спектральный профиль коэффициента усиления в кристалле LBO толщиной 5 мм в области сигнальной волны.

На ***Рис. 15 (б)*** приведен спектральный контур усиления в сигнальной ветви ПУ на основе кристалла LBO толщиной 5 мм. Коэффициент усиления на каждой длине волны в области 900–1220 нм измерялся как отношение двух амплитуд сигналов с фотоприемника при открытой и закрытой накачке ПУ. При такой ширине полосы усиления в сигнальной волне ширина полосы усиления в холостой волне будет составлять 30% от несущей, т. е. даже такой длинный кристалл позволит усиливать импульсы длительностью до 3-х световых периодов на длине волны 1,4 мкм.

При внесении с помощью линии задержки небольшого рассогласования во времени моментов прихода импульсов накачки и суперконтинуума на вход в кристалл ПУ в спектрах усиленного излучения возрастала интенсивность коротковолновой части. Можно было найти такое положение линии задержки, когда почти весь спектр усиленного импульса сосредотачивался в диапазоне 950–1350 нм. При энергии импульса накачки 60 мкДж (интенсивность накачки в кристалле около 120 ГВт/$см^2$) эффективность преобразования ПУ составляла 4–6%, длительность импульсов суперконтинуума, измеренная на длине волны 1,32 мкм автокорреляционным методом, составила 115±5 фс, т. е. импульсная мощность суперконтинуума достигала 20 МВт (или спектральная плотность энергии в нем составила 5–7 нДж/нм). Заметим также, что длина волны накачки 620 нм, используемая в данных

экспериментах, была близка, но всё же не являлась оптимальной для ПУ на основе кристалла LBO (расчетная длина волны составляет 585 нм).

Во второй серии экспериментов были использованы кристаллы DCDA с 90% степенью дейтерирования толщиной 8 мм и 15 мм, вырезанные под углом 74^0 к оптической оси (e-oo взаимодействие). Излучение накачки с длиной волны 620 нм фокусировалось в кристаллы линзой с фокусным расстоянием $f = 200$ мм, плотность мощности накачки поддерживалась немного ниже порога возникновения суперконтинуума из объема кристалла (что контролировалось при повороте кристалла на 90^0 в положение $o - ee$, где синхронизм ПУ отсутствует). Размер перетяжки широкополосного сигнала инжекции превышал примерно в 2 раза размер перетяжки пучка накачки. В таких условиях коэффициент усиления пробного сигнала в сигнальной ветви усиления ПУ составил 100–200 с одновременной генерацией широкополосного излучения на холостой длине волны. Типичный спектр излучения ПУ, зарегистрированный спектрометром на основе InGaAs сенсора за один лазерный импульс, приведен на ***Рис. 16 (а)***.



(а) *(б)* *(в)*

Рис. 16 (а) I – спектр излучения на выходе ПУ на кристалле DCDA ($\theta = 71^0$, $\varphi = 45^0$, толщина 8 мм) с накачкой излучением второй гармоники хром-форстеритового лазера (длина волны 620 нм), зарегистрированный InGaAs спектрометром; II – спектр излучения параметрической суперфлуоресценции (пробный пучок закрыт); III – спектр пробного излучения в масштабе 10:1. В эксперименте спектральное распределение в пробном излучении выравнивалось с помощью дихроичного зеркала и цветных фильтров, но оставался пик на 1260 нм, который заметен и в усиленном спектре. Спектры широкополосных усиленных спектров в кристалле DCDA длиной 15 мм. Время задержки импульса накачки по отношению к пробному импульсу 50 фс (б), -50 фс (в).

Спектральная ширина, амплитуда и форма широкополосных спектров сильно зависели от угла поворота кристалла относительно угла фазового синхронизма (в диапазоне $\pm\ 1.5^0$) и от задержки между импульсом накачки и входным импульсом суперконтинуума, имевшим небольшой положительный чирп несущей частоты. На ***Рис. 16 (б, в)*** представлены два спектра выходного излучения ПУ на кристалле DCDA толщиной 15 мм при двух различных положениях оптической линии задержки (± 50 фс): в одном случае (***Рис. 16 (б)***) импульс накачки лучше совпадал с коротковолновой частью импульса усиливаемого суперконтинуума, во втором случае (***Рис. 16 (в)***) – с длинноволновой. Эффективность преобразования излучения накачки в широкополосный импульс в ПУ на кристалле DCDA была около 1–2%, длительность параметрически усиленного импульса соответствовала длительности импульса накачки (110 фс).

Таким образом, использование импульсов второй гармоники фемтосекундного хром-форстеритового лазера с длиной волны 620 нм в качестве излучения накачки параметрических

усилителей на основе кристаллов DCDA и LBO позволило приблизиться к режиму группового синхронизма взаимодействующих импульсов в данных кристаллах и реализовать эффективное широкополосное усиление и генерацию фемтосекундных континуумов в ближней ИК-области спектра с импульсной мощностью до 20 МВт и спектральной шириной до 450 нм.

§1.4. Параметрические генераторы гигаваттного уровня мощности среднего ИК-диапазона с накачкой хром-форстеритовым лазером

Быстрое развитие лазерных источников сверхкороткой длительности в среднем инфракрасном диапазоне с высокой пиковой мощностью обусловлено многочисленными приложениями в нелинейной оптике средней ИК-области, наноплазмонике и физике сверхсильного светового поля. Эти устройства с энергией всего в несколько десятков мкДж в импульсе позволяют исследовать нелинейно-оптические явления в туннельном режиме ионизации [135], открывают путь для генерации изолированных аттосекундных импульсов [136], а также для наблюдения новых эффектов генерации высоких оптических гармоник (ГОГ) [137] и филаментации [19,138]. Кроме того, в последние годы появилась перспектива получения мощных сверхкоротких импульсов в среднем ИК-диапазоне с помощью усилителя на активной среде Fe:ZnSe с оптической накачкой [87], имеющей полосу усиления 3,8–5,1 мкм. Чтобы реализовать весь потенциал широкополосного усилителя, желательно иметь короткий затравочный импульс с шириной спектра не менее ширины полосы усиления кристалла (600 $см^{-1}$) [68]. В силу этого, поиск схемных решений для реализации эффективного источника широкополосных фемтосекундных ИК-импульсов является актуальной задачей.

В настоящее время импульсы среднего ИК-диапазона в основном создаются оптическими параметрическими усилителями и генераторами. Такие устройства, обычно накачиваемые титан-сапфировым лазером и основанные на кислородосодержащих (оксидных) кристаллах, обеспечивают эффективную генерацию (> 3%) около 3,0–3,5 мкм [139,140]. Для оксидных кристаллов не только верхний предел прозрачности в 5 мкм, но и возрастающее рассогласование групповых скоростей (ДГС) не позволяют достичь более длинных волн с высокой эффективностью преобразования. Другие коммерчески доступные нелинейно-оптические материалы, которые более прозрачны в среднем ИК-диапазоне, не могут накачиваться вблизи 800 нм из-за линейного или двухфотонного поглощения и отсутствия фазового синхронизма. Поэтому эти материалы могут использоваться только в схеме каскадной генерации разностной частоты, КПД которой в целом невысок (~ 1%) [101].

С учетом этого появляется тенденция использования длинноволновой накачки. На сегодняшний день длинноволновые источники накачки, такие как 1030 нм Yb:KGW-лазер [102], ~ 2 мкм Ho:YLF [141], Ho:YAG [142] и более сложная схема на основе параметрического усиления чирпированных импульсов [143], использовались для генерации и проверки принципов получения широкополосного излучения свыше 4 мкм. По сравнению с этими источниками лазерная система на хром-форстерите была незаслуженно упущена, поскольку она также

предлагает достаточно большую длину волны 1,24 мкм, открывая путь для прямой накачки некоторых неоксидных кристаллов и предлагая высокую выходную мощность.

1.4.1. Теория и численное моделирование процесса параметрического усиления

Параметрическое усиление света является процессом трехволнового смешения в подходящем нелинейно-оптическом кристалле с квадратичной нелинейностью ($\chi^{(2)} \neq 0$), где мощное высокочастотное (коротковолновое) излучение накачки на частоте ω_p усиливает низкочастотное (длинноволновое) излучение сигнальной волны на частоте ω_s, при этом генерируется холостая волна на частоте ω_i ($\omega_i < \omega_s < \omega_p$) и выполняются следующие законы сохранения энергии и импульса: $\hbar\omega_p = \hbar\omega_s + \hbar\omega_i$; $\hbar\vec{k}_p = \hbar\vec{k}_s + \hbar\vec{k}_i$. Таким образом, в процессе параметрического усиления энергия от мощной волны накачки при фиксированной частоте (длине волны) передается к слабоинтенсивной сигнальной волне с переменной частотой (перестраиваемой длиной волны), тем самым генерируя холостую волну.

Для достижения условия фазового согласования взаимодействующих волн в процессе прямого параметрического усиления требуется использование анизотропных нелинейно-оптических кристаллов. Различают I-тип $\{o_s + o_i \rightarrow e_p\}$ и II-тип $\{(e_s + o_i \rightarrow e_p)$ или $(o_s + e_i \rightarrow e_p)\}$ преобразования по тому, с разными или одинаковыми поляризациями входят сигнальная и холостая волна в процесс трехволнового смешения. Вне зависимости от типа преобразования достижение условий фазового согласования чаще всего осуществляется подбором угла θ_m между волновым вектором k_j распространяющегося импульса и оптической осью нелинейного кристалла, называемого углом фазового синхронизма (угловой синхронизм). Перестройка длин волн генерируемых импульсов обычно осуществляется поворотом кристалла, т. е. изменением угла синхронизма. В ряде случаев удобно пользоваться так называемым 90-градусным или некритическим угловым синхронизмом, тогда перестройка осуществляется изменением температуры кристалла.

Отстройка от условий критического фазового синхронизма ($\Delta\vec{k} = \vec{k}_p - \vec{k}_s - \vec{k}_i = 0$) позволяет оценить ширины углового ($\Delta\theta$), температурного (ΔT) и фазового синхронизма ($\Delta\nu$), как допустимую угловую ширину взаимодействующих пучков, допустимый диапазон температур и допустимую ширину спектра, при которых для данного параметрического коэффициент усиления как функция фазовой расстройки $G(\Delta k) = \frac{1}{4}e^{2g(\Delta k)L}$ уменьшится в два раза, где $g(\Delta k) = \sqrt{\Gamma^2 - \left(\frac{\Delta k}{2}\right)^2}$. При широкополосном параметрическом усилении важную роль играет ширина фазового синхронизма, которая определяется как $\Delta\nu = \frac{2(ln2)^{1/2}}{\pi}\left(\frac{\Gamma}{L_{eff}}\right)^{1/2}\frac{1}{\left|\frac{1}{v_{gs}} - \frac{1}{v_{gi}}\right|}$,где $\delta_{si} = \left|\frac{1}{v_{gs}} - \frac{1}{v_{gi}}\right|$ – расстройка групповых скоростей сигнальной и холостой волн; $\Gamma^2 = \frac{8\pi^2 d_{eff}^2 I_p}{n_i n_s n_p \lambda_i \lambda_p \varepsilon_0 c}$ – коэффициент усиления, d_{eff} – коэффициент эффективной нелинейности, I_p – интенсивность накачки, n_i – показатель преломления, L - длина кристалла.

Для получения лазерных импульсов с гауссовой огибающей длительностью ~100 фс ширина фазового синхронизма должна составлять ~150 $см^{-1}$ (4,4 ТГц) . Расстройка групповых скоростей между накачкой и сигнальной/холостой волной в первом приближении ограничивает толщину кристалла минимальной групповой длиной взаимодействующих импульсов $L_{eff} = min\{L_{gk}\}$, где $L_{gk} = \frac{\tau}{\delta_{pk}} = \frac{\tau}{\left|\frac{1}{v_{gp}} - \frac{1}{v_{gk}}\right|}$, где $k = i, s$, при которой параметрическое усиление будет происходить с необходимой шириной фазового синхронизма. Таким образом, в диссертации критерием выбора нелинейно-оптического кристалла для наиболее эффективного параметрического преобразования в заданном диапазоне длин волн служил параметр качества $FOM = {d_{eff}}^2 {L_{eff}}^2 / n^3$. Ниже приведена таблица расчетных параметров параметрических усилителей в полосе усиления халькогенидной активной среды Fe:ZnSe (4–5 мкм) при накачке основным излучением хром-форстеритового лазера (см. ***Таблица 5***).

Таблица 5. Расчетные параметры параметрических усилителей на центральной длине волны 4,5 мкм с накачкой основным излучением лазера на хром-форстерите (длина волны 1240 нм, длительность импульса τ_1 ~100 фс и τ_2 ~200 фс).

Кристалл	**Тип взаимодействия**	d_{eff}, **пм/В**	**Ориентация и углы синхронизма**	**Групповая длина (L_{ps}/ L_{pi}) для τ_2 (τ_1), мм**	**$\Delta\nu$ для кристалла длиной L_{eff}, $см^{-1}$**	***FOM* для τ_2 (τ_1)**
HGS	e-oo (I) e-oe (II)	26 32,2	θ = 46 θ = 57	2,1 / 0,9 3,3 / 0,7	260 159	**37,1 (9,3)** 34 (8,5)
LGS	e-oo (I) e-oe (II)	-4,2 5,4	XZ θ = 47,3 XY θ = 90	7,5/3,1 30/0,5	306 626	**20,4 (5,1)** 0,9 (0,22)
LGSe	e-oo (I) e-oe (II)	-7,3 8,8	XZ θ = 50,3 XY θ = 90	3,1/1,3 5/0,9	268 208	**8,5 (2,1)** 5,7 (1,43)
AGS	e-oo (I) e-oe (II)	10,4 15,1	θ = 40 θ = 51	2,2 / 1 3,3 / 0,7	290 150	**7,32 (1,83)** 7,79 (1.95)
LIS	e-oo (I) e-oe (II)	-4,5 6,5	XZ θ = 40 XY θ = 90	3,7 (1,85) / 1,7 (0,85) 8,5 / 1,1	265 146	**7,5 (1,9)** 6,2 (1,6)
KTA	o-eo (II)	-2,0	XZ θ = 44	2,1 (1,05) / 1,8 (0,9)	1065	**2,6 (0,65)**
LISe	e-oo (I)	-5,0 10,3	XZ θ = 38,8 XY θ = 90	2 / 0,9 3,1 / 0,7	272 197	1,83 (0,46) 4,8 (1,2)
AAS	e-oo (I) e-oe (II)	24,3 15,4	θ = 22,5 θ = 27	1,2 / 0,5 1,7 / 0,3	280 160	7,1 (1,78) 1 (0,25)
$LiNbO_3$	e-oo (I)	-4	θ = 53,8	1,6 / 0,4	98	0,25 (0,06)
$LiIO_3$	e-oo (I)	1,6	θ = 21	5 / 1,4	224	0,78 (0,2)

Отметим, что исходя из ***Таблица 5*** кристалл KTA позволяет генерировать в диапазоне 4–5 мкм наиболее широкополосные импульсы при невысоком FOM. С другой стороны, кристаллы

HGS, AGS, LIS, LGS, LGSe демонстрируют относительно высокий FOM при умеренно широкой полосе параметрического преобразования. Кристалл LIS в этом ряду нелинейно-оптических кристаллов является наименее перспективным по причине наименьшего FOM, а кристаллы HGS стали доступны коммерчески только в 2023 г., поэтому в диссертации исследования проводились с использованием кристаллов KTA, AGS и LGS. Необходимо отметить, что в отсутствие поглощения и паразитного преобразования (допустим, во вторую гармонику) процесс параметрического преобразования развивается так, что выполняется закон Мэнли-Роу $\frac{1}{\omega_i}\frac{dI_i}{dz} = \frac{1}{\omega_s}\frac{dI_s}{dz} = -\frac{1}{\omega_p}\frac{dI_p}{dz}$, где I_n – интенсивность каждой из взаимодействующих волн. Важным следствием этого закона сохранения энергии является то, что при «отстройке» от вырожденного режима преобразования $\left(\omega_s = \omega_i = {}^{\omega_p}/_2\right)$, интенсивность сигнальной и холостой волн уменьшается. Поэтому для того, чтобы сохранять высокой эффективность параметрического преобразования в средний/дальний ИК диапазон длин волн, необходимо использовать источники накачки в ближнем/среднем ИК-диапазоне соответственно. Использование хром-форстеритового фемтосекундного лазера с центральной длиной волны 1,24 мкм, основного излучения (4,4–5 мкм) и второй гармоники (2,2–2,5 мкм) разработанных в рамках диссертационного исследования (см. ***Глава 2***) фемтосекундных лазерных источников на основе Fe:ZnSe/Fe:CdSe удовлетворяет этим требованиям, что позволяет в перспективе расширить диапазон генерации до дальнего ИК.

После проведения «первичного отбора» нелинейно-оптических кристаллов для преобразования в средний ИК-диапазон с использованием хром-форстеритовой накачки, для определения теоретически достижимой эффективности преобразования в сигнальную и холостую волны в условиях существования сопутствующих нелинейно-оптических процессов и сравнения схем параметрического усиления на основе различных нелинейно-оптических кристаллов, в диссертации проводилось численное моделирование, основанное на решении системы укороченных уравнений, описывающих трехволновое взаимодействие. Процесс параметрического усиления рассматривался в приближениях медленно меняющихся амплитуд и плоских волн во втором приближении теории дисперсии. Используемая модель учитывает нелинейные процессы второго порядка, отвечающие за параметрическое усиление и генерацию второй гармоники, а также процессы третьего порядка – фазовую самомодуляцию и кроссмодуляцию. Процесс ПУ в таком случае описывается системой укороченных уравнений:

$$
\begin{cases}
\frac{dA_s}{\mathrm{dz}} + \beta_{1s}\frac{\partial A_s}{\partial t} + i\frac{\beta_{2s}}{2}\frac{\partial^2 A_s}{\partial t^2} = -i\frac{\omega_s}{c}\left[\left(\frac{d_{\mathrm{eff}}}{n_s}A_p A_i^* + n_{2s}^s|A_s|^2A_s + 2n_{2s}^x|A_i|^2A_s + 2n_{2s}^x|A_p|^2A_s\right)e^{-i\Delta \mathrm{kz}} + \frac{d_{eff\_s\_SH}A_s^*A_{s\_SH}}{n_s}e^{-i\Delta k_{s\_SH}z}\right], \\
\frac{dA_i}{\mathrm{dz}} + \beta_{1i}\frac{\partial A_i}{\partial t} + i\frac{\beta_{2i}}{2}\frac{\partial^2 A_i}{\partial t^2} = -i\frac{\omega_i}{c}\left[\left(\frac{d_{\mathrm{eff}}}{n_i}A_p A_s^* + n_{2i}^s|A_i|^2A_i + 2n_{2i}^x|A_s|^2A_i + 2n_{2s}^x|A_p|^2A_i\right)e^{-i\Delta \mathrm{kz}} + \frac{d_{eff\_i\_SH}A_i^*A_{i\_SH}}{n_i}e^{-i\Delta k_{i\_SH}z}\right], \\
\frac{dA_p}{\mathrm{dz}} + \beta_{1p}\frac{\partial A_p}{\partial t} + i\frac{\beta_{2p}}{2}\frac{\partial^2 A_p}{\partial t^2} = -i\frac{\omega_p}{c}\left(\frac{d_{\mathrm{eff}}}{n_p}A_s A_i + n_{2p}^s|A_s|^2A_p + 2n_{2s}^x|A_i|^2A_p + 2n_{2s}^x|A_p|^2A_p\right)e^{i\Delta \mathrm{kz}}, \\
\frac{dA_{s\_SH}}{\mathrm{dz}} + \beta_{1s\_SH}\frac{\partial A_{s\_SH}}{\partial t} + i\frac{\beta_{2s\_SH}}{2}\frac{\partial^2 A_{s\_SH}}{\partial t^2} = -i\frac{\omega_{s\_SH}}{c}\frac{d_{eff\_s\_SH}}{n_{s\_SH}}A_s A_s e^{-i\Delta k_{s\_SH}z}, \\
\frac{dA_{i\_SH}}{\mathrm{dz}} + \beta_{1i\_SH}\frac{\partial A_{i\_SH}}{\partial t} + i\frac{\beta_{2i\_SH}}{2}\frac{\partial^2 A_{i\_SH}}{\partial t^2} = -i\frac{\omega_{i\_SH}}{c}\frac{d_{eff\_i\_SH}}{n_{i\_SH}}A_i A_i e^{-i\Delta k_{i\_SH}z},
\end{cases}
\tag{5}
$$

где A_s, A_i, A_p – амплитуды сигнальной волны, холостой волны и накачки, $\beta_1 = \frac{dk}{d\omega} = \frac{1}{v_g}$ – коэффициент дисперсии 1-ого порядка, равный обратной групповой скорости, $\beta_2 = \frac{d^2k}{d\omega^2}$ – коэффициент дисперсии 2-ого порядка, определяющий изменение длительности импульсов за счет дисперсии групповых скоростей, $\omega_{s,i,p}$ – частоты взаимодействующих волн, $n_{s,i,p}$ – показатель преломления, n_2^s, n_2^x – нелинейные показатели преломления, определяющие процессы фазовой самомодуляции и кроссмодуляции, c – скорость света в вакууме, Δk – волновая расстройка.

Для численного решения приведенной системы уравнений использовался метод конечных разностей. После аппроксимации уравнений системы (5) системой алгебраических уравнений с трехдиагональной матрицей применялся метод прогонки. При моделировании соблюдались следующие начальные и граничные условия:

$$\begin{aligned} E_m(z,t) &= \frac{1}{2} E_{0m} e^{-2\ln 2(\frac{t}{\Delta t_m})^2} e^{i\omega_m t} + c.c, \\ E_m(t = -\frac{T}{2}) &= 0, \\ E_m(t = \frac{T}{2}) &= 0, \end{aligned} \tag{6}$$

где индексы $m = s, i$ и p соответствуют сигнальной волне, холостой волне и накачке, Δt_m – длительность импульса, T – размер временного окна.

1.4.2. Параметрическое усиление света в кристалле KTA с накачкой основным излучением и второй гармоникой хром-форстеритового лазера: аномалия перестроечной кривой вблизи края поглощения

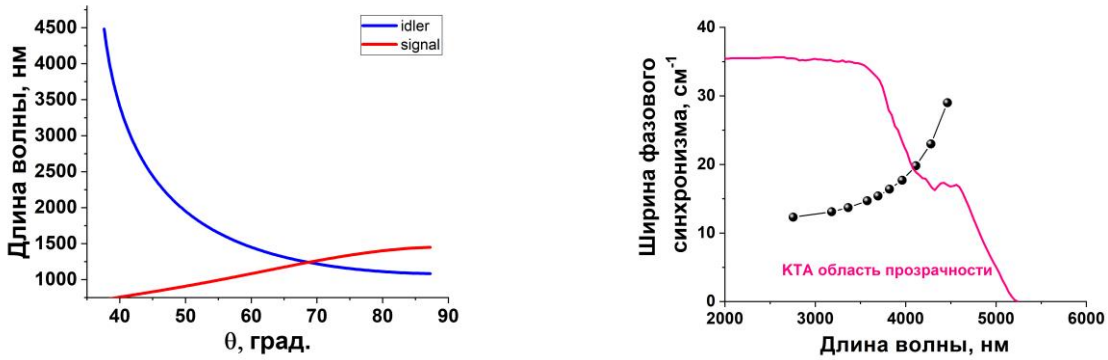
Эффективным методом генерации фемтосекундных ИК-импульсов в диапазоне длин волн 3–5 мкм является прямая параметрическая генерация, когда разность длин волн импульса накачки и сигнального импульса мала [67]. В этом случае фемтосекундный параметрический усилитель (ПУ) позволяет достичь большей энергии ИК импульса по сравнению с генераторами разностной частоты (ГРЧ), однако широкополосная генерация фемтосекундного ПУ в невырожденном режиме может реализоваться только при удачном сочетании длин волн накачки, генерации и дисперсионных свойств кристалла [67]. Также можно искусственным образом увеличивать спектральную полосу синхронного взаимодействия УКИ в ПУ, используя либо неколлинеарную схему взаимодействующих импульсов [127], либо подстраивая длину волны накачки в коллинеарной схеме [133].

Поиск широких полос усиления в коллинеарном ПУ вдали от вырожденного режима сводится к довольно простой процедуре. Если посмотреть на перестроечную зависимость ПУ (т. е. на график в координатах длина волны – угол поворота кристалла или длина волны – температура кристалла), то на них всегда можно наблюдать максимальную производную длины волны от угла (температуры) вблизи вырожденного режима (вертикальный участок перестроечной зависимости при равенстве длины холостой и сигнальной волн), но иногда такой

же характерный вертикальный участок можно обнаружить и в области длин волн вдали от вырожденного режима. Расчет спектральной ширины синхронизма (разности групповых скоростей взаимодействующих импульсов) подтверждает, что в области длин волн таких характерных участков на перестроечной характеристике она существенно возрастает.

1.4.2.1. Накачка КТА ПУ второй гармоникой хром-форстеритового лазера

В качестве примера на ***Рис. 17*** приведены расчетные графики угловой перестроечной зависимости ***(а)*** и спектральной ширины синхронного взаимодействия ***(б)*** для ПУ на кристалле КТА о-ео взаимодействия с накачкой излучением с длиной волны 620 нм. Как видно, там, где имеется характерный вертикальный участок на перестроечной кривой (длина холостой волны 4,4 мкм), спектральная ширина синхронизма ПУ возрастает и составляет 33 $см^{-1}$ на см длины кристалла, тогда как в области длин волн, далеких от вертикальных участков, величина ее существенно меньше (12 $см^{-1}$ на длине холостой волны 2,9 мкм).



(а) *(б)*

Рис. 17 а) Угловая перестроечная характеристика ПУ на кристалле КТА второго типа взаимодействия с накачкой излучением с длиной волны 620 нм; б) расчетная спектральная полоса синхронизма ПУ для кристалла КТА (II) (о-ео) длиной 1 см с накачкой излучением 620 нм в окрестности края ИК-поглощения. Красным цветом приведена спектральная зависимость пропускания кристалла.

Такой характерный вид угловой перестроечной характеристики и эффект характерного возрастания полосы усиления в средней ИК-области при накачке излучением с длиной волны 620 нм наблюдается также в ПУ первого типа на кристаллах йодата и ниобата лития, ниобата калия и в ПУ второго типа взаимодействия на кристалле КТР и его изоморфов.

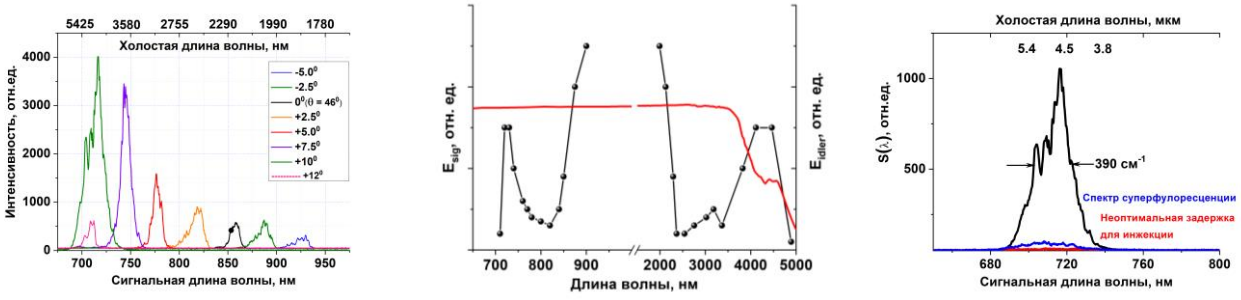
Следует отметить, что в области длин волн, близких к границе поглощения нелинейного кристалла, стандартные уравнения Селмейера, описывающие зависимость показателя преломления от длины волны, могут не совсем корректно отображать действительность, поэтому экспериментальные результаты здесь более адекватно описывают реальность, нежели численные расчеты.

В экспериментах по параметрической генерации ИК излучения использовался элемент из кристалла КТА размерами 5×5×5 мм (ООО «ЛЕА», Новосибирск), вырезанный под углом 42^0 к оси Z в плоскости XZ. Накачка кристалла осуществлялась излучением второй гармоники фемтосекундного усилителя на хром-форстерите (длина волны 620 нм, длительность импульса

110 фс, энергия импульса 90 мкДж). Излучение накачки фокусировалось в кристалл линзовым телескопом, диаметр пучка мог изменяться от 1,2 до 0,6 мм, соответственно плотность мощности накачки могла варьироваться от 70 до 280 ГВт/см^2. В качестве импульса инжекции использовалась часть излучения фемтосекундного суперконтинуума, генерируемого в 5 мм кварцевой пластинке небольшой частью импульса основного излучения хром-форстеритового лазера. Тщательным подбором уровня энергии накачки возбуждался одиночный филамент, излучение суперконтинуума которого коллимировалось, спектрально выделялось и с помощью дихроичного зеркала направлялось соосно с пучком накачки на кристалл ПУ.

В процессе настройки и измерений на выходе ПУ с помощью спектрометра в реальном времени наблюдалась область спектра 650–900 нм, соответствующая области усиления сигнальной волны. При точной угловой настройке кристалла на синхронизм и при согласовании во времени импульсов инжекции и накачки наблюдалось резкое увеличение амплитуды импульса суперконтинуума и формировался усиленный импульс сигнального излучения с одновременной генерацией ИК-импульса холостой волны. С помощью германиевой пластинки ИК-излучение холостой волны ПУ селектировалось от излучения накачки и сигнальной волны, и энергия его измерялась охлаждаемым КРТ приемником.

При отсутствии инжекции и при интенсивности накачки, превышающей 150 ГВт/см^2, из 5 мм кристалла КТА, сориентированного под углом 37^0 к оптической оси, наблюдалось интенсивное широкополосное излучение параметрической суперфлуоресценции, спектр его коротковолновой ветви, занимающий полосу от 690 до 740 нм и детектируемый в телесном угле 2×10^{-4} рад, приведен на ***Рис. 18 (в)***. Далее интенсивность накачки уменьшалась до порога возникновения параметрической флуоресценции, и на вход кристалла подавалось излучение суперконтинуума. При наличии инжекции диапазон перестройки ПГС составил 715–940 нм для сигнального импульса и, соответственно, 1,8–4,9 мкм для холостого при повороте кристалла в плоскости XZ от 37^0 до 52^0. На ***Рис. 18 (а)*** приведены спектры излучения сигнальной волны при различных углах поворота кристалла от оптической оси. При этом каждый раз оптимизировалась задержка импульса инжекции относительно импульса накачки и его расходимость.



а) *б)* *в)*

Рис. 18 (а) Спектры сигнального импульса при угловой перестройке длины волны КТА ПУ; (б) зависимость энергии импульсов холостой E_{idler} и сигнальной E_{sig} волн ПУ на кристалле КТА толщиной 7 мм. Энергия холостого импульса измерялась кремниевым приемником с почти равномерной спектральной зависимостью в диапазоне 700–850 нм, энергия холостого импульса – охлаждаемым КРТ детектором, спектральная чувствительность которого также не имела «особенностей» в диапазоне 2-6 мкм. Красным цветом приведена спектральная зависимость пропускания кристалла КТА. (в) Спектр

наиболее широкополосного сигнального импульса. Синим цветом показан спектр параметрической суперфлуоресценции из кристалла при отсутствии сигнала инжекции.

Видно, что амплитуда усиленного импульса остается почти постоянной в диапазоне перестройки 940–800 нм, но затем существенно возрастает, достигая максимума на длине волны 716 нм, и далее резко падает при длине волны короче 710 нм, что обусловлено возрастанием при этом поглощения для холостой волны. Соответственно, амплитуда ИК-импульса холостой волны, измеренная охлаждаемым КРТ приемником, возрастала в сторону длинных волн и имела пик на длине волны 4,4 мкм и затем также резкий спад (см. ***Рис. 18 (б)***). Отметим, что некоторое расхождение экспериментально измеренного максимума энергии холостой волны (4,4 мкм) в средней ИК области от максимума энергии сигнальной волны в видимой области (716 нм = 620 нм–4620 нм) связано, по-видимому, с искажением спектра холостого импульса с длинноволновой стороны за счет сильного линейного поглощения кристалла в этом спектральном диапазоне.

Такая зависимость от длины волны не характерна для непрерывного ПГС и ПГС длинных импульсов, где энергия ИК-импульса плавно спадает с увеличением длины волны согласно соотношениям Мэнли-Роу. Данный экспериментальный факт может быть качественно объяснен характерным существенным изменением дисперсионных зависимостей показателя преломления кристалла вблизи края поглощения, что может приводить к увеличению групповой длины взаимодействующих импульсов и, как следствие, к увеличению энергии и ширины спектра параметрически усиливаемого УКИ импульса. Косвенным образом подтверждает это предположение также тот факт, что длины волн, где существует этот специфический режим, всегда находятся на краю полосы поглощения кристалла и слабо зависят от длины волны накачки. Например, для ПУ на кристалле КТА максимальная спектральная ширина усиления приходится на длину волны 4,5 мкм, 4,3 мкм и 3,8 мкм при длине волны накачки 620нм, 800 нм и 1064 нм [61]соответственно. Необходимо также упомянуть тот факт, что наблюдение данного специфического режима генерации УКИ имело место только в ненасыщенном режиме усиления.

Ширина спектра ИК-импульсов, перестраиваемых в диапазоне 1,8–3,5 мкм, была почти неизменной (1% от несущей частоты), при приближении к границе поглощения она увеличивалась почти в 3 раза. Спектральная ширина самого интенсивного сигнального импульса на центральной длине волны 716 нм определялась величиной обратной длительности импульса и составила 390 $см^{-1}$ (см. ***Рис. 18 (в)***), что значительно превосходит расчетное значение (62 $см^{-1}$), полученное с использованием имеющихся формул Селмейера [144]. Этот факт также косвенно подтверждает наличие заметного отклонения дисперсии показателя преломления от стандартной интерполяции вблизи границы поглощения кристалла.

Таким образом, в инжекционном параметрическом усилителе на кристалле КТА с накачкой импульсным излучением второй гармоники хром-форстеритового лазера (длина волны 620 нм) получена генерация фемтосекундных импульсов, перестраиваемых в диапазоне длин волн 1,8–4,9 мкм. Обнаружено существенное увеличение энергии ИК-импульса с максимумом

на длине волны 4,4 мкм при перестройке длины холостой волны вблизи края поглощения относительно длинного 5-мм кристалла KTA.

1.4.2.2. Накачка KTA ПУ основным излучением хром-форстеритового лазера

На ***Рис. 19 (а)*** изображены перестроечные кривые и зависимости расстроек групповых скоростей от длины волны для параметрического усилителя на основе кристалла KTA с накачкой основным излучением хром-форстеритового лазера. Видно, что в области 1,7–1,9 мкм (соответствует холостой волне в диапазоне 3,6–4,5 мкм) их величина уменьшается, так что в окрестности этих длин волн можно ожидать эффективной генерации. В экспериментах по параметрическому усилению накачка кристалла осуществлялась основным излучением хром-форстеритового лазера (длина волны 1240 нм, длительность импульса ~200 фс, энергия импульса ~400 мкДж). Часть излучения (~4%) использовалась для генерации затравочного излучения СК в длинном кристалле Nd:YAG. Основная часть излучения проходила через линию задержки для дальнейшего согласования во времени с инжекцией, а затем направлялось в кристалл KTA. Используемый кристалл имел длину 5 мм и был вырезан под углом 42° к оси Z в плоскости XZ. Затравочное излучение заводилось в кристалл после предварительной спектральной селекции цветными фильтрами. Упрощенно экспериментальная схема изображена на ***Рис. 19 (б)***.

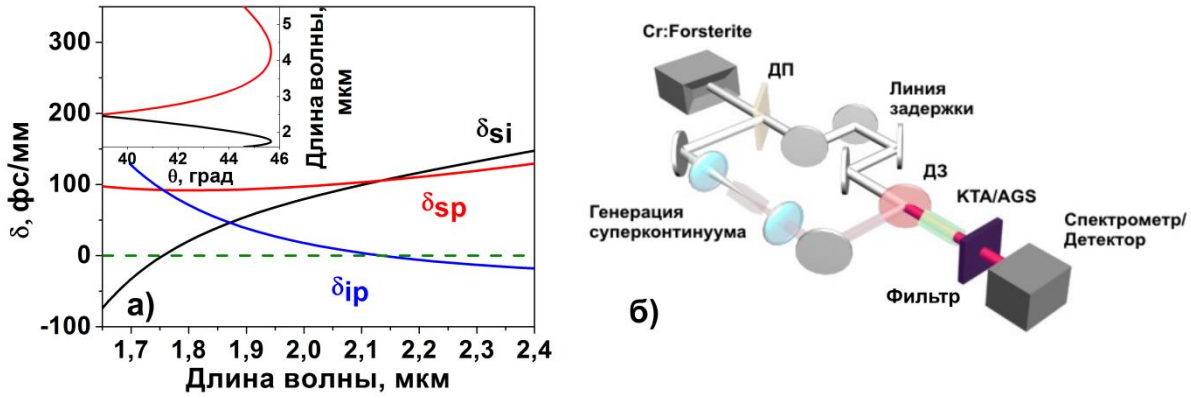


Рис. 19 а) Зависимость расстройки групповых скоростей взаимодействующих импульсов в кристалле KTA от длины волны и перестроечная характеристика (вставка); б) экспериментальная схема: ДП – делительная пластинка, ДЗ – дихроичное зеркало.

Контроль излучения сигнальной волны осуществлялся с помощью волоконного спектрометра Solar SDH IV в области длин волн 1,6–1,9 мкм. Для измерения энергии усиливаемых импульсов использовалась германиевая сфера. В ходе выполнения экспериментов было установлено, что в кристалле KTA реализуется специфический режим генерации импульсов в окрестности длинноволновой границы поглощения кристалла аналогичный рассмотренному выше с излучением второй гармоники. На ***Рис. 20*** изображена угловая перестройка сигнальной волны и зависимость энергии импульса от длины волны. Видно, что граничной оказывается длина волны ~1,8 мкм (соответствующая длина волны холостого излучения 3,9 мкм).

Таким образом, несмотря на возможность получения эффективной генерации на длине волны ~3,9 мкм, ограниченность перестройки ПУ на кристалле KTA не позволяет реализовать генератор затравочного излучения для кристалла Fe:ZnSe/Cd:Se. В дальнейшем в диссертации рассмотрены схемы ПУ на других выбранных нелинейно-оптических кристаллах.

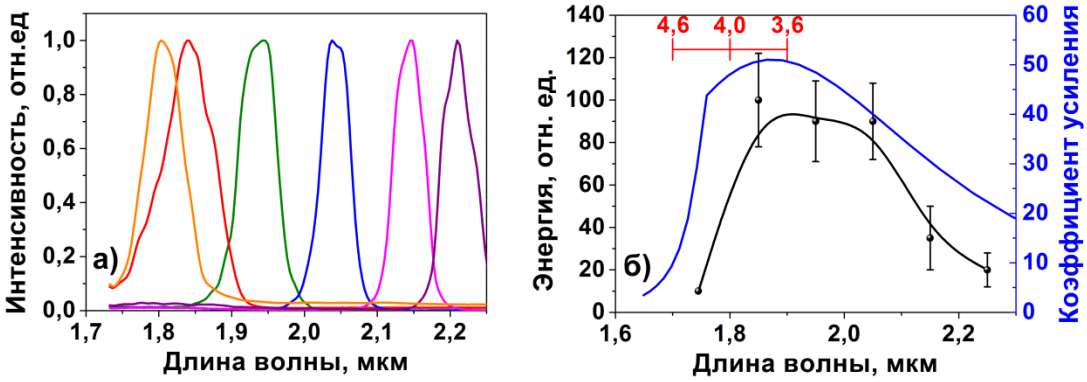


Рис. 20 а) Угловая перестройка сигнального импульса; б) зависимость энергии сигнального импульса (черная кривая) и расчетной величины усиления (синяя кривая) от центральной длины волны. Дополнительно приведены соответствующие значения длины волны холостого импульса.

1.4.3. Высокоэффективная генерация фемтосекундного излучения среднего инфракрасного диапазона (3–5 мкм) в процессе параметрического усиления света в кристалле AGS с накачкой основным излучением хром-форстеритового лазера

Схема трехкаскадного параметрического усилителя для получения мощных лазерных импульсов в среднем ИК-диапазоне (3-5 мкм) с накачкой излучением хром-форстеритовой фемтосекундной лазерной системы представлена на ***Рис. 21***. В экспериментах использовалось только 1,4 мДж энергии накачки.

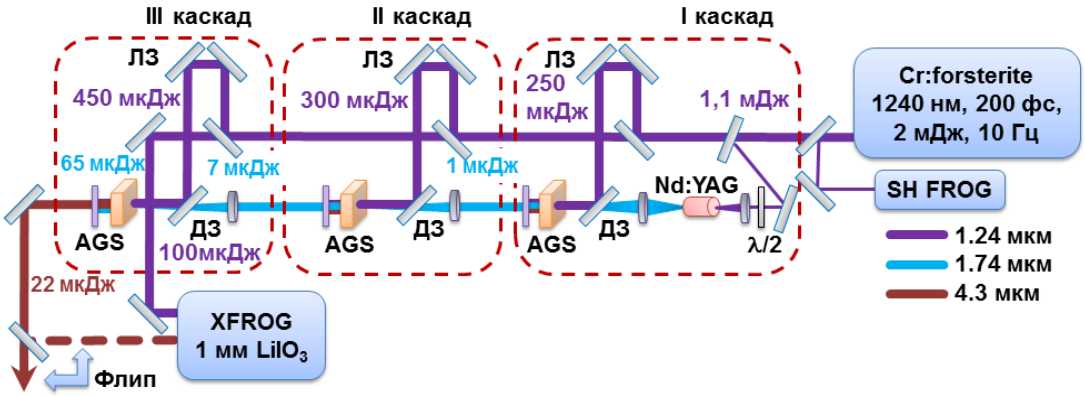


Рис. 21. Схема трехкаскадного перестраиваемого в диапазоне 3,5–5,5 мкм параметрического усилителя с накачкой хром-форстеритовым лазером. На вставке показан пространственный профиль выходного излучения среднего ИК-диапазона, измеренный Spiricon Pyrocam III.

Следует отметить, что ранее хром-форстеритовый лазер уже использовался для получения импульсов среднего ИК-диапазона по каскадной схеме с промежуточным параметрическим усилителем в ближнем ИК-диапазоне с накачкой второй гармоникой лазерного излучения [145]. Для дальнейшего усиления использовалась холостая волна этого параметрического усилителя. Однако по сравнению со схемой прямого усиления, где сигнальная волна обычно используется в

качестве затравки для следующих каскадов, такой подход менее эффективен, поскольку в соответствии с соотношениями Мэнли-Роу меньшее количество энергии накачки может быть передано холостому импульсу. Поэтому в созданной экспериментальной схеме детально исследовался процесс генерации суперконтинуума (СК) при филаментации в прозрачных диэлектриках, чтобы избежать промежуточных ступеней параметрического преобразования (подробнее см. ***п. 1.3.1.2***). Наибольшая стабильность и спектральная яркость СК в области 1,65–1,9 мкм были получены в кристалле Nd:YAG длиной 20 мм, который в дальнейшем использовался в экспериментах.

Среди доступных нелинейных кристаллов AGS является одним из наиболее перспективных благодаря своей высокой эффективной нелинейности (10,5 пм/В для наших условий фазового синхронизма), широкому диапазону прозрачности (0,5–13 мкм) и низким остаточным потерям. Более того, с накачкой 1,24 мкм можно вдвое снизить ДГС между взаимодействующими импульсами по сравнению с источником накачки на длине волны 1030 нм.

ПГС состоит из трех кристаллов AGS длиной 2 мм, вырезанных для фазового согласования I-ого типа под углом 42° (ООО «ЛЕА»). Кристаллы, использованные на втором и третьих каскадах, были покрыты просветляющим покрытием для длины волны накачки. Около 200 мкДж накачки фокусировались линзой $f = 500$ мм для достижения пиковой интенсивности 100 ГВт/см^2 на первом кристалле усилителя. Излучение СК фокусировалось в кристалл ахроматической линзой с фокусным расстоянием $f = 60$ мм. С такой линзой длина Рэлея более чем в 5 раз превышает длину нелинейного кристалла, что позволяет точно согласовывать размеры накачки и пучка затравочного излучения. Максимальное параметрическое усиление составляло около 60, что обеспечивает усиление сигнала до 1 мкДж.

Около 250 мкДж и 500 мкДж энергии накачки использовались для достижения интенсивности на кристаллах 50-100 ГВт/см^2 во втором и третьем каскадах параметрического усилителя соответственно, в результате чего сигнальная волна усиливалась до 10 мкДж и 65 мкДж. Пучки накачки и сигнальной волны совмещались коллинеарно на первом и втором каскадах ПГС, а в третьем каскаде они перекрывались немного неколлинеарно для разделения пучков в пространстве.

Перестройка в диапазоне 1,65–1,85 мкм для сигнальной волны и 3,8–4,8 мкм для холостой волны осуществлялась путем наклона кристаллов AGS при одновременной подстройке линий оптической задержки в соответствующих каскадах параметрического усиления. На ***Рис. 22*** показана последовательная перестройка спектра сигнального и холостого импульсов трехкаскадного параметрического усилителя среднего ИК-диапазона, измеренных с помощью спектрометра ближнего ИК-диапазона (Solar SDH-IV) и сканирующего монохроматора, оснащенного детектором PbSe.

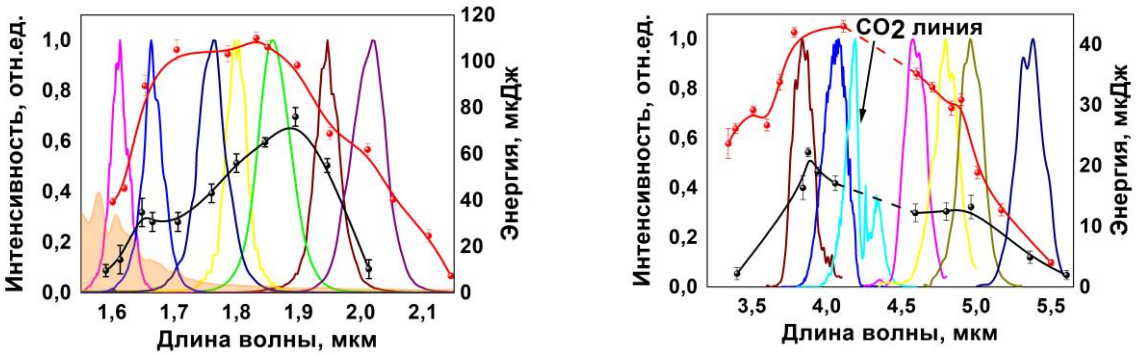


Рис. 22. Энергия сигнального (а) и холостого (б) импульсов (черная кривая) и спектр трехкаскадного ПГС на основе AGS кристаллов в зависимости от длины волны для спектрально ограниченного импульса накачки хром-форстеритового лазера.

Максимальная выходная энергия 25 мкДж и 65 мкДж была получена для холостой волны 4,0 мкм и сигнальной волны 1,8 мкм соответственно. Резкое уменьшение выходной энергии ПГС около 2,0 мкм для сигнальной волны и 3,5 мкм для холостой волны связано с резким уменьшением спектральной яркости СК в этой области. Отметим, что для повышения эффективности преобразования и дальнейшей настройки вплоть до вырождения можно использовать СК из газовых кювет высокого давления или заполненных газом полых волноводов. Точно так же постепенное снижение до 1,6 мкм для сигнальной волны и 5,5 мкм для холостой волны связано с особенностью кривой спектрального отражения дихроичных зеркал и уменьшением параметрического усиления, которое характерно для фазового синхронизма I-типа.

Для повышения эффективности преобразования ПГС импульсы накачки чирпировались за счет изменения эффективной длины компрессора хром-форстеритового лазера. Важно, что для каждого положения компрессора было выполнено тщательное выравнивание линий задержки на каждом каскаде ПГС. Энергетическая зависимость выхода холостой волны от длительности импульса накачки, измеренная с помощью методики оптического стробирования с разрешением по частоте (FROG), показана на ***Рис. 23***. Максимальная энергия холостой волны составила 43 мкДж при 4,1 мкм (длина волны на выходе была смещена в короткие длины волн во время оптимизации) и наблюдалась с отрицательно чирпированной накачкой, длительность которой соответствовала 260 фс. Соответствующая энергия сигнальной волны достигала 110 мкДж. При таких длинных импульсах накачки рассчитанная длина группового разбегания холостой (сигнальной) волны и накачки значительно увеличивается, достигая значения 1,3 мм (2,6 мм), в результате чего достигается эффективное усиление на всей длине кристалла. Дальнейшее увеличение длительности накачки не приводит к увеличению выходной энергии, в основном, из-за ограниченной интенсивности накачки на каждом кристалле, которую можно было получить при фиксированной энергии. Отметим, что на эффективность преобразования влияет не только расстройка групповых скоростей, но и дисперсия групповой скорости (ДГС) взаимодействующих импульсов. Как отчетливо видно из ***Рис. 23***, хотя накачка с положительным чирпом также увеличивает длину взаимодействия, эффективность преобразования становится

меньше. Поскольку ДГС для импульса накачки внутри кристалла AGS положительна (около 475 фс^2/мм), для его эффективной компенсации необходимо ввести отрицательный пречирп.

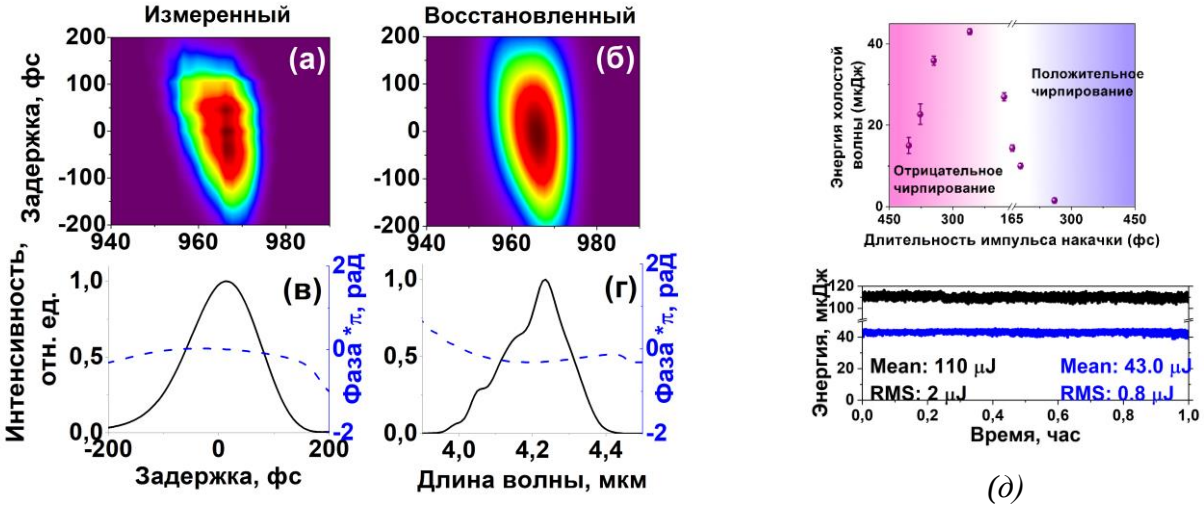


Рис. 23. Спектрально-временная диагностика лазерных импульсов длительностью 150 фс, 4,1 мкм, генерируемых в трехкаскадным параметрическим усилителем на основе AGS с отрицательно чирпированной накачкой. Измеренные (а) и восстановленные (б) спектрограммы SFG-FROG; (в) полученный временной профиль импульса (черная линия) и временная фаза (синяя пунктирная линия); (г) восстановленный спектр (черная линия) и восстановленная спектральная фаза (синяя пунктирная линия); (д) (вверху) зависимость выходной энергии холостого импульса от длительности импульса накачки и (внизу) стабильности энергии холостого (синий) и сигнального (черный) импульса в течение 1 часа.

С оптимально чирпированной накачкой эффективность преобразования энергии накачки в холостую волну составила 3%. Такой КПД намного выше, чем ранее опубликованный для лазерной системы на хром-форстерите (1,3% [146] и <1% [147]); он также превышает значения, полученные с некоторыми другими источниками накачки (1,5% [102], 1,3% [142]). Суммарный КПД в обе волны достигает рекордного значения 10%. Отметим, что согласно литературным данным [112], более высокая эффективность может быть получена с кристаллом HGS, который, к сожалению, только в последнее время стал доступен для приобретения.

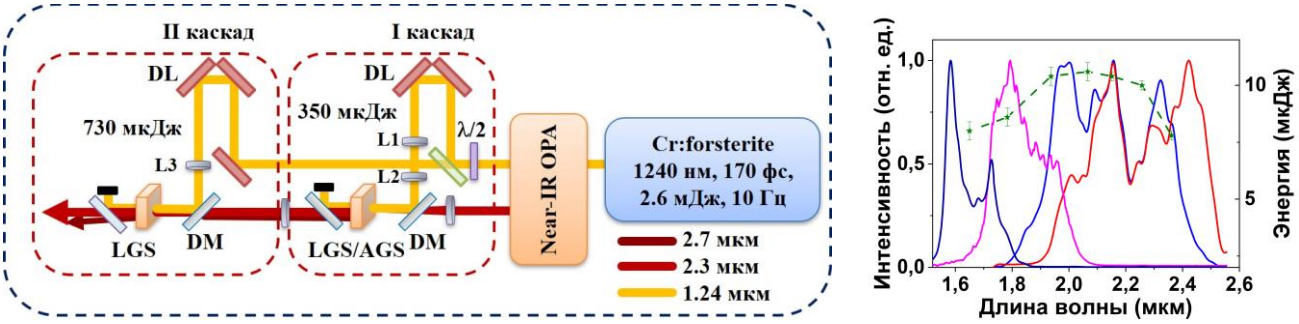
Энергетическая стабильность чрезвычайно важна для дальнейших приложений созданного параметрического усилителя, особенно для двухцветной микрообработки конденсированных сред, когда энергия импульса в среднем ИК-диапазоне устанавливается ниже порога ионизации. Измеренная долговременная стабильность энергии холостого импульса показана на ***Рис. 23*** при времени измерения 1 час. При данной рабочей длине волны 4,1 мкм и положении компрессора хром-форстеритовой лазерной системы нестабильность по энергии холостого импульса составляет 2%. Такие флуктуации в основном вызваны небольшой нестабильностью энергии накачки и некоторыми внешними факторами.

Временная форма генерируемого импульса с энергией 43 мкДж была охарактеризована методом XFROG с генерацией суммарной частоты (ГСЧ). Сигнал ГСЧ генерируется в кристалле $LiIO_3$ толщиной 1 мм. Измеренные и восстановленные спектрограммы показаны на ***Рис. 23 (а, б)*** соответственно, с ошибкой восстановления 0,7%. Восстановленный спектр, показанный на ***Рис. 23 (г)***, хорошо согласуется с измеренным на ***Рис. 22***. Измеренная длительность импульса в

среднем ИК-диапазоне составляла ~ 150 фс по интенсивности на полувысоте, что почти соответствует спектрально-ограниченной длительности (произведение длительности на полуширину спектра ~ 0,47).

1.4.4. Генерация широкополосных импульсов среднего ИК-диапазона при параметрическом усилении в кристалле LGS с накачкой основным излучением хром-форстеритового лазера

Для получения более широкополосной генерации в среднем ИК-диапазоне при использовании в качестве накачки фемтосекундное излучение хром-форстеритового лазера был выбран относительно новый неоксидный нелинейный кристалл $LiGaS_2$ (LGS). Этот материал демонстрирует высокую нелинейность, низкие собственные потери и широкий диапазон прозрачности (0,32~11,6 мкм) [148]. Недавно он был использован для генерации внутриимпульсной разностной частоты с накачкой 800 нм [149] и параметрического усиления с помощью источника 1030 нм [150] и зарекомендовал себя как многообещающая нелинейная среда. Было проведено сравнение кристалла LGS с широко используемым кристаллом AGS и обнаружено, что первый демонстрирует более высокое параметрическое усиление для выбранного диапазона длин волн. Наконец, были получены фемтосекундные импульсы с перестройкой от 1,8 до 4 мкм с выходной энергией, превышающей 20 мкДж во всём диапазоне настройки.



(а) *(б)*

Рис. 24 а) Принципиальная схема оптического параметрического усилителя на кристалле LGS. DL, линия задержки; DM – дихроичное зеркало; L1–L3, линзы; б) выходной спектр ПУ ближнего ИК-диапазона на основе BBO при перестройке.

Принципиальная схема разработанного параметрического источника представлен на ***Рис. 24***. Она состоит из блока генерации затравочного излучения, за которым следуют два каскада усиления. Обычно простейшая конструкция параметрического источника основана на прямом усилении затравочного излучения, возникающего при филаментации небольшой части излучения накачки. Однако сгенерированный таким образом суперконтинуум демонстрирует крайне низкую спектральную яркость около 2–2,5 мкм. Таким образом, представленная конструкция содержит усилитель ближнего ИК-диапазона, который генерирует излучение 1,9–2,5 мкм в виде холостой волны. В его основе лежит кристалл BBO ($\theta = 21$ °), накачиваемый второй гармоникой хром-форстеритового лазера (620 нм). Такая длина волны накачки близка к «магической длине волны» кристалла BBO (714 нм), что приводит к согласованию групповых

скоростей накачки и генерируемых импульсов. Точки поворота [49] кривой перестройки в этом случае наблюдаются в диапазоне 0,8–0,9 мкм и 2,2–2,5 мкм для сигнальной и холостой волны соответственно. Следовательно, в этой области можно получить широкополосный спектр со значительной выходной энергией. Для этой цели СК генерировался в сапфировой пластинке для формирования затравочного излучения ПГС в ближнем ИК-диапазоне 0,8–0,9 мкм. В экспериментах использовался кристалл BBO длиной 6 мм. Поскольку групповая длина в этом случае достигает 9 мм (для импульса с центром на 2,4 мкм), ограничение на длину кристалла происходит из-за фазовой самомодуляции интенсивной накачки. Выбранная длина кристалла гарантирует, что B-интеграл меньше π/2 при интенсивности накачки 50 ГВт/см^2. ПГС генерирует холостую волну с шириной спектра от 1,8 до 2,5 мкм и выходной энергией около 6 мкДж (см. ***Рис. 24***) [151].

После ПГС в ближнем ИК-диапазоне широкополосный холостой импульс направлялся на первый каскад усиления. Здесь для сравнения использовалось два разных кристалла: 1) кристалл AGS типа I толщиной 1 мм (θ = 42°); 2) кристалл LGS типа I толщиной 3 мм (θ = 45°). Оба кристалла (ООО «ЛЕА») накачиваются основным излучением хром-форстеритового лазера. Данные кристаллы были выбраны по критериям коммерческой доступности и наивысшего качества. Действительно, среди нелинейных материалов наибольшую нелинейность демонстрируют кристаллы AGGS и HGS. В ***Таблице 6*** представлены эффективный нелинейный коэффициент d_{eff}, расчетные групповые длины L_{sp} сигнала-накачки и L_{ip}-холостого импульса и импульса накачки и параметр качества преобразования в единицах $d_{eff}^2 L^2/n^3$, где L – наименьшее из L_{sp} и L_{ip}. Несмотря на высокую нелинейность AGGS имеет довольно низкий порог повреждения [150]. Длина кристаллов AGS и LGS выбиралась в соответствии с расчетами групповых длин взаимодействующих импульсов.

Таблица 6. Выбор кристалла для фазового синхронизма I-типа в области 2,3 мкм при накачке хром-форстеритовым лазером длительностью 170 фс.

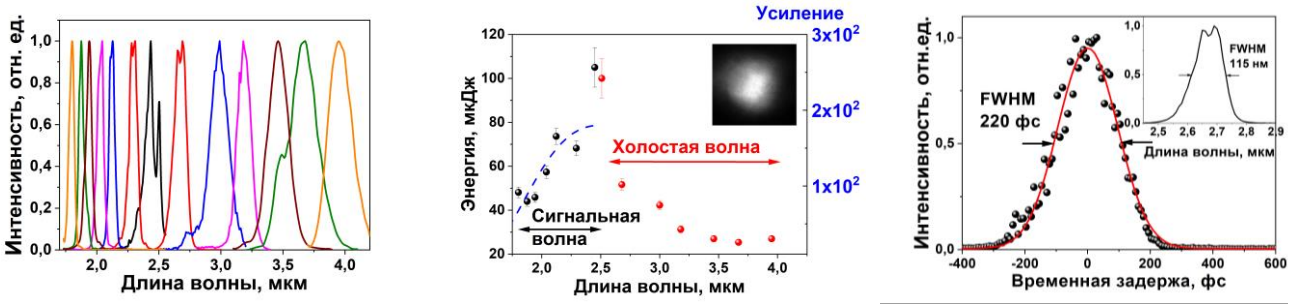
Кристалл	d_{eff}, **пм/В**	**Групповая длина** (L_{sp}/L_{ip})	**Параметр качества преобразования** $d_{eff}^2 L^2/n^3$
AGGS	-20,6	1,56/1,35	61
AGS	11,2	2,69/1	9
LGS	-4,3	3/2,58	13
LGSe	-7,4	1,55/1,33	8
LIS	-4,7	2,08/1,8	7
HGS	28,1	1,1/1	54

В эксперименте интенсивность накачки фиксировалась и устанавливалась линзовым телескопом на уровне 100 ГВт/см^2. При более высоких интенсивностях наблюдается сильная фазовая самомодуляция спектра накачки, при этом разрушения кристаллов вплоть до интенсивности 500 ГВт/см^2 не наблюдалось. Излучение затравки и накачки объединялось в

широкополосном дихроичном зеркале производства Tydex. Такое же дихроичное зеркало использовалось после кристалла для отражения остаточного излучения накачки. Каждый из двух кристаллов был настроен на одну и ту же длину волны 2,3 мкм. Кристалл AGS обеспечивает более широкий выходной спектр (общая ширина полосы 312 $см^{-1}$), но умеренное параметрическое усиление 6–7, в то время как LGS имеет более высокое параметрическое усиление (9–10) с немного более узкой полосой пропускания (278 $см^{-1}$). Поскольку для наших приложений приемлемы импульсы длительностью около 150–200 фс, был выбран кристалл LGS, который обеспечивает более высокую выходную энергию.

Пучок после первого каскада параметрического усиления коллимировался и коллинеарно объединялся с 730 мкДж накачки. На втором этапе также использовался кристалл LGS длиной 3 мм, вырезанный при θ = 45°. Двухкаскадный параметрический усилитель на кристалле LGS генерировал сигнальную волну с энергией более 70 мкДж на длине волны около 2,3 мкм.

Для измерения спектра генерируемого на выходе параметрического усилителя излучения был использован сканирующий монохроматор, оснащенный решеткой 300 штр./мм и детектором PbSe. Последовательность спектров сигнальной и холостой волн показана на ***Рис. 25 (а)***, а на ***Рис. 25 (б)*** показана выходная энергия. Как видно, ПГС плавно перестраивается от 1,8 до 4 мкм с выходной энергией, превышающей 20 мкДж во всём диапазоне перестройки. Наибольший КПД был достигнут в вырожденном режиме преобразования с общей выходной энергией 210 мкДж, что соответствует ~20% эффективности преобразования в две волны. Отстройка от вырожденного режима генерации привела к уменьшению выходной энергии в соответствии с соотношениями Мэнли-Роу. Тем не менее, был достигнут комбинированный КПД от 5% до 15% в зависимости от длины волны, что хорошо конкурирует с установками, управляемыми лазерами Ti:Sa и Yb:KGW.



(а) *(б)* *(в)*

Рис. 25 (а) Перестройка и (б) энергия фемтосекундного параметрического усилителя на кристалле LGS с накачкой хром-форстеритовым лазером; (в) автокорреляционная функция, измеренная для импульса с центральной длиной волны 2,67 мкм (вставка). Красная кривая соответствует гауссовской аппроксимации.

Наконец, временной профиль генерируемых импульсов был охарактеризован с помощью автокоррелятора 2-ого порядка на основе кристалла BBO длиной 2 мм, который прозрачен до 2,8 мкм. Генерируемая неколлинеарная вторая гармоника измерялась детектором на основе германия. На ***Рис. 25 (в)*** представлена измеренная автокорреляционная функция для импульса с длиной волны 2,67 мкм. Полуширина автокорреляционной функции составляет 220 фс, что дает

длительность импульса 156 фс в предположении гауссовой формы импульса. Произведение длительности на полуширину спектра составляет 0,7, что указывает на небольшой чирп, который в основном возникает из-за длинного кристалла BBO, используемого в ПГС в ближнем ИК-диапазоне.

Таким образом, был разработан перестраиваемый в диапазоне 1,8–4 мкм параметрический усилитель на основе относительно нового кристалла LGS с накачкой хром-форстеритовым лазером. ПГС обеспечивает выходную энергию более 20 мкДж и длительность фемтосекундного импульса (~ 160 фс) во всем диапазоне перестройки. Дальнейшее масштабирование энергии может быть легко реализовано с помощью дополнительных каскадов параметрического усиления.

1.4.5. Сравнение усилительных свойств кристаллов AGS и LGS для получения выходных импульсов с длительностью до 100 фс и энергией 20–30 мкДж в диапазоне длин волн 4 – 5 мкм

Сравнение усилительных свойств кристаллов LGS и AGS для области среднего ИК-диапазона проводилось в отдельном параметрическом усилителе на основе промежуточного преобразования в ближний ИК диапазон, выполненном по схеме аналогичной изображенной на ***Рис. 24***. Для сравнения усилительных свойств использовались кристаллы AGS длиной 2 мм и LGS длиной 4 мм. Кристалл LGS обладает бóльшим диапазоном прозрачности по сравнению с кристаллом AGS, что делает его дисперсионные соотношения более выгодными для генерации излучения среднего ИК-диапазона. Ширина синхронизма для кристаллов LGS и AGS длиной 1 мм на длине волны 4,4 мкм составляет 920 $см^{-1}$ и 230 $см^{-1}$, соответственно. Однако нелинейный коэффициент d_{eff} в кристалле LGS составляет 4,4 пм/В, что в 2,4 раза ниже, чем в AGS. Чтобы компенсировать низкий нелинейный коэффициент, был выбран кристалл LGS большей длины по сравнению с кристаллом AGS. Оба кристалла накачивались основным излучением хром-форстеритового лазера, параметры инжекции в области сигнальной волны не менялись. На ***Рис. 26 (а)*** приведены спектры холостого импульса на выходе из кристаллов. Видно, что кристалл LGS позволяет получить более широкополосное излучение. Ширина спектра соответствует импульсу с длительностью порядка 80 фс. Отметим, что выходная энергия ИК импульса составляет около 1 мкДж, что требует создания дополнительного (третьего) каскада усиления.

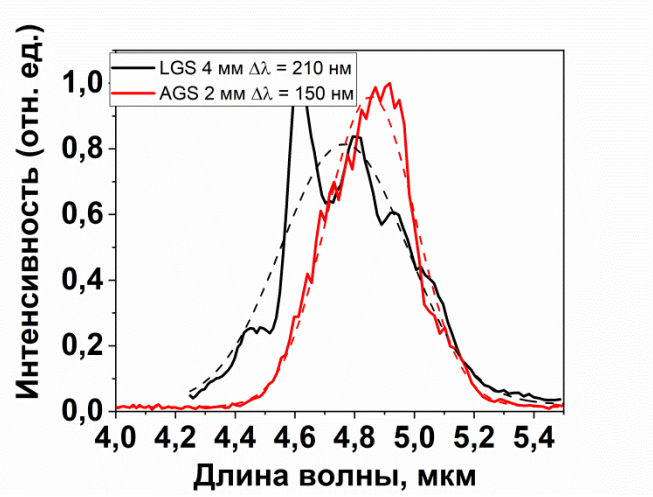


Рис. 26 Параметрическое усиление около 4,4 мкм в кристаллах AGS длиной 1 мм и LGS длиной 3 мм. На графике указана ширина спектра для каждого из кристаллов, полученная из аппроксимации гауссовой функцией.

Для увеличения энергии при сохранении ширины спектра усиливаемых в среднем ИК (3–5 мкм) диапазоне лазерных импульсов кристалл LGS 3 мм толщиной в третьем каскаде накачивался хром-форстеритовым излучением с интенсивностью до 50 ГВт/см^2. После оптимизации параметров созданного гибридного параметрического усилителя на основе кристаллов AGS и LGS была достигнута энергия ~110 мкДж – суммарно в две волны, и до 15 мкДж – в холостой волне в области 4 – 5 мкм.

1.4.6. Высокоэффективный параметрический усилитель на кристалле LGS для получения выходных импульсов с длительностью до 100 фс и энергией 20–30 мкДж в диапазоне длин волн 4–8 мкм

Для расширения диапазона перестройки длины волны оптического параметрического усилителя до 8 мкм и увеличения выходной энергии в ближнем и среднем ИК-диапазоне на основе измерений, проведенных в предыдущем пункте, было решено отказаться от кристаллов AGS и создать трехкаскадный ПУ на кристалле LGS. Энергия основного излучения хром-форстеритового лазера была поделена между каскадами следующим образом: первый каскад ~100 мкДж, второй каскад ~700 мкДж, третий каскад ~2 мДж. Для устранения эффектов насыщения процесса параметрического усиления плотность энергии накачки в каждый из каскадов тщательно подбиралась путем изменения поперечных размеров пучка накачки. Таким образом, была получена перестройка сигнальной волны в диапазоне 1,45–2 мкм и холостой 3,75–8 мкм с максимальной эффективностью преобразования в две волны ~8% (энергия сигнальной волны ~200 мкДж, энергия холостой 25 мкДж). Соответствующие перестроечные кривые параметрического усилителя показаны на ***Рис. 27 (а, в)***.

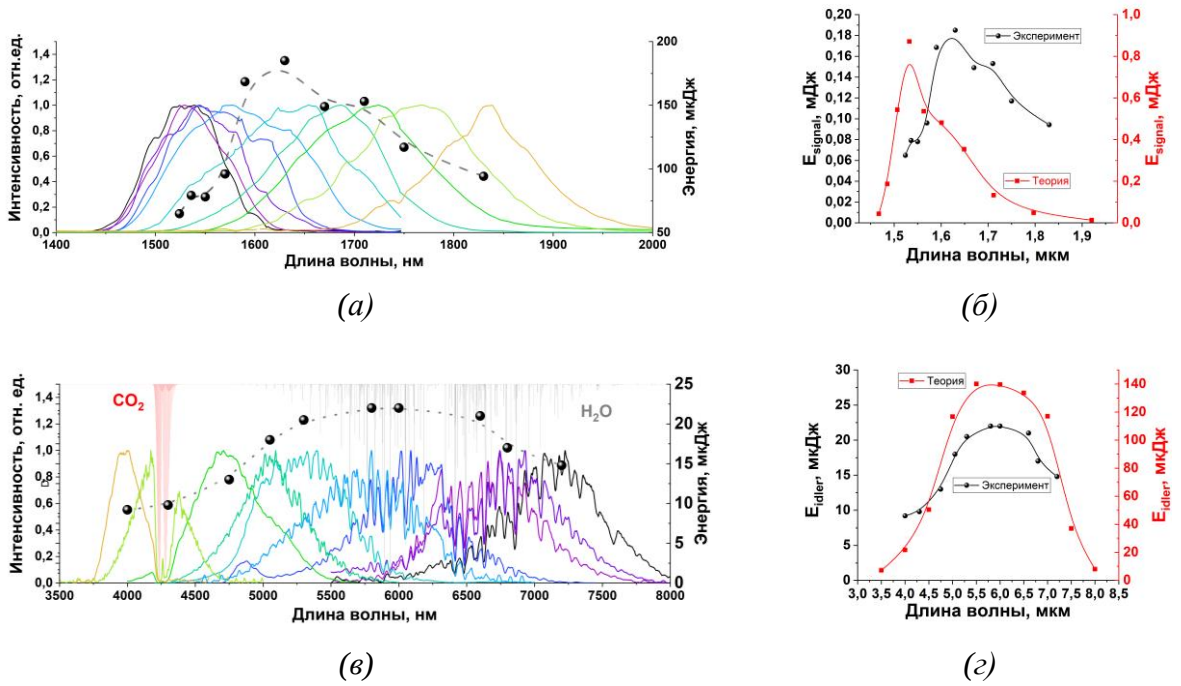


Рис. 27 Экспериментальная и теоретическая перестройка и энергия а), б) сигнальной и в), г) холостой волн трехкаскадного фемтосекундного ПУ на основе кристалла LGS с накачкой хром-форстеритовым лазером. В верхней части графиков а), б) показаны линии поглощения CO_2 и H_2O.

Отметим, что увеличение энергии параметрического усилителя в области 1,6–1,7 мкм (сигнальная волна) и 5–6 мкм (холостая волна) связано с аномалией в перестроечной кривой кристалла LGS при его накачке основным излучения хром-форстеритового лазера (см. ***Рис. 28 (а)***). В этой области спектра в перестроечной кривой параметрического усилителя на основе кристалла LGS наблюдается область вертикальной производной, что говорит о групповом согласовании скоростей взаимодействующих импульсов, которое должно приводить как к увеличению ширины фазового синхронизма, так и к увеличению коэффициента параметрического усиления, что и наблюдается в эксперименте.

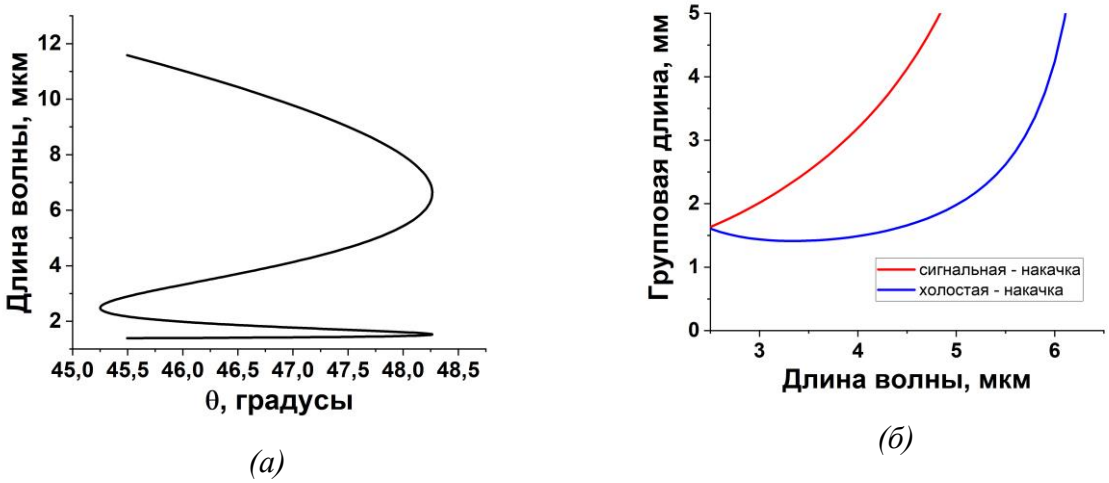


Рис. 28 (а) Перестроечная характеристика кристалла LGS с накачкой основным излучения хром-форстеритового лазера; (б) групповая длина взаимодействия для кристалла LGS с накачкой хром-форстеритовым лазером (1,24 мкм, 100 фс).

Изрезанность спектра холостой волны в среднем ИК-диапазоне, начиная от 5 мкм и выше, связана с присутствием в этой области резонансного поглощения на отдельных линиях колебательно-вращательного спектра водяного пара H_2O. Расчеты процесса многокаскадного параметрического усиления в кристалле LGS с накачкой хром-форстеритовым лазером (***Рис. 27 (б, г)***) доказывают, что уменьшение энергии холостого импульса при перестройке дальше 7 мкм и сигнального импульса при перестройке короче 1,5 мкм связано не столько с экспериментальными трудностями создания соответствующих дихроичных покрытий с резким спектральным краем в области 1,4 мкм, сколько с уменьшением параметрической полосы усиления для данного параметрического преобразования. Отличие по энергии сигнальной и холостой волн, измеренных в эксперименте и рассчитанных по модели, связано с тем, что пространственное распределение интенсивности в лазерных пучках взаимодействующих волн далеко от плосковолнового приближения. Смещение максимума перестроечной кривой сигнального импульса в теории относительно эксперимента, скорее всего, связано с немного отличающимися дисперсионными характеристиками реального кристалла LGS от рассчитанных по формуле Селмейера.

1.4.7. Численное моделирование процесса параметрического усиления в трехкаскадном параметрическом усилителе на основе кристалла LGS

Для объяснения наблюдаемых различий в процессе параметрического усиления в кристалле LGS и AGS было проведено численное моделирование (см. ***п. 1.4.1***). Отметим, что кристаллы LGS и AGS обладают значительным нелинейным показателем n_2, составляющим 35×10^{-16} см^2/Вт и 150×10^{-16} см^2/Вт соответственно. В связи с этим для устранения процесса фазовой самомодуляции (ФСМ) для излучения накачки, ее интенсивность следует ограничивать на уровне $10 - 50$ ГВт/см^2 (в зависимости от длины кристалла). Улучшенные дисперсионные свойства кристалла LGS в сочетании с меньшей нелинейностью позволяет использовать более длинные кристаллы и более высокую интенсивность, что в результате определяет его высокую эффективность.

В моделировании рассматривался трехкаскадный параметрический усилитель, состоящий из кристаллов LGS длиной 2мм, 3 мм и 3 мм. Предварительный выбор длины кристаллов основан на оценке групповой длины взаимодействия для импульсов длительностью 100–200 фс, приведенные на ***Рис. 28 (б)*** для излучения накачки 1,24 мкм. Видно, что для импульса накачки длительностью 100 фс оптимальная длина кристалла для области длин волн 4–8 мкм составляет порядка 2 мм. При увеличении длительности до 200 фс длина кристалла может быть дополнительно увеличена.

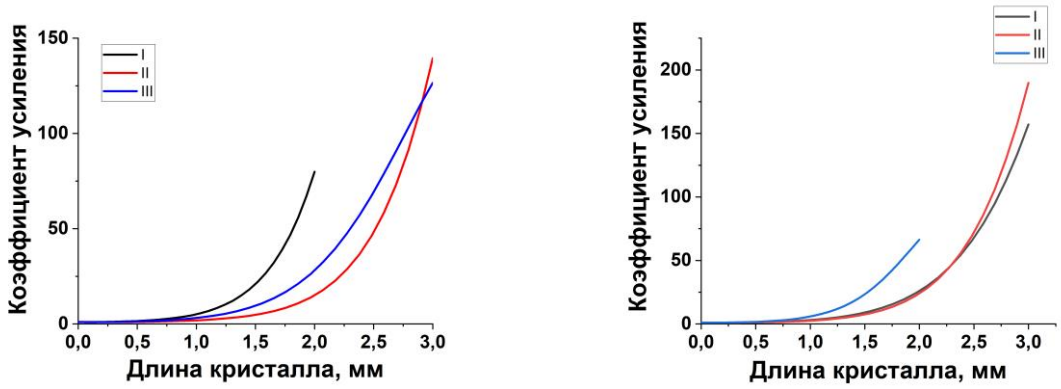
Интенсивность накачки выбиралась таким образом, чтобы после прохождения кристалла фазовый набег составлял $\pi/2$. Такой выбор представляется целесообразным, так как уравнения учитывают трансформацию лазерного импульса лишь во временном представлении, в то время как экспериментально такое излучение будет также испытывать пространственную самофокусировку, что приведет к дальнейшему увеличению интенсивности и фазового набега. В

Таблица 7 приведены параметры импульса накачки на каждом каскаде. Длительность составляла 100 фс. Энергия сигнального импульса на первом каскаде бралась равной 0,3 нДж и затем варьировалась.

Таблица 7. Параметры излучения накачки, используемые в расчетах.

	I каскад (2 мм)	**II каскад (3 мм)**	**III каскад (3 мм)**
Энергия накачки	100 мкДж	700 мкДж	2 мДж
Интенсивность накачки	44 ГВт/см^2	30 ГВт/см^2	30 ГВт/см^2
Пучок накачки	1,7 мм	5,4 мм	9,2 мм

На ***Рис. 29*** представлена эволюция коэффициента усиления на каждом из каскадов. Энергия сигнальной волны после первого, второго и третьего каскадов составила 24 нДж, 3,5 мкДж, 504 мкДж соответственно. Выходная длительность сигнального и холостого импульсов составила 63 фс (произведение ширина спектра-длительность TBP = 0,49) и 79 фс (TBP = 0,46).



а) *б)*

Рис. 29. Зависимость коэффициента усиления от длины кристалла: (а) комбинация 2 мм/3 мм/3 мм; (б) комбинация 3 мм/3 мм/2 мм.

В случае использования комбинации 3 мм/3 мм/2 мм энергия сигнальной волны после первого, второго и третьего каскадов составила 47 нДж, 11,8 мкДж, 820 мкДж соответственно. Выходная длительность сигнального и холостого импульсов составила 59 фс (TBP = 0,52) и 60 фс (TBP = 0,46). Таким образом, такая комбинация оказывается более эффективной. Как видно из расчетов, усиление на первом и втором каскаде экспоненциально зависит от длины кристалла, в то время как к третьему каскаду эта зависимость приближается к линейной. В связи с этим в дальнейшем рассматривалась именно такая комбинация.

При таких параметрах моделирования на последнем каскаде истощается более 50% энергии накачки. На ***Рис. 30 (а, б)*** изображены зависимости выходной энергии и длительности сигнального и холостого импульсов от уровня инжекции. Видно, что в случае использования затравочного излучения на уровне 0,3 нДж параметрический усилитель близок к насыщению. Постепенный рост выходной длительности импульсов связан с трансформацией импульса

накачки (истощением). В связи с этим минимальная длительность ожидается на «линейном» участке параметрического усиления.

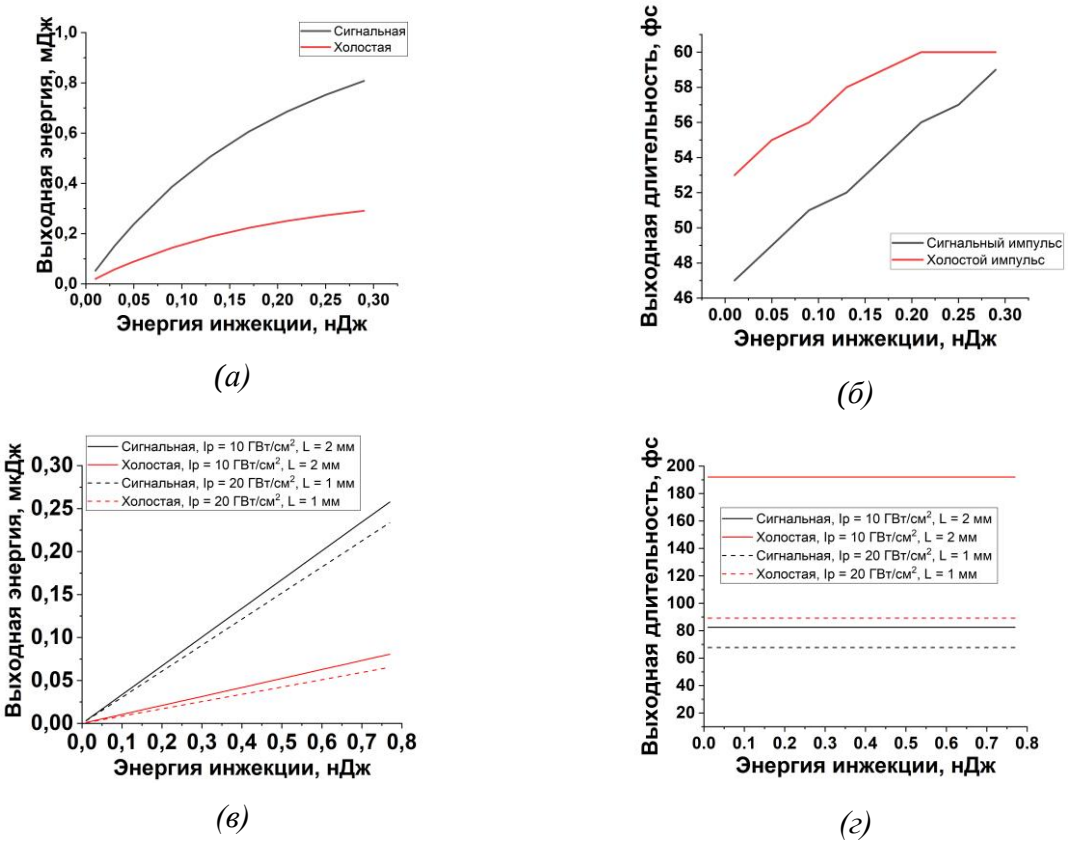


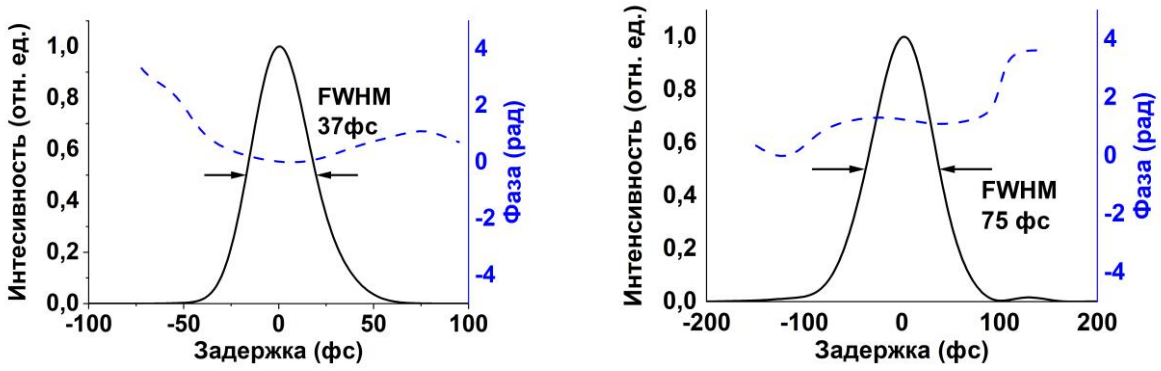
Рис. 30. Зависимость выходной энергии и длительности сигнального (черная кривая) и холостого (красная кривая) импульсов от уровня затравочного излучения в кристаллах LGS (а, б) и AGS (в, г).

При аналогичном выборе интенсивностей для кристалла AGS (10 ГВт/см^2 для кристалла длиной 2 мм и 20 ГВт/см^2 для кристалла длиной 1 мм) результаты расчетов показывают очень низкий коэффициент усиления и большую выходную длительность (см. ***Рис. 30 (в, г)***).

1.4.8. Характеризация импульсов среднего ИК-диапазона (4–8 мкм) на выходе трехкаскадного параметрического усилителя на кристалле LGS с накачкой основным излучением хром-форстеритового лазера

Для измерения огибающей интенсивности и спектральной фазы сигнального и холостого импульсов использовалась схема XFROG при генерации суммарной частоты с малой часть хром-форстеритового излучения в кристалле йодата лития $LiIO_3$ толщиной 500 мкм. Посткомпрессия импульсов ближнего и среднего ИК диапазонов на выходе трехкаскадного параметрического усилителя была выполнена с помощью добавления пластинок из материала с обратным знаком дисперсии групповой скорости. Для сигнальной волны использовалась кварцевая (ДГС ~ -47 фс^2/мм) пластина толщиной 20 мм, для холостой волны германиевая (ДГС ~ 960 фс^2/мм) пластинка толщиной 2 мм. Восстановленные временные формы импульсов представлены на ***Рис. 31***. Ширина спектра на половине высоты для сигнальной волны составила 110 нм на длине волны 1,67 мкм, что соответствует длительности 37 фс для спектрально ограниченного импульса. Для

холостой волны ширина спектра на половине высоты составила 423 нм на длине волны 4,7 мкм, что соответствует длительности ~75 фс, то есть порядка 5-ти циклов поля.



(а) *(б)*

Рис. 31. Восстановленные из XFROG спектрограммы временная форма и спектральная фаза сигнального (а) и холостого (б) импульсов на выходе трехкаскадного параметрического усилителя на основе кристалла LGS.

Выводы по главе 1

Таким образом, проведённые измерения усилительных свойств хром-форстеритовой среды и разработанные методы компенсации термооптических искажений в активной элементе позволяют создать фемтосекундный лазерный источник с мультигигаваттной пиковой и ваттной средней мощностью в ближнем ИК-диапазоне (1,1–1,3 мкм). Исследования процесса параметрического усиления в оксидных и неоксидных кристаллах с накачкой хром-форстеритовым лазером выявили общую закономерность: повышение эффективности преобразования в области вертикальных участков перестроечных кривых вдали от вырожденного режима. В результате были разработаны высокоэффективные схемы генерации перестраиваемого от ~1 до ~8 мкм фемтосекундного излучения при параметрическом усилении в неоксидных тройных полупроводниковых кристаллах с накачкой хром-форстеритовым лазером. Применение схем посткомпрессии на выходе параметрического усилителя обеспечило генерацию малопериодного излучения в среднем ИК-диапазоне субгигаваттного уровня пиковой мощности.

1. Охарактеризованы усилительные и термооптические свойства семейства хром-форстеритовых лазерных кристаллов. Измеренный коэффициент усиления на проход составил G=1,38–1,75 (g_0=0,28–0,5 $см^{-1}$) при плотности энергии накачки 1–1,5 $Дж/см^2$, а плотность энергии насыщения составила 0,2–0,3 $Дж/см^2$. Установлено, что при плотности энергии накачки $F > (1-1{,}5)\ Дж/см^2$, необходимой для реализации максимального усиления, и при частоте повторения импульсов накачки $50-100$ Гц в кристалле форстерита возникает термооптическая линза с оптической силой $0{,}4-1{,}0$ диоптрии.
2. Экспериментально показано, что для достижения 10% КПД усилителя по поглощенной энергии накачки необходимо использовать от 12 до 14 проходов через хром-форстеритовый активный элемент. В результате, созданная двухкаскадная

многопроходная схема усиления позволила достичь 16–20 мДж на выходе усилителя, что при 80% пропускания компрессора обеспечивает энергию на выходе из системы порядка 12–16 мДж при длительности импульса ~100 фс, что соответствует импульсной мощности порядка 0,1–0,2 ТВт.

3. Создан хром-форстеритовый фемтосекундный лазерный комплекс, генерирующий излучение ближнего ИК-диапазона (1,24 мкм) с мультигигаваттной пиковой (более 100 ГВт) и высокой средней мощностью (более 1 Вт) в условиях компенсации термооптических искажений в активных элементах.
4. Использование *групповых синхронизмов* взаимодействующих импульсов в нелинейных кристаллах (DCDA, LBO), а также явления филаментации лазерных пучков в условиях расходящегося волнового фронта излучения накачки, позволило реализовать генерацию *стабильных и мощных* (до 20 МВт) *фемтосекундных суперконтинуумов* в ближнем ИК-диапазоне со спектральной шириной до 450 нм, которые использовались в качестве затравочного излучения параметрических усилителей.
5. Экспериментально продемонстрировано повышение *эффективности* параметрического преобразования и спектральное уширение генерируемых импульсов в среднем ИК-диапазоне вблизи границы прозрачности в кристалле КТА при накачке второй гармоникой (λ=620 нм) и основным излучением (λ=1240 нм) хром-форстеритового лазера. Накачка излучением второй гармоники хром-форстеритового лазера приводит к более широкой перестройке по длинам волн (вплоть до 5 мкм), что может быть полезно для спектроскопических приложений, тогда как схема с накачкой основным излучением хром-форстеритового лазера может быть использована как компактный и надежный источник широкополосного фемтосекундного излучения с фиксированной длиной волны в среднем ИК-диапазоне (~3,9 мкм).
6. Обнаружен специфический режим параметрического усиления в кристалле BBO I типа взаимодействия с накачкой второй гармоникой излучения хром-форстеритового лазера (620 нм), реализуемый *вблизи вертикального участка перестроечной кривой*. Показано, что благодаря согласованию групповых скоростей взаимодействующих импульсов, в таком режиме возможна генерация излучения с шириной спектра до 450 нм на длине волны 2,2 мкм, что соответствует длительности импульса около 34 фс (2,5 цикла поля). Энергия в импульсе составляет 7–11 мкДж при перестройке в диапазоне длин волн 1,6–2,5 мкм.
7. Экспериментально продемонстрировано, что использование кристалла тиогаллата лития (LGS) позволяет осуществлять эффективное параметрическое преобразование излучения хром-форстеритового лазера в диапазон 1,9–2,5 мкм. В кристалле I типа взаимодействия получена перестройка 1,9–2,5 мкм (сигнальная волна) и 2,5–4 мкм (холостая волна) с выходной энергией, превышающей 20 мкДж во всем диапазоне длин волн. Максимальная

выходная энергия получена в окрестности вырождения (2,5 мкм) и составляет 210 мкДж (две волны), что соответствует эффективности преобразования 14%. Длительность излучения на длине волны 2,67 мкм составляет 156 ± 5 фс.

8. Впервые продемонстрировано, что параметрическое усиление импульсов инжекции среднего ИК-диапазона в кристалле тиогаллата серебра (AGS) при накачке *отрицательно чирпированными* импульсами хром-форстеритового лазера (2 мДж, 10 Гц, 260 фс) с плотностью мощности на уровне 100 ГВт/см^2 происходит с рекордной эффективностью (до 10% в две волны и до 3% в холостую волну) за счёт увеличения спектральной яркости суперконтинуума в условиях роста групповой длины взаимодействующих импульсов. Достигнута энергия импульса более 10 мкДж во всей полосе перестройки параметрического усилителя от 3,5 мкм до 5,5 мкм при сохранении спектральной ширины лазерных импульсов на уровне ~180 нм.
9. Впервые показано, что наличие *невырожденных по частоте групповых синхронизмов* и отсутствие *спектрально близких паразитных преобразований* в условиях снижения влияния *двухфотонного поглощения* в процессе параметрического усиления затравочного излучения суперконтинуума в кристалле тиогаллата лития (LGS) с накачкой излучением хром-форстеритового лазера обеспечивает *эффективную* (до 8%) генерацию *гигаваттных* (до ~5 ГВт) импульсов в ближнем и *субгигаваттных* (до ~0,3 ГВт) в среднем ИК-диапазонах с энергией более 200 мкДж в диапазоне 1,6–1,8 мкм и более 10 мкДж в диапазоне 5–7,5 мкм.

Глава 2. Мощная фемтосекундная лазерная система среднего ИК-диапазона (4-5 мкм) на основе многопроходного усиления чирпированного импульса инжекции в активной халькогенидной среде Fe:ZnSe

Вторая глава диссертации посвящена созданию фемтосекундного лазерного комплекса среднего ИК-диапазона на основе семейства халькогенидных активных лазерных сред, легированных ионами железа. Обсуждаются вопросы влияния профиля легирования активного элемента, остаточного давления углекислого газа в трассе лазерного пучка и температуры активной среды (вплоть до температуры жидкого азота) на её генерационные и усилительные свойства. Отдельное внимание уделяется разработке мощных (~МВт) и высокоэнергетичных (~50-100 мДж) трехмикронных лазерных источников, работающих в импульсно-периодическом режиме (до 20 Гц) с наносекундной длительностью импульсов, на основе эрбиевых кристаллов как с ламповой, так и с боковой диодной накачкой. Обсуждаются способы увеличения энергии инжектируемых стретчированных импульсов в среднем ИК-диапазоне в многопроходных усилителях и методы их временной компрессии. Рассматриваются возможности расширения спектра созданного фемтосекундного лазерного источника среднего ИК-диапазона (4–5 мкм) в область больших длин волн (5–6 мкм) на основе усиления в кристалле Fe:CdSe. Для увеличения ширины полосы лазерного усиления в диссертации демонстрируются результаты по спектральному синтезу полос усиления Fe:ZnSe и Fe:CdSe. В результате, обосновывается концепция создания уникального широкополосного фемтосекундного источника среднего ИК-диапазона на основе твердотельной лазерной среды по схеме усиления чирпированных импульсов.

§2.1. Лазерные источники среднего ИК-диапазона: применения

В течение нескольких десятилетий много усилий было направлено на разработку компактных, экономичных и широко перестраиваемых лазерных источников в среднем инфракрасном (средний ИК) 2–8 мкм и длинноволновом инфракрасном (дальний ИК) 8–20 мкм спектральных диапазонах, работающих в режиме свободной генерации, модуляции усиления, модуляции добротности и синхронизации мод. На ***Рис. 32*** показаны окна прозрачности атмосферы в спектральном диапазоне 2,5–25 мкм. Средний ИК/дальний ИК диапазоны охватывают область длин волн, связанную с фундаментальными вращательными и колебательными резонансами большого количества органических и неорганических молекул. По этой причине средний ИК/дальний ИК диапазон часто называют областью электромагнитного спектра «молекулярных отпечатков пальцев», где присутствие этих молекул можно обнаружить по их уникальным спектральным характеристикам, что позволяет использовать их в различных прикладных областях, например, в нефтяной промышленности, геологоразведке, хирургическом и стоматологическом лечении, дистанционном зондировании атмосферы, спектроскопии,

оптической связи в открытом космосе и многих приложениях, связанных с обороноспособностью страны. Мониторинг и анализ малых концентрации газов стали важными задачами для контроля окружающей среды, медицины, промышленности и химии [152]. В то же время в среднем ИК-диапазоне находится спектральный пик теплового излучения большинства биологических и механических объектов в диапазоне температур от 200 до 1400 К, благодаря чему он имеет большое значение для приложений безопасности и обороны, связанных с тепловым наведением и ночным видением, а также для энергосберегающих технологий [153].

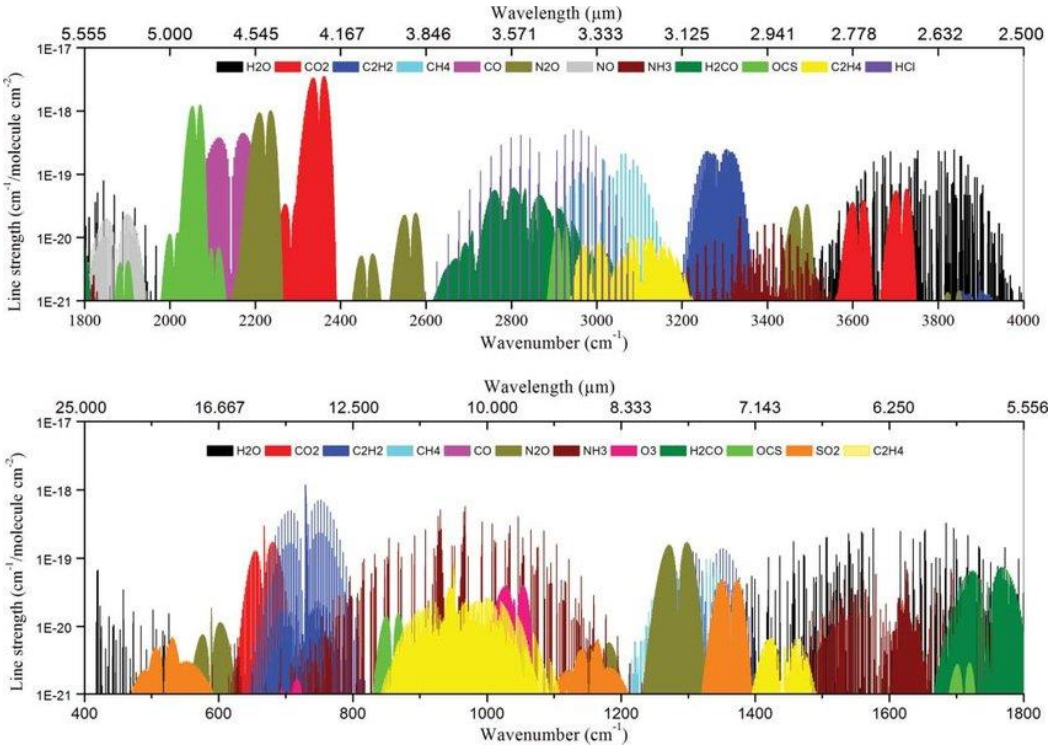


Рис. 32. Спектр поглощения различных соединений в среднем и дальнем инфракрасном диапазонах (https://hitran.org/).

Помимо того, что средний и дальний ИК диапазоны технологически важны для потенциальных применений в области сенсорики и получения изображений, они также важны для фундаментальных научных исследований. Во-первых, более длинные волны среднего ИК-диапазона (по сравнению с видимой или ближней ИК областями) позволяют снизить требования на масштаб многих оптических компонентов и структур, создаваемых путём стандартной фотолитографии, что делает средний ИК-диапазон подходящим испытательным полигоном для оптических материалов нового поколения: метаматериалов, оптических антенн и суб-волновых дифракционных элементов на основе плазмонных структур [154]. Более того, в среднем ИК-диапазоне можно не только исследовать, но и управлять процессами взаимодействия лазерного излучения с веществом. Взаимодействием со свободными носителями заряда, что является основой плазмоники и многих метаматериалов, можно управлять не только за счет геометрии металлических структур, но и за счёт легирования полупроводниковых материалов путем проектирования оптических свойств самих «металлов». Низкие энергии фотонов среднего ИК/дальнего ИК-диапазона позволяют использовать традиционные оптоэлектронные полупроводниковые материалы, ширина запрещенной зоны которых значительно выше энергии

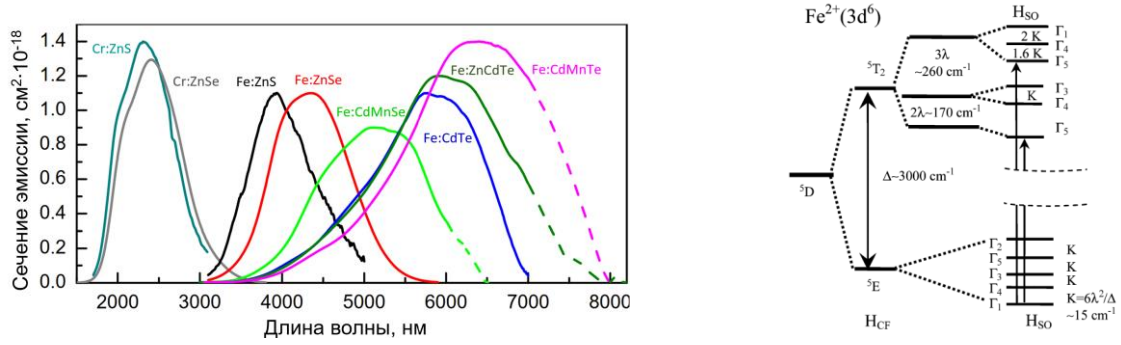
большинства фотонов среднего ИК/дальнего ИК-диапазона, в качестве диэлектриков с высоким коэффициентом преломления и низкими потерями. При тщательном проектировании зонной структуры эти материалы могут также обеспечить необходимые электронные переходы и улучшенные оптические нелинейности [155] в сверхрешетках и квантовых ямах, проволоках и точках. В то же время многие полупроводниковые сплавы A3B5, A2B6 и соли свинца могут обеспечивать ширину запрещенной зоны в среднем ИК-диапазоне, предлагая возможности для разработки полупроводниковых материалов, способных служить основой для устройств среднего ИК-диапазона, имитирующих хорошо зарекомендовавшие себя оптоэлектронные устройства видимого, ближнего ИК и телекоммуникационного диапазона [156]. В среднем ИК-диапазоне даже открываются возможности для исследования взаимодействия света с колебаниями решетки (оптическими фононами), чаще всего в полярных полупроводниковых материалах, таких как нитриды или карбид кремния [157]. Кроме того, так исторически сложилось, что несмотря на многочисленные приложения и фундаментально ориентированные задачи, связанные со средним ИК диапазоном, исследования и разработки в этом диапазоне длин волн были затруднены из-за нехватки оптоэлектронных устройств (как когерентных, так и некогерентных источников, модуляторов, детекторов), оптических материалов и компактных оптических устройств, которые могут быть сконструированы из этих материалов.

§2.2. Лазерные свойства халькогенидов, легированных ионами Fe^{2+}

Твердотельные среды, легированные ионами активатора, представляют собой еще один перспективный путь для когерентных источников среднего ИК-диапазона. Исчерпывающие обзоры лазерных источников в среднем ИК-диапазоне на основе диэлектрических матриц, легированных редкоземельными ионами, были опубликованы Каминским [158]. Халькогенидные кристаллы, легированные ионами переходных металлов (например, Cr^{2+} или Fe^{2+}), имеющие полосу усиления до 50% от центральной длины волны, представляют собой еще один класс твердотельных усилительных сред со сверхширокими полосами поглощения и люминесценции в среднем ИК-диапазоне. Такие лазерные источники могут обеспечить очень высокие уровни мощности, сохраняя хорошее качество пучка. Эти лазеры могут предложить стабильность, эффективность и компактность, а также широкое покрытие спектра и перестройку, которые обычно недоступны для полупроводниковых лазеров.

На сегодняшний день известно о разработке эффективных и широко перестраиваемых A2B6 лазеров с легированием ионами Cr^{2+} и Fe с областью перестройки 2–6 мкм. Например, Cr:ZnSe, Cr:CdS и Cr:CdSe демонстрируют перестройку в 1,88–3,10 мкм, 2,18–3,32 мкм и 2,26–3,61 мкм соответственно, а Fe:ZnS, Fe:ZnSe, Fe:ZnTe и Fe:CdSe – 3,49–4,65 мкм, 3,77–5,05 мкм, 4,35–5,45 мкм и 4,7–6,1 мкм. Успешное развитие лазера Cr:ZnSe [159] вызвало активный прогресс в разработке лазеров Fe:ZnSe, схожего с первым по спектроскопическим и физическим характеристикам и генерирующего в более длинноволновой области спектра. Бóльшие значения сечения поглощения ($\sigma_{abs} \sim 10^{-18}$ см^2) и сечения излучения ($\sigma_{rad} \sim 1{,}1 \cdot 10^{-18}$ см^2) кристалла, а также

возможность легирования с высокой концентрацией ионов (до ~10^{19} $см^{-3}$) делают эту среду перспективной для эффективной генерации и усиления излучения в средней ИК области. Широкая полоса усиления (1,1 мкм по полувысоте) позволяет генерировать фемтосекундные импульсы длительностью от 60 фс (см. ***Рис. 33 (а)***).



(а) *(б)*

Рис. 33 а) Сечение эмиссии при комнатной температуре халькогенидных кристаллов, легированных ионами Cr^{2+} и Fe^{2+} [160,161] *; б) схема энергетических уровней ионов Fe в поле тетраэдрического кристалла ZnSe* [68].

2.2.1. Спектроскопические и физические характеристики лазерной среды Fe:ZnSe

Для многих лазерных приложений среднего ИК-диапазона полупроводники A2B6, легированные переходными металлами, обычно используются в качестве усиливающей среды лазера из-за их уникальных физических и химических свойств. Основные полупроводниковые материалы A2B6 (ZnSe, ZnS, CdSe и ZnTe) обладают высокой прозрачностью в диапазоне от видимого до дальнего ИК-диапазона из-за их широкой запрещенной зоны, а также низкой фононной частоты благодаря большой массе ионов. Изменение показателей преломления ZnS и ZnSe относительно невелико в широком спектральном диапазоне, сводя к минимуму оптическую дисперсию, что важно для формирования ультракоротких лазерных импульсов.

Кристалл ZnSe демонстрирует благоприятные термооптические характеристики. Следует отметить, что по сравнению с лучшими оксидными кристаллическими матрицами полупроводники A2B6 имеют довольно высокий термооптический коэффициент показателя преломления ($dn/dT = 6\cdot10^{-5}$ для ZnSe, $1{,}3\times10^{-5}$ для Ti:Sa и $8{,}6\cdot10^{-6}$ для YAG). Таким образом, правильное управление температурным режимом очень важно для управления энергией таких лазеров. В ***Таблица 8*** приведены оптические и физические свойства кристалла Fe:ZnSe.

Таблица 8. Оптические и физические свойства кристалла Fe:ZnSe

Область прозрачности, мкм	0,5 – 15
n @3,0 мкм	2,42
dn/dT ,K^{-1}	$6{,}34\times10^{-5}$
Нелинейный показатель преломления n_2, $см^2/Вт$	$\sim10^{-14}$
Теплоемкость, Дж/(г·К)	0,34
Теплопроводность, Вт/см К	0,19

Важной особенностью соединений A2B6 является их склонность к кристаллизации в тетраэдрически координированные структуры. Во-первых, ионы в тетраэдрических позициях, лишенные инверсионной симметрии, характеризуются высокой силой осциллятора и малым временем жизни. Во-вторых, тетраэдрическое расположение ионов обеспечивает слабую напряженность кристаллического поля, вызывающую небольшое энергетическое расщепление в узлах примесных ионов и расположение переходов дальше в среднем ИК-диапазоне по сравнению с типичными октаэдрическими координационными узлами [83].

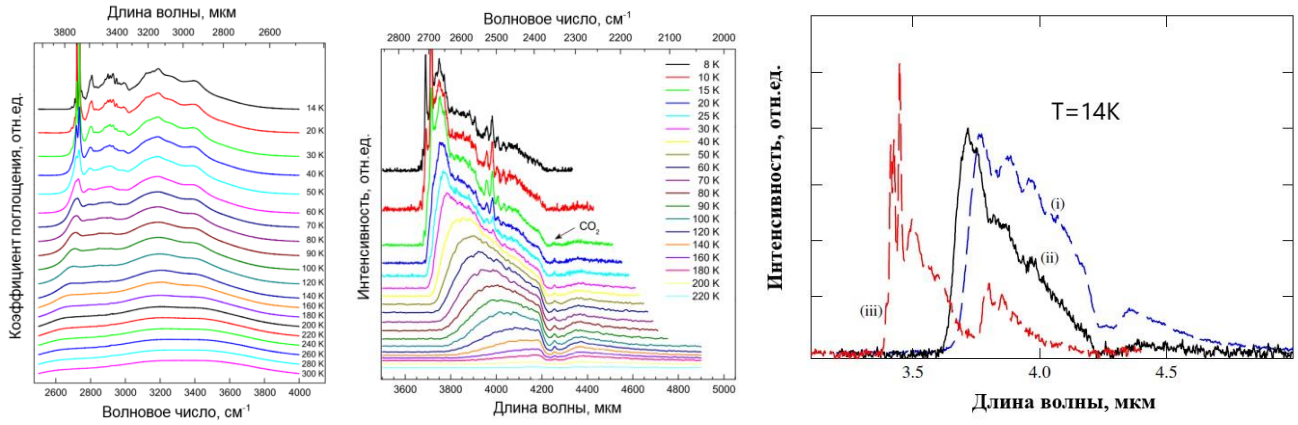
Энергетическая структура ионов переходных металлов в соединениях A2B6 тщательно изучалась с 1960-х годов. Спектры поглощения и люминесценции кристалла Fe:ZnSe при комнатной температуре изображены на ***Рис. 36***, а спектроскопические характеристики просуммированы в ***Таблица 9***. Для активной среды Fe:ZnSe широкие полосы поглощения и люминесценции обусловлены сильной связью между полем кристаллической решетки и электронами ионов переходных металлов. Значительное уширение полосы усиления делает Fe:ZnSe перспективной средой для широкой перестройки по частоте в средней ИК-области спектра, а также для генерации ультракоротких лазерных импульсов.

Спектры поглощения и люминесценции в большом диапазоне температур были измерены в работе [162]. На ***Рис. 34*** представлен спектр поглощения в диапазоне температур 10,5–300 К. При охлаждении образца спектр поглощения имеет несколько явных линий на длине волны около 3,7 мкм, соответствующих электронным переходам. С повышением температуры активируются электрон-фононные переходы и доминируют при температуре $T > 30К$, формируя сглаженный спектр поглощения с центром приблизительно на 3,1 мкм. Спектр люминесценции при температурах $T = 7 - 220К$ также представлен на ***Рис. 34 (а, б)***. Видно, что при повышении температуры сигнал люминесценции значительно уменьшается благодаря термически активированным безызлучательным переходам, а максимум спектра смещается в длинноволновую область. В работе [163] при изменении температуры длина волны генерации лазера Fe:ZnSe смещалась с 4,0 мкм при T=85 К до 4,5 мкм при T=293 К, что объяснялось уширением спектра поглощения и красным смещением его длинноволнового крыла при повышении температуры.

Таблица 9. Спектроскопические свойства кристалла Fe:ZnSe.

Поглощение		**Люминесценция**	
σ_{abs}, 10^{-18} см^2	0,97	σ_{em}, 10^{-18} см^2	1,1
λ_{max}, мкм	3,1	λ_{max}, мкм	4,35
$\Delta\lambda_{FWHM}$, мкм	1,35	$\Delta\lambda_{FWHM}$, мкм	1,13

Спектры поглощения и люминесценции Fe:ZnSe также сильно зависят от концентрации легирующих ионов Fe^{2+}. На ***Рис. 34 (в)*** представлены спектры низкотемпературной (T = 14 К) люминесценции образцов с концентрацией железа $C_{Fe} = 5 \cdot 10^{18}$ см$^{-3}$ и $C_{Fe} = 86 \cdot 10^{18}$ см$^{-3}$. Видно, что спектр люминесценции высоколегированных образцов ($C_{Fe} = 86 \cdot 10^{18}$ см$^{-3}$) слегка смещен в красную область и демонстрирует глубокие пики в длинноволновой части.



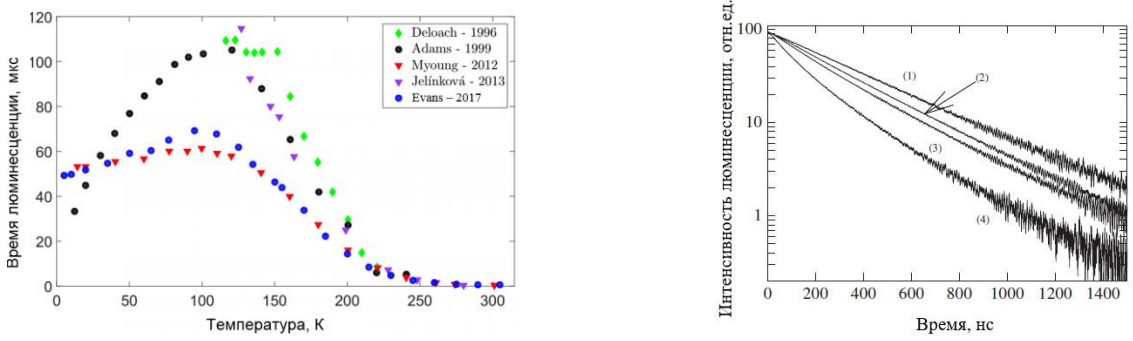
(а) *(б)* *(в)*

Рис. 34 (а) Спектры поглощения и (б) люминесценции кристалла Fe:ZnSe в широком диапазоне температур [162] *и (в) при варьировании концентрации легирующих ионов.*

Важной особенностью кристалла Fe:ZnSe является сильная зависимость времени жизни люминесценции от температуры. При комнатной температуре оно составляет 345–380 нс для кристаллов с разным уровнем легирования и методом роста [162,164]. В работах [165] измерялось время жизни для кристалла Fe:ZnSe выращенного из расплава, и максимальное значение составило около 105 мкс при температуре T=120 К. В работах [162] сообщается о 60 мкс при T=100 К для поликристаллического образца, выращенного методом диффузии. На ***Рис. 35*** представлен график, составленный по данным из этих работ. Стоит отметить, что уровень легирования кристалла у Adams [166] был на два порядка больше, чем у Myoung [167]. Рост времени жизни при увеличении температуры от 0 К до 100 К связан с тепловым увеличением населённости верхнего лазерного уровня $^5T_2$, а дальнейший спад вызван термически активированными безызлучательными переходами [83]. Этот процесс характерен для безызлучательной релаксации в оптических центрах с сильной электрон-фононной связью.

Другой отличительной особенностью кристалла Fe:ZnSe является зависимость времени жизни люминесценции от концентрации легирующих ионов Fe^{2+}. На ***Рис. 35 (б)*** показана кинетика люминесценции кристалла Fe:ZnSe при комнатной температуре при изменении концентрации железа от $0{,}1\cdot10^{18}$ см$^{-3}$ до $112\cdot10^{18}$ см$^{-3}$. В работе [167] измеренная кинетика люминесценции низколегированного кристалла Fe:ZnSe при комнатной температуре (***Рис. 35 (б)***, кривая (1) оказалась одноэкспоненциальной с характерным временем затухания ~382 нс. Кинетика люминесценции высоколегированных кристаллов имеет неэкспоненциальный спад (***Рис. 35 (б)***, кривая (4). Однако аппроксимация этих кривых с помощью экспоненциальных функций приводит к небольшому уменьшению времени жизни до 309 нс для концентраций железа $C_{Fe} = 112\cdot10^{18}$ см$^{-3}$ по сравнению с 382 нс ($C_{Fe} = 0{,}1\cdot10^{18}$ см$^{-3}$). Уменьшение времени жизни люминесценции высоколегированных кристаллов по сравнению с низколегированными кристаллами, а также неэкспоненциальное затухание являются характерными чертами процесса миграции возбуждения. Скорость затухания (W_q), вызванная концентрационным тушением, может быть рассчитана по разности скоростей затухания люминесценции низко- и

сильнолегированных образцов, но даже для сильнолегированного образца W_q = 0,6 мкс$^{-1}$ все же остается меньше скорости тушения люминесценции в результате термически активируемого многофононного поглощения. Для лазерных применений удобно оценивать среднее время затухания люминесценции, определяемое как $\tau_R = \int {}^{I}/_{I_{max}}\, dt$. В результате было установлено, что оно уменьшается с 382 нс для низкоконцентрированного образца до 186 нс для образца Fe:ZnSe с концентрацией железа $C_{Fe} = 112 \cdot 10^{18}$ см$^{-3}$. Из проведенного анализа следует, что время затухания люминесценции больше, чем типичная длительность импульса лазеров с модуляцией добротности (~ 100 нс), и, следовательно, на основе кристаллов Fe: ZnSe может быть получена генерация при комнатной температуре при возбуждении короткими импульсами накачки. Выполненные исследования влияния концентрации легирующих ионов Fe^{2+} на время жизни люминесценции при низкой температуре кристалла показали следующие закономерности [167]. Наблюдалось уменьшение среднего времени жизни люминесценции для высоколегированного образца из-за концентрационного тушения люминесценции ионов Fe^{2+}. Среднее время тушения люминесценции низколегированного образца ($C_{Fe} = 0{,}1 \cdot 10^{18}$ см$^{-3}$), определяемое по времени затухания экспоненциальной зависимости, составило 57 мкс при температуре T = 20 К. Образец с концентрацией железа $C_{Fe} = 5\ 10^{18}$ см $^{-3}$ показал меньшее время затухания люминесценции $\tau_R =$ 50 мкс. Дальнейшее увеличение концентрации приводило к сокращению времени затухания до 7 мкс при концентрации железа $86 \cdot 10^{18}$ см$^{-3}$.



(а) *(б)*

Рис. 35 (а) Время жизни люминесценции Fe:ZnSe в широком диапазоне температур [162]*; (б) кинетика люминесценции образцов Fe:ZnSe с различной концентрацией железа: (1) $C_{Fe} = 0{,}1 \cdot 10^{18}$ см$^{-3}$; (2) $C_{Fe} = 14\ 10^{18}$ см $^{-3}$; 3)$C_{Fe} = 45 \cdot 10^{18}$ см$^{-3}$; 4) $C_{Fe} = 112\ 10^{18}$ см$^{-3}$*[167]

2.2.2. Лазерная генерация в Fe:ZnSe: текущее состояние

Впервые генерация в Fe:ZnSe была продемонстрирована в [166]. Импульсная генерация получена при накачке твердотельными лазерами Er:YAG (2,94 мкм) и Cr:Er:YSGG (2,79 мкм) как при низких температурах, так и при комнатной температуре. Выходная энергия 4,9 Дж при накачке длинными (~1 мс) импульсами свободной генерации Er:YAG лазера была продемонстрирована для Fe:ZnSe лазера, работающего при температуре 85 К [168]. Оптимизация режима импульсной накачки позволила увеличить выходную энергию Fe:ZnSe лазера до 10,6 Дж при дифференциальном КПД по поглощенной энергии η=44%, что на сегодняшний день является

рекордной выходной энергией лазерной генерации в спектральном диапазоне ~4 мкм [169]. Однако для многих приложений гораздо удобнее работать при комнатной температуре или небольшом охлаждении. При комнатной температуре из-за малого времени жизни верхнего лазерного уровня кристалла Fe:ZnSe выходная энергия лазера ограничена. Первая генерация Fe:ZnSe при комнатной температуре в режиме модуляции усиления с перестройкой в спектральном диапазоне 3,9–4,8 мкм была продемонстрирована в [68]. Для увеличения эффективности генерации при комнатной температуре целесообразно использовать короткие импульсы накачки, сравнимые по длительности с временем жизни уровня Fe:ZnSe. В таком режиме получена генерация в кристалле Fe:ZnSe с энергией 6 мДж с дифференциальной эффективностью η=39% при пассивной модуляции добротности лазера Er:YAG [170] и 3,6 мДж с η=16% при активной модуляции добротности Cr:Er:YSGG [171].

Основным ограничением по наращиванию выходной энергии Fe:ZnSe лазера является недостаточно интенсивное развитие твердотельных лазеров накачки, генерирующих мощные лазерные импульсы наносекундной длительности в области 3 мкм [172] (например, в [171] энергия импульса накачки составляла всего 33 мДж). Повышению энергии способствовал переход с твердотельных трехмикронных лазеров на нецепной электроразрядный HF-лазер (2,6–3,1 мкм), генерирующий импульсы с энергией на уровне нескольких джоулей и длительностью 100–200 нс и работающий на частоте повторения в несколько сотен герц [173]. Максимальная энергия, полученная при комнатной температуре, составляет 1,67 Дж [174]. Отметим однако, что генерация высокоэнергетичных импульсов Fe:ZnSe лазера сопровождалась повреждением активного элемента. Таким образом, укорочение импульса накачки приводит к увеличению интенсивности излучения накачки, что ограничивается лазерно-индуцированным повреждением кристалла, и это является вторым важным ограничением по повышению выходной энергии таких лазерных источников. Максимальная средняя мощность генерации Fe:ZnSe при накачке HF-лазером, достигнутая при охлаждении азотом, равняется 35 Вт [161], а при комнатной температуре – 20 Вт, где при частоте следования 20 Гц энергия в одиночном импульсе составляла 1 Дж [174], причем измерения проводились в течение примерно одной секунды из-за опасности повредить активный элемент. Также средняя мощность 2,4 Вт с большой частотой повторения 200 Гц при комнатной температуре была получена в [175]. Однако Fe:ZnSe лазеры, работающие при температуре жидкого азота и показавшие самые высокие выходные энергии, неудобны для практического использования. В связи с этим перспективной представляется разработка Fe:ZnSe лазеров с термоэлектрическими охладителями. Впервые этот подход был применен в [176], где энергия излучения 0,14 Дж была получена при энергии накачки 0,75 Дж. Развитие этого подхода позволило на данный момент достигнуть 7,5 Дж на длине волны 4,3 мкм при накачке длинными импульсами свободной генерации Er:YAG лазера, работающего на длине волны 2,94 мкм [177]. Хорошей альтернативой химических HF-лазеров с точки зрения получения джоулевого уровня выходной энергии при сохранении наносекундной длительности генерируемых импульсов в 3-мкм диапазоне длин волн может служить твердотельный Er:YAG лазер с оптико-механической

модуляцией добротности [178]. С использованием такого источника накачки недавно был продемонстрирован Fe:ZnSe лазер, работающий в режиме модуляции усиления при комнатной температуре и перестраиваемый в диапазоне 3,60–5,15 мкм с энергией до 5 мДж при накачке импульсами с энергией до 15 мДж[179]. Разработка высокоэнергетичных источников накачки в области 3 мкм позволяет рассчитывать на то, что в скором будущем удастся значительно повысить выходную энергию Fe:ZnSe лазеров при сохранении наносекундной длительности. Выполненные в рамках данной диссертационной работы исследования позволили впервые охарактеризовать свойства лазерных кристаллов Fe:ZnSe с точки зрения широкополосного усиления [180–182]. В результате была впервые создана фемтосекундная лазерная система мульгигаваттного уровня мощности, на данный момент являющаяся единственной в мире фемтосекундной лазерной системой, работающей на схеме усиления чирпированных импульсов в среднем ИК-диапазоне (3–5 мкм) [87].

При этом прогресс в разработке Fe:ZnSe лазеров квазинепрерывного и непрерывного действия не был столь впечатляющим, как это было продемонстрировано для импульсного режима работы. Для эффективной работы лазерных кристаллов Fe:ZnSe в условиях непрерывной накачки и при использовании длинных импульсов необходимо охлаждение кристалла Fe:ZnSe до низких температур. В непрерывном режиме наибольшая выходная мощность 9,2 Вт на длине волны 4,15 мкм была достигнута при накачке Fe:ZnSe лазерной системой на Cr:ZnSe [183], работающей при комнатной температуре (КТ) с выходной мощностью 32 Вт и настроенной на длину волны генерации 2,94 мкм [71]. Более высокая средняя мощность 35 Вт была продемонстрирована для импульсно-периодического Fe:ZnSe лазера (частота повторения 100 Гц) с накачкой четырьмя Er:YAG-лазерами с длиной волны 2,94 мкм [184].

2.2.3. Ростовые методы для кристаллов Fe:ZnSe.

Кристаллы Fe:ZnSe могут быть выращены несколькими способами: рост кристалла из расплава с необходимой лигатурой (метод Бриджмана); рост из паровой фазы нелегированного кристалла ZnSe с последующей диффузией ионов Fe через поверхность кристалла; рост из паровой фазы с одновременным легированием методом химического транспорта.

Метод Бриджмана заключается в нагревании поликристаллического материала до температуры плавления в резервуаре и медленном охлаждении с одного его конца, где находится монокристаллическая затравка. Постепенно по всему объему резервуара формируется монокристалл. Однако из-за сублимации материалов A2B6 при температурах, намного меньших температуры плавления, требуется одновременное применение высоких температур и давления, в результате которых неконтролируемо образуются неоднородности, приводящие к паразитному поглощению [160].

Вторым является метод твердотельной диффузии, в ходе которого сначала растится чистый кристалл ZnSe, как правило методом химического осаждения из газовой фазы (Chemical vapour deposition – CVD). После этого на торцы кристалла электронно-лучевым испарением наносятся пленки Fe толщиной около 1 мкм и помещается в запаянную ампулу, заполненной

водородом, где при температуре ~1000ºC в течение 7–20 дней происходит диффузия ионов железа в кристаллическую матрицу ZnSe. Такая методика позволяет получать поликристаллы диаметром до 80 мм. Несмотря на то, что такая технология изготовления материалов A2B6 достаточно развита, она имеет ряд недостатков, особенно в случае Fe:ZnSe. Ионы Fe имеют низкий коэффициент диффузии в ZnSe, что приводит к небольшим длинам диффузии, большому градиенту концентрации ионов и ограничивает изготовление крупноразмерных элементов. В результате получается образец с высоким уровнем легирования (~ 10^{19} $см^{-3}$) на глубину 0,5–1,0 мм [185].

Новая технология, разработанная в Физическом институте им. П.Н. Лебедева РАН, базируется на свободном росте с одновременным легированием. Массоперенос паровой фазы осуществляется физическим транспортом в гелии или водороде. Такая технология позволяет получать монокристаллы с концентрацией ионов железа 10^{17}–10^{19} $см^{-3}$ и однородным легированием по всему объему. Преимуществами данной технологии по сравнению с другими являются высокое структурное совершенство, оптическая однородность выращиваемых кристаллов и малые внутренние потери.

2.2.4. Возможности по наращиванию энергии в моно- и поликристаллах

Отличие между поликристаллическими и монокристаллическими образцами заключается в разном принципе масштабирования выходной энергии лазерного генератора. Так как толщина легированного слоя активного элемента, выращенного методом твердотельной диффузии, составляет ~1 мм с каждой стороны, масштабирование выходной энергии достигается в широкоапертурных образцах с дисковой геометрией путем увеличения энергии накачки. Так как плотность энергии накачки ограничена сверху порогом пробоя кристалла, требуется увеличивать размер пучка накачки. Однако высокая концентрация ионов Fe в поверхностном слое (до 10^{19} $см^{-3}$), малая длина активной среды (1,5–3 мм) и большой размер пучка накачки приводят к возникновению паразитной генерации в направлении, перпендикулярном оптической оси резонатора. В работе [186] она начала проявляться при диаметре пучка 7 мм. Это ограничение было преодолено путем увеличения размера самого активного элемента в работе [187]. Поглощение на длине волны генерации подавило паразитную генерацию и позволило увеличить пучок накачки до 14 мм и, тем самым, повысить выходную энергию.

Уменьшить вероятность паразитной генерации пытаются с помощью создания специального профиля легирования активного элемента. В работе [188] легирующий слой на торцах кристалла имел толщину всего 100 мкм и высокую концентрацию ионов 10^{20} $см^{-3}$. Также активный элемент с нелегированными торцами, но легированной серединой использовался в работе [185]. В обоих случаях это позволило авторам подавить влияние паразитной генерации. Более очевидным решением проблемы является увеличение длины активной среды с одновременным снижением концентрации Fe внутри кристалла [189]. В монокристаллах Fe:ZnSe, выращенных из паровой фазы с одновременным легированием, концентрация Fe, как

правило, ниже, чем в поликристаллах, легированных диффузионным методом, и поэтому они менее подвержены паразитной генерации.

Из всего вышесказанного следует, что возможность получения высокой выходной энергии в случае поликристаллов ограничивается технологическими возможностями роста широкоапертурных образцов с достаточно широким легирующим слоем, в то время как монокристаллы с однородным легированием не обладают таким ограничением. С точки зрения использования кристалла в усилителе для многих приложений требуется высокий контраст излучения ультракороткой длительности по отношению к паразитной генерации, и поэтому поликристаллические образцы менее предпочтительны.

Таким образом, лазерная среда Fe:ZnSe демонстрирует благоприятные свойства для генерации и усиления широкополосного излучения в среднем ИК-диапазоне. Широкая полоса усиления предоставляет достаточно широкий выбор источников накачки. Развитые технологии роста обеспечивают высокое оптическое качество кристаллов и относительно недорогое производство. Достигнутые успехи по генерации в Fe:ZnSe показывают, что запасенная в кристалле энергия может быть эффективно извлечена в процессе усиления даже при комнатной температуре несмотря на короткое время жизни. Благодаря несильному охлаждению активного элемента можно увеличить время жизни и использовать импульсы накачки длительностью до ≈1 мкс.

Оптимальный температурный режим способствует большему выходу люминесценции. При охлаждении сечение поглощения на длинах волн близких к 3 мкм увеличивается, что является несомненным плюсом. При понижении температуры спектр люминесценции становится менее пологим и приобретает линейчатый вид, однако судя по работе [162] это происходит при температуре значительно меньшей даже температуры жидкого азота (85 ^{0}K). С другой, утилитарной стороны, системы охлаждения на сжиженных газах представляют неудобство с точки зрения работы с лазерной установкой, а использование термоэлектрического контроллера всё равно потребует герметичной камеры во избежание выпадения росы на кристалле, поэтому здесь имеет место компромисс между эффективностью и удобством работы.

Сложности в процессе усиления могут быть вызваны температурной зависимостью показателя преломления dn/dT и высоким нелинейным показателем преломления n_2 . Недостаточный теплоотвод и высокая интенсивность лазерного излучения внутри кристалла могут вызвать самофокусировку, высокий нелинейный фазовый набег и стать причиной повреждения активного элемента. Эти свойства кристалла должны быть учтены в конструкции многопроходного усилителя.

§2.3. Разработка мощных импульсных твердотельных лазеров с длиной волны 3 мкм и активной модуляцией добротности в качестве источников излучения накачки кристалла Fe:ZnSe

Существует большой интерес к разработке компактных и эффективных лазерных источников, работающих в 3-мкм диапазоне длин волн как в режиме свободной генерации, так и в режимах модуляции добротности из-за их многочисленных научных, промышленных и медицинских приложений. Микросекундные 3-мкм лазеры получили развитие благодаря близости инфракрасного поглощения воды и гидроксиапатита к их линиям генерации, что сделало такие источники привлекательными для абляции биологических тканей, лазерной хирургии и стоматологического лечения [190]. Указанный диапазон длин волн также хорошо перекрывается с полосами поглощения ионов Fe^{2+} в материалах A2B6 группы, благодаря чему твердотельные 3-мкм лазерные источники перспективны для накачки усилителей и генераторов среднего ИК-диапазона на основе Fe:ZnSe, Fe:CdSe и других перестраиваемых лазеров [191] (см. ***Рис. 36***). Химические нецепные лазеры на основе фтороводорода (HF) и фторида дейтерия (DF) могут создавать наносекундные импульсы с энергией в несколько джоулей для накачки лазерных источников на Fe:ZnSe [187]. Однако твердотельные лазерные источники на основе ионов эрбия или гольмия имеют преимущества перед этими химическими лазерами с точки зрения нетоксичности, удобства и простоты обслуживания.

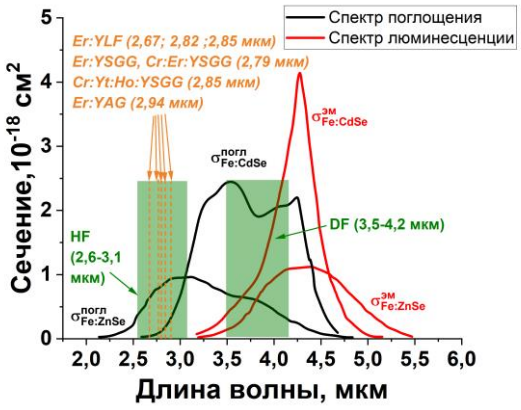


Рис. 36. Сечение поглощения и люминесценции для кристаллов A2B6 группы: Fe:ZnSe (при комнатной температуре) и Fe:CdSe (при температуре 77 К). Стрелками указаны возможные способы накачки таких кристаллов.

В ходе диссертационной работы в качестве лазера накачки были спроектированы и протестированы несколько трехмикронных лазеров: Cr:Er:YSGG, Cr:Yb:Ho:YSGG, Er:YAG и Er:YLF. Поскольку время жизни верхнего рабочего уровня кристалла Fe:ZnSe при комнатной температуре составляет ~370 нс, а время жизни верхнего уровня Fe:CdSe при температуре 77 K составляет порядка нескольких микросекунд, то длительность импульса накачки не должна превышать ~50–100 нс. Это означает необходимость использования лазера, работающего в режиме модуляции добротности, чему в первую очередь и было уделено внимание в диссертации.

Задача разработки мощного 3-мкм лазера, работающего с высокой пиковой и средней мощностью, не может не учитывать свойства кристаллической матрицы, оказывающей влияние на спектроскопические свойства легирующих ионов. В частности, положение высокочастотной границы колебательного спектра матрицы влияет на скорость безызлучательных процессов, ограничивая время жизни и, соответственно, способность активного элемента к запасанию энергии. Это особенно важно для 3-мкм эрбиевых сред, демонстрирующих самоограниченность лазерного перехода и малое сечение усиления.

На текущий момент для генерации в 3-мкм диапазоне длин волн наиболее распространенными ионами активатора являются ионы Er^{3+}, Ho^{3+} и Dy^{3+}. О генерации когерентного излучения вблизи 3 мкм от ионов эрбия впервые сообщалось в 1967 г. [192]. При исследовании кинетики генерации в иттрий-алюминиевом гранате (YAG) было установлено [193], что в получении генерации в этой лазерной среде важную роль играют процессы передачи энергии между соседними ионами эрбия в основной решетке. Процессы передачи энергии могут стать очень эффективными при высокой плотности энергии накачки [194], что начинает определять кинетику населенностей энергетических уровней рабочего перехода 3-мкм лазера при высокой концентрации эрбия. Процесс ап-конверсии с верхнего лазерного уровня приводит к быстрому опустошению нижнего лазерного уровня и обеспечивает непрерывную работу лазерного перехода, который в противном случае мог бы быть самоограниченным из-за неблагоприятного соотношения времени жизни верхнего лазерного уровня по сравнению с нижним. Рециркуляция энергии возбуждения по уровням за счет процессов ап-конверсии является наиболее эффективным способом работы эрбиевого лазера непрерывного действия вблизи 3 мкм. В отличие от режима свободной генерации, процессы передачи энергии «заморожены» при генерации гигантского импульса, что ограничивает доступ к запасенной энергии и снижает КПД лазера.

Также на режимы генерации влияют физические свойства матрицы, в частности теплопроводность и температурный коэффициент показателя преломления dn/dT , характеризующие способность матрицы выдерживать высокие нагрузки при мощной накачке и силу термооптических искажений. Возникающая в активном элементе деполяризация излучения и наведенная анизотропия ограничивают эффективность методов модуляции добротности, требующих определенного состояния поляризации излучения внутри резонатора. Тепловая линза, искажающая каустику, создает риск повреждения оптических элементов (в частности, затворов модуляторов добротности) с невысокой лучевой прочностью, что ограничивает энергию импульса в режиме модуляции добротности.

Таким образом, спектроскопические и физические свойства матриц задают условия на выбор методов модуляции добротности для получения желаемых режимов генерации наносекундных импульсов: с высокой пиковой мощностью, с высокой средней мощностью или с высокой выходной энергией.

В рамках диссертационного исследования были предприняты попытки справиться с этими трудностями, с одной стороны, с точки зрения использования новых материалов для электро-оптической и акустооптической модуляции добротности, и с другой стороны, были проверены возможности метода оптико-механической модуляции добротности для повышения выходной энергии импульсно-периодический лазеров в 3-мкм диапазоне длин волн.

2.3.1. Усиление в 3-мкм лазерных кристаллах

Для оценки запасенной энергии в активном элементе измерялось однопроходное усиление наносекундных лазерных импульсов в эрбиевых 3-мкм кристаллах (Er:YAG, Er:YSGG и Cr:Er:YSGG) при ламповой и селективной диодной накачке, так как оно позволяет оценить мгновенное значение инверсии и, соответственно, запасённую энергию в активном элементе. В качестве пробного импульса использовался импульс отдельно собранного лазера на идентичном активном элементе с электрооптической модуляцией добротности с энергией импульса порядка 10 мДж, что обеспечивает режим усиления слабого сигнала. Все исследуемые кристаллы имели диаметр 4 мм и накачивались ксеноновой лампой с разрядным промежутком 75 мм с энергией в импульсе до 140 Дж и длительностью 100 мкс в керамическом диффузном осветителе.

Коэффициент однопроходного усиления в зависимости от энергии импульса накачки для исследуемых 3-мкм кристаллов представлен на ***Рис. 37 (а).*** Наибольшее усиление $G = 2{,}1$ достигается в кристалле Cr:Er:YSGG благодаря легированию ионами хрома. При энергии около 50 Дж наблюдается резкое увеличение наклона графика, а для кристалла Er:YSGG при этой же энергии наблюдается насыщение на уровне $G = 1{,}7$. Кристалл Er:YSGG демонстрирует большее усиление по сравнению с Er:YAG ($G = 1{,}5$) из-за значительно большего времени жизни верхнего уровня (1,3 мс против 0,1 мс), что обеспечивает бóльшую запасенную энергию для усиления. Полученные значения коэффициента усиления G позволяют оценить инверсию населенностей между уровнями $I_{9/2}$ и $I_{11/2}$ как $\Delta N = ln(G)/l\sigma$, где l – длина прокачанной области (75 мм), σ – сечение вынужденных переходов ($2{,}6 \times 10^{-20}$см^2). При коэффициенте усиления $G = 1{,}5$ в Er:YAG ΔN оценивается в $2{,}1 \times 10^{18}$см$^{-3}$, а при $G = 2{,}1$ в Cr:Er:YSGG – $3{,}8 \times 10^{18}$см$^{-3}$. В этих случаях, в предположении однородно распределенной инверсии, в кристалле диаметром 4 мм запасено от 130 до 240 мДж.

Для оценки роли ап-конверсионных переходов в формировании инверсии в активных элементах было измерено усиление в кристаллах Er:YSGG и Er:YAG при боковой диодной накачке на длине волны около 970 нм (***Рис. 37 (б)***). Длительность импульса накачки составляла 270 мкс с энергией до 3 Дж. Усиление в кристалле Er:YSGG достигает приблизительно такого же значения ($G = 1{,}7$), как и при ламповой накачке с энергией 100 Дж, в то время как в Er:YAG усиление значительно меньше ($G = 1{,}2$), что говорит об определяющей роли возбуждения с высоко лежащих энергетических уровней в этом кристалле.

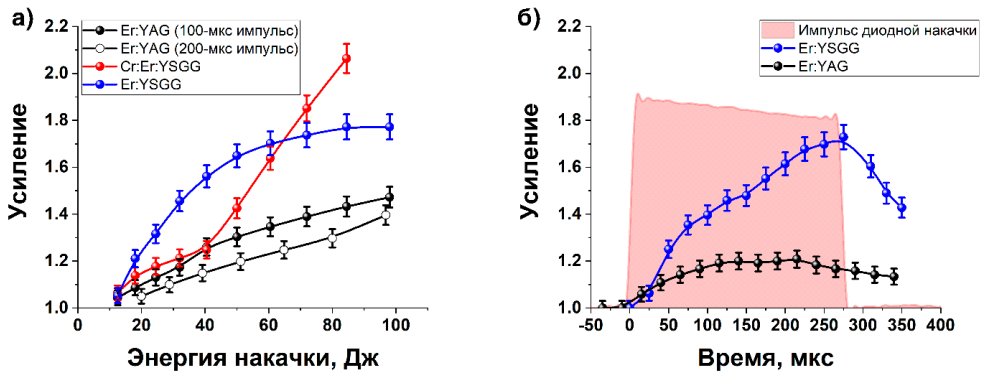


Рис. 37. Зависимости коэффициента однопроходного усиления в кристаллах Er:YAG, Er:YSGG и Cr:Er:YSGG от энергии импульса лампы накачки (для кристалла Er:YAG приведены две зависимости – с импульсами накачки длительностью 100 мкс и 200 мкс) (а), и в кристаллах Er:YAG, Er:YSGG от длительности импульса диодной накачки (б).

2.3.2. Генерация гигантских импульсов в лазерном резонаторе YSGG: Cr^{3+}:Yb^{3+}:Ho^{3+} на основе нового типа электрооптического затвора на кристалле KTP

Поиск электро- и акустооптических материалов, прозрачных в среднем ИК-диапазоне с высокой лучевой прочностью, является актуальной задачей при разработке мощных наносекундных 3-мкм лазерных источников. Особенностью многих электрооптических (ЭО) и акустооптических (АО) материалов является низкое пропускание в среднем ИК-диапазоне; в частности, в области 3 мкм, где высокие потери связаны с наличием связей O-H, внедренных в кристалл в процессе его роста. В связи с этим такие материалы проявляют значительные потери на данных длинах волн и низкую лучевую прочность. Для модуляции добротности 3-мкм лазеров используются ЭО модуляторы на ниобате лития и АО модуляторы на базе парателлурита, германия, а также НПВО-затворы из YAG или сапфира. Для TeO_2 и ниобата лития, наиболее часто используемых материалах модуляторов, лучевая прочность составляет около 0,3 ГВт/см^2 [195]

При выполнении диссертационных исследований был создан твердотельный лазер Cr:Yb:Ho:YSGG с модуляцией добротности, в котором используется новый тип электрооптического затвора на основе кристалла KTP с высокой лучевой прочностью. Первые исследования генерации гигантских импульсов в указанной активной среде были выполнены в [196] с генерацией на длине волны 2,92 мкм. Используемый в данной диссертационной работе электрооптический (ЭО) затвор состоял из двух кристаллов KTP - титанилфосфата калия ($KTiOPO_4$), расположенных друг за другом. Второй кристалл используется для компенсации присущей первому кристаллу анизотропии. Ключевой особенностью этого затвора является его высокая чувствительность к поляризации лазерного излучения при реализации режима генерации гигантских импульсов. Высокоомные кристаллы KTP имеют высокий порог лазерного повреждения (до 3 ГВт/см^2), негигроскопичны, обладают хорошей термической и механической стабильностью при обработке, что отличает их от многих электрооптических кристаллов таких, как KDP, BBO, $LiNbO_3$ кристаллы и т. д. По сравнению с другими электрооптическими материалами, используемыми в среднем ИК-диапазоне, кристалл KTP имеет низкие потери,

несмотря на наличие линий поглощения в KTP на длинах волн около 2,8 мкм из-за содержания OH-группы. Современная технология выращивания кристаллов позволяет избавиться от этих линий поглощения.

Схема экспериментальной установки представлена на ***Рис. 38***. Резонатор с активным элементом размером 4×100 мм был образован двумя плоскими зеркалами с коэффициентом отражения ~100% для глухого зеркала и 60% для выходного зеркала. Гауссово-подобная мода генерировалась с использованием внутрирезонаторной апертуры с максимальной энергией 17 мДж при частоте следования импульсов 2 Гц и 10 мДж при увеличении частоты до 5 Гц с длительностью импульса 50 нс. Увеличение энергии накачки приводило к переходу в моду более высокого порядка. Комбинированная схема генератор-усилитель при сохранении частоты следования импульсов 5 Гц обеспечивала максимальную выходную энергию до 30 мДж (***Рис. 38)***. Дальнейшая модернизация созданного 3-мкм лазера накачки путем добавления третьего усилительного каскада и оптимизации предыдущих каскадов позволила получить на выходе порядка 90 мДж с сохранением частоты следования импульсов на уровне 5 Гц.

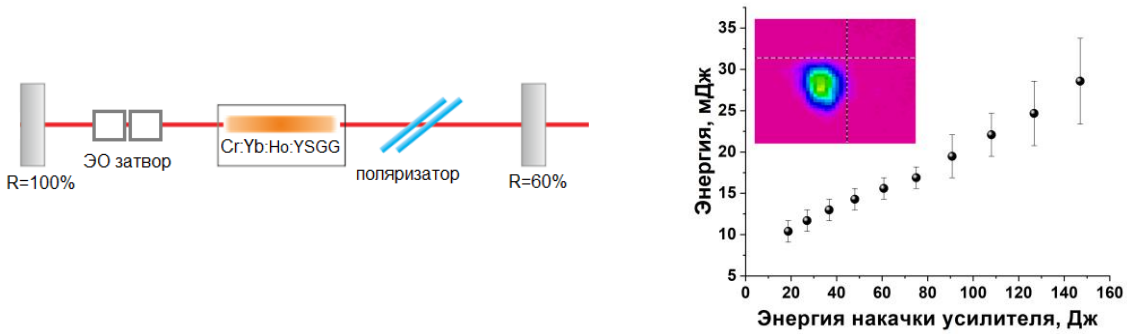


Рис. 38 а) Принципиальная схема 3-мкм YSGG : Cr^{3+}:Yb^{3+}:Ho^{3+} лазера с электрооптической модуляцией добротности на KTP; б) зависимость выходной энергии на выходе лазерной системы генератор-усилитель на основе лазерного кристалла Cr:Yb:Ho:YSGG от энергии накачки для гауссово-подобной моды при частоте следования импульсов 5 Гц. На вставке показан профиль пучка.

Таким образом, лазер Cr:Yb:Ho:YSGG, работающий в режиме модуляции добротности на основе затвора KTP, обеспечивает стабильное излучение мегаваттного уровня мощности в многомодовом и гауссовоподобном режимах генерации и может быть успешно использован в качестве накачки для усилителей на основе Fe:ZnSe на частотах повторения до 5 Гц. При дальнейшем увеличении частоты повторения лазерных импульсов возникают термооптические искажения, которые снижают пространственное качество моды излучения на выходе лазера и сильно уменьшают выходную энергию. Для обеспечения как минимум 10 Гц импульсно периодического режима работы лазерного 3-мкм источника необходима компенсация этих искажений, что и было сделано в рамках диссертационного исследования (см. далее).

2.3.3. Акустооптическая модуляция добротности в 3-мкм диапазоне длин волн с помощью нового типа кристаллов KYW/KGW

Другими перспективными материалами являются кристаллы фольфраматов калия, на основе которых могут быть изготовлены акустооптические (АО) модуляторы. Кристаллы KYW

и KGW обладают значительно более высокой лучевой прочностью на уровне 50 ГВт/см^2 [197] и высоким пропусканием в области 3 мкм. На ***Рис. 39 (а)*** показаны спектры пропускания образцов KYW и KGW, полученные на спектрофотометре, с учетом френелевских потерь. Эти кристаллы имеют узкий провал в спектре пропускания на длине волны 2,84 мкм, однако других особенностей вблизи него не наблюдается, что делает его перспективным для использования в большинстве 3-мкм лазеров. Работа модуляторов добротности на основе кристаллов KYW и KGW, АО свойства которых были исследованы в [198], была продемонстрирована на длинах волн 1,06 мкм и 2,1 мкм в [199], а на 3 мкм изучена в данном исследовании.

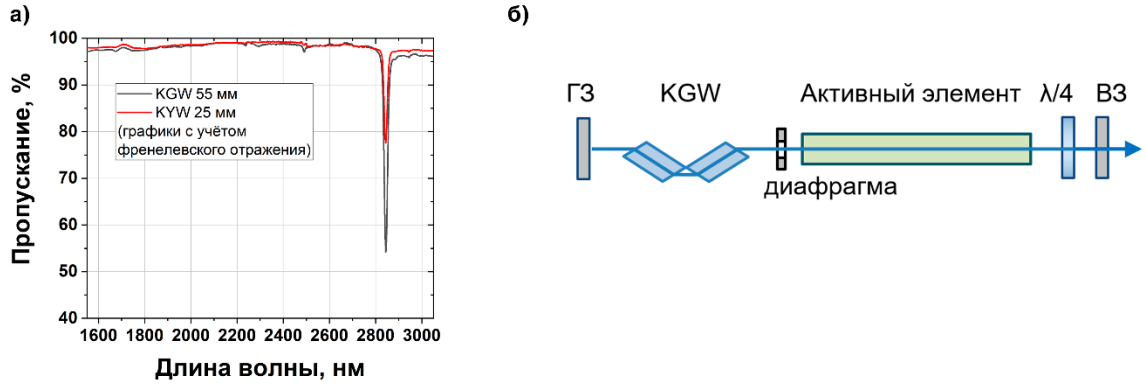


Рис. 39 а) Спектры пропускания кристаллов KYW (25 мм) и KGW (55 мм) с учетом френелевских потерь; б) Экспериментальная установка. ГЗ – глухое зеркало, ВЗ – выходное зеркало. λ/4 – четвертьволновая пластинка для компенсации наведённой деполяризации.

В экспериментах использовались два акустооптических модулятора различных конструкций. Первый модулятор был основан на кристалле KYW длиной 50 мм с просветленными гранями. Второй модулятор был основан на сборке из двух кристаллов KGW, установленных под углом Брюстера к оси резонатора таким образом, чтобы установка модулятора в резонатор не приводила к сносу пучка. Акустический столб в кристаллах формировался двумя пьезопреобразователями из ниобата лития, установленными на нижней грани кристалла, а верхняя грань была скошена под углом, чтобы избежать образования стоячей волны. Внутренние потери были рассчитаны путем измерения пропускания излучения на длине волны 2,8 мкм и составили около 2,3%, а измеренная дифракционная эффективность модулятора KYW на длине волны 2,8 мкм составила 70% при подаваемой акустической мощности 30 Вт.

Работа модуляторов добротности была изучена в лазерах с активными элементами Er:YAG (2,94 мкм), Cr:Er:YSGG (2,79 мкм) и Cr:Yb:Ho:YSGG (2,85 мкм). Для всех них использовалась одна и та же экспериментальная установка, изображённая на ***Рис. 39 (б)***). Резонатор лазера был образован плоскими глухим (ГЗ) и выходным (ВЗ) зеркалами с коэффициентом отражения R=80% в лазере Er:YAG и R=50% в Cr:Er:YSGG и Cr:Yb:Ho:YSGG. Работа модулятора KYW позволила получить 10,8 мДж в лазере Er:YAG при энергии лампы накачки 45 Дж, но была ограничена лучевой прочностью покрытий при бóльшей накачке. Для получения бóльшей выходной энергии в дальнейших экспериментах использовался модулятор на кристаллах KGW с брюстеровскими торцами. и кристаллы с большим временем жизни верхнего уровня: Cr:Er:YSGG (1,4 мс) и Cr:Yb:Ho:YSGG (0,47 мс). В лазере Cr:Yb:Ho:YSGG была

получена максимальная выходная энергия 17,5 мДж. В лазере Cr:Er:YSGG максимальная энергия импульсов составила 29,6 мДж при длительности 75 нс (см. ***Рис. 40 (а)***). Увеличение энергии накачки вызывало появление предимпульсов, что связано с ограниченной дифракционной эффективностью модулятора добротности и высоким коэффициентом усиления лазерного кристалла. Зависимость выходной энергии от частоты следования импульсов в режимах свободной генерации и модуляции добротности представлена на ***Рис. 40 (б)***, демонстрирующая пагубное влияние сильной тепловой линзы на выходную энергию, свойственное 3-мкм лазерам из-за высокого квантового дефекта. Выходная энергия лазера Cr:Er:YSGG была увеличена до 85,7 мДж в двухкаскадном лазерном усилителе на основе идентичных кристаллов размером 5×90 мм без просветляющих покрытий при сохранении близкого к аксиально симметричному поперечного распределения интенсивности в пучке.

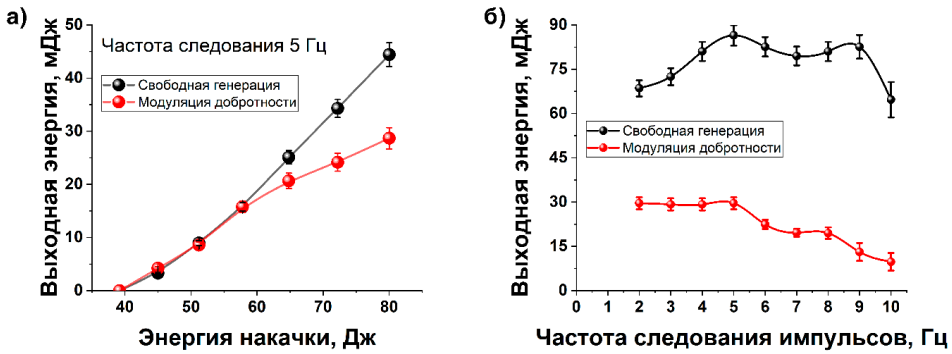


Рис. 40 а) Зависимость выходной энергии импульсов в лазере Cr:Er:YSGG в режиме свободной генерации и модуляции добротности; б) зависимость выходной энергии импульсов лазера Cr:Er:YSGG от частоты следования импульсов в режимах свободной генерации и модуляции добротности при энергии накачки 80 Дж.

2.3.4. Измерение силы тепловой линзы в 3-мкм лазерных кристаллах и реализация схем её компенсации на основе внутрирезонаторной оптики

Термооптические искажения в кристалле приводят к формированию тепловой линзы, которая уменьшает объем моды внутри кристалла и приводит к повреждению оптических элементов. Термонаведенная анизотропия и деполяризация препятствуют правильной работе модуляторов добротности, требующих высокого контраста излучения по поляризации. С целью увеличения эффективности лазера и предотвращения повреждений оптических элементов такие искажения должны быть скомпенсированы.

Для этого термооптические искажения в 3-мкм лазерных кристаллах Er:YAG, Er:YSGG и Cr:Er:YSGG были измерены путём анализа изменения каустики пробного пучка при мощной импульсной ламповой накачке. Измерения показали, что в исследуемых кристаллах при средней мощности накачки 1,5 кВт фокусное расстояние формируемой астигматичной тепловой линзы достигает 15-30 см. Наиболее сильная фокусировка наблюдается в Cr:Er:YSGG, опять же, благодаря большему поглощению ионами хрома.

В диссертационном исследовании были использованы две схемы компенсации тепловой линзы на основе внутрирезонаторной оптики. Первая схема компенсации основывалась на использовании двух рассеивающих линз, установленных по обе стороны от активного элемента

в резонаторе лазера Cr:Er:YSGG с акустооптической модуляцией добротности на KGW. Вторая схема подразумевала использование сферических зеркал и будет рассмотрена далее. Действие рассеивающих линз заключается в коллимации пучка в плечах лазерного резонатора и, таким образом, увеличении размеров пучка на зеркалах и частоты лазерных импульсов без риска повреждения оптических элементов. Экспериментальная работа сопровождалась численным моделированием каустики пучка на основной поперечной моды с помощью формализма ABCD матриц. В согласии с проведенными расчетами рабочая точка находится вблизи границы области устойчивости резонатора с фокусным расстоянием рассеивающих линз между 300 мм и 240 мм.

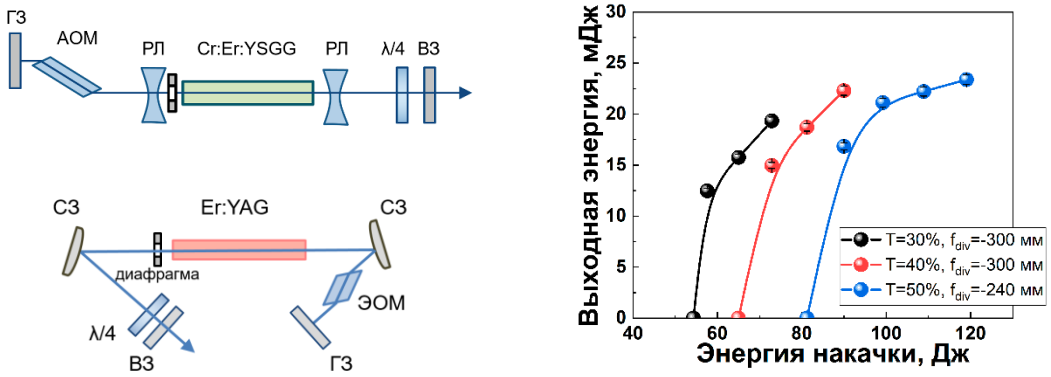
Экспериментальная установка представлена на ***Рис. 41 (а)***. Использовались несколько выходных зеркал с коэффициентом отражения 80–50% и пар рассеивающих линз с фокусными расстояниями 400 мм, 300 мм и 240 мм. Наибольшая выходная энергия 23 мДж в основной поперечной моде на частоте 10 Гц была получена с рассеивающими линзами 240 мм и выходным зеркалом R=50%. Использование более глухих зеркал и меньшей оптической силы линз приводили к пробою оптических покрытий из-за высокой внутрирезонаторной мощности. Зависимость выходной энергии от энергии накачки показывает довольно высокий дифференциальный КПД и высокий порог накачки (см. ***Рис. 41 (б)***). При малой мощности накачки оптическая сила тепловой линзы мала, и резонатор нестабилен, в то время как при увеличении энергии накачки рабочая точка пересекает границу устойчивости и устанавливается в оптимальное положение. Таким образом, в данной схеме за счет компенсации сильной тепловой линзы продемонстрировано увеличение частоты следования импульсов до 10 Гц с сохранением выходной энергии наносекундных импульсов больше 20 мДж.

Несмотря на превалирующие генерационные характеристики кристалла Cr:Er:YSGG, его работа в режиме высокой средней мощности накачки затруднительна из-за нагрева кристаллов, в результате которого кристаллы усилителя вносят слишком сильные искажения в проходящий через них лазерный пучок и велик риск повреждения активных элементов. По сравнению с Cr:Er:YSGG активная среда Er:YAG обладает лучшими тепловыми свойствами матрицы, что позволяет увеличивать среднюю тепловую нагрузку на кристалл без риска его повреждения. На основе этого кристалла были разработаны наносекундный генератор и двухкаскадный усилитель.

Er:YAG обладает меньшим коэффициентом усиления по сравнению с Cr:Er:YSGG, поэтому для уменьшения внутрирезонаторных потерь в качестве компенсации использовались не линзы, а выпуклые сферические зеркала. Алгоритм разработки схемы аналогичен работе с рассеивающими линзами. С учетом оптической силы тепловой линзы при мощной лаповой накачке был изготовлен набор выпуклых сферических зеркал различных радиусов в согласии с результатами моделирования на основе ABCD формализма. Управление каустикой внутри резонатора позволило воспользоваться электрооптическим затвором на ниобате лития. Считается, что лучевая стойкость этого кристалла недостаточна для модуляции добротности 3-мкм лазеров. Однако, при проведении диссертационных исследований в такой схеме на протяжении длительного времени повреждений ни на поверхности, ни в объеме кристалла не

наблюдалось. Схема разработанного лазера представлена на ***Рис. 41 (а)***. Влияние тепловой линзы компенсировалось с помощью двух сферических зеркал с радиусом закругления ROC=-100 мм. Как и прежде, диафрагма диаметром 2,5 мм обеспечивала генерацию с малым числом поперечных мод. На частоте 10 Гц были получены импульсы с энергией 20 мДж. Энергия импульсов была увеличена в двух однопроходных усилителях на идентичных кристаллах Er:YAG до энергии 63 мДж. Для компенсации тепловой линзы в усилителях между генератором, первым и вторым усилителями были установлены выпуклое сферическое зеркало с радиусом -1000 мм и рассеивающая линза с фокусным расстоянием -240 мм, соответственно.

Лазерная система на основе кристалла Er:YAG с электрооптической модуляцией добротности обладает определенными достоинствами по сравнению с Cr:Er:YSGG с акустооптической модуляцией добротности. Помимо более высокого качества пучка, длина волны кристалла Er:YAG (2,94 мкм) находится ближе к максимуму поглощения кристалла Fe:ZnSe, что обеспечивает более эффективную накачку, чем эрбиевые источники с генерацией на длине волны 2,79 мкм (Er:YSGG и Cr:Er:YSGG).



(а) *(б)*

Рис. 41 а) Схемы лазеров Cr:Er:YSGG с АО модуляцией добротности на основе кристалла KGW и компенсацией тепловой линзы и Er:YAG с ЭО модуляцией добротности на ниобате лития и компенсацией тепловой линзы на выпуклых зеркалах.; б) зависимость выходной энергии лазера от энергии накачки при различных коэффициентах пропускания выходного зеркала T и оптической силы рассеивающих линз f_{div};

2.3.5. Оптико-механическая модуляция добротности 3-мкм эрбиевого лазера на основе вращающегося зеркала

Факторами, ограничивающими выходную энергию лазера при работе с электрооптическими и акустооптическими затворами, являются требование на состояние поляризации излучения и ограниченная лучевая прочность материалов модуляторов. Затворы, обеспечивающие оптикомеханический режим модуляции добротности (вращающийся диск, зеркало или призма), в свою очередь, обладают существенно меньшими энергетическими потерями, не требуют конкретной поляризации излучения и имеют гораздо бóльшую лучевую прочность. Однако, для эффективной модуляции добротности необходимо согласовать параметры вращения затвора с кинетикой генерации в активном элементе. Наибольшая энергия может быть достигнута, когда момент генерации импульса совпадет с моментом минимальных

потерь в резонаторе. При недостаточно быстром переключении добротности вероятна генерация многопичкового импульса.

Исходя из результатов проведенных измерений усиления в 3-мкм кристаллах следует, что наибольшая выходная энергия импульса может быть получена в кристалле Cr:Er:YSGG. Для реализации оптико-механической модуляции добротности был спроектирован плоско-плоский резонатор длиной 36 см, глухое зеркало которого было установлено на моторе с максимальной частотой вращения 600 Гц, а выходное зеркало R=50% стояло стационарно. Была получена энергия до 135 мДж, однако не в единичном наносекундном импульсе (см. ***Рис. 42***), причем по мере увеличения выходной энергии число импульсов увеличивалось. Свойства оптико-механической модуляции добротности тесно связаны с динамикой соотношения потерь в резонаторе и усиления в активном элементе. При заданной скорости вращения зеркала благодаря высокому усилению в кристалле время развития генерации импульса в резонаторе малó, и генерация происходит ранее момента достижения минимальных потерь резонатора. В результате, вся запасенная энергия не расходуется, и за время замыкания резонатора успевают сгенерироваться еще несколько импульсов. Для увеличения полезных потерь и скорости переключения добротности также использовалась плоскопараллельная пластинка YAG в качестве выходного зеркала (R≈16%) с увеличенной длиной резонатора до 50 см. Однако и в этих условиях реализовывался многоимпульсный режим. В результате, большой коэффициент усиления оказался препятствием для генерации одиночного наносекундного импульса при рабочих частотах вращения зеркала (500–700 Гц). Преодолеть это ограничения в средах с высоким усилением может более быстрое переключение добротности, то есть бóльшая скорость вращения мотора.

Оптико-механическая модуляция добротности в лазере Er:YAG благодаря меньшему коэффициенту усиления позволила согласовать скорость переключения добротности и кинетику развития генерации, благодаря чему был получен одноимпульсный режим генерации. Для увеличения частоты следования импульсов до 10 Гц, компенсации тепловой линзы и получения высокого качества пучка в качестве глухого зеркала было установлено выпуклое зеркало с радиусом закругления ROC=-350 мм, а длина резонатора увеличена до 54 см. В этом случае были получены импульсы с энергией 75 мДж и длительностью 123 нс при накачке 278 Дж.

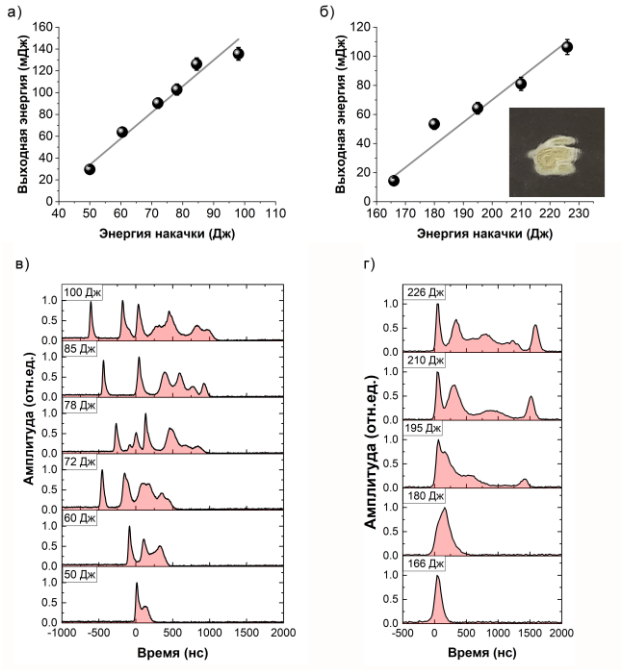


Рис. 42. Энергия и временная форма импульса в лазерах Cr:Er:YSGG (а,в) и Er:YAG (б,г) с вращающемся зеркалом при различной энергии накачки. На вставке изображен прожиг фотобумаги от пучка в многоимпульсном режиме.

2.3.6. Исследование работы лазеров в режиме свободной генерации и модуляции добротности с активными элементами Er:YLF, Er:YSGG и Er:YAG с импульсной диодной боковой накачкой

Одним из подходов к увеличению частоты лазерных импульсов с высокой выходной энергией является использование диодной накачки. В этом случае происходит возбуждение непосредственно на верхний лазерный уровень, что уменьшает выделение тепла по сравнению с ламповой накачкой, сопровождаемой множеством безызлучательных переходов. Ионы эрбия имеют полосу поглощения вблизи длины волны 970 нм, а лазерный переход происходит между уровнями $^4I_{11/2}$ и $^4I_{13/2}$. В то время как для непрерывной и квазинепрерывной генерации чаще используется продольная диодная накачка, для мощной импульсной генерации более предпочтительна боковая схема накачки кристалла. Благодаря этому происходит более однородная прокачка кристалла, способствующая высокому качеству пучка и уменьшению тепловой нагрузки на элемент.

В диссертации были исследованы параметры свободной генерации и модуляции добротности в 3-мкм лазерных кристаллах Er:YAG, Er:YSGG и Er:YLF в специально разработанном квантроне с боковой диодной накачкой на основе диодных импульсных решеток на длине волны 975 нм. Использовались две версии квантрона: с тремя и шестью диодными решетками. В первой версии квантрон содержал три решетки с пиковой мощностью 2 кВт, которые были установлены вокруг кристалла со смещением на 120^0 относительно друг друга. Решетки и кристалл охлаждались водой из чиллера с контролем температуры до ~10 ^oC, благодаря чему можно было варьировать длину волны генерации решеток и, соответственно, глубину поглощения излучения накачки внутри активного элемента.

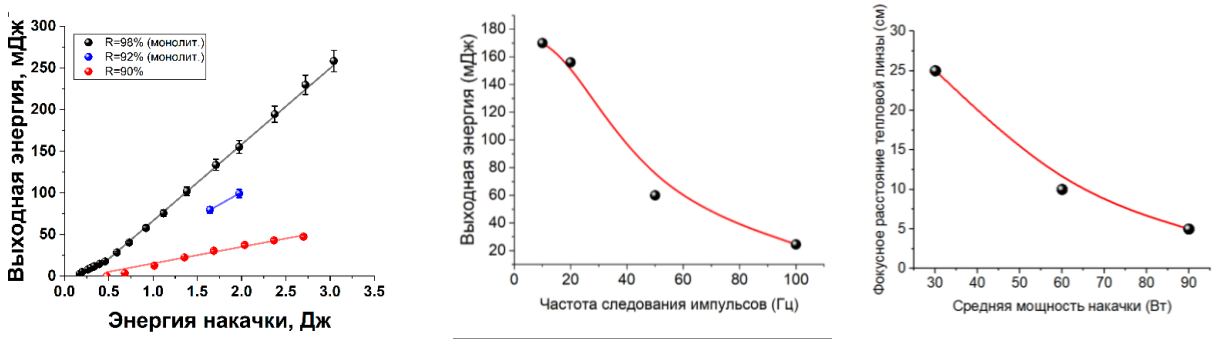
Исследовались два кристалла Er:YAG размером 3x50 мм в монолитном исполнении с нанесенными на грани кристалла глухим и выходным зеркалами. Коэффициент отражения зеркала на первом кристалле составлял R=98%, втором кристалле – R=92%. Энергия импульса варьировалась путем управления длительностью импульса накачки при постоянном токе. Таким образом, при длительности импульса 470 мкс суммарная энергия накачки составляла около 3,0 Дж. Максимальная энергия 255 мДж с дифференциальным КПД 9% была получена в кристалле с выходным зеркалом R=98%.

Так как в режиме модуляции добротности невозможно использовать кристаллы с нанесенными на них зеркалами, зеркала были удалены с кристаллов, а торцы были просветлены. Для исследования генерационных свойств был создан резонатор с двумя плоскими диэлектрическими зеркалами, выходное зеркало имело пропускание T=10%. Выходная энергия составила 45 мДж при длительности импульса 400 мкс на частоте 3 Гц. Зависимость выходной энергии от длительности импульса накачки представлена на ***Рис. 43 (а)***

Вторая версия квантрона содержала не три, а шесть аналогичных диодных решеток, установленные в два кольца по три решетки. Кольца были повернуты друг относительно друга на 60^0 для более однородного профиля усиления в кристалле. Эксперименты по генерации в кристалле Er:YSGG показали, что тепловая линза всё еще играет значительную роль в формировании каустики резонатора при диодной накачке. На ***Рис. 43 (б)*** представлена зависимость выходной энергии от частоты следования импульсов в резонаторе длиной 15 см с выходным зеркалом с коэффициентом отражения R=80%. Максимальная энергия 170 мДж была достигнута на частоте следования импульсов 10 Гц. Однако при большей частоте следования дифракционные потери, вызванные более сильной тепловой фокусировкой, приводили к уменьшению выходной энергии до 60 мДж при частоте следования импульсов 50 Гц. Для разработки схемы компенсации тепловой фокусировки была измерена оптическая сила тепловой линзы, возникающей в кристалле Er:YSGG при мощной диодной накачке, по методике, описанной ранее для ламповой накачки. Фокусное расстояние тепловой линзы в Er:YSGG достигает 25 см при средней мощности накачки 30 Вт (3 Дж, 10 Гц).

В итоге был создан резонатор с компенсацией тепловой линзы для генерации в режиме модуляции добротности. Тепловая линза компенсировалась с помощью глухого сферического выпуклого зеркала с радиусом 500 мм, так что диаметр основной моды составлял от 1,6 мм до 1,9 мм по всей длине резонатора длиной 210 мм. Коэффициент отражения выходного зеркала составлял 70%. Для модуляции добротности использовались электрооптический модулятор на основе кристалла ниобата лития и акустооптический модулятор на основе KGW. Из-за дифракционных потерь для поперечных мод высшего порядка, а также потерь, связанных с деполяризацией в активном элементе, выходная энергия составляла приблизительно половину от величины, указанной выше для свободной генерации. В режиме модуляции добротности была получена энергия около 21 мДж с использованием обоих типов модуляторов. Перекачка энергии

из свободной генерации в модуляцию добротности составила около 25%, что свойственно для эрбиевых кристаллов из-за самоограниченности лазерного перехода.



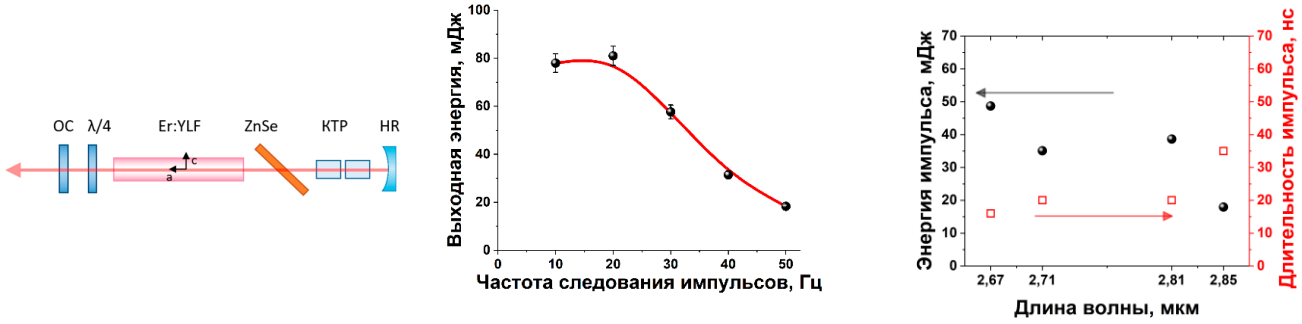
(а) *(б)* *(в)*

Рис. 43 а) Зависимость выходной энергии лазера Er:YAG от длительности импульса накачки (черный и синий – кристаллы с нанесенными на торцы зеркалами R=98% и R=95% соответственно; красный – просветленный кристалл с отдельно стоящими зеркалами, R=90%); б) Зависимость выходной энергии лазера Er:YSGG в свободной генерации от частоты импульсов при энергии накачки 3 Дж (в) и зависимость фокусного расстояния тепловой линзы в кристалле Er:YSGG от средней мощности накачки (б).

Также исследовалась генерация в кристалле Er:YLF, который обладает рядом важных преимуществ перед другими эрбиевыми средами благодаря материальным свойствам фторидной матрицы, а именно слабой отрицательной тепловой линзе и анизотропии кристалла. Вследствие этого возможна работа на высокой частоте следования лазерных импульсов, что дает возможность стабилизировать тепловые режимы работы лазера. Исследуемый кристалл Er:YLF длиной 70 мм и диаметром 3 мм, вырезанный вдоль оси «а», с уровнем легирования 15% был выращен методом Бриджмана.

Резонатор был образован сферическим зеркалом с высокой отражающей способностью с радиусом кривизны ROC=1 м и плоским выходным зеркалом. Радиус кривизны глухого зеркала был оптимизирован для режима генерации с частотой следования 10 Гц. Кристалл Er:YLF с диодной накачкой демонстрирует высокое усиление: свободная генерация с энергией 39 мДж была реализована даже без выходного зеркала, когда резонатор образован глухим зеркалом и торцом активного элемента. При использовании плоскопараллельной пластинки из YAG (8% отражения от грани) в качестве выходного зеркала достигается энергия 128 мДж. Свободная генерация наблюдалась на четырех спектральных линиях, распределение энергии в которых зависит от коэффициента отражения выходного зеркала.

Генерация наносекундных импульсов реализована в Er:YLF-лазере с описанным выше электрооптическим модулятором добротности на кристалле KTP. Плоскопараллельная пластина из ZnSe устанавливалась в резонатор под углом Брюстера для поддержания линейной поляризации излучения внутри резонатора. Режим работы с модуляцией добротности был протестирован при изменении частоты следования лазера. Из-за влияния отрицательной термооптической линзы, с увеличением частоты следования импульсов было необходимо параллельно уменьшать радиус кривизны глухого сферического зеркала резонатора (***Рис. 44 (а)***).



(а) *(б)* *(в)*

Рис. 44 а) Схема Er: YLF-лазера с модуляцией добротности.. Резонатор образован плоским выходным зеркалом (ВЗ) и вогнутым зеркалом с высокой отражающей способностью (ГЗ). Электрооптическая модуляция добротности основана на кристалле KTP. ZnSe и четвертьволновые пластинки используются для поддержания линейной поляризации излучения внутри резонатора.; б) выходная энергия Er:YLF-лазера в режиме свободной генерации и модуляции добротности в зависимости от частоты следования импульсов. (в) Перестроечная кривая Er:YLF-лазера при использовании дифракционной решетки и призмы из CaF_2 и соответствующая длительность импульса в режиме модуляции добротности.

На ***Рис. 44 (б)*** показана выходная энергия импульсов в режиме свободной генерации и модуляции добротности в зависимости от частоты следования импульсов. Более крутое выпуклое зеркало может увеличить энергию при высокой частоте следования импульсов при аккуратном выборе метода компенсации термонаведенных искажений внутри активного элемента и удержании резонатора в зоне устойчивости. В режиме модуляции добротности на частоте 10–20 Гц генерировался импульс с энергией до 82 мДж и длительностью 13 нс, что позволило реализовать ранее никем в мире не достигаемою пиковую мощность 6,3 МВт в лазере Er:YLF. На частоте 50 Гц выходная энергия составила 18 мДж и, вероятно, может быть увеличена путем подбора более оптимального сферического глухого зеркала для согласования каустики с прокаченной областью в кристалле. При всех частотах следования импульсов генерация происходила на длине волны 2,67 мкм.

Перестройка по длине волны лазера Er:YLF осуществлялась с помощью призмы CaF_2 с углом 60^0 при частоте следования импульсов 10 Гц (см. ***Рис. 44 (в)***). Импульсы с энергией 80 мДж на длине волны 2,67 мкм были получены с выходным зеркалом R = 50%; на длинах волн 2,71 мкм и 2,81 мкм использовалось зеркало R = 80%; а благодаря использованию выходного зеркала с более высоким коэффициентом отражения (R=90%) удалось получить наносекундные импульсы на длине волны 2,85 мкм с выходной энергией до 18 мДж.

Таким образом, проведенные исследования рассматривали генерацию различных активных элементов в сочетании с разными методами модуляции добротности. Лазерные генераторы на основе активных сред с большим временем жизни (в частности, Cr:Er:YSGG) при использовании электрооптических и акустооптических модуляторов обеспечили большую выходную энергию. Кроме того, такие среды продемонстрировали и бóльшее усиление импульсов. Однако, из-за свойств матрицы (невысокая теплопроводность) частотные режимы работы и качество выходного пучка ограничены при интенсивной ламповой накачке. Наибольшая пиковая и средняя мощность продемонстрирована в среде Er:YLF с мощной боковой диодной накачкой и электрооптической модуляции добротности благодаря свойствам активной

среды, а именно большому времени жизни и слабой отрицательной тепловой линзе. Высокая выходная энергия одиночных наносекундных лазерных импульсов была получена в генераторе на основе активной среды Er:YAG с оптико-механической модуляцией добротности на основе вращающегося зеркала. Это обуславливается согласованием кинетических свойств генерации в Er:YAG (малым усилением и большим временем развития генерации) с кинетикой переключения добротности резонатора на основе модулятора, традиционно считающегося «медленным», в то время как в среде Cr:Er:YSGG даже при малой накачке одноимпульсный режим получить не удалось. Таким образом, для различных режимов генерации оптимальными являются различные сочетания активных элементов и методов модуляции добротности.

§2.4. Экспериментальное исследование режимов усиления широкополосных 4 мкм импульсов в многопроходном усилителе, компрессия усиленных импульсов

2.4.1. Разработка и создание полностью автоматизированной системы управления и контроля твердотельной лазерной системой в вакуумном корпусе для предотвращения поглощения излучения на 4,3 мкм (линия CO_2)

Как известно, углекислый газ, содержащийся в атмосфере, имеет сильную линию поглощения вблизи длины волны 4,3 мкм – то есть в области усиления лазерной среды Fe:ZnSe. Чтобы избежать её влияния на спектрально-временные свойства излучения, последний каскад параметрического усилителя, стретчер, многопроходный усилитель и компрессор были помещены в вакуумную камеру (***Рис. 45***). Для оптимизации пересечения пучков в многопроходном усилителе, а также юстировки различных элементов схемы были разработаны автоматизированные юстировки на основе шаговых двигателей с управлением микроконтроллером, позволяющие юстировать элементы, находящимися внутри вакуумной камеры. Для охлаждения кристалла Fe:ZnSe использовался элемент Пельтье, установленный на водяной радиатор. Для регистрации спектрально-временных характеристик излучения в вакуумную камеру могла быть также помещена схема FROG. Вакуумная камера оснащена форвакуумным и турбомолекулярными насосами, позволяющими получать разрежение на уровне $0{,}7\cdot10^{-1}$ Торр и $0{,}5\cdot10^{-3}$ Торр соответственно.

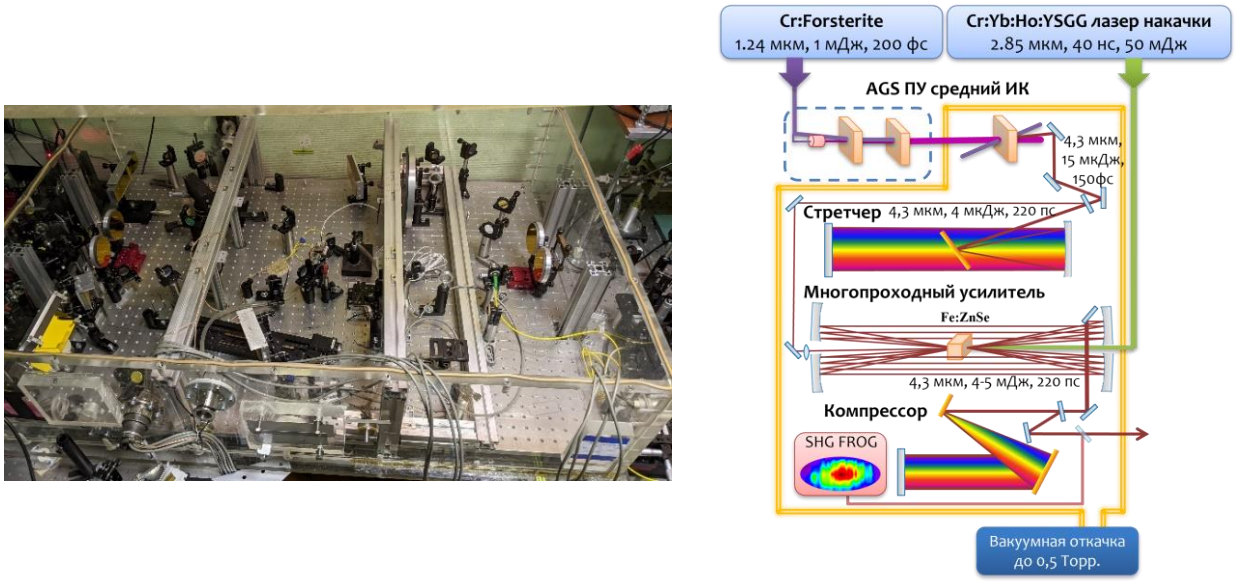


Рис. 45. Фотография и блок-схема фемтосекундной лазерной системы Fe:ZnSe.

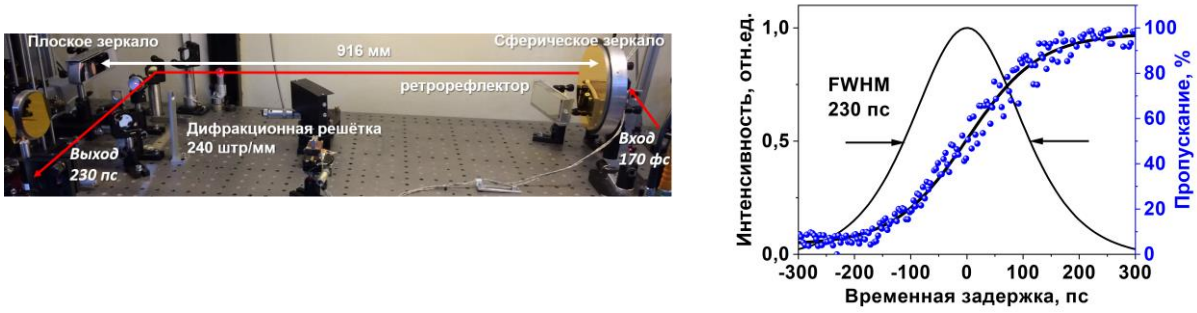
На ***Рис. 47 (а)*** приведены спектры излучения параметрического усилителя после прохождения около 2 м в воздухе и вакууме ($0{,}7\times10^{-1}$ Торр). Видно, что при создании достаточного разрежения в камере провал в окрестности 4,2–4,3 мкм исчезает и спектр «выравнивается». Отметим, что для стабильной работы системы не требуется глубокий вакуум. Поддержание давления на уровне $0{,}7\cdot10^{-1}$ Торр достаточно для отсутствия каких-либо искажений в спектре и длительности генерируемых импульсов, что позволяет использовать только форвакуумный насос.

2.4.2. Усиление чирпированных импульсов (~230 пс) в многопроходном усилителе на кристалле Fe:ZnSe с концентрацией ионов железа ~$3\cdot10^{18}$ $см^{-3}$ с оптической накачкой 3-мкм лазером

2.4.2.1. Стретчер фемтосекундного импульса параметрического усилителя среднего ИК-диапазона

Созданный в параметрическом усилителе затравочный импульс (20 мкДж, 150 фс, 4,3 мкм) перед усилением растягивался по длительности в решеточном стретчере. Схема стретчера состояла из решетки 240 штр./мм. с золотым покрытием (угол блеска $26{,}7^0$, Richardson Gratings), сферического зеркала с фокусным расстоянием 916 мм и плоских золотых зеркал (Tydex) (заднего зеркала и ретрорефлектора). Экспериментально длительность растянутого импульса определялась по методике, основанной на измерении пропускания плазменного зеркала (***Рис. 46***). Для этого излучение хром-форстеритового лазера фокусировалось с помощью линзы с фокусным расстоянием $f = 200$ мм на поверхность германиевой пластинки в пятно с интенсивностью 80 $ГВт/см^2$. Излучение инжекции на выходе из стретчера фокусировалось на пластинку с помощью параболического зеркала с фокусным расстоянием $f = 100$ мм . За пластинкой располагался детектор, с помощью которого измерялось её пропускание в зависимости от задержки между импульсами. Затем полученная кривая дифференцировалась для получения кросскорреляционной функции. Длительность

растянутого импульса, полученного из измерений, составила 230 пс. Коэффициент пропускания стретчера составил ~30%.

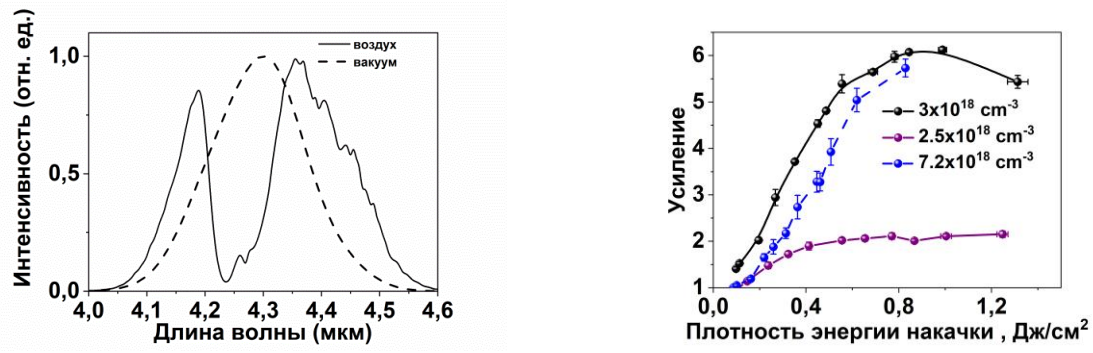


(а) *(б)*

Рис. 46 Схема стретчера (а) и длительность импульса на выходе из стретчера, измеренная с помощью методики плазменного зеркала (б).

2.4.2.2. *Выбор оптимальной плотности энергии 3-мкм импульсной накачки для эффективного усиления в Fe:ZnSe*

Для получения максимальной энергии лазерного импульса на выходе из многопроходного усилителя предварительно была измерена зависимость коэффициента усиления кристалла Fe:ZnSe с уровнем легирования 3×10^{18} см$^{-3}$ от плотности энергии накачки. В качестве излучения накачки для этих экспериментов использовался импульсный Cr:Yb:Ho:YSGG лазер, состоящий из генератора и двух усилителей. Излучение на выходе этого лазера имеет следующие характеристики: длина волны 2,85 мкм, длительность импульс, а накачки 40 нм, энергия 90 мДж. Для определения оптимальной плотности энергии накачки излучение фокусировалось на кристалл в пятно с диаметром около 3 мм (по интенсивности по уровню $1/e^2$), а энергия варьировалась тонкопленочным поляризатором. Диаметр пучка инжекции в кристалле составлял порядка 2,7 мм (по интенсивности по уровню $1/e^2$). В экспериментах использовались кристаллы в геометрии нормального падения излучения накачки на них. На ***Рис. 47 (б)*** изображена зависимость коэффициента усиления на проход в зависимости от плотности энергии накачки. Видно, что оптимальная плотность энергии составляет 0,8 – 1 Дж/см^2. Именно это значение использовалось в дальнейшем для экспериментов.



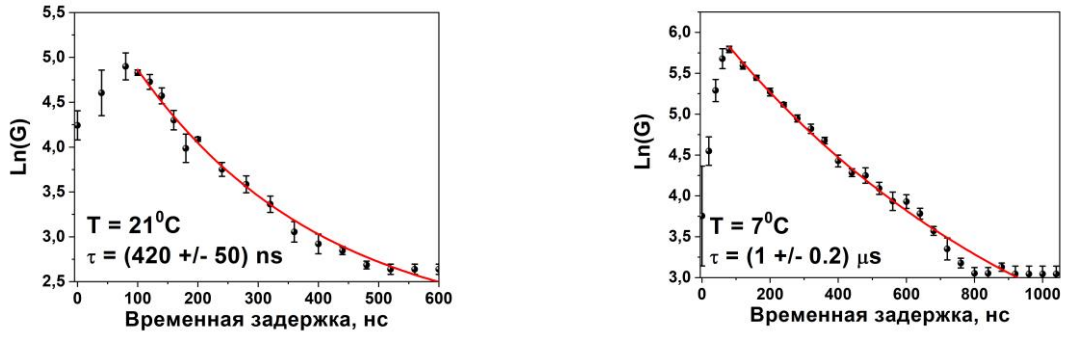
(а) *(б)*

Рис. 47 (а) Спектры излучения ПУ на воздухе и в вакууме $0,7\times10^{-1}$ Торр после прохождения расстояния около 2 м. (б) Зависимость коэффициента усиления на проход от плотности энергии накачки.

2.4.2.3. Исследование усилительных свойств Fe:ZnSe для широкополосной инжекции среднего ИК-диапазона при однократном проходе через активную среду

Предварительно были проведены эксперименты по измерению времени жизни инверсии населенностей в Fe:ZnSe с целью измерения динамики усиления. Для этого использовалось низкоэнергетичное затравочное излучение ~40 нДж на центральной длине волны 4,3 мкм, которое усиливалось при однократном проходе через активный элемент. Измерения проводились при двух разных температурах: при комнатной температуре и при 7 °C. Временная задержка между импульсами накачки и инжекции изменялась на наносекундном временном масштабе. Усиление слабого сигнала измерялось при каждой временной задержке.

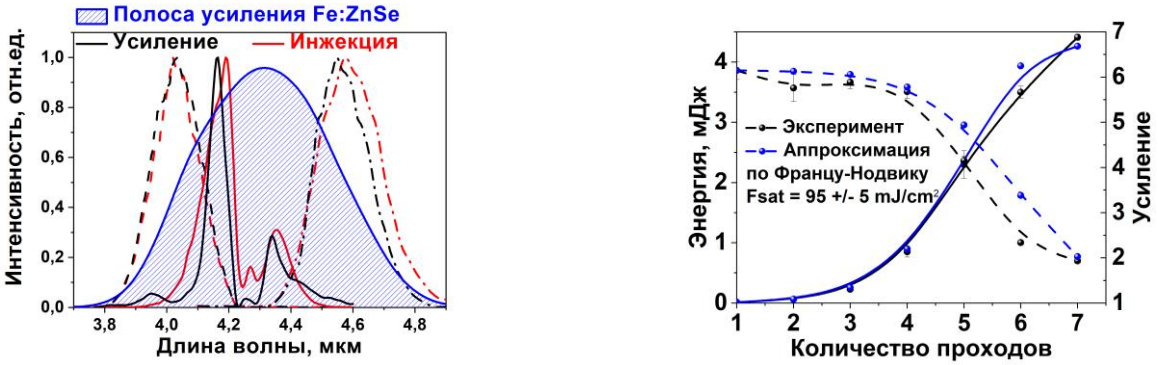
Как показано на ***Рис. 48***, при комнатной температуре значение времени жизни верхнего уровня составляет 350 ± 40 нс, тогда как охлаждение до 7 °C приводит к увеличению времени жизни до 1,0 ± 0,2 мкс, что хорошо согласуется с [68,200]. Временная задержка, обеспечивающая максимальное значение усиления, использовалась для дальнейших экспериментов. После этого были исследованы усилительные свойства Fe:ZnSe во всей полосе усиления. Для этого два кристалла AGS ПУ были синхронно повернуты на небольшой угол около 42°, что давало возможность перестраивать центральную длину волны выходного спектра ПУ от 4,0 мкм до 4,6 мкм.



(а) *(б)*

Рис. 48 Время жизни инверсии населенностей в Fe:ZnSe, измеренное при комнатной температуре (а) и при 7 °C (б).

На ***Рис. 49 (а)*** показаны три особых спектра инжекции среднего ИК-диапазона (красные кривые), относящиеся к коротковолновому, центральному и длинноволновому частям полосы усиления Fe:ZnSe с центром на 4,0, 4,3 и 4,6 мкм и соответствующие спектры после усиления на одном проходе. Как видно, спектры после усиления лишь незначительно отличаются от спектров инжекции. Полученное значение усиления за проход составляет около шести и остается постоянным во всей полосе усиления Fe:ZnSe при низкоэнергетичном входном затравочном сигнале (~40 нДж).



(а) *(б)*

Рис. 49 (а) Перестройка спектра параметрического усилителя (красные штриховые кривые) в пределах полосы усиления Fe:ZnSe (синий заштрихованный контур) и его трансформация после однократного прохождения через усилитель Fe:ZnSe (черные штриховые кривые). (б) Зависимость коэффициента усиления и выходной энергии от числа проходов в многопроходном усилителе при плотности энергии накачки 0,8 Дж/см².

Таким образом, подводя итоги данной части диссертационной работы, можно сказать, что активная среда Fe:ZnSe может быть эффективно использована в качестве усилителя широкополосного фемтосекундного лазерного излучения среднего ИК (4-5 мкм) диапазона во всей полосе усиления (3,9–4,6 мкм).

2.4.2.4. Исследование многопроходного усиления широкополосной инжекции среднего ИК-диапазона в активной среде Fe:ZnSe

Схема многопроходного усиления состоит из двух пар сферических зеркал ($f = 500$ мм) с золотым покрытием, расположенных на расстоянии 1 м друг от друга, с кристаллом, расположенном посередине (в фокальной плоскости зеркал). После 7-ми проходов через кристалл на выходе из многопроходного усилителя была получена энергия 4,4 мДж. Дальнейшее увеличение количества проходов приводило к уменьшению выходной энергии. Эволюция выходной энергии и коэффициента усиления с числом проходов представлена на ***Рис. 49 (б)***.

Оптимизация схемы многопроходного усилителя заключается в реализации его максимального (КПД) и сводится, во-первых, к определению оптимального сечения пучков накачки и усиливаемого сигнала в активном элементе и, во-вторых, к определению оптимального числа проходов усиливаемого излучения через активную среду. Для этого в диссертационном исследовании было осуществлено моделирование процесса многопроходного усиления в активной среде Fe:ZnSe. Считалось, что моды накачки и инжекции в кристалле согласованы. Далее учитывалось, что усиленное лазерное излучение распространяется в усилителе без потерь, что может быть реализовано в реальных условиях за счет организации пониженного остаточного давления воздуха в усилителе. Для расчета усиления импульса в насыщенном режиме используется формула Франца-Нодвика, в которой усиливающая среда рассматривается в рамках двухуровневой модели

$$J_{out} = J_{sat}\, ln[\,1 + G_0(exp(J_{in}/J_{sat}) - 1)], \qquad (7)$$

J_{out} - плотность энергии инжекции после однократного прохода через усилитель длины L, обладающий плотностью энергии насыщения J_{sat}, J_{in} – плотность энергии инжекции на входе в

усилитель, $G_0 = \exp(g_0 \times L)$ – ненасыщенный коэффициент усиления, а g_0 – погонный коэффициент усиления слабого сигнала. Уравнение Франца-Нодвика может быть обобщено для расчета плотности энергии на выходе после нескольких проходов через усилитель.

Уравнение (7) может быть записано для n-ого прохода в виде:

$$J_{out,n} = J_{sat}\, ln[\,1 + G_n(exp(J_{in,n}/J_{sat}) - 1)], \quad (8)$$

Для оценки величины плотности энергии на входе для $n+1$ шага, выходное значение на n-ом шаге умножается на коэффициент, характеризующий потери в резонаторе $R > 0$:

$$J_{in,n+1} = (1 - R)J_{out,n}, \quad (9)$$

Необходимо учесть, что после каждого прохода через усилитель, коэффициент усиления уменьшается в соответствии с выражением:

$$G_{n+1} = G_n - \left(\frac{J_{out,n} - J_{in,n}}{J_{sat}}\right), \quad (10)$$

Коэффициент усиления для прохода с номером *n* записан в виде:

$$G_n = exp(g_n L), \quad (11)$$

где g_n– коэффициент усиления слабого сигнала для n-ого прохода в резонаторе.

В расчетах в качестве входных параметров использовались следующие величины: $E_{in} = S \times J_{in}$- входная энергия инжектируемого импульса; D -диаметр перетяжки пучка инжекции в активной среде; $S = \frac{\pi D^2}{4}$ – площадь пучка инжекции; R - нерезонансные потери в усилителе на проход (потери на проход в усилителе минус потери на поглощение в кристалле); L - длина кристалла; g_0 - коэффициент усиления малого сигнала.

Таблица 10. Значения параметров, используемых в расчете энергии выходного импульса из усилителя.

E_{in}, мкДж	D, мм	G_0	R, %
1	2-10	5,8	2

Дополнительно на ***Рис. 49 (б)*** приведена аппроксимация экспериментальных данных расчетными кривыми на основе вышеописанного приближения Франца-Нодвика. Отметим, что сложность согласования экспериментальных и численных данных заключалась в том, что в реальном эксперименте усиливаемый пучок, распространяясь в тракте усилителя, увеличивался в размерах. Только измерение поперечного размера усиливаемого пучка на каждом проходе позволило добиться результата. Плотность энергии насыщения, полученная на основе аппроксимации, составила $95 \pm 5\, мДж/см^2$. Полученное значение отличается от опубликованного ранее 60 мДж/см^2 [201], что может быть связано с эффектами дифракции, пространственным качеством пучка и влиянием эффектов усиления спонтанного излучения (УСИ) и паразитной генерации (см. далее) [202].

Отдельно остановимся на применимости используемого приближения Франца-Нодвика при описании широкополосного усиления затравочного излучения среднего ИК-диапазона в активной среде. Для удовлетворения требованию монохроматичности спектра усиливаемого излучения ($T_{21} \ll \tau \ll T_{32}, W_p^{-1}$, где τ – длительность усиливаемого импульса, T_{21} – время

релаксации нижнего лазерного уровня, T_{32} – время жизни верхнего лазерного уровня, W_p^{-1} – величина, обратная скорости накачки и равная длительности импульса накачки) будем считать, что усиливается чирпированный импульс. Таким образом, в каждый момент по времени происходит последовательное усиление определённой отдельной монохроматической компоненты в спектре. В результате расчетная модель изменится следующим образом. Разобьем чирпированный импульс во времени на N сегментов, так что каждому моменту по времени t_i будет соответствовать своя мгновенная частота $\omega_i = \omega_0 + i \times \delta t$. Таким образом произойдет сегментирование по времени и других параметров расчетной задачи. В результате расчетная модель будет содержать n проходов и внутри каждого прохода i шагов по времени. Для коэффициента усиления g, инверсии населенностей ΔN и плотности энергии J на выходе из усилителя получим следующие соотношения.

$$g_i^n = \Delta N_i^n \sigma_0 L \frac{(\Delta\omega/2)^2}{(\Delta\omega/2)^2 + (\omega_0 - \omega_i)}, \quad (12)$$

$$\Delta N_i^n = \Delta N_{i-1}^n - \frac{1}{Q_i \hbar \omega_p L}\left(J_{out,i}^n - J_{out,i}^{n-1}\right), \quad (13)$$

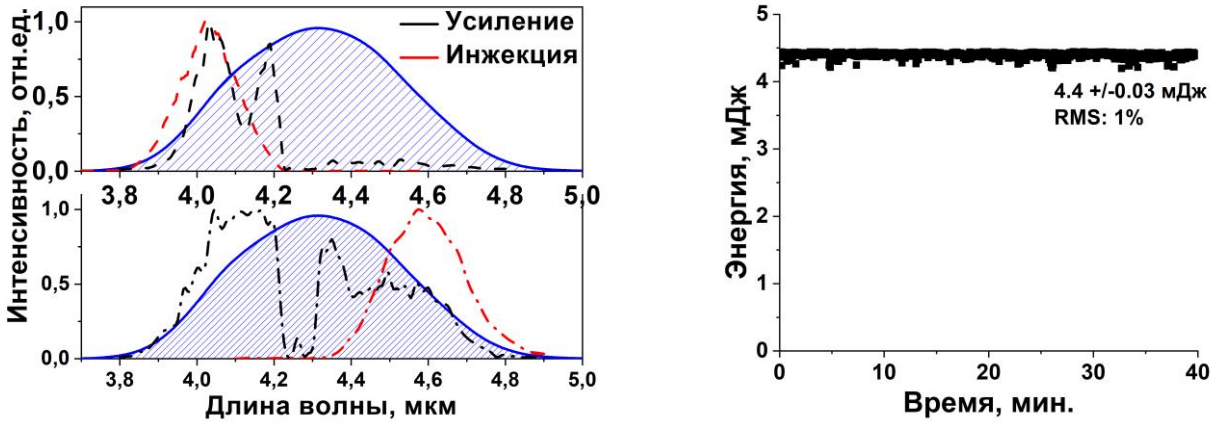
$$J_{out,i}^n = J_{sat,n} \times \left[1 + \left\{exp\left(\frac{J_{out,i}^{n-1}}{J_{sat,n}}\right) - 1\right\} exp(g_{i-1}^n)\right], \quad (14)$$

где σ_0 – сечение в максимуме полосы усиления активной среды, $\Delta\omega$ – полуширина лоренцевского контура полосы усиления активной среды, L – длина среды, $Q_i = \frac{\hbar\omega_p}{\hbar\omega_i}$ – отношение энергии кванта накачки с энергии кванта генерируемого излучения (квантовый дефект). Использование такого подхода позволяет рассматривать усиление чирпированных импульсов затравочного излучения, центральная длина волны которого не совпадает с максимумом спектра усиления активной среды.

Для изучения работы многопроходного усилителя на других длинах волн спектр инжекции был перестроен из центра полосы усиления Fe:ZnSe. Сдвиг на 4,0 или 4,6 мкм приводит к уменьшению выходной энергии. Кроме того, настройка спектра ПУ со смещением относительно центра полосы усиления кристалла Fe:ZnSe приводит к неоднородному усилению различных спектральных составляющих в лазерном импульсе среднего ИК-диапазона из-за высокого коэффициента усиления. На ***Рис. 50 (а)*** показаны спектр инжекции и выходного излучения после шести проходов в усилителе Fe:ZnSe для исходных спектров на центральных длинах волн 4,0 и 4,6 мкм. Хорошо видны две разные части усиленных спектров. Первая часть (вблизи 4,0 мкм) связана с входным затравочным излучением и повторяет его с некоторыми изменениями, связанными с профилем коэффициента усиления. Однако есть и вторая часть (вблизи 4,2 мкм), где спектральные составляющие отсутствовали на входе в усилитель. Это проявление УСИ и паразитной генерации в кристалле Fe:ZnSe (см. ниже). В результате, запасенная в Fe:ZnSe усилителе энергия тратится не только на усиление импульса инжекции, но и на паразитную генерацию, что значительно понижает энергию усиленного излучения и КПД

усилителя. Проведенная работа по уменьшению влияния УСИ на процесс усиления импульса инжекции в кристалле Fe:ZnSe позволила в конечном счете во всём диапазоне перестройки по длине волны (от 4,0 мкм до 4,6 мкм) получить энергию на уровне ~4 мДж.

На ***Рис. 50 (б)*** представлена зависимость выходной энергии из многопроходного усилителя, зарегистрированная в течение 40 минут. Среднеквадратичное отклонение энергии от своего среднего значения составляет меньше 1%.



(а) *(б)*

Рис. 50 (а) Преобразование спектра широкополосной инжекции среднего ИК-диапазона (красные кривые) после пяти проходов через Fe:ZnSe усилитель (черные кривые). Заштрихованный синим контур – полоса усиления Fe:ZnSe. (б) Стабильность выходной энергии многопроходного усилителя.

Наконец, можно добавить, что разработанная схема может быть модифицирована для значительного увеличения выходной энергии до субтераваттного уровня мощности с выходной энергией в десятки миллиджоулей и длительностью импульса в десятки фемтосекунд. При относительно низкой плотности энергии насыщения усиления около 60-100 мДж/см^2 выходная энергия сильно определяется как длиной, так и поперечным сечением активного элемента. Для подавления потерь на излучение в направлении, перпендикулярном оптической оси, диаметр пучка должен быть меньше длины усиливающей среды. В этом случае разумно оставить его на уровне ~5 мм. Кроме того, следует использовать высокоэнергетическую накачку. Лазер накачки должен обеспечивать энергию 120 мДж, чтобы поддерживать плотность энергии лазера накачки на уровне 0,6–0,8 Дж/см^2, что на данный момент может быть реализовано с помощью элементов Er:YAG и Er:YLF на высокой частоте повторения до 500-1000 Гц [191,203]. Таким образом, по нашей оценке, выходная энергия, извлекаемая из многопроходного Fe:ZnSe усилителя, для этих начальных условий должна составлять около 22 мДж. Использование смеси газов для расширения спектра и компрессора, работающего в режиме аномальной дисперсии групповой скорости (см. п. 3.4.3.2), позволит получать выходную мощность около 0,4 ТВт при длительности имульсов менее 4-х оптических циклов поля. Использование оптико-механического затвора для увеличения энергии и импульсной мощности 3-мкм лазера накачки позволяет достичь энергии до 0,8 Дж при сниженной частоте повторения 1 Гц [178]. При сохранении оптимальной плотности энергии накачки на кристалле Fe:ZnSe такая энергия обеспечивает пучок до ~1 см в

диаметре. Расчеты, выполненные в приближении Франца-Нодвика, показывают, что в подобном усилителе можно достичь выходной энергии ~110 мДж, что при сохранении трехкратного фактора компрессии позволяет ожидать тераваттный уровень выходной мощности (см. ***Рис. 51***).

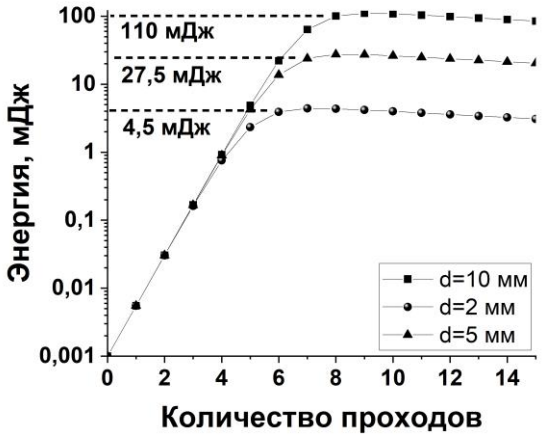


Рис. 51 Зависимость выходной энергии многопроходного усилителя Fe:ZnSe от количества проходов при разных диаметрах пучка инжекции d=2 мм, 5 мм, 10 мм.

Влияние УСИ и паразитной генерации на выходные характеристики лазерного усилителя на Fe: ZnSe

Большие значения ненасыщенного коэффициента усиления ($G_0 \approx 6$) халькогенидов, легированных ионами железа, могут приводить к возникновению таких нежелательных эффектов, как паразитная генерация и УСИ. Паразитная генерация возникает за счет того, что УСИ начинает захватываться оптическими элементами усилителя, формирующих обратную связь. Оба эти явления приводит к уменьшению уровня инверсии и, соответственно, запасенной энергии в усилителе, и в результате к уменьшению коэффициента усиления и энергии на выходе усилителя.

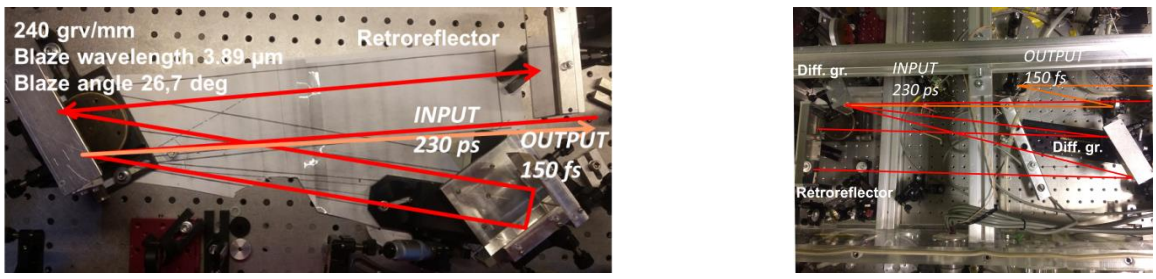
Порог по УСИ определяется условием, при котором оно становится главным механизмом уменьшения инверсии населенностей в активной среде [204], то есть $(ln\ G_0)^{0.5}\big/_{G_0} = \Omega/4$, где $\Omega = \frac{\pi D^2}{4l^2}$ - телесный угол, в который захватывается спонтанное излучение и усиливается в активной среде длины l и диаметра D. Таким образом, для наиболее эффективной борьбы с эффектом УСИ необходимо увеличивать телесный угол, то есть увеличивать диаметр D и/или уменьшать длину l активной среды. Необходимость поддержания определенного коэффициента усиления, что диктуется требованием по достигаемой выходной энергии, ограничивает уменьшение длины активной среды. Таким образом, возникает оптимальное соотношение между диаметром и длиной активной среды, которое в случае лазерного элемента Fe:ZnSe составило $D/l \sim 1$. Измеренный ненасыщенный коэффициент усиления такой, что эффекты УСИ уже при одном проходе сгенерированного спонтанного излучения через Fe:ZnSe могут играть роль: $(ln\ G_0)^{0.5}\big/_{G_0} \approx 0{,}2$. Однако, всё меняется в том случае, если торцы кристалла Fe:ZnSe плохо

просветлены на генерируемых длинах волн. Этому способствует также высокий коэффициент френелевского отражения у матрицы ZnSe, R@4,4 мкм ≈ 17%. Если предположить 100% отражение сгенерированного излучения от другого торца кристалла, то условие на старт эффектов УСИ сильно изменяется, а именно $(ln\ G_0^2)^{0.5}/G_0^2 = \acute{\Omega} = \frac{\pi D^2}{16l^2}$, что для Fe:ZnSe быстро превращается в условие для благоприятного развития эффектов УСИ: $(ln\ G_0^2)^{0.5}/G_0^2 \approx 0{,}06 > \pi/64$. Таким образом, для борьбы с эффектами УСИ необходимо отдельно контролировать остаточное отражения просветляющих покрытий Fe:ZnSe, что и было сделано.

Из-за относительно высокого ненасыщенного коэффициента усиления Fe:ZnSe помимо УСИ развивается эффект паразитной генерации. Это приводит к тому, что возникает ограничение на достижимый коэффициент усиления. Экспериментально это контролировалось по поперечному распределению интенсивности в выходном пучке и по уровню выходной энергии. Незначительная разъюстировка многопроходного усилителя Fe:ZnSe при сохранении микроджоульного уровня затравочного излучения на входе в усилитель позволила сильно подавить уровень паразитной генерации, как это обычно делается в УСИ лазерных системах высокой пиковой мощности [205], и тем самым обеспечить доступ к большей части запасенной в усилителе энергии.

2.4.3. Компрессия 4-мкм излучения в решеточном компрессоре до фемтосекундной длительности

Для компенсации дисперсии стретчера и кристалла многопроходного усилителя были спроектированы две схемы компрессора: на одной и двух решетках. В схеме на основе одной решетки (см. ***Рис. 52)*** отсутствуют искажения пучка (угловой чирп), связанные с непараллельностью решеток, однако она более требовательна к юстировке из-за ограниченного размера каждого из элементов (уголкового отражателя и ретрорефлектора). Первоначально была собрана именно такая схема. Однако, как показали наши измерения, в такой геометрии компрессора часть спектральных компонент терялась в процессе распространения. Поэтому было принято решение перейти на схему, состоящую из двух решеток (240 штр./мм., Richardson gratings) и ретрорефлектора (плоское зеркало с золотым покрытием, Tydex) (см. ***Рис. 52***), что позволило избавиться от потерь. Пропускание такого компрессора составило 80%.



а) *б)*

Рис. 52 Схема компрессора на основе одной (а) и двух (б) решеток.

Для измерения длительности, как уже отмечалось выше, в вакуумную камеру была также помещена схема FROG. Для генерации второй гармоники в этой схеме использовался кристалл AGS толщиной 500 мкм. Генерируемый сигнал неколлинеарной второй гармоники регистрировался спектрометром Solar SDH-IV. На ***Рис. 53*** приведена измеренная и восстановленная спектрограммы, а также восстановленные спектр (220 нм FWHM) и длительность (153 фс FWHM) излучения на выходе из системы.

Геометрия компрессора позволяет изменять выходную длительность вплоть до 1,5 пс, что важно для компенсации дисперсии оптических элементов, расположенных на пути распространения лазерного импульса до мишени, исследования роли длительности лазерных импульсов на протекание различных нелинейно-оптических процессов, а также оптимизации лазерного воздействия на среду, самокопрессии лазерных импульсов, генерации суперконтинуума и т.д.

Помещение оптической схемы в вакуумную камеру позволяет избежать влияния линии поглощения атмосферного углекислого газа вблизи длины волны 4,3 мкм на спектрально-временные свойства излучения. Перестройка длины волны лазерного излучения в диапазоне 4,3 – 4,6 мкм обеспечивает не только удобство проведения экспериментов, например, без использования вакуумной откачки, но также тонкую подстройку длины волны в окрестности молекулярного резонанса. Изменение длины волны позволяет выбирать показатель преломления для излучения накачки в газовых смесях, содержащих CO_2, а также оптимизировать потери, например, при работе с органическими кристаллами, также имеющими линии поглощения в области среднего ИК-диапазона. На длине волны 4,6 мкм была получена выходная энергия до 3 мДж при длительности импульса 160 фс. Таким образом, длина волны выходного излучения из системы перестраиваема в пределах 4,3 – 4,6 мкм при незначительном изменении длительности, а область перестройки ограничена полосой усиления среды Fe:ZnSe.

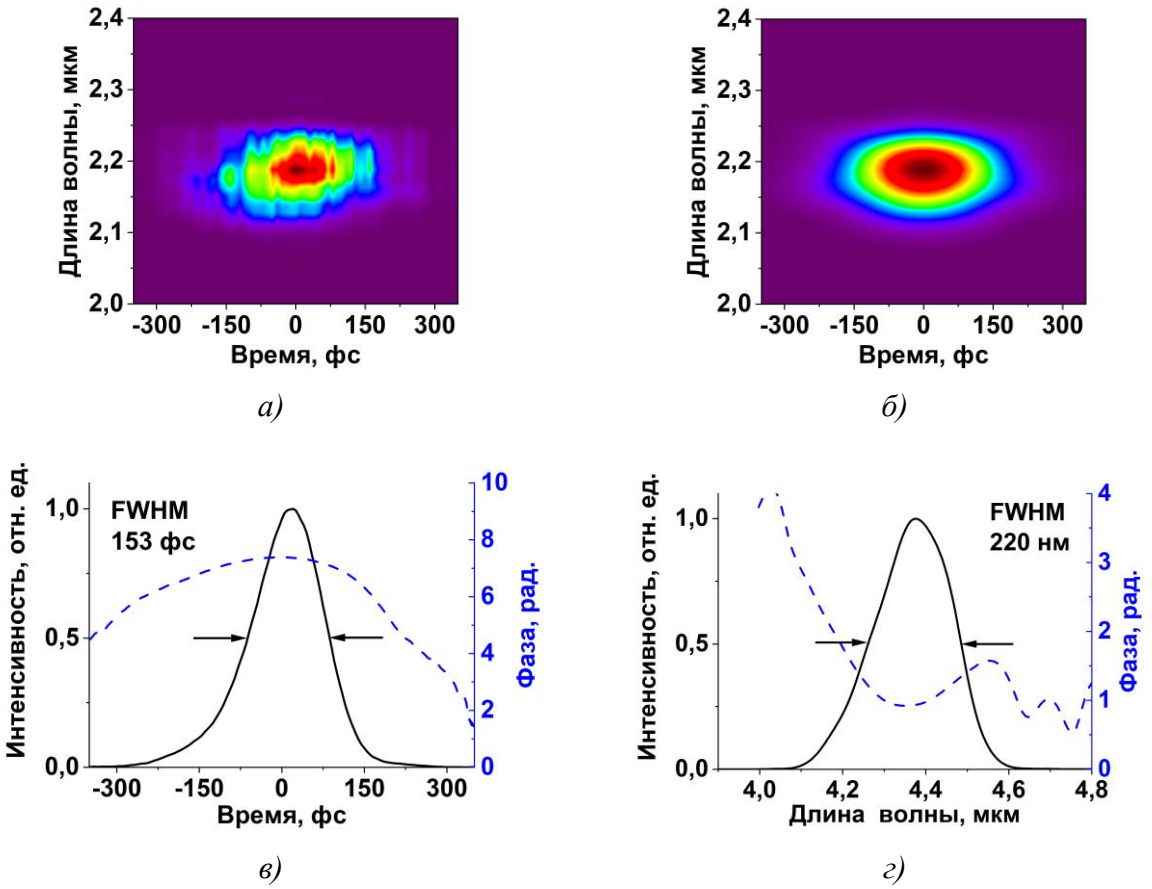


Рис. 53 Измеренная (а) и восстановленная (б) спектрограммы выходного излучения системы. Восстановленные длительность (в) и спектр (г) фемтосекундных лазерных импульсов среднего ИК-диапазона (λ=4,4).

2.4.4. Исследование возможностей использования кристаллов Fe:ZnSe с высоким уровнем легирования ионами железа (до 10^{20} см$^{-3}$)

Для исследования усилительных свойств сильно легированных кристаллов использовались поликристаллические элементы ZnSe, методики легирования которых позволяют обеспечивать концентрацию ионов Fe вплоть до 10^{20} см$^{-3}$. В диссертационной работе исследовались три элемента. Два из них были выращены CVD методом, а затем покрыты пленкой Fe в процессе осаждения из газовой фазы. Легирование осуществлялось в процессе высокотемпературной газостатической обработки в аргоновой атмосфере. Структура профилей этих элементов изображена на ***Рис. 54***. В первом элементе легирующий слой был расположен на поверхности. Максимальная пиковая концентрация ионов железа составляла $1{,}1\times10^{19}$ см$^{-3}$, средняя общая концентрация $1{,}3\times10^{18}$ см$^{-3}$, а поглощение накачки (использовался импульсный Cr:Yb:Ho:YSGG лазер с длиной волны 2,85 мкм) – 60%. Второй элемент содержал легирующий слой в центре кристалла. Для обеспечения внутреннего легирования применялось диффузионное сращивание при температуре 1000 °C при одноосном давлении 30 МПа. Пиковая концентрация ионов Fe в элементе составляла $3{,}2\times10^{19}$ см$^{-3}$, средняя общая концентрация $3{,}4\times10^{18}$ см$^{-3}$, а поглощение накачки – 70%. Структура третьего элемента также представляла собой слои ZnSe-Fe-ZnSe, однако ее формирование осуществлялось в процессе CVD роста. Максимальная концентрация ионов составляла $1{,}4\times10^{19}$ см$^{-3}$, средняя общая концентрация $2{,}1\text{x}10^{19}$ см$^{-3}$, а поглощение накачки – 80%. Отметим, что исследование усилительных свойств поликристаллических элементов Fe:ZnSe выполнялось впервые и представляло значительный интерес ввиду простоты технологического процесса легирования (в особенности диффузным

методом) и возможности создания тонких образцов увеличенных размеров с высоким уровнем поглощения накачки. Создание таких кристаллов особенно перспективно для развития мощных фемтосекундных генераторов и усилителей, работающих на тонких дисках.

Для исследования генерационных свойств кристаллов излучение накачки в 3-мкм диапазоне длин волн заводилась под небольшим углом (порядка 5^0) к оси резонатора, образованного сферическим зеркалом с фокусным расстоянием 20 см и выходным зеркалом, представляющим собой пластинку кремния. Длина резонатора составляла 25 см, а кристалл располагался вблизи выходного зеркала. Для проведения спектральных измерений использовался монохроматор, оснащенный дифракционной решеткой 150 штр./мм. и пироэлектрическим детектором. В результате было обнаружено, что с увеличением концентрации легирующих ионов спектр генерации кристаллов сдвигается в красную область спектра (см. ***Рис. 54 (в)***). Таким образом, использование более высоко легированных кристаллов может позволить создавать источники ИК излучения в области прозрачности атмосферы 4,5–5 мкм.

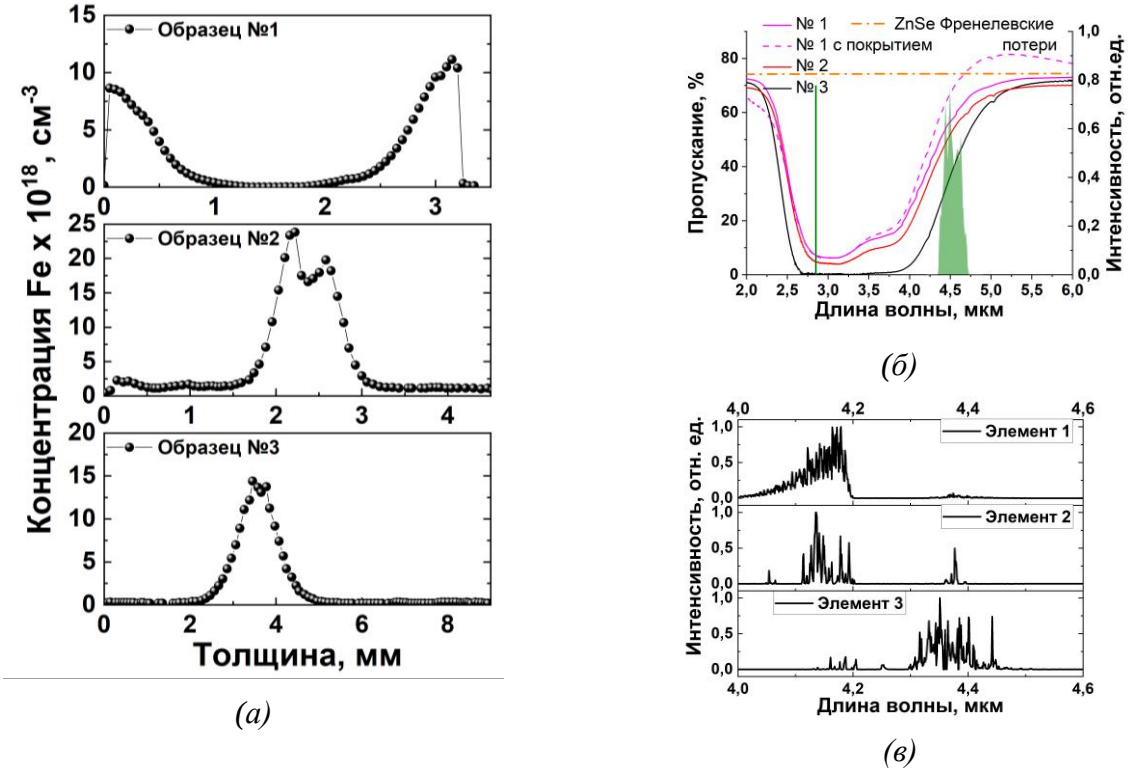


Рис. 54 (а) Поперечное распределение ионов железа в образцах Fe:ZnSe. (б) Спектры пропускания кристаллов, использованных в экспериментах. Зеленая линия показывает спектры накачки и инжекции с длинами волн 2,85 мкм и 4,6 мкм соответственно. (в) Спектры генерации кристаллов при температуре 10 °C.

Для оценки усилительных свойств кристаллов измерялся коэффициент усиления на проход и время жизни верхнего уровня. Для определения коэффициента усиления измерялся сигнал до и после кристалла с помощью калиброванного детектора Gentec QE8SP-B-BL-D0. Для измерения времени жизни верхнего лазерного уровня Fe:ZnSe измерялось усиление в зависимости от временной задержки между импульсами накачки и инжекции. Охлаждение

кристалла до температуры порядка 5-7 ^{0}C осуществлялось с помощью элемента Пельтье. Для охлаждения до более низких температур вплоть до 77 К применялся азотный криостат.

2.4.4.1. Усилительные свойства поликристаллов Fe:ZnSe при умеренном охлаждении (7–8 ^{0}C)

Коэффициент усиления на проход наряду со временем жизни верхнего уровня играет важную роль в создании эффективного многопроходного усилителя. Имеющиеся 3-мкм источники накачки демонстрируют длительность импульса в десятки наносекунд, поэтому время жизни верхнего уровня должно быть значительно больше 100 нс, чтобы избежать влияния спонтанного излучения. Как уже упоминалось, кристаллы Fe:ZnSe характеризуются сильной зависимостью времени жизни верхнего лазерного уровня от температуры и концентрации железа с характерным для комнатной температуры значением порядка 200–300 нс [167]. Поэтому, во-первых, был измерен коэффициент усиления и время жизни верхнего лазерного уровня при умеренном охлаждении кристаллов (7–8 °C).

На ***Рис. 55(а)*** показана зависимость коэффициента усиления слабого сигнала за проход в зависимости от плотности энергии накачки для первого и второго элементов. Плотность энергии накачки более 0,8 Дж/см^2 в экспериментах не использовалась во избежание повреждения кристалла, ожидаемая при 1,5 – 2 Дж/см^2. В третьем элементе усиление затравочного сигнала не наблюдалось, в то время как был обнаружен сильный сигнал усиленного спонтанного излучения. Этот факт связан с малым временем жизни верхнего уровня, что подробнее обсуждается ниже. Максимальное усиление за проход 6,1 (13,5 см$^{-1}$) было измерено для второго элемента при плотности энергии накачки 0,6 Дж/см^2. Когда падающая плотность энергии накачки еще больше увеличилась, также был обнаружен сигнал УСИ. Первый элемент продемонстрировал несколько меньший коэффициент усиления за проход 5,7 при более высокой плотности энергии накачки 0,8 Дж/см^2, и УСИ не наблюдалось.

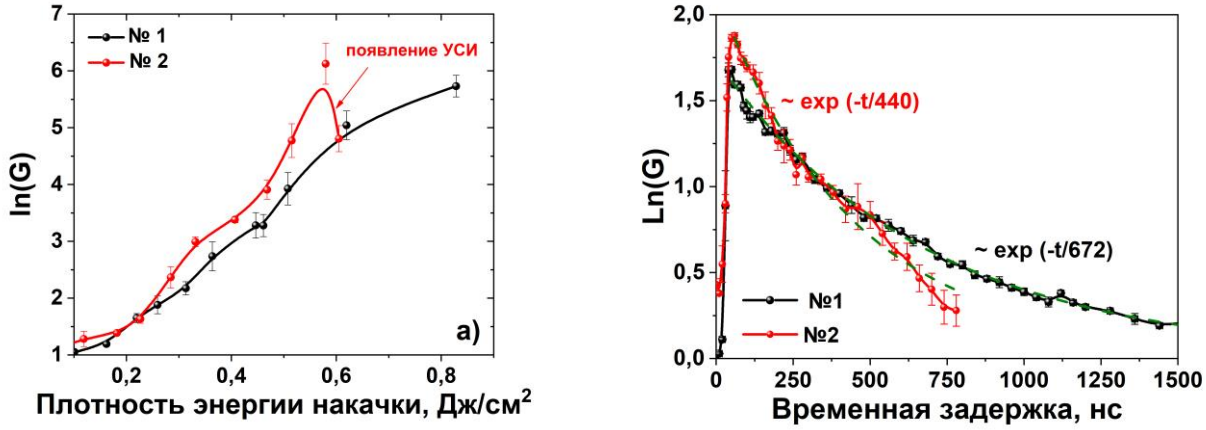


Рис. 55 (а) Зависимость коэффициента усиления слабого сигнала для первого (черный) и второго (красный) элементов при температуре 7 ^{0}C от плотности энергии накачки. (б) Зависимость коэффициента усиления слабого сигнала от задержки между импульсами накачки и инжекции при температуре активных элементов 7^{0}C (черные и красные кривые — данные для первого и второго элементов соответственно). Результаты аппроксимации показаны на рисунке.

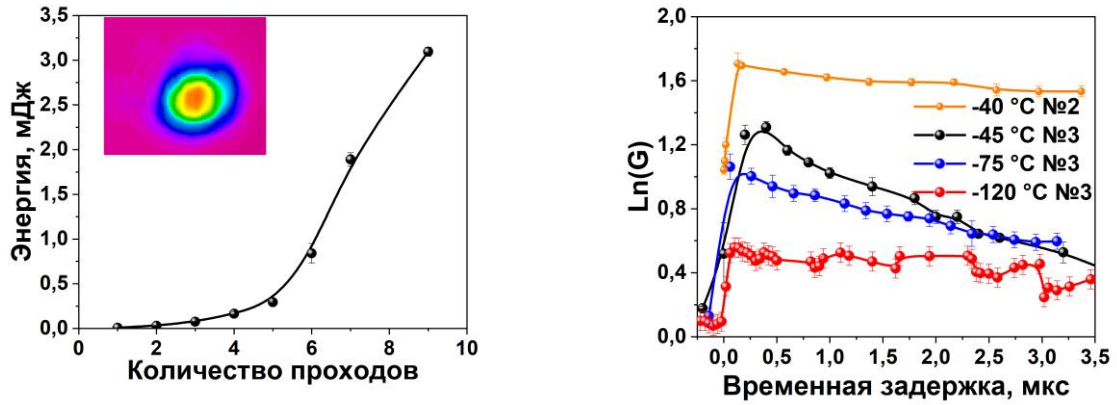
Для определения времени жизни верхнего уровня электронная задержка между импульсами накачки и инжекции изменялась с точностью до 1 нс. На ***Рис. 55 (б)*** представлена

зависимость *ln(G)* от этой задержки. Временная метка «0 нс» соответствует моменту, когда импульс инжекции приходит раньше, чем импульс накачки, поэтому усиления не наблюдается. Как только импульс накачки начинает опережать импульс инжекции, усиление начинает увеличиваться. Максимальный коэффициент усиления соответствует определенной задержке между импульсами, необходимой для достижения максимального уровня инверсии населенностей. При дальнейшем увеличении задержки между импульсами инверсия населенностей начинает уменьшаться за счет спонтанных переходов или дополнительных эффектов тушения люминесценции. Аппроксимация измеренной зависимости экспоненциальной кривой позволяет оценить время жизни верхнего уровня, которое составило 0,67 ± 0,01 нс и 0,44 ± 0,05 нс для первого и второго элементов соответственно.

Как уже упоминалось, время жизни люминесценции существенно зависит от концентрации легирующих примесей и температуры образца. Увеличение концентрации легирующих ионов с $0{,}1\times10^{18}$ $см^{-3}$ до 112×10^{18} $см^{-3}$ приводит к уменьшению времени жизни при комнатной температуре с 382 нс до 186 нс, как было показано в [167]. Выполненные исследования в рамках данной диссертационной работы показали, что время жизни верхнего уровня для однородно легированного монокристалла Fe:ZnSe длиной 8 мм с концентрацией 3×10^{18} $см^{-3}$ составляет 350 нс и 1 мкс для комнатной температуры и при охлаждении активного элемента до 7 °C [182] соответственно. В поликристаллических активных элементах присутствует градиент концентрации железа. Пиковая концентрация достигает $(1\text{-}2)\times10^{19}$ $см^{-3}$ в очень тонком слое порядка 100 мкм. В этой области может происходить концентрационное тушение люминесценции, приводящее к уменьшению времени жизни. Поскольку пиковая концентрация во втором элементе почти вдвое выше, чем в первом образце, время жизни в нем оказывается меньше. Уменьшение времени жизни с концентрацией легирующих ионов также является препятствием для усиления излучения инжекции в третьем элементе, где также присутствует очень высокая концентрация легирующих ионов железа.

Усилительные свойства поликристаллических элементов Fe:ZnSe были исследованы в схеме многопроходного усилителя, описанном в пункте ***2.4.2.4***. При накачке первого кристалла с плотностью энергии 0,8—0,9 $Дж/см^2$ была получена выходная энергия около 1,2 мДж. Для накачки второго кристалла использовалась меньшая энергия, чтобы обеспечить плотность энергии около 0,6 $Дж/см^2$ и отсутствие спонтанной генерации. В результате была получена энергия около 0,9 мДж, что связано с меньшим коэффициентом усиления за проход при данном уровне накачки. Поскольку образец №1 имел большее время жизни верхнего уровня при умеренном охлаждении, он был выбран для дальнейших экспериментов. Для уменьшения потерь в многопроходном усилителе элемент был покрыт просветляющим покрытием для диапазона длин волн 4 - 5 мкм. На ***Рис. 56 (а)*** показана зависимость выходной энергии от числа проходов в многопроходном усилителе, а также выходной пучок, измеренный с помощью Spiricon Pyrocam III (вставка на ***Рис. 56 (а)***). Параметр M^2 выходного пучка оценивается в 1,3. Выходная энергия

около 3 мДж была получена за 9 проходов, что делает поликристаллические элементы весьма перспективными для дальнейшего развития мощных фемтосекундных усилителей.



(а) *(б)*

Рис. 56 (а) Зависимость выходной энергии от числа проходов в многопроходном усилителе на основе поликристаллического элемента Fe:ZnSe. (б) Зависимость коэффициента усиления слабого сигнала от задержки между импульсами накачки и инжекции при разных температурах для второго и третьего Fe:ZnSe элементов.

2.4.4.2. Усилительные свойства поликристаллов Fe:ZnSe при криогенном охлаждении

Охлаждение кристалла Fe:ZnSe значительно ниже 0 °C (273 K) широко применяется для преодоления порога генерации в случае накачки длинными (микросекундными) импульсами или при использовании непрерывной накачки. При использовании коротких (наносекундных) импульсов накачки, пока время жизни верхнего уровня больше длительности импульса накачки, охлаждение кристалла не должно влиять на выходные характеристики. Для подтверждения этого был использован криостат для изменения температуры кристалла до -196 °C (77 K). При охлаждении до -40 °C (233 K) наблюдалось увеличение времени жизни второго элемента; однако выходная энергия практически не изменилась. Дальнейшее охлаждение кристалла приводило к увеличению сигнала УСИ. Поэтому значительное охлаждение слаболегированных кристаллов необходимо только при накачке длинными импульсами или в случае значительного джиттера (временной нестабильности) между импульсами накачки и инжекции.

Как упоминалось выше, в сильно легированном элементе при умеренном охлаждении усиления не наблюдалось, но в кристалле наблюдалась генерация УСИ. Поэтому этот кристалл также охлаждали и измеряли усиление слабого сигнала при более низких температурах. При охлаждении кристалла уровень спонтанного излучения снижается, появляется усиление затравочного импульса, что связано с увеличением времени жизни верхнего уровня. При температуре -45 °C сигнал спонтанного излучения практически отсутствовал, но время жизни и максимальный коэффициент усиления были ниже, чем у второго элемента (см. ***Рис. 56 (б)***). При дальнейшем охлаждении кристалла время жизни продолжало расти, но максимальный коэффициент усиления уменьшался. Такое поведение коэффициента усиления можно объяснить сдвигом спектра люминесценции кристалла при охлаждении, что также наблюдалось в [88,162].

Обратим внимание, измеренное поглощение на длине волны накачки при охлаждении изменялось незначительно на 2 – 3% в зависимости от температуры.

Таким образом, для выбора оптимального кристалла усилителя можно использовать понятие параметра качества кристалла (FOM – figure of merit), а именно отношение коэффициента поглощения накачки (2,85 мкм) к коэффициенту поглощения на рабочей длине волны (4,6 мкм). Для указанных рабочих длин волн наибольший FOM достигается у первого элемента, который использовался для многопроходного усилителя. Отметим, что дальнейшая оптимизация параметров (длина волны накачки, просветляющие покрытия с низкими потерями) может увеличить FOM других элементов.

Таким образом, было показано, что поликристаллические элементы Fe:ZnSe, легированные методами диффузии и CVD, являются перспективными кристаллами для генерации и усиления фемтосекундных импульсов в среднем ИК-диапазоне (3-5 мкм). Основным параметром, который следует учитывать при выборе оптимального кристалла, является параметр качества кристалла (например, уровень легирования), в то время как профиль и метод легирования, а также точное расположение легирующего слоя (внутреннего или внешнего) не является решающим фактором. Поскольку ионы Fe в основном располагаются в тонких слоях толщиной 100–200 мкм, за счет чего может происходить тушение люминесценции, кристалл необходимо умеренно охлаждать до 7–8 °C для увеличения времени жизни верхнего уровня. В таких условиях успешно реализуется многопроходный усилитель на поликристаллическом элементе Fe:ZnSe с внешними легирующими слоями и максимальной поверхностной концентрацией $1{,}1\times10^{19}$ см$^{-3}$ с выходной энергией до 3 мДж. Дальнейшее улучшение выходных характеристик лазерного усилителя среднего ИК-диапазона на основе Fe:ZnSe может быть достигнуто за счет использования более тонких элементов с многослойным легированием для более высокого поглощения накачки и лучшего пространственного перекрытия пучков внутри кристалла.

§2.5. Исследование кристалла Fe:CdSe в качестве возможной активной среды для расширения диапазона усиления в область 5-6 мкм

Для проведения исследований новых перспективных халькогенидных кристаллов, легированных ионами железа, группой исследователей из ФИАН им П.Н. Лебедева был осуществлен рост кристаллов Fe:CdSe диаметром 25 мм и длиной 10 мм с концентрацией ионов Fe на уровне $2{,}5\times10^{18}$ см$^{-3}$ и были исследованы лазерные свойства полученных активных элементов.

Сначала было измерено время жизни состояния 5T2 иона Fe в матрице CdSe (лазерная генерация в кристаллах A2B6, легированных двухвалентными ионами железа, происходит на переходе $^5T_2 \rightarrow {}^5E$ иона Fe) при комнатной температуре и температуре жидкого азота. Для этого измерялось затухание люминесценции иона Fe на переходе $^5T_2 \rightarrow {}^5E$. В качестве накачки в экспериментах использовался лазер Er:YAG, работающий на длине волны 2,94 мкм в режиме модуляции добротности резонатора. Время затухания люминесценции при комнатной

температуре составило (20±5) нс. Охлаждение кристалла до температуры жидкого азота привело к увеличению времени жизни состояния до (22±2) мкс.

Для определения ширины полосы усиления кристалла Fe:CdSe исследовалась лазерная генерация в дисперсионном резонаторе с призмой, в результате чего была реализована плавная перестройка длины волны генерации в спектральной области 4,63-6,10 мкм. Перестроечная кривая, полученная при поглощенной энергии накачки ~20 мДж, представлена на ***Рис. 57***. Достигнута высокая дифференциальная эффективность лазера ~27%. Предполагается, что уменьшение плотности разориентированных относительно оптической оси блоков, разделенных малоугловыми границами, возможно путем тщательной селекции затравочных кристаллов и использования методики разращивания кристаллов в поперечном направлении.

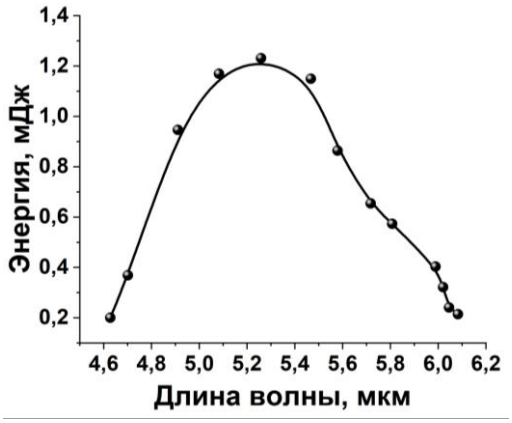
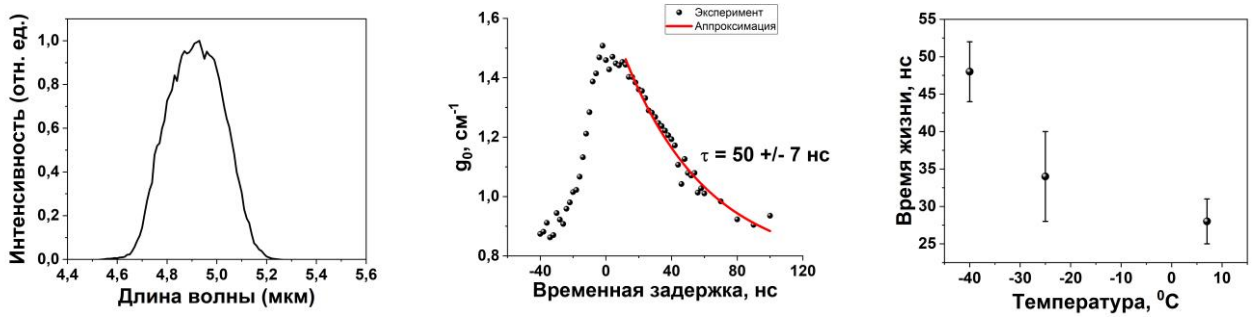


Рис. 57 Перестроечная кривая Fe:CdSe-лазера, полученная при поглощенной энергии накачки 8 мДж и комнатной температуре активного элемента.

2.5.1. Исследование температурной зависимости времени жизни верхнего лазерного уровня

Для измерения времени жизни верхнего лазерного уровня кристалла Fe:CdSe использовалась методика, описанная ранее для поликристаллов Fe:ZnSe (см. ***2.4.4***). Кристалл накачивался излучением лазера Cr:Yb:Ho:YSGG (длина волны 2,85 мкм, длительность импульса 40 нс, энергия до 90 мДж), которое фокусировалось на кристалл в пятно с плотностью энергии 0,9 – 1 Дж/см^2. В кристалл также направлялось излучение инжекции на длине волны 4,95 мкм (см. ***Рис. 58***), примерно соответствующей центру полосы усиления кристалла при комнатной температуре [206]. Излучение инжекции в данной схеме не проходило схему стретчера, а направлялось в кристалл напрямую. Диаметр пучка на кристалле составлял порядка 2 мм. Для измерения времени жизни верхнего уровня варьировалось время прихода импульса накачки относительно фемтосекундного импульса инжекции. Кристалл Fe:CdSe имел толщину 6 мм и уровень легирования ионами Fe около 3,3×10^{18} см$^{-3}$, оценка которого производилась на основе измерения поглощения накачки и сечения поглощения (1×10^{18} см^2 на длине волны 2,85 мкм) . Отметим, что используемый в данных измерениях кристалл имел достаточно неоднородную структуру, связанную с наличием блоков размером порядка сотен микрометров, образующихся в процессе его роста, и неоднородностью уровня легирования. Наличие таких неоднородностей

приводило к зависимости коэффициента усиления и времени жизни верхнего уровня от конкретного места в кристалле. На ***Рис. 58*** изображена зависимость коэффициента усиления от задержки между импульсами при температуре кристалла -40 ^{0}C. В зависимости от области время жизни при комнатной температуре варьировалось в диапазоне 27 – 50 нс при комнатной температуре. Охлаждение кристалла производилось с помощью термоэлектрического модуля Пельтье. На ***Рис. 58 (б)*** показана зависимость времени жизни от температуры в «плохой» области. Видно, что с уменьшением температуры время жизни увеличивается. Однако, так как длительность импульса накачки составляет 40 нс, то для его эффективного использования необходимо дальнейшее охлаждение кристалла.



(а) *(б)* *(в)*

Рис. 58 а) Спектр затравочного фемтосекундного излучения среднего ИК-диапазона; б) Зависимость коэффициента усиления от задержки между импульсом Cr:Yb:Ho:YSGG лазера накачки и инжекции; в) Зависимость времени жизни от температуры. Красная линия соответствует аппроксимации экспоненциальной функцией.

Охлаждение лазерного элемента до температуры, близкой к температуре жидкого азота, позволило увеличить время жизни верхнего лазерного уровня до более, чем 10 мкс. В процессе охлаждения отчетливо наблюдается температурная зависимость спектра поглощения, измеренная на нескольких длинах волн. На длине волны 2,85 мкм при температуре, близкой к температуре жидкого азота, через активный элемент проходит 50% накачки и около 30% при температуре -100°C. Поглощение накачки на длине волны 2,94 мкм постепенно снижается с 93% при комнатной температуре до 75% при температуре жидкого азота. Поглощение импульсов на длине волны 5 мкм составляет около 50% в диапазоне температур от комнатной до -130°C и падает до 30% при температуре жидкого азота. Уменьшение поглощения в более коротковолновой области связано с изменением расстояния между энергетическими уровнями Fe:CdSe, а в более длинноволновой области - с дезактивацией термически активированных фононных переходов, присущих халькогенидам, легированным переходными металлами.

Стоит отметить, что длительность импульсов накачки на 2,94 мкм составляет 100 нс, однако увеличение времени жизни верхнего лазерного уровня до микросекунд при охлаждении активного элемента позволяет использовать более длинные лазерные импульсы накачки и снизить риск повреждения поверхности лазерного кристалла.

2.5.2. Измерение температурной и спектральной зависимости коэффициента усиления фемтосекундной инжекции на проход при накачке на 2,85 мкм и 2,94 мкм

При охлаждении кристалла до -40°C наблюдалось увеличение коэффициента усиления слабого сигнала инжекции в 1,5 раза при накачке на длине волны 2,85 мкм, что связано с увеличением времени жизни верхнего уровня. Максимальный коэффициент усиления, наблюдавшийся в эксперименте, составил 1,5 $см^{-1}$, что соответствует усилению на проход в 2,4 раза (см. ***Рис. 58 (б)***). Охлаждение лазерного элемента до температуры, близкой к температуре жидкого азота, и использование лазера накачки на длине волны 2,94 мкм позволило увеличить коэффициент усиления слабого сигнала до 3,16 $см^{-1}$, что соответствует усилению на проход в 6,7 раза. Отметим, что при таком коэффициенте усиления особенно существенными становятся Френелевские потери, поэтому для создания многопроходного усилителя необходимо просветление элемента. В противном случае, паразитная генерация, завязывающаяся на торцах лазерного элемента, значительно уменьшает запасенную энергию и снижает эффективность лазерного усилителя.

2.5.3. Определение оптимальной плотности энергии излучения накачки

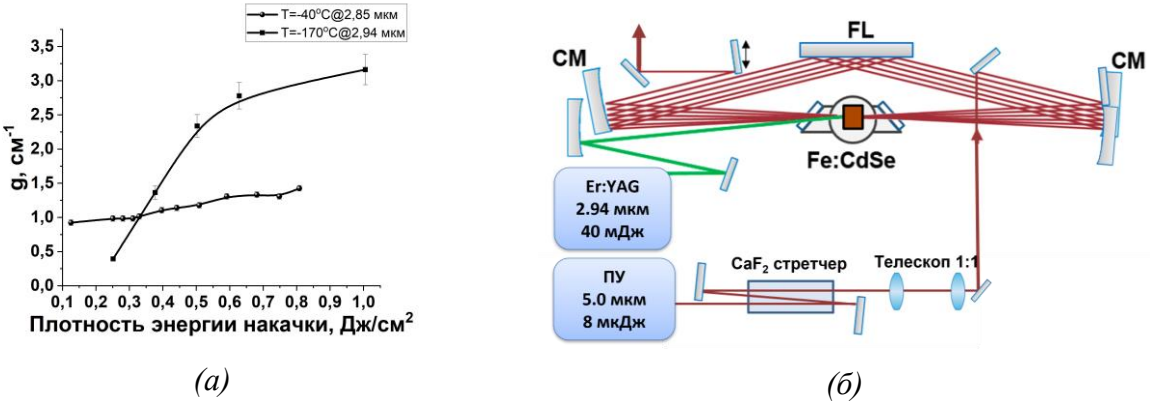
Для определения оптимальной плотности мощности накачки в эксперименте варьировалась энергия накачки при оптимальной задержке между импульсами. Зависимость коэффициента усиления от плотности накачки приведена на ***Рис. 59 (а)***. Как видно коэффициент усиления практически линейно растет с плотностью мощности накачки при накачке активного элемента на длине волны 2,85 мкм. Насыщения коэффициента усиления удается достичь только при охлаждении лазерного кристалла до температуры, близкой к температуре жидкого азота, и накачке на длине волны 2,94 мкм. Отметим, что известный в литературе порог повреждения кристаллов CdSe для наносекундных импульсов (40 – 50 нс) составляет 50 – 60 $МВт/см^2$ [207]. В экспериментах интенсивность не превышала 30 $МВт/см^2$ во избежание повреждения элемента, так как наличие доменов на поверхности может уменьшать порог повреждения.

Таким образом, в многопроходной схеме усиления лазерный кристалл Fe:CdSe, охлажденный до температуры, близкой к температуре жидкого азота, будет накачиваться на длине волны 2,94 мкм при плотности энергии 0,8-1 $Дж/см^2$, что обеспечивает максимально достижимый коэффициент усиления.

2.5.4. Многопроходное усиление в Fe:CdSe

Далее были исследованы усиливающие свойства Fe:CdSe в многопроходной схеме усиления (см. ***Рис. 59 (б)***). Параметрический усилитель настраивался на длину волны 5,5 мкм с шириной спектра 550 нм (FWHM), что соответствует длительности спектрально-ограниченного импульса 80 фс. Для этих экспериментов на грани кристалла Fe:CdSe было нанесено просветляющее покрытие в широкой спектральной полосе для уменьшения влияния паразитной генерации. Кристалл устанавливался в криостат с контролем температуры активного элемента по термопаре. Окна криостата из BaF_2 были установлены под углом Брюстера, чтобы минимизировать френелевские потери. Резонатор усилителя был образован тремя зеркалами:

двумя сферическими с радиусом кривизны 1 м и одним плоским зеркалом. Импульсы накачки и затравочного излучения были синхронизированы по времени с точностью до наносекунд, чтобы реализовать эффективное усиление в течение короткого времени жизни верхнего уровня в активном элементе. Пространственное качество лазерного пучка контролировалось пироэлектрической камерой Spiricon Pyrocam III.



(а) *(б)*

Рис. 59 (а) Зависимость коэффициента усиления слабого сигнала для кристалла Fe:CdSe от плотности энергии накачки на двух длинах волн 2,85 мкм и 2,94 мкм при температуре активного элемента -40 ^{0}C и -170 ^{0}C соответственно. (б) Многопроходный Fe:CdSe усилитель фемтосекундных импульсов среднего ИК-диапазона (более 5 мкм).

Во избежание влияния нелинейных эффектов в процессе усиления в Fe:CdSe из-за малой длительности импульса и высокой нелинейности лазерного кристалла входной импульс чирпировался в материале CaF_2 длиной 33 см до длительность ~8 пс. Для контроля за изменением размера лазерного пучка излучения инжекции в многопроходном усилителе перед ним был установлен неувеличивающий телескоп, корректирующий расходимость излучения среднего ИК-диапазона.

На 4-ом/5-ом проходах в этой схеме существенным оказалось влияние усиленного спонтанного излучения (УСИ). На пироэлектрической камере четко визуализировался ореол вокруг усиленного лазерного пучка инжекции. Быстрый детектор регистрировал последовательность импульсов внутри (а иногда и вне) импульса накачки с периодом, равным времени обхода усилителя. Для устранения этого эффекта использовалась маска — массив эквидистантных отверстий диаметром около 2,0 мм в металлической пластине. В этом случае спонтанный фон вокруг лазерного пучка инжекции отсутствует, а поперечный профиль интенсивности в лазерном пучке на выходе их усилителя уплощается за счет того, что маска корректирует расходимость излучения на каждом проходе. В результате была получена энергия до 100 мкДж после 5 проходов в усилителе.

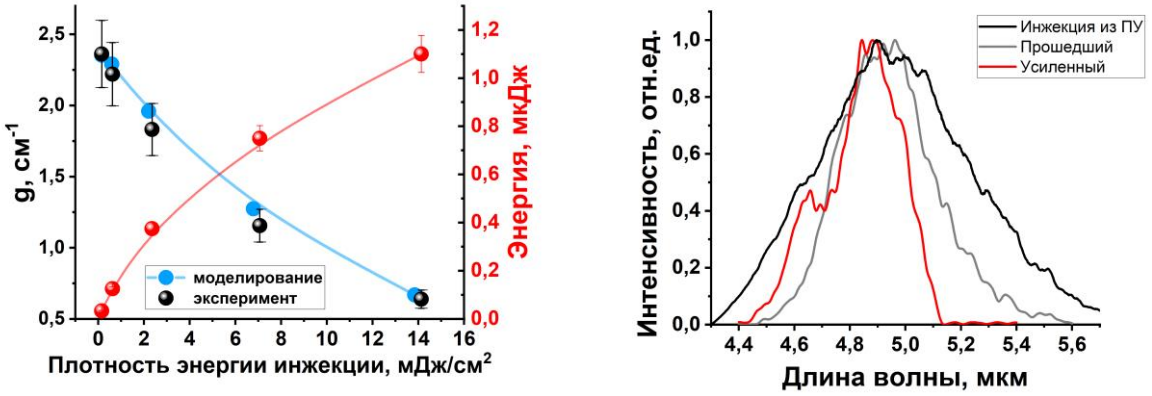
Для уменьшения влияния эффекта УСИ и ухода от использования маски зеркала усилителя с радиусом кривизны -1000 мм были заменены на зеркала с радиусом кривизны -1500 мм. Во избежание насыщения усиления схема усилителя была модернизирована для работы в коллимированных вместо сфокусированных пучков (см. ***Рис. 59***). Диаметры пучка инжекции и пучка накачки были измерены методом ножа и составили 2,6 мм и 2,7 мм по уровню $1/e^2$ по

интенсивности соответственно. В такой схеме была достигнута энергия 1,1 мДж после 5 проходов через активный элемент.

Коэффициент усиления и выходная энергия на каждом проходе в зависимости от входной плотности энергии инжектируемого импульса среднего ИК-диапазона представлены на ***Рис. 60 (а)***.

Для определения плотности энергии насыщения производилось моделирование процесса лазерного усиления по модели Франца-Нодвика с учетом уменьшения запасенной энергии на каждом проходе. Наилучшее совпадение с экспериментальными результатами достигается при $F_{sat} = 13$ мДж/см^2. Этот результат хорошо согласуется с теоретическим значением, если принять во внимание сечение эмиссии при комнатной температуре $3 \cdot 10^{18}$ см^2. В то же время это показывает, что даже при криогенном охлаждении сечение эмиссии на 5,0 мкм достаточно велико, вопреки расчетам, приведенным в нашей предыдущей статье, посвященной Fe:CdSe.

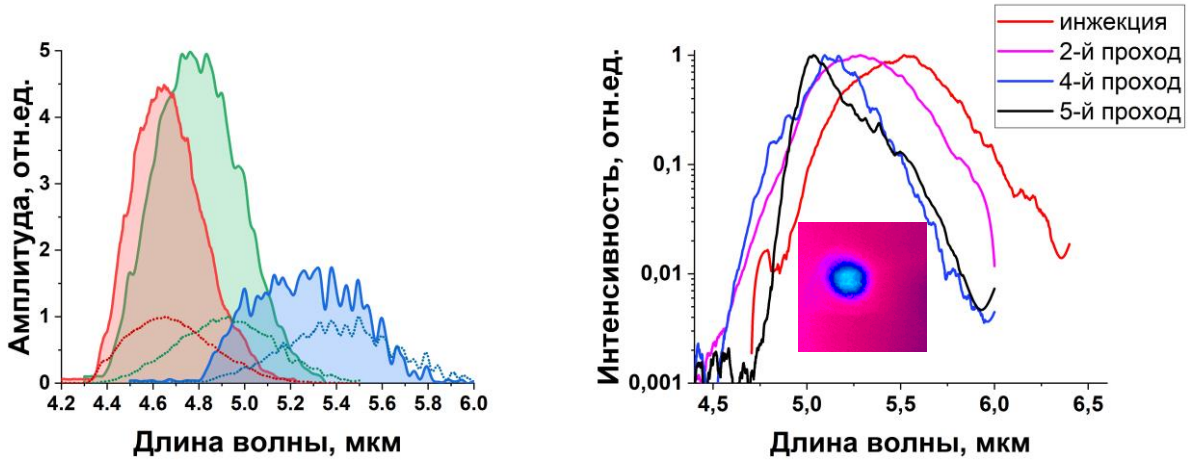
На ***Рис. 60 (б)*** представлены спектры инжектируемого импульса на выходе из ПУ, а также импульса, прошедшего через кристалл, и усиленного импульса, измеренные с помощью сканирующего монохроматора. Ширина спектра усиленного импульса уменьшается из-за эффекта обужения при усилении, и явно наблюдается «подъем» коротковолнового края спектра, где значение сечения эмиссии больше, чем в длинноволновой области. Длительность импульса, соответствующая спектру на выходе из лазерного усилителя на основе Fe:CdSe, остается на уровне ~100 фс. Из-за высокой нелинейности кристалла CdSe возможно обогащение спектра за счет фазовой самомодуляции и искажения фазы импульса. B-интеграл можно оценить в предположении, что нелинейный показатель преломления CdSe близок к показателю ZnSe (~10^{-14}см^2/Вт [208]). Эта оценка, рассчитанная для всех проходов через усилительный элемент усилителя, показывает, что B-интеграл не превышает 2,2 рад для лазерного импульса длительностью 8 пс. Это означает, что измеряемый спектр импульса определяется только процессом усиления и не обогащается нелинейно.



(а) *(б)*

Рис. 60 (а) Экспериментально измеренный (черные точки) и численно смоделированный (синие точки) коэффициент усиления на каждом проходе в зависимости от входной плотности энергии инжекции. (б) Спектр инжектируемого лазерного импульса на выходе фемтосекундного параметрического усилителя (ПУ), спектр, прошедший через кристалл Fe:CdSe, и спектр усиленного лазерного импульса среднего ИК-диапазона.

Для выявления границ широкополосного усиления в криогенно охлаждаемом кристалле Fe:CdSe были проведены измерения коэффициента усиления и исследована трансформация спектра широкополосного импульса во всей полосе усиления Fe:CdSe (***Рис. 61 (а)***). Центральная длина волны затравочного импульса настраивалась в ПУ от 3,8 мкм до 5,9 мкм. Максимальное усиление наблюдается вблизи длины волны 4,8 мкм. В коротковолновой области ($\lambda < 4{,}7$ мкм) включаются процессы реабсорбции и, как следствие, коэффициент усиления уменьшается. При перестройке спектра инжекции в коротковолновую область спектра усиления (4,2-4,3 мкм) поглощение в Fe:CdSe преобладает над усилением. При инжекции на центральных длинах волн 5,0 мкм и 5,5 мкм спектр усиленного импульса смещается в сторону более коротких длин волн, а для 5,9 мкм усиление не наблюдается вовсе. На длинах волн более 5 мкм линии поглощения паров воды создают в спектрах глубокие провалы и наблюдается значительное уменьшение коэффициента усиления на этих длинах волн по сравнению с длинами волн 4,7-5,0 мкм.



(а) *(б)*

Рис. 61 (а) Преобразование спектра импульса инжекции при усилении во всей полосе Fe:CdSe. Пунктиром отмечен спектр инжекции, а сплошной линией с заполнением цветом показаны спектры усиленного излучения. (б) Эволюция спектра усиленного импульса после нескольких проходов в кристалле Fe:CdSe при создании затравочного излучения в области 5,5 мкм. На вставке показан профиль пучка, измеренный пироэлектрической камерой Spiricon Pyrocam III.

В многопроходной схеме усиления положение спектра инжекции относительно центра полосы усиления Fe:CdSe становится еще критичней. В результате усиления инжекции с центром на 5,5 мкм на 5 проходах были получены импульсы с выходной энергией 56 мкДж. На ***Рис. 61 (б)*** показана эволюция спектров на нескольких проходах. С каждым последующим проходом спектр излучения смещается в более коротковолновую область и немного обужается. На последнем проходе центральная длина волны составляет 5067 нм с шириной на полувысоте около 220 нм. Это связано с более высоким сечением усиления Fe:CdSe на 5 мкм, чем на 5,5 мкм, а также наличием полосы поглощения водяного пара в этой области спектра. Наиболее широкие спектры реализуются при умеренном охлаждении (до -100 ^{0}C), а не при температуре жидкого азота. При охлаждении до криогенных температур спектр излучения сильно «срезан» с длинноволновой стороны, что характерно для халькогенидных сред и связано с выключением температурно-активируемых фононных переходов. Также при сильном охлаждении появляется фон усиленной спонтанной эмиссии из кристалла усилителя в виде цуга дополнительных наносекундных

импульсов на длинах волн вблизи максимума спектра усиления 4,5–4,7 мкм. Как видно, центральная длина волны затравочного излучения в области 5,5 мкм не оптимальна для получения максимальной выходной энергии, однако открывает доступ к бóльшим длинам волн. Предварительные эксперименты показывают возможность получения более 100 мкДж уже на третьем проходе при наличии затравочного излучения с центральной длиной волны 5,2 мкм. Таким образом, данная лазерная среда может быть использована в качестве эффективного усилителя широкополосных лазерных импульсов на длинах волн более 5 мкм с прямой накачкой 3-мкм лазером с модуляцией добротности.

Для подтверждения наблюдаемой эволюции спектра усиливаемого импульса было проведено моделирование усиления чирпированного импульса в модели Франца-Нодвика (подробно см. ***п. 2.4.2.4***). Результаты приведены на ***Рис. 62***. В моделировании на основании полученных экспериментальных результатов для полосы усиления Fe:CdSe использовался лоренцевский контур линии, а для импульса инжекции гауссов профиль.

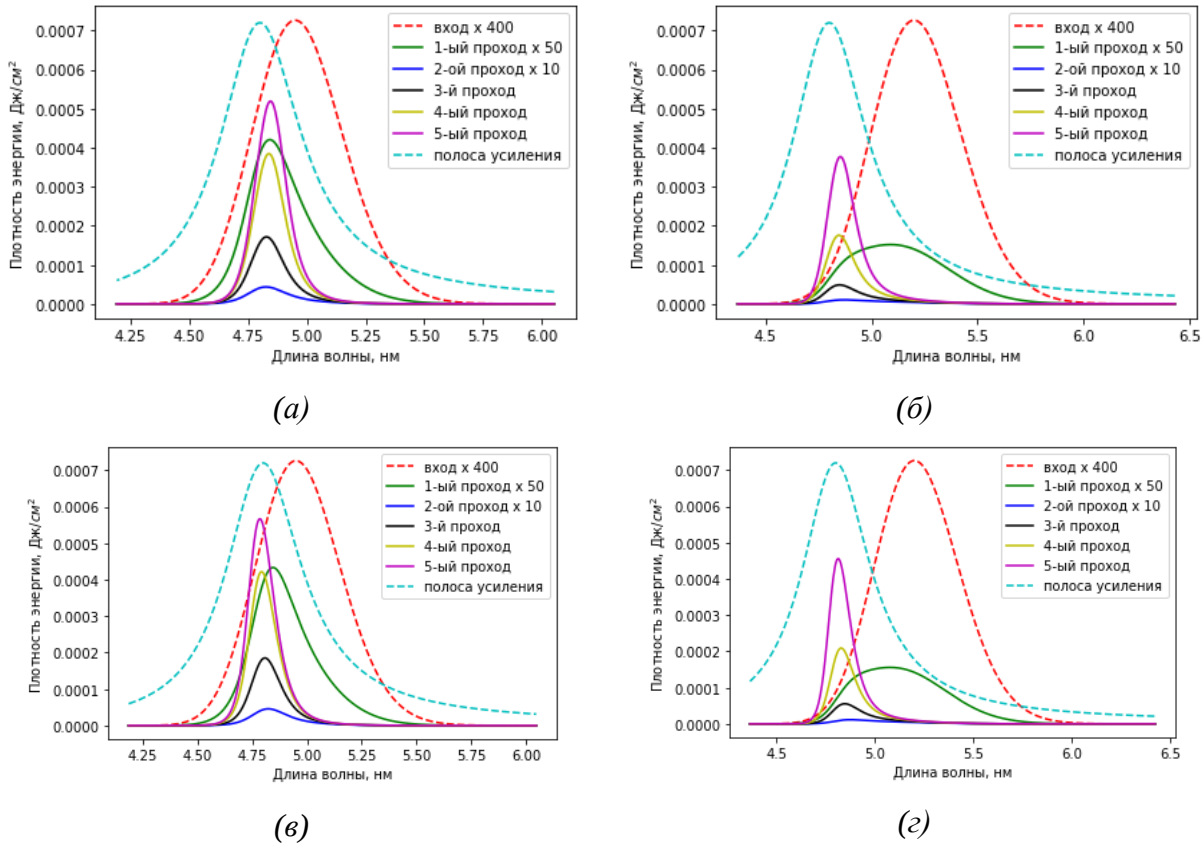


Рис. 62 Спектр усиливаемого импульса по проходам усилителя Fe:CdSe при инжекции с центром на а) 4,95 мкм и положительном чирпе; б) 5,2 мкм и положительном чирпе; в) 4,95 мкм и отрицательном чирпе; г) 5,2 мкм и отрицательном чирпе.

Видно, что уже на первом проходе перекрытие контуров усиления и спектра инжекции приводит к значительному обужению спектра усиливаемого импульса. При отстройке центральной длины волны инжекции (например, 5,2 мкм) относительно центра полосы усиления (4,8 мкм) помимо эффектов обужения наблюдается спектральный сдвиг максимума спектра инжекции. С увеличением количества проходов через усилитель спектр инжекции постепенно смещается ближе к центру полосы усиления. Чем дальше спектр инжекции на входе в усилитель

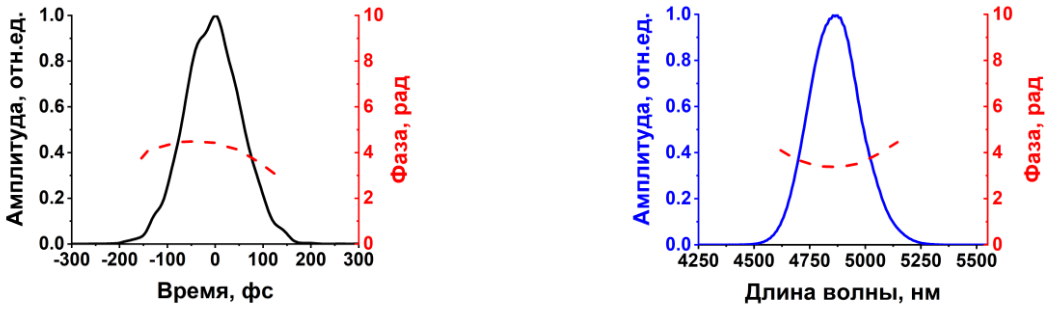
от центра полосы усиления, тем меньше энергии на выходе. Дополнительным важным параметром, который позволяет управлять эволюцией спектра инжекции от прохода к проходу в усилителе на основе Fe:CdSe является чирп. Отметим, что в чирпированном импульсе частотные компоненты широкого спектра изначально фемтосекундного импульса распределены во времени. Причем в зависимости от того положительный или отрицательный чирп у импульса, либо длинноволновые, либо коротковолновые частотные компоненты находятся на переднем фронте импульса. В результате, усиление чирпированного импульса принципиально отличается от прямого усиления спектрально-ограниченного импульса тем, что усиление компонент чирпированного импульса будет происходить последовательно, что в результате будет приводить к искажению формы спектра усиливаемого импульса и сдвигу центральной длины волны в ту область спектра, которая раньше начинает усиливаться в активной среде. Как видно из ***Рис. 62***, в случае положительно чирпированного импульса сдвиг будет происходить в сторону «красных» длин волн, а в случае отрицательно чирпированного импульса - наоборот, в сторону «синих» длин волн. Отметим, что этот эффект значим только при небольшом рассогласовании центра полосы усиления и максимума спектра инжекции на входе в усилитель, в другом случае эффект сдвига и обужения за счет перекрытия контуров инжекции и усиления будет определять конечную ширину и форму спектра импульса на выходе из усилителя.

Таким образом, измеренные усилительные свойства, в первую очередь плотность энергии насыщения $F_{sat} = 13$ мДж/см^2 и коэффициент усиления слабого сигнала $g_0 = 2{,}5$ см$^{-1}$, позволяют прогнозировать возможности использования Fe:CdSe активной среды для получения суб-тераваттных лазерных импульсов в среднем ИК-диапазоне в области 5 мкм. Доступный максимальный уровень энергии в 3-мкм твердотельных лазерах накачки сообщается на уровне ~0,8 Дж [178], что определяет максимально доступный диаметр пучка инжекции ~1,3 см. При этом в качестве начального уровня энергии инжекции использовался полученный в эксперименте ~1 мДж. В результате, выполненные расчеты по модели Франца-Нодвика говорят о достижении энергии ~32 мДж, что при длительности импульса на выходе усилителя ~100 фс, обеспечивает пиковую мощность ~0,3 ТВт.

2.5.5. Компрессия мощных 5-мкм лазерных импульсов

Временная компрессия импульсов среднего ИК-диапазона после многопроходного усиления производилась с помощью призменного компрессора. Поскольку он вносит отрицательную дисперсию, материал стретчера был заменен кремниевым образцом длиной 120 мм с положительной дисперсией групповой скорости (ДГЗ ~33300 фс^2), что увеличило длительность затравочного импульса до 590 фс. Из-за больших (~50%) френелевских потерь на гранях образца кремния выходная энергия Fe:CdSe усилителя уменьшилась до 0,8 мДж. Просветляющее покрытие граней кремниевого образца позволит сохранить энергию на выходе Fe:CdSe усилителя на миллиджоульном уровне. При лазерном усилении проявления мелкомасштабной самофокусировки не наблюдалось. Отрицательную дисперсию вносил

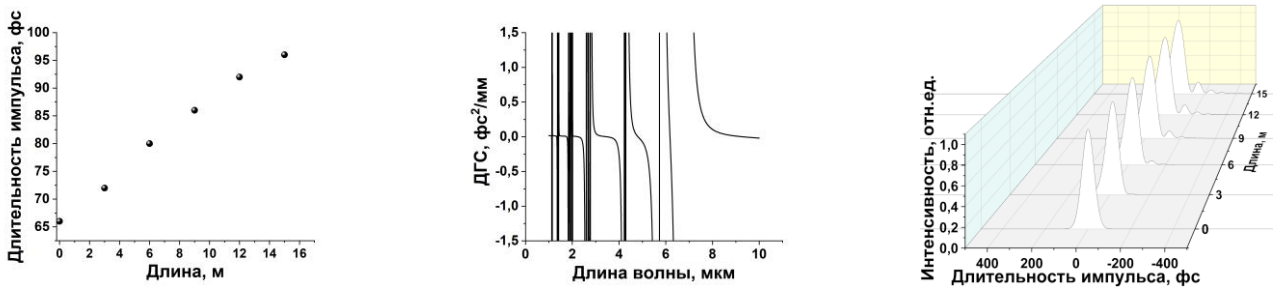
компрессор на основе пары призм из CaF_2, разнесенных друг относительно друга на расстояние ~16 см, а также окна криостата, сделанные из BaF_2 толщиной 2 мм. В результате после компрессии была получена длительность импульса ~134 фс, что позволило достигнуть пиковую мощность около 5 ГВт. Измерение огибающей и фазы (временной и спектральной) компрессированных импульсов среднего ИК-диапазона проводилось методом широкополосного оптического стробирования с разрешением по частоте с генерацией суммарной частоты в нелинейном кристалле $LiIO_3$ толщиной 0,5 мм (XFROG) (см. ***Рис. 63***).



(а) *(б)*

Рис. 63 Огибающая а) и спектральная фаза б) выходных импульсов среднего ИК-диапазона на центральной длине волны 5 мкм, регистрируемые с помощью широкополосного оптического стробирования с разрешением по частоте с генерацией суммарной частоты в нелинейном кристалле LiIO3 толщиной 0,5 мм.

Из ***Рис. 63*** видно, что 5-мкм лазерный импульс сохраняет нескомпенсированную фазу, которую можно устранить при использовании решеточного стретчер-компрессора или при точном управлении спектральной фазой импульсов инжекции из ОПУ перед усилением в Fe:CdSe. Отметим также, что получению предельно коротких лазерных импульсов в данном спектральном диапазоне препятствует наличие резонансов в спектре поглощения водяного пара со стороны длинноволнового края спектра усиливаемого импульса среднего ИК-диапазона (см. ***Рис. 61***). Однако, если центральная длина волны импульса среднего ИК-диапазона находится вблизи 5,0 мкм, то даже 15-метровая (5 проходов через усилитель) оптическая база усилителя приводит к увеличению длительности импульса с 65 фс до ~100 фс, что говорит о возможности работы на воздухе с фемтосекундными лазерными импульса, но не предельно короткой длительности (см. ***Рис. 64***).



а) *(б)* *(в)*

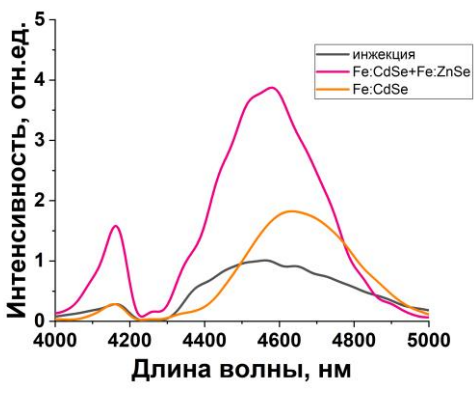
Рис. 64 Эволюция огибающей (в) и длительности (а) импульса среднего ИК-диапазона с центральной длиной волны 5,0 мкм при распространении по воздуху (влажность 40%) в зависимости от длины оптической базы. На графике б) показана дисперсия групповой скорости в воздухе.

2.5.6. Спектральный синтез полос усиления халькогенидных лазерных сред Fe:ZnSe/Fe:CdSe

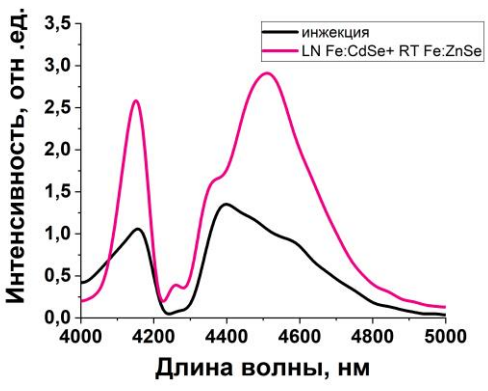
Идея спектрального синтеза заключается в каскадном усилении широкополосного импульса инжекции в различных лазерных средах в условиях, когда каждая лазерная среда по-отдельности не способна поддерживать всю его ширину. Этот метод получил большое развитие в параметрических лазерных источниках [209], хотя оригинальная идея принадлежит А.А. Каминскому в приложениях к твердотельным лазерам [210]. Узкополосная генерация в комбинированной активной среде на основе халькогенидов, легированных ионами хрома, исследовалась в режиме модуляции усиления в дисперсионном резонаторе в работе [211], где с комбинацией кристаллов Cr:ZnSe и Cr:CdSe удалось расширить спектр перестройки по сравнению с генератором на основе каждого из кристаллов по-отдельности.

Проведенные в диссертации (см. выше) исследования показали, что кристалл Fe:ZnSe способен усиливать широкополосные лазерные импульсы в спектральной полосе от 3,8 мкм до 4,8 мкм, однако при длинноволновой инжекции в спектральной области 4,8-5,0 мкм запасенная энергия преобразуется в усиленное спонтанное излучение в области 4,3 мкм, где находится максимум спектра сечения усиления кристалла. Продлить длинноволновое крыло возможно с помощью дополнительного усиления в кристалле Fe:CdSe с полосой усиления 4,4 мкм-5,5 мкм, ограниченной со стороны коротких длин волн поглощением в самом активном элементе.

В экспериментах для формирования затравочного излучения использовался ОПУ на основе кристаллов LGS с шириной спектра импульсов холостой волны до 600 нм в области 4-5 мкм (подробно см. ***п. 1.4.6***). Наносекундный лазер Er:YAG использовался для накачки обоих кристаллов сразу. Кристалл Fe:CdSe охлаждался до температуры жидкого азота для увеличения времени жизни. После него на расстоянии ~0,5 см устанавливался кристалл Fe:ZnSe. Оба кристалла имели просветляющие покрытия. Пучки накачки и инжекции под малым углом друг к другу заводились сначала в кристалл Fe:CdSe, так как в противном случае большая часть коротковолнового излучения, усиленная в Fe:ZnSe, поглощалась бы в кристалле Fe:CdSe. Будучи охлажденным до температуры жидкого азота, кристалл Fe:CdSe демонстрировал пропускание на длине волны накачки около 25%.



(а)



(б)

Рис. 65. Преобразование спектров импульса инжекции на центральных длинах волн 4,4 мкм и 4,7 мкм в усилителе на основе кристаллов Fe:CdSe и Fe:ZnSe.

Преобразование спектра импульса исследовалось на центральных длинах волн инжекции 4,7 мкм и 4,4 мкм (см. ***Рис. 65***). Провал в регистрируемых спектрах в области 4,3 мкм обусловлен поглощением CO_2 в оптическом тракте и может быть полностью устранен при помещении схемы в вакуум или при замещении инертным газом, что позволит сохранить ширину полосы усиливаемого импульса. Таким образом, комбинация халькогенидных кристаллов, легированных ионами железа, позволяет усиливать более широкополосные лазерные импульсы (до ~500 нм FWHM), чем в схемах на основе одной активной среды, что в перспективе может позволить генерировать малопериодное излучение среднего ИК-диапазона напрямую из лазерной системы без использования дополнительных нелинейных методов расширения спектра импульса и его последующей посткомпрессии (см. далее).

Выводы по главе 2

Подводя итог, можно заключить, что разработаны подходы по получению перестраиваемых, высокоэнергетичных и мощных лазерных импульсов в 3 мкм диапазоне длин волн на основе эрбиевых кристаллов и проведены комплексные исследования усилительных и генерационных свойств семейства халькогенидных сред, легированных ионами железа, которые позволили оптимизировать концентрацию легирующих ионов и температуру активного элемента в целях получения необходимых широкополосных спектролюминесцентных свойств активных элементов. В результате создана перспективная мультиспектральная фемтосекундная лазерная система, позволяющая генерировать мультигигаваттные фемтосекундные лазерные импульсы в среднем ИК-диапазоне на основе халькогенидных сред, легированных двухвалентным железом (Fe:ZnSe/Fe:CdSe) и базирующаяся полностью на отечественных комплектующих, что может позволить в перспективе выйти в передовые производители современных ИК лазерных источников.

1. Предложены и реализованы новые схемы генерации *мощного фемтосекундного лазерного излучения среднего ИК-диапазона* (4-5 мкм) на основе семейства халькогенидных сред с управляемыми спектролюминесцентными свойствами при их накачке высокоэнергичными (до 50 мДж) мощными (~МВт) наносекундными лазерными импульсами в 3-мкм диапазоне длин волн с плотностью энергии ~1 Дж/см^2. Разработанный подход позволил создать *уникальную* фемтосекундную лазерную систему, работающую на этом принципе в среднем ИК-диапазоне и генерирующую импульсы с пиковой мощностью более 20 ГВт.
2. Впервые исследованы усилительные свойства поликристаллических элементов Fe:ZnSe с высоким уровнем легирования ионами железа (до 10^{20} см$^{-3}$). Обнаружено, что наличие областей с концентрацией порядка $(1\div2)\cdot10^{19}$ см$^{-3}$ и выше приводит к уменьшению времени жизни верхнего уровня в 1,5–2 раза по сравнению с однородно легированным

элементом на уровне $3 \cdot 10^{18}$ $см^{-3}$, что может быть связано с концентрационным тушением люминесценции. При использовании таких элементов в схемах многопроходных усилителей требуется умеренное охлаждение до 5–7 ºС. Спектр генерации сильно легированных элементов сдвигается в красную область спектра (4,4 мкм при использовании кристалла с уровнем легирования $5{,}6 \cdot 10^{19}$ $ат/см^3$), что может позволить создавать фемтосекундные источники в окне прозрачности атмосферы 4,5–5 мкм.

3. Экспериментально продемонстрирована возможность использования диффузно легированных поликристаллических элементов Fe:ZnSe для усиления широкополосных лазерных импульсов в среднем ИК-диапазоне (4–5 мкм). При использовании лазерного кристалла толщиной 8 мм с максимальной концентрацией ионов Fe $1{,}1 \cdot 10^{19}$ $см^{-3}$ получен коэффициент усиления на проход 5,7 и реализован многопроходный усилитель с выходной энергией до 3 мДж. Простота роста и легирования поликристаллических элементов в совокупности с полученными выходными характеристиками говорит о высоком потенциале использования таких элементов в многопроходных усилителях, а также для дальнейшего развития фемтосекундных Fe:ZnSe лазерных систем.
4. Установлено, что YSGG:Cr:Er и YSGG:Cr:Yb:Ho лазеры, работающие в режиме модуляции добротности, обеспечивают стабильное излучение мегаваттного уровня мощности (энергия в импульсе до 100 мДж) в многомодовом и гауссовоподобном режимах генерации и могут быть успешно использованы в качестве накачки для усилителей на основе Fe:ZnSe и Fe:CdSe на частотах повторения до 5 Гц.
5. Разработаны методы компенсации термооптических искажений в 3-мкм твердотельных лазерах, позволяющие преодолеть ограничения на выходную энергию и качество пучка при мощной ламповой накачке (до 1,5 кВт) и увеличить выходную мощность таких источников. Методы основаны на управлении размером пучка в резонаторе лазера с помощью внутрирезонаторной оптики. Использование схемы с рассеивающими линзами, установленными в резонаторе лазера Cr:Er:YSGG (2,79 мкм), позволило генерировать импульсы с энергией 23 мДж на частоте 10 Гц с акустооптической модуляцией в кристалле KGW. В схеме с выпуклыми зеркалами в резонаторе лазера Er:YAG (2,94 мкм) были получены импульсы с выходной энергией 20 мДж с электрооптической модуляцией добротности на ниобате лития. Установлено, что менее выраженная тепловая линза в Er:YAG позволяет сохранить более высокое качество пучка при двухкаскадном усилении в таких активных элементах по сравнению с Cr:Er:YSGG. Разработанные методики могут быть использованы для создания мощных наносекундных 3-мкм лазеров с высокой средней мощностью, что позволит масштабировать мощность фемтосекундных лазерных систем, а также для исследований, связанных с экстремальным состоянием воды при резонансном поглощении лазерного излучения.
6. Предложено и экспериментально обосновано использование акустооптических модуляторов добротности на основе кристаллов KGW и KYW, обладающих высокой

лучевой прочностью, для генерации лазерных импульсов с мегаваттным уровнем пиковой мощности в 3-мкм диапазоне длин волн. Были исследованы режимы работы модуляторов двух разных конструкций в лазерах на основе кристаллов Er:YAG, Cr:Yb:Ho:YSGG и Cr:Er:YSGG. Определено, что усиление и время жизни верхнего лазерного уровня лазерных сред значительно влияют на режим модуляции добротности. В лазерах Er:YAG и Cr:Yb:Ho:YSGG были получены импульсы с энергией ~11 мДж и ~18 мДж соответственно. В лазере Cr:Er:YSGG достигается энергия импульсов ~30 мДж с длительностью 75 нс при поперечно-модовом составе близком к TEM_{00} моде. В двухкаскадном усилителе на основе этой же активной среды энергия была увеличена до ~86 мДж.

7. Создан мощный 3-мкм лазерный источник на основе кристалла Er:YLF с боковой диодной накачкой и электрооптической модуляцией добротности на основе кристалла KTP. При частоте следования 10–20 Гц получены лазерные импульсы с выходной энергией 82 мДж, длительностью 13 нс на длине волны 2,67 мкм. Увеличение частоты следования лазерных импульсов до 50 Гц одновременно с компенсацией термооптических искажений позволяет сохранить выходную энергию лазерных импульсов среднего ИК-диапазона на уровне до 20 мДж. Разработанный лазерный источник среднего ИК-диапазона демонстрирует высокую пиковую (до 6,3 МВт) и среднюю (до 1,7 Вт) мощность. Реализованная перестройка длины волны обеспечивает доступ к наносекундным лазерным импульсам с мегаваттным пиковым уровнем мощности в диапазоне длин волн 2667–2851 нм.
8. Предложена и экспериментально обоснована возможность увеличения длины волны излучения фемтосекундной лазерной системы, работающей в среднем ИК-диапазоне, при широкополосном усилении фемтосекундного импульса параметрического генератора с центральной длиной волны в области 5 мкм в кристалле Fe:CdSe, накачиваемом в 3-мкм диапазоне длин волн. При умеренном охлаждении кристалла (до -40 ^{0}C) максимальный коэффициент усиления составил 1,5 см$^{-1}$ при концентрации легирующих ионов Fe $3{,}3\cdot10^{18}$ см$^{-3}$. Охлаждение лазерного элемента до температуры, близкой к температуре жидкого азота, и использование лазера накачки на длине волны 2,94 мкм позволило увеличить коэффициент усиления слабого сигнала до 3,16 см$^{-1}$, что соответствует усилению на проход в 6,7 раза.
9. Экспериментально продемонстрировано многопроходное усиление чирпированных широкополосных импульсов среднего инфракрасного диапазона в области 5-мкм в кристалле Fe:CdSe. На пяти проходах получены фемтосекундные импульсы с энергией ~1 мДж с шириной спектра ~320 нм на центральной длине волны ~ 5 мкм. Обнаружено, что при охлаждении до криогенных температур спектр излучения сильно «срезан» с длинноволновой стороны, что характерно для халькогенидных сред и связано с выключением температурно-активируемых фононных переходов. Определена плотность энергии насыщения активной среды Fe:CdSe 13 мДж/см^2, что позволяет масштабировать

по энергии усилители в 5-мкм диапазоне. Разработанные методы стретчирования в кремнии и компрессии с использованием пары призм из фторида кальция обеспечили достижение около 5 ГВт пиковой мощности на выходе фемтосекундной лазерной системы на основе кристалла Fe:CdSe, что в рамках предлагаемого в диссертации подхода определяет возможности к масштабированию по длине волны генерации фемтосекундных лазерных импульсов в среднем ИК-диапазоне (4-5 мкм) с сохранением мультигигаваттного уровня пиковой мощности.

10. Предложен и экспериментально продемонстрирован спектральный синтез полос усиления двух халькогенидных сред Fe:CdSe/Fe:ZnSe, что, в результате, позволило усилить более широкополосные (до ~500 нм) лазерные импульсы в среднем ИК-диапазоне (4-5 мкм), чем в схемах на основе одной активной среды. В перспективе разработанный подход может позволить генерировать малопериодное излучение среднего ИК-диапазона напрямую из лазерной системы без использования дополнительных нелинейных методов расширения спектра импульса и его последующей посткомпрессии.

Глава 3. Нелинейно-оптические преобразования высокоинтенсивного лазерного излучения ближнего и среднего ИК-диапазонов в твердотельных и плотных газовых средах с синтезированной нелинейностью

В *третьей главе* представлены результаты по генерации оптических гармоник при взаимодействии сфокусированного излучения ближнего и среднего ИК диапазонов с газовой средой, включая смеси газов. Последовательно рассматривается вопрос влияния длины волны воздействующего лазерного излучения, давления и длины газовой среды на энергетические и спектральные характеристики генерируемых оптических гармоник. Обсуждаются и реализуются способы повышения эффективности преобразования в оптические гармоники при использовании молекулярных резонансов в смеси газов. Для расширения спектра излучения созданных источников ближнего и среднего ИК диапазонов в более длинноволновый диапазон отдельно рассматриваются способы генерации ТГц излучения в органических кристаллах в процессах оптического выпрямления интенсивного ИК лазерного излучения. Также за счет использования смеси газов (молекулярного и атомарного) высокого давления демонстрируются возможности компрессии мощных фемтосекундных ИК-импульсов. Как результат, делается вывод о создании широкодиапазонного источника (от УФ по ТГц) когерентного излучения на основе разработанных источников фемтосекундной длительности ближнего и среднего ИК диапазонов.

§3.1. Физические основы взаимодействия высокоинтенсивного лазерного излучения с веществом

3.1.1. Филаментация мощного фемтосекундного лазерного излучения

В основе явления филаментации лежит эффект самофокусировки в среде с кубичной (керровской) нелинейностью, который был теоретически предсказан Г.А. Аскарьяном в 1962 г. [212], а экспериментально впервые наблюдался Н.Ф. Пилепецким и С.Р. Рустамовым в 1965 г. [213]. В сверхсильных лазерных полях благодаря нелинейной зависимости поляризуемости среды от интенсивности излучения проявляются эффекты самовоздействия в виде самофокусировки в пространстве, а во времени – в виде эффектов самомодуляции. Самофокусировка приводит к тому, что поперечные размеры лазерного пучка начинают уменьшаться, возрастает интенсивность на его оси, что приводит к ионизации среды и генерации лазерно-индуцированной плазмы, ограничивающих дальнейшее сжатие лазерного пучка в пространстве [18]. В формируемых плазменных каналах происходит насыщение интенсивности лазерного излучения, которое характеризуется близостью к нулю суммы оптических сил нестационарных керровской и плазменной линз, в англоязычной литературе получившее название *intensity clamping*. В основополагающих работах вводят понятие критической мощности самофокусировки, при превышении которой эффекты самовоздействия доминируют над

эффектами дифракции, и которая для коллимированного гауссова пучка определяется формулой (15) [214]:

$$P_{cr} = \frac{3{,}77\lambda^2}{8\pi n_o n_2}, \tag{15}$$

Длина самофокусировки определяется формулой Марбургера:

$$L_{\text{КС}} = \frac{0{,}367ka^2}{\left(\left[\left(\frac{P}{P_{cr}}\right)^{1/2} - 0.852\right]^2 - 0{,}0219\right)^{1/2}}, \tag{16}$$

где P – пиковая мощность лазерного излучения, n_2 – нелинейная добавка к показателю преломления среды, n_o – показатель преломления среды.

Если мощность лазерного пучка многократно превышает критическую ($P \gg P_{cr}$), то картина пространственной самофокусировки сильно изменяется. Вместо самофокусировки пучка как целого (крупномасштабной самофокусировки - КС), лазерный пучок разделяется на части (в каждой находится по $\sim P_{cr}$), которые распространяются и самофокусируются отдельно от остальной части пучка (мелкомасштабная самофокусировка - ММС). Анализ физической картины мелкомасштабной самофокусировки, проведенный впервые В. И. Беспаловым и В.И. Талановым в классической работе [215], позволяет ввести понятие нелинейного набега фазы наиболее критичных пространственных возмущений, приобретаемых на длине среды L, что называется интегралом распада, или B-интегралом:

$$B = \frac{2\pi n_o}{\lambda} n_2 \int_0^L I(z)dz, \tag{17}$$

Характерный масштаб этих возмущений равен:

$$\Lambda_\perp \approx 2\sqrt{\pi P_{cr}/I}, \tag{18}$$

а расстояние, на котором происходит существенный рост амплитуды этих возмущений, равно:

$$L_{\text{ММС}} \approx \frac{L_{\text{КС}}}{\sqrt{P/P_{cr}}}, \tag{19}$$

Таким образом, при многократном превышении пиковой мощности лазерного излучения над критической мощностью самофокусировки мелкомасштабная самофокусировка становится доминирующим эффектом, а усиливающиеся возмущения значительно сокращают характерную длину распространения лазерного пучка, на которой он свободен от нелинейно-оптических искажений.

Высокая интенсивность, поддерживаемая в филаменте на расстояниях, превосходящих длину Рэлея лазерного пучка, а также аксиально-симметричная мода излучения в нем позволяют наблюдать различные нелинейные эффекты: генерацию суперконтинуума, нелинейный поворот эллипса поляризации [216], генерацию оптических гармоник [217], терагерцевого излучения [218] и др. В основе этих явлений лежит нелинейность третьего порядка, механизмы возникновения которой в среде различны и включают в себя такие процессы как ангармонизм

электронного и колебательного откликов атомов и молекул, переориентация молекул, электрострикция и вынужденное комбинационное рассеяние излучения на вращательных переходах молекул среды [31]. Каждый такой процесс характеризуется своим временем установления. Влияние конкретного процесса становится определяющим тогда, когда длительность лазерного импульса становится порядка или больше этого характерного времени. Для фемтосекундных импульсов ориентационный и электрострикционный механизмы возникновения нелинейной поляризации среды не существенны по причине того, что время установления нелинейности, обусловленной этими процессами, составляет 1 пс и 1 нс соответственно [219]. Характерное время действия электронной нелинейности находится на фемтосекундном временном масштабе, что определяет доминирующий вклад этого механизма в наведенное интенсивным полем изменение показателя преломления среды, а соответствующий отклик среды можно рассматривать как безынерционный. В молекулярных газах механизм вынужденного комбинационного рассеяния излучения на вращательных переходах молекул среды может оказывать существенное влияние на перераспределение электронной плотности в атомах и молекулах при характерном времени установления ~100 фс [220]. Таким образом, полное изменение показателя преломления среды в поле интенсивного фемтосекундного излучения может быть представлено в виде суммы двух вкладов [31]:

$$\Delta n_{kerr} = \Delta n_{kerr}^{el} + \Delta n_{kerr}^{rot} = \frac{n_2}{2}\left((1-g)|E(x,y,z,t)|^2 + g\int_{-\infty}^{t} H(t-t')\left|E\left(x,y,z,t'\right)\right|^2 dt'\right), \qquad (20)$$

где g изменяется от 0 до 1 и описывает долю вклада инерционной нелинейности в нелинейную добавку к показателю преломления, $H(t)$ – функция, имеющая характер затухающих осцилляций, что дает представление о двух характерных временах установления нелинейного отклика, а именно - времени затухания и периода осцилляций, характерный временной масштаб которых лежит в области ~100 фс. Соотношение между этими вкладами в общее изменение показателя преломления приводит к тому, что эволюция временной огибающей и трансформация спектра лазерного импульса будет различной в инертных и молекулярных газах. Ввиду того, что нелинейная восприимчивость среды линейно зависит от плотности, то для конденсированных сред нелинейная добавка к показателю преломления будет больше, чем для газов, примерно на три порядка, а учет вклада инерционной нелинейности в полное выражение для Δn_{kerr} будет определен через эффективную нелинейность n_2^{eff}.

Фазовая самомодуляция лазерного импульса, как временной эффект проявления нелинейной добавки к показателю преломления, приводит к зависимости полной фазы импульса от интенсивности, и, как следствие, изменению мгновенной частоты импульса и уширению его спектра. В зависимости от величины интенсивности лазерного излучения спектр накачки расширяется как со стороны коротковолновой, так и со стороны длинноволновой частей спектра, то есть происходит генерация суперконтинуума, а сам лазерный импульс чирпируется во времени.

Отметим важное влияние самонаведенной плазмы на процесс филаментации мощного фемтосекундного лазерного излучения. Плазма, ограничивая критическое уменьшение поперечных размеров лазерного пучка, динамически уравновешивает вклад керровской самофокусировки, что приводит к созданию протяженного канала – филамента. Ионизация атомов и молекул в газовых и конденсированных средах в зависимости от выбранных параметров лазерного воздействия (длительности, длины волны, интенсивности лазерного излучения) и характеристик среды (потенциала ионизации, ширины запрещенной зоны) может протекать в различных режимах: полевая ионизация (многофотонная, туннельная) и ударная/лавинная ионизация. В соответствии с теорией ионизации Л.В. Келдыша разделение механизмов полевой ионизации на многофотонную и туннельную можно провести, используя параметр Келдыша γ, который равен [221]:

$$\gamma = \frac{\omega\sqrt{2m_e I_0}}{eE_0}, \tag{21}$$

где I_0 – потенциал ионизации атома, ω и E_0 – частота и амплитуда электрического поля воздействующего лазерного излучения, m_e – масса электрона. В случае конденсированной среды вместо потенциала ионизации здесь будет использоваться величина ширины запрещенной зоны Δ. При $\gamma \gg 1$ характер полевой ионизации атома в переменном электрическом поле многофотонный (слабое поле), при $\gamma \ll 1$ реализуется режим сильного поля, а характер ионизации становится туннельным. При $\gamma \sim 1$ оба механизма ионизации должны быть учтены при описании полевой ионизации. При ударной ионизации электрон, будучи ионизованным, начинает ускоряться в поле лазерного импульса и, если он успевает набрать энергию больше потенциала ионизации в газе или больше ширины запрещенной зоны в конденсированной среде, он может «выбить» второй электрон при неупругом столкновении с атомом. Многократное повторение такого процесса приводит к экспоненциальному увеличению концентрации свободных электронов в области взаимодействия в среде; в таком случае говорят о возникновении лавины электронов. В результате поглощение энергии лазерного излучения в таком процессе происходит по механизму обратно тормозного поглощения, а средняя кинетическая энергия, набираемая электроном (осцилляторная энергия) ε_{osc} и частота столкновений ν_i, могут быть представлены в следующем виде [18]:

$$\varepsilon_{osc} = \frac{e^2E^2}{4m_e I_0}, \tag{22}$$

$$\nu_i = 2\left(\frac{\varepsilon_{osc}}{I_0}\right)\omega^2\frac{\nu_c}{\omega^2+\nu_c^2}, \tag{23}$$

В результате генерации свободных электронов плазмы изменяется диэлектрическая проницаемость среды, и соответствующее изменение показателя преломления среды может быть выражено в следующем виде [18]:

$$\Delta n_{pl} = -\frac{2\pi e^2 n_e}{m_e(\omega^2+\nu_c^2)}\left(1+i\frac{\nu_c}{\omega}\right), \tag{24}$$

В случае если столкновения незначительны (случай газовых сред при низком давлении) добавка к показателю преломления будет содержать только действительную часть. Для конденсированных сред необходимо учитывать оба вклада в наведенное плазмой изменение показателя преломления, причем частота столкновений будет определяться как максимальная частота среди характерных частот электрон-электронных, электрон-ионных и электрон-фононных столкновений. Из выражения (*24*) также следует, что аномальная дисперсия плазмы может компенсировать положительную добавку к фазе импульса, возникающую за счет фазовой самомодуляции, что открывает путь к нелинейно-оптической компрессии импульса при филаментации. Анализ явления филаментации с использованием модели движущихся фокусов показывает, что задний фронт импульса не сохраняется при распространении в плазме, наведенной передним фронтом импульса, что дополнительно помогает самосжатию импульса [222]. Однако, если вклады плазменной дефокусировки и керровской самофокусировки разновелики, то самосжатие лазерного импульса в фемтосекундной филаменте трудно достижимо.

Необходимо отметить важность учета дисперсионных эффектов при распространении фемтосекундного лазерного импульса в конденсированной или плотной газовой среде, которые проявляются особенно сильно для широкого спектра лазерного импульса по причине зависимости волнового вектора $k(\omega)$ от частоты ω:

$$k(\omega) = \frac{\omega n(\omega)}{c}, \tag{25}$$

Вдали от резонансов полная спектральная фаза $\varphi(\omega) = k(\omega)L$ импульса может быть разложен в ряд Тейлора вблизи центральной частоты ω_0:

$$\varphi(\omega) = k(\omega_0)L + \frac{1}{n!}\sum_{n=1}^{\infty}\frac{d^n\varphi}{d\omega^n}(\omega - \omega_0)^n, \tag{26}$$

Сомножители $\frac{d^n\varphi}{d\omega^n} = L \times \frac{d^nk}{d\omega^n}$ определяются из зависимости показателя преломления среды от частоты. Таким образом, можно определить групповую скорость и дисперсию групповой скорости (ДГС) лазерного импульса, распространяющегося в среде с дисперсией. Величина ДГС позволяет предсказать в предположении об изначальной форме импульса, как изменится длительность (как «расплывется» импульс) при прохождении через диспергирующую среду длины L. Так, для гауссова импульса в приближении дисперсии второго порядка получим следующее выражение для конечной длительности лазерного импульса на выходе из среды τ [31]

$$\tau = \sqrt{\tau_0^2 + \frac{16 \times ln2^2 \times \left(L \times \frac{d^2k}{d\omega^2}\right)^2}{\tau_0^2}}, \tag{27}$$

Для характеризации влияния дисперсии на длительность лазерного импульса вводят понятие дисперсионной длины $l_{disp} = \tau_0^2 \Big/ \frac{d^2k}{d\omega^2}$, при прохождении которой в среде с дисперсией интенсивность лазерного импульса уменьшается в $\sqrt{2}$ раз.

Дисперсия газовых сред обычно описывается с помощью стандартного уравнения Селмейера $n(\lambda) \approx 1 + \sum_j \frac{B_j}{C_j - \lambda^{-2}}$, где λ – длина волны, а B_j, C_j – феноменологически определенные константы. При наличии резонансов, то есть в области спектра, где становятся важными колебательно-вращательные переходы молекулярных составляющих атмосферного воздуха, особенно в среднем и дальнем ИК-диапазонах, полное выражение для показателя преломления воздуха усложняется и трансформируется следующим образом:

$$n(\omega) \approx 1 + \frac{e^2}{2m\varepsilon_0} \sum_{p,q} N_p \frac{f_{pq}}{2\omega_{pq}} \left(\frac{1}{\omega + \omega_{pq} - \frac{i}{2}\Gamma_{pq}} - \frac{1}{\omega - \omega_{pq} - \frac{i}{2}\Gamma_{pq}} \right), \quad (28)$$

где N_p – концентрация молекул или атомов сорта p, и $\omega_{pq}, \Gamma_{pq}, f_{pq}$ это частота, ширина линии и сила осциллятора q-ого резонанса в спектре молекул или атомов сорта p, m, e – масса и заряд электрона, ε_0 – диэлектрическая проницаемость вакуума. Использование этого выражения позволяет рассчитать зависимость показателя преломления от длины волны, однако расчет ДГС по такому пути сильно затруднен. В последнее время появились работы, в которых удалось модернизировать уравнение Селмейера для газов в области резонансов, получив его компактную запись, позволяющую после процедуры дифференцирования рассчитать ДГС [223].

3.1.2. Нелинейно-оптическое обогащение спектра при распространении мощного лазерного излучения в газовой среде

3.1.2.1. Влияние эффекта Керра на спектр импульса

Влияние керровской нелинейности на спектр импульса проявляется в виде эффекта фазовой самомодуляции (ФСМ), вследствие которого спектр импульса уширяется симметрично относительно центральной длины волны и одновременно с этим приобретает положительный чирп. Уширение спектра импульса за счет ФСМ, обусловленной нелинейностью третьего порядка, при прохождении участка среды $[-L/2; L/2]$ может быть выражено как:

$$\Delta\omega(t_0) = -kn_2 \int_{-L/2}^{L/2} \frac{\partial I(t, z')}{\partial t}\Big|_{t_0} dz', \quad (29)$$

где $k = 2\pi/\lambda$ – волновой вектор импульса на центральной длине волны (используется приближение плоской волны), t – время в бегущей системе координат, I – интенсивность лазерного импульса. Выражая интенсивность импульса через его энергию, учитывая, что нелинейность среды прямо пропорциональна количеству частиц среды (т.е. $n_2 = n_2(p_0) \cdot p/p_0$, где p – давление газа [224]), и считая, что импульс фокусируется в центр среды $z = 0$ и имеет гауссово распределение по времени и поперечной координате r:

$$I(t,z,r) = \frac{2\sqrt{2}E}{\sqrt{\pi}\tau \cdot \pi r^2(z)} \cdot \mathrm{e}^{-2\left(\frac{t}{\tau}\right)^2} \cdot \mathrm{e}^{-2\left(\frac{r}{r(z)}\right)^2}, \quad (30)$$

можно, рассматривая центральную часть пучка ($\mathrm{r} = 0$), записать выражение (*29*) как:

$$\Delta\omega(t_0) = k\, n_2(p_0)\frac{p}{p_0} \cdot \frac{2\sqrt{2}E}{\sqrt{\pi}\tau \cdot \pi} \cdot \frac{4t_0}{\tau^2} e^{-2\left(\frac{t_0}{\tau}\right)^2} \cdot \int_{-\frac{L}{2}}^{\frac{L}{2}} \frac{dz'}{r^2(z')}, \quad (31)$$

Из (*31*) видно, что уширение спектра будет происходить симметрично в обе стороны: на переднем фронте импульса уширение будет происходить в длинноволновую (красную) область ($\mathrm{t}_0 < 0 \rightarrow \Delta\omega(t_0) < 0$), в то время как на заднем фронте импульса уширение будет происходить в коротковолновую (синюю) область ($\mathrm{t}_0 > 0 \rightarrow \Delta\omega(t_0) > 0$). Таким образом, в силу симметричности уширения, для его параметризации удобно использовать абсолютное значение максимального по t_0 уширения $|\Delta\omega_{max}|$, которое, как это следует из (*31*), будет подчиняться закону:

$$|\Delta\omega_{max}(p,E)| \sim pE \cdot \int_{-\frac{L}{2}}^{\frac{L}{2}} \frac{dz'}{r^2(z')} \sim pE = |\Delta\omega_{max}(pE)|, \quad (32)$$

Учитывая, что для гауссова пучка $r^2(z) = r_0 \cdot (1 + (z/z_R)^2)$, а также рассматривая случай длинной среды $\mathrm{L} \gg 2\mathrm{z_R}$, получим, что интеграл в правой части (*32*) равен π^2/λ и, следовательно, не зависит от условий фокусировки NA и длины среды L.

Из выражения *(32)* видно, что уширение спектра в этом случае зависит от произведения энергии импульса и давления газа. Из этого следует, что при фиксированной длительности импульса определенное значение уширения $|\Delta\omega_{max}|^{fix}$ может быть достигнуто при давлениях газа и энергиях импульса, связанных соотношением обратной пропорциональности (гиперболическая зависимость):

$$\mathrm{E} \sim \frac{|\Delta\omega_{max}|^{fix}}{p}, \quad (33)$$

Таким образом, ФСМ позволяет для заданной энергии импульса подбирать давление газовой среды, обеспечивающее требуемую величину уширения, согласно гиперболической зависимости (*33*).

3.1.2.2. Влияние плазмы на спектр импульса

Влияние плазмы на спектр импульса так же характеризуется добавкой к показателю преломления, которая в отсутствие учёта столкновений имеет вид:

$$\Delta n_{pl} = -\frac{n_e}{2n_{cr}}, \quad (34)$$

где n_e – концентрация электронов плазмы, $n_{cr} = m\varepsilon_0\omega^2/e^2$ – критическая концентрация электронов плазмы. Считая ионизацию многофотонной [221], пренебрегая лавинной ионизацией в силу разреженности газовой среды и рекомбинацией электронов на масштабах длительности

импульса (~ 100 фс) [18], а также рассматривая случай слабой ионизации среды ($n_e \ll n_{at}$), скорость изменения концентрации электронов плазмы можно записать в виде [45]:

$$\frac{dn_e}{dt} = \sigma_K n_{at} I^K, \tag{35}$$

где σ_K – сечение многофотонной ионизации, n_{at} – исходная концентрация неионизованных атомов среды, I – интенсивность излучения, $K =< I_p/\hbar\omega + 1 >$ – порядок многофотонности, показывающий, какое минимальное количество квантов излучения с энергией $\hbar\omega$ требуется для преодоления потенциала ионизации I_p.

Учитывая, что уширение спектра импульса можно выразить как:

$$\Delta\omega(t_0) = -k \int_{-\frac{L}{2}}^{\frac{L}{2}} \frac{\partial \Delta n}{\partial t}|_{t_0}\, dz', \tag{36}$$

уширение импульса (*36*), сфокусированного в газовую среду длиной L, можно выразить с использованием (34) и (35) как:

$$\Delta\omega(t_0) = k\sigma_K n_{at} \int_{-\frac{L}{2}}^{\frac{L}{2}} I^K\, dz' = k\sigma_K n_{at} \int_{-\frac{L}{2}}^{\frac{L}{2}} I^K\, dz', \tag{37}$$

Учитывая гауссову форму импульса с гауссовым поперечным распределением интенсивности, а также линейную зависимость концентрации атомов газа от давления ($n_{at}(p) = n_{at}(p_0) \cdot p/p_0$), уширение в центре пучка ($r = 0$) можно выразить как:

$$\Delta\omega(t_0) = k\sigma_K n_{at}(p_0)\frac{p}{p_0} \cdot \left(\frac{2\sqrt{2}E}{\sqrt{\pi}\tau \cdot \pi} \cdot e^{-2\left(\frac{t_0}{\tau}\right)^2}\right)^K \cdot \int_{-\frac{L}{2}}^{\frac{L}{2}} \frac{dz'}{r^{2K}(z')}, \tag{38}$$

Как следует из (*38*), и на переднем, и на заднем фронте импульса уширение будет происходить в коротковолновую (синюю) область, поскольку величина $\Delta\omega(t_0) > 0$, что суммарно со значением уширения в окрестности $t_0 = 0$ будет приводить к смещению спектра в синюю область. При этом, в отличие от ФСМ, за счет уширения не будет возникать положительного чирпа в силу симметричности распределения интенсивности лазерного импульса по времени. Однако за счет отрицательной дисперсии плазмы и возрастания концентрации плазмы от переднего к заднему фронту импульса, плазма будет вносить отрицательный чирп в генерирующий ее импульс.

С учетом (*38*) максимальное по t_0 абсолютное значение уширения (т.е. смещения в синюю область) подчиняется закону:

$$|\Delta\omega_{max}| \sim pE^K \int_{-\frac{L}{2}}^{\frac{L}{2}} \frac{dz'}{r^{2K}(z')}, \tag{39}$$

С учетом зависимости $r^2(z) = r_0 \cdot (1 + (z/z_R)^2)$ для сфокусированного гауссова пучка интеграл в правой части (*39*) в приближении длинной среды ($L \gg 2z_R$) может быть выражен как:

$$\int_{-L/2}^{L/2} \frac{dz'}{r^{2K}(z')} = \int_{-L/2}^{L/2} \frac{dz'}{r_0^{2K} \cdot \left(1 + \left(\frac{z'}{z_R}\right)^2\right)^K} = \frac{z_R}{r_0^{2K}} \cdot \int_{-\frac{L}{2z_R}}^{\frac{L}{2z_R}} \frac{dx'}{(1 + (x')^2)^K} \approx \frac{z_R}{r_0^{2K}} \cdot \frac{\sqrt{\pi}\,\Gamma\left(K - \frac{1}{2}\right)}{\Gamma(K)}, \tag{40}$$

где $\Gamma(K) = \int_0^\infty t^{K-1} e^{-t}\, dt$ – гамма-функция. Учитывая, что $z_R = \pi r_0^2/\lambda$, значение интеграла в (*40*) можно записать как:

$$\frac{z_R}{r_0^{2K}} \cdot \frac{\sqrt{\pi}\,\Gamma\left(K - \frac{1}{2}\right)}{\Gamma(K)} = \frac{\pi}{\lambda} \frac{1}{r_0^{2k-2}} \cdot \frac{\sqrt{\pi}\,\Gamma\left(K - \frac{1}{2}\right)}{\Gamma(K)} \sim NA^{2k-2}, \tag{41}$$

где учтено также, что $r_0 \approx f\lambda/\pi r_{lens} = \lambda/(\pi \cdot NA)$ – справедливо для фокусировки коллимированного гауссова пучка. С учетом (41), в приближении длинной среды ($L \gg 2z_R$) уширение за счет плазмы подчиняется закону:

$$|\Delta\omega_{max}| \sim pE^K \cdot NA^{2K-2}, \tag{42}$$

Таким образом, как свидетельствует (42), уширение (смещение) спектра импульса за счет генерируемой плазмы будет зависеть не только от давления газа и энергии импульса, но также и от остроты фокусировки. Причем зависимость уширения от энергии импульса в этом случае имеет степенной закон ($\sim E^K$) в отличие от уширения за счет ФСМ ($\sim E$).

3.1.3. Генерация оптических гармоник при взаимодействии высокоинтенсивного лазерного излучения с газовой средой

Для расчета эффективности генерации гармоник рассматривался случай фокусировки гауссова пучка в объем среды согласно соотношению (43) [225]:

$$I_q(\Delta k, p, L) \sim \left|p \cdot F_q(p, L)\right|^2 \sim \frac{(pq)^2}{n_q} I^q \left|\int_{-L/2}^{L/2} \frac{\exp(-i\Delta k(p)z)dz}{(1+iz/b)^{q-1}}\right|^2, \tag{43}$$

где q – номер гармоники, n_q – показатель преломления среды на частоте гармоники, I – интенсивность излучения накачки, Δk – фазовая расстройка между излучением накачки и гармоникой, L – длина среды, b – длина перетяжки, $F_q(p, L) = \int_{-L/2}^{L/2} \frac{\exp(i\Delta k(p)z)dz}{(1+iz/b)^{q-1}}$ – интеграл фазового согласования. В выражении (*43*) вклад геометрической фазы (фазы Гою) гауссова пучка в расстройку волновых векторов не входит в выражение для $\Delta k(p)$, а учитывается посредством фазы комплексного множителя в скобках.

Для расчета фазовой расстройки учитывались вклады дисперсии среды и генерации плазмы (*44*). Первый член в этом соотношении может быть записан в виде (*45*).

$$\Delta k = \Delta k_{disp} + \Delta k_{plasma}, \tag{44}$$

$$\Delta k_{disp}(p) = \frac{2\pi qp}{\lambda}(n_{q\omega} - n_{\omega}), \quad (45)$$

где n_{ω} и $n_{q\omega}$ – показатели преломления для излучения накачки и гармоники с номером q, λ – длина волны, p – давление газа.

Для второго члена, связанного с генерацией плазмы, волновая расстройка записывалась в виде (46):

$$\Delta k_{plasma}(p) = \frac{q^2-1}{q}\frac{\pi\, n_e(p)}{\lambda\, n_{cr}}, \quad (46)$$

где $n_e(p)$ – электронная концентрация, зависящая от давления в кювете, n_{cr} – критическая электронная плотность для излучения накачки.

Для оценки электронной плотности использовалось скоростное уравнение в форме (47):

$$\frac{dn_e}{dt} = \frac{n_a - n_e}{n_a} w_{PI}, \quad (47)$$

где n_a – концентрация нейтральных атомов ($2{,}45\cdot10^{19}$ см$^{-3}$ для ксенона при давлении в 1 атмосферу), w_{PI} – скорость фотоионизации, рассчитываемая на основе теории Келдыша для промежуточного случая, где как многофотонная, так и туннельная ионизация могут играть существенную роль [221]. Для упрощения расчетов электронная концентрация вычислялась к концу импульса и использовалась для оценки полной расстройки волновых векторов. Так как концентрация нейтральных атомов зависит от давления, то и электронная концентрация также отражает зависимость от давления.

§3.2. Генерация оптических гармоник излучения ближнего и среднего ИК диапазонов в конденсированных и плотных газовых средах

Начиная с пионерских работ по нелинейной оптике Р.В. Хохлова и П. Франкена [33,73], увеличение эффективности нелинейно-оптических преобразований стало предметом интенсивных исследований, что диктовалось интересом к созданию ярких источников когерентного излучения в сверхширокомдиапазоне длин волн от рентгеновского до ТГц диапазона. С прикладной точки зрения это важно для развития современных методов мультиспектральной спектроскопии, в том числе с временным разрешением, что повышает достоверность получаемых результатов [74]. С фундаментальной точки зрения это дает возможность лучше понять физические механизмы, которые лежат в основе взаимодействия сверхсильного светового поля с веществом и открывает путь к генерации аттосекундных импульсов [15]. Управляющими параметрами при решении вопроса увеличения нелинейно-оптических преобразований становятся интенсивность лазерного излучения и эффективная нелинейная длина, на которой эта интенсивность поддерживается «неизменной» (приближение заданной интенсивности). Таким образом, возникает вопрос об оптимальном режиме распространения лазерного излучения в нелинейной среде, при котором эффективность нелинейно-оптического преобразования может быть существенно увеличена.

Квазиволноводный режим распространения, возникающий при филаментации мощного лазерного излучения, требует мягкой (NA<0,1) фокусировки и позволяет формировать в среде

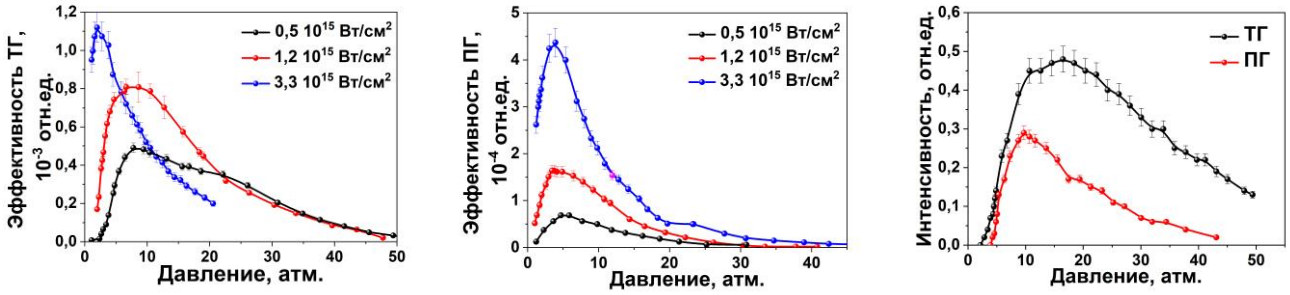
протяженные плазменные каналы с неизменной интенсивностью лазерного излучения внутри него за счет динамического баланса между Керровским и плазменным вкладом в изменение показателя преломления среды, что увеличивает эффективность нелинейно-оптических процессов (генерация оптических гармоник и ТГц излучения). В сильно сфокусированных (NA>0,3) лазерных пучках увеличение напряженности светового поля приводит к увеличению локального нелинейного эффекта, однако при этом сокращается длина нелинейного взаимодействия и сильно уменьшается область, занимаемая сильным полем, что подробно обсуждалось в 60-х годах прошлого столетия в работах Р.В.Хохлова, А.П. Сухорукова, А.И. Ковригина. Одним из очевидных шагов к увеличению локального нелинейного эффекта служит увеличение нелинейности за счет увеличения плотности атомов в среде, что означает движение в сторону твердотельных сред. Вопрос об эффективности нелинейно-оптических процессов в сильных световых полях, впервые сформулированный С.А. Ахмановым в 70-х годах прошлого столетия, является принципиальным с точки зрения выяснения предельных возможностей нелинейной оптики и влияния высших оптических нелинейностей [222]. Однако возможности увеличения интенсивности излучения в объеме конденсированной среды свыше 10^{14} Вт/см^2 ограничены по причине ионизации вещества [226]. Ионизация среды приводит к формированию в области перетяжки лазерного пучка неравновесной электронной плазмы и ограничению роста интенсивности лазерного излучения с ростом энергии импульса на уровне 5×10^{13} Вт/см^2. Плазменная нелинейность с одной стороны приводит к резкому уменьшению эффективности нелинейно-оптических процессов вследствие изменений условий их протекания (например, условия фазового синхронизма перестанут выполняться, а когерентная длина будет уменьшаться [227]), а с другой стороны за счет локального изменения нелинейной восприимчивости вещества может приводить к появлению сигнала несинхронных нелинейно-оптических гармоник (второй, третьей, пятой и т.д.) [228–230].

Резонансный отклик атома при взаимодействии высокоинтенсивного лазерного излучения с веществом также может быть использован для увеличения нелинейности. В последнее время ярким примером успешного использования этого явления является увеличение эффективности генерации оптических гармоник вблизи атомных резонансов. Наличие широких полос поглощения молекулярных газов в среднем ИК-диапазоне при наличии мощных фемтосекундных источников открывает новые возможности для увеличения эффективности нелинейно-оптических преобразований, что стало предметом исследований в рамках данной части диссертационной работы.

Для проведения исследований использовался уникальный многофункциональный лазерный комплекс, состоящий из лазерной системы ближнего ИК-диапазона на кристалле хром-форстерита, параметрического усилителя среднего ИК-диапазона и многопроходного усилителя на кристалле Fe:ZnSe, описанные ранее в диссертации (см. §1.2, §2.1).

3.2.1. Генерация оптических гармоник при взаимодействии высокоинтенсивного лазерного излучения ближнего и среднего ИК диапазонов с плотными газовыми средами в условиях плазмообразования

Исследование эффективности генерации оптических гармоник в предельных режимах фокусировки было выполнено с излучением ближнего ИК-диапазона в ксеноне для разных длин волн – 1,24 мкм и 1,7 мкм. Величина вакуумной интенсивности могла достигать значений до 10^{15} Вт/см^2 при числовой апертуре фокусирующей оптики порядка 0,1. При переносе изображения области люминесценции плазмы было установлено, что в таких условиях в газе процесс филаментации отсутствует. В эксперименте использовалось излучение хром-форстеритовой лазерной системы, имеющей следующие параметры: энергия до 2,6 мДж, длительность 170 фс, длина волны 1,24 мкм. Это излучение использовалось непосредственно для генерации гармоник (энергия до 1,5 мДж в импульсе), а также в качестве накачки для параметрического усилителя среднего ИК-диапазона. Сигнальная волна параметрического усилителя могла перестраиваться в диапазоне длин волн 1,7 – 2 мкм с выходной энергией 80 – 120 мкДж и длительностью 170 – 180 фс. Гармоники генерировались в кювете длиной 18 мм, имеющей сапфировые окна толщиной 4 мм. Для фокусировки использовалось параболическое зеркало с фокусным расстоянием 50 мм. Генерируемое излучение гармоник коллимировалось, спектрально выделялось узкополосными фильтрами и дифракционной решеткой 1200 штр./мм и регистрировалось фотоэлектронным умножителем Hamamatsu H5784-04.



а) *б)* *в)*

Рис. 66 Зависимость эффективности ТГ (а) и ПГ (б) от давления в кювете, заполненной ксеноном, при воздействии остросфокусированного лазерного излучения ближнего ИК-диапазона (1,24 мкм); (в) Зависимость выхода ТГ (черная кривая) и ПГ (красная кривая) от давления в кювете, заполненной ксеноном при воздействии остросфокусированного фемтосекундного излучения ближнего ИК-диапазона (1,7 мкм).

Зависимость выхода гармоник основного излучения хром-форстеритового лазера от давления в кювете приведена на ***Рис. 66 (а,б)***. Она имеет ярко выраженный максимум, зависящий от интенсивности излучения накачки. Максимальная эффективность преобразования составляла $11\cdot10^{-4}$ и $4{,}4\cdot10^{-4}$ для ТГ и ПГ соответственно и достигалась при давлениях 8 и 5 атм. Поперечное распределение интенсивности в пучке ТГ имело гауссовый профиль и было измерено с помощью ПЗС матрицы. Аналогичные зависимости наблюдались для ТГ и ПГ излучения ближнего ИК-диапазона (1,7 мкм). Для вакуумной интенсивности 10^{14} Вт/см^2 максимум преобразования наблюдался при 16 и 7 атм. для ТГ и ПГ соответственно (***Рис. 66(в)***).

Немонотонное поведение выхода гармоник обычно связывается с наличием ненулевой фазовой расстройки (Δk). Для объяснения полученных зависимостей была предложена простая аналитическая модель, подробно описанная в нашей работе [231] и представленная в параграфе ***3.1.3*** диссертации.

На ***Рис. 67 (а)*** изображена зависимость выхода ТГ и ПГ в зависимости от давления, рассчитанная с помощью предложенной выше модели, для вакуумной интенсивности $0{,}5\cdot10^{15}$ Вт/см^2 и 10^{14} Вт/см^2 для излучения на длине волны 1,24 мкм и 1,7 мкм соответственно. Расчеты качественно воспроизводят экспериментальные кривые, хотя точное положение максимума отличается от экспериментальных значений. Такое расхождение может быть связано с отличием вакуумной интенсивности от реально достигаемой в фокальной плоскости из-за влияния нелинейных эффектов (плазменная дефокусировка, насыщение интенсивности и др.). На ***Рис. 67 (б)*** изображена зависимость давления, при котором эффективность преобразования максимальна, для различных интенсивностей излучения накачки. В области давлений 1 – 13 атм. достигаемая интенсивность однозначно определяет положение максимума. Экспериментальным значениям максимумов 8, 7 и 2 атм. для ТГ излучения хром-форстеритового лазера соответствуют интенсивности $3{,}1\times10^{14}$, $3{,}5\times10^{14}$ и $7{,}2\times10^{14}$ Вт/см^2, соответственно. Меньшие значения достигаемой интенсивности также соответствуют существенно более слабому сдвигу максимума эффективности преобразования для ПГ. Безусловно, предлагаемая аналитическая модель довольна грубая и неспособна полностью воспроизвести экспериментальные зависимости, однако она дает некоторое представление о физических принципах процесса генерации гармоник в режиме острой фокусировки.

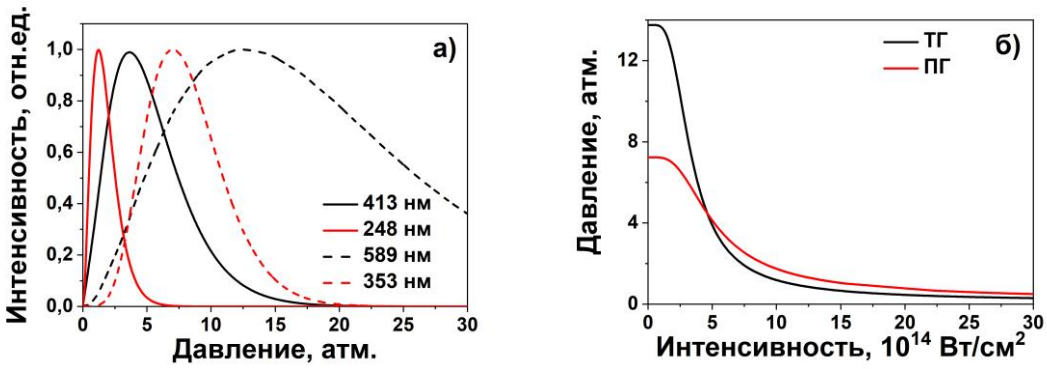
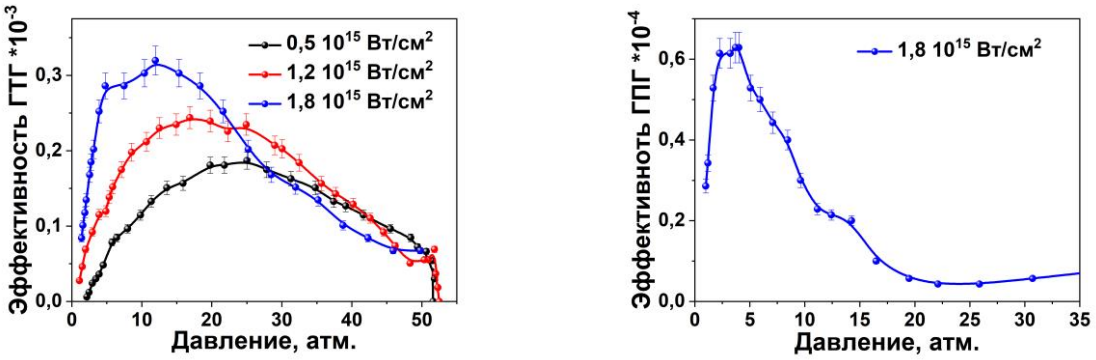


Рис. 67 (а) Нормированная интенсивность ТГ (черная кривая) и ПГ (красная кривая) рассчитанная по формуле (1) для интенсивности $0{,}5\cdot10^{15}$ Вт/см^2 и 10^{14} Вт/см^2 для излучения на длине волны 1,24 мкм (сплошные кривые) и 1,7 мкм (пунктирные кривые) соответственно. (б) Зависимость давления, при котором достигается максимум эффективности генерации для ТГ (черные кривые) и ПГ (красные кривые), от интенсивности накачки. Длина волны накачки 1,24 мкм.

В режиме острой фокусировки излучения в изотропную среду сигнал ТГ и ПГ равен нулю вследствие деструктивной интерференции до и после фокальной плоскости. Однако, появление неоднородности (такой как плазма) снимает условие симметрии и сигнал на выходе из среды становится отличным от нуля. В соответствии с формулой (*43*) сигналы ТГ и ПГ достигают максимума при значении Δk равном 94 см$^{-1}$ и 300 см$^{-1}$, соответственно. В отсутствие генерации

плазмы (при малых интенсивностях) для достижения максимальной эффективности преобразования необходимо давление порядка 14 и 7 атм. для ТГ и ПГ, соответственно. При больших интенсивностях генерируемая плазма вносит дополнительную фазовую расстройку, что ведет к уменьшению значения оптимального давления. Так как при умеренных интенсивностях волновая расстройка зависит практически линейно от давления, то выход гармоник в зависимости от давления полностью повторяет форму кривой $I_q(\Delta k)$. Когда полная волновая расстройка превышает оптимальное значение, выход гармоник значительно уменьшается.

В случае плавной фокусировки оптимальное значение расстройки Δk близко к нулю. Однако это условие не может быть достигнуто в изотропной среде. Фазовое рассогласование становится только больше при ионизации газа. Например, для излучения, сфокусированного в кювету длиной 10 мм до интенсивности $2 \cdot 10^{14}$ Вт/см^2 (использовались параметры из работы [232]), максимальная эффективность преобразования достигается при Δk = 0,25 см$^{-1}$, в то время как типичное значение фазовой расстройки для 10 мбар составляет 6 см$^{-1}$. Значительное отличие фазовой расстройки от оптимального значения ведет к уменьшению эффективности преобразования до 10^{-3}.



а) *б)*

Рис. 68 Эффективность генерации ТГ (а) и ПГ (б) в углекислом газе в зависимости от давления в кювете при воздействии остросфокусированного лазерного излучения ближнего ИК-диапазона (1,24 мкм).

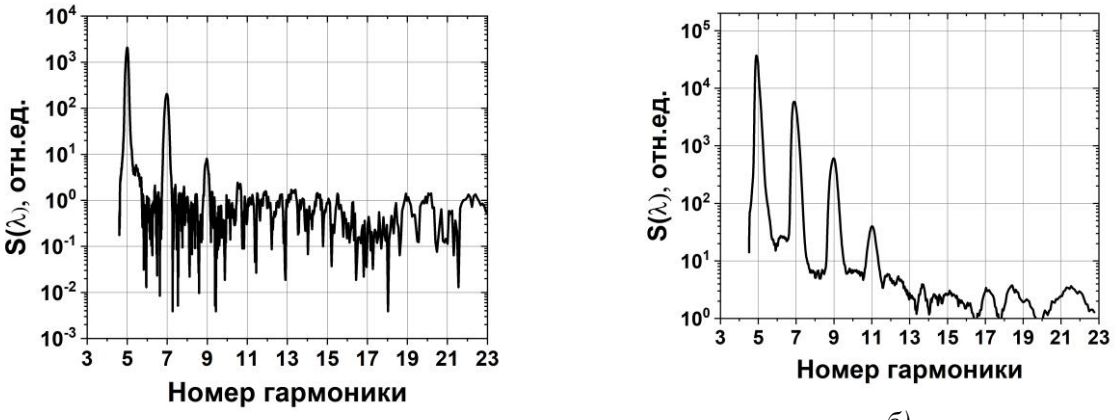
Для дополнительного подтверждения доминирующего влияния плазмы на процессы преобразования высокоинтенсивного (более 1 ТВт/см^2) фемтосекундного лазерного излучения ближнего ИК-диапазона в оптические гармоники было выполнено сравнение эффективности преобразования в третью и пятую гармоники в ксеноне и CO_2. Потенциал ионизации CO_2 (13,77 эВ) близок по величине к потенциалу ионизации ксенона (12,12 эВ), что позволяет выявить влияние молекулярной структуры на процесс генерации. Зависимость выхода ТГ и ПГ от давления в углекислом газе приведена на ***Рис. 68***. Форма зависимостей повторяет кривые, наблюдавшиеся для ксенона, однако точное положение максимумов и их ширина отличаются. Последнее связано с существенным отличием дисперсии углекислого газа от дисперсии ксенона. Важно отметить, что абсолютное значение эффективности процессов генерации ТГ и ПГ было практически на порядок ниже, чем в ксеноне, что обусловлено небольшим отличием нелинейных свойств сред и разупорядоченным состоянием CO_2 молекул. Так как молекулы не являются

изотропной системой, то эффективность генерации существенно зависит от взаимной ориентации молекул и поляризации излучения накачки.

3.2.2. Генерация оптических гармоник при взаимодействии высокоинтенсивного лазерного излучения с длиной волны 4,6 мкм с ламинарной газовой струей высокой плотности

Для установления влияния длины среды и эффектов распространения на процессы генерации оптических гармоник газовая кювета была заменена на ламинарную газовую струю, которая располагалась в вакуумной камере, где насосы Рутса (скорость откачки 1760 л/мин) могли поддерживать остаточное давление на уровне не выше 1 Торр при давлении газа в струе до ~16 атм. Для исследования влияния длины среды взаимодействия на процесс генерации гармоник в эксперименте использовались две разных трубки с длинами $L = 1$ мм и $L = 7{,}1$ мм, ограничивающие длину среды. При этом в случае $L = 1$ мм воздействие на среду происходит лишь в малой области рядом с центральной частью перетяжки ($L \ll b$), в то время как при $L = 7{,}1$ мм генерация происходит во всей области перетяжки ($L \approx b$). В экспериментах использовалось излучение фемтосекундной Fe:ZnSe лазерной системы. Энергия лазерного импульса в камере генерации составляет 1,6 мДж, что соответствует вакуумной интенсивности в перетяжке ~10^{14} Вт/см^2. Для регистрации излучения гармоник использовался спектрометр Ocean Optics QE Pro, динамический диапазон которого составлял 1:85000.

В экспериментах было исследовано влияние длины и давления газовой струи на энергию гармоник низкого порядка (5, 7, 9, 11), генерируемых при воздействии фемтосекундного лазерного излучения с длиной волны ~4,6 мкм на ламинарную струю аргона. Для интерпретации экспериментальных результатов в рамках макроскопического отклика среды была использована модель, описанная выше. Спектры излучения гармоник при давлении 10 атм. представлены на ***Рис. 69***.



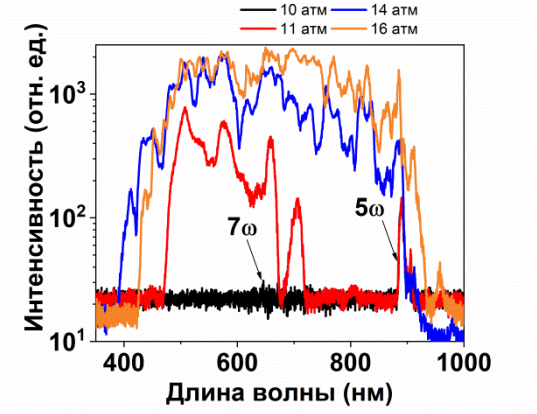
а) *б)*

Рис. 69 Спектры генерируемых оптических гармоник, регистрируемые за один лазерный импульс, при давлении струи 10 атм., длина среды а) $L = 1$ мм и б) $L = 7{,}1$ мм.

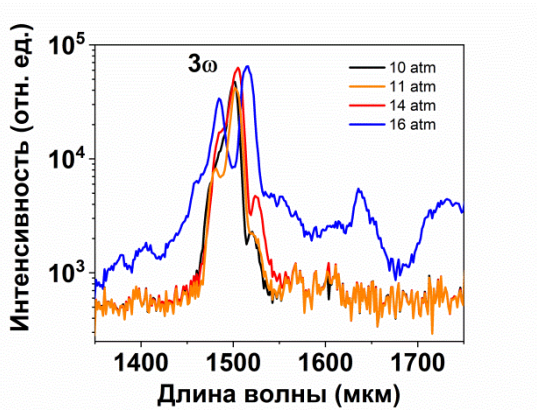
Как видно из ***Рис. 69***, увеличение длины газовой среды более чем на порядок повышает эффективность преобразования. В этом случае удается добиться согласования длины перетяжки и длины среды и увеличить количество элементарных излучателей - атомов, генерирующих сигнал оптических гармоник (***Рис. 69 б***). В результате эффективность генерации гармоник при давлении на входе в газовую струю ~10 атмосфер и $L = 7{,}1$ мм составила $2{,}5 \times 10^{-6}$ для 5-й гармоники (в сравнении с 2×10^{-7} при $L = 1$ мм), $2 \cdot 10^{-7}$ для 7-й гармоники (в сравнении с $6 \cdot 10^{-9}$ при $L = 1$ мм), 1×10^{-8} для 9-й гармоники (в сравнении с 3×10^{-10} при $L = 1$ мм) и 8×10^{-10} для 11-й гармоники. При этом максимальная эффективность преобразования, достигнутая в эксперименте при давлении 16 атмосфер и $L = 7{,}1$ мм, составила 10^{-5} для 5-й гармоники, 2×10^{-6} для 7-й гармоники, $1{,}5 \times 10^{-7}$ для 9-й гармоники и 3×10^{-9} для 11-й гармоники. Результаты эксперимента показывают, что увеличение эффективности преобразования в оптические гармоники происходит практически линейно с увеличением объема среды, а не длины. Увеличение длины среды, помимо роста эффективности генерации, также приводит к изменению закона роста энергии гармоник от давления газовой струи, что является индикатором влияния эффектов распространения на процесс генерации гармоник и для более точного теоретического описания требует более сложной модели по сравнению с описанной в параграфе ***3.1.3*** диссертации.

3.2.3. Генерация оптических гармоник при взаимодействии высокоинтенсивного лазерного излучения с длиной волны 4,6 мкм с плотными газовыми средами в режиме филаментации

Далее эксперименты были продолжены с излучением среднего ИК-диапазона лазерной системы на Fe:ZnSe (центральная длина волны 4,6 мкм) при его распространении в газах в режиме филаментации. Для проведения экспериментов использовалась кювета длиной 8 см. При энергии накачки 2,5 мДж (вакуумная интенсивность в перетяжке ~10^{14} Вт/см^2) и давлении в диапазоне 1 – 10 атм. наблюдалась генерация оптических гармоник: третьей, пятой и седьмой (см. ***Рис. 70*** черная кривая). При увеличении давления спектр гармоник существенно уширялся, при этом визуально через боковое окно кюветы можно было наблюдать появление плазменного канала, положение которого было достаточно нестабильно вплоть до давления порядка 20 атм.



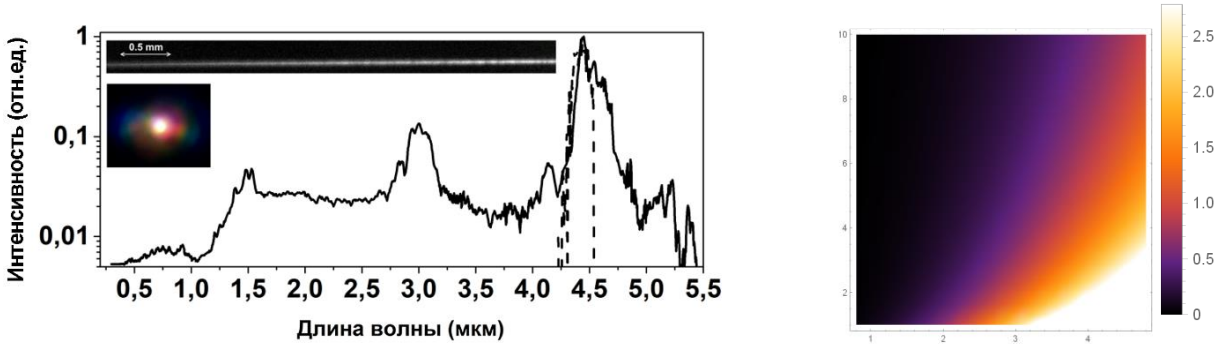
(а)



(б)

Рис. 70 Спектр видимой части генерируемого суперконтинуума (а) и третьей гармоники (б) при разных давлениях в кювете, заполненной ксеноном.

При дальнейшем увеличении давления (порядка 20 атм.) положение плазменного канала стабилизировалось (вставка на ***Рис. 71 (а)***). В дальней зоне наблюдался стабильный пучок конической эмиссии видимой части спектра (вставку на ***Рис. 71 (а)***). Для такого давления был измерен панорамный спектр суперконтинуума, изображенный на ***Рис. 71 (а)***. Спектр суперконтинуума занимает 4 октавы от 350 нм до 5,5 мкм. При дальнейшем увеличении давления до 27 – 28 атм. наблюдалось появление второго плазменного канала, а пучок видимой части суперконтинуума начинал хаотически изменяться.



(а) *(б)*

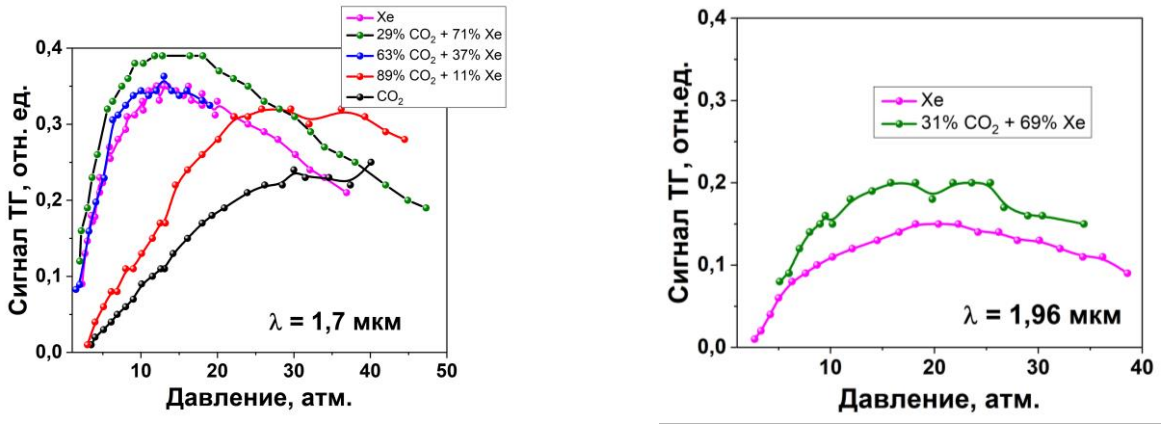
Рис. 71 (а) Спектр суперконтинуума, генерируемый при филаментации излучения на длине волны 4,4 мкм в ксеноне при давлении 20 атм. Вставка: плазменный канал, наблюдаемый через боковое окно кюветы и профиль видимой части пучка, измеренный в дальней зоне. (б) Зависимость дисперсионной длины для процесса генерации ТГ от давления ксенона (вертикальная ось) и длины волны накачки (горизонтальная ось).

Отмечу, что генерация оптических гармоник при филаментации излучения ближнего ИК-диапазона обычно наблюдается лишь при малых давлениях. Эффективность генерации третьей гармоники (ТГ) в воздухе излучением титан-сапфирового лазера составляет порядка 10^{-4} [233,234]. В экспериментах по филаментации излучения ближнего ИК-диапазона (длина волны 1,24 мкм) в различных инертных газах генерация ТГ наблюдалась лишь при малых давлениях. Условия фазового согласования для ТГ быстро разрушались при увеличении давления и ионизации газа. Такое поведение связано с влиянием первых электронных резонансов инертных газов на фазовые соотношения для излучения гармоники и накачки. На ***Рис. 71 (б)*** приведена карта дисперсионной длины для процесса генерации ТГ в ксеноне в зависимости от давления газа и длины волны накачки. Видно, что при переходе в средний ИК диапазон дисперсионная длина существенно увеличивается (до нескольких сантиметров), позволяя эффективно генерировать гармонику еще до формирования режима филаментации. Эффективность генерации ТГ и ПГ в наших исследованиях составила 10^{-3} и 10^{-4} при низких давлениях порядка 10 атм., соответственно. В дальнейших экспериментах для уменьшения влияния сопутствующих нелинейно-оптических эффектов использовалась более плавная фокусировка и меньшая энергия накачки, что обеспечивало больший диапазон рабочих давлений в отсутствие процесса филаментации.

3.2.4. Повышение эффективности преобразования высокоинтенсивного излучения ближнего и среднего инфракрасного диапазона в комбинированных газовых средах с резонансами

Для изучения возможности повышения эффективности генерации гармоник в комбинированных средах (CO_2 + Xe) использовалось излучение ближнего (1,7 – 2 мкм) и среднего (4,45 мкм) ИК-диапазона. Молекула CO_2 обладает полосой поглощения в окрестности 1,9 – 2 мкм и 4,3 мкм, поэтому в экспериментах предполагалась проверка возможности резонансного усиления эффективности генерации гармоник. Отметим, что ранее повышение эффективности генерации 5, 7 и 9–ой гармоник в аргоне наблюдалось в работе [5] при подстройке излучения накачки под пяти-фотонный резонанс между основным и первым возбужденным состоянием одного из электронов (3p – 4s). Увеличение выхода ТГ наблюдалось в ксеноне в [235], где частота третьей гармоники соответствовала переходу 5p – 5d. Ключевой особенностью выполненной в диссертации работы был тот факт, что в резонанс попадало само излучение накачки, а не какой-либо гармоники.

В первой серии экспериментов исследовалась зависимость выхода ТГ излучения параметрического усилителя от давления в кювете для различных смесей газов (CO_2 + Xe) (***Рис. 72***). Также как и для излучения хром-форстеритового лазера в чистом ксеноне эффективность генерации выше, чем в чистом углекислом газе. При добавлении небольшого количества ксенона (11% от всего газа) форма зависимости выхода ТГ от общего давления в кювете все еще напоминает форму зависимости для углекислого газа (черная и красная кривые на ***Рис. 72 (а)***), однако эффективность генерации в области максимума (~30 – 35 атм.) увеличилась практически в 1,5 раза, что, возможно, связано с увеличением нелинейных свойств смеси. При дальнейшем увеличении количества ксенона (до 37%) максимум эффективности генерации сдвигается в область малых давлений, приближаясь к форме зависимости для чистого ксенона (голубая и розовая кривые). Увеличение количества ксенона (до 71%) уменьшает эффективную «ширину» максимума по давлению, однако максимальная эффективность преобразования становится даже больше, чем для чистого ксенона. Полученные зависимости показывают, что, регулируя процентное содержание газов в смеси, можно эффективно управлять формой зависимости выхода гармоники от давления, которая в свою очередь однозначно определяется фазовой расстройкой. При изменении длины волны накачки до 1,96 мкм форма зависимости остается неизменной (***Рис. 72 (б)***), а увеличение сигнала ТГ в смеси по сравнению с чистым газом остается на том же уровне. Такие результаты могут свидетельствовать о том, что при взаимодействии с молекулярным резонансом доминирующую роль играет дисперсия газа в окрестности резонанса, а как такового резонансного усиления не возникает. Для подтверждения этой идеи дальнейшие исследования были проведены в окрестности полосы поглощения 4,3 мкм, оказывающей существенно большее влияние на дисперсию CO_2 и частично перекрывающейся с полосой усиления лазерной системы Fe:ZnSe.

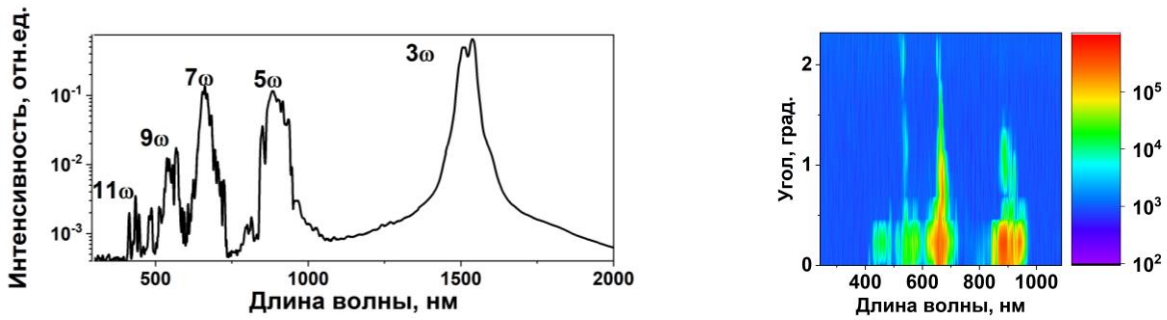


(а) *(б)*

Рис. 72 Зависимость выхода ТГ от давления для различных газовых смесей ксенона и углекислого газа. а) Длина волны возбуждающего излучения 1,7 мкм. Вакуумная интенсивность 10^{14} Вт/см^2. б) Длина волны возбуждающего излучения 1,96 мкм. Вакуумная интенсивность $0{,}7\cdot10^{14}$ Вт/см^2.

В экспериментах излучение Fe:ZnSe лазерной системы, работающей на центральной длине волны 4,45 мкм, фокусировалось в кювету длиной 11 см. Вакуумная интенсивность в перетяжке составляла $(1{,}8 – 1{,}9)\times10^{13}$ Вт/см^2. Давление в кювете контролировалось манометром с точностью 0,1 атм. Для экспериментов кювета заполнялась смесью газов Xe-CO_2 в пропорции 1 атм. CO_2 и 48 – 50 атм. Xe. Концентрация молекул CO_2 и Xe составляла порядка $2{,}5\times10^{19}$ и $1{,}2\times10^{21}$ см$^{-3}$ соответственно. В такой смеси наблюдалась генерация оптических гармоник до 11-ой.

На ***Рис. 73*** представлен спектр гармоник, генерирующийся в приосевой части лазерного пучка и снятый с помощью спектрометров видимого и ближнего ИК диапазонов. Дополнительно спектрометром видимого диапазона были сняты частотно угловые спектры гармоник с 5-ой по 11-ую (***Рис. 73 (б)***). Видно, что помимо приосевой части существуют также гармоники, распространяющиеся со значительной расходимостью. Это может свидетельствовать о генерации части сигнала гармоник по механизму четырехволнового смешения на нелинейности более низкого (3-его) порядка [236].



(а) *(б)*

Рис. 73 а) Спектр оптических гармоник, генерируемых в смеси Xe-CO_2. б) Частотно-угловые характеристики видимой части генерируемых гармоник.

Для измерения эффективности генерации гармоник сигнал каждой из них спектрально выделялся и регистрировался детектором. Сигнал третьей гармоники (ТГ) выделялся с помощью

кремниевой (Si) пластинки и измерялся германиевым детектором. Излучение на основной частоте блокировалось кварцевой пластинкой толщиной 15 мм. Более высокие гармоники, отраженные от Si, дополнительно раскладывались в спектр решеткой 1200 штр./мм. и регистрировались кремниевыми фотодиодами и ФЭУ, оснащенными полосовыми фильтрами.

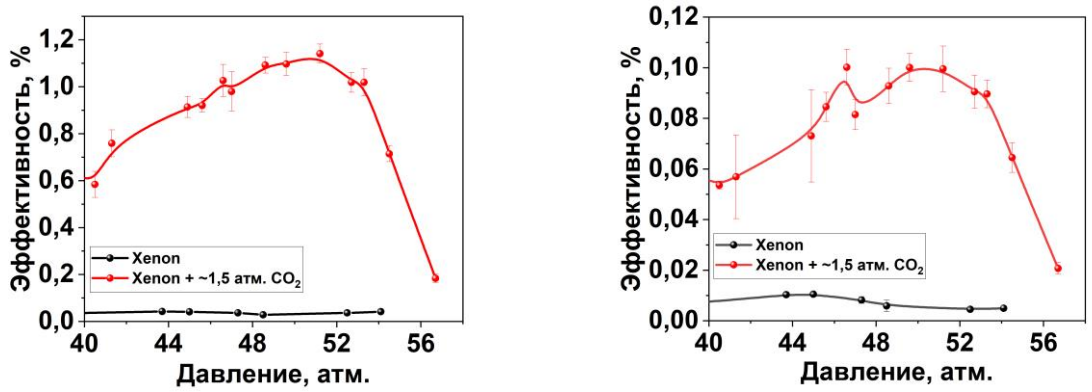


Рис. 74 Зависимость выхода третьей (а) и пятой (б) оптических гармоник от давления ксенона в кювете. Черная кривая соответствует чистому газу, а красная – смеси, содержащей около 1,5 атм. CO_2.

При заполнении кюветы чистым ксеноном наблюдалась генерация лишь третьей и пятой гармоник. С увеличением давления наблюдался рост эффективности генерации вплоть до давления порядка 45 атм. При дальнейшем увеличении давления эффективность генерации уменьшалась, что связано с появлением значительной волновой расстройки, которая не может быть скомпенсирована увеличением нелинейной добавки к показателю преломления. Добавление углекислого газа приводило к значительному росту эффективности преобразования. Сигнал ТГ и ПГ при парциальном давлении ксенона около 50 атм. увеличивался в 25 и 10 раз соответственно. Качественно зависимость эффективности генерации от парциального давления ксенона не изменялась (см. ***Рис. 74*** красная кривая).

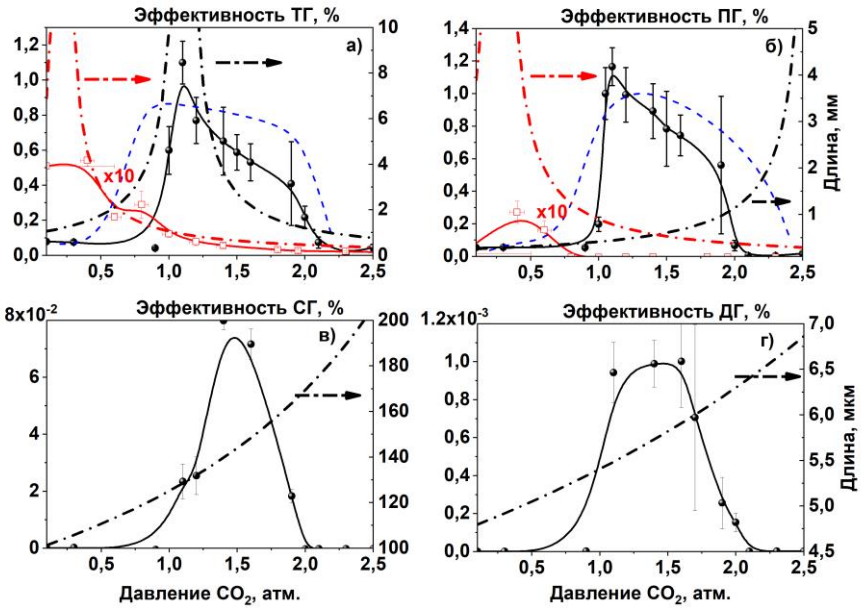


Рис. 75 Зависимость эффективности генерации третьей (а), пятой (б), седьмой (в), девятой (г) гармоник от парциального давления CO_2 (черная сплошная кривая) в смеси и чистом газе (красная сплошная кривая). Штрих-пунктир: зависимость дисперсионной длины от давления CO_2.

Для определения механизма влияния CO_2 на эффективность генерации были проведены измерения эффективности генерации в зависимости от парциального давления CO_2 и в чистом CO_2. На ***Рис. 75*** приведена зависимость выхода ТГ и ПГ от давления CO_2. Как видно из сравнения ***Рис. 74*** и ***Рис. 75*** эффективность генерации в чистом газе оказывается существенно ниже, чем в смеси, а гармоники более высокого порядка не наблюдаются. На ***Рис. 75*** также представлены зависимости выхода гармоник от парциального давления CO_2 в смеси. Эффективность генерации максимальна при давлении порядка 1 атм. Важно, что по сравнению с чистым газом максимум эффективности генерации сдвинулся с малых давлений около 0,5 атм. в область 1 атм. Следовательно, изменение количества углекислого газ в смеси позволяет управлять условиями фазового согласования, в то время как нелинейность в основном определяется давлением ксенона. Для подтверждения этих соображений были рассчитаны зависимости дисперсионных длин для каждой из гармоник (см. штрих-пунктир на ***Рис. 75***). Для расчетов волновой расстройки между излучением накачки и каждой из гармоник использовались уравнения Селмейера для ксенона и углекислого газа, учитывающие электронные переходы ксенона на длинах волн 146,9 нм, 125,6 нм и 129,5 нм [237] и молекулярные линии углекислого газа на длинах волн 15 мкм, 4,29 мкм, 2,68 мкм, 2 мкм [223]. Как видно из расчетов, при добавлении CO_2 дисперсионная длина значительно возрастает для каждой из гармоник, что ведет к увеличению эффективности генерации.

При использовании более острой фокусировки (линза 100 мм) эффективность генерации третьей гармоник возрастала до 1,5%, а пятой до 0,7%, однако более высоких гармоник не наблюдалось. При этом через боковое окно кюветы наблюдался плазменный канал. В таком случае наличие плазмы разрушает фазовые соотношения и негативно сказывается на эффективности генерации более высоких гармоник.

§3.3. Генерация терагерцового излучения при оптическом выпрямлении высокоинтенсивного ИК лазерного излучения в органических кристаллах

Терагерцовое (ТГц) излучение (0,1–30 ТГц) находится между микроволновым и инфракрасным диапазонами частот электромагнитных волн, с энергиями фотонов, близкими к уровню Ферми, и пиковыми значениями напряженности электрического и магнитного поля около или выше МВ/см и Тесла соответственно [26,27]. Кроме того, его пикосекундное/субпикосекундное временное разрешение определяет применение такого излучения в время-разрешенной спектроскопии и имаджинге [238,239]. В результате ТГц излучение может рассматриваться как уникальный источник «холодного света», открывая новую область взаимодействия света и материи.

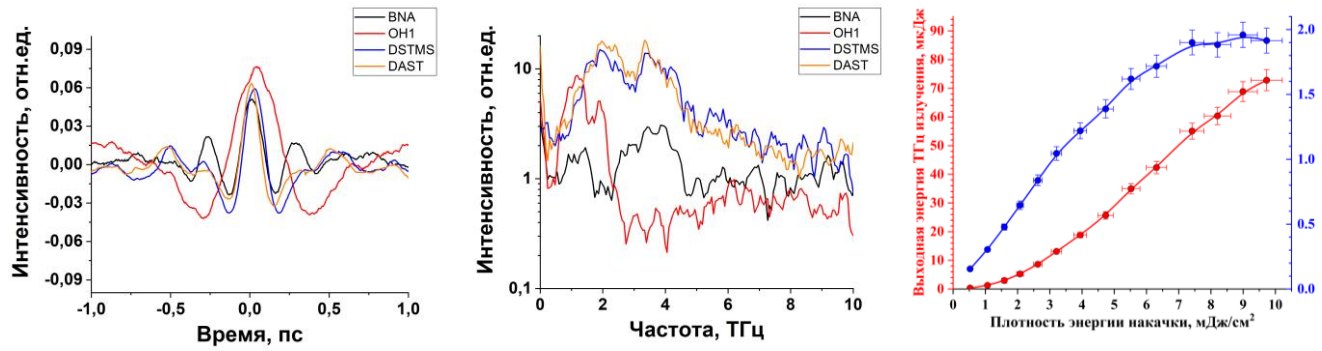
ТГц частоты соответствуют собственным фононным и магнонным колебаниям большого числа сильно коррелированных систем. Таким образом, интенсивные терагерцовые поля на определенной частоте могут когерентно и резонансно передавать энергию колебаниям кристаллической решетки материала, возбуждая тем самым новые электронные конфигурации, открывая новую физику и получая новые состояния вещества. Это породило новую область исследований, известную как *"ligthwave quantum electronics"*, которая ориентирована на приложения квантовой обработки информации. Кроме того, терагерцовые импульсы могут ориентировать молекулы и, следовательно, регулировать большое количество каталитических процессов в химических технологиях [240]. Импульсы терагерцового диапазона с сильным полем могут переворачивать спин электрона и обеспечивать нелинейное управление спином, закладывая основу для будущих сверхбыстрых устройств спинтроники [241]. В сочетании с сканирующей зондовой микроскопией импульсы сильного поля ТГц диапазона могут генерировать туннельный ток на кончике сканирующего туннельного микроскопа, преодолевая дифракционный предел световой волны для ТГц диапазона и предоставляя новый мощный инструмент для управления состоянием новых наноразмерных материалов [242,243]. ТГц-импульсы сильного поля обладают способностью ускорять, сжимать и манипулировать электронными микросгустками в нескольких измерениях, что, по прогнозам, приведет к разработке настольных миниатюрных ТГц-ускорителей для использования в аттосекундных источниках рентгеновского излучения [244,245]. Кроме того, интенсивное ТГц излучение используется для установления протоколов биологической безопасности в ТГц диапазоне, что особенно актуально в биологических приложениях [246].

В отличие от оптического диапазона, где нелинейные явления преимущественно связаны с распределением заряда (поляризацией), для ТГц диапазона по причине большей длительности одного периода колебания поляризация уже не является доминирующей. Из-за того, что определенные частоты ТГц излучения способны управлять низкочастотными движениями, такими как вращение молекул и колебания кристаллической решетки, посредством взаимодействия с ионными, электронными или спиновыми степенями свободы, ТГц излучение может резонансно возбуждать эти специфические моды. Когда пиковая амплитуда терагерцового поля на частоте 1 ТГц превышает 0,3 МВ/см, пондеромоторная энергия электрона может достигать 1 эВ, что превышает энергию ионизации примеси в полупроводнике и может привести к ударной ионизации [27,247] и туннельному эффекту [248].

Однако отсутствие экономичных, высокоэффективных источников интенсивного ТГц излучения с управляемой поляризацией сдерживает развитие нелинейной терагерцовой оптики. Эффективность генерации мощных терагерцовых импульсов можно значительно повысить при использовании излучения ближнего и среднего ИК диапазонов, как при генерации в специально ориентированных нелинейных органических кристаллах [26,249], в одночастотных полях по ионизационному механизму возмущения фототоков [250] и в двухцветной схеме филаментации в воздухе [16]. В первом случае, генерация ТГц излучения является наиболее эффективной при

использовании излучения с накачкой 1,2-1,5 мкм. Использование излучения от 2 до 3 мкм увеличивает на несколько порядков (до 5-7%) эффективность схемы на основе двухцветной филаментации [251,252].

В диссертации основное внимание уделялось разработке способов генерации мощного терагерцевого излучения с возможностью управления его спектрально-временными характеристиками. Для генерации терагерцового (ТГц) излучения использовался мультигигаваттный хром-форстеритовый лазерный комплекс (длина волны 1,24 мкм, энергия 3,5 мДж, длительность 100 фс). Эксперименты выполнялись с использованием кристаллов DAST (размер 0,5×10 мм – толщина и диаметр соответственно), BNA (0,8×6 мм), OH1 (0,87×6 мм) и DSTMS (0,12×6 мм). Для регистрации ТГц излучения использовался пироэлектрический детектор Gentec QE8SP-B-BC-D0 оснащенный фильтром низких частот Tydex LPF23.4-24. Регистрация спектра ТГц излучения осуществлялась с помощью схемы интерферометра Майкельсона, где в качестве светоделителя использовалась пластина из высокоомного кремния (Tydex HRFZ-Si). (см. ***Рис. 76***).



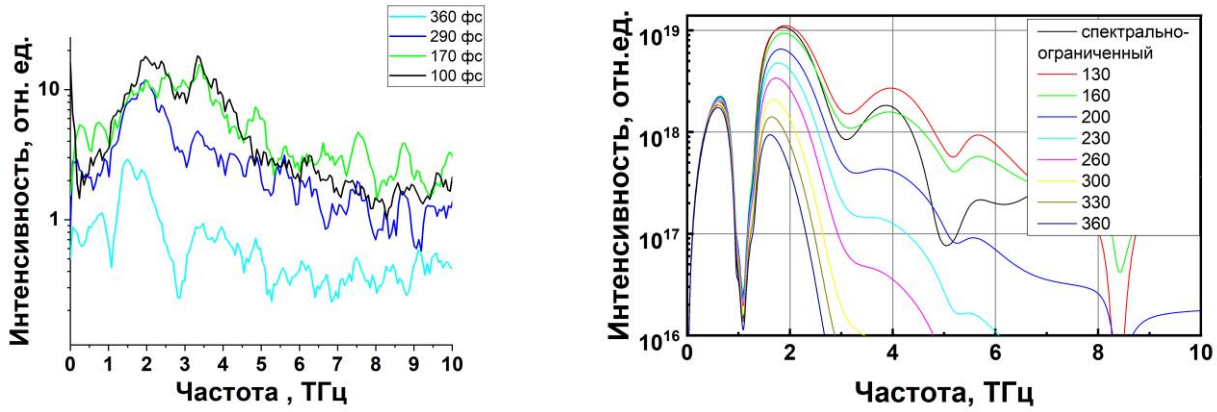
(а) *(б)* *(в)*

Рис. 76 Корреляционная функция (а) и спектр (б) ТГц излучения, полученного в органических кристаллах при их накачке мультигигаваттной хром-форстеритовой лазерной системы. (в) – выходная энергия и эффективность преобразования кристалла DAST в зависимости от плотности энергии накачки (λ=1,24 мкм).

На ***Рис. 76 (а) и (б)*** изображены корреляционная функция первого порядка и спектр ТГц излучения, полученный на основе преобразования Фурье. Кристаллы DAST, DSTMS и BNA позволяют получить существенно более широкий спектр ТГц излучения (вплоть по 5-6 ТГц), в то время как спектр излучения из кристалла OH1 преимущественно локализован в окрестности 1-2 ТГц. Следует отметить, что в спектрах ТГц излучения, полученного из кристаллов DAST и DSTMS, характерный провал в области 1 ТГц, обусловленный фононным поглощением, практически не виден, что может быть следствием ограниченного спектрального разрешения. Более явно данный провал выражен в спектрах на ***Рис. 77***. Аппроксимация автокорреляционной функции поля ТГц излучения гауссовой огибающей позволила установить её ширину по уровню FWHM, которая для кристаллов DAST и DSTMS составила $\Delta t_{АКФ}$~750 фс и ~ 670 фс соответственно, что при условии отсутствия чирпа в ТГц импульсе соответствует длительности ТГц импульса $\Delta t_{ТГц} = {}^{\Delta t_{АКФ}}/_{1,41} \sim 530$ фс и ~470 фс соответственно. Оценка длительности

одного цикла поля для ТГц излучения с центральной частотой ~3 ТГц, генерируемого в данных кристаллах, даёт значение ~330 фс, что говорит о генерации в органических кристаллах DAST и DSTMS терагерцового излучения предельно короткой длительности, близкой к одной осцилляции поля. Оценка длительности ТГц импульса, полученного в кристалле OH1 составляет 1,1 пс, при этом центральная частота в спектре ТГц излучения для данного кристалла составляет 1,5 ТГц, что соответствует периоду осцилляций поля на уровне 670 фс. Оценка длительности ТГц импульса, полученного в кристалле BNA, составляет 660 фс, что с учётом центральной частоты спектра на 3,5 ТГц и соответствующем периоде поля 290 фс свидетельствует о генерации малопериодного импульса в примерно 2 цикла поля. Отметим, что хром-форстеритовый лазер использовался для накачки кристалла BNA впервые, достигнутая эффективность преобразования составила 0,7%. Широкий спектр кристалла BNA находится в хорошем согласии с результатами работы [253], где в качестве накачки использовалась сигнальная волна параметрического усилителя. Таким образом, грубое спектрально-временное управление полем ТГц излучения может быть реализовано путём использования для генерации набора органических кристаллов DAST, DSTMS, OH1 и BNA.

В качестве более прецизионного способа управления спектрально-временной формой поля ТГц излучения, генерируемого в кристаллах, может выступать изменение чирпа излучения накачки. Для подтверждения указанного подхода в диссертационной работе проведены эксперименты по генерации ТГц излучения в кристалле DAST чирпированным фемтосекундным излучением хром-форстеритовой лазерной системы (см. ***Рис. 77***). Выбор данного кристалла для эксперимента с чирпированным импульсом накачки обусловлен одновременно большой шириной спектра и наибольшей эффективностью преобразования среди использованных кристаллов. Использование кристалла с широкой апертурой (10×10 мм) позволило добиться коэффициента преобразования на уровне 2% в режиме насыщения эффективности, что с учётом поглощения части энергии в фильтре Tydex LPF23.4-24 (~ 50%) соответствовало энергии ТГц импульса на уровне 70 мкДж сразу после кристалла. Расширение пучка ТГц излучения с помощью внеосевых парабол и последующая его фокусировка позволили получить пучок в перетяжке диаметром 330 мкм по уровню $1/e^2$ по интенсивности, что свидетельствует о возможности достижения электрического поля на уровне 15 МВ/см в перетяжке пучка при использовании полной (70 мкДж) энергии ТГц импульса.



(а) *(б)*

Рис. 77 Спектр ТГц излучения, генерируемого в процессе оптического выпрямления чирпированного хром-форстеритового лазерного импульса в кристалле DAST. (а) – эксперимент, (б) – теория.

Чирпирование хром-форстеритового лазерного импульса влияет на два параметра в спектре ТГц излучения: ширина спектра и центральная длина волны. При внесении положительного чирпа и соответствующем изменении длительности лазерного импульса от спектрально ограниченного (~100 фс) до чирпировнного (~360 фс) центральная длина волны ТГц излучения смещается от 2 ТГц до 0,4 ТГц при синхронном изменении ширины спектра от 2,1 ТГц до 0,2 ТГц. Для объяснения этого поведения было проведено численное моделирование, основанное на решении системы укороченных уравнений, описывающих процессы трехволнового смешения. Процессы генерации суммарной и разностной частот рассматривались в приближениях медленно меняющихся амплитуд [254] и плоских волн с учетом материальной дисперсии и поглощения в органическом кристалле DAST [255,256]. Численное решение уравнений проводилось с помощью метода Рунге-Кутты 4-го порядка с пространственным разрешением 1 мкм. Для моделирования процесса генерации ТГц излучения в органическом кристалле входными параметрами являются параметры импульса накачки – энергия, длительность, диаметр пучка, чирп импульса и его центральная частота, а также параметры исследуемого кристалла DAST – нелинейный оптический коэффициент d_{eff} , показатели преломления, рассчитываемые для каждой из волн на основе формул Селлмейера [257], и толщина кристалла.

В результате моделирования было обнаружено, что при накачке кристалла DAST толщиной 500 мкм спектрально-ограниченным импульсом накачки хром-форстеритового лазера (~ 100 фс) возможна генерация терагерцового излучения в диапазоне до 8 ТГц с двумя спектральными максимумами 0,4 ТГц и 2 ТГц, что наблюдается и в экспериментально регистрируемых спектрах (см. ***Рис. 77***). Излучение на длинах волн более 6-8 ТГц испытывает значительное поглощение на атмосферных трассах, поэтому результаты моделирования предсказывают бóльшую по сравнению с экспериментом интенсивность генерируемого излучения в данной частотной области. Максимум в области 2 ТГц может быть связан с лучшим согласованием скоростей импульсов накачки и ТГц излучения (2 ТГц), так как в этом случае

длина когерентности оказывается равной длине используемого кристалла и составляет ~ 500 мкм, а провал в области 1 ТГц может быть объяснен наличием линии поглощения кристалла DAST в данном частотном диапазоне. При чирпировании импульсов накачки ширина спектра генерируемого ТГц излучения уменьшается при одновременном снижении спектральной амплитуды компоненты на частоте 2 ТГц. В случае отрицательного чирпирования (внесения отрицательной дисперсии групповой задержки) до 300 фс наблюдается аналогичная эволюция спектра генерируемого ТГц излучения. При длительности импульса 300 фс как в эксперименте, так и в моделировании ширина спектра составляет до 2,5 ТГц, при этом спектральная яркость компонент на частотах 0,4 ТГц и 2 ТГц примерно равна. Демонстрируемое согласие теории и эксперимента говорит о том, что в основе наблюдаемых эффектов лежит изменение ширины фазового синхронизма вырожденного процесса генерации разностной частоты, так как при чирпировании импульсов накачки ширина спектра ТГц излучения определяется мгновенными временным перекрытием спектральных компонент импульсов накачки в нелинейном кристалле.

Таким образом, можно заключить, что в рамках диссертационной работы предложены подходы по генерации мощного перестраиваемого малопериодного ТГц излучения, которые легли в основу создания широкодиапазонного источника когерентного излучения от УФ до ТГц диапазона.

§3.4. Генерация сверхширокополосных оптических суперконтинуумов и малопериодного излучения с использованием мощных фемтосекундных импульсов ИК-диапазона

Генерация суперконтинуума шириной в несколько октав при распространении высокоинтенсивного (до 10^{13} Вт/см^2) фемтосекундного лазерного излучения в среде является перспективным инструментом для временной спектроскопии высокого разрешения, оптических параметрических усилителей (ПУ) и современной нелинейной оптики [258], в первую очередь для генерации предельно коротких лазерных импульсов в ИК-диапазоне. Одним из наиболее распространенных методов генерации суперконтинуума (СК) является эффективное уширение спектра ультракороткого лазерного импульса в режиме филаментации. Фемтосекундная филаментация увеличивает длину области высокой интенсивности и, как следствие, эффекты, сопровождающие распространение лазерного импульса (четырехволновое смешение, самоукручение фронта, ВКР, образование плазмы и др.) уширяют начальный спектр лазерного импульса до нескольких октав [259,260]. Форма и спектральная яркость генерируемого СК сильно зависят от свойств среды (дисперсия групповой скорости, нелинейный показатель преломления, спектр поглощения, молекулярные колебания и т.д.) и параметров лазерного импульса (энергия, длина волны, длительность и поляризация) [261]. Свободный объем среды (в отличие от полых волокон) чаще всего применяется для генерации яркого широкополосного СК в режиме фемтосекундной филаментации. Фемтосекундная филаментация приводит к уширению спектра ультракороткого лазерного импульса за счет его самомодуляции и самоукручения

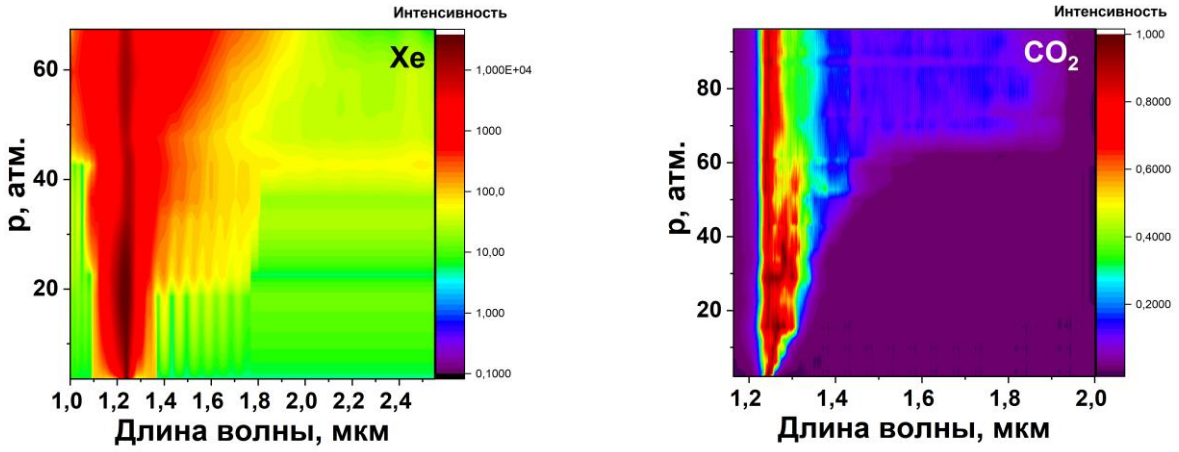
фронта лазерного импульса [119]. Конденсированные среды обычно имеют высокий нелинейный показатель преломления ($n_2 \sim 10^{-16}$ см^2/Вт) и относительно высокий порог пробоя материала (~10 ТВт/см^2), что делает возможным эффективную (может превышать 80% [262]) генерацию СК [263,264]. Однако при фемтосекундной филаментации в конденсированной среде за несколько тысяч последовательных лазерных выстрелов происходит деградация среды, что ухудшает свойства СК [265]. Газообразные среды лишены такой проблемы. Кроме того, они открывают новые горизонты в управлении свойствами СК за счет изменяемых свойств среды (нелинейный показатель преломления зависит от плотности) и отсутствия необратимого разрушения материала. Тем не менее, по сравнению с конденсированными средами, в газах плотность (и, как следствие, нелинейность) при атмосферном давлении на три порядка ниже, и нелинейный показатель преломления находится на уровне $\sim 10^{-19}$ см^2 / Вт. Таким образом, чтобы получить более высокую эффективность преобразования в СК, длина взаимодействия должна быть значительно увеличена. Используемые в диссертации газы высокого давления сочетают в себе высокие нелинейные свойства конденсированного вещества и гибкую регулировку свойств среды, что ведет к формированию управляемого и высокоэнергетичного суперконтинуума при распространении высокоинтенсивного лазерного излучения в таких средах. Отметим, что для расширения возможностей применения когерентных источников ИК излучения помимо управления спектральными свойствами требуется управление временными свойствами генерируемого широкополосного излучения. Более того, стремление контролировать и управлять длительностью выходного излучения обусловлено необходимостью увеличения пиковой мощности лазерного излучения за счет компрессии импульса во временной области при минимально возможных энергетических потерях. Для решения этой задачи в видимом и ближнем ИК-диапазоне применялись два основных подхода: 1) волноводный режим распространения в полых каппилярах, заполненных газом [266]; 2) филаментация в свободном объеме газа [267]. Применение первого метода в среднем ИК-диапазоне крайне затруднено из-за значительного увеличения потерь при распространении такого излучения в полом волноводе $(\sim \lambda^2)$. В таком случае более перспективным является использование структурированного «kagome» волокна, заполненного инертным газом, которое, однако, имеет явное ограничение на входную энергию лазерных импульсов (до 100 мкДж) [268]. Второй метод требует гораздо более высокоэнергичных фемтосекундных импульсов в среднем ИК-диапазоне, что на сегодняшний день доступно лишь в нескольких научных группах [269]. Филаментация такого излучения в аргоне при различных давлениях моделировалась в работе [270], где была показана возможность генерации мультиоктавного спектра и получения импульсов ультракороткой длительности. Таким образом, наиболее перспективными подходами, которые могут быть применены в различных спектральным диапазонах, являются самокомпрессия в режиме филаментации и расширение спектра за счет процесса самомодуляции с последующей посткомпрессией в среде с аномальной дисперсией групповой скорости. В результате, в диссертации удалось разработать и применить подходы по гибкому управлению спектральным составом и фактором компрессии

мульгигаваттного лазерного излучения ближнего и среднего ИК диапазонов за счет тонкой подстройки режима распространения мощного лазерного излучения. Разработанные теоретико-экспериментальные подходы по управлению спектрально-временными свойствами излучения ближнего и среднего ИК диапазонов стали основой для создания широкодиапазонного источника когерентного излучения ультракороткой длительности.

3.4.1. Генерация широкополосного когерентного излучения (до 2 мкм) при взаимодействии мощного лазерного излучения ближнего ИК-диапазона (1,24 мкм) с газовой средой

Первые эксперименты проводились с использованием излучения лазерной системы на кристалле хром-форстерита, подробно описанной в §1.2, и были направлены на исследование возможности управления спектральными свойствами мощного излучения. Для управления размером лазерного пучка использовалась диафрагма, а энергия варьировалась с помощью полуволновой пластины и призмы Глана. Лазерный пучок фокусировался в центр газовой кюветы длиной ~8 см с помощью 10-сантиметровой фокусирующей линзы. Давление и температура в газовой кювете могли изменяться вплоть до 200 атм. и 80 °C. Для измерения спектра излучение СК на выходе из кюветы с помощью линзы направлялось в спектрометр SL40-100A для регистрации в видимом диапазоне длин волн или в монохроматор, оснащенный сменными решетками и калиброванными фотодетекторами (Thorlabs PDA-100A, PDA-20H, PDA-30G или PD-50B), для регистрации в ближней ИК области спектра вплоть до 2 мкм. Диагностика пространственного распределения интенсивности в лазерном пучке осуществлялась с помощью пироэлектрической камеры Spiricon Pyrocam III.

Особенности генерации СК исследовались в атомарном (Xe) и молекулярном (CO_2) газах при изменении энергии лазерного излучения и давления газа внутри кюветы. Изменение давления этих газов при комнатной температуре вплоть до 80 атм. позволяет наблюдать переход этих газов в сверхкритическое состояние. При приближении к критической точке (31 °C; 72,8 атм. для CO_2 и 16,6°C, 57,6 атм. для Xe) нелинейная добавка к показателю преломления n_2 демонстрирует быстрый рост, а при высоких (более 80 атм.) давлениях превышает значение $n_2 \cong 3 \times 10^{16}\ см^2/Вт$ для сапфира. Такой быстрый рост n_2 в газах позволяет исследовать различные режимы распространения фемтосекундного лазерного излучения, включая условия значительного превышения над критической мощностью самофокусировки (до ~1000$P_{кр}$), и переходы между ними, а также генерировать яркий и широкополосный суперконтинуум при относительно низких энергиях лазерного излучения (до 100 мкДж).



(а) *(б)*

Рис. 78 Эволюция спектра мощного фемтосекундного лазерного излучения ближнего ИК-диапазона (λ=1,24 мкм) при его распространении в кювете с газом в зависимости от давления для (а) ксенона (Xe) и (б) углекислого газа (CO_2).

В первой серии экспериментов энергия лазерного излучения не изменялась, а варьировалось давление газа внутри кюветы. В газовой фазе как в CO_2, так и в Xe нелинейная добавка к показателю преломления достаточно мала, что приводит лишь к незначительному превышению пиковой мощности лазерного излучения над критической мощностью самофокусировки ($P \cong P_{cr}$), а спектр лазерного импульса симметрично расширяется за счет фазовой самомодуляции (см. ***Рис. 78***). Существенное влияние нелинейных процессов можно наблюдать только при давлениях выше 30 атм. (для энергии в импульсе 30 мкДж), когда пиковая мощность лазерного импульса составляет около $2-5P_{cr}$, и стартует процесс одиночной филаментации. Разница в характере протекания процесса филаментацим и сопровождающей ее генерации СК в Xe и CO_2 также начинает проявляться при давлениях выше 30 атм., так как существенную роль в распространении лазерного импульса начинают играть молекулярные колебания углекислого газа и в спектре СК появляется сильная модуляция, соответствующая комбинационно активной симметричной моде CO_2 ($\nu = 1388$ см$^{-1}$). ИК крыло спектра СК в CO_2 становится ассиметричным из-за значительного рамановского вклада в формируемую нелинейность среды, что увеличивает эффективность преобразования энергии лазерного излучения в красное крыло спектра СК. Асимметрия в спектрах СК усиливается ионизацией и эффектами «самоукручения», что также приводит к синему смещению начального спектра лазерного импульса. Для ксенона поведение генерации СК в зависимости от давления существенно отличается от такового для CO_2. Из-за отсутствия молекулярных колебаний ИК крыло спектра СК в ксеноне сохраняет свою квазисимметричную структуру с увеличением ширины спектра при увеличении давления газа.

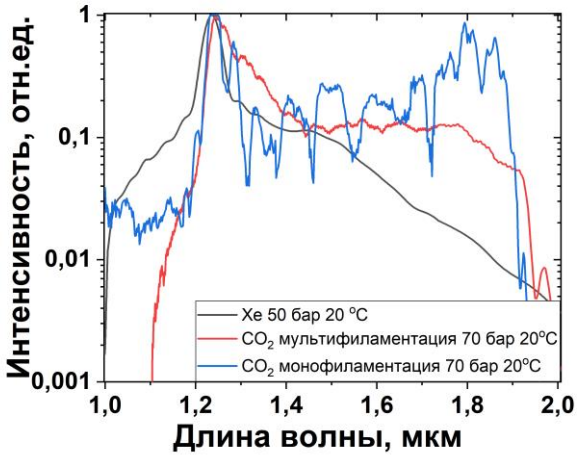


Рис. 79 Эволюция спектра мощного фемтосекундного лазерного излучения ближнего ИК-диапазона (λ=1,24 мкм) при его распространении в жидком ксеноне и жидком CO_2 в зависимости от режима филаментации (одиночная, множественная).

В последней серии экспериментов было проведено сравнение параметров СК в режиме одиночной филаментации и в режиме, когда мощность входного импульса была значительно выше критической (более $100P_{cr}$), что характеризуется распадом пространственного профиля пучка на несколько частей и, соответственно, переходом к режиму множественной филаментации. При энергии больше 0,1 мДж, что соответствует пиковой мощности ~$10P_{cr}$ (для жидкого CO_2), развивается процесс модуляционной нестабильности и вдоль оси распространения лазерного излучения формируется множество филаментов. «Взаимодействие» этих филаментов приводит к обмену энергией между ними, спектр СК «уплощается», однако качество пучка снижается (см. ***Рис. 79***). Из-за стохастического характера процесса множественной филаментации флуктуации энергии излучения на выходе из кюветы значительно возрастают (до уровня 15%).

3.4.2. Временная компрессия мощного излучения ближнего ИК-диапазона в газе высокого давления

Дальнейшие исследования в диссертации были направлены на поиск возможностей управления спектрально-временными свойствами мощного излучения при его распространении в газе высокого давления в режиме самоканалирования (доминирующее влияние керровской самофокусировки) и филаментации (доминирующее влияние плазмы). Эксперименты были продолжены с использованием мощного излучения хром-форстеритового лазера, а в качестве газа по практическим соображениями был выбран аргон.

Как было показано выше (см. ***п. 3.1.2***), уширение спектра импульса в длинной среде ($L \gg 2z_R$) за счет Керровской нелинейности подчиняется закону (*33*) и не зависит от остроты фокусировки NA, в то время как уширение за счет генерации плазмы подчиняется закону *(42)* и зависит от условий фокусировки NA . В реальной ситуации при распространении сфокусированного мощного лазерного излучения через газовую среду оба эффекта оказывают совместное влияние на спектр импульса.

Для выявления влияния одного из данных эффектов можно, во-первых, изменять условия фокусировки NA. И, во-вторых, можно изменять энергию импульса, которая сильнее ($\sim E^K$, см. *(42)*) влияет на вклад плазмы, чем на вклад эффекта Керра ($\sim E$, см. (*33*)). В реальной ситуации, как правило, желая увеличить пиковую мощность лазерного излучения, используется максимально доступная энергия лазерного излучения, и в этом смысле данный параметр зафиксирован, поэтому единственным способом управления вкладами эффекта Керра и плазмы в уширение спектра лазерного излучения остается изменение условий фокусировки NA.

Увеличение вклада керровской самофокусировки по сравнению со вкладом плазмы является необходимым условием для максимизации итогового уширения спектра лазерного излучения при его распространении через газовую среду, что важно с точки зрения задачи уменьшения длительности лазерного импульса и повышения пиковой мощности. Так, поскольку керровская нелинейность приводит к симметричному уширению спектра относительно центральной длины волны, в то время как влияние плазмы ведет к уширению лишь в синюю область спектра, то при доминировании вклада плазмы уширение импульса в красную область за счет эффекта Керра будет подавлено вкладом плазмы, и итоговая ширина спектра окажется меньше, чем при уширении за счет только керровской нелинейности. Поэтому для максимизации ширины спектра импульса, претерпевшего ФСМ в газовой среде, целесообразно использовать мягкую фокусировку, которая соответствует малому NA и приводит, согласно *(42)*, к уменьшению вклада плазмы в процесс ФСМ.

Данный вывод подтверждают экспериментальные результаты. На ***Рис. 80*** представлено сравнение спектров излучения хром-форстеритового лазера, претерпевшего уширение при острой фокусировке ($\mathrm{f} = 500$ мм, $\mathrm{NA} = 6 \cdot 10^{-3}$) и при мягкой фокусировке ($f = 750$ мм, $\mathrm{NA} = 4 \cdot 10^{-3}$) в аргоне при давлении 1 атм. и энергии импульса 2 мДж.

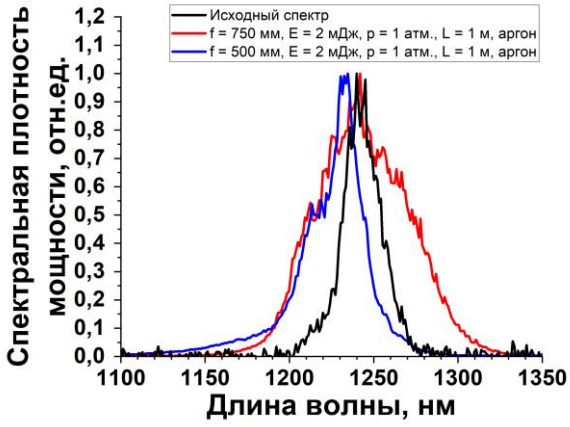


Рис. 80 Сравнение спектров лазерного излучения при острой фокусировке ($f = 500$ мм, $NA = 6 \cdot 10^{-3}$) и при мягкой фокусировке ($f = 750$ мм, $NA = 4 \cdot 10^{-3}$) в газовую кювету с аргоном. В эксперименте $L \gg 2z_R$, поскольку $L = 1$ м, $z_R =$ 40 и 90 мм для $f = 500$ мм и $f = 750$ мм соответственно. Исходная длительность лазерного импульса 100 фс (FWHM).

Как свидетельствуют экспериментальные спектры, представленные на ***Рис. 80***, при увеличении остроты фокусировки NA уширение спектра становится меньше, причем уменьшение ширины происходит именно за счет длинноволновой (красной) части спектра.

Таким образом, генерируемая плазма, вклад в уширение спектра от которой растет при увеличении остроты фокусировки, подавляет уширение в длинноволновую (красную) область, возникающее за счёт эффекта Керра, что в итоге приводит к более слабому уширению спектра при увеличении остроты фокусировки при заданном произведении pE.

3.4.2.1. Управляемое уширение спектра мощного лазерного излучения хром-форстеритового лазера в зависимости от давления газа и энергии

Из выражения (*33*) следует, что при доминировании керровского вклада уширение спектра лазерного излучения будет масштабироваться как $\sim pE$, что предоставляет возможность подбора давления газа для достижения требуемой ширины спектра при фиксированной энергии лазерного импульса. Данный закон масштабирования, выполняющийся при мягкой фокусировке, обеспечивающей доминирование вклада керровской самофокусировки, подтверждается экспериментальными данными (***Рис. 81***).

Как свидетельствуют графики на ***Рис. 81***, при используемой мягкой фокусировке с $NA = 4 \cdot 10^{-3}$ гиперболический закон (*33*) выполняется в пределах рассматриваемых давлений и энергий. Так, как свидетельствует ***Рис. 81 (а)***, изолинии итоговой ширины спектра представляют собой гиперболы, при этом на данных изолиниях сохраняется форма спектра (см. ***Рис. 81 (б-д)***). Увеличение энергии и давления вдоль нормали к изолиниям приводит сначала к увеличению ширины спектра, а затем к искажению его формы (***Рис. 81 (е-ж)***). Модуляция, появляющаяся в спектре, может объясняться увеличением вклада плазмы в процесс ФСМ, поскольку вклад плазмы расчет быстрее с увеличением энергии ($\sim E^K$, см. (42)), чем вклад эффекта Керра ($\sim E$, см. (*33*)), что косвенно подтверждается изменением наклона изолиний и, соответственно, их отклонением от гиперболической зависимости (*33*) в области больших значений произведения pE (4-6 атм., 1,25-2 мДж). Кроме того, в рамках эксперимента в данной области энергий и давлений сначала наблюдалась коническая эмиссия, а затем, при увеличении произведения pE, генерация суперконтинуума, что свидетельствует о старте процесса филаментации [271].

При увеличении остроты фокусировки NA в эксперименте наблюдалось отклонение от гиперболической зависимости (*33*), что проявлялось в изменении формы изолиний на двумерной карте $\Delta\omega(p, E)$. ***Рис. 82 (а)*** демонстрирует, что при переходе к более жесткой фокусировке изолинии принимают форму прямых линий во всём рассматриваемом диапазоне давлений и энергий. При этом форма спектра сохраняется не только на изолиниях (***Рис. 82 (в,д,е)***), но и вне их (***Рис. 82 (б,в.г)***), что объясняется доминированием вклада плазмы для всех энергий лазерного излучения и давлениях газа из рассматриваемого диапазона при данной фокусировке. Ширина спектра при данной остроте фокусировке, достигаемая для рассматриваемого диапазона давлений и энергий (***Рис. 82 (а)***), меньше, чем для соответствующих давлений и энергий при более мягкой фокусировке (***Рис. 81 (а)***), что объясняется подавлением уширения в красную область за счет вклада плазмы (***Рис. 80***).

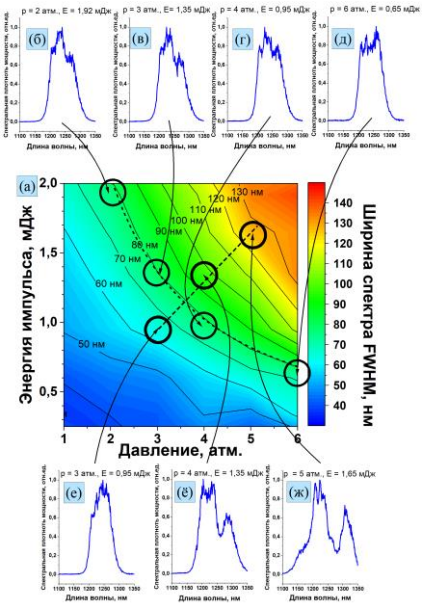


Рис. 81 (а) Зависимость ширины спектра от давления газа и энергии лазерного импульса $\Delta\omega_{res}(p,E)$. Ширина рассчитывалась посредством расчета стандартного отклонения распределения спектральной амплитуды по длинам волн: $FWHM \approx 2.35 \cdot std = 2.35 \cdot \left(\overline{\lambda - \bar{\lambda}}\right)$. (б), (в), (г), (д) – спектры излучения с шириной на уровне 80 нм, полученные при указанных давлениях и энергиях (движение по изолинии $E \sim 80$ нм$/p$). (е), (ё), (ж) – спектры излучения, полученные при одновременном увеличении давления и энергии. Фокусировка линзой с $f = 750$ мм ($NA = 4 \cdot 10^{-3}$) в центр трубы длиной $L = 1$ м , заполненной аргоном. Исходная длительность импульса 100 фс (FWHM), исходная центральная длина волны 1,24 мкм, исходная ширина спектра 25 нм (FWHM) – см. Рис. 80.

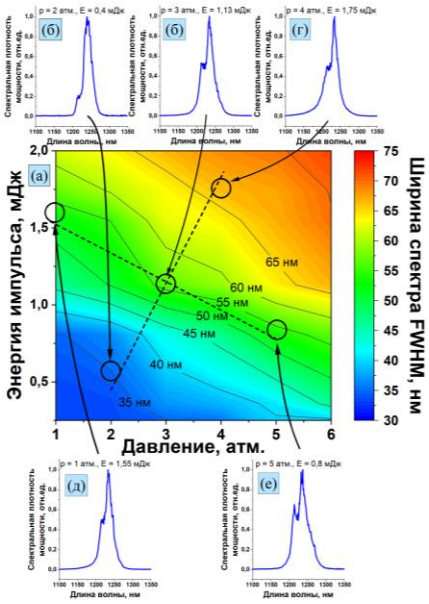


Рис. 82 (а) Зависимость ширины спектра от давления газа и энергии лазерного импульса $\Delta\omega_{res}(p,E)$. Ширина рассчитывалась посредством расчета стандартного отклонения распределения спектральной амплитуды по длинам волн: $FWHM \approx 2.35 \cdot std = 2.35 \cdot \left(\overline{\lambda - \bar{\lambda}}\right)$. (б), (в), (г) – спектры излучения с шириной на уровне 55 нм, полученные при указанных давлениях и энергиях. (д), (е) – спектры излучения, полученные при одновременном увеличении давления и энергии. Фокусировка линзой с $f = 500$ мм ($NA = 6 \cdot 10^{-3}$) в центр трубы длиной $L = 1$ м, заполненной аргоном. Исходная длительность импульса 100 фс (FWHM), исходная центральная длина волны 1,24 мкм, исходная ширина спектра 25 нм (FWHM) – см. Рис. 80.

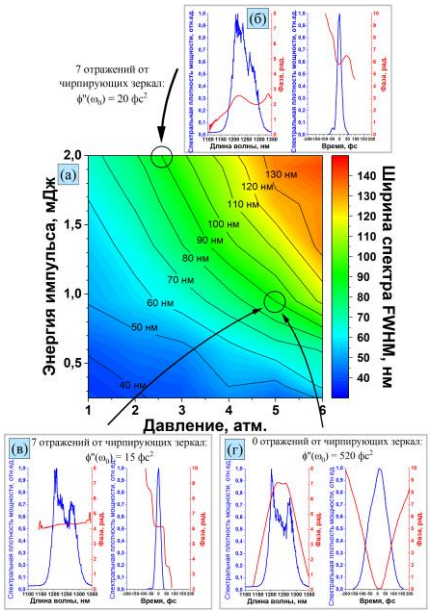


Рис. 83 (а) Зависимость ширины спектра от давления газа и энергии хром-форстеритового лазерного импульса. Ширина рассчитывалась посредством расчета стандартного отклонения распределения спектральной амплитуды по длинам волн. (б) Спектральные и временные амплитуда и фаза импульса при б) энергии импульса 2 мДж, давлении 2,5 атм., 7 отражениях от чирпирующих зеркал, (в) энергии импульса 1 мДж, давлении 5 атм., 7 отражениях от чирпирующих зеркал, (г) энергии импульса 1 мДж, давлении 5 атм. в отсутствие отражений от чирпирующих зеркал. Фокусировка линзой с $f = 750$ мм ($NA = 4 \cdot 10^{-3}$) в центр трубы длиной $L = 1$ м , заполненной аргоном. Исходная длительность импульса 100 фс (FWHM), исходная центральная длина волны 1,24 мкм, исходная ширина спектра 25 нм (FWHM) – см. Рис. 80.

Таким образом, увеличение вклада плазмы в процесс уширения спектра лазерного излучения при увеличении остроты фокусировки приводит к нарушению гиперболического закона $\Delta\omega_{res}(p,E) \sim pE$, характерного для ФСМ на Керровской нелинейности (***Рис. 81 (а)***, ***Рис. 82 (а)***). Переход к режиму доминирования вклада плазмы также может быть осуществлен за счет увеличения энергии импульса, что приводит к изменению формы импульса (***Рис. 81 (е-ж)***). В случае, если переход к этому режиму осуществляется посредством увеличения остроты фокусировки, то изменение давления и энергии не приводит к изменению формы спектра (***Рис. 82 (а-е)***).

3.4.2.2. Посткомпрессия мощного хром-форстеритового лазерного излучения с использованием чирпирующих зеркал

Как было указано выше, для максимизации ширины спектра с целью дальнейшей компрессии длительности импульса целесообразно работать в режиме доминирования керровского вклада над вкладом плазмы в процесс уширения. Уширение спектра в газовой среде в режиме доминирования керровского вклада приводит к добавлению в фазу лазерного импульса положительного линейного чирпа. Компенсация данного чирпа с целью уменьшения длительности импульса может быть осуществлена путем использования компрессора на дифракционных решетках, призмах, за счет материальной дисперсии, либо путем использования чирпирующих зеркал. Так, в рамках проведенных экспериментов описанный выше режим уширения спектра при фокусировке излучения линзой с фокусным расстоянием f = 750 мм был использован для реализации посткомпрессии на основе чирпирующих зеркал. Результаты представлены на ***Рис. 83.***

Для реализации посткомпрессии был выбран режим по давлению и энергии импульса pE, соответствующий ширине спектра $FWHM = 90 - 95$ нм. Выбор данного предельного режима обусловлен тем, что он обеспечивает сравнительно большую ширину спектра при относительной небольшой модуляции его формы (см. ***Рис. 81(ё)***). Увеличение ширины спектра до $FWHM = 90 - 95$ нм при исходной ширине спектра $FWHM = 20 - 25$ нм обеспечивает максимальный фактор компрессии на уровне 4. Коэффициент пропускания трубы с аргоном составляет 80-85%, что объясняется отражением на гранях входного и выходного окон трубы, изготовленных из SiO_2.

Компрессия излучения была произведена в двух точках на карте pE (***Рис. 83 (а)***) – в точке $E = 1$ мДж, $p = 5$ атм. и в точке $E = 2$ мДж, $p = 2{,}5$ атм. Обе точки лежат в окрестности изолинии $FWHM = 90$ нм, соответствующей произведению $pE = 5$ мДж · атм. Для компенсации линейного чирпа, возникающего вследствие ФСМ ($\phi''(\omega_0) \approx 520$ фс^2 – см. ***Рис. 83 (г)***), излучение после трубы с газом претерпевало 7 отражений от чирпирующих зеркал с ДГЗ$_1$ = 35-45 фс^2 и ДГЗ$_2$ = 95-100 фс^2 (ДГЗ – дисперсия групповой задержки). Такая схема позволила практически полностью скомпенсировать возникающий чирп и сжать импульс с энергией 1 мДж до длительности $FWHM \approx 31$ фс, что соответствует фактору компрессии в 3,2 раза. Аналогичная схема для импульса с энергией $E = 2$ мДж позволила произвести сжатие вплоть до длительности 28 фс, что соответствует фактору компрессии в 3,6 раза. При этом, как свидетельствует вставка на ***Рис. 82***, в случае импульса с энергией 2 мДж в спектре остается нескомпенсированным нелинейный чирп третьего порядка (TOD), возникающий, предположительно, из-за бóльшего влияния плазмы на процесс распространения, чем при меньшей энергии лазерного импульса $E = 1$ мДж.

Таким образом, полученные результаты свидетельствуют, что использование схемы посткомпрессии на основе чирпирующих зеркал и уширения в газовой среде при работе в режиме

слабого влияния плазмы на распространение импульса позволяет добиться практически полной компенсации линейного чирпа, возникающего вследствие ФСМ, и сжать импульс практически вплоть до спектрально-ограниченной длительности. При этом, как было показано, такая схема масштабируема по энергии лазерного импульса, что обеспечивается возможностью компенсации увеличения энергии импульса уменьшением давления газовой среды в соответствии с законом (*33*).

3.4.2.3. Самокомпрессия мощного хром-форстеритового лазерного излучения при филаментации в кювете с газом высокого давления

Компрессию импульса также можно осуществить без использования дополнительных методов компенсации возникающего в процессе ФСМ линейного чирпа. Для этого необходимо обеспечить распространение импульса в режиме филаментации, в условиях формирования протяженного плазменного канала. Генерируемая плазма, обладающая отрицательной дисперсией, по мере распространения импульса может компенсировать чирп, возникающий вследствие ФСМ за счет эффекта Керра. Компрессия импульса при этом происходит только в центральной части пучка, области максимальной интенсивности, которая инициирует образование лазерной плазмы. При этом гиперболический закон (*33*) перестает выполняться и аналитически наглядная компенсация энергии импульса давлением ($\Delta\omega_{res} \sim pE$) с целью достижения требуемой ширины спектра становится трудноосуществимой. Помимо этого, изменение давления также будет влиять на величину отрицательной ДГЗ, набираемой импульсом в плазме, что будет приводить к изменению фазы импульса. Поэтому в рамках схемы компрессии на основе филаментации давление не является параметром, однозначно определяющим длительность компрессируемого лазерного импульса, что отличает данную схему от схемы посткомпрессии на основе чирпирующих зеркал.

В рамках проведенных экспериментов была осуществлена самокомпрессия излучения при распространении импульса в аргоне в режиме филаментации. Фокусировка осуществлялась линзой с фокусным расстоянием $f = 500$ мм. Давление газа составляло 8 атм. ($n_2(Ar, 8\text{ атм.}) = 8 \times 10^{19}\ {}^{\text{см}^2}/_{\text{Вт}}$), энергия импульса 3 мДж, что соответствовало отношению $P/P_{cr} \approx 10$. В эксперименте наблюдались характерные признаки филаментации – генерация суперконтинуума и коническая эмиссия. Для выделения скомпрессированной центральной части пучка использовалась ирисовая диафрагма с отверстием ~1 мм, пропускающая часть пучка с энергией порядка 10-20 мкДж. Измеренные на выходе из трубы с газом спектр, спектральная фаза и временные амплитуда и фаза представлены на ***Рис. 84***.

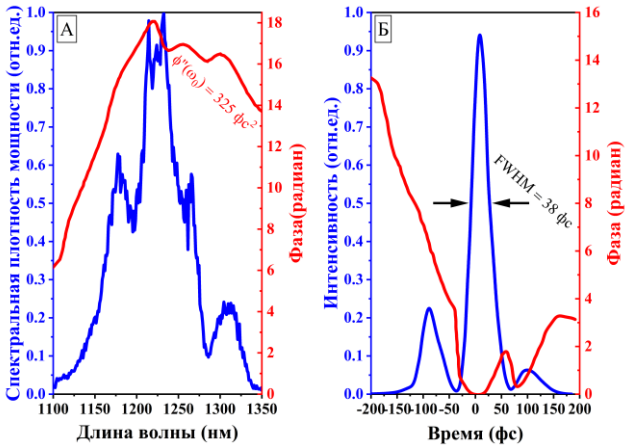


Рис. 84 (а) Спектр (измерен спектрометром) и спектральная фаза, (б) временные амплитуда и фаза импульса (измерены методом SHG FROG) для диаметра диафрагмы ~1 мм для $E = 3$ мДж, аргон под давлением $p = 8$ атм., f = 500 мм (NA = $6 \cdot 10^{-3}$), исходная длительность импульса 100 фс, исходная центральная длина волны 1,24 мкм.

Длительность импульса на выходе из газовой среды составила 38 фс, что соответствует фактору компрессии в 2,6 раз. При этом, как свидетельствуют графики на ***Рис. 84***, во временной амплитуде наблюдаются пред- и пост-импульс, ухудшающие контраст основного центрального импульса. Остаточный линейный чирп $\phi''(\omega_0) = 325$ фс^2, наблюдаемый в фазе импульса (***Рис. 84***), может быть скомпенсирован 5-ю отражениями от имеющихся чирпирующих зеркал, что с учетом эффективной ширины спектра в 100 нм позволит добиться длительности на уровне 25-30 фс. Данная длительность сравнима с длительностью (28-31 фс, ***Рис. 83 (б,в)***), получаемой в схеме посткомпрессии на основе чирпирующих зеркал при работе в режиме ФСМ за счёт эффекта Керра.

Таким образом, самокомпрессия в газовой среде в режиме филаментации позволяет относительно просто с экспериментальной точки зрения добиться сокращения длительности излучения по сравнению со схемой посткомпрессии на основе чирпирующих зеркал. Однако схема самокомпрессии на основе явления филаментации обладает рядом недостатков по сравнению со схемой посткомпресии, которые существенно ограничивают ее область применимости. Первый недостаток заключается в существенной потере энергии за счет ионизационных потерь и необходимости выделения центральной части пучка, претерпевшей влияние дисперсии плазмы, то есть можно говорить о низком «КПД самофокусировки», что находит подтверждение и в классических трудах Хохлова Р. В., Пилипецкого Н.Ф. и Рустамова А.Р. [33,213]. Второй недостаток заключается в трудности подбора давления газа для достижения заданной ширины спектра и требуемой величины отрицательной ДГЗ, задаваемой плазмой, поскольку давление будет одновременно влиять и на ширину спектра, и на величину ДГЗ плазмы, что делает данный параметр неподходящим для однозначного управления длительностью скомпрессированного импульса.

3.4.3. Создание широкополосных когерентных фемтосекундных излучателей среднего ИК-диапазона вне области генерации источника накачки (4,4 мкм) с использованием режима филаментации в сжатых газах

Чтобы выявить влияние длины волны на рассматриваемые нелинейно-оптические процессы, подход, разработанный для мощных импульсов в ближнем ИК-диапазоне, был расширен на средний ИК диапазон с использованием разработанного фемтосекундного комплекса на кристалле Fe: ZnSe [87]. Центральная длина волны была настроена на 4,6 мкм, чтобы обеспечить длительность выходного импульса 160 фс на воздухе без использования вакуумного бокса. Типичная огибающая и спектр импульса представлены на ***Рис. 53***. Максимальная выходная энергия составляла 3 мДж.

Импульсы среднего ИК-диапазона фокусировались в газовую кювету, длина которой могла варьироваться в диапазоне 11 – 32 см благодаря набору секций длиной 5 см. Окна кюветы были выполнены из CaF_2 толщиной 1,5 см. Для фокусировки и коллимации использовался набор линз из CaF_2 с фокусным расстоянием 20 см, 30 см (фокусировка) и 15 см (коллимация). Ирисовая диафрагма была помещена в тракт лазерного излучения перед фокусирующей линзой для управления эффективной числовой апертурой (NA), которая изменялась в ходе экспериментов в диапазоне 0,01–0,06. Выходной спектр, прошедший через пустую кювету, измерялся перед основными экспериментами с различной числовой апертурой, чтобы убедиться в отсутствии фазовой самомодуляции в окнах кюветы. Для измерения спектрально-временных свойств полученного излучения использовались различные методики. Длительность импульса измерялась с помощью широкополосного оптического стробирования с разрешением по частоте на основе процесса генерации второй гармоники (SHG-FROG) в кристалле AGS толщиной 500 мкм и/или генерации суммарной частоты (SFG-XFROG) в кристалле $LiIO_3$ толщиной 500 мкм. Для одноимпульсных измерений бала разработана схема генерации неколлинеарной второй гармоники (НВГ) в широких пучках. Сигнал НВГ регистрировался датчиком Hamamatsu G11478-512WB с электронным блоком управления. Схема коррелятора была собрана с временным разрешением порядка 10 фс/пиксель, что позволяет измерять импульсы с длительностью вплоть до 30 фс. Для спектральных измерений в среднем ИК-диапазоне (2,5 – 5 мкм) применялся монохроматор, оснащенный сменным набором дифракционных решеток и детекторов. Кроме того, для одноимпульсных измерений спектр основного излучения преобразовывался во вторую гармонику (ВГ) в кристалле AGS длиной 1 мм. Спектр ВГ регистрировался спектрометром Solar SDH IV. Для измерений в области 200 – 1000 нм и 900 – 2500 нм применялись спектрометры Ocean Optics QE Pro и Solar SDH IV. Выходной пространственный профиль пучка контролировался с помощью пироэлектрической камеры (Spiricon Pyrocam III).

При выполнении диссертационных исследований особое внимание уделялось поиску оптимальных сред для осуществления процесса компрессии мощного ИК излучения, а также возможностям расширения спектра в область среднего ИК-диапазона.

3.4.3.1. Генерация суперконтинуума при распространении мощного излучения среднего ИК-диапазона в газах

Для предварительного исследования процесса генерации СК в газах использовалась кювета длиной 11 см, заполнявшаяся инертными (ксенон, аргон) или молекулярными (кислород, азот) газами. Вакуумная интенсивность в кювете составляла $(1\text{-}5)\cdot10^{13}$ Вт/см^2 (фокусировка линзой 20 см). Критическая мощность самофокусировки достигается в случае ксенона и кислорода при давлении 2 – 8 атм, в случае аргона – 4 – 10 атм, а в случае азота – 12 – 17 атм. На ***Рис. 85*** изображена карта спектральной яркости сигнала ВГ излучения, прошедшего сквозь кювету, в зависимости от давления для ксенона и аргона. В случае фокусировки в ксенон спектр равномерно уширяется, простираясь вплоть до видимой части спектра при давлении порядка 35 атм. При этом давлении и выше спектр ВГ, сгенерированной в кристалле AGS (установленном после кюветы), перекрывается со спектром СК (давление обозначено пунктиром на рисунке) аналогичном представленному на ***Рис. 71***. В случае аргона также происходит плавное уширение спектра, однако в силу меньшего нелинейного показателя преломления ширина выходного спектра оказывается меньшей. Оба газа демонстрируют тенденцию к обогащению голубой части спектра, что связано как с влиянием лазерно-индуцированной плазмы, так и процессом генерации гармоник (см. ***3.2.3***) и сопутствующим процессом четырёхволнового смешения. Отмечу, что при невысоких давлениях порядка 15 атм в ксеноне наблюдалась компрессия лазерного импульса, однако импульс не был уединенным и располагался на пьедестале, что свидетельствует о сложной спектрально-временной динамике в процессе филаментации.

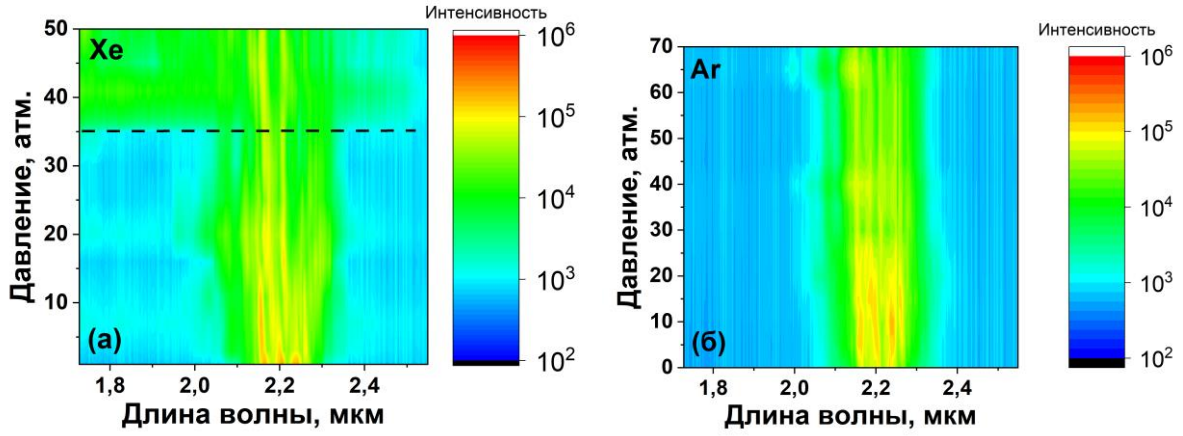


Рис. 85 Спектральная яркость второй гармоники излучения среднего ИК-диапазона (λ=4,6 мкм), прошедшего сквозь кювету с ксеноном (а) и аргоном (б).

Для сравнения процесс филаментации рассматривался в молекулярных газах (кислороде и азоте). Для минимизации потерь в примесях использовались молекулярные газы высокой чистоты (объёмная доля соответствующего газа 99,999%). В отличие от инертных газов в молекулярных газах наблюдался равномерный сдвиг длины волны в красную область спектра, а генерация синей области спектра была существенно подавлена (***Рис. 86***).

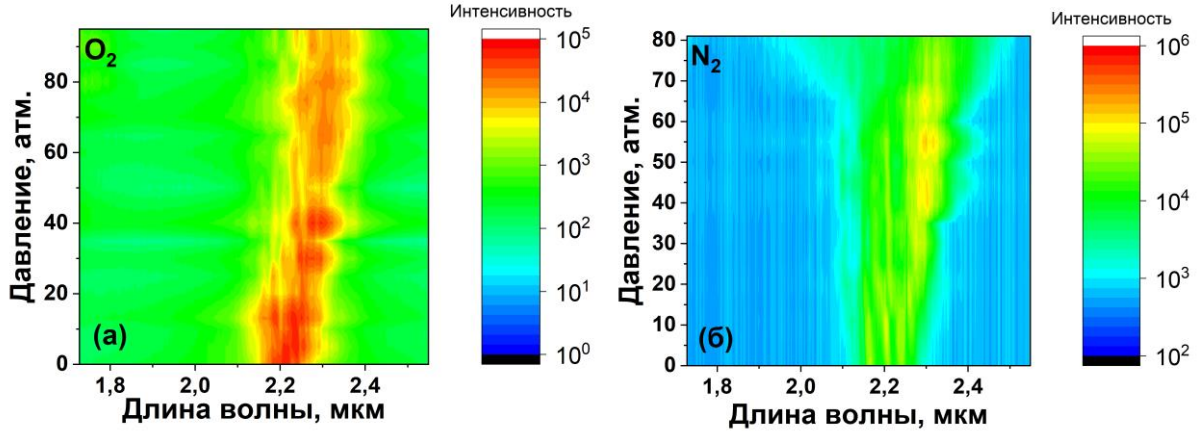


Рис. 86 Спектральная яркость второй гармоники излучения среднего ИК-диапазона (λ=4,6 мкм), прошедшего сквозь кювету с кислородом (а) и азотом (б).

Сдвиг в красную область спектра может быть вызван следующими факторами. Прежде всего, ключевым отличием молекулярных газов от инертных является наличие рамановского отклика, связанного с возбуждением молекулярных колебаний. В силу инертности отклика молекул в таких средах помимо быстрой электронной добавки к показателю преломления (n_2^{Kerr}) наблюдается задержанная добавка (n_2^{Raman}) [220]. В спектральном представлении такой отклик среды приводит к обогащению длинноволновой части суперконтинуума, которое для излучения среднего ИК-диапазона наблюдалось в работе [258]. Однако наблюдаемый сдвиг спектра импульса «как целого» плохо согласуется с описанными в работе [258] результатами. Поведение, близкое к полученным результатам, было описано в работе [272], где наблюдалось формирование уединенного пика в красной области спектра при филаментации излучения титан-сапфирового лазера в воздухе. Формирование пика, сдвиг которого увеличивался с длиной филамента, объяснялся авторами как распространение части импульса с эффективной дисперсией среды, близкой к нулю. Такой режим распространения может быть получен в процессе филаментации, когда формируемая плазма вносит дисперсию, обратную по величине дисперсии среды. Похожий режим распространения мог быть получен и в проведенных в рамках диссертации экспериментах, однако в отличие от указанной работы исходные спектральные компоненты могли вообще отсутствовать в выходном спектре (т.е. весь спектр сдвигался как целое). Наличие интенсивной длинноволновой части может быть также связано с процессом укручения импульса в среде с нормальной дисперсией. Совместное действие этого процесса и рамановского отклика, в частности, приводит к формированию солитонного сдвига в волокнах. Несмотря на эффективную генерацию длинноволновых компонент, фактор компрессии в проведенных экспериментах не превышал 1,5 при использовании низких давлений (до 10 – 15 атм.) из-за малого увеличения спектральной ширины импульса, а при значительном увеличении плотности газа – отсутствовал вследствие формирования сложной временной формы импульса.

3.4.3.2. Использование смеси газов для расширения спектра мощных фемтосекундных импульсов среднего инфракрасного диапазона в режиме самоканалирования. Посткомпрессия

Для дальнейшего поиска возможных областей компрессии были выполнены следующие действия. Длина кюветы была увеличина до 17 см, а фокусировка заменена на более мягкую (линза с фокусным расстоянием 300 мм). В качестве основного инертного газа был выбран криптон, обладающий достаточно высоким нелинейно-оптическим показателем преломления с одной стороны, но более высоким потенциалом ионизации по сравнению с ксеноном. Среди молекулярных газов был выбран кислород, как наиболее рамановски активный. Спектральное уширение в такой схеме наблюдалось при давлении 7 и 3 атм. для Kr и O_2, соответственно, при полной мощности системы 20 ГВт. Основная идея экспериментов заключалась в использовании газов при относительно невысоких давлениях, чтобы избежать спектрально-временных искажений в процессе филаментации (фактически работать в режиме близком к самоканалированию, при низких значениях B-интеграла), а для получения необходимого уширения - использовать смесь газов, где инертный и молекулярный газы отвечают независимо за уширение в коротковолновую и длинноволновую часть спектра, соотвественно.

Измерения, проведенные в каждом газе независимо, представлены на ***Рис. 87.*** В случае Kr и O_2 использовалась пиковая мощность около 20 ГВт и 8 ГВт соответственно (в соответствии с разницей в нелинейном показателе преломления для Kr $n_2 = 2{,}2 \pm 0{,}4\times10^{-19}$ см^2/Вт [273], $4{,}2 \pm 1{,}1\times10^{-19}$ см^2/Вт [224] и для O_2 $n_2 = 6{,}4 \pm 0{,}8\times10^{-19}$ см^2/Вт [274], $8{,}4 \pm 1{,}3\times10^{-19}$ см^2/Вт [275]). Полученные результаты повторяют описанные выше закономерности. Как и в случае аргона и ксенона, в случае криптона уширение спектра развивается симметрично, а при более высоких давлениях преобладает синее смещение (аналогично экспериментам с аргоном и ксеноном). Сильная коническая эмиссия в видимой части спектра наблюдалась невооруженным глазом начиная с давления в 25 атм. В связи с этим рабочим давлением в смеси для криптона было выбрано давление около 20 атм. В отличие от криптона, в кислороде коническая эмиссия была зарегистрирована уже начиная с 10 атм, благодаря более высокому нелинейному показателю преломления. Рабочее давление кислорода для смеси было выбрано около 8 – 10 атм.

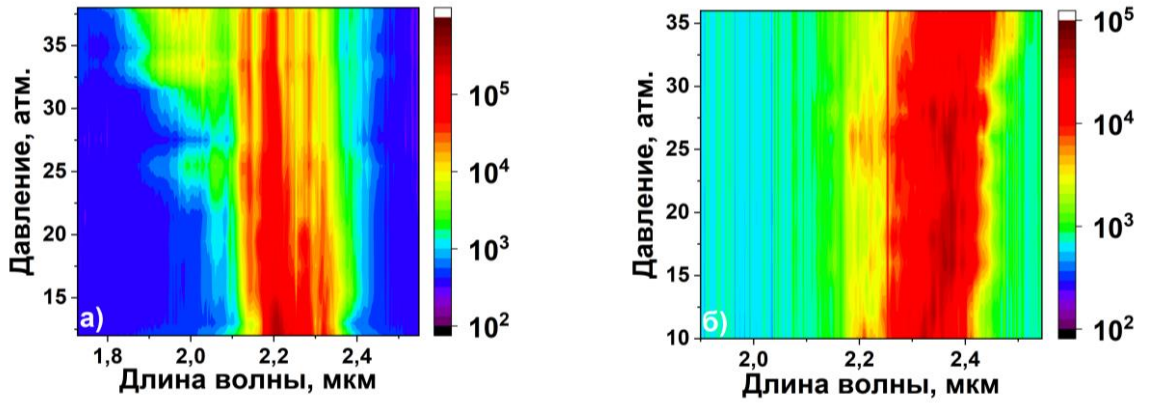
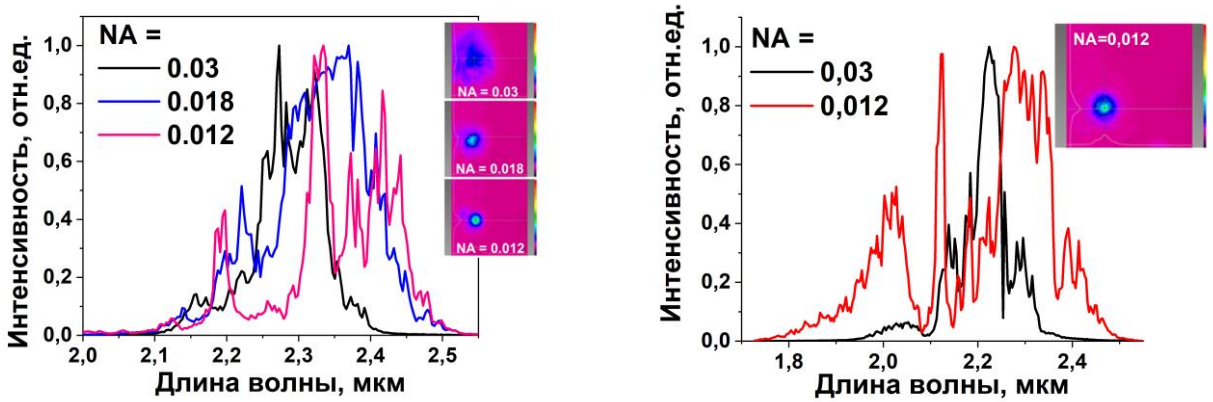


Рис. 87 Эволюция выходного спектра фемтосекундного импульса среднего ИК-диапазона при изменении давления в газовой кювете длиной 17 см, заполненной (а) криптоном и (б) кислородом.

Кроме того, было обнаружено, что режимами нелинейного распространения высокоинтенсивного лазерного излучения среднего ИК-диапазона в кислороде можно эффективно управлять, регулируя числовую апертуру фокусирующей линзы. На ***Рис. 88*** показаны выходные спектры для трех различных числовых апертур (NA). NA изменялась с помощью ирисовой диафрагмы, установленной перед фокусирующей линзой. Уменьшение NA способствует заметному красному смещению, несмотря на уменьшение входной энергии. Использование диафрагмы приводит к значительному увеличению длины Рэлея (6,5 мм для NA = 0,06 и 46,3 мм для NA = 0,012) и снижению отношения P / P_{cr} (около 3 для NA = 0,03 и 1 для NA = 0,012). Уменьшение NA сопровождалось исчезновением конической эмиссии в видимой области спектра и способствовало регуляризации профиля пучка в дальней зоне. Примеры профиля пучка, полученного при различных NA, показаны на ***Рис. 88(а)*** на вставках. Дальнейшее уменьшение числовой апертуры с помощью диафрагмы приводит к уменьшению спектрального уширения и синего смещения входного спектра.



(а) *(б)*

Рис. 88 (а) Выходной спектр и профиль пучка в дальней зоне после кюветы, заполненной кислородом под давлением 10 атм. для различных числовых апертур фокусирующей оптики NA, изменяемых ирисовой диафрагмой. (б) Уширение спектра фемтосекундного импульса среднего ИК-диапазона в газовой смеси, состоящей из 20 атм. криптона и 10 атм. кислорода. На вставке: профиль выходного пучка в дальней зоне для NA = 0,012.

Можно утверждать, что «смягчение» условий фокусировки приводит к переходу от филаментационного режима распространения к самоканалированию в плазме с достаточно низкой плотностью. В последнем случае распространение импульса близко к условиям распространения в капилляре, где недавно был обнаружен сильный рамановский красный сдвиг в ближнем ИК-диапазоне [276]. Самоканалирование на длине в несколько сантиметров приводит к спектральному уширению за счет процессов ФСМ и ВКР.

Для получения равномерного спектрального уширения как в красном, так и в синем крыльях использовалась смесь газов криптона и кислорода. Газы смешивались в соотношении 2: 1, исходя из предварительных экспериментов. На ***Рис. 88 (б)*** показан выходной спектр, полученный для смеси, состоящей из 20 атм. криптона и 10 атм. кислорода. Для дальнейшего увеличения уширения использовалась апертура 5 мм. В этих условиях спектр второй гармоники простирается от 1,76 до 2,5 мкм на уровне 10^{-2}, перекрывая линии поглощения атмосферного CO_2,

что обеспечивает дополнительную спектральную модуляцию спектра ВГ. Форма выходного пучка в дальней зоне, полученная с уменьшенной числовой апертурой, представлена на вставке.

Провалы в спектре, наблюдаемые в сигнале ВГ, объясняются как сильным ФСМ, так и поглощением CO_2 из-за довольно длинного оптического пути устройства SHG-FROG. Спектральные искажения атмосферы, представленные как по амплитуде, так и по фазе импульса, существенно влияют на длительность выходного сигнала. Чтобы сократить оптический путь от выходного окна газовой кюветы до нелинейно-оптического кристалла, был применен метод SFG-XFROG. Минимальный оптический путь, оставшийся в экспериментальной схеме, составлял около 200 мм. В качестве опорного импульса использовалась малая часть излучения хром-форстеритового лазера с длительностью ~100 фс. Полученная в этих измерениях длительность импульса на полувысоте составила 96 фс непосредственно после газовой ячейки (см. ***Рис. 89***). Спектральная ширина импульса на полувысоте составляет 625 нм и соответствует спектрально ограниченному импульсу порядка 50 фс, что составляет всего 3,3 оптических цикла на центральной длине волны 4,6 мкм. Основной вклад в остаточную фазу вносят выходное окно из CaF_2 длиной 15 мм и атмосферный CO_2. Тем не менее, использование газовой смеси вместе с дополнительной настройкой условий фокусировки обеспечивает реальный путь управления уширением спектра и компрессией импульсов среднего ИК-диапазона.

Для достижения более высокой степени временной компрессии импульсов и использования бóльшей энергии экспериментальная установка была дополнительно модернизирована. Длина газовой кюветы была увеличена до 32 см. Ирисовая диафрагма была закрыта до диаметра 2,6 мм, что обеспечивало числовую апертуру $NA = 0{,}004$. Эти изменения обеспечили снижение пиковой интенсивности внутри ячейки. Однако, поскольку длина ячейки была увеличена, общий B-интеграл практически не изменился. Кроме того, окна из CaF_2 толщиной 15 мм были заменены на окна из BaF_2 толщиной 3 мм. Для компенсации накопленной в газе положительной дисперсии непосредственно у окна кюветы устанавливалась пластина из CaF_2 толщиной 2 мм. В результате был получен импульс длительностью 62 фс, что соответствует фактору компрессии 2,4. Ширина спектра импульса среднего ИК-диапазона составила 1 мкм по уровню $1/e^2$. На ***Рис. 89*** показаны временная огибающая и спектр, восстановленные с помощью SFG-XFROG для обеих конфигураций экспериментальной установки.

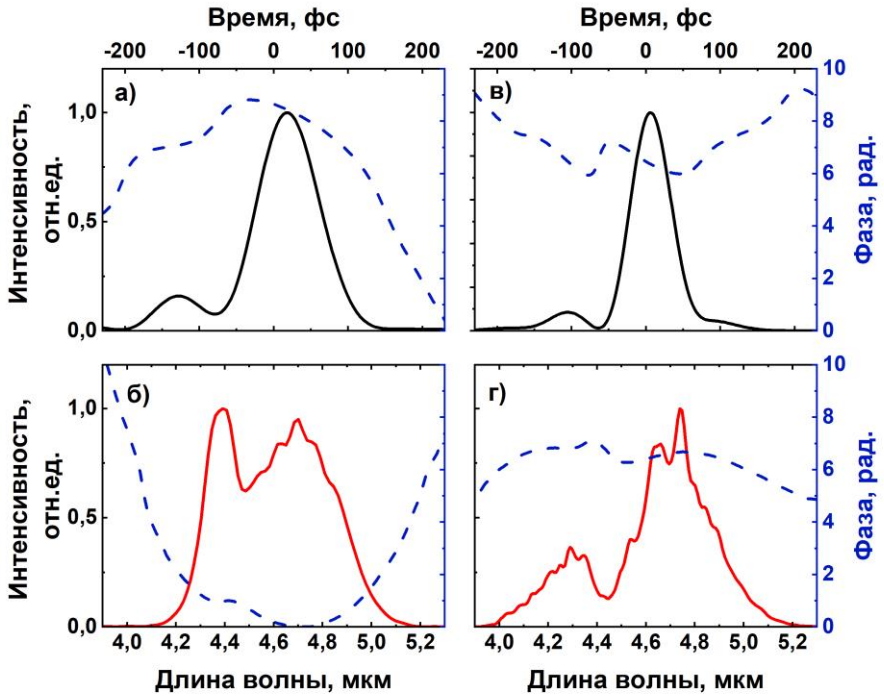


Рис. 89. Огибающая и спектральная фаза выходных импульсов среднего ИК-диапазона, регистрируемые с помощью широкополосного оптического стробирования с разрешением по частоте на основе суммарного преобразования для двух конфигураций установки: короткая 17-сантиметровая газовая ячейка (а), (б); и длинная 32-сантиметровая газовая ячейка (в), (г), заполненные смесью газов Kr-O_2. Черные линии показывают огибающие (левый столбец), красные линии показывают спектры (правый столбец), синие пунктирные линии показывают соответствующие фазы лазерных импульсов среднего ИК-диапазона.

Таким образом, применение нелинейно-оптической компрессии, хорошо себя зарекомендовавшей в ближнем ИК-диапазоне в кювете высокого давления, было расширено на средний ИК диапазон. Управление спектральным сдвигом и уширением при самоканалировании мощных импульсов среднего ИК-диапазона с длиной волны 4,6 мкм можно достичь, изменяя давление газа, состав смеси и условия фокусировки. Отмечу, что создание более гладкой каустики пучка имеет большое значение для нелинейно-оптической компрессии импульсов. Степень сжатия импульса во времени зависит от пространственно-временной связи при распространении лазерного импульса через нелинейную среду. Показателем этой связи может быть отношение пиковой мощности лазерного излучения к критической мощности самофокусировки P/P_{cr}. В среднем инфракрасном диапазоне из-за большей длины волны эта связь является слабой, что предотвращает распад импульса во времени на субимпульсы и позволяет поддерживать высокое качество пучка, несмотря на наличие самофокусировки. Смесь инертных и молекулярных газов представляет собой легко управляемую среду, подходящую для равномерного спектрального уширения как в ближнюю, так и в среднюю ИК области в режиме самоканалирования в условиях формирования лазерно-индуцированной плазмы низкой плотности. При таком подходе сжатие в 2,6 раза до 62 фс достигается в газовой ячейке, заполненной 20 атм. Kr и 10 атм. O_2, обеспечивая прямой доступ к экстремальной нелинейной оптике среднего ИК-диапазона.

Выводы по главе 3

Можно заключить, что предложены, обоснованы и реализованы нелинейно-оптические методы управления спектрально-временными свойствами мощного фемтосекундного лазерного излучения ближнего и среднего ИК диапазонов в конденсированных и плотных газовых средах, позволившие создать *новые источники* когерентного излучения ультракороткой длительности в очень широком диапазоне длин волн (от УФ до ТГц).

1. Впервые показано, что баланс между дисперсией среды, генерацией плазмы и геометрической добавкой к фазе приводит к *эффективной* генерации *оптических гармоник ИК импульса* даже в относительно небольшом объеме среды (~10^4 мкм^3). При вакуумной интенсивности ИК (λ=1240 нм) лазерного излучения ~10^{15} Вт/см^2 достигнуто эффективное преобразование до 10^{-3} в третью (λ=413 нм) и до $4{,}4\cdot10^{-4}$ в пятую гармоники (λ=248 нм) при соответствующих значениях энергии 0,9 мкДж и 0,36 мкДж.
2. Показано, что увеличение длины среды генерации вплоть до длины перетяжки за счёт использования газовой струи позволяет более чем на порядок (в 12 раз) увеличить *эффективность* преобразования фемтосекундного лазерного излучения среднего ИК-диапазона (4,6 мкм) с вакуумной интенсивностью ~$\cdot10^{14}$ Вт/см^2 в гармоники низкого порядка (5, 7, 9, 11).
3. Впервые показано, что *эффективное* преобразование интенсивного излучения среднего ИК-диапазона (λ=4,6 мкм, τ=160 фс, I=$1.8\cdot10^{13}$ Вт/см^2) с эффективностью 1% в третью (λ=1,53 мкм), 0,3% в пятую (λ=0,92 мкм) и суммарно 0,5% в высокие оптические гармоники вплоть до 11-ой возможно в *бинарной газовой смеси высокого давления*, состоящей из инертного газа ксенона (p_{Xe}=48 атм), обеспечивающего нелинейность смеси, и молекулярного газа CO_2 (p_{CO2}=1 атм), спектрально близкая к накачке полоса поглощения которого позволяет эффективно управлять условиями *фазового согласования*.
4. Установлено, что процесс оптического выпрямления мультигигаваттного (P=35 ГВт, I=100 ГВт/см^2) излучения хром-форстеритового лазера в органических кристаллах позволяет с *высокой эффективностью* (до 2%) генерировать интенсивное (до ~15 МВ/см) и высокоэнергетичное (до ~70 мкДж) ТГц излучение, перестройка частоты и изменение длительности которого может осуществляться за счет чирпирования лазерного излучения накачки.
5. Экспериментально продемонстрировано *управляемое расширение спектра* мультигигаваттного (~20 ГВт) фемтосекундного лазерного излучения ближнего ИК-диапазона (λ=1,24 мкм) при его оптимальной фокусировке (NA=0,004) в нелинейную газовую среду (Ar) высокого давления (p=4 атм), что обеспечивает доминирование керровского вклада над вкладом плазмы. Достижение требуемой ширины симметричного спектра лазерного излучения однозначно определяется величиной произведения давления

газа на энергию импульса $E \sim |\Delta\omega_{max}|^{fix}/p$ и может управляться любым из этих параметров. Дальнейшая компрессия спектрально-уширенного импульса с использованием чирпирующих зеркал позволила сократить длительность выходного импульса до 28 фс и увеличить пиковую мощность лазерного излучения в примерно три раза, до ~60 ГВт. Перспективностью такой схемы является также возможность масштабирования по энергии.

6. Впервые показано, что *нелинейное* распространение мощного (>10 ГВт) слабо сфокусированного (NA=0,004) фемтосекундного лазерного импульса среднего ИК-диапазона (λ=4,6 мкм, τ=160 фс) в газовой *смеси* инертного (Kr) и молекулярного (O_2) газов при высоком давлении (p_{Kr}=20 атм, p_{O2}=10 атм) происходит в режиме близком к волноводному и сопровождается *управляемым* и равномерным обогащением коротковолнового (<4 мкм) и длинноволнового (>5 мкм) крыльев спектра импульса вплоть до 1 мкм по уровню $1/e^2$. Нелинейная компрессия такого ИК импульса в 2,6 раза до длительности 62 фс (~4-х циклов поля) с использованием CaF_2 пластинки толщиной 3 мм, имеющей обратный знак дисперсии групповой скорости в этом спектральном диапазоне, происходит с сохранением миллиджоульного уровня энергии, обеспечивая прямой доступ к задачам экстремальной нелинейной оптики.

Глава 4. Экстремальные состояния вещества в объеме конденсированных сред при воздействии сфокусированным излучением ИК-диапазона: способы создания и методы диагностики

В *четвертой главе* обсуждаются способы создания и диагностики экстремального состояния вещества, возникающего при острой (NA>0,3) фокусировке низкоэнергетичного (~мкДж) фемтосекундного лазерного излучения в объем конденсированной среды в области её прозрачности. Отметим, что в качестве объектов в диссертации рассматриваются как диэлектрики, так и полупроводники для демонстрации различий и особенностей создания лазерно-индуцированного экстремального состояния вещества в них. Подробно описывается весь комплекс разработанных методов стационарной и время-разрешённой диагностики лазерной микоплазмы и лазерно-индуцированного экстремального состояния вещества, включая теневую фотографию, оптоакустическую диагностику, трёхмерную визуализацию распространения лазерного импульса, нелинейно-оптическую методику зондирования пробным импульсом третьей гармоники. Обсуждаются результаты экспериментов по генерации когерентных фононов в объеме кристаллов фторида магния и кремния в режиме формирования плазмы остросфокусированным фемтосекундным лазерным излучением ближнего и среднего ИК диапазонов (1,24 мкм, 4,6 мкм). Делается вывод о доминирующем влиянии плазмы на процесс генерации когерентных фононов в кристаллах при высоких интенсивностях возбуждающего лазерного излучения 10^{12}~10^{13} Вт/см^2. Установлено, что формирование лазерно-индуцированной микроплазмы, созданной в объеме кристаллической среды в области её прозрачности остросфокусированным высокоинтенсивным (~10^{12}~10^{13} Вт/см^2) фемтосекундным лазерным излучением, приводит к возбуждению когерентных фононов, обмену энергией между когерентными фононными модами и изменению частоты фононных мод. Сочетание предложенных экспериментальных подходов с теоретическими расчётами с использованием программных пакетов молекулярной динамики позволяет впервые обосновать разработанный метод время-разрешенной регистрации быстрых фазовых переходов по спектру когерентных ТГц фононов, генерируемых при широкополосном лазерно-плазменном возбуждении в диэлектриках и полупроводниках на примере фторида магния и кремния.

§4.1. Экстремальное состояние вещества

Состояние вещества с предельно высокими температурами и давлениями, а следовательно, с необычайно высокими плотностями энергии, всегда привлекало исследователей возможностью получения новых рекордных параметров, перспективами продвижения в новые области фазовой диаграммы состояния вещества и получения в лабораторных условиях экзотических состояний, в которых находится вещество в звездах [75,76,277]. Глубокое понимание термодинамических свойств вещества при высоком сжатии и высокой плотности

энергии (или температуре) важно для нескольких областей физики, включая инерциальный термоядерный синтез, астрофизику, физику конденсированного состояния и планетологию. Обычные вещества ведут себя необычным образом при высоких температурах и давлениях, что приводит к совершенно новым фазам материи [278–281]. Этот вид материи регулирует процессы в недрах Земли, а также в ядрах других планет [35,36,75,282]. Попытки смоделировать эти условия и изучить поведение материалов при экстремальных давлениях и температурах имеют долгую историю [283], и значительный прогресс в этом направлении был сделан с изобретением камеры с алмазными наковальнями [284]. В течение прошлого века рекорды давления и температуры постоянно обновлялись, и теперь стало возможным получить мультимегабарное статическое давление с одновременным нагревом лазерным излучением до температуры 3000 К [278]. Недавно в лаборатории были воссозданы условия в ядре Земли, соответствующие давлению в 364 ГПа и температуре в 5500 °C [285]. Эксперименты с ударными волнами подходят для получения данных о веществе в экстремальных условиях, поскольку в этих экспериментах естественным образом возникают высокие давления и температуры, а состояния давление-объем-внутренняя энергия (P-V-E) могут быть определены непосредственно и точно за счет использования массы, импульса и условия скачка энергии при ударно-волновой нагрузке [283].

Хотя большая часть существующих данных о высоких давлениях и температурах была получена с использованием газовых пушек, взрывчатых веществ и ядерных взрывов, разработка высокоинтенсивных лазеров обеспечивает актуальные дополнения к этим методам, особенно для исследования уравнения состояния при высокой плотности энергии [277]. Недавно было продемонстрировано, что возможно создать экстремальные условия по давлению и температуре в настольных лабораторных экспериментах с ультракороткими лазерными импульсами, сфокусированными в объем прозрачного материала при интенсивности в фокусном пятне, значительно превышающей порог оптического пробоя [43,44,286]. Жесткая фокусировка лазерного излучения длительностью ~100 фс с энергией 100 нДж в объем прозрачного материала обеспечивает плотность энергии в несколько МДж/см^3 в субмикронном объеме, что в несколько раз превышает прочность любого материала и приводит к перегреву твердого тела и образованию микроплазмы. Расширяющаяся микроплазма создает мощную лазерно-индуцированную ударную волну, которая выходит за пределы фокального объема и сжимает окружающий материал. Давления на фронте лазерно-индуцированной ударной волны могут достигать значений более 10 мегабар (1 ТПа), вызывая резкие изменения свойств материала. Такие высокие давления и температуры ведут к созданию экстремального для вещества состояния, формируются ударные волны, генерируются когерентные фононы, происходит каскад фазовых переходов, образуется микромодификация. Особенностью такого подхода является то, что модифицированный материал остается ограниченным в строго локализованной области внутри объема исходного кристалла, а созданная таким образом микромодификация материала может быть исследована «*post-mortem*».

Ранее было предсказано, что новые классы материалов с необычным сочетанием физических свойств должны существовать в условиях экстремального давления и температуры [287]. Например, структурное поведение кристаллических фаз металлического алюминия при высоких давлениях было предметом теоретических исследований [288] из первых принципов, которые предсказывают последовательность фазовых переходов с предполагаемыми статическими давлениями фазовых переходов в пределах 120–360 ГПа и 200–560 ГПа, что соответствует переходам fcc-hcp (гранецентрированный-кубический в гексагонально-плотноупакованный) и hcp-bcc (гексагонально-плотноупакованный в объемно-центрированный кубический) соответственно. Однако до сих пор экспериментально подтверждено только существование фазы hcp-Al [287].

Такой распространенный полупроводниковый материал, как кремний, также обладает широким разнообразием структурных фазовых переходов. Кремний, существующий при атмосферном давлении в кубической алмазной структуре (Si-I), при давлении порядка 11 ГПа трансформируется в объемно-центрированное тетрагональное β-олово (Si-II, β-tin) [289,290]. При медленной декомпрессии вместо структуры Si-II идет возвращение к наиболее стабильной структуре алмаза, разветвленная сеть каналов трансформации приводит к объемно-центрированной кубической структуре Si-III (BC8) и Si-XII[291,292]. Однако при бóльшей скорости декомпрессии образуется фаза Si-IX[292]. При отжиге (в основном, лазерном) фазы Si-III и Si-IX через промежуточную фазу Si-IV возвращаются к исходному состоянию кристаллической решетки [291]. Несмотря на многочисленные прошлые теоретические исследования фазовой стабильности, атомистические механизмы этих сложных фазовых превращений, вызванных декомпрессией, и соответствующие пути структурной конверсии остаются в значительной степени неизученными[291]. При увеличении давления свыше 15 ГПа фаза β-tin переходит сначала в орторомбическую фазу Si-XI (Imma), а затем в простую гексагональную (sh, Si-V). При давлении выше 42 ГПа наблюдалась гексагональная плотноупакованная (Si-VII) фаза с образованием орторомбической фазы Cmca (Si-VI) при промежуточных давлениях 40–42 ГПа [293–295]. При 78 ГПа образуется гранецентрированная кубическая (Si-X) решетка, которая остается стабильной до самого высокого из исследованных в настоящее время давлений 250 ГПа [292,296]. Все фазы выше 12 ГПа являются металлами. Таким образом, переход полупроводник → металл от ковалентно связанной α-diamond решетки к металлическим фазам высокого давления необратим из-за значительного кинетического барьера [292]. Отметим, что уменьшение давления, наблюдаемое на заднем фронте ударной волны, приводит к образованию полиморфных фаз кремния. В отличие от Si-I, некоторые его полиморфные фазы, например Si-III являются прямозонными полупроводниками. Это физическое свойство полупроводников является основной проблемой для различных приложений. Действительно, в общем контексте интегрированной фотоники кремний Si-I не может быть использован для разработки эффективного лазерного источника, в то время как предпочтительными материалами являются другие полупроводники, такие как арсенид галлия

(GaAs), GeSn. Следовательно, крайне желательно исследовать возможные новые фазы Si с улучшенным поглощением света и электронными свойствами, специально оптимизированными для приложений в области преобразования солнечной энергии [292].

Таким образом, создание «новой» фазы вещества с общефизической точки зрения представляет собой каскад сложных взаимосвязанных процессов перераспределения поглощенной лазерной энергии, происходящих на разных масштабах времени. Диагностика, конечно же, в этом случае является ключевым элементом всех экспериментов. Поэтому разработка новых подходов, а также более глубокое понимание того, как работают методы комплексной диагностики, необходимы для изучения экстремальных состояний материи. Для исследования лазерно-индуцированного экстремального состояния вещества и процессов, возникающих при высоком (~10 кДж/см^3) энерговкладе в среду на разных временных масштабах (образование плазмы, генерация когерентных фононов, формирование ударных волн, фазовые переходы, образование микромодификаций), в диссертации был разработан ряд методик, таких как теневая фотография, методика зондирования пробным импульсом, методика зондирования третьей гармоникой, гибридная оптико-акустическая методика и т.д. Изложение результатов, полученных при создании и исследовании экстремального состояния вещества, построено исходя из временной динамики процессов (от быстрых к медленным): в начале описываются процессы, происходящие на временах распространения лазерного импульса (образование микроплазмы, ~100 фс), а затем рассматриваются процессы, происходящие на масштабах передачи энергии от электронов плазмы в среду (генерация ударных волн и когерентных фононов, фазовые переходы).

§4.2. Методы и особенности создания лазерно-индуцированного экстремального состояния вещества в объеме конденсированной среды

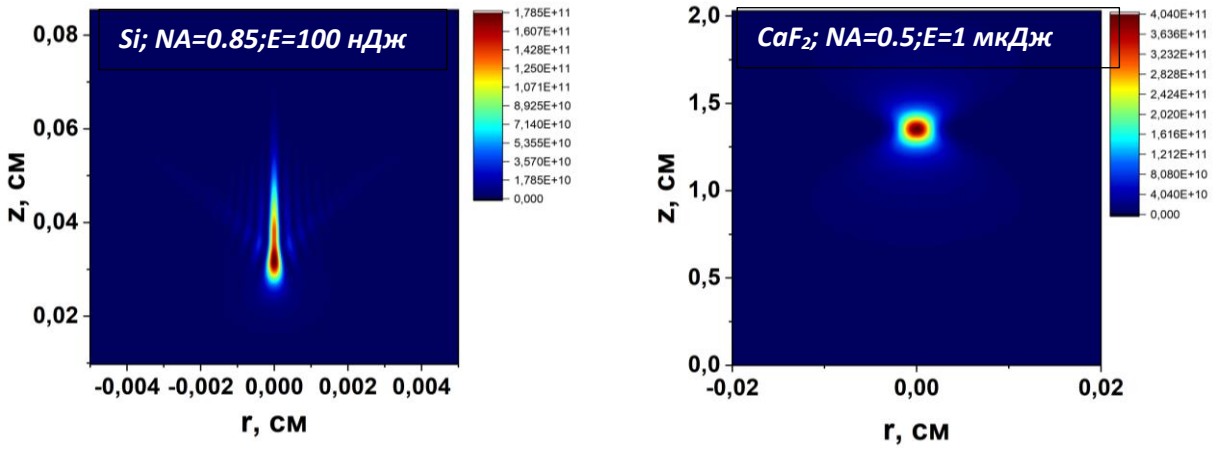
4.2.1. Острая фокусировка лазерного излучения

Задача создания высокой интенсивности лазерного излучения (~10^{13}-10^{14} Вт/см^2) в объеме прозрачного материала связана с необходимостью использования острой фокусировки лазерного излучения в среду для предотвращения пробоя материала на поверхности. Для достижения острой фокусировки лазерного излучения обычно используются линза или объектив с большим значением числовой апертуры $NA > 0{,}3$. Под острой фокусировкой здесь понимается такая фокусировка, при которой диаметр перетяжки пучка близок к длине волны фокусируемого излучения. Минимальный диаметр лазерного пучка в точке фокуса ограничивается дифракцией. Распределение интенсивности в фокальном пятне лазерного излучения описывается сложной пространственной функцией. Сферическая световая волна, сфокусированная линзой апертурой $2r$ на фокусном расстоянии f, создает аксиально-симметричное распределение интенсивности вблизи фокуса. Дифракционная картина имеет стандартный для дифракции Фраунгофера на круглом отверстии вид диска Эйри в окружении концентрических колец. Распределение

интенсивности в фокальной плоскости совпадает с известным выражением Эйри для дифракции плоской волны на круглом отверстии. На центральное пятно приходится более 80% энергии. Для оценки будем использовать радиус окружности первого минимума Эйри, r_{min}, как минимальный радиус перетяжки пучка в фокусе, который выражается следующим образом $r_{min} = 0{,}61 \times \lambda/NA$. Отметим, что минимальный диаметр лазерного излучения в точке фокуса достигается в отсутствие аберраций. Ниже приведены рассчитанные поперечные распределения интенсивности вдоль оси распространения лазерного излучения среднего ИК-диапазона в диэлектрике на примере CaF_2 и в полупроводнике на примере Si (см. ***Рис. 90***).

4.2.2. Филаментация мощного лазерного излучения в конденсированных средах

На графиках ***Рис. 90*** хорошо демонстрируется влияние самофокусировки на процесс распространения мощного излучения в объеме конденсированных сред, что определяется превышением пиковой мощности лазерного излучения над критической мощностью самофокусировки, определяемой главным образом нелинейной добавкой к показателю преломления среды n_2 (см. ***п. 3.1.1***). Филаментация лазерного излучения (см. ***Рис. 90 а***) приводит к увеличению области, в которой поглощается энергия лазерного излучения. Для сравнения на ***Рис. 90 (а,б)*** приведена эволюция интенсивного фемтосекундного лазерного импульса среднего ИК-диапазона (λ=4,6 мкм) в объеме кремния и фторида кальция, различающиеся примерно на три порядка по n_2. Как видно, несмотря на 10-кратное отличие энергии импульса ($E_{CaF_2} = 10 \times E_{Si}$) и использование более плавной фокусировки ($NA_{CaF_2} < NA_{Si}$) во фториде кальция, распространение лазерного излучения в кремнии носит филаментационный характер. В результате воздействие лазерного излучения на среду становится менее локализованным, что характеризуется созданием лазерной плазмы с меньшими значениями электронной концентрации, а также приводит к меньшим значениям объемной плотности поглощенной энергии, что, в свою очередь, сказывается на создании микромодификаций.



(а) *(б)*

Рис. 90 Поперечное распределение интенсивности при распространении остросфокусированного фемтосекундного излучения среднего ИК-диапазона 4,6 мкм, 120 фс в а) кремнии (NA=0,85, E=100 нДж), б) CaF_2 (NA=0,5, E=1 мкДж).

4.2.3. Влияние аберраций при острой фокусировке фемтосекундного лазерного излучения в объем конденсированной среды

Для создания высокой плотности энергии в объеме прозрачного материала необходимо минимизировать потери энергии на пути доставки лазерного излучения до фокальной плоскости и уменьшить фокальный объем до минимально возможного. Для этой цели используется оптика с высокой числовой апертурой (NA), поскольку радиус перетяжки лазерного пучка обратно пропорционален NA фокусирующей оптики. В то же время увеличение NA приводит к увеличению сферической аберрации в фокальной области. Это связано с тем, что после фокусирующей оптики разные части фронта сферической волны входят в среду под разными углами к границе раздела, а преломленные лучи пересекают ось пучка на разном расстоянии от поверхности.

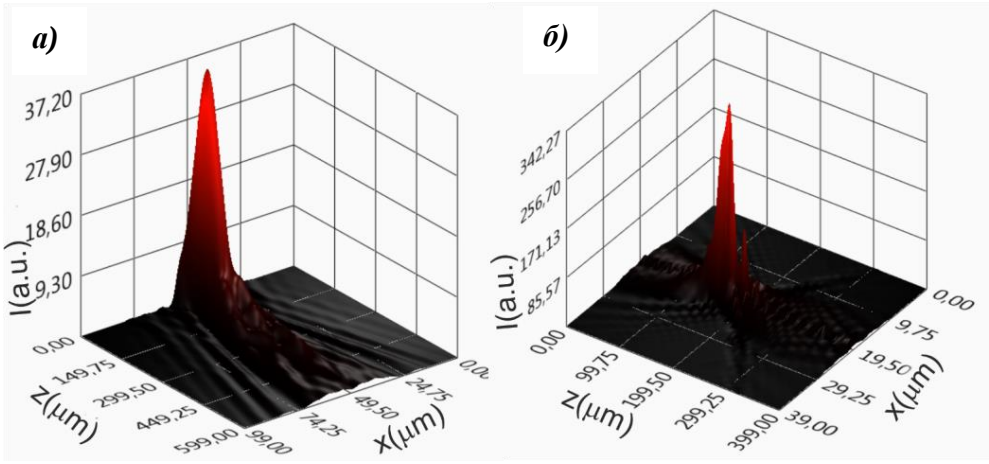


Рис. 91 Пример профилей интенсивности после фокусировки лазерного излучения ближнего ИК-диапазона (λ=1,24 мкм) в воду. (а) NA = 0,1, d = 0,1 мм (б) NA = 0,3, d = 0,1 мм.

В результате фокальная область в прозрачной среде становится вытянутой в направлении распространения лазерного излучения, и, таким образом, объёмная плотность энергии снижается (***Рис. 91***). Функция $\Phi\ (\theta, n, d)$, описывающая сферические аберрации, зависит от угла схождения лучей θ, показателя преломления n, который, в свою очередь, зависит от длины волны лазерного излучения, а также от геометрической глубины d фокусировки в преломляющую среду:

$$\Phi(\Theta, n, d) = -k \cdot d \cdot (n_1 \cdot cos\theta_1 - n_2 \cdot cos\theta_2), \qquad (48)$$

где $k = 2\pi/\lambda$ это волновой вектор в вакууме, θ_1 и θ_2 - углы падения и преломления, которые соотносятся друг с другом через закон Снеллиуса.

В соответствии с формулой для сферических аберраций (48), пространственное распределение интенсивности излучения в результате фокусировки имеет вид:

$$I(\rho, z) = \left[\int_0^{\phi} \sqrt{cos\,\varphi_1}\, sin\,\phi_1\, (\tau_s + \tau_p\, cos\,\phi_2) J_0(k_0 \rho n_1\, sin\,\varphi_1)\, exp(\, i\Phi + ik_0 z n_2\, cos\,\varphi_2) d\phi_1\right]^2, \qquad (49)$$

где ϕ_1 and ϕ_2 -углы схождения в первой и второй среде, ϕ - половина угла схождения света, k_0 – волновой вектор, τ_s и τ_p – коэффициенты пропускания Френеля для s- и p- поляризации падающего излучения, J_0 – функция Бесселя нулевого порядка.

Таким образом, сферические аберрации при фокусировке с высокой числовой апертурой накладывают значительные зависящие от глубины ограничения на концентрацию лазерной энергии внутри прозрачных материалов, когда показатель преломления иммерсии не полностью соответствует показателю преломления конденсированной среды.

4.2.4. Особенности локализованного воздействия на объем полупроводниковых материалов

Сильное двухфотонное поглощение и высокая нелинейность полупроводниковых материалов с узкой шириной запрещенной зоны не дают возможность локализовать лазерное воздействие в достаточной степени в области перетяжки лазерного пучка – энергия лазерного излучения сильно поглощается до фокальной плоскости из-за «эффекта делокализации» на формируемой микроплазме высокой концентрации [297,298]. Это, в свою очередь, препятствовало получению оптического пробоя и последующих локальных структурных изменений внутри таких важных для микро- и оптоэлектроники материалов, как кремний и другие полупроводники. Дополнительным подтверждением этому послужили недавние неудачные попытки достигнуть объемного пробоя полупроводника при высоких интенсивностях и максимально возможных числовых апертурах [297,298]. В результате некоторые научные группы предпочли использовать многоимпульсный режим воздействия на полупроводники и даже импульсы наносекундной длительности [299,300]. Можно отметить, что получение объемных волноводов (протяженных «замороженных» модификаций) внутри кремния были получены в режиме накопления при воздействии последовательностью фемтосекундных импульсов, следующих с частотой 250 кГц [301]. Несмотря на то, что объемная модификация кремния широко освещалась в представленных научных статьях, тепловая природа взаимодействия не позволяет достичь такого уровня контроля над пространственной локализацией лазерной энергии, как в случае фемтосекундного пробоя внутри диэлектрика, что делает такие подходы нереалистичными для высокоточных применений. Комплексное исследование характеристик получаемых волноводов в объеме кремния в зависимости от параметров взаимодействия – энергии, частоты повторения, длительности и количества импульсов – было проведено в работе [302]. Результатом исследования явилось утверждение, что оптимальным режимом для создания таких волноводов, по мнению авторов, является воздействие лазерным импульсом с длительностью несколько сотен фемтосекунд, а механизм возникновения модификаций не является тепловым из-за хорошей теплопроводности кремния, а скорее обусловлен растущим влиянием лавинной ионизации и сокращением запрещенной зоны с увеличением длительности возбуждающего импульса. Однако ввиду отсутствия полноценного анализа с привлечением время-разрешенного зондирования области взаимодействия в рамках исследования так и не удалось найти режима записи таких волноводов в объеме кремния с достаточным для технологического применения контролем над получаемыми параметрами. Таким образом, получение модификаций с управляемой морфологией в полупроводниках по-прежнему представляется наиболее перспективным подходом, который и предлагается

рассматривать в рамках диссертационного исследования. Важной особенностью полупроводников является достаточно высокий показатель преломления (для кремния ~3,5), что приводит к тому, что даже острая фокусировка излучения (NA>0,3) через плоскую поверхность в объем образца приводит к возникновению сразу двух негативных факторов: 1) «смягчение» фокусировки – угол схождения пучков перестает соответствовать острой фокусировке, а область потенциального поглощения лазерного излучения увеличивается; 2) сильные сферические аберрации [303]. В литературе также были предприняты попытки численных расчетов распространения высокоинтенсивного (более 1 ТВт/см^2) лазерного излучения среднего ИК (более 2 мкм) диапазона в кремнии. В этом случае сечение многофотонного поглощения зависит от интенсивности в пятой степени и, поэтому, ожидается высокая локальность воздействия. Однако, как показано в [304], формируемая, пусть и не настолько плотная, как в случае излучения ближнего ИК-диапазона, микроплазма «делокализует» воздействие и не дает обеспечить необходимый для локального пробоя энерговклад. Стоит также заметить, что в этих расчетах использовалась фокусировка с числовой апертурой NA=0,3. Для ухода от этих проблем в недавней публикации было предложено использовать режим экстремально острой фокусировки, когда помимо фокусирующей оптики в качестве мишени используются кремниевые сферы, поверхность которых позволяет ввести излучение в объем полупроводника не потеряв, а только выиграв в числовой апертуре, и при том без аберраций [302]. В диссертации для эффективного локального ввода лазерной энергии в объем полупроводника предлагается впервые использовать остросфокусированное фемтосекундное излучение среднего ИК-диапазона ($\lambda = 4{,}6$ мкм) и двухцветное воздействие.

§4.3. Физическая картина процессов при взаимодействии остросфокусированного фемтосекундного лазерного излучения с объемом прозрачной конденсированной среды

Лазерно-индуцированный пробой материалов играет существенную роль в процессах взаимодействия лазерного излучения с веществом. Эта роль может быть как негативной (фактор, ограничивающий интенсивность излучения в мощных лазерных системах), так и позитивной (способ модификации и оптической обработки материалов). Таким образом, несмотря на более чем 50-летнюю историю, обсуждение механизмов, приводящих к лазерно-индуцированному пробою вещества, до сих пор является актуальным как с точки зрения фундаментальной науки, так и в связи с многочисленными прикладными задачами, привлекая интерес исследователей во всём мире [305]. Среди последних следует особо отметить развитие лазерных технологий прецизионной микрообработки сверхпрочных металлов и высокотемпературных керамик [306], а также прозрачных оптических материалов (стекол) и очень прочных алмазов, в которых плазма, возбуждаемая высокоинтенсивными (более 1 ТВт/см^2) ультракороткими лазерными импульсами, играет принципиальную и во многом определяющую роль [307].

4.3.1. Диэлектрики и полупроводники

Острая фокусировка (NA>0,3) фемтосекундного лазерного излучения с энергией импульса от 0,1 до 1 мкДж в объем конденсированной среды в области её прозрачности позволяет достигнуть предельной для твердого тела интенсивности ~1-10 ТВт/см^2 и приводит к созданию экстремального состояния вещества в микрообъеме среды с удельным энерговкладом более кДж/см^3. Отметим, что в результате такого воздействия конденсированная среда проходит несколько стадий релаксации, прежде чем возвращается в исходное состояние или происходит фазовый переход. Энергия лазерного излучения сначала передается электронам, а потом уже в кристаллическую решетку. Можно выделить четыре основных стадии: 1) генерация свободных носителей; 2) термализация; 3) уменьшение концентрации этих носителей за счет процессов рекомбинации и диффузии; 4) тепловые и структурные эффекты. Генерация свободных электронов – это первый и доминирующий процесс при взаимодействии интенсивных фемтосекундных лазерных импульсов с конденсированной средой. Полагая, что примесная концентрация свободных электронов в зоне проводимости в случае «чистого» диэлектрика пренебрежимо мала, начальная (затравочная) концентрация свободных электронов возникает за счет процессов полевой ионизации, вероятность которой зависит от величины поля и зонной структуры материала. В полупроводнике (например, Si или Ge) существующая при росте начальная концентрация примесных электронов может быть уже достаточно высокой, на уровне 10^{13} см$^{-3}$. Далее затравочные свободные электроны могут увеличивать свою энергию, поглощая энергию лазерного излучения через процессы обратнотормозного рассеяния и тем самым порождая всё больше свободных электронов в зоне проводимости за счет столкновительной ионизации. Этот процесс происходит в течение лазерного импульса за счет процессов электрон-электронного и электрон-фононного рассеяния с характерным временем от единиц до сотен фемтосекунд. Набор свободными носителями заряда энергии порядка ширины запрещенной зоны материала становится достаточным для осуществления ударной и последующей лавинной ионизации конденсированной среды. Эти процессы наиболее активны на хвосте лазерного импульса. Электроны, возникшие в процессах полевой и лавинной ионизации, формируют плазму, и большая часть энергии лазерного импульса поглощается созданной плазмой в процессах взаимодействия лазерного излучения с веществом [308]. Здесь важно отметить, что наличие примесной (связанной с технологией роста диэлектрика и полупроводника) концентрации электронов в зоне проводимости может сильно влиять на распространение импульса и временную динамику ионизации (а именно на начальную концентрацию, с которой стартует лавинная ионизация) в конденсированной среде и соответственно на параметры наводимых модификаций. Изменение начальной концентрации свободных носителей может заметно сказаться на результатах расчетов. Так, в работах [309,310] при исследовании пробоя в NaCl примесная концентрация электронов составляла 10^{10} см$^{-3}$. Источником примесных электронов могут служить дефекты, полученные как в процессе роста диэлектрика, так и индуцированные лазерным излучением. К первому типу относятся примесные дефекты, а также

дефекты по Шоттки или по Френкелю, которые подчиняются больцмановскому распределению по температуре, и, таким образом, их концентрация может значительным образом меняться при нестационарном нагреве, который имеет место при воздействии лазерных импульсов и развитии электронной лавины.

На второй стадии, на временном масштабе более длительности лазерного импульса созданная плазма начинает релаксировать. После лазерного возбуждения перераспределение электронов и/или дырок в валентной зоне и зоне проводимости конденсированной среды определяется исключительно процессами электрон-электронного и электрон-фононного рассеяния. В результате энергия носителей заряда передается в решетку в течение многих актов рассеяния до тех пор, пока электронная подсистема и кристаллическая решетка не придут в состояние термодинамического равновесия [311]. Несмотря на то, что средняя «температура» кристаллической решетки и электронной подсистемы одинаковы, всё равно присутствует избыток свободных носителей по сравнению с равновесным состоянием. На третьей стадии за счет процессов рекомбинации (радиационной, Оже) электронов и/или дырок, а также их диффузии из области взаимодействия происходит восстановление их равновесной концентрации в конденсированной среде. На последней стадии (если в результате такого сверхбыстрого нагрева при постоянном сверхмалом объеме на фазовой диаграмме достигаются условия необратимого фазового перехода) по окончании лазерного воздействия и процессов перераспределения лазерной энергии образуется новая фаза вещества и микромодификация. В противном случае температура возвращается к равновесной на микросекундном масштабе по времени, а вещество переходит в исходное состояние. Отметим, что использование более длинноволнового фемтосекундного ИК лазерного излучения кардинально изменяет механизмы полевой ионизации (переход от многофотонной к туннельной ионизации в диэлектрике и от одно-, двухфотонного поглощения к многофотонному в полупроводнике) и набора энергии электроном в лазерном поле (пондеромоторная энергия электрона $E_{pod} \propto \lambda^2$), что является новой концепцией взаимодействия интенсивного лазерного излучения с конденсированной средой.

Динамика свободных электронов в определенном смысле определяет развитие последующих процессов, таких как передача энергии от электронной подсистемы в ионный остов и возникновение модификации. Таким образом, исследование процессов плазмообразования важно для понимания возможностей управления параметрами микромодификаций в объёме конденсированной среды в области её прозрачности и является мотивацией исследований в рамках данной диссертации.

§4.4. Диагностика лазерной плазмы, созданной в объеме конденсированной среды

Обычно лазерно-индуцированные микромодификации исследуют *post-mortem* [312]. На основе анализа микромодификаций выбираются наиболее точные или эффективные режимы воздействия лазерного излучения на вещество. Характер воздействия лазерного излучения на

материал зависит от параметров лазерного импульса (длина волны, длительность, энергия, частота следования), условий фокусировки (диаметр фокусного пятна, глубина фокусировки) и свойств материала (линейный и нелинейный показатели преломления, ширина запрещенной зоны и т.д.). Однако при изменении одного из приведенных выше параметров морфология лазерно-индуцированных микромодификаций может сильно изменяться [312]. При этом важно уметь прогнозировать лазерное воздействие на материал. В прозрачных материалах энергия лазерного излучения передается решетке через лазерно-индуцированную плазму [313]. Поэтому процесс микрообработки обычно характеризуется измерением размеров и морфологии остаточной микромодификации или регистрации пространственно-временных свойств лазерно-индуцированной плазмы и ее плотности [279].

Для оценки параметров лазерной плазмы обычно применяются оптические методы. Они могут быть основаны на измерении поглощения лазерного излучения в лазерно-индуцированной плазме [230] или теневой фотографии [314]. В этих методах плотность электронов плазмы определяется с использованием модели Друде-Лоренца. Более сложный подход основан на измерении изменения фазы прошедшего через плазму зондирующего лазерного пучка, что успешно используется в интерферометрии [315]. С использованием методов нелинейной оптики чувствительность традиционных методов «накачка-зондирование» была увеличена при использовании процесса генерации третьей гармоники [57]. Кроме того, эмиссионный спектр плазмы [316], дифракция рентгеновского излучения [279] и спектроскопия комбинационного рассеяния [317] могут дать дополнительную информацию о лазерно-индуцированных фазовых переходах и параметрах микромодификации.

Однако диагностика параметров лазерной плазмы или диагностика остаточных микромодификаций не могут дать полной информации о физических процессах, происходящих при взаимодействии лазерного излучения с веществом. В диссертационной работе создан широкий класс методов, позволяющих всесторонне охарактеризовать режимы взаимодействия лазерного излучения с веществом как с применением оптических (теневая фотография, трехмерная визуализация распространения лазерного излучения и измерение пропускания), так и оптоакустических методов. В проведенных экспериментах удалось измерить плотность энергии лазерного излучения и среднюю концентрацию электронов плазмы. В диссертации определяется объемная плотность поглощенной энергии или удельный энерговклад (УЭ) в качестве одного из ключевых параметров, который можно использовать для описания процесса взаимодействия лазерного излучения с веществом. УЭ определяется как энергия лазерного излучения, поглощенная в единице объема вещества [44,48]. Если УЭ превышает пороговое значение, внутри объема будет формироваться лазерно-индуцированная микромодификация, в противном случае материал вернется в исходное состояние после релаксации как электронной, так и ионной подсистем [279]. УЭ характеризует объемные эффекты и зависит от режима взаимодействия лазерного излучения с веществом (филаментация или условия острой фокусировки лазерного излучения в объем материала). Представленный подход дает новый путь

к определению как объема взаимодействия, так и УЭ. В совокупности это дает уникальную возможность охарактеризовать режим взаимодействия лазерного излучения с веществом и определяет критерий для создания лазерно-индуцированных остаточных микромодификаций в прозрачном материале.

Таким образом, для определения УЭ чрезвычайно важно знать размер области взаимодействия. Как будет показано ниже, размер перетяжки лазерного пучка не может быть использован для этой цели, поэтому следует проводить прямую диагностику области взаимодействия. Далее в диссертации будет представлен разработанный класс диагностических методов, позволяющих выполнить эту задачу.

4.4.1. Определение размеров области лазерного воздействия по люминесценции

В рамках данной работы были выполнены исследования по изучению параметров микроплазмы в зависимости от энергии лазерного импульса. Поперечный размер плазмы измерялся с помощью ПЗС-камеры. Для переноса изображения с увеличением на матрицу камеры использовался микроскопный объектив с восьмикратным увеличением. Для определения поперечного размера микроплазмы измерялся диаметр лазерного пучка в перетяжке фокусирующей асферической линзы по переносу изображения перетяжки из фокальной плоскости на ПЗС-камеру с помощью линзы A240TM (Rochester)/CAY033 - оптическое разрешение данной системы, определенное по критерию Рэлея, составляло порядка 1 мкм/пиксель. Следует отметить, что интенсивность фотоэмиссионного спектра плазмы является хорошим индикатором электронной концентрации, однако в конденсированных средах зависимость сигнала люминесценции от электронной концентрации не линейна, что делает диагностику электронной концентрации более сложной по сравнению с подобной ситуацией в воздухе [318].

На ***Рис. 92*** представлены линейные размеры области фотолюминесценции плазмы, индуцированной фемтосекундным излучением с длиной волны 620 нм, в зависимости от энергии лазерного импульса для линзы A240TM.

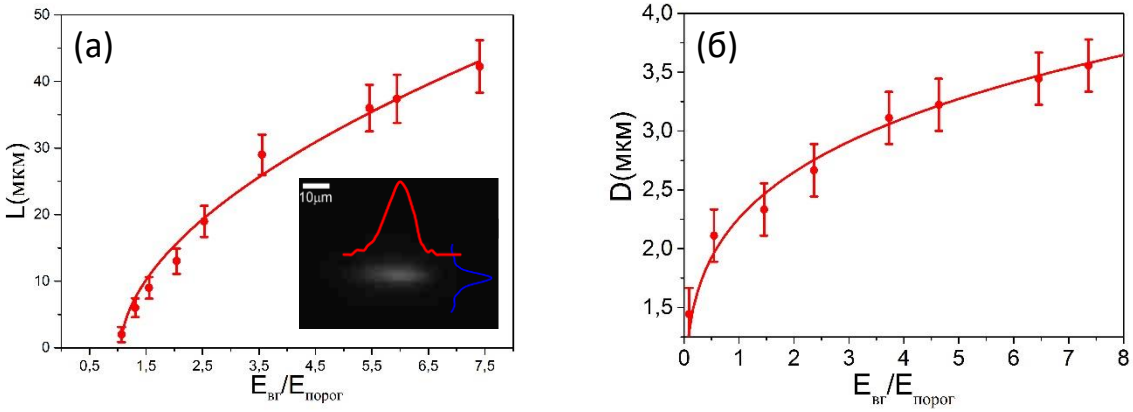


Рис. 92 Размер микроплазмы при использовании линзы A240TM.(а) - длина области люминесценции плазмы в кварце в зависимости от энергии лазерного импульса второй гармоники (энергия нормирована на порог плазмообразования $E_{порог}$=1мкДж). На вставке показан профиль распределения интенсивности плазмы при энергии ~2 $E_{порог}$. Красной линией показана аппроксимация $f(E-E_{порог}) \sim (E-E_{порог})^{0,54}$. (б) - диаметр лазерного пучка в перетяжке асферической линзы в

зависимости от энергии лазерного импульса второй гармоники (энергия нормирована на пороговое значение $E_{порог}$=1мкДж). Красной линией показана аппроксимация $f(E)\sim(E)^{0,23}$.

Вставка на ***Рис. 92 (а)*** показывает, что пространственный профиль люминесценции является гауссовым, а его симметричный рост в обе стороны от центра перетяжки с увеличением энергии возбуждающего импульса гарантирует отсутствие филаментации. Аппроксимация длины области люминесценции при использовании линзы A240TM близка к корневой зависимости $L(E-E_{порог}) \sim (E-E_{порог})^{0.54}$ и дает оценку величины энергии, при которой происходит локальный оптический пробой в 1 мкДж. При минимально детектируемой энергии диаметр перетяжки равен 1,3 мкм, что хорошо соответствует дифракционному пределу для длины волны воздействующего лазерного излучения (λ=0,62 мкм), а зависимость диаметра области плазмообразования от падающей энергии может быть хорошо аппроксимирована степенной функцией $D(E) \sim E^{0.23}$. Таким образом, рост объема, занимаемого цилиндрической областью плазмообразования, возникающий при увеличении энергии возбуждающего импульса, близок к линейному. Аналогичные результаты получены при использовании острофокусирующей линзы CAY033: $L(E-E_{порог})\sim(E-E_{порог})^{0.38}$; $D(E) \sim E^{0.46}$.

4.4.2. Теневое фотографирование микроплазмы

Одним из возможных подходов для определения области взаимодействия лазерного излучения с веществом является теневая фотография [47]. Следует отметить, что эта методика вместе с измерением геометрических размеров лазерно-индуцированной плазмы может быть применена для определения концентрации электронов плазмы. В экспериментах, представленных в рамках диссертационного исследования, применялся метод теневого фотографирования высокого разрешения для выполнения косвенных измерений распределения плотности электронов плазмы и энерговклада. Кроме того, разработанный метод позволял охарактеризовать режим взаимодействия лазерного излучения с веществом.

Методика измерения распределения электронной концентрации плазмы заключается в следующем. С физической точки зрения теневое изображение плазменного канала представляет собой двумерную дискретную функцию $F_2(x_i, y_j)$, то есть двумерную карту плотности энергии лазерного излучения (в условных единицах), прошедшего через плазму. i, j — номера столбца и строки пикселя соответственно. Коэффициент пропускания рассчитывается как $T(x_i, y_j) = F_2(x_i, y_j)/F_1(x_i, y_j)$, где $F_1(x_i, y_j)$ – это входная плотность энергии лазерного излучения. Отраженная от поверхности плазмы энергия лазерного импульса не учитывалась в модели, поскольку в экспериментах она составляла менее 5% от падающей энергии лазерного излучения. $T(x_i, y_j)$ используется для расчета двумерной плотности плазмы внутри плазменного канала $n_e(x_i, y_j)$.

В диссертации применялись модель Друде-Лоренца для плазмы и 1-ое приближение теории дисперсии. Предполагалось, что падающая зондирующая волна плоская и имеет гауссову огибающую во временной области. Кроме того, принималось, что гауссов профиль

интенсивности лазерного излучения накачки формирует плазменный канал с аксиально симметричным распределением концентрации электронов n_e в нем. В рамках данных приближений коэффициент пропускания *T(x,y)* может быть выражен как [319]:

$$T(x,y) = \frac{F(x,y,z_2)}{F(x,y,z_1)} = e^{-2\cdot k''(\omega_0,x,y)\cdot \Delta z(x,y)}, \quad (50)$$

Таким образом, используя измеренные $T(x_i, y_j)$ и $\Delta z(x_i, y_j)$ (полученные из теневого изображения) становится возможным рассчитать $k''(\omega_0, x_i, y_j)$ и потом $n_e(x_i, y_j)$, где n_e усредняется вдоль $\Delta z(x_i, y_j)$ двумерного распределения концентрации электронов плазмы.

Точность измерения электронной концентрации плазмы зависит от пространственного разрешения оптической системы (объектив + камера) и глубины получаемого изображения. В экспериментах пространственное разрешение составило 1,4 мкм/пиксель, глубина изображения составила 12 бит, что дает оценку на разрешение по электронной концентрации плазмы порядка 5×10^{17} см$^{-3}$. Таким образом, разработанная методика позволяет определить распределение концентрации электронов плазмы, размер лазерно-индуцированной плазмы, а также исследовать временную эволюцию лазерно-индуцированной плазмы.

Примеры восстановленных профилей лазерно-индуцированной плазмы представлены на ***Рис. 93***. Видно, что при разных условиях фокусировки могут реализовываться различные режимы взаимодействия лазерного излучения с веществом. Максимальная плотность электронов достигается в режимах суперфиламентации и жесткой фокусировки [47]. В этих режимах n_e можно оценить как $1{,}3 \times 10^{20}$ см$^{-3}$, что хорошо согласуется с известными литературными данными [320]. При фемтосекундной филаментации плотность электронов плазмы примерно на порядок ниже ~5×10^{19} см$^{-3}$ [321,322]. Поскольку поступление энергии в среду сильно зависит от концентрации электронов плазмы, УЭ ниже в случае одиночной или множественной филаментации.

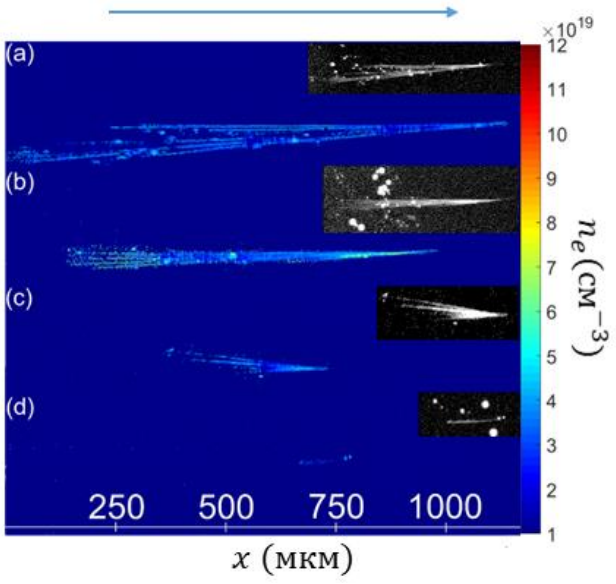


Рис. 93 Примеры восстановленных профилей концентрации электронов плазмы для (a) множественной филаментации (NA=0,1 E=110 мкДж), (b) суперфиламентации (NA=0,2 E=290 мкДж), (c) острой фокусировки (NA=0,5 E=30 мкДж) и (г) одиночной филаментации (NA=0,1 E=30 мкДж) в воде. Лазерный импульс распространяется слева направо (обозначено стрелкой). Ось y направлена вверх, ось z направлена на читателя. На вставках показаны исходные теневые снимки. Время экспозиции камеры равно 100 мс, что соответствует периоду следования лазерных импульсов. Длина волны генерирующего импульса 1240 нм, зондирующего – 620 нм.

Несмотря на то, что метод теневой фотографии дает информацию о распределении концентрации электронов плазмы, прямое определение УЭ по-прежнему невозможно. Однако в сочетании с измерениями поглощения лазерного излучения в плазме можно восстановить УЭ.

4.4.3. Трехмерное картирование микроплазмы с помощью микроскопии третьей гармоники

Представленный выше метод определения размеров области плазмообразования по люминесценции микроплазмы перестает работать с уменьшением уровня входной энергии лазерного излучения при регистрации с использованием стандартных неохлаждаемых ПЗС-сенсоров на основе кремния. Микроскопия третьей гармоники — это хорошо известный метод, широко используемый для получения оптических изображений биологических образцов [323]. Он основан на несинхронной генерации третьей гармоники (ГТГ) на границах раздела сред с различными показателями преломления или восприимчивостями третьего порядка $\chi^{(3)}$ и чрезвычайно чувствителен к любым неоднородностям из-за отсутствия сигнала третьей гармоники при острой фокусировке лазерного излучения в объем изотропной однородной среды. В области взаимодействия лазерного излучения с веществом микроскопия ГТГ применялась для визуализации микроплазмы [230], микроструктур [324] и микромодификаций [44], созданных фемтосекундным лазером, а также изготовленных при фотополимеризации [325]. Плазма оптического пробоя, полученная на поверхности свинца и меди при наносекундном лазерном воздействии, была визуализирована этим методом в [326].

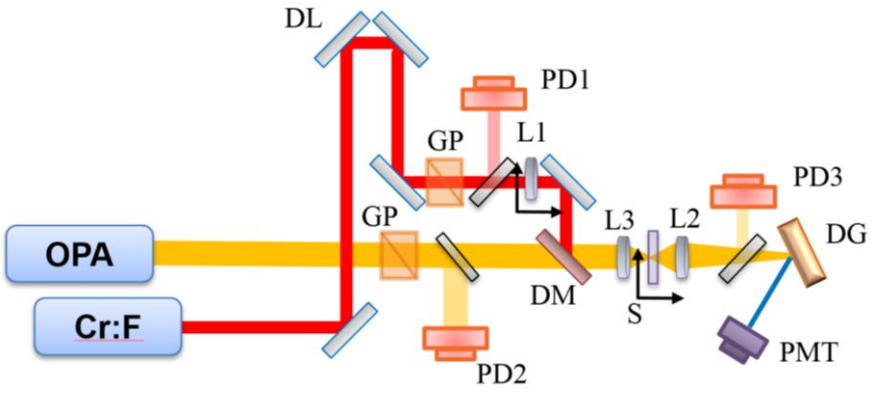


Рис. 94 Схема экспериментальной установки. OPA -параметрический усилитель; L1, L2, L3 - линзы; GP - призма Глана; DL – линия задержки; PD1, PD2, PD3 - фотодетекторы; DM – дихроичное зеркало; S - образец; DG – дифракционная решетка; PMT – фотоэлектронный умножитель, L1 и S установлены на трехкоординатный транслятор.

Для определения характерных размеров микроплазмы при воздействии высокоинтенсивного (более 1 ТВт/см^2) лазерного излучения с различными длинами волн (0,62 мкм; 1,24 мкм; 1,7 мкм) на конденсированную среду, была выполнена микроскопия на основе процесса генерации третьей гармоники области плазмообразования по методике «накачка-

зондирование» (см. ***Рис. 94***). Высокоэнергетичный (несколько мкДж) лазерный импульс, действующий как накачка, генерировал микроплазму внутри объема образца плавленого кварца. Второй низкоэнергетичный лазерный импульс сканировал область перетяжки, созданной импульсом накачки. Пробный пучок и накачка фокусировались одной и той же линзой (L3) с числовой апертурой 0,5 и диаметром апертуры 5 мм. В отсутствие свободных электронов (энергия импульса накачки ниже порога образования плазмы) пробный импульс не «чувствует» высокоэнергетичный. Создание лазерно-индуцированной плазмы нарушает симметрию, и пробный импульс генерирует третью гармонику на сформированной плазме. Для получения профиля микроплазмы в пробный канал помещалась дополнительная линза (L1, см. ***Рис. 94***), установленная на трехосевом моторизованном микроманипуляторе. Движение линзы изменяло положение перетяжки пробного пучка относительно пучка накачки, что давало возможность картирования плазмы. Образец был установлен на трехкоординатном трансляторе, движущемся с частотой повторения лазерных импульсов, чтобы избежать эффектов накопления. Экспериментальная установка основана на хром-форстеритовом лазере (λ=1240 нм), который накачивает параметрический усилитель (ПУ) ближнего и среднего ИК-диапазона (подробнее см. ***§1.4***). Чтобы продемонстрировать независимость предлагаемого подхода от длины волны, эксперименты были проведены для импульсов с разными длинами волн (0,62 мкм, 1,24 мкм и 1,9 мкм). В пробном канале всегда использовалось основное излучение хром-форстеритового лазера (λ=1,24 мкм). Энергия каждого импульса могла плавно изменяться с помощью соответствующих поляризаторов и измерялась калиброванными фотодетекторами независимо друг от друга. Диаметры перетяжек зондирующего и возбуждающего лазерных пучков измеряли методом переноса изображения с помощью линзы L3 и ПЗС-камеры. Полный набор параметров лазерного излучения приведен в ***Таблица 11***. Генерируемая зондирующим импульсом третья гармоника (ТГ) (λ=413 нм) выделялась из других длин волн с помощью дифракционной решетки и регистрировалась фотоэлектронным умножителем (ФЭУ). Энергия пробного импульса устанавливалась на порядок ниже порога генерации плазмы. Энергия импульса накачки варьировалась от 1 до 10 пороговых значений. Временная задержка между импульсами выбиралась по максимальному сигналу ТГ и соответствует совпадению импульсов во времени (см. ***Рис. 138***).

Таблица 11. Параметры излучения накачки и зондирования.

Длина волны, мкм	**Длительность импульса, фс**	**Диаметр пучка в перетяжке, мкм**	**Длина Рэлея, мкм**	**E_{th}, мкДж; энергии, используемые в экспериментах, мкДж**
Импульс накачки				
0,62	120	1,8	4,1	0,8 (0,8-8)
1,24	230	2,1	2,79	1,25 (1,25-12,5)
1,9	180	3	3,72	1,3 (1,3-13)
Пробный импульс				

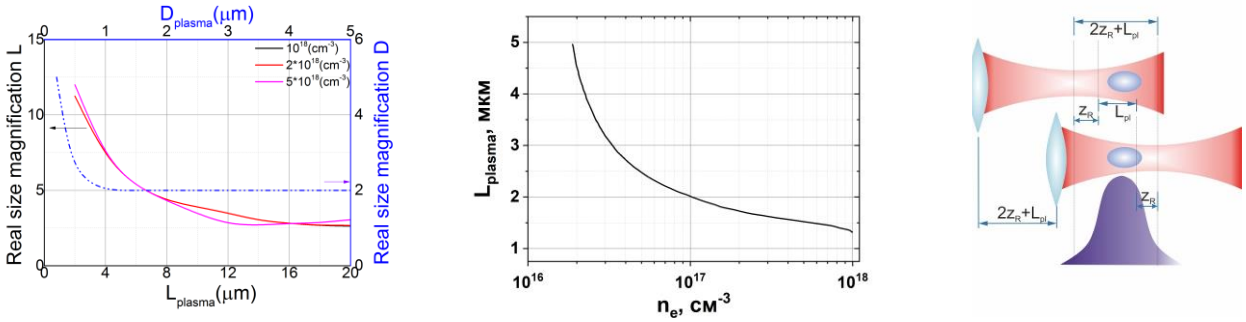
1,24	230	3	5,7	(0,1)

Анализ результатов измерений проводился на основе следующей модели. Эффективность ГТГ при жесткой фокусировке гауссовых пучков в объем изотропной среды может быть обобщена на случай двух измерений. Для заданных координат (z_0, y_0) это можно выразить как:

$$\eta(z_0, y_0) \sim \frac{[\chi^{(3)}]^2 w_0^3 E^2}{L_0 \cdot n_{3\omega}} \cdot \left| \int_{z_0 - L_0}^{z_0 + L_0} \int_{-1}^{1} exp(-\xi^2/2) \frac{exp(i\Delta k(z - z_0))}{(1 + \frac{2i(z - z_0)}{L_0})^2} dz d\xi \right|, \quad (51)$$

где $\xi = (y - y_0)/w_0$, E - энергия пробного импульса, w_0 -радиус лазерного пучка по (1/e) по интенсивности, L_0 – длина Рэлея пробного пучка, $\Delta k = k_{3\omega} - k_\omega$ – фазовая расстройка между волной третьей гармоники $k_{3\omega}$ и основного излучения k_ω, $\chi^{(3)}$ – кубическая нелинейная восприимчивость среды, $n_{3\omega}$ – показатель преломления среды на длине волны третьей гармоники.

В случае лазерно-индуцированной микроплазмы фазовую расстройку можно рассчитать, как $\Delta k = \Delta k_0 + (8/3) \times \pi \times n_e(z_0, y_0)$, где $\Delta k_0 = 3400$ см$^{-1}$ для плавленого кварца и $n_e(z_0, y_0)$ — концентрация электронов в плазме. Профиль плазмы задавался в следующем виде: $n_e(z_0, y_0) = n_e \times exp(-{z_0}^2/2{L_{plasma}}^2) \times exp(-{y_0}^2/2{D_{plasma}}^2)$, где L_{plasma} и D_{plasma} – продольные и поперечные размеры области плазмообразования.



а) *б)* *в)*

Рис. 95 (а) Увеличение реальных размеров микроплазмы: длины (сплошные линии) и диаметра (штрихпунктирная линия). На рис. а кривые для разных концентраций электронов плазмы отмечены разными цветами. (б) Зависимость минимально регистрируемого размера плазмы от концентрации электронов плазмы. (в) Наглядная демонстрация причины увеличения размеров микроплазмы, регистрируемой по сигналу ТГ.

Профиль плазмы в *(51)* определяет полную фазовую расстройку процесса ГТГ. Поскольку генерируемая плазма имеет размеры, сравнимые с перетяжкой зондирующего пучка, экспериментальный профиль ТГ больше, чем реальная микроплазма. Сигнал ТГ начинает нарастать, когда перетяжка зондирующего пучка приближается к линейным размерам области плазмообразования. Он изменяется при движении зондирующего пучка через область плазмы и уменьшается, когда микроплазма находится за перетяжкой зондирующего пучка (***Рис. 95 (в)***). Поэтому в первом приближении профиль ТГ представляет собой свертку перетяжки зондирующего лазерного пучка с областью микроплазмы. Для получения реальных размеров плазмы (L_{plasma} и D_{plasma}) применялся следующий алгоритм: сначала производилась оценка

максимальной концентрации электронов плазмы, затем восстанавливался поперечный профиль плазмы (фиксировались n_e и продольный размер плазмы L_{plasma}), далее восстанавливался продольный профиль плазмы (фиксировались n_e и поперечный размер плазмы D_{plasma}) и, наконец, производилась коррекция полученных значений L_{plasma} и n_e.

Оценка (играющая роль первого приближения) концентрации электронов плазмы была сделана по нелинейному пропусканию как $n_e = \frac{m\varepsilon_0}{e^2}\frac{4\omega^2}{\vartheta^2}\frac{4c^2}{L^2} ln\,(T)^2$, где T – пропускание пробного импульса, ω - круговая частота пробного импульса, c – скорость света в вакууме, e – заряд электрона, $m = 0.6 \times m_e$ - эффективная электронная масса, ϑ - эффективная частота столкновений равная $\vartheta = 6 \times 10^{14}$ с$^{-1}$, ε_0 – электрическая постоянная, L – длина Рэлея пробного пучка [327]. Важно отметить, что цель этой оценки заключалась в сокращении времени численных расчетов профиля микроплазмы. Значение n_e использовалось для вычисления интеграла в (51). В качестве следующего шага рассматриваемого алгоритма определялся поперечный размер микроплазмы. Поскольку переменные z и ξ в *(51)* независимы, можно зафиксировать $z = 0$ и варьировать значение $\xi = (y - y_0)/w_0$ до тех пор пока теоретический профиль ТГ $I_{3\omega}(0, y)$ не совпадет с экспериментальным профилем. Поперечный профиль ТГ превышал реальный диаметр плазмы в 2 раза для большинства экспериментальных данных (***Рис. 95(а)*** синяя штрихпунктирная линия], что является результатом свертки пробного пучка и профиля микроплазмы. Увеличение (отношение измеренного профиля ТГ к реальному размеру плазмы) больше для малых размеров микроплазмы, так как свертка почти соответствует перетяжке лазерного пучка ($w_0 \gg D_{plasma}$).

Продольный профиль ТГ зависит как от размера плазмы, так и от концентрации электронов. Начальная оценка концентрации электронов была получена на первом этапе. При её зафиксированном значении варьировался продольный размер области плазмообразования до тех пор, пока не происходило совпадение между экспериментальным и восстановленным профилями ТГ. Наконец, для полученных L_{plasma} и D_{plasma} было выполнено 2D-моделирование изображения ТГ с использованием n_e в качестве подгоночного параметра. Важно отметить, что зависимость профиля ТГ от n_e слабее, чем от L_{plasma}, что проиллюстрировано на ***Рис. 95 (а)*** (сплошные линии). Двукратное увеличение n_e существенно не изменяет длину профиля ТГ. Заметная разница возникает только при увеличении концентрации электронов плазмы в 5 раз. Поэтому допустима грубая оценка концентрации электронов в плазме на первом шаге, так как на последнем шаге алгоритма она может быть улучшена.

На ***Рис. 96*** представлены два типичных изображения профилей ТГ для разных длин волн. Экспериментальные карты были отфильтрованы Фурье-фильтром низких частот. Первый профиль ***(Рис. 96 а,б)*** близок к гауссовскому, однако вторая карта (***Рис. 96 (в,г)***) имеет углубление (провал) в центре. Наблюдаемый провал является результатом высокого значения Δk в центре микроплазмы. В предельном случае сильной фокусировки сигнал третьей гармоники

пропорционален $I_{3\omega}{\sim}k\Delta k d_0^2\, exp(-k\Delta k d_0^2/2)/2$ [225]. Таким образом, в центре плазмы (где концентрация электронов максимальна) сигнал ТГ будет слабее из-за экспоненциального множителя.

Зависимость продольного профиля ТГ в зависимости от размеров микроплазмы представлена на ***Рис. 96 (д)***. Профиль ТГ сильно отличается от гауссова в случае плотной и локализованной плазмы. Однако в большинстве экспериментальных случаев концентрация в плазме недостаточно высока, и ее профиль можно легко восстановить. В случае сильно локализованной плазмы (L_{plasma} менее 2 мкм) расстояние между двумя пиками (см. ***Рис. 96 (д)***) можно использовать как оценку размера плазмы.

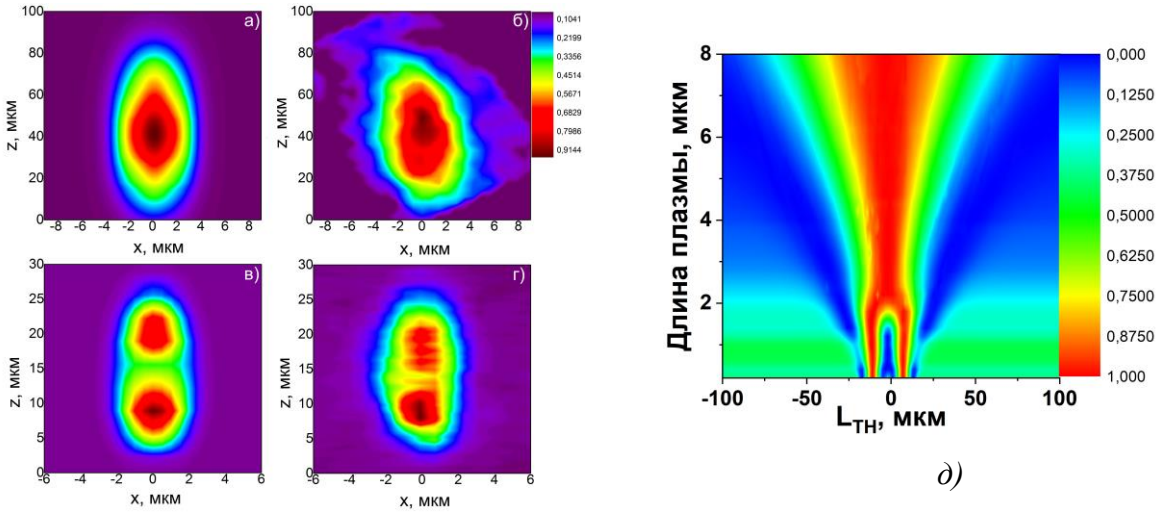
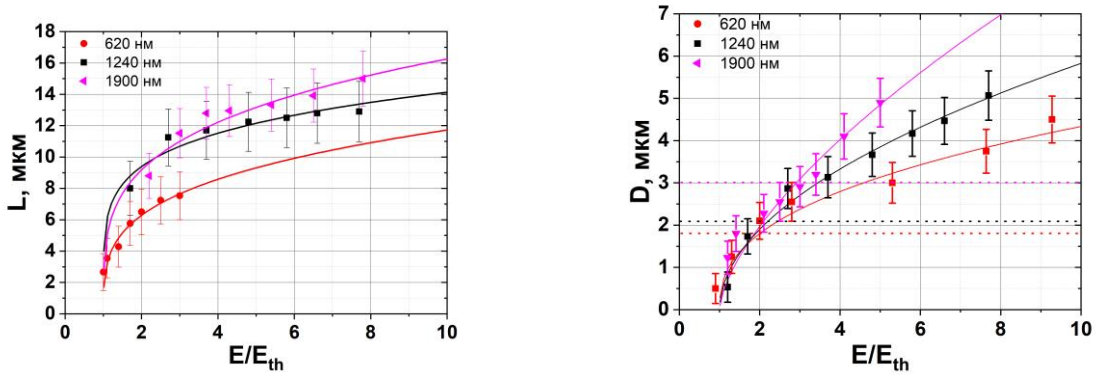


Рис. 96 Экспериментальные (б, г) и теоретические (а, в) профили ТГ. Длина волны лазерного излучения 1900 нм, энергия 2 мкДж (а, б), длина волны лазерного излучения 1240 нм, энергия 4 мкДж (в, г). Зависимость профиля ТГ от продольного размера области плазмообразования для концентрации электронов $3{\times}10^{18}$ см$^{-3}$ (д).

Картирование созданной микроплазмы по сигналу ТГ по двум пространственным координатам обеспечивает возможность получения размеров микроплазмы для концентрации электронов порядка $10^{-5} \times n_{cr}$ с микронным пространственным разрешением. При меньших значениях электронной концентрации результаты расчетов того же порядка, что и ошибки численных расчетов [328]. Для уточнения границ применимости такого подхода было учтено поглощение пробного лазерного импульса плазмой и добавлен в уравнение экспоненциально затухающий множитель, обусловленный потерями. Однако моделирование показало, что поглощением можно пренебречь, пока оно не достигнет 50%. Такая величина поглощения достигается при энергиях лазерного излучения практически на порядок выше порога плазмообразования. Стоит отметить, что картирование ТГ является нелинейным методом, и интенсивность ТГ может быть увеличена при использовании более высокоэнергетичного пробного излучения, что позволяет регистрировать меньшие значения концентрации электронов плазмы.

Описанным методом были измерены и восстановлены размеры микроплазмы для различных энергий воздействующего лазерного излучения и длин волн. Эти зависимости показаны на ***Рис. 97***. Как видно, в области энергий лазерного излучения $(1-2)\, E_{th}$ размеры

области плазмообразования меньше размеров перетяжки лазерного излучения, что явно указывает на нелинейный характер процесса генерации плазмы. При умеренных интенсивностях многофотонное поглощение отвечает за генерацию плазмы, поперечное сечение которой пропорционально $I(r,z)^N$, где N — порядок многофотонности. Поэтому только наиболее интенсивная часть лазерного пучка может генерировать свободные электроны. Наоборот, при значениях $E/E_{th} > 5$ область плазмообразования намного больше перетяжки лазерного пучка, и, следовательно, поглощение энергии в объеме среды не ограничивается фокальной областью. Таким образом, эти измерения дают уникальные знания об области энерговклада, которые еще не были доступны никаким другим методам.



а) *б)*

Рис. 97 (а) Длина и (б) диаметр микроплазмы, восстановленные из профилей ТГ, в зависимости от нормированной на пороговое значение энергии лазерного излучения с разными длинами волн.

4.4.4. Диагностика области лазерного воздействия с использованием методики трехмерной визуализации распространения лазерного импульса

Альтернативным подходом к определению размеров области взаимодействия является использование трехмерной визуализации распространения лазерного импульса.

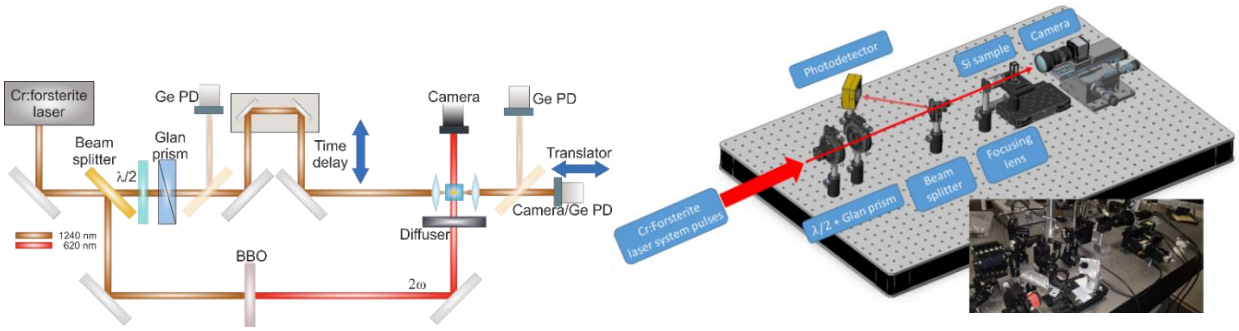


Рис. 98 Экспериментальная установка для теневой фотографии (а) и трехмерной визуализации распространения сверхкороткого лазерного импульса (б).

В рамках этого метода поперечный профиль плотности энергии *F(x, y)* измеряется в каждом сечении по *z* (см. ***Рис. 98 (б)***, ***Рис. 99***) вдоль направления распространения лазерного излучения. Для этого с помощью ПЗС-камеры регистрируется поперечный профиль плотности энергии лазерного пучка *F(x,y)* для различных значений z, т.е. камера перемещается вдоль оптической оси и фотографирует двумерные распределения плотности энергии лазерного

излучения, тем самым восстанавливая полный трехмерный профиль F (x, y, z). Далее по тексту будем рассматривать только профили $F(y,z)$ (например, ***Рис. 100***) в силу радиальной симметрии задачи. При перемещении камеры вдоль оптической оси регистрируются распределения $F(x,z)$ и $F(y,z)$. Диаметр фокального пятна 3,1±1,4 мкм, наблюдаемый в эксперименте, лишь немного больше, чем теоретически оцененный для фокусировки гауссова пучка (2,9 мкм).

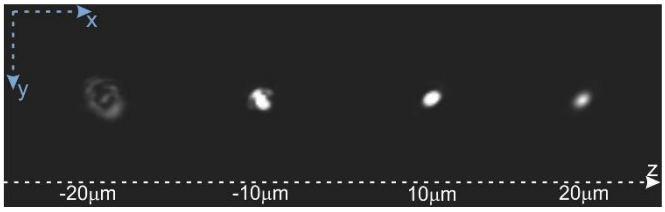


Рис. 99 Профили плотности энергии F(x,y) для разных z. z=0 отвечает фокальной плоскости в случае острой фокусировки (NA=0,5).

Первоначально плотность энергии лазерного излучения измеряется в относительных единицах, для получения абсолютных величин следует применять специальную калибровку. Процесс усложнен нелинейным откликом ПЗС на основе кремния на длине волны 1240 нм, поэтому была выполнена следующая процедура. Коллимированное лазерное излучение на длине волны 1,24 мкм с известным значением энергии направлялось на ПЗС-камеру. Из-за нелинейного отклика камеры плотность энергии, усредненная по области одного пикселя, связана с яркостью пикселя как:

$$F_{i,j} = c \cdot (I_{ij})^{\alpha}, \tag{52}$$

где F_{ij} - плотность энергии через область с координатами пикселя i, j, I_{ij} - яркость пикселя, c и α - калибровочные коэффициенты. Таким образом, полная энергия импульса E выражается как:

$$E = c \sum_i \sum_j (I_{ij})^{\alpha}, \tag{53}$$

где суммирование производится по всем пикселям изображения. Измеряя зависимость суммы $c \sum_i \sum_j (I_{ij})^{\alpha}$ от E, появляется возможность путём аппроксимации определить значение калибровочных коэффициентов c и α, которые переводят относительную величину яркости пикселя I_{ij} в абсолютные значения плотности энергии F_{ij}.

Пример наблюдаемых профилей *F(y,z)* представлен на ***Рис. 100 а-в, е***. Он имеет форму «перевернутого Y». В воздухе угол схождения и размеры фокального пятна могут быть легко извлечены с помощью этого метода (см. ***Рис. 100 (е)***), однако в Si энергия лазерного импульса делокализована из-за более чем на 5 порядков большей нелинейности n_2 и, как следствие, более выраженных нелинейных эффектов (двухфотонное поглощение, плазменная дефокусировка) (см. ***Рис. 100 (б)***). Полученные профили показывают, что, хотя большая часть энергии, дошедшей до фокальной плоскости, концентрируется в перетяжке, взаимодействие лазерного излучения с объемом Si становится менее локализованным, и при росте энергии лазерного импульса размеры области взаимодействия увеличиваются. Зависимость размеров области взаимодействия от энергии лазерного импульса представлена на ***Рис. 100 (г,д)***. Исходный быстрый рост диаметра области взаимодействия может быть связан с двухфотонной ионизацией, когда увеличение

интенсивности приводит к росту размеров микроплазмы. Кроме того, на ***Рис. 100 (б)*** и ***Рис. 100 (г, ж)*** можно выделить две области при энергиях лазерного излучения выше порога плазмообразования. Первая соответствует быстрому увеличению как поглощенной энергии, так и размера области взаимодействия (см. ***Рис. 100 (д, е)***). Вторая соответствует более плавному изменению размеров и поглощенной энергии. Переход между этими режимами происходит при энергии около 250 нДж. Природа этого перехода тесно связана с делокализацией лазерного импульса, возникающей в результате конкуренции между различными нелинейными процессами (самофокусировка на керровской нелинейности, дефокусировка на сформированной плазме и т. д.) в объеме Si. Отметим, что критическая мощность самофокусировки в кремнии для излучения на длине волны 1240 нм составляет около 0,02 МВт и, следовательно, пиковая мощность лазерного излучения на входе в среду превышает это значение в несколько десятков раз. Профили плотности энергии показывают, что при высоких энергиях первоначально локализованная энергия распространяется за пределы фокального пятна.

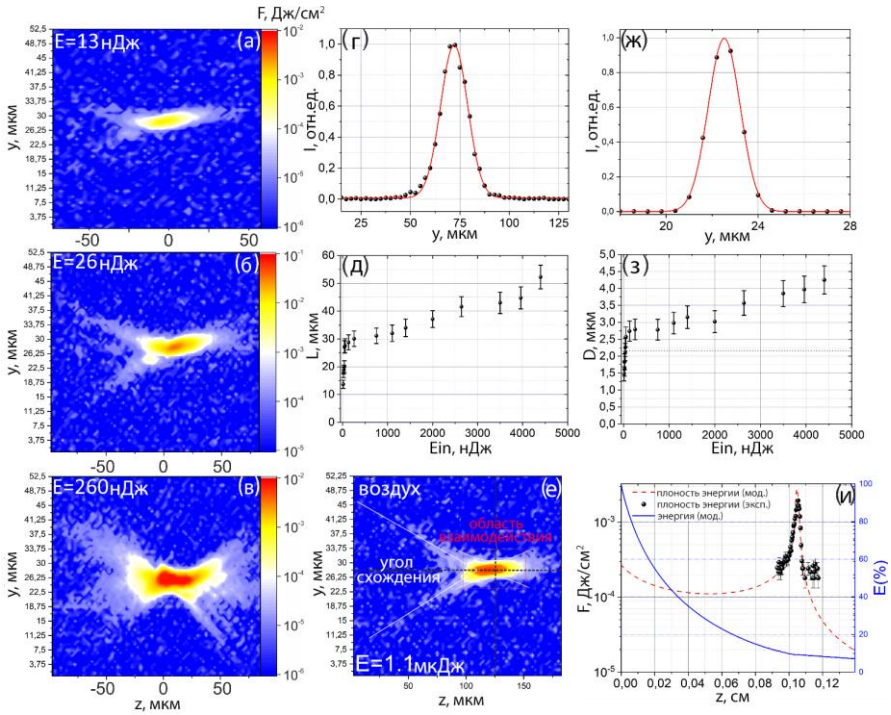


Рис. 100 Профили плотности энергии лазерного излучения в кремнии (а-в) и воздухе (е) в логарифмическом масштабе. Пунктиром на (е) показаны сечения для (г) и (ж) и теоретический размер перетяжки. Зависимость длины (д) и диаметра (з) области взаимодействия от энергии лазерного импульса в Si. (и) Экспериментальная (точки) и теоретическая (пунктир) зависимость плотности энергии лазерного импульса от z и зависимость энергии лазерного импульса (непрерывная линия) от z.

4.4.5. Диагностика микроплазмы и объемного энерговклада с помощью оптико-акустического метода

Другой методикой исследования взаимодействия лазерного излучения с веществом в режиме плазмообразования является регистрация акустического сигнала, формируемого в процессе лазерного воздействия на среду [329]. Нагрев среды в результате лазерного воздействия [330] приводит к формированию ударной волны [331], которая при распространении в среде затухает до акустической волны [332]. Пространственное

распределение избыточного давления в среде, формирующееся в результате термализации поглощенной энергии фемтосекундного лазерного импульса, зависит от распределения концентрации электронов и энерговклада в среду, поэтому регистрация акустического сигнала может быть использована как для диагностики лазерно-индуцированной плазмы, так и напрямую энерговклада. Преимущество акустической диагностики в сравнении с другими методами заключается в возможности проводить акустическую диагностику для сред в различных агрегатных состояниях (твердотельные среды [333], жидкости [334], газы [334]), причем как для случая диагностики лазерного воздействия на объем среды [335], так и на ее поверхность [336]. Акустическая диагностика может выступать в качестве индикатора изменения коэффициента поглощения среды [337,338], использоваться для изучения лазерно-индуцированного процесса кавитации [339], а также применяться в качестве обратной связи в процессах лазерной микрообработки [340]. Помимо этого, реализация метода акустической томографии [341] позволяет восстановить двухмерное распределение избыточного давления в объеме среды при лазерном воздействии в режиме плазмообразования. Получаемая акустическая томограмма может быть пересчитана в двухмерное распределение энерговклада, что было сделано в рамках диссертационного исследования. Такая акустическая диагностика режима распространения фемтосекундного лазерного излучения в объеме среды в условиях плазмообразования обладает двумерным пространственным разрешением и не дает полной трехмерной информации о распределении концентрации электронов плазмы и энерговклада в объем среды. Для достижения трехмерного разрешения методика акустической томографии и оптическая методика теневой фотографии могут быть объединены в единую гибридную технику оптико-акустической томографии [342], позволяющую измерить трехмерные распределения плотности электронов плазмы и энерговклада в объем среды, что выделяет данный метод на фоне оптических методик, рассмотренных выше (генерация третьей гармоники, теневая фотография и др.). Особенностью метода акустической томографии является отсутствие временного разрешения, так как регистрируемая акустическая волна формируется после процесса рекомбинации плазмы. Поэтому разработанная методика подходит для в тех случаев, когда временное разрешение на масштабах длительности лазерного импульса не требуется.

4.4.5.1. Основы метода

Распределение концентрации электронов плазмы $n_e(x, y, z)$ является одним из ключевых параметров, описывающих лазерно-индуцированную плазму. Плотность электронов плазмы, образующейся при лазерном воздействии, определяет поглощение зондирующего импульса в технике теневой фотографии и формирование избыточного давления в технике акустической томографии, что позволяет связать друг с другом величины, описывающие лазерно-индуцированную плазму, поглощение зондирующего импульса и волну давления. В качестве таких величин подразумеваются плотность электронов плазмы $n_e(x, y, z)$, доля поглощенной энергии зондирующего импульса $A(x, y, z)$ и волна избыточного давления $p(t, x, y, z)$. Алгоритм

метода заключается в следующем. На первом шаге в эксперименте регистрируются теневая фотография плазмы, акустическая томограмма плазмы и энергия лазерного импульса, поглощенная в области плазмообразования. На втором шаге полученные теневая фотография и акустическая томограмма пересчитываются в трехмерное распределение плотности поглощенной энергии зондирующего импульса $A(x, y, z)$ на основе физического смысла данных сигналов. На третьем шаге полученное распределение $A(x, y, z)$ пересчитывается в трехмерное распределение концентрации электронов плазмы $n_e(x, y, z)$ на основе теоретического описания распространения лазерного импульса в плазме. И на финальном четвертом шаге данное распределение $n_e(x, y, z)$ пересчитывается в трехмерное распределение энерговклада $\epsilon(x, y, z)$ на основе калибровки, получаемой за счет экспериментально измеренной энергии импульса накачки, поглощенной в области плазмообразования.

Трехмерное пространственное разрешение достигается в данном методе за счет совместного использования техники теневой фотографии, дающей разрешение в плоскости (x, z), и метода акустической томографии, дающего разрешение в плоскости (x, y) (***Рис. 101***).

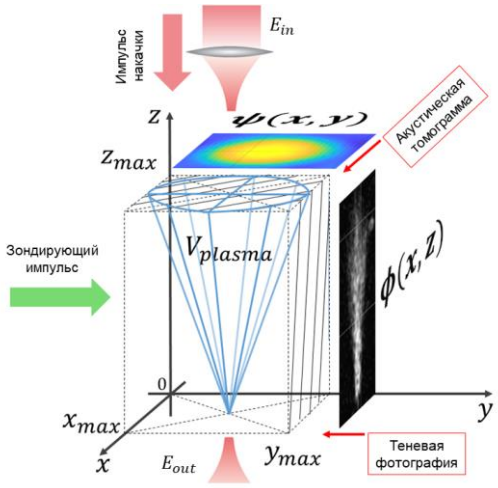


Рис. 101 Геометрия метода трехмерной оптоакустической томографии. Синяя область в центре обозначает область плазмообразования с объемом V_{plasma}. Импульс накачки, генерирующий плазму, распространяется против оси z. Зондирующий импульс распространяется вдоль оси y. x_{max}, y_{max}, z_{max} - граничные точки области плазмообразования.

Подробное обсуждение формул, используемых в рамках описанного выше алгоритма, присутствует в [342]. Таким образом, совмещение метода акустической томографии и техники теневой фотографии позволяет измерить трехмерные распределения концентрации электронов плазмы и энерговклада при воздействии лазерного излучения на объем среды.

4.4.5.2. Результаты и физика полученных распределений

Апробация метода гибридной оптико-акустической томографии была произведена на примере воздействия фемтосекундного излучения хром-форстеритовой лазерной системы на объем дистиллированной воды. Используемая в эксперименте энергия импульса составляла $E_{in} = 325$ мкДж, что соответствовало отношению $P/P_{cr} \approx 300$, где $P_{cr} = 6{,}4$ МВт - критическая мощность самофокусировки лазерного импульса с центральной длиной волны $\lambda = 1240$ нм, для фокусировки импульса накачки в объем воды использовалась линза с $NA = 0{,}5$. Измерение энергии импульса накачки, поглощенной в области плазмообразования, было

произведено с использованием калиброванного фотодетектора с учетом поправки на линейное поглощение (~1 см$^{-1}$) излучения в объеме воды.

Полученные в эксперименте теневая фотография и акустическая томограмма представлены на ***Рис. 102***. Величина энергии импульса накачки, поглощенной в области плазмообразования, составила $E_{abs} = 285 \pm 3$ мкДж.

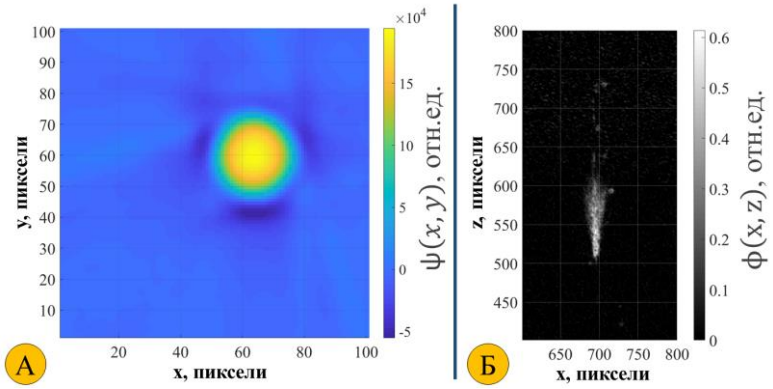
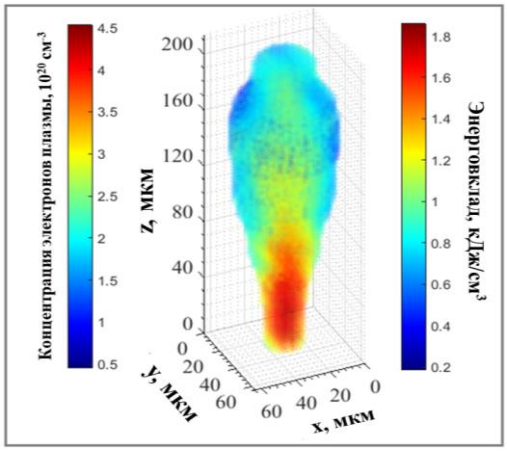
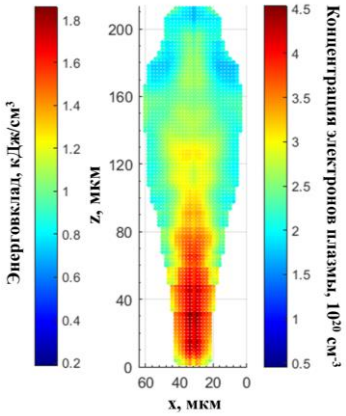


Рис. 102 (а) Акустическая томограмма области плазмообразования. Отрицательные значения соответствуют волне разрежения и при расчетах распределений не использовались. (б) Теневая фотография лазерно-индуцированной плазмы. Как видно, плазма имеет V-образную форму, что характерно для случая остросфокусированного фемтосекундного лазерного импульса с большой ($P/P_{cr} > 100$) пиковой мощностью [47].

Полученные на основе данных сигналов распределения представлены на ***Рис. 103 (а)*** в виде облака полупрозрачных точек. Погрешность в определении концентрации электронов плазмы и энерговклада в рамках данной методики составляет 3×10^{18} см$^{-3}$ и 14 Дж/см^3 соответственно. Разрешающая способность данного метода определяется разрешающей способностью метода акустической томографии и техники теневой фотографии, что дает поперечное разрешение на уровне 10 мкм и продольное разрешение на уровне 2 мкм. Полученное значение средней энергии электронов плазмы составило $E_{avg} = 25{,}7 \pm 2{,}3$ эВ, что в совокупности с эффективным потенциалом ионизации молекулы воды (9,5 эВ), дает значение средней кинетической энергии электронов 16,2 эВ.



(а)



(б)

Рис. 103 (а) Трехмерные распределения электронной концентрации плазмы (цветовая шкала слева) и энерговклада (шкала справа). Направление распространения импульсов накачки и зондирования сверху вниз (против оси z). (б) Центральное сечение распределения концентрации электронов плазмы (y =31 мкм).

Полученные трехмерные распределения дают качественное представление о режиме распространения лазерного импульса в области плазмообразования, а также позволяют количественно охарактеризовать лазерное воздействие на среду с точки зрения энерговклада. На ***Рис. 103 (б)*** представлено центральное сечение полученного трехмерного распределения электронной концентрации.

Данное распределение позволяет сделать вывод о том, что наибольшая концентрация электронов плазмы достигается в области $z \sim 0 - 40$ мкм. Область плазмообразования в диапазоне $z = 200 - 180$ мкм расширяется по мере того, как импульс накачки распространяется в среде. Данное расширение является следствием растущей интенсивности на периферии импульса по мере его приближения к фокусу линзы. Затем в области $z = 180 - 110$ мкм лазерный импульс имеет практически неизменный поперечный размер, однако претерпевает перераспределение энергии в поперечной плоскости, что может являться следствием квазифиламентационного характера распространения в данной области. Далее, в диапазоне $z = 55 - 0$ мкм импульс вновь претерпевает фокусировку, что свидетельствует о нарушении динамического баланса между дифракционной расходимостью лазерного импульса и его линейной и нелинейной фокусировкой. В данной области генерируется наиболее плотная плазма, что свидетельствует о достижении наибольшей пространственной плотности энергии в данной области. Как следствие, импульс теряет значительную часть энергии в данной области и далее после координаты $z = 0$ его энергии уже недостаточно для формирования плазмы.

Трехмерное распределение энерговклада (***Рис. 103 (б)***) количественно характеризует интенсивность лазерного воздействия на объем среды. Данное распределение показывает, что наибольшая плотность энергии лазерного импульса достигается в области с наибольшей концентрацией электронов плазмы $z = 55 - 0$ мкм. Знание трехмерного распределения энерговклада имеет решающее значение с точки зрения управляемого процесса формирования микромодификации. Так, в случае твердотельных сред, в которых возможно образование остаточных микромодификаций под воздействием лазерного излучения, трехмерное распределение энерговклада позволило бы, во-первых, определить область с наибольшим энерговкладом, и, во-вторых, в случае порогового по энерговкладу образования модификации вследствие старта фазового перехода [343], сделать вывод о размере и морфологии формируемой микромодификации.

Таким образом, разработанная методика трехмерной оптоакустической томографии лазерно-индуцированной плазмы, формирующейся при воздействии высокоинтенсивного ($I \sim 10^{13} - 10^{14}$ Вт/см^2) лазерного излучения на объем конденсированной среды, позволяет измерить трехмерное распределение электронной концентрации лазерно-индуцированной плазмы и энерговклада, что не позволяют сделать другие известные на сегодняшний день

экспериментальные методы. При использовании массива пьзодетекторов рассматриваемая методика трехмерной оптоакустической томографии может быть использована и в случае твердотельных сред в одноимпульсном режиме, где проблема измерения трехмерного распределения энерговклада стоит особенно остро с точки зрения приложений в области лазерной микромодификации объема прозрачных сред [344].

4.4.6. Определение порогов плазмообразования и поглощенной энергии при воздействии высокоинтенсивного лазерного излучения на объем конденсированных сред

Одним из ключевых параметров, определяющих объемный энерговклад в диэлектрик при воздействии высокоинтенсивного (более 1 ТВт/см^2) лазерного импульса, является порог плазмообразования: при превышении энергии лазерного импульса над порогом вещество ионизируется, возникает микроплазма, превышение концентрации которой над критической приводит в большинстве случаев к необратимым изменениям и модификациям в конденсированных средах. Для определения порога использовалось две методики: первая основана на регистрации нелинейного пропускания образца при поглощении энергии лазерного импульса в плазме, вторая – на генерации третьей гармоники на лазерно-индуцированной плазме. Излучение требуемой длины волны фокусируется в объем образца, автоматически перемещаемого с помощью трехкоординатной подвижки (движение необходимо для того, чтобы избежать взаимодействия лазерного импульса с уже поврежденным материалом - одноимпульсный режим взаимодействия с мишенью), после чего оно коллимируется и направляется на детектор. Одновременно с помощью соответствующих детекторов регистрируется энергия лазерного излучения, падающая и прошедшая через образец. Вращением полуволновой пластины при фиксированном положении призмы Глана осуществляется плавное изменение падающей на образец энергии.

На ***Рис. 126*** приведены графики энергии лазерного излучения с длиной волны 1240 нм, прошедшей через образец, и сигнала третьей гармоники (ТГ) в зависимости от падающей энергии лазерного излучения в плавленом кварце. Процессы полевой ионизации непороговые, поэтому под пороговой энергией плазмообразования ($E_{порог}$) подразумевается энергия падающего излучения, при которой регистрировалось наличие микроплазмы. Данная величина определялась по резкому росту сигнала ТГ или изменению поглощения в объеме образца. Линейная зависимость выходной энергии на ***Рис. 126*** при малых энергиях (меньших пороговых) падающего излучения связана с отсутствием достаточной концентрации электронов плазмы для того, чтобы стало заметно поглощение падающего излучения, а также для того, чтобы пошел эффективный процесс генерации третьей гармоники (ГТГ). Однако при превышении пороговой энергии начинает регистрироваться нелинейное поглощение и генерируется несинхронная ТГ. Как свидетельствует ***Рис. 126***, по сигналу несинхронной ТГ присутствие плазмы регистрируется при меньших энергиях падающего лазерного излучения, чем при регистрации нелинейного

пропускания. Это свидетельствует о большей чувствительности процесса ГТГ к возникновению в перетяжке лазерного излучения микроплазмы.

Для определения значения энерговклада в области взаимодействия лазерного излучения с веществом необходимо помимо размера области взаимодействия определить величину поглощенной энергии лазерного излучения. Одним из наиболее надежных методов измерения поглощенной энергии является измерение нелинейного пропускания. В отсутствие лазерно-индуцированной плазмы поглощение отсутствует, и выходная энергия пропорциональна входной энергии. Линейная зависимость E_{out} от E_{in} нарушается после преодоления порога плазмообразования (см. ***Рис. 126***). Значение поглощенной энергии определяется как разница между E_{out} и E_{in}. Поглощение до 90 % может быть достигнуто при высоких энергиях и жестких условиях фокусировки [48]. В этих условиях поглощение насыщается, что ограничивает энерговклад.

§4.5. Диагностика остаточных лазерно-индуцированных микромодификаций в объеме конденсированных сред

В рамках диссертационного исследования для диагностики остаточных лазерно-индуцированных микромодификаций в объеме конденсированных сред использовалась методика генерации третьей гармоники. В проведенных в диссертации экспериментах генерация третьей гармоники (ГТГ) происходила в несинхронном режиме. Расчеты эффективности производились в рамках теоретической модели для ГТГ в сфокусированных гауссовых пучках, описанной в [57,328] и параграфе ***4.4.3***. На ***Рис. 104*** приведены результаты экспериментов, проведенных с использованием излучения хром-форстеритового лазера. Энергия для сканирования составила $E = 0{,}2$ мкДж. Для обеспечения быстрого сканирования лазерный пучок заводился на фокусирующую линзу с помощью сканаторного зеркала. Использование сканаторных зеркал позволяет потенциально достичь скорости сканирования до 30 кГц, что позволяет использовать их для диагностики создаваемых лазерным импульсом микромодификаций в реальном времени. Перемещение сканаторных зеркал производилось в диапазоне ±1°, что не оказывает существенного искажения волнового фронта даже после фокусировки лазерного излучения линзой (объективом) с высокой числовой апертурой, что было проверено путем измерения порога плазмообразования в воздухе. Сгенерированное на микронеоднородности излучение третьей гармоники коллимировалось и дополнительно фокусировалось на чувствительную область ФЭУ, чтобы избежать апертурных эффектов. В экспериментах лазерный пучок перемещался с частотой 1кГц, лазерные импульсы следовали с частотой 10 Гц. Сканирование области микронеоднородности проводилось в области 100x100 точек, пространственное разрешение составляло порядка 200 нм на точку. Примеры измеренных двумерных «тепловых» карт приведены на ***Рис. 104 (а, в)***. Как видно, в зависимости от размера модификации профили сигнала ТГ существенно отличаются: на ***Рис. 104 (а)*** в центре «тепловой

карты» находится «провал» сигнала ТГ, который окружен «кольцом». На ***Рис. 104 (в)*** вместо этого наблюдается гауссово подобный пик.

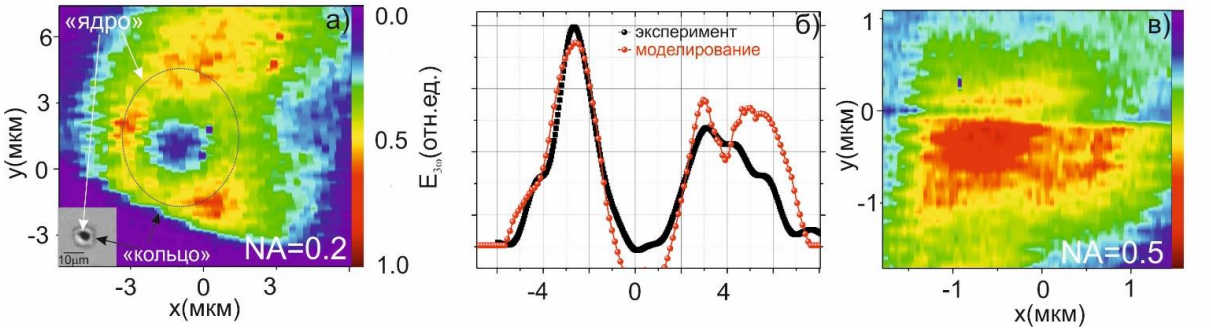
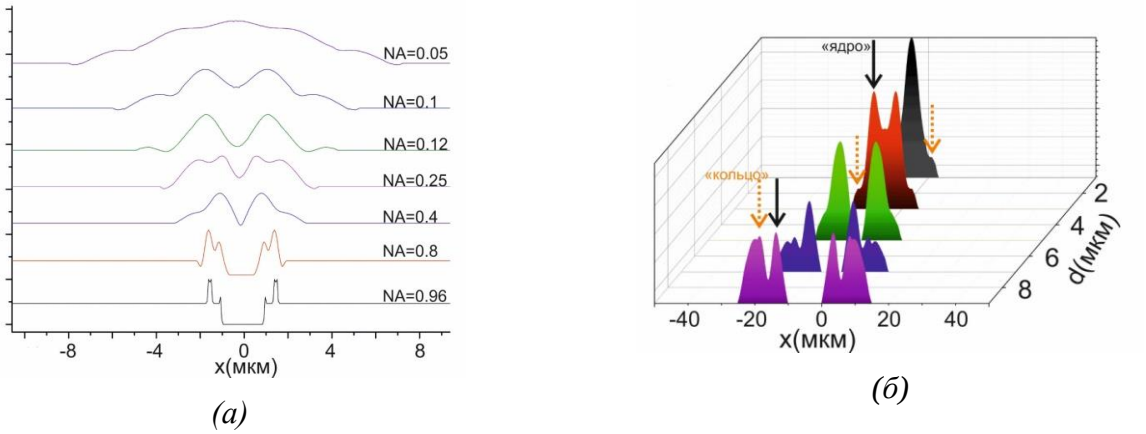


Рис. 104 (а) «Тепловая карта» сигнала ТГ, генерируемого на микромодификации в объеме плавленого кварца (диаметр модификации 2,5 мкм), на вставке показана фотография микромодификации, зарегистрированная с помощью оптического микроскопа. Фокусировка излучения для сканирования области производилась объективом с NA=0,2. (б) Экспериментальный и теоретический профили сигнала ТГ (вдоль оси x из (а)). (в) «Тепловая карта» сигнала ТГ, генерируемого на микромодификации в объеме плавленого кварца (диаметр модификации 1 мкм). Фокусировка излучения для сканирования производилась линзой с NA=0,5.

Для того, чтобы лучше понять границы применимости предложенной методики восстановления морфологии и размеров микромодификаций, было проведено численное моделирование процесса ГТГ. Характерная структура объемной микромодификации представляет собой «ядро», окруженное «кольцом», которые формируются в результате прохождения ударной волны [44] (см. ***Рис. 104 (а)***). В «ядре» плотность материала понижена, а в «кольце» - повышена. В численном расчете использовался ступенчатый профиль: «кольцо» моделировалась возрастанием $\chi^{(3)}$ в 2 раза, а «ядро» уменьшением в 5 раз. Параметры выбирались исходя из согласия расчетных и экспериментальных данных. Толщина «кольца» задавалась равной 1 мкм, а диаметр «ядра» изменялся для исследования влияния его размеров.



(а) *(б)*

Рис. 105 (а) Профили сигнала ТГ, генерируемой на микромодификации, диаметром 2 мкм, «кольцо» имеет толщину 1 мкм и находится на расстоянии 1,5 мкм от центра. Числовая апертура линзы указана на рисунке. Все графики нормированы на максимум. (б) Профили сигналов ТГ, генерируемой на микромодификации с разным диаметром d. Числовая апертура линзы 0,5.

На ***Рис. 105 (а)*** показано, как меняется характерный профиль сигнала ТГ при использовании разных фокусировок. При очень острой ($NA \cong 1$) профиль ТГ практически полностью повторяет профиль микромодификации за исключением небольших пиков на границе - скачков нелинейной восприимчивости. С уменьшением остроты фокусировки ширина этих

пиков и их амплитуда растет, «размывая» реальный профиль микромодификации. В результате при диаметре микромодификации в 2 мкм с использованием линзы с числовой апертурой 0,4 внешнее «кольцо» уже выражено менее ярко. Провал в сигнале ТГ пропадает при $NA \cong 0{,}07$, вырождаясь в пик. Это вызвано тем, что изменение $\chi^{(3)}$ на обеих границах происходит на пространственном масштабе, не превышающем длину перетяжки лазерного излучения, в результате чего двугорбый сигнал третьей гармоники вырождается в уединенный пик.

В следующей серии моделирования варьировался размер модификации при фиксированной числовой апертуре линзы $NA = 0{,}5$.

Как видно из ***Рис. 105 (б)*** «кольцо» и «ядро» хорошо просматриваются в профиле ТГ. Однако при относительно малых микромодификациях «кольцо» выражено достаточно слабо, а сигнал представляет собой один пик, чем и вызван вид ***Рис. 104 (в)***. Численное моделирование показывает, что с используемыми в экспериментах линзами можно разрешать микромодификации размером меньше 1 мкм. Однако в этом случае придется проводить дополнительную обработку полученного профиля сигнала ТГ.

§4.6. Исследование влияния условий фокусировки и параметров лазерного излучения на характеристики формируемой микроплазмы в объеме конденсированных сред

4.6.1. Влияние условий фокусировки на режимы распространения лазерного излучения в конденсированной среде

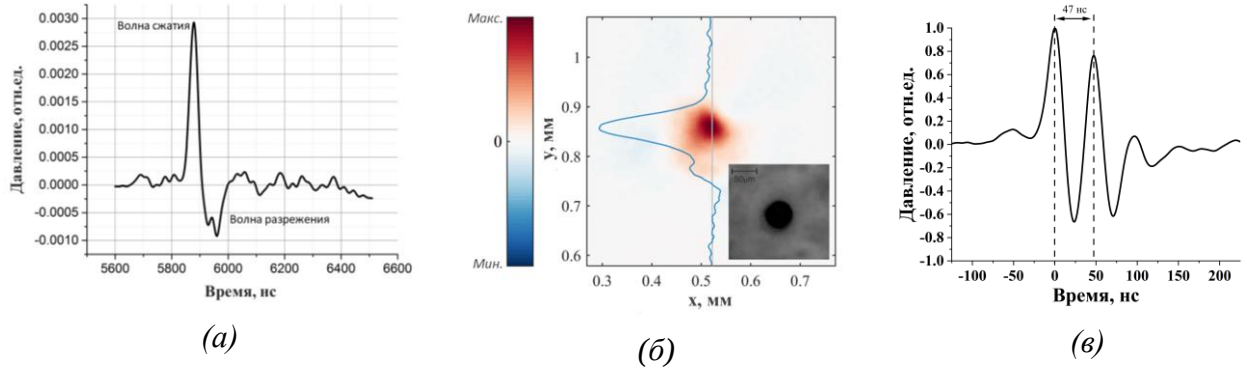
На современном этапе развития технологий большой практический интерес представляет исследование процесса фемтосекундной филаментации в конденсированных средах, таких как вода, различные диэлектрики и полупроводники. Он обусловлен в первую очередь возможностью создания локальных микромодификаций в объеме этих сред в процессе филаментации, что открывает уникальные возможности в области офтальмологии, полупроводниковой электроники и оптоэлектронной индустрии. Несомненно, для практического применения процесс образования микромодификаций должен быть полностью контролируемым. Для этого необходимо иметь информацию о связи характеристик лазерного импульса (энергия, длительность), условий фокусировки (числовая апертура NA) и параметров генерируемого в среде филамента. К таким параметрам относятся энерговклад в среду, область локализации энергии и плазмы, концентрация плазмы, а также амплитуда ударной волны, которая может вызывать разрушения среды в дальней зоне.

В рамках диссертационной работы экспериментально реализован и теоретически обоснован метод комплексного исследования явления фемтосекундной филаментации в конденсированной среде, позволяющий провести всестороннюю диагностику как энерговклада во всём объеме филамента и амплитуды генерируемой акустической волны, так и плазменного канала филамента. Реализованный метод основан на комбинации двух техник – впервые реализованной оптоакустической (ОА) томографии и теневой фотографии. Также проведено экспериментальное

исследование акустических сигналов в разных режимах филаментации и рассмотрена их зависимость от энергии генерирующего лазерного импульса и условий фокусировки.

4.6.1.1. Акустическая диагностика одиночного филамента в воде

На ***Рис. 106 (а)*** представлен вид акустического сигнала, генерируемый одиночным филаментом в воде. Сигнал состоит из волны сжатия и следующей за ней волны разрежения. Регистрация данных сигналов при расположении пьезодетектора под разными азимутальными углами на окружности с центром на оси филамента позволяет восстановить исходное распределение избыточного давления в среде на основе метода обратных проекций [341,345], таким образом реализуя двумерную акустическую томографию. Поскольку избыточное давление в среде возникает за счет передачи энергии лазерного импульса объему среды, то получаемая томограмма представляет собой двумерное распределение энерговклада в объем среды. На ***Рис. 106 (б)*** представлена двумерная акустическая томограмма энерговклада при использовании фокусировки линзой с $NA = 0{,}1$ и энергии генерирующего импульса $E = 0{,}03$ мДж (P/P_{cr} =27,5) в режиме одиночной филаментации.



(а) *(б)* *(в)*

Рис. 106 (а) Вид акустического сигнала от одиночного филамента в воде. Сигнал состоит из волны сжатия и следующей за ней волны разрежения. Амплитуда сигнала определяется величиной энерговклада.(б) Томограмма одиночного филамента в воде, представляющая собой поперечное распределение энерговклада, усредненное вдоль оси распространения лазерного излучения. Отрицательные значения являются артефактами обработки, возникающими из-за наличия волны разрежения в акустическом сигнале. Вставка: фотография затемненной фотобумаги. (в) Вид акустического сигнала от двух филаментов.

Как свидетельствует центральное сечение томограммы на ***Рис. 106 (б)***, область энерговклада представляет собой область с высокой интенсивностью в центре, окруженную менее интенсивным гало. Первая область представляет собой распределение энерговклада в области плазменного ядра филамента, в то время как гало – это распределение энерговклада за счет линейного поглощения в области резервуара энергии.

Для оценки разрешающей способности данного метода акустической томографии было проведено моделирование акустических сигналов от гауссовых источников с радиусами от 5 мкм до 70 мкм (по уровню $1/e$). Было обнаружено, что акустическое затухание добавляет 5 – 10 мкм к размеру получаемого распределения, а интегрирование акустического сигнала по плоской поверхности детектора добавляет к размеру примерно 15 мкм. Поэтому суммарно к реальному размеру филамента добавляется примерно 20 мкм. Отсюда следует вывод, что пространственное разрешение метода составляет около 20 мкм.

Полученная томограмма (***Рис. 106 (б)***) позволила определить размеры плазменного канала и резервуара филамента. Так, размер плазменного канала составил 50 ± 20 мкм по уровню FWHM, размер резервуара составил 250 ± 20 мкм по уровню FWHM. Для подтверждения полученного результата размер плазменного канала был определен также путем затемнения фотобумаги в области плазменного канала филамента, который составил 58 ± 6 мкм, что совпадает в пределах погрешности с полученным в рамках акустической томографии значением.

4.6.1.2. Акустическая диагностика двух филаментов

Фокусировка в объем среды излучения с модуляцией поперечного распределения интенсивности, внесенной путем использования амплитудной или фазовой маски в тракт лазерного пучка, позволяет управлять распределением энерговклада в объем среды. Диагностика получаемого при этом распределения энерговклада может быть реализована путем регистрации генерируемого акустического сигнала. Так, на ***Рис. 106 (в)*** представлены акустические сигналы, полученные при фокусировке пучка фемтосекундного излучения, прошедшего через амплитудную маску с двумя круглыми отверстиями, расположенными симметрично относительно оси пучка, линзой с $NA = 0{,}1$, в результате чего происходило образование двух филаментов. Маска имела отверстия с диаметром 1 мм и расстоянием между ними 2 мм. Энергия исходного импульса равнялась $E = 2$ мДж. С учетом гауссова профиля исходного пучка энергия в каждом из двух пучков после маски может быть рассчитана по формуле:

$$E_t = \frac{E}{2}\,\mathrm{erf}\left(\frac{R}{r_{1/e^2}}\sqrt{2}\right)\cdot\left[\mathrm{erf}\left(\frac{d+R}{r_{\frac{1}{e^2}}}\sqrt{2}\right) - \mathrm{erf}\left(\frac{d-R}{r_{\frac{1}{e^2}}}\sqrt{2}\right)\right], \qquad (54)$$

где R – радиус отверстия, r_{1/e^2} – радиус исходного пучка по уровню $1/e^2$, d – расстояние между центрами отверстий, $\mathrm{erf}\,(\cdot)$ – функция ошибок. С учетом измеренного радиуса исходного пучка $r_{1/e^2} = 4{,}1$ мм, рассчитанная по данной формуле энергия импульса из каждого отверстия после прохождения маски составила 46 мкДж ($P/P_{cr} = 42$).

Как видно, сигнал представляет собой два пика практически одинаковой амплитуды, каждый из которых соответствует сигналу от одного филамента. Меньшая амплитуда более позднего пика объясняется интерференцией акустических волн от каждого из филаментов. По задержке между данными сигналами (с учетом скорости звука в воде при 16°C $c_0 = 1467$ м/с) можно вычислить расстояние между отдельными филаментами. Так, в соответствии с ***Рис. 106 (в)***, расстояние между филаментами в эксперименте составило 70 ± 10 мкм.

4.6.1.3. Оптоакустическая диагностика суперфиламентации

Для исследования процесса суперфиламентации использовалось лазерное излучение с энергией импульса $E = 0{,}3$ мДж, которое фокусировалось линзой с числовой апертурой $NA = 0{,}2$ что соответствовало $P/P_{cr} = 265$.Полученное в эксперименте оптическое изображение плазмы (***Рис. 107 (а)***) представляет собой двумерное распределение поглощенной энергии

лазерного излучения. Объекты круглой формы на полученных теневых фотографиях представляют собой кавитационные пузыри.

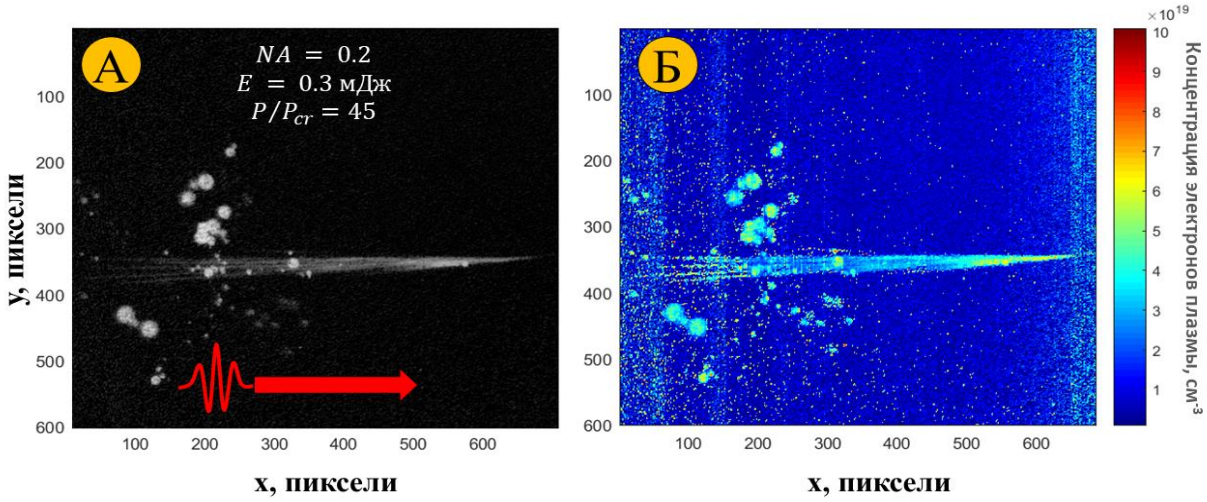


Рис. 107 Слева – оптическое изображение филамента (за вычетом фона), излучение падает слева направо. Справа – распределение концентрации электронов плазмы в филаменте. Оси X и Y обозначают номер пикселя.

Соответствующее распределение концентрации электронов плазмы представлено на ***Рис. 107 (б)***. Ненулевая концентрация в области фона изображения представляет собой артефакт обработки. На изображении можно различить две области: область множественной филаментации в начале филамента (100–400 пикселей по оси x) и область, в которой эти множественные филаменты сливаются в один (400-600 пикселей по оси x). Полученное распределение концентрации электронов плазмы было использовано для нормировки акустической томограммы филамента, представленной на ***Рис. 108 (а)***. Она представляет собой распределение энерговклада в объеме филамента, усредненное вдоль его оси и нормированное на максимальное значение.

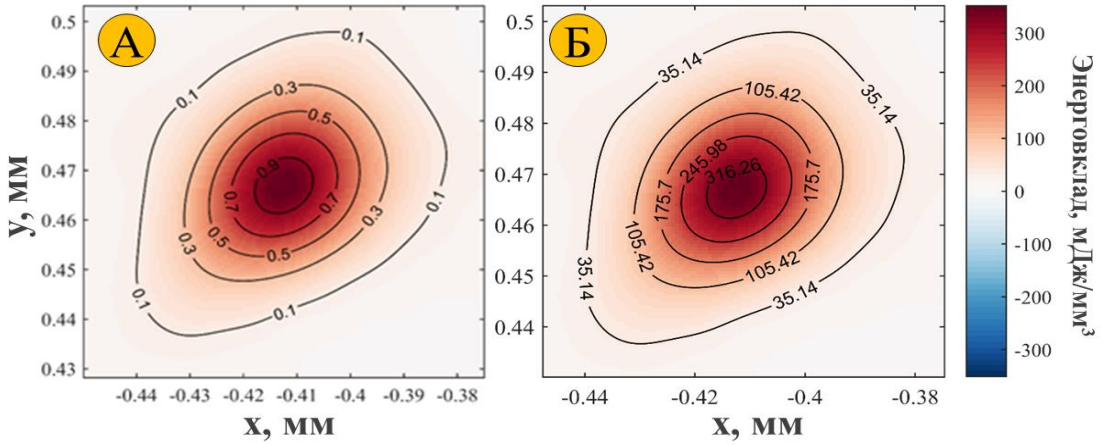


Рис. 108 Слева – ОА томограмма филамента. Справа – распределение энерговклада по объему филамента, усредненное по его оси.

Для получения распределения энерговклада в абсолютных единицах была произведена нормировка томограммы (***Рис. 108 (б)***) на основе полученного распределения концентрации электронов плазмы (***Рис. 107 (б)***). Для этого было определено радиальное распределение концентрации электронов в плазменном канале, усредненное вдоль оси филамента (см. ***Рис. 109***).

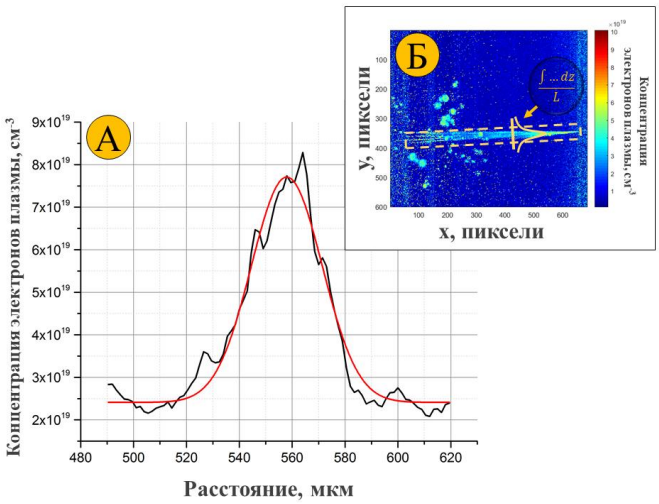


Рис. 109 (а) Усредненное радиальное распределение концентрации электронов, аппроксимированное гауссовой функцией ($n_e^{max} = (5{,}30 \pm 0{,}01) \times 10^{19}$ см$^{-3}$, $FWHM = 32$ мкм). (б) Схема усреднения.

Форма данного распределения повторяет форму центрального сечения акустического изображения в виде гауссова профиля. Учитывая, что в данной центральной области передача энергии происходит путем нагрева электронов плазмы, то нормировку акустической томограммы можно осуществить путем расчета энергии, переданной электронам плазмы от лазерного импульса. Вычислив энерговклад, соответствующий максимальному значению электронной концентрации в распределении (***Рис. 109 (а)***), можно перенормировать акустическое изображение. Для этого, считая, что вся вложенная энергия перешла в энергию ионизации среды, было вычислено значение объемной плотности поглощенной энергии:

$$\varepsilon_{max} = n_e \times \frac{9}{4}\widetilde{\Delta} = 330\,\frac{\text{мДж}}{\text{мм}^3}, \qquad (55)$$

где $\widetilde{\Delta} = \frac{2}{\pi}\Delta\frac{\sqrt{1+\gamma^2}}{\gamma} \times E\left(\frac{1}{\sqrt{1+\gamma^2}}\right) = 18{,}5$ эВ – эффективный потенциал ионизации, $\gamma = \frac{\omega}{e}\sqrt{\frac{c\varepsilon_0 m\Delta}{4I}} = 0{,}238$ – параметр Келдыша при интенсивности $I = 10^{14}\,\frac{\text{Вт}}{\text{см}^2}$, $n_e = 5{,}3 \times 10^{19}$ см$^{-3}$ – концентрация электронов плазмы, $\Delta = 6{,}5$ эВ – потенциал ионизации воды, $E(\cdot)$ - эллиптический интеграл, $\omega = 1{,}52 \times 10^{15}$ Гц – центральная частота лазерного импульса, e – заряд электрона, c – скорость света в вакууме, ε_0 – диэлектрическая проницаемость вакуума, m – масса электрона. Вычисленное значение соответствует максимальному значению интенсивности на томограмме. После нормировки шкалы на это значение было получено усредненное по оси филамента распределение энерговклада (***Рис. 108 (б)***).

Двумерное распределение плазмы, полученное методом теневой фотографии (***Рис. 107 (б)***), позволяет определить геометрические размеры формируемой плазмы. Для установления длины филамента и диаметра его плазменного канала были построены профили поглощения на основе оптических фотографий (***Рис. 110 (в)***). С использованием данных профилей было установлено, что диаметр плазменного канала в области слияния отдельных филаментов в один составляет 18 ± 2 мкм (FWHM), а длина филамента - 702 ± 2 мкм (по уровню $1/e$).

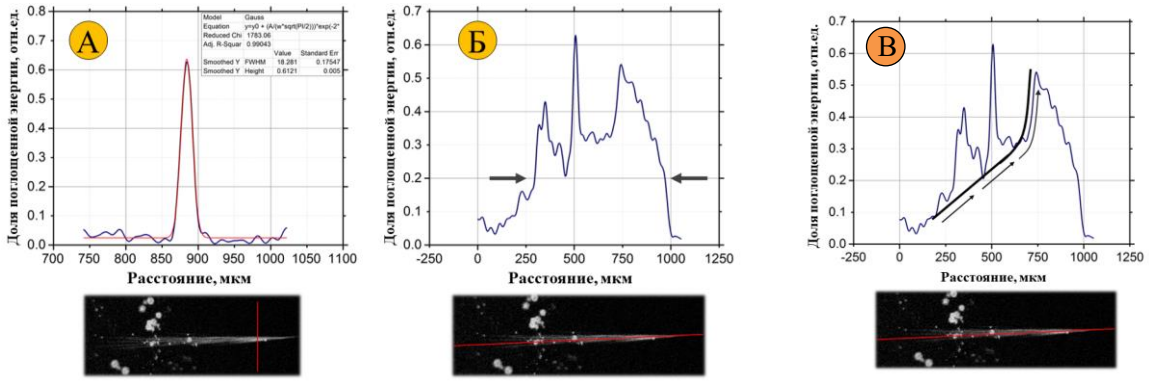


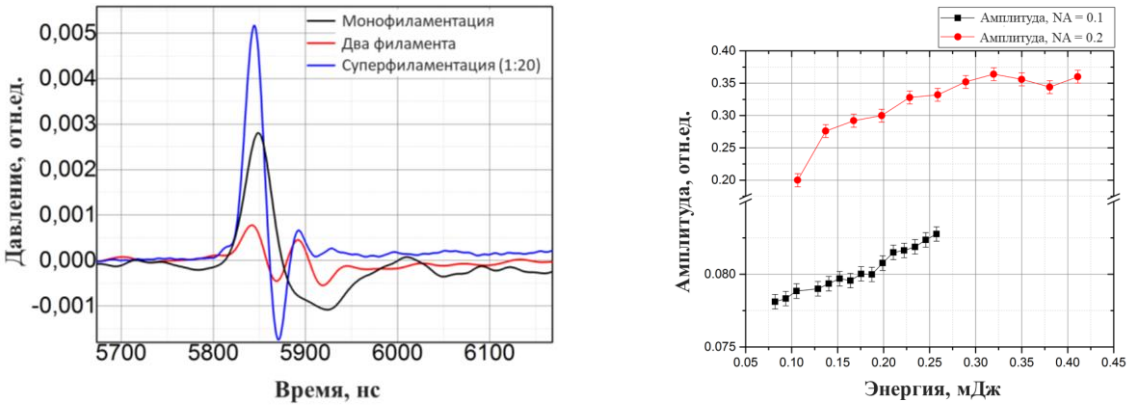
Рис. 110 (а) Поперечный профиль поглощения в объеме плазмы. (б) Продольный профиль поглощения в объеме плазмы. (в) Продольный профиль филамента. Резкие пики в зависимости – следствие наличия кавитационных пузырей на теневой фотографии. Если не учитывать их вклад в профиль поглощения, то он будет иметь вид нелинейной зависимости, обозначенной на графике черной кривой.

Продольный профиль поглощения в плазменном канале филамента (***Рис. 110 (в)***) позволяет определить режим филаментации. Данный профиль имеет вид нелинейной кривой, если отбросить резкие пики в профиле, которые являются следствием наличия на фотографии кавитационных пузырей. Так как энерговклад прямо пропорционален концентрации электронов плазмы и, следовательно, прямо пропорционален также и величине поглощения (см. ***(55)***), то построенный профиль свидетельствует о нелинейном возрастании энерговклада при слиянии множества филаментов, образующихся на начально этапе распространения (***Рис. 107***). Из этого следует вывод, что реализуется режим суперфиламентации [47,346].

4.6.1.4. Акустическая диагностика энерговклада при различных условиях фокусировки

Акустическая диагностика также позволяет проследить изменение среднего по объему области воздействия энерговклада при изменении числовой апертуры фокусировки NA и, соответственно, различных режимов распространения лазерного излучения в объеме среды. Так, на ***Рис. 111 (а)*** представлены измеренные акустические сигналы в различных режимах распространения излучения в среде. Поскольку длительность акустических импульсов на ***Рис. 111 (а)*** практически одинаковая, то сравнение энергий акустических импульсов и, как следствие, энерговклада может быть осуществлено на основе сравнения амплитуд акустических импульсов.

Рис. 111 (а) показывает, что наибольшая амплитуда акустического импульса достигается в режиме суперфиламентации (увеличение амплитуды сигнала примерно в 40 раз), при этом это увеличение нелинейно относительно увеличения энергии лазерного импульса (с 30 мкДж до 300 мкДж), что объясняется слиянием множества филаментов в один и соответствующим нелинейным увеличением энерговклада в режиме суперфиламентации. При этом сравнение амплитуд акустических профилей в случае одиночной филаментации и двух филаментов показывает, что изменение энерговклада происходит линейно – так, отношение амплитуды акустического сигнала одного филамента к сумме амплитуд акустических импульсов от двух филаментов составляет примерно 1,56, в то время как отношение энергий составляет $30/(10+10)=1{,}5$, что свидетельствует о линейном росте энерговклада с ростом количества филаментов.



(а) *(б)*

Рис. 111 (а) Сравнение амплитуд акустических сигналов при разных режимах филаментации: одиночная филаментация ($E = 30$ мкДж, $NA = 0{,}1$), два филамента ($E = 10$ мкДж, $NA = 0{,}1$), а также суперфиламентация ($E = 300$ мкДж, $NA = 0{,}2$). (б) Зависимость амплитуды акустического сигнала от энергии лазерного импульса для «мягкой» (NA = 0,1) и «жесткой» (NA = 0,2) фокусировок.

Как свидетельствуют данные на ***Рис. 111 (б)***, при использовании фокусировки с $NA = 0{,}1$ амплитуда акустической волны и, соответственно, энерговклад растут практически линейно, что говорит о независимости эффективности передачи энергии в среду от энергии лазерного импульса. При этом в этой же области энергий импульса при более острой фокусировке с $NA = 0{,}2$ рост амплитуды выходит на насыщение, что свидетельствует об уменьшении эффективности передачи энергии среде с ростом энергии импульса вследствие насыщения интенсивности [18].

Таким образом, проведенная акустическая диагностика режима распространения лазерного излучения в объеме среды позволяет заключить, что увеличение остроты фокусировки NA, приводящее к переходу в режим суперфиламентации, позволяет увеличить энерговклад в среду по сравнению с режимами одиночной и множественной филаментации, реализующихся при более мягких фокусировках.

4.6.2. Влияние длины волны и длительности воздействующего лазерного излучения на ионизацию и эффекты нагрева электронов в лазерном поле в диэлектриках и полупроводниках

Недавние успехи в разработке сверхкоротких лазерных источников в среднем и дальнем инфракрасном диапазонах привели к возникновению новых приложений [60,62]. Однако основной технологической задачей, по-прежнему актуальной для исследований, является изготовление оптических компонентов с высоким порогом лучевой прочности и заданными свойствами (например, высокой прозрачностью или отражательной способностью в широком диапазоне длин волн, групповой задержкой и т. д.). Отсюда следует необходимость экспериментального исследования порога лазерно-индуцированного разрушения (ПЛР) различных материалов (как диэлектриков, так и полупроводников) в ИК-области спектра [347].

Сложность прогнозирования поведения ПЛР в зависимости от длины волны связана с зависимостью от длины волны скоростей фотоионизации и ударной ионизации. Скорость многофотонной ионизации (МИ) уменьшается с длиной волны, в то время как туннельная ионизация (ТИ) не зависит от неё [221]. Электроны в зоне проводимости, образующиеся в

результате полевой ионизации, могут быть дополнительно нагреты лазерным импульсом за счет прямого или непрямого электрон-фононного поглощения. Эффективную частоту столкновений можно найти в двух случаях слабого и сильного поля, переход между которыми определяется соотношением между пондеромоторной энергией электрона и энергией фотона [348]. Когда пондеромоторная энергия электрона становится намного выше, чем энергия фотона, процессы высокого порядка (такие как одновременное поглощение нескольких фотонов за один акт столкновения) могут дать значительный вклад. Эти процессы резко изменяют скорость нагрева электронов и влияют на общую плотность энергии в электронной подсистеме. В видимой и ближней ИК-областях спектра переход между режимами достигается при интенсивностях свыше 100 ТВт/см^2 [349]. Однако этот переход происходит с гораздо меньшей интенсивностью в среднем ИК-диапазоне из-за гораздо более высокой пондеромоторной энергии. Следовательно, все упомянутые процессы должны быть включены для учета наблюдаемого поведения ПЛР в зависимости от длины волны.

Несмотря на наличие множества теоретических моделей, весь диапазон длин волн не был полностью сопоставлен с предсказанными зависимостями в особенности для фемтосекундного лазерного излучения. Поведение порога лазерно-индуцированного разрушения прозрачного материала при перестройке длины волны от видимого до среднего ИК-диапазона впервые был рассмотрен в ранних работах группы А.А. Маненкова [305], однако используемые импульсы имели наносекундную длительность. D.M.Simanovskii и др. провели исследования для пикосекундных импульсов в диапазоне длин волн 4,7–7,8 мкм [350]. Другие работы, выполненные с фемтосекундными лазерными импульсами, были, к сожалению, ограничены видимым и ближним ИК-диапазонами, оставляя механизмы ионизации на более длинных волнах экспериментально неизученными[351,352]. Поэтому для лучшего понимания механизмов ионизации и лазерного нагрева электронов в зоне проводимости фемтосекундным излучением в диапазоне длин волн от видимого до среднего ИК-диапазона необходимы дополнительные экспериментальные исследования и дальнейшее теоретическое моделирование, включающее все упомянутые выше процессы, что и было выполнено в рамках диссертационного исследования.

4.6.2.1. Влияние длины волны спектрально-ограниченного остросфокусированного лазерного излучения на процессы плазмообразования в диэлектриках

В экспериментах использовалась лазерная система на хром-форстерите и разработанный параметрический усилитель (ПУ) на кристалле AGS (см. ***1.4.3***). Вторая гармоника генерировалась в кристалле BBO I типа взаимодействия толщиной 1 мм. Полный набор длин волн, используемых в эксперименте представлен в ***Таблица 12***. Для острой фокусировки лазерного излучения в объем прозрачных материалов использовались линзы Thorlabs A230 (f = 4,51 мм, NA = 0,55) или A240 (f = 8,0 мм, NA = 0,5) для видимого и ближнего ИК-излучения (0,62 мкм–2 мкм). Импульсы среднего ИК-диапазона (3–5 мкм) фокусировались линзой Thorlabs C036TME (f = 4,00 мм, числовая апертура = 0,56). Типичный измеренный диаметр пучка a_0, а также длительность импульса приведены для каждой длины волны λ_0 в ***Таблица 12***.

Таблица 12. Типичные параметры лазерного импульса, использованные в экспериментах.

λ_0, мкм	τ_{FWHM}, фс	a_0, мкм
0,62	120	1,3
1,24	170	3,4
1,65	170	7,6
2,0	170	9,0
3,23	230	4,1
3,85	280	6,3
4,78	300	7,5

Лазерное излучение остро фокусировалось в объем образца на глубину 0,1–0,2 мм от поверхности. Образцы устанавливались на автоматизированный трехкоординатный транслятор, чтобы обеспечить взаимодействие каждого импульса с неповрежденным материалом и, таким образом, избежать эффектов накопления. Образцы SiO_2 и MgF_2 были отполированы с обеих сторон. Образец SiO_2 был изготовлен из высокочистого оксида кремния. Образец MgF_2 был изготовлен из монокристалла, срезанного в направлении (001).

Для определения порога плазмообразования было измерено нелинейное пропускание и профиль пучка в перетяжке для каждой длины волны воздействующего лазерного излучения. На ***Рис. 112*** показаны данные пропускания образцов SiO_2 и MgF_2 на длине волны 2 мкм. Кривые нормированы для учета френелевских потерь на границах. При низких энергиях (менее 1 -2 мкДж) пропускание составляет 100%, что указывает на отсутствие нелинейного поглощения. Когда падающая энергия достигает порога плазмообразования, нелинейное пропускание начинает уменьшаться. Критерием для определения величины порога плазмообразования является снижение пропускания до 95%, что достаточно для уверенной регистрации этой величины при 3% стабильности по энергии используемых лазерных источников.

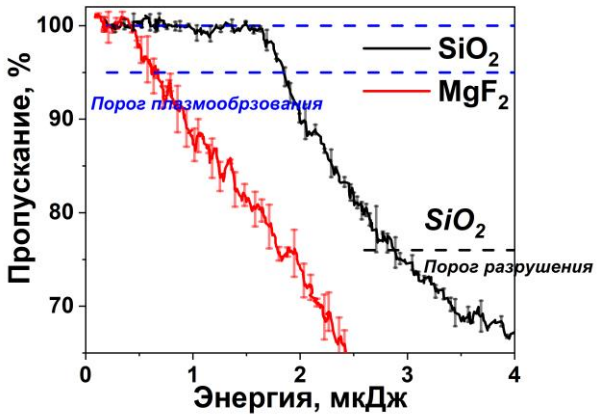


Рис. 112 Нелинейное пропускание через образец SiO_2 и MgF_2 энергии остросфокусированного фемтосекундного лазерного импульса с центральной длиной волны 2 мкм от его энергии.

Настройка лазерной системы и последующих каскадов параметрического усиления сильно влияли на определение абсолютного значения порога плазмообразования. Поэтому нелинейное пропускание и диаметр пучка измерялись несколько раз (5–6) для каждой длины

волны, чтобы оценить среднеквадратичное отклонение измеренных значений. Среднее значение показано на ***Рис. 113*** в виде квадратных символов для каждой длины волны, а погрешностям соответствует стандартное отклонение, полученное в результате усреднения.

Численные исследования, выполненные совместно со Сметаниной Е.О., были поддержаны моделью на основе теории ионизации Келдыша [221], а также набором скоростных уравнений, учитывающих электронную динамику в зоне проводимости (MRE) [39]. Такой подход используется для моделирования скорости ионизации и временной эволюции электронной концентрации в зоне проводимости при взаимодействии лазерного излучения с прозрачной средой. Эволюция электрона описывается тремя основными процессами: полевая ионизацией, приводящей к переходу электронов из валентной зоны на дно зоны проводимости; индуцированными полем переходами электронов с каждого уровня в зоне проводимости на ближайший верхний уровень (соответствует однофотонному поглощению в зоне проводимости); и ударной ионизацией, перебрасывающей электроны с верхнего уровня зоны проводимости в валентную зону, которые затем двигаются на дно зоны проводимости.

Рекомбинацией электронов пренебрегают, так как ожидается, что она будет играть роль на временном масштабе, превышающем длительность импульса. Действительно, для MgF_2 время рекомбинации лежит в пикосекундном диапазоне. Для SiO_2 характерное время формирования экситона близко к значению длительности импульса. Отсутствие процесса рекомбинации при моделировании может привести к занижению порога плазмообразования, но не изменит общего характера его зависимости от длины волны лазерного импульса.

В подходе MRE рассматривается один уровень в валентной зоне и конечное число N разрешенных энергетических уровней в зоне проводимости. Уравнения, описывающее лазерно-индуцированную динамику электронов на рассматриваемых уровнях валентной и зоны проводимости, имеют следующий вид:

$$\begin{cases} \frac{\partial \rho_0}{\partial t} = -\frac{W_{PI}\rho_0}{n_{at}} - \nu_{imp}\rho_N \\ \frac{\partial \rho_1}{\partial t} = \frac{W_{PI}\rho_0}{n_{at}} - \nu_{1ph}\rho_1 + 2\nu_{imp}\rho_N \\ \frac{\partial \rho_i}{\partial t} = \nu_{1ph}(\rho_{i-1} - \rho_i), 1 < i < N \\ \frac{\partial \rho_N}{\partial t} = \nu_{1ph}\rho_{N-1} - \nu_{imp}\rho_N \end{cases} \quad (56)$$

где ρ_j — населенность соответствующего энергетического уровня с номером j, n_{at} — плотность нейтральных атомов, W_{PI}, ν_{1ph} и ν_{imp} — скорость многофотонной ионизации, частота однофотонного поглощения в зоне проводимости и частота ударной ионизации соответственно. Подробное описание модели можно найти в [353]. При численном моделировании предполагалось, что порог плазмообразования достигается, если полная концентрация электронов в конце лазерного импульса $\rho_e(t = \tau_0)$ равна $10^{-1} \times n_{at}$, что близко к используемым пороговым значениям концентрации электронов плазмы в других работах [349]. Соответствующая плотность энергии лазерного импульса называлась F_{PFT} и рассчитывалась для

всех длин волн в рассматриваемом диапазоне. Этот критерий определения порога плазмообразования был сопоставлен как с критериями достижения критической плотности плазмы ρ_{cr}, так и с достижением порога лазерно-индуцированного разрушения материала, определяемого как пороговое значение плотности энергии в электронной подсистеме [351]. Из-за зависимости критической плотности плазмы ρ_{cr} от длины волны соответствующий порог монотонно уменьшается (помимо скачков за счет изменения порядка многофотонности) с длиной волны во всем диапазоне от УФ до среднего ИК, что расходится с экспериментальными наблюдениями. Критерий ПЛР приводит к поведению по длине волны, аналогичному критерию определения порога плазмообразования $10^{-1} \times n_{at}$, что хорошо согласуется с экспериментальными наблюдениями [354] и является дополнительным свидетельством того, что порог плазмообразования (достижение заданной плотности свободных электронов) предшествует порогу лазерно-индуцированного разрушения материала.

На рисунках ***Рис. 113 (а)*** и ***Рис. 114 (а)*** показана зависимость порога плазмообразования от длины волны воздействующего лазерного излучения для SiO_2 и MgF_2 (экспериментальные значения показаны квадратами). В случае SiO_2 представлены только видимая и ближняя ИК области спектра из-за появления линейного поглощения при увеличении длины волны более 2,6 мкм. Для обоих образцов экспериментально и численно наблюдалось немонотонное поведение порога плазмообразования от длины волны воздействующего лазерного излучения. Во-первых, он увеличивается при изменении длины волны от видимого до ближнего ИК-диапазона. Однако при более длинных волнах он имеет тенденцию к уменьшению, что особенно заметно в случае MgF_2. Наконец, наблюдаемая зависимость порога плазмообразования от длины волны в MgF_2 показывает увеличение около 5 мкм.

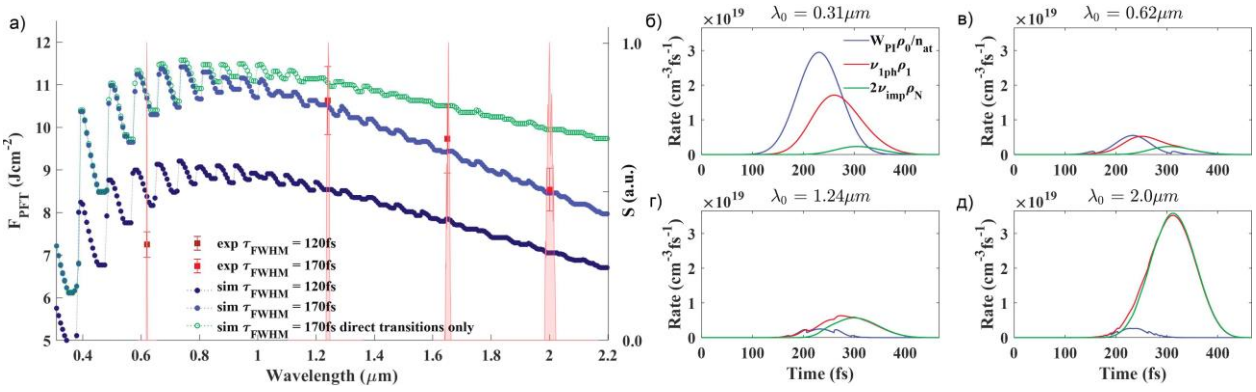


Рис. 113 (а) Порог плазмообразования SiO_2 для различных длин волн воздействующего лазерного излучения. Экспериментальные результаты представлены красными квадратами. Моделирование представлено кружками и пунктирными линиями. Светлые и синие кружки соответствуют значениям $W_{1ph}^{dr,idr}$ и длительности импульса 120 и 170 фс соответственно. Зеленые кружки соответствуют моделированию с выключенными электрон-фонон-фотонными взаимодействиями, т.е. $W_{1ph}^{idr} = 0$ и длительностью импульса 170 фс. Экспериментальные спектры также показаны светло-красным цветом. (б–д) Скорость ионизации по Келдышу $\frac{W_{PI}\rho_0}{n_{at}}$ (синий), скорость однофотонного перехода с 1-го на 2-й уровень зоны проводимости $\nu_{1ph}\rho_1$ (красный) и скорость ударной ионизации $2\nu_{imp}\rho_N$ (зеленый) как функция времени для (б) 0,31 мкм, (в) 0,62 мкм, (г) 1,24 мкм и (д) 2,0 мкм при фиксированной плотности энергии лазерного излучения F = 8,4 Дж/см², что близко к значению F_{PFT} при 0,31 мкм в SiO_2. Длительность импульса FWHM = 170 фс.

Наибольшая плотность энергии лазерного излучения, соответствующая порогу плазмообразования, в моделировании достигается для длин волн от 0,6 до 0,9 мкм для лазерных импульсов длительностью 120 и 170 фс (***Рис. 113 (а)***, темные и светло-синие кружки соответственно). Уменьшение порога плазмообразования как в коротковолновой, так и длинноволновой спектральной области хорошо согласуется с экспериментальными данными. Представленное поведение порога плазмообразования можно объяснить следующим образом. Прежде всего, укажем зависимости рассматриваемых электронных переходов от энергии фотона: (1) переходы электрона из валентной зоны на первый уровень зоны проводимости определяются скоростью полевой ионизации, возрастающей с ростом энергии фотона (помимо изменения порядка многофотонности ввиду изменения пондеромоторной энергии); (2) электронные переходы в зоне проводимости определяются W_{1ph}^{dr} и W_{1ph}^{idr}, которые уменьшаются пропорционально ω_0^{-2} и -ω_0^{-4} соответственно; (3) количество уровней в зоне проводимости до критического уровня энергии уменьшается с увеличением энергии фотона (поскольку верхний уровень в зоне проводимости имеет энергию порядка ширины запрещенной зоны). Чтобы проиллюстрировать вклад этих процессов в увеличение концентрации электронов в зоне проводимости, построены скорость ионизации $\frac{W_{PI}\rho_0}{n_{at}}$, скорость однофотонного перехода с 1-го уровня на 2-й уровень в зоне проводимости $\nu_{1ph}\rho_1$ и скорость ударная ионизации $2\nu_{imp}\rho_N$ в зависимости от времени для длин волн воздействующего лазерного излучения 0,31 мкм, 0,62 мкм, 1,24 мкм и 2,0 мкм (***Рис. 113 (б–д)***). Для рассматриваемых длин волн плотность энергии лазерного излучения F составляет 8,4 Дж/см^2, что близко к значению F_{PFT} для длины волны 0,31 мкм (***Рис. 113 (а)***). Следует отметить, что в этих диапазонах длин волн воздействующего лазерного излучения, длительности и плотности энергии F_{PFT} в SiO_2 условия сильного поля не достигаются.

В УФ области спектра основной вклад в увеличение концентрации свободных электронов вносит процесс полевой ионизации. Ударная ионизация слабо развита и существенного вклада не дает (***Рис. 113 (б)***, $\lambda_0 = 0{,}31$ мкм). Скорость полевой ионизации уменьшается с длиной волны, и электронные переходы в зоне проводимости недостаточно сильны для развития лавины в видимой области спектра (***Рис. 113 (в)***, $\lambda_0 = 0{,}62$ мкм). Дальнейшее увеличение длины волны до 1,24 мкм приводит к дальнейшему падению скорости полевой ионизации, а электронные переходы в зоне проводимости становятся достаточно сильными для развития ударной ионизации с пиковой скоростью выше скорости полевой ионизации (***Рис. 113 (г)***, $\lambda_0 = 1{,}24$ мкм). В среднем ИК-диапазоне (***Рис. 113 (д)***, $\lambda_0 = 2$ мкм) скорость фотоионизации остается неизменной, в то время как электронные переходы в зоне проводимости вызывают хорошо развитый лавинный процесс с пиковой скоростью примерно на порядок большей, чем скорость полевой ионизации. Таким образом, область длин волн наибольшего порога плазмообразования (0,59–0,82 мкм) на ***Рис. 113 (а)***) возникает за счет процесса полевой ионизации, который уже существенно слабее, чем в УФ-области, а электронные переходы в зоне проводимости еще

недостаточно сильны, чтобы развить лавину. В среднем ИК-диапазоне скорость фотоионизации протекает в туннельном режиме, и основной вклад в рост плотности свободных электронов вносит ударная ионизация (***Рис. 113 (г-д)***, $\lambda_0 = 1{,}24$ мкм и 2 мкм). Обратим внимание, что введение начальной концентрации электронов до $10^{-6} \times n_{at}$ ($\rho_1(t=0) = 10^{-6} \times n_{at}$) не меняет поведения порога плазмообразования при изменении длины волны, что указывает на низкие уровни примесей в используемых в эксперименте образцах, где эволюция порога плазмообразования в среднем ИК-диапазоне обусловлена собственными процессами, включая электрон-фотонные и электрон-фотон-фононные процессы в зоне проводимости.

Чтобы выяснить причину изменения порога плазмообразования, было выполнено моделирование, которое учитывает только прямые переходы между уровнями в зоне проводимости и, таким образом, исключает непрямые переходы с участием фононов $W_{1ph}^{idr} = 0$ (***Рис. 113 (а)***, зеленые кружки). Зависимость порога плазмообразования от длины волны, включающая только прямые переходы в зоне проводимости, аналогична кривой, полученной при полном моделировании в коротковолновой области спектра (***Рис. 113 (а)***, зеленые и голубые кружки соответственно). В средней ИК-области спектра порог плазмообразования, полученный при моделировании, включающем только прямые переходы в зоне проводимости, больше, чем при полном моделировании. В среднем ИК-диапазоне изменения порога плазмообразования с длиной волны более выражены при непрямых переходах из-за более сильной зависимости W_{1ph}^{idr} от энергии фотона, что соответствует экспериментальным наблюдениям. Увеличение W_{1ph}^{idr} при моделировании с прямыми переходами в зоне проводимости приводит к меньшим значениям порога плазмообразования, но представленное здесь поведение будет сохраняться. Таким образом, в видимой области спектра основную роль играют прямые электронные переходы, а в среднем ИК-диапазоне существенный вклад в процесс накопления энергии электронной подсистемой в SiO_2 вносят непрямые электронные переходы.

Далее будут анализироваться результаты, полученные в образце MgF_2, где измеренный порог плазмообразования уменьшается с увеличением длины волны воздействующего лазерного излучения от ближнего ИК до среднего ИК-диапазона. Локальный минимум порога плазмообразования достигается в районе 3–3,85 мкм, после чего следует дальнейшее его увеличение с длиной волны вплоть до 4,78 мкм. Чрезвычайно высокое значение порога плазмообразования для длины волны 1,24 мкм было подтверждено во многих экспериментальных реализациях с многократными перекрестными проверками параметров лазерного излучения. Обзор измеренных значений порогов лазерно-индуцированного разрушения (ПЛР) материала для MgF_2, приведенный в литературе, показывает, что для длинных импульсов (~1 пс) ПЛР, измеренный в MgF_2, имеет близкие значения в среднем ИК-диапазоне (4,7 мкм) и ближнем ИК-диапазоне (0,8 мкм): ~ 5,4 Дж/см^2 и ~ 4 Дж/см^2 соответственно [350]. Для более коротких лазерных импульсов (~ 500 фс) измеренные значения ПЛР следующие: ~4,2 Дж/см^2 для 1030 нм [355] и ~ 3,9 Дж/см^2 для 800 нм [356]. Из-за отсутствия обширных данных по измерениям ПЛР в MgF_2 были проанализированы имеющиеся данные по ПЛР в CaF_2,

который, как ожидается, будет демонстрировать зависимость ПЛР от длины волны, подобную MgF_2, из-за аналогичных значений ширины запрещенной зоны и сильного электрон-фотон-фононного взаимодействия в этих материалах. В CaF_2 ПЛР для 100-фс лазерного импульса при изменении длины волны лазерного излучения от 400 нм до 1030 нм достигает своего максимального значения около 4 Дж/см^2 при 800 нм [351]. Измерения в более широком диапазоне длин волн, от ~ 400 нм до ~ 1900 нм, показывают, что ПЛР возрастает от ~ 1,2 Дж/см^2 для ~ 400 нм до 3 Дж/см^2 для 1400 нм, а затем падает до ~ 2,3 Дж/см^2 для ~1900 нм [352]. Таким образом, литературные данные по измерению порога плазмообразования в CaF_2 показывают наличие максимума ПЛР в ближнем ИК-диапазоне, точное положение которого зависит от условий эксперимента и параметров лазера. Это утверждение также подтверждается измерениями порога плазмообразования в MgF_2, представленными в диссертационной работе (***Рис. 114 (а)***).

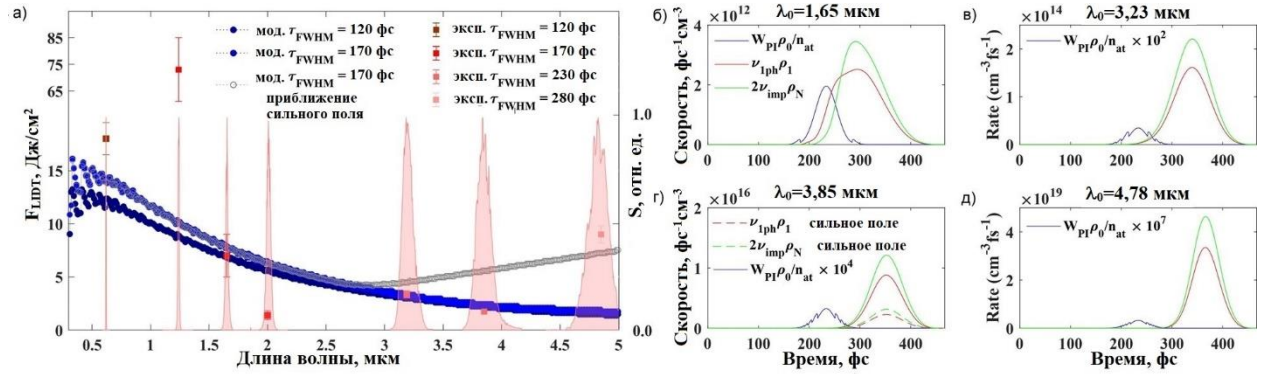


Рис. 114 (а) Порог плазмообразования в MgF2 для различных длин волн воздействующего лазерного излучения. Экспериментальные результаты представлены красными квадратами. Моделирование представлено кружками и пунктирными линиями. Заполненные кружки соответствуют значениям $W_{1ph}^{dr,idr}$. Серые пустые кружки соответствуют моделированию в приближении сильного поля $\widetilde{W_{1ph}^{sf}}$. Длительность импульса указана на графике. Экспериментальные спектры также показаны светло-красным цветом. (б–д) Скорость полевой ионизации $\frac{W_{PI}\rho_0}{n_{at}}$ (синий), скорость однофотонного перехода с 1-го на 2-й уровень зоны проводимости $\nu_{1ph}\rho_1$ (красный) и скорость ударной ионизации $2\nu_{imp}\rho_N$ (зеленый) как функция времени для (б) 1,65 мкм, (в) 3,23 мкм, (г) 3,85 мкм и (д) 4,78 мкм при фиксированной плотности энергии лазерного излучения F = 2,3 Дж/см^2, что близко к значению F_{PFT} в MgF_2 для длины волны 3,85 мкм. Длительность импульса FWHM = 170 фс. Обратите внимание, что масштабы различны в разных частях рисунка. Скорость полевой ионизации $\frac{W_{PI}\rho_0}{n_{at}}$ умножается на указанные коэффициенты, которые следует отличать от нуля. Пунктирные линии соответствуют приближению сильного поля.

Моделирование порога плазмообразования выявило практически такие же тенденции в видимой и ближней ИК областях спектра в случае MgF_2, как и для SiO_2 (***Рис. 114 (а)***). Ионизация сильным полем является доминирующим механизмом возбуждения электрона в зоне проводимости в случае высоких энергий фотона. Однако в ближнем и среднем ИК-диапазонах (1,5–4 мкм) прямые и особенно непрямые переходы обеспечивают рост электронной концентрации в зоне проводимости. Стоит отметить, что модель включает только несколько подгоночных параметров, в то время как рассматривается очень большой диапазон длин волн, что сильно ограничивает модель и делает разумной настоящую интерпретацию экспериментальных данных. Для объяснения поведения порога плазмообразования в среднем ИК-диапазоне построены скорость ионизации $\frac{W_{PI}\rho_0}{n_{at}}$, скорость однофотонного перехода с 1-го уровня на 2-й уровень в зоне проводимости $\nu_{1ph}\rho_1$ и скорость ударная ионизации $2\nu_{imp}\rho_N$ [см.

уравнение (56)] в зависимости от времени для длин волн воздействующего лазерного излучения 1,65 мкм, 3,23 мкм, 3,85 мкм и 4,78 мкм (***Рис. 114 (б-д)***). Длительность импульса устанавливалась равной FWHM = 170 фс (***Рис. 114 (а)***, закрашенные голубые кружки). Для рассматриваемых длин волн плотность энергии в импульсе составляет 2,3 Дж/см^2, что близко к значению F_{PFT} при 3,85 мкм (***Рис. 114 (а)***). Пиковое значение скорости полевой ионизации практически одинаково для длин волн 3,23 мкм, 3,85 мкм и 4,78 мкм и в несколько раз меньше, чем для 1,65 мкм. Ионизационно-индуцированные затравочные электроны на нижнем уровне в зоне проводимости появляются с одинаковыми вероятностями независимо от длины волны в туннельном режиме ($\frac{W_{PI}\rho_0}{n_{at}}$, синие кривые для длин волн 3,23 мкм, 3,85 мкм и 4,78 мкм ***Рис. 114 (в-д)***).Рассчитанные же в приближении слабого поля вероятности однофотонного поглощения быстро растут с длиной волны и инициируют лавинный рост электронной концентрации (красная и зеленая сплошные кривые на ***Рис. 114 (б-д)***). Это приводит к падению порога плазмообразования, рассчитанного в приближении слабого поля, при увеличении длины волны (***Рис. 114 (а)***, светло-синие закрашенные кружки). Рост длины волны лазерного излучения при сохранении высокой интенсивности приводит к несостоятельности приближения слабого поля, что подтверждается смоделированной зависимостью порога плазмообразования от длины волны, которая в этом случае демонстрирует увеличение (***Рис. 114 (а)***, серые пустые кружки). В приближении сильного поля эффективная скорость поглощения электронов в зоне проводимости уменьшается с увеличением электрического поля, что приводит к более слабому лавинообразному нарастанию электронной концентрации на хвосте лазерного импульса (красная и зеленая пунктирные кривые для 3,85 мкм на ***Рис. 114 (а)***) и соответствующему увеличению расчетного значения порога плазмообразования (***Рис. 114 (а)***, серые пустые кружки). Таким образом, используя разработанную модель MRE, удалось воспроизвести экспериментально наблюдаемую зависимость порога плазмообразования в широком диапазоне длин волн от УФ до среднего ИК в MgF_2. В области от 3 до 4 мкм наблюдается отход теоретического моделирования от экспериментальных наблюдений. Результаты можно улучшить, добавив начальные затравочные электроны с плотностью $10^{-8} \times n_{at}$ - $10^{-7} \times n_{at}$. Они приводят к падению порога плазмообразования на длинах волн от 3 до 4 мкм, но не меняют тренд к увеличению порога плазмообразования в области 4–5 мкм.

4.6.2.2. Определение механизмов пробоя в среднем ИК-диапазоне в зависимости от длительности воздействующего лазерного излучения с перестройкой по длине волны в диэлектриках и полупроводниках

Дальнейшие эксперименты были продолжены с образцами кремния (Si) и фторида магния (MgF_2) для сравнения особенностей генерации плазмы в полупроводниках и диэлектриках. Использовалось излучение на длине волны 1,24 мкм (длительность спектрально-ограниченного импульса ~100 фс, частота повторения 10 Гц, энергия до 3,6 мДж) и 4,6 мкм (длительность спектрально-ограниченного импульса 200 фс, частота повторения 10 Гц, энергия до 2 мДж). Для фокусировки использовался объектив ЛОМО (f=1,5 мм NA=0,85) и линза Thorlabs C037TME-E

(f = 1,873 мм, NA = 0,85) для импульсов на длине волны 1,24 мкм и 4,6 мкм соответственно. Длительность импульсов обоих источников могла варьироваться путем расстройки оптимальной длины компрессора от соответствующей спектрально-ограниченному импульсу вплоть до длительностей 1 – 1,5 пс. Для определения энергии, соответствующей порогу плазмообразования, использовалась методика, основанная на измерении поглощения энергии лазерного импульса, прошедшего через образец (см. выше ***п. 4.4.6***). В случае воздействия импульсов ближнего ИК-диапзона дополнительно производился расчет удельного энерговклада (УЭ), определяемого как значение поглощенной энергии в единице объема $DED=E_{abs}/V_{int}$., где V_{int} – объем области взаимодействия, полученный методом трехмерной визуализации (см. 4.4.4).

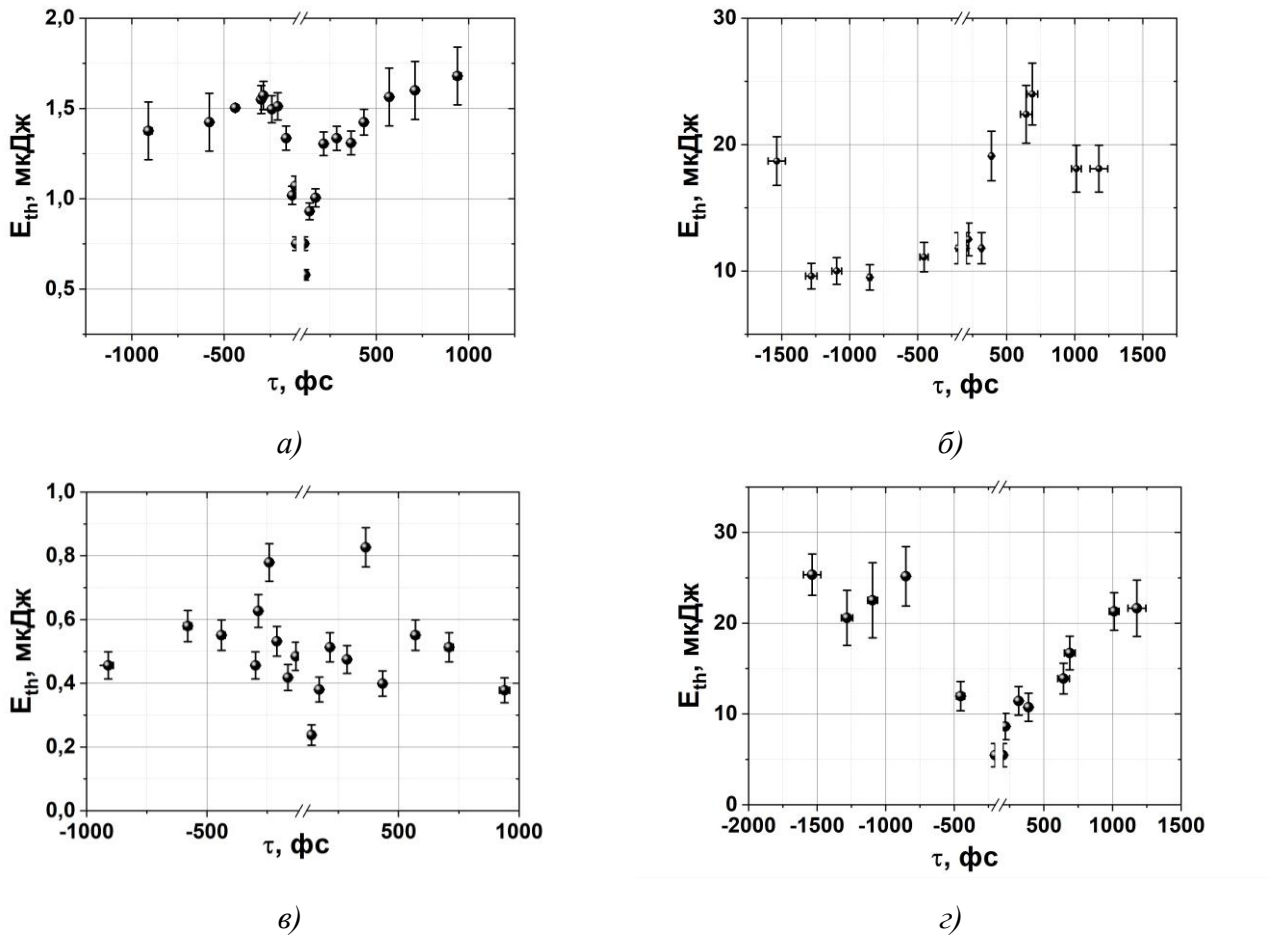
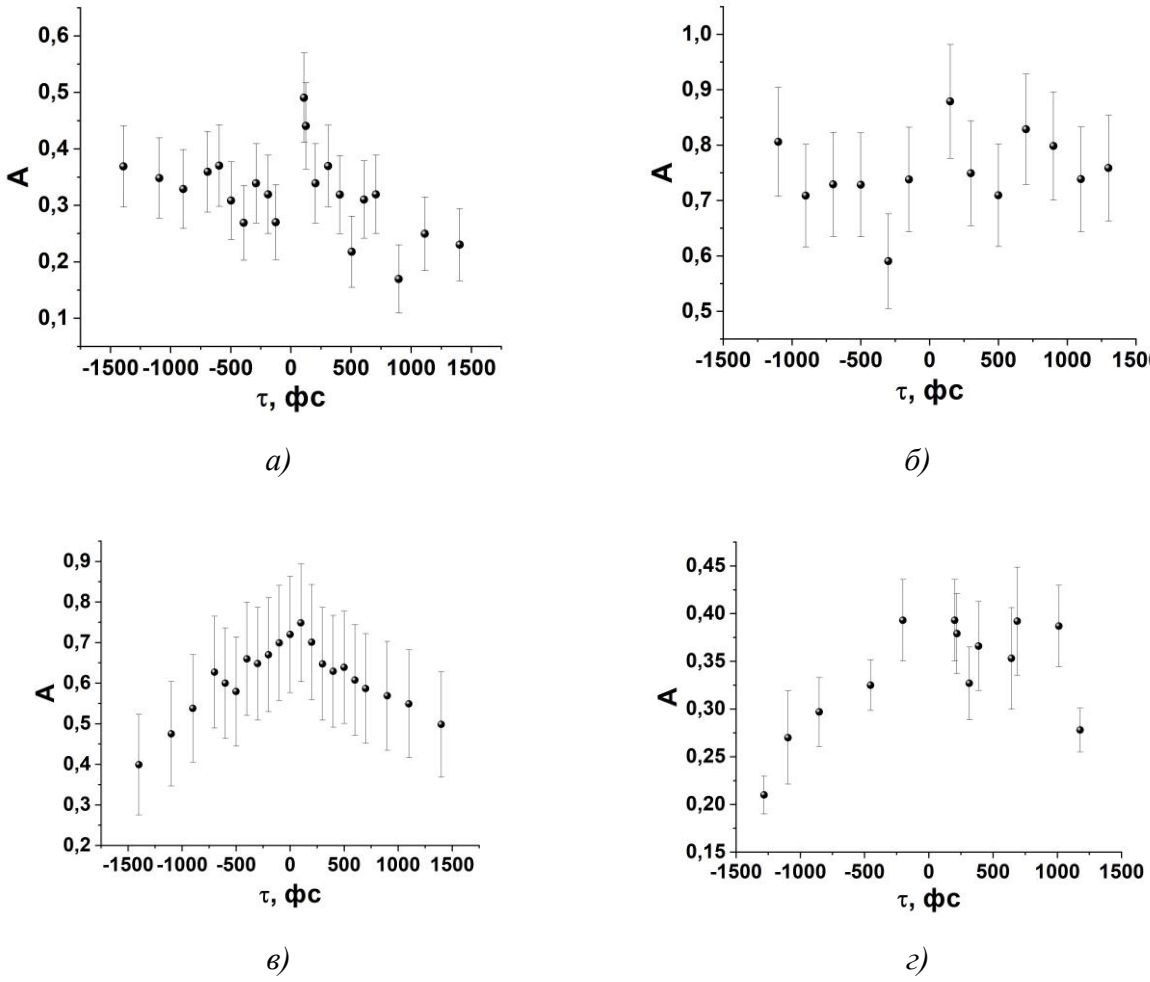


Рис. 115 Зависимость порога плазмообразования от длительности лазерного импульса для разных образцов и длин волн. а) MgF_2 1,24 мкм, б) MgF_2 4.6 мкм, в) Si 1,24 мкм, г) Si 4.6 мкм. «Отрицательная» длительность отражает отрицательный чирп лазерного импульса.

Основным результатом исследований является принципиально различная зависимость порога плазмообразования от длительности воздействующих импульсов в Si и MgF_2 при использовании излучения ближнего (1,24 мкм) и среднего (4,6 мкм) ИК диапазонов. В случае воздействия на MgF_2 излучением на длине волны 1,24 мкм (см. ***Рис. 115***) отклонение от спектрально-ограниченной длительности импульса приводит к существенному (около 3-х раз) росту порога плазмообразования (при минимальном значении энергии порога плазмообразования 0,2 мкДж). Наши исследования [353] показывают, что даже воздействие

спектрально-ограниченным импульсом соответствует одновременно низкому вкладу полевой и лавинной ионизаций. Для длины волны 1,24 мкм скорость полевой ионизации уже существенно уменьшилась (по сравнению, например, с воздействием излучением УФ или видимого диапазона; параметр многофотонности 11, параметр Келдыша для интенсивности 10^{13} Вт/см^2 равен 1,6), а лавина еще недостаточно развита. С увеличением длительности воздействующих импульсов вклад полевой ионизации только снижается. Так как нагрев электронов в зоне проводимости на этой длине волны идет в основном за счет одночастичных процессов прямого и электрон-фотон-фононного поглощения (приближение слабого поля, параметр s порядка 8), то уменьшение числа затравочных электронов не может быть компенсирован нагревом, что ведет к возрастанию порога. Похожий результат наблюдался также в работе [357], где изменялась длительность импульса титан-сапфирового лазера при воздействии на плавленый кварц и является общим для импульсов ближнего ИК-диапазона, воздействующих на широкозонные материалы. Соответственно максимум поглощения энергии лазерного излучения достигается при спектрально-ограниченном импульсе, что изображено на ***Рис. 116***.



а) *б)* *в)* *г)*

Рис. 116 Зависимость максимального поглощения A от длительности лазерного импульса τ для разных образцов и длин волн. а) MgF_2 1,24 мкм, б) MgF_2 4,6 мкм, в) Si 1,24 мкм, г) Si 4,6 мкм.

В отличие от MgF_2 (10,8 эВ) кремний обладает существенно меньшей запрещенной зоной (1,1 эВ). Это приводит, в частности, к делокализации и потере энергии в предфокальной области

при воздействии спектрально-ограниченным импульсом на длине волны λ=1,24 мкм из-за генерации плазмы и эффектов самовоздействия. Увеличение длительности воздействующего импульса позволяет снизить потери в предфокальной области и доставить больше энергии в область перетяжки [358]. В связи с этим полная максимальная поглощенная энергия падает с увеличением длительности воздействующих импульсов (см. ***Рис. 116 (в)***, уменьшаются предфокальные потери), а порог плазмообразования возрастает (при увеличении длительности пиковая интенсивность падает и необходимо увеличение энергии, чтобы создавать микроплазму). Доминирующим механизмом ионизации в данном случае является двухфотонная ионизация.

Принципиально иным образом ведет себя порог плазмообразования в случае воздействия импульсами среднего ИК-диапазона (λ=4,6 мкм). Прежде всего, при воздействии спектрально-ограниченным импульсом на образец MgF_2 доминирующими механизмами создания микроплазмы являются туннельная ионизация (параметр многофотонности ~40, параметр Келдыша для интенсивности 10^{13} Вт/см^2 равен 0,4) и многочастичные процессы, происходящие в зоне проводимости (приближение сильного поля, параметр s порядка 440). Важно отметить, что роль нагрева в зоне проводимости настолько велика, что электроны, созданные путем полевой ионизации, могут не влиять существенным образом на образование микроплазмы. Может происходить нагрев и примесных электронов [353]. Увеличение длительности импульса ведет к снижению вклада многочастичных процессов в зоне проводимости, так как их вклад, главным образом, зависит от осцилляторной энергии электрона и пиковой интенсивности. Однако, даже оставляя энергию воздействующих импульсов неизменной (около 10 мкДж для спектрально ограниченного-импульса) и увеличивая длительность импульса в 6 раз (от 200 фс до 1,2 пс), параметр s снижается лишь до примерно 70, что свидетельствует о по-прежнему значительном вкладе многочастичных процессов. В связи с этим, порог плазмообразования начинает расти лишь при больших расстройках компрессора, а поглощенная энергия остается неизменной. Отметим, что роль знака чирпа импульсов пока не совсем ясна и требует дальнейших исследований.

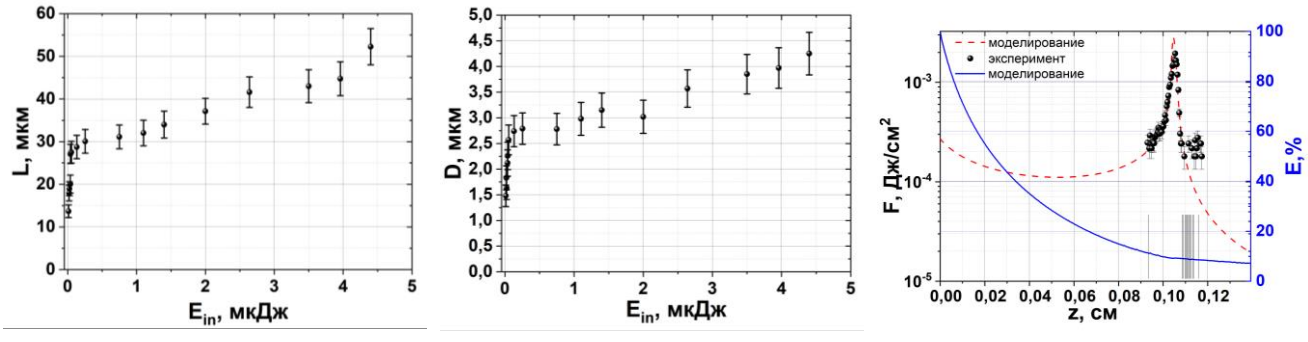
Как уже отмечалось, воздействие на образец кремния происходит принципиально иным образом в силу существенно меньшей запрещенной зоны. При воздействии излучением среднего ИК-диапазона фотонность процесса возрастает до 5, параметр Келдыша для интенсивности порядка 10^{12} Вт/см^2 равен 0,7, а параметр $s = 17$. Таким образом, воздействие идет в режиме многофотонной ионизации и похоже на обработку широкозонных диэлектриков излучением видимого/ближнего ИК-диапазона. При этом потери в предфокальной области частично или даже полностью отсутствуют, о чем свидетельствует значение максимальной поглощенной энергии. Увеличение длительности воздействующих импульсов ведет к росту порога плазмообразования, что может быть связано с уменьшением числа затравочных электронов в сочетании с недостаточно развитым нагревом, аналогично случаю воздействия излучением 1,24 мкм на MgF_2.

Подводя итог, можно сделать вывод, что с практической точки зрения наиболее интересен режим воздействия импульсами среднего ИК-диапазона на объем полупроводника. Данный метод потенциально позволит, остро фокусируя ($NA = 0{,}5-0{,}6$) фемтосекундный лазерный импульс среднего ИК-диапазона в объем кремния, создавать микромодификации без использования сложных методов наподобие твердотельной иммерсии или пространственно-временной фокусировки. С другой стороны, для обработки диэлектриков с помощью методики тандемного воздействия наиболее перспективным оказывается добавление чирпированного импульса ближнего ИК диапазонов к остросфокусированному УФ импульсу, так как именно он обладает наибольшим порогом плазмообразования. В то же время интересным является сравнение «докачки» ближним и средним ИК диапазоном, так как энергия, заключенная в 4,6 мкм импульсе, на порядок выше по сравнению с импульсом на длине волны 1,24 мкм.

4.6.3. Влияние длины волны и длительности воздействующего лазерного излучения на характер распространения высокоинтенсивного фемтосекундного лазерного импульса в объеме кремния

4.6.3.1. Распространение излучения 1,24 мкм

Для определения величины энергии лазерного излучения, доставляемой в среду, и расчета значения УЭ чрезвычайно важно измерить размер «области взаимодействия» (области, где сосредоточена основная часть лазерной энергии). Для этого была использована методика трехмерной визуализации распространения лазерного импульса в конденсированной среде (см. ***п. 4.4.4***). Пример наблюдаемых профилей $F\ (y, z)$ в воздухе и кремнии представлен на ***Рис. 100***. В воздухе угол схождения и размеры фокального пятна могут быть легко получены с помощью этого метода и хорошо соответствуют теоретическим значениям фокусировки гауссова пучка. Напротив, в кремнии энергия лазерного импульса чрезвычайно делокализована из-за нелинейных эффектов (***Рис. 100***). Даже при малой падающей энергии (~260 нДж) лазерный пучок сильно дефокусирован. Увеличение энергии импульса приводит к значительному увеличению фокального объема.



(а) *(б)* *(в)*

Рис. 117 Зависимость длины L (а) и диаметра D (б) области взаимодействия от энергии E_{in} лазерного импульса в Si. (в) Экспериментальные (точки) и теоретические (пунктирная линия) значения плотности энергии лазерного импульса и полной энергии лазерного импульса (сплошная линия) ближнего ИК-диапазона (1,24 мкм) в различных положениях z по оси распространения внутри Si.

Зависимость размеров области взаимодействия от энергии лазерного импульса в кремнии представлена на ***Рис. 117***, где можно выделить две различные области. Первый быстрый рост размеров области взаимодействия, наблюдаемый при энергиях лазерного излучения менее 250 нДж, может быть связан с многофотонной ионизацией, при которой увеличение интенсивности лазерного излучения приводит к увеличению размеров генерируемой микроплазмы. В этом случае энергия эффективно может быть доведена до фокальной области. Однако, начиная с уровня энергии около 250 нДж, продольный профиль поглощенной энергии изменяется более плавно. В этом случае большая часть падающей энергии не достигает фокального объема, а поглощенная энергия насыщается. Природа перехода между этими двумя режимами тесно связана с делокализацией лазерной энергии, которая возникает из-за конкуренции между различными нелинейными процессами (керровская самофокусировка, дефокусировка на плазме и т. д.) в объеме кремния [359]. Отметим, что критическая мощность самофокусировки в Si для 1240 нм составляет около 0,02 МВт. Следовательно, падающая мощность превышает это значение в несколько десятков раз. Профили плотности энергии лазерного излучения показывают, что первоначально локализованная энергия распространяется за пределы перетяжки лазерного излучения (см. ***Рис. 100***) при высоких энергиях.

Численное моделирование демонстрирует, что большая часть потерь падающей энергии (~ 90%) связана с двухфотонным поглощением и дефокусировкой на лазерно-индуцированной плазме, которые показаны сплошной линией на ***Рис. 117***. В результате плотность энергии лазерного излучения значительно уменьшается при достижении фокуса (см. пунктирную линию на ***Рис. 117***). Плотность энергии лазерного импульса в этом случае равна $5x10^{-3}$ Дж/см^2, что соответствует интенсивности $2{,}5x10^{10}$ Вт/см^2. Тем не менее, самая высокая плотность энергии достигается в фокусе, что подтверждается численным моделированием.

Для оценки поглощенной энергии были проведены измерения нелинейного пропускания. По этим данным был определен порог образования плазмы, который составил ~15 нДж, что соответствует интенсивности около $5x10^9$ Вт/см^2. При более высоких энергиях падающего излучения поглощение быстро насыщается на уровне 87% от падающей энергии лазерного излучения. Для оценки электронной концентрации генерируемой плазмы (n_e) применялась следующая процедура. Во-первых, было рассмотрено двухфотонное поглощение в предфокальной области. Величина «эффективного» поглощения в фокальной плоскости была определена путем численного моделирования, которое показало, что только около 10% энергии лазерного импульса достигает фокальной области, где фактически генерируется лазерная плазма. После этого экспериментальное значение n_e было восстановлено с использованием модели Друде-Лоренца, как это описано в [319]. Исходя из полученного значения «эффективного» поглощения было рассчитано распределение мнимых частей волновых векторов k_{exp} и k_{theor} для ожидаемого диапазона n_e с использованием модели Друде-Лоренца. Затем была определена электронная концентрация n_e, для которого k_{exp} и k_{theor} совпадают с точностью $1{\cdot}10^{17}$ см$^{-3}$. Для расчетов использовалось значение эффективного времени столкновений электронов с ионами ~3

фс и эффективная масса электрона $0{,}2m_e$. На ***Рис. 118*** представлена зависимость восстановленной электронной концентрации от энергии лазерного импульса. Видно, что электронная концентрация насыщается на уровне 10^{19} см$^{-3}$, а дальнейшее увеличение падающей энергии не приводит к росту ни плотности энергии, ни электронной концентрации плазмы.

Экспериментально и численно исследованы возможности увеличения УЭ в объеме Si при увеличении длительности импульса от 200 фс до 1 пс. Численное моделирование показывает, что предфокальные потери с фемтосекундным возбуждающим импульсом в основном связаны с двухфотонным поглощением в тонком слое лазерно-индуцированной плазмы вблизи границы воздух-Si. Увеличение длительности лазерного импульса должно приводить к снижению интенсивности лазерного импульса на поверхности, что способствует уменьшению нежелательных потерь. На ***Рис. 118*** показано изменение плотности энергии и плотности электронов в зависимости от длительности лазерного импульса, что подтверждает более эффективную передачу энергии лазерного излучения в фокальный объем с помощью пикосекундных лазерных импульсов.

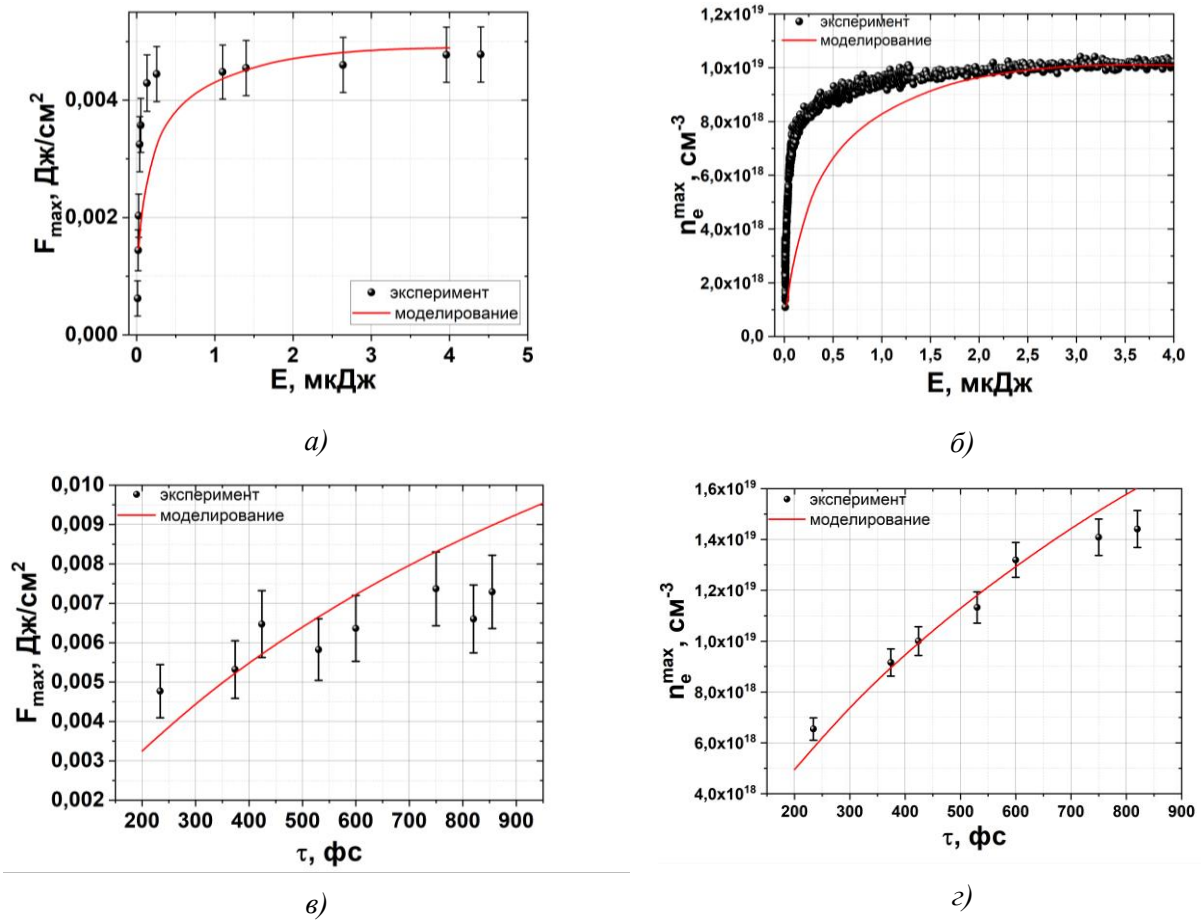
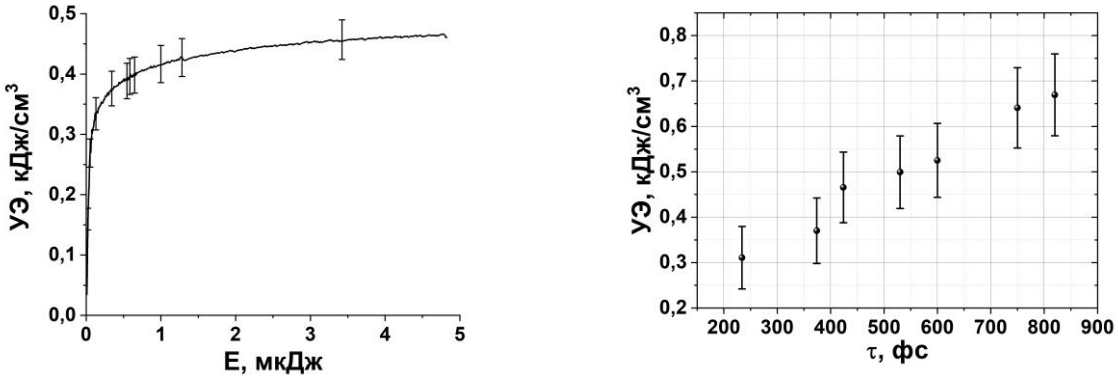


Рис. 118 а) Зависимость максимальной достигнутой плотности энергии F_{max} от энергии ИК (1,24 мкм) лазерного импульса длительностью 200 фс; б) Зависимость максимальной достигнутой концентрации электронов плазмы для ИК (1,24 мкм) лазерного импульса длительностью 200 фс; в) Зависимость максимальной достигнутой плотности энергии F_{max} от длительности ИК (1,24 мкм) лазерного импульса с энергией 250 нДж; г) Зависимость максимальной достигнутой концентрации электронов плазмы от длительности ИК (1,24 мкм) лазерного импульса с энергией 250 нДж.

Чтобы оценить удельный энерговклад, был определен размер области взаимодействия с помощью метода трехмерной визуализации. На ***Рис. 119*** показано насыщение УЭ на уровне 420

Дж/см^3 для лазерного импульса 200 фс, что более чем на порядок ниже порога образования микромодификации, оцененного как сумма энергии, необходимой для того, чтобы нагреть материал до точки плавления, и энергии, необходимой для превращения твердого материала в жидкое агрегатное состояние, в единице объема вещества, то есть $U = \rho \times \left(\int_{T_i}^{T_m} c_p(T)dT + L\right)$, где ρ – плотность материала, T_i – начальная температура материала, T_m – температура плавления материала, c_p – теплоемкость материала, L - скрытая теплота плавления. Для кремния эта оценка составляет $U \cong 1{,}04 + 4{,}19\ {}^{\text{кДж}}/_{\text{см}^3} \cong 5{,}2\ {}^{\text{кДж}}/_{\text{см}^3}$. При большей длительности импульса УЭ непрерывно увеличивается, достигая почти 1 кДж/см^3 для импульса длительностью ~1 пс. Рост УЭ связан с лучшей доставкой энергии и сохранением объема области взаимодействия. Как подтверждено экспериментально и численно, плотность энергии лазерного излучения, дошедшей до фокальной области, и концентрация электронов созданной плазмы выше для лазерных импульсов пикосекундной длительности (***Рис. 117***). Некоторое расхождение в экспериментальных и численных значениях, вероятно, связано с примесями в Si, которые не учитываются при моделировании. При высоких энергиях лазерного излучения концентрация затравочных электронов, генерируемых при полевой ионизации, значительно превышает примесную концентрацию электронов, что приводит к исчезновению разницы между численным моделированием и экспериментом.



а) *б)*

Рис. 119 а) Зависимость УЭ в кремнии от энергии остросфокусированного (NA=0,5) лазерного импульса ближнего ИК-диапазона (1,24 мкм) длительностью 200 фс. б) Зависимость достигаемого УЭ в кремнии от длительности остросфокусированного (NA=0,5) лазерного импульса ближнего ИК-диапазона (1,24 мкм) с энергией 250 нДж.

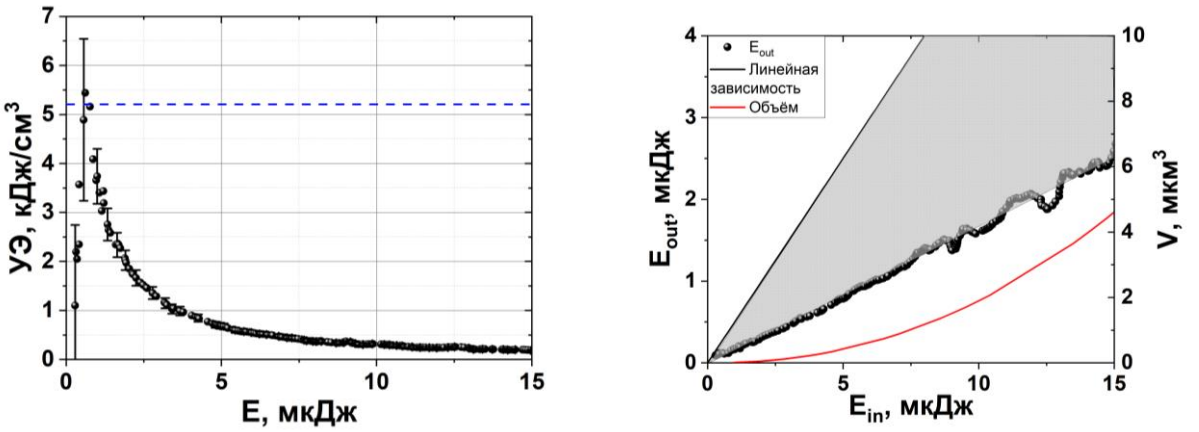
Таким образом, было показано, что пиковая плотность энергии лазерного излучения, концентрация электронов плазмы и УЭ насыщаются на микроджоулевом уровне энергии в Si для остро сфокусированных ультракоротких лазерных импульсов с длиной волны 1240 нм. Увеличение длительности воздействующих лазерных импульсов до пикосекунд уменьшает влияние двухфотонного поглощения и дефокусировки на формируемой плазме в предфокальной области, что приводит к увеличению УЭ до 1 кДж/см^3. Дальнейший рост УЭ (для преодоления порога образования микромодификации) может быть достигнут за счет увеличения локализации энергии лазерного импульса (как временной, так и пространственной) или уменьшения потерь на

образование плазмы и двухфотонное поглощение. Для достижения этого далее в диссертации будут обсуждаться два пути: 1) использование остросфокусированных фемтосекундных лазерных импульсов среднего ИК-диапазона (более 4 мкм) для уменьшения потерь на двухфотонное поглощение; 2) использование двухцветной пары остросфокусированных фемтосекундных лазерных импульсов для улучшения локализации лазерного воздействия.

4.6.3.2. Распространение излучения 4,6 мкм

Восстановление объемной поглощенной энергии в объеме кремния

Как уже не раз отмечалось, для измерения УЭ необходимо определить поглощенную энергию и объем взаимодействия (V_{int}). Особенностью использования импульсов среднего ИК-диапазона является большая сложность измерения объема взаимодействия поскольку метод трехмерной визуализации распространения лазерного излучения [360], который ранее использовался для излучения ближнего ИК-диапазона, плохо применим из-за низкой чувствительности пироэлектрического матричного сенсора камеры Pyrocam Spiricon III (около десятков мкДж). В связи с этим V_{int} оценивался только для более высоких энергий лазерного излучения. Фемтосекундный импульс фокусировался в воздух для получения значений V_{int} для низких энергий, что приводило к формированию лазерной плазмы. Размер фотоэмиссионной области плазмы при разных энергиях регистрировался с помощью камеры MindVision CCD (пространственное разрешение порядка 1 пикселя на мкм). Степенная функция аппроксимировала зависимость размера плазмы от энергии. При острой фокусировке лазерного излучения среднего ИК-диапазона в объем кремния область взаимодействия V_{int} увеличивается. Таким образом, было проведено сравнение объема области взаимодействия V_{int} в кремнии и в воздухе при энергии лазерного импульса 50 мкДж. В кремнии V_{int} примерно в 18 раз больше, чем в воздухе (разница в диаметре в 2,2 раза и в 3,7 раза по длине области взаимодействия). В предположении, что зависимость объема от энергии в кремнии не будет отличаться от ее поведения в воздухе, был оценен V_{int} (см. ***Рис. 120 (а)***) и рассчитан УЭ. (см. ***Рис. 120 (б)***).



а) *б)*

Рис. 120 а) Зависимость УЭ от энергии лазерного импульса на длине волны 4,6 мкм. Пунктиром показан порог образования микромодификации. б) Энергетическая зависимость нелинейного пропускания (черные точки) и объема взаимодействия (сплошная красная линия). Заштрихованная область показывает область поглощенной энергии.

Таким образом была получена зависимость поглощенной энергии и объема взаимодействия от энергии лазерного импульса, что позволило определить УЭ (см. ***Рис. 120 (а)***). В зависимости УЭ от энергии лазерного импульса имеется ярко выраженный максимум, соответствующий энергии 1,3 мкДж. В экспериментах порог образования микромодификации определялся на основе метода генерации третьей гармоники (см. ***п. 4.4.3***). Этот порог составляет около 1,1 мкДж. Порог образования микроплазмы получен по схеме, аналогичной измерению пропускания, за исключением того, что вместо энергии прошедшего импульса регистрировался сигнал третьей гармоники (образец сдвигался от импульса к импульсу). Порог образования плазмы, измеренный таким методом, составил около 200 нДж (см. ***Рис. 121***).

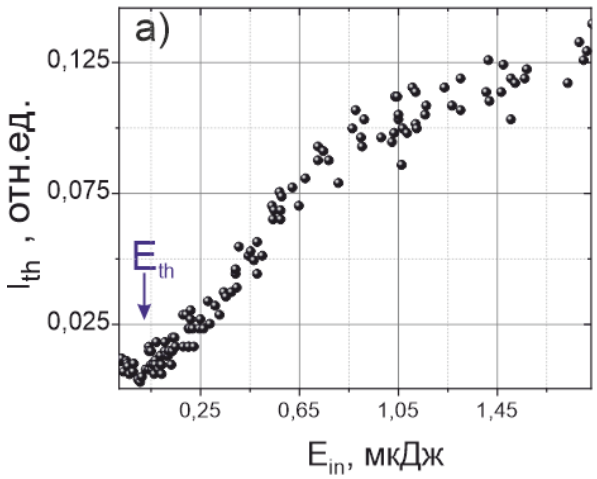


Рис. 121 а) Зависимость эффективности генерации несинхронной третьей гармоники в кремнии от энергии остросфокусированного (NA=0,86) лазерного импульса среднего ИК-диапазона (λ=4,6 мкм). Стрелкой указан порог образования плазмы, определённый по методике генерации третьей гармоники. Образец перемещается от импульса к импульсу.

Тем самым было продемонстрировано, что преодоление порога плазмообразования не является достаточным условием для образования микромодификации. Из-за довольно узкой запрещенной зоны (около 1 эВ) даже при полной ионизации Si ($n_e \sim n_a \sim 10^{22}$ см$^{-3}$) УЭ составит около $h\omega \cdot n_a \sim 1{,}6$ кДж/см^3 (исключая нагрев электронов плазмы), что ниже порога образования микромодификации, оцененного как ~ 5,2 кДж/см^3. Следует также отметить, что при больших значениях энергии лазерного излучения (выше 3 мкДж) из-за значительного увеличения V_{int} полученные экспериментальные значения роста УЭ становятся усредненными по объему. Следовательно, падение УЭ ниже порогового значения не будет указывать на отсутствие микромодификации, и локальные значения УЭ останутся выше порогового значения. Однако наличие ярко выраженного максимума означает, что достигается максимальная эффективность образования микромодификации. Также стоит отметить, что эти эксперименты проводились для положения фокуса на глубине ~125 мкм от поверхности образца. Изменение этого параметра существенно влияет на количество доставляемой до области взаимодействия энергии лазерного излучения из-за аберраций, возникающих при острой фокусировки лазерного излучения в объем кремния (см. ***п. 4.2.3***).

Восстановление размеров объемной микромодификации кремния

Следующая серия экспериментов была направлена на определение размеров лазерно-индуцированных микромодификаций и зависимости этих размеров от энергии лазерного импульса. Было проведено сканирование созданных микромодификаций с использованием техники визуализации третьей гармоники [57]. Когда образец с микромодификацией смещается в направлении, перпендикулярном оптической оси, пик в сигнале третьей гармоники соответствует центру микромодификации. Кроме того, есть второй пик на расстоянии примерно 40-50 мкм от центра. Такой профиль третьей гармоники возникает из-за морфологии микромодификации: в центре находится пустота, окруженная кольцом из сжатого материала с более высокой плотностью, созданного ударной волной (см. ***Рис. 122 (г)***). Таким образом, по аналогии с диэлектриками микромодификация имеет морфологию микрополости [44]. Диаметр кольца при энергиях более 2 мкДж практически не зависит от энергии лазерного импульса. Предполагая, что доля энергии, передаваемой ударной волне, линейно зависит от УЭ, было установлено, что УЭ насыщается при высоких энергиях, которые соответствуют падению УЭ при усреднении по объему воздействия из ***Рис. 120***.

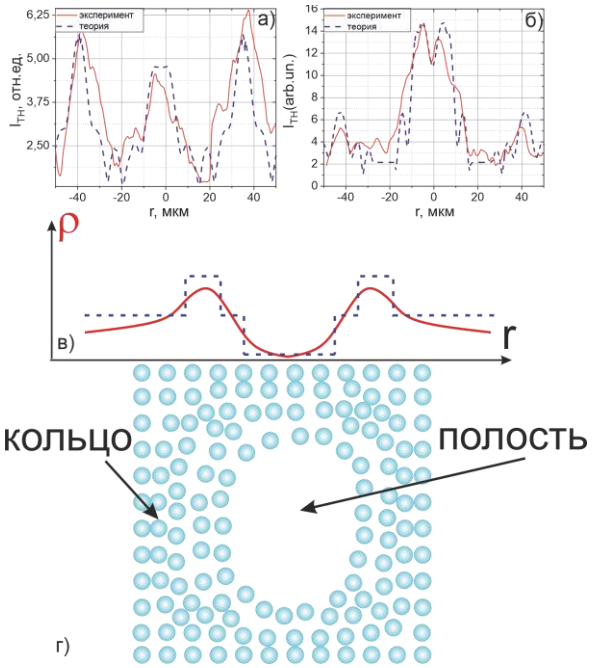


Рис. 122 Зависимость интенсивности третьей гармоники от радиального смещения от центра для микромодификации при диаметре а) 3,4 мкм и б) 7,2 мкм. в) Радиальный профиль плотности (сплошная красная кривая) материала в микрополости используется для моделирования нелинейной восприимчивости третьего порядка $\chi^{(3)}$ в плоскости XY (z - оптическая ось). г) Визуализация профиля микрополости в плоскости XY.

Был также смоделирован профиль сигнала третьей гармоники, используя предположение, что нелинейная восприимчивость третьего порядка имеет профиль, показанный на ***Рис. 122 (в)*** (пунктирная линия). Моделирование совпадает с экспериментальными данными и успешно восстанавливает основные особенности профиля сигнала третьей гармоники. Внимательно проанализировав зависимость сигнала третьей гармоники от координаты в плоскости XY (z - оптическая ось), можно отметить, что третья гармоника генерируется на обеих границах

центральной части микромодификации. При меньшем размере микромодификации эти пики сливаются, образуя один пик [44] (см. ***Рис. 122 (а,б)***).

Кольцо вокруг центральной части, образованное ударной волной, приводит к меньшему скачку нелинейной восприимчивости третьего порядка $\chi^{(3)}$ в центре микромодификации, поскольку центральная часть микромодификации по существу является пустотой. Таким образом, на границе микромодификации наблюдается значительный скачок нелинейности. При прохождении по кольцу плотность изменяется значительно меньше, что приводит к меньшей амплитуде сигнала третьей гармоники. Размеры микромодификаций, полученные методом генерации третьей гармоники, полностью соответствуют результатам оптической микроскопии (см. ***Рис. 123 (а)***). Также достоверность метода, используемого для определения УЭ, подтверждается тем фактом, что зависимость диаметра области плазмообразования от энергии качественно повторяет зависимость диаметра микромодификации от энергии. (см. ***Рис. 123 (б)***). Как показано на ***Рис. 123***, диаметр микромодификации увеличивается с увеличением энергии из-за увеличения объема области взаимодействия. В наших экспериментах минимальный наблюдаемый диаметр микромодификации составлял 3 мкм, а максимальный зарегистрированный размер 28 мкм. Диаметр создаваемых микромодификаций незначительно изменяется от импульса к импульсу, как видно из вставки на ***Рис. 123 (а)***, из-за сильной зависимости от энергии лазерного импульса (RMS ~ 7%).

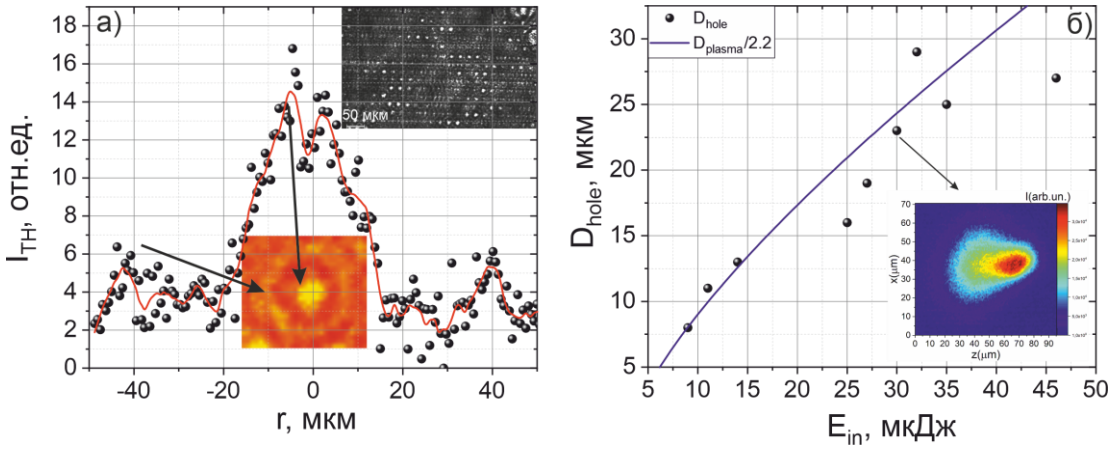


Рис. 123 а) Профиль микромодификации, полученный путем визуализации третьей гармоникой. Энергия лазерного импульса 1,1 мкДж. На вставках показаны отдельные микромодификации, а также массив созданных микромодификаций. б) Зависимость диаметра микромодификации от энергии лазерного импульса. Синяя линия показывает зависимость диаметра области плазмообразования (деленного на коэффициент 2,2) в воздухе от энергии лазерного импульса. На вставке область люминесценции плазмы в крмении.

Следует отметить, что, поскольку излучение на длине волны 4,6 мкм генерируется по схеме усиления чирпированных импульсов в активном элементе Fe:ZnSe (см. ***п. 2.4.2***), лазерный импульс может содержать пико- и наносекундный пьедестал, что, следуя [361], может увеличивать вероятность создания микромодификаций.

Численные расчеты поглощенной энергии в кремнии

Чтобы подтвердить одноимпульсную фемтосекундную объемную микрообработку кремния и выявить возможные физические механизмы, ведущие к этому, экспериментальные исследования были поддержаны численным моделированием динамики плотности свободных

электронов и УЭ в объеме кремния, которые проводились совместно с Стремоуховым С.Ю. и Львовым К.В. Результаты показывают количественное совпадение теоретических результатов с экспериментами и дают оценку достигнутой концентрации и температуры свободных электронов формируемой лазерно-индуцированной плазмы.

Образование микромодификации внутри объема прозрачного материала определяется плотностью лазерной энергии, которая передается материалу посредством возбуждения электронной подсистемы. В настоящее время динамика электронов в валентной зоне и зоне проводимости часто рассчитывается с помощью скоростных уравнений (MRE) [362], что является следствием кинетического уравнения Больцмана [349] и учитывает дискретное распределение энергии электронов в зоне проводимости, таким образом задерживая во времени старт процесса ударной ионизации относительно процесса полевой ионизации. Но стоит отметить, что в MRE вероятность ударной ионизации α намного больше, чем вероятность однофотонного поглощения W_{1pt}. Это означает, что существует только один энергетический уровень с энергией выше критического значения (необходимого для запуска процесса ударной ионизации). Как только электрон достигает критического уровня, он немедленно создает еще один электрон в зоне проводимости и «садится» на более низкий уровень по энергии. Следовательно, кинетическая энергия электронов ограничена критической энергией: $\varepsilon_{cr} = 1{,}5 \times (E_g + U_p) = 1{,}5 \times (E_g + 7{,}5 \cdot I\ [\text{ТВ/см}^2]\ \text{эВ}) \sim 2{,}8$ эВ для интенсивности лазерного излучения 10^{11} Вт/см^2, что типично внутри Si (здесь U_p - пондеромоторная энергия). Но в среднем ИК-диапазоне вероятность однофотонного поглощения становится сопоставимой с вероятностью ударной ионизации [363]:

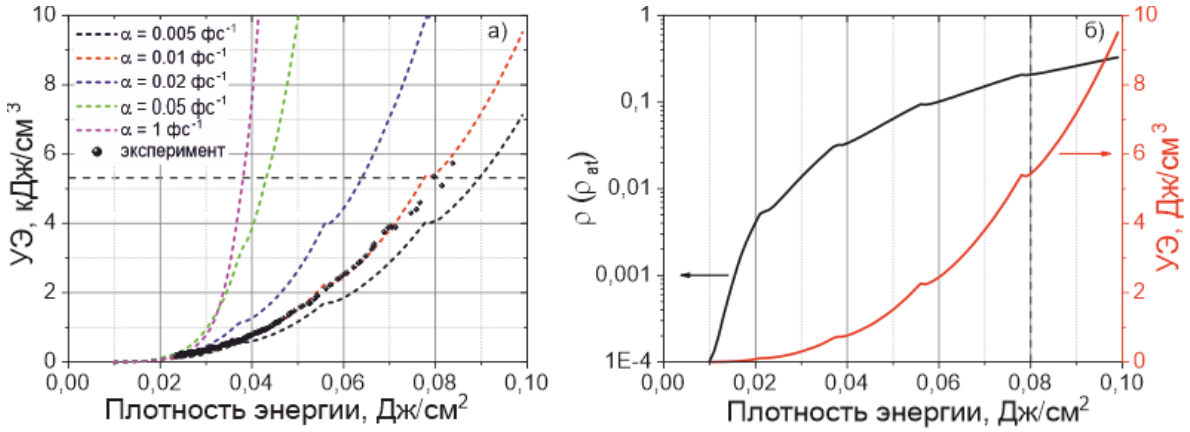
$$W_{1pt} = \frac{U_p}{\hbar\omega} \cdot \frac{\nu_c}{1 + (\nu_c/\omega)^2} \approx \frac{U_p}{\hbar\omega} \cdot \frac{\pi\varepsilon_0}{3e^2} \sqrt{\frac{2}{m_{eff}}}\, {\varepsilon_k}^{1.5} = 2{,}5 \cdot I\left[\frac{\text{ТВт}}{\text{см}^2}\right] \cdot \varepsilon_k[\text{эВ}]^{1.5}\ \text{фс}^{-1}, \quad (57)$$

При интенсивности лазерного излучения I = 10^{11} Вт / см^2 и средней кинетической энергии электронов $\varepsilon_k = 0{,}5 \cdot \varepsilon_{cr} = 1{,}4$ эВ вероятность однофотонного поглощения достигает значения 0,4 фс$^{-1}$, что сравнимо с типичным значением 1 фс$^{-1}$ вероятности ударной ионизации [364]. Этот результат указывает на то, что уровни энергии выше критического должны учитываться в MRE. Чтобы уменьшить вычислительную сложность таких расчетов электронной динамики, был добавлен средний уровень энергии выше критического уровня. Эта часть электронов нагревается лазерным излучением и полностью участвует в механизме ударной ионизации.

Поскольку вероятность ударной ионизации α обычно устанавливается эвристически [362,364], анализировалась динамика электронов с увеличением плотности энергии излучения для широкого диапазона значений α от 0,005 до 1 фс$^{-1}$ (некоторые из них представлены на ***Рис. 124***). При высоких значениях вероятности ударной ионизации электронная лавина быстро прогрессирует, когда электроны нагреваются до критической энергии. Таким образом, УЭ неизбежно растет, поскольку он пропорционален концентрации свободных электронов. При низких значениях вероятности ударной ионизации гораздо больше электронов заселяет усредненный уровень энергии, введенный в стандартную модель MRE, и, как следствие,

демонстрирует более плавный рост с увеличением плотности энергии лазерного излучения. Значения плотности энергии лазерного излучения, достигнутые в эксперименте, представлены в виде черных точек на ***Рис. 124***. Экспериментально измеренный УЭ позволяет установить степенную зависимость от плотности энергии лазерного излучения с показателем степени 2,8, что соответствует вероятности ударной ионизации $\alpha = 0{,}01$ фс$^{-1}$. Это согласуется с величиной, предложенной в некоторых работах [353].

Пунктирная горизонтальная линия на ***Рис. 124 (а)*** показывает порог УЭ плавления кристаллической решетки Si, который соответствует значению 5,3 кДж/см^3 (см. выше). Согласно численным расчетам, это пороговое значение достигается при плотности энергии лазерного излучения выше 0,073 Дж/см^2 (пунктирная вертикальная линия на ***Рис. 124 (а)***).



(а) *(б)*

Рис. 124 а) Зависимость удельного энерговклада (УЭ) для различной вероятности ударной ионизации α от плотности энергии лазерного излучения среднего ИК-диапазона (λ=4,6 мкм). Черные точки указывают экспериментальные значения УЭ. Горизонтальная пунктирная линия отмечает порог УЭ, который необходим для плавления кристаллической решетки Si, а вертикальная пунктирная линия характеризует пороговую плотность энергии лазерного излучения, необходимую для достижения порогового значения УЭ. б) Временной профиль концентрации и средней энергии свободных электронов лазерно-индуцированной плазмы. Временной профиль интенсивности лазерного импульса показан пунктирной линией. Плотность энергии лазерного излучения соответствует пороговому значению 0,08 Дж/см².

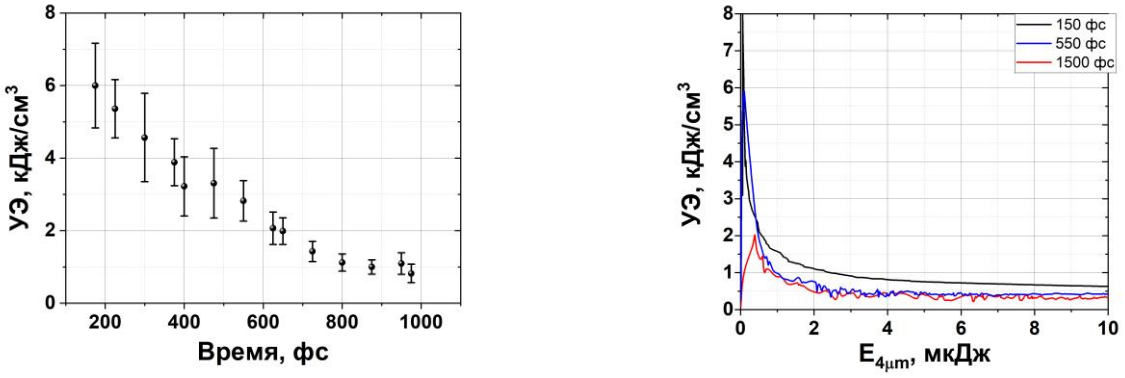
Стоит отметить, что УЭ не только определяется достигнутой концентрацией электронов плазмы (из-за фотоионизации), но также сильно зависит от средней энергии, которую электроны приобретают в зоне проводимости под воздействием лазерного поля. Как упоминалось выше, в среднем ИК-диапазоне вероятность однофотонного поглощения достигает значительно более высоких значений по сравнению с видимым диапазоном длин волн. Следовательно, электроны в зоне проводимости претерпевают значительный нагрев (см. ***Рис. 124 (б)***). Электрон приобретают энергию немного выше 4 эВ при плотности энергии лазерного излучения 0,073 Дж/см^2, что более чем в 3 раза превышает ширину запрещенной зоны Si (1,12 эВ). Это указывает на то, что вклад нагрева электронов в УЭ больше, чем вклад полевой ионизации. Рост средней энергии электронов соответствует центральной части импульса, где интенсивность и, следовательно, скорость однофотонного поглощения являются максимальными по импульсу. В конце импульса из-за более низкой интенсивности скорость однофотонного поглощения снижается до скорости ударной ионизации, что приводит к увеличению электронной концентрации за счет генерирующейся электронной лавины. К концу импульса плотность свободных электронов

достигает значения $0{,}17 \cdot \rho_{at} = 8{,}5 \cdot 10^{21}$ см^3, что примерно в 170 раз больше критической плотности ($\rho_{cr} = 5 \cdot 10^{19}$ см$^{-3}$ для λ = 4,6 мкм). Это означает, что микрообработка подразумевает создание в объеме кремния экстремального режима взаимодействия лазерного излучения с веществом.

Таким образом, впервые продемонстрирована возможность создания микромодификации при острой фокусировке (NA = 0,86 f = 1,84 мм) фемтосекундного излучения среднего ИК-диапазона (энергия ~ несколько мкДж, длительность импульса ~ 200 фс, длина волны 4,6 мкм) в объем кремния. Микромодификации имеют размер от 3 до 30 мкм и морфологию микрополости: пустоты, окруженная кольцом вынесенной лазерно-индуцированной ударной волной массы вещества. Это свидетельствует о высокой локализации поглощенной энергии в микрообъеме, что подтверждается экспериментально измеренными значениями УЭ (более 5 кДж/см^3).

4.6.3.3. Определение роли чирпа в процессе фемтосекундной ионизации (в ближнем и среднем ИК-диапазоне) в диэлектриках и полупроводниках

Одной из уникальных особенностей как хром-форстеритовой системы, так и системы на основе активной среды Fe:ZnSe, является возможность изменения длительности импульса и внесения положительного или отрицательного чирпа за счет изменения расстояния между дифракционными решётками в компрессоре. На ***Рис. 125*** представлена зависимость энерговклада в кремнии от длительности остросфокусированного лазерного излучения среднего ИК-диапазона (λ=4,6 мкм), а также зависимость энерговклада от энергии для трех различных длительностей.



а) *б)*

Рис. 125 Зависимость УЭ в кремнии от длительности остросфокусированного лазерного излучения среднего ИК-диапазона (λ=4,6 мкм); (б) Зависимость УЭ в кремний от энергии остросфокусированного лазерного излучения среднего ИК-диапазона для трех различных длительностей.

В кремнии максимальный энерговклад достигается в случае наиболее коротких лазерных импульсов фемтосекундной длительности. В среднем ИК-диапазоне энерговклад достигает ~6 кДж/см^3 для длительности лазерных импульсов ~150-200 фс, и он уменьшается до 2 кДж/см^3 для при увеличении длительности до пикосекунд (см. ***Рис. 125***). При воздействии на кремний излучения на длине волны 1,24 мкм, энерговклад достигает 3 кДж/см^3 из-за сильной делокализации лазерного импульса. Сильная делокализация вызвана эффективной полевой инизацией из-за близости энергии кванта к ширине запрещенной зоне, в результате электронная плазма образуется не только в фокусе, но и перед ним, в результате лишь малая (порядка 10%)

доля энергии лазерного импульса доходит до фокуса. Во фториде магния максимальный энерговклад в 12 кДж/см^3 наблюдается для фемтосекундных импульсов ближнего ИК-диапазона, при увеличении длительности он уменьшается до 4 кДж/см^3, как и в случае кремния. Энерговклад, достигаемый при использовании импульсов среднего ИК-диапазона уменьшается до 6 кДж/см^3 и 2 кДж/см^3 соответственно, это вызвано увеличением области плазмообразования (за счет худшей фокусировки длинноволнового излучения) и менее эффективной полевой ионизации (за счет очень большой степени фотонности ~40). В экспериментах не было обнаружено значительного влияния знака чирпа (в пределах ошибки эксперимента).

§4.7. Двухцветное воздействие остросфокусированной парой фемтосекундных лазерных импульсов на объем конденсированной среды

На сегодняшний день существует множество технологий, востребованных в области микро- и наноструктурирования объема и поверхности материалов, поэтому процессы ионизации и пробоя вещества с использованием одиночных или последовательности фемтосекундных импульсов УФ и ИК-диапазонов является предметом активных теоретических и экспериментальных междисциплинарных исследований [365–367]. В приведенном далее литературном обзоре в первую очередь уделено внимание работам, в которых обсуждаются способы увеличения энерговклада в среду при микромодификации материала в одноимпульсном и двухимпульсном режимах воздействия в объеме и на поверхности материала, а также работам, в которых исследуются условия создания экстремальных состояний вещества.

Однако прежде, чем остановится на обзоре работ, посвященных энерговкладу, необходимо отметить работы по модификации только поверхности материала. Они сфокусированы на механизме формирования самоиндуцированных периодических наноструктур с периодом, меньшим длины волны лазерного излучения [368,369]. В статье [370] процесс создания самоиндуцированных периодических наноструктур был изучен в различных материалах (плавленый кварц, кремний, титан) при воздействии двух последовательных импульсов (50фс; 400 и 800 нм) с энергиями меньше порога абляции и с варьируемой задержкой по времени (от -10 пс до 10 пс). Двухцветная методика использовалась для изучения механизма образования модификаций на поверхности. Наблюдалась сильная чувствительность процесса создания лазерно-индуцированного дефекта к выбранному материалу, что отражалось в различной морфологии модификации: разного периода нанонитей, их ориентации и разной площади модифицированной области. Было выявлено, что для плавленого кварца первый импульс всегда определяет ориентацию шероховатостей и их период. Для кремния и титана именно ИК импульс определяет пространственные параметры модификации независимо от последовательности прихода импульсов в среду при временном задержке между импульсами более 2 пс. Для задержки менее 2 пс оба импульса влияют на морфологию модификации. Зависимость процесса образования дефекта от задержки между импульсами для полупроводников (кремния) и металлов

(титана) была объяснена авторами через плазмонный механизм его образования. Для плавленого кварца был предложен не плазмонный механизм образования периодических наноструктур, когда первым импульс генерирует пространственно распределенные затравочные электроны в зоне проводимости, которые затем взаимодействуют со вторым импульсом. В диссертации двухимпульсное воздействие на поверхности диэлектрика было выполнено исключительно в методических целях, а полученные результаты полностью соответствовали результатам, полученным в группе профессора П. Коркума и по этой причине, не представляли интереса для глубокого изучения.

Далее рассмотрены работы, где исследуемый метод можно одинаково применить как для модификации поверхности, так и объема материала. Основной рассматриваемый в данном обзоре вопрос — это существующие подходы к увеличению эффективности передачи энергии от лазерного импульса в материал. Принципы управления энерговкладом можно разделить на несколько групп.

Самый распространенный способ – это модификация материала в одноимпульсном режиме воздействия излучением с длиной волны в УФ или мягком рентгеновском диапазоне. Уменьшение длины волны воздействующего излучения понижает степень фотонности процесса многофотонной ионизации, увеличивая ее скорость соответственно. Также за счет дифракционного предела коротковолновый импульс фокусируется в меньшую область по сравнению с более длинноволновым импульсом. Таким образом, использование импульса УФ диапазона в одноимпульсном режиме позволяет создать энерговклад, необходимый для пробоя поверхности и объема диэлектрика при относительно низкой энергии в пучке (менее 1 мкДж). Однако для получения импульсов в обозначенных диапазонах необходимо использовать нелинейные преобразования, эффективность которых мала (10-20%), таким образом выигрыш в энерговкладе при таком подходе теряется. В работе [371] использование остросфокусированного (NA=0,65) высокоэнергичного УФ импульса (267 нм, 82 нДж) позволяет получать модификации на глубине 300 мкм с периодом 300 нм. Для получения такой энергии в третьей гармонике использовался импульс основного излучения (800 нм) с энергией более 500 нДж. Еще одним недостатком использование УФ импульса для микрообработки являются возникающие аберрации при острой фокусировке и двухфотонное поглощение в большинстве диэлектриков, что соответственно делает невозможным управление формой наводимых модификаций и ограничивает класс сред для микроструктурирования.

Другим подходом к увеличению эффективности передачи энергии от лазерного излучения в материал является использование лазерных импульсов с отличным от гауссова поперечного распределения интенсивности. В работах [367,372], было показано, что использование лазерного излучения, имеющего распределение интенсивности по функции Бесселя вместо гауссовой моды, позволяет осуществлять прецизионное структурирование материала в объеме и на поверхности с размерами дефектов до $\lambda/2$. Нелинейные эффекты, такие как керровская нелинейность, дефокусировка, влияющие на пространственное уширение размеров пучка, не влияют на

объемную микрообработку материала из-за высокой стабильности Бесселева пучка при больших интенсивностях, что в свою очередь позволяет повысить эффективность передачи энергии от лазерного излучения в материал. Также в статье [373] были проведено численное моделирование (модель основывалась на уравнениях Максвелла) распространения гауссова пучка и пучка тороидальной формы в плавленом кварце с параметрами (800 нм, 45 фс 2 мкДж), было показано что максимально поглощенная энергия увеличивается в 14 раз в случае использование второго пучка, в случае использования гауссова пучка она достигает величины 1,9 кДж/см^3. Моделирование динамики распространения тороидального пучка выявила такие эффекты как раздвоение пучка (430 фс) и его коллапсирование (580 фс) на оси, что позволило избежать эффекта насыщения интенсивности и, таким образом, увеличить энерговклад в среду. Возбужденная область объема материала представляла собой наноцилиндр, внутри которого достигаются давления, необходимые для получения новой метастабильной фазы вещества.

Необходимо отметить, что особый интерес для фундаментальных исследований последние 10 лет [278,374–376] вызывает феномен пространственного разделение ионов с разными массами в горячей плазме под действием давления до ТПа внутри материала, данное состояние вещества является новой неизученной метастабильной фазой вещества. В работе [377] теоретически моделировался процесс передачи энергии от лазерного импульса в объем вещества и обсуждалась необходимость повышения эффективности энерговклада для получения давлений (до ТПа) в облучаемом объеме (диаметр зоны ~ 300 нм), необходимых для эффекта разделения ионов. Однако в качестве метода увеличения энерговклада было предложено увеличение интенсивности используемого излучения и использование острой фокусировки (NA>1), что ведет к увеличению скорости ионизации и резкому уменьшению действительной части диэлектрической проницаемости и групповой скорости импульса, что ведет к эффективному поглощению, жесткая фокусировка (NA~1,45) импульса 800 нм 160 фс и 1,17×10^{13} Вт/см^2 позволяет теоретически достичь значений удельного энерговклада порядка 9,45×10^2 кДж/см^3 и ТПа давлений. Данная статья демонстрирует поддерживающийся высокий интерес в мире к поднимаемой в рамках данной диссертации междисциплинарной задаче увеличения энерговклада.

Третьим подходом, позволяющим значительно увеличить эффективность передачи от лазерного импульса в ионную подсистему, является методика двухцветного фемтосекундного воздействия на вещество. Преимущество использования методики при тандемном воздействии на поверхность диэлектрика парой слабо сфокусированных импульсов ВГ и ИК с точки зрения наилучшего контроля за энерговкладом была продемонстрирована в работе [378]. Проведенные экспериментальные измерения объема формируемой микроплазмы позволили получить информацию об объемной плотности поглощенной энергии и впервые связать ее с порогом визуальной регистрации лазерно-индуцированной микромодификации. Полученное значение объемной плотности поглощенной энергии 4,5 кДж/см^3, при которой с помощью оптического микроскопа регистрируется микромодификация, говорит о том, что именно наличие

сверхкритической микроплазмы дает возможность сформировать лазерно-индуцированный дефект в объеме широкозонного диэлектрика, что является новым результатом.

Первые результаты по прецизионной микромодификации поверхности мишени под действием тандемных УФ-ИК фемтосекундных импульсов с использованием излучения титан-сапфирового лазера и его третьей гармоники были опубликованы с статьях [379–381]. В этих работах был предложен следующий механизм модификации материала: фемтосекундный УФ лазерный импульс за счет процессов полевой ионизации генерирует затравочные электроны с концентрацией значительно меньше критической для данной длины волны возбуждения, в то время как ИК лазерный импульс через лавинную ионизацию затравочных электронов создает пробой в микрообъеме, локализацию которого определяет коротковолновый импульс. Именно разделение стадий генерации электронов плазмы было новаторским способом увеличения энерговклада (на 90%) в среду при использовании технически несложных элементов (нет жесткой фокусировки, не требуется большая энергия в пучке (менее 2 мкДж)). Несмотря на то, что методика двухцветного воздействия активно исследуется последние 5 лет при воздействии на поверхность мишени, механизм возбуждения плазмы критической концентрации, а именно роль лавинной ионизации в данном процессе оставалась до конца неясна. В работах [378,382] на основании зависимости полной кинетической энергии возбужденных электронов и фазового сдвига в пробном пучке от задержки между УФ и ИК импульсами делается вывод о незначительной роли лавинной ионизации и предполагается механизм двухступенчатой многофотонной ионизации.

В диссертации был разработан принципиально новый подход к микроструктурированию конденсированной среды в области её прозрачности и исследован процесс формирования модификаций предельно малых размеров (менее 3 мкм) при острой фокусировке двухцветной пары низкоэнергетичных (до нескольких мкДж) фемтосекундных лазерных импульсов в объем широкозонного диэлектрика. Здесь и далее под *тандемным воздействием* будем понимать совместное воздействие двух лазерных импульсов на вещество. Теоретико-экспериментальное исследование в диссертации было проведено на примере широкозонных диэлектриков - плавленого и кристаллического кварца, – что без ограничения общности позволяет сделать общие выводы, применимые для всего класса диэлектрических сред. В процессе исследований, проведенных в диссертации, был однозначно выявлен механизм двухцветного воздействия на вещество. Установлено, что процесс многофотонной ионизации является определяющим фактором в создании затравочных (свободных) электронов в широкозонных диэлектриках, в то время как нагрев электронов плазмы оказывается значительно более эффективным процессом в создании свободных электронов с критической концентрацией и в достижении критического значения объёмного энерговклада. Таким образом, был теоретически смоделирован и экспериментально проверен механизм двухцветного воздействия на объем широкозонного диэлектрика. Также был впервые рассмотрен вопрос о влиянии концентрации затравочных примесных электронов на распределение поглощенной энергии греющего ИК импульса.

4.7.1. Определение размеров области взаимодействия по сигналу люминесценции плазмы и третьей гармоники

Необходимая для оптического пробоя локализация энергии в микрообъеме образца создается за счет разделения стадий генерации электронов плазмы и увеличения их концентрации и средней энергии при использовании двух импульсов с разными длинами волн. Предшествующий по времени коротковолновый (УФ, видимый) лазерный импульс генерирует затравочные электроны в зоне проводимости путем многофотонной ионизации, в то время как последующий длинноволновый (ИК) лазерный импульс осуществляет эффективный нагрев электронов и обеспечивает энерговклад необходимый для локальной модияикации прозрачного материала. Использование двухцветной методики воздействия на вещество позволяет реализовать преимущества каждого импульса при микрообработке материала. Так, коротковолновые (УФ, видимый) импульсы эффективны при многофотонной ионизации за счет малой степени фотонности и могут быть сфокусированы в меньшее пятно. С другой стороны, длинноволновые (ИК) импульсы эффективнее «нагревают», а критическая мощность самофокусировки (~λ^2) больше [380,381]. Данный подход позволил снизить энергии в импульсах, необходимые для микромодификации конденсированной среды, до 90% по сравнению с одноимпульсным режимом, а также позволил осуществлять прецизионное управление ее размерами [379].

4.7.1.1. Определение порогов плазмообразования и геометрических размеров области локализации энергии воздействующих лазерных импульсов

Для изучения режима лазерного воздействия на объем широкозонного диэлектрика были проведены эксперименты по определению порогов плазмообразования и размеров перетяжек используемых острофокусируемых импульсов второй гармоники (620 нм, 150 фс) и основного излучения (1240 нм, 200 фс) хром-форстеритового лазера. Для определения порога использовалось две методики: первая основана на регистрации нелинейного пропускания образца при поглощении энергии лазерного импульса в плазме, вторая – на генерации третьей гармоники на лазерно-индуцированной плазме (см. ***§4.4***) [229]. Было проведено две серии экспериментов с линзами разных числовых апертур (A240TM (Rochester) с NA=0,5 и CAY033 с NA=0,4) для изучения влияния различных условий фокусировки лазерного излучения на процесс образования модификаций.

На ***Рис. 126*** приведены графики зависимости пропускания лазерного импульса через образец и сигнала третьей гармоники (ТГ) от падающей энергии лазерного излучения в плавленом кварце. Порог плазмообразования определялся по резкому росту сигнала ТГ и изменению поглощения в объеме плавленого кварца. Исходя из полученных данных, можно определить пороговую энергию, она составляет порядка 2,3 мкДж для ИК и 1,1 мкДж для ВГ при фокусировке линзой A240TM и 1,72 мкДж для ИК и 0,82 мкДж для ВГ при использовании линзы

CAY033. Далее в тексте диссертации для удобства анализа и сравнения получаемых экспериментальных и теоретических данных все значения энергии нормировались на «пороговое значение», полученное для конкретных условий фокусировки.

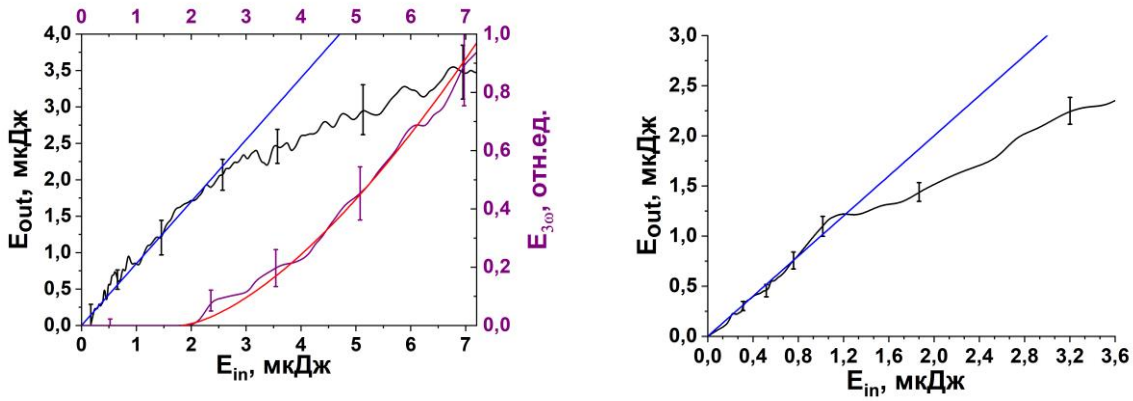


Рис. 126 Определение порога плазмообразования при острой фокусировке в объеме плавленого кварца: а) ИК-излучения, при измерении сигнала третьей гармоники (пурпурная линия) и нелинейного пропускания (черная линия); б) второй гармоники основного излучения хром-форстеритового лазера с регистрацией по нелинейному пропусканию (черная линия).

В ключевых экспериментах по созданию микромодификаций с помощью двухцветного воздействия на вещество, а также при исследовании тандемной микроплазмы энергии лазерных импульсов устанавливались ниже порога плазмообразования. Это гарантировало тандемную работу двух следующих друг за другом импульсов, а не ионизацию материала каждым из импульсов отдельно. Объем воздействия определялся по методике подробно описанной в ***п. 4.4.1*** (также см. ***Рис. 92***).

4.7.2. Экспериментальная схема двухцветного воздействия остросфокусированных фемтосекундных лазерных импульсов на объем конденсированной среды во встречной геометрии пучков

Для реализации методики двухцветного воздействия на объем прозрачного материала рассматривались две схемы – во встречной и соосной геометрии взаимодействия лазерных пучков. Встречная геометрия применялась на первых этапах исследования. При изучении непосредственно процесса создания устойчивых модификаций экспериментальная установка была модернизирована под попутную геометрию взаимодействия пучков с разными длинами волн. Основное преимущество соосной схемы — это возможность передвижения образца по направлению распространения импульса в целях работы на контролируемой глубине в объеме материала. Другим преимуществом соосной геометрии является более точное сведение двух перетяжек в пространстве (до 1 мкм). Для создания тандемной микроплазмы достаточно, чтобы перетяжки затравочного и греющего импульса совмещались в пространстве с точностью поперечных размеров микроплазмы (~4 мкм) при энергии чуть выше пороговой. Для всестороннего исследования процесса создания тандемной микроплазмы эксперименты, проведенные при встречной геометрии, были повторены в соосной схеме. Принципиальных отличий выявлено не было. Данный факт исключает влияние взаимного расположения лазерных пучков на параметры микроплазмы, созданной при двухцветном взаимодействии. Это еще раз

подтверждает тот факт, что оба импульса имеют энергию ниже порога плазмообразования. ИК импульс, приходящий в среду с задержкой по времени и не возмущающий среду самостоятельно, взаимодействует только с электронами, сгенерированными первым коротковолновым лазерным импульсом, поэтому не чувствует с какой стороны распространяется излучение, инициирующее эти затравочные электроны.

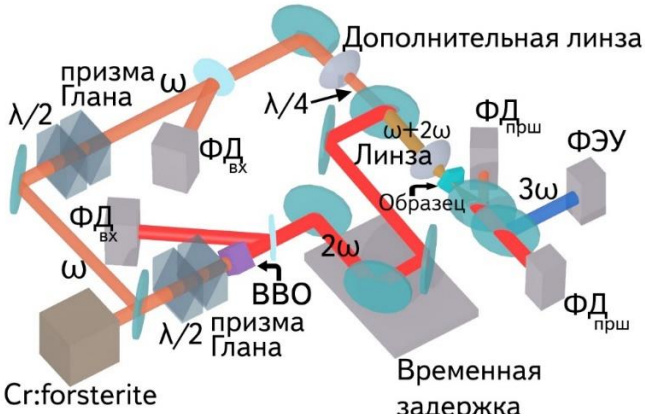


Рис. 127 Экспериментальная схема. Излучение делится на два канала в соотношении 30/70. Энергия в каждом из каналов варьируется вращением полуволновой пластины при фиксированном положении призмы Глана. Преобразование во вторую гармонику осуществляется в кристалле BBO. Фокусировка производиться с помощью асферических линз CAY033. Контроль энергии осуществляется с помощью фотодетекторов (ФД) и фотоэлектронного умножителя (ФЭУ)

Экспериментальная схема для воздействия на объем диэлектрика парой остросфокусированных фемтосекундных лазерных импульсов в соосной геометрии показана на ***Рис. 127***. Излучение хром-форстеритовой лазерной системы на входе в схему делилось в соотношении 30/70 на два канала: греющий ИК импульс (1240 нм) и канал затравочного излучения с длиной волны 620 нм. Основное излучение хром-форстеритового лазера во втором канале с помощью кристалла BBO (10x10x1 мм^3, I тип, θ=21, φ=0, эффективность преобразования 30%) преобразовывалось во вторую гармонику (ВГ), поляризация которого перпендикулярна поляризации ИК излучения. Непреобразованная часть основного излучения хром-форстеритового лазера, прошедшего через генератор ВГ, блокировалось с помощью фильтра СЗС-27, после чего излучение ВГ направлялось на моторизованную линию задержки (1 шаг = 8,3 фс), управляемой компьютером. Энергию в каждом канале возможно было изменять независимо с помощью полуволновой пластины и призмы Глана. Греющее (ИК) и затравочное (ВГ) излучения фокусировались в образец с помощью острофокусирующей (f=8 мм, NA=0,5; f=3,3 мм, NA=0,4) асферической линзы A240TM/CAY033, однако для того, чтобы скомпенсировать разницу фокусных расстояний, возникающую из-за использования излучений разных длин волн, в ИК канал устанавливалась дополнительная линза (f=50 см). Попутная геометрия отличалась от встречной только наличием дополнительной длиннофокусной (f=50 см) линзы в ИК канале.

Энергия лазерного излучения в каждом из каналов регистрировалась с помощью фотодетекторов PDA-100A (ВГ) и PDA-50B (ИК) соответственно. Греющий ИК лазерный импульс, фокусируясь в объеме образца, генерировал третью гармонику (ТГ), которая вместе с

оставшейся частью ИК излучения проходило через дихроичное зеркало (зеркало существенным образом не меняет энергию ТГ и ИК), где с помощью другого дихроичного зеркала производилось разделение двух сигналов: ИК излучение фокусировалось в приемную апертуру ФД PDA-100A, а третья гармоника собиралась на ФЭУ. Дополнительно перед ФЭУ был установлен набор фильтров и поляризатор для выделения сигнала ТГ (поляризации ВГ и ТГ перпендикулярны). В ходе исследований регистрировались зависимость ТГ и прошедшего ИК импульса от времени, а также зависимость ТГ от входной энергии ИК и ВГ при фиксированной энергии ВГ и ИК соответственно. Для исключения работы по модифицированному предыдущим импульсом объему образца, он был установлен на моторизованную трехосевую подвижку, передвигающуюся с частотой повторения импульсов.

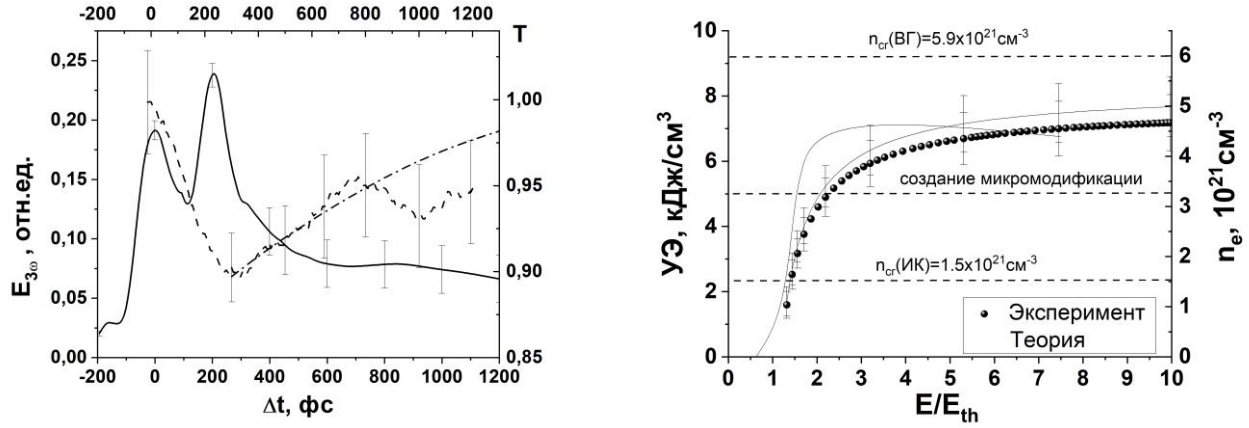
Важной особенностью разработанной технологии является контроль процесса создания микромодификации, а именно первой ее стадии – образования микроплазмы в режиме реального времени. Информация о воздействии лазерного импульса на среду собирается в том же выстреле: производится одновременная запись сигнала третьей гармоники, пропускания основного излучения и второй гармоники хром-форстеритового лазера, а также изображение области воздействия лазерных импульсов на среду в двух взаимно перпендикулярных плоскостях. Таким образом, можно управлять УЭ в среду во время работы по сигналу обратной связи, соответствующим образом изменяя энергию в каждом из управляющих каналов ВГ и ИК, что является ключевой особенностью развиваемого в диссертации подхода.

4.7.3. Тандемное воздействие двухцветной парой остросфокусированных фемтосекундных лазерных импульсов на объем конденсированной среды: теория и эксперимент

Первая серия экспериментов была посвящена исследованию микроплазмы, инициируемой тандемным воздействием двух встречных пучков (ИК и ВГ). Основная цель экспериментов – установление условий повышения энерговклада в среду, что в дальнейшем позволит создавать в материале ударные возмущения с давлениями порядка десятков ГПа и исследовать экстремальные состояния вещества. Реализовать эту задачу при тандемном методе воздействия на объем среды можно несколькими способами, что и было продемонстрировано в рамках диссертационного исследования. Первый способ увеличить УЭ — это выбор оптимальной задержки между затравочным и греющим импульсами для формированием микроплазмы с большей концентрацией свободных электронов [383]. Второй способ увеличения УЭ заключается в подборе оптимального соотношения энергий, греющего и затравочного импульсов, при этом необходимо соблюсти условие минимизации размера наводимого дефекта. Также в диссертации был предложен новый, не имеющий мировых аналогов подход к увеличению эффективности процесса нагрева созданных предыдущим коротковолновым импульсом электронов плазмы в объеме среды. Известно, что пондеромоторная сила, действующая на электрон в поле электромагнитной волны, зависит от степени поляризации

данной волны [384], поэтому в работе впервые было проведено исследование влияния поляризации греющего импульса на эффективность энерговклада в среду.

Теоретическое моделирование процесса взаимодействия вещества с парой фемтосекундных импульсов и экспериментальные данные показали, что для эффективного энерговклада в среду необходимо, чтобы воздействующие импульсы шли с некоторой задержкой друг относительно друга [48,385]. В таком случае затравочный (620 нм) импульс успеет возбудить электронное «облако», которое потом будет разгоняться греющим импульсом (1240 нм). Для выбора оптимальной задержки было проведено исследование эволюции концентрации электронов тандемной микроплазмы.



(а) *(б)*

Рис. 128 (а) Сигнал ТГ (сплошная линия) и пропускание ИК (пунктир) при тандемном воздействии импульса ВГ с энергией 0,2 Eth и ИК импульса с энергией-0,65 Eth. Штрих-пунктир отражает теоретическую зависимость. (б) Измеренный (точки) и рассчитанный (сплошная линия) удельный энерговклад в зависимости от энергии импульса ВГ, нормированной на его пороговое значение (около 1 мкДж) внутри плавленого кварца. Пунктирной линией показано значение плотности поглощенной энергии, достаточное для образования микромодификации.

Эволюция сигналов ТГ и нелинейного пропускания ИК в зависимости от задержки между импульсами показана на ***Рис. 128 (а)***. «0» отвечает моменту совпадению максимумов огибающих импульсов во времени (при отрицательных задержках ИК импульс приходит раньше ВГ). Как уже было отмечено выше, рост сигнала ТГ служит индикатором тандемного воздействия на вещество. Таким образом, эволюция сигнала ТГ и пропускания ИК дает информацию о концентрации электронов микроплазмы. Как было показано в [386], эффективность ГТГ зависит от двух противодействующих процессов – роста ТГ с увеличением концентрации электронов, ведущего к уменьшению симметрии системы, и падения сигнал ТГ, вызванного увеличением волновой расстройки между импульсами ИК и ТГ. Исходя из этого, можно заключить, что первый пик (***Рис. 128 (а)***) отвечает перекрытию двух импульсов во времени. Дальнейшее уменьшение сигнала ТГ связано с увеличением волновой расстройки, и следовательно, максимум электронной концентрации приходится на максимальную волновую расстройку, что соответствует минимуму сигнала ТГ между пиками. Последующий рост связан с релаксацией электронной подсистемы. Второй максимум сигнала соответствует оптимальному для генерации ТГ соотношению между волновой расстройкой и асимметрией системы, связанной с наличием

лазерно-индуцированной плазмы. В отличие от сигнала ТГ, который реагирует на градиент электронной концентрации, сигнал прошедшего импульса основного излучения собирается из всей перетяжки и, таким образом, не имеет двухпиковой структуры. Минимум сигнала пропускания наблюдается в момент, когда электронная концентрация максимальна, то есть в момент оптимального сведения пучков. Точность сведения равна половине длительности ИК импульса ~100 фс. Сравнивая этот результат с полученными в литературе, можно сделать вывод, что оптимальная задержка всегда приходится на хвост затравочного импульса, то есть на момент, когда формируется плазма с максимальной концентрацией затравочных электронов. Время оптимальной задержки должно быть меньше времени релаксации электронов в данном материале (время жизни электронов в плавленом кварце ~150 фс). Для каждого конкретного эксперимента величина оптимальной задержки будет изменяться в зависимости от длительности используемых импульсов и материала. В качестве критерия определения этой величины можно использовать обе вышеперечисленные методики. Измеренные зависимости подтверждают тандемный характер воздействия двух остросфокусированных лазерных импульсов на объем прозрачной конденсированной среды. Это определяется тем, что максимум третьей гармоники смещается ближе к вершине импульса с увеличением энергии второй гармоники. Это хорошо объясняется предложенным теоретическим подходом и результатами численных расчетов, которые представлены ниже. Таким образом, предложенная геометрия воздействия остросфокусированных фемтосекундных лазерных импульсов на вещество дает возможность использовать онлайн-диагностику ТГ для наблюдения в динамике двух механизмов «докачки» энергии в плавленый кварц: генерация затравочных электронов коротковолновым импульсом за счет многофотонной ионизации и, нагрев затравочных электронов длинноволновым лазерным импульсом.

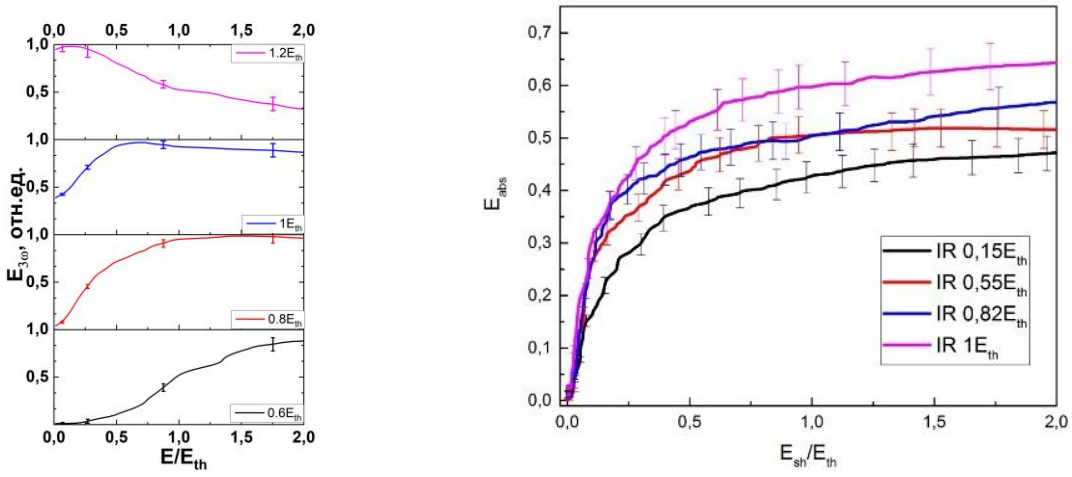
4.7.3.1. Воздействие двухцветной парой 1240 нм и 620 нм

На ***Рис. 128*** представлена зависимость УЭ как функция энергии коротковолнового (ВГ) импульса. Регистрируемое насыщение плотности поглощенной энергии связано с тем, что в области фокуса концентрация электронов плазмы приближается или даже может превзойти критическое значение для длины волны ИК лазерного импульса (см. ***Рис. 128 (б)***). Следует отметить, что остаточная микромодификация после воздействия излучением ВГ может быть зарегистрирована по сигналу третьей гармоники при энергии, вдвое превышающей пороговое значение 1 мкДж. Таким образом, на основании данных, представленных на ***Рис. 128 (б)***, можно сделать вывод, что удельный энерговклад, при котором создается микромодификация в объеме образца, близок к 4,5 кДж/см^3. Простую зависимость между удельным энерговкладом УЭ и концентрацией свободных электронов n_e (с учетом ширины запрещенной зоны E_g, которая для плавленого кварца равна 9 эВ) можно записать в виде $E/V \cong n_e \cdot E_g = n_e \cdot 14{,}4 \cdot 10^{-19}$ Дж/см^3. Таким образом, грубый расчет концентрации электронов, выполненный для плотности поглощенной энергии 4,5 кДж/см^3, позволяет сделать оценку на уровне 3,1x10^{21} см$^{-3}$, которая с

учетом рекомбинационного вклада (см. далее) может быть уменьшена до $2{,}2\cdot10^{21}$ $см^{-3}$, что составляет 40% от критической концентрации для данной длины волны.

Обнаруженный эффект увеличения эффективности передачи энергии при тандемном воздействии двух остросфокусированных фемтосекундных импульсов служит подтверждением предложенного механизма двухцветного воздействия. Использование двухцветной методики воздействия на вещество позволяет реализовать преимущества каждого импульса при микрообработке материала, при этом минимизировав его недостатки.

В ряде статей показано, что объем модификации определяется областью воздействия затравочного импульса на вещество [378,379]. Режим работы с низкоэнергетичным (40% от пороговой энергии) затравочным импульсом (для достижения минимального объема дефектов) и подпороговым греющим импульсом (90% от пороговой энергии) (для эффективного разгона затравочных электронов), позволяет решить поставленную задачу. Для экспериментально доказательства эффективности выбранного соотношения энергий при тандемном воздействии на вещество были проведены эксперименты, в которых при фиксированной энергии основного излучения изменялась энергия ВГ и измерялся сигнал ТГ (см. ***Рис. 129***).



(а) *(б)*

Рис. 129 (а)-Зависимость сигнала третьей гармоники (б)- поглощенной энергии ИК импульса от энергии второй гармоники при фиксированной энергии основного излучения (указана на графиках) при тандемном воздействии на объем плавленого кварца.

Когда энергия ИК импульса меньше порога возникновения плазмы, рост энергии второй гармоники приводит к росту сигнала ТГ, что связано с увеличением электронной концентрации, а значит и увеличением энерговклада в микрообъем плавленого кварца. Однако увеличение энергии ВГ приводит и к увеличению размеров лазерно-индуцированных модификаций, что будет показано ниже. С другой стороны, при уменьшении ВГ менее 40% от пороговой энергии, затравочных электронов становится недостаточно для последующего процесса эффективного нагрева. С ростом энергии ИК импульса максимум сигнала ТГ сдвигается в сторону меньших энергий за счет того, что затравочные электроны плазмы начинают сильнее нагреваться.

4.7.3.2. Численное моделирование тандемного воздействия остросфокусированных лазерных импульсов на объем плавленого кварца

Для качественного и полуколичественного описания основных экспериментальных результатов по созданию фемтосекундным лазерным излучением микроплазмы и ее эволюции в объеме прозрачного диэлектрика использовалась следующая теоретическая модель, разработка и развитие которой осуществлялись в тесном сотрудничестве с профессором физического факультета МГУ имени М.В.Ломоносова Платоненко В.Т. и зав. лабораторией химических лазеров Федерального исследовательского центра химической физики и медицинской химии РАН Бравым Б.Г. Эволюция лазерного импульса в объеме прозрачного диэлектрика описывалась нелинейным уравнением Шредингера, учитывающим такие эффекты как дифракция, дисперсия групповой скорости, керровская нелинейность, ионизация среды и влияние на импульс образующейся электронной плазмы (электронов в зоне проводимости) [387]. В этом разделе, в основном, будут рассмотрены вопросы, связанные с образованием плазмы и ее влиянием на распространение импульса, то есть с величиной энерговклада и его геометрией, а также влиянием длины волны излучения на процессы плазмообразования. Образование плазмы обусловлено процессами полевой ионизации (многофотонной или туннельной [221]) и последующей лавинной ионизацией. Изменение во времени концентрации электронов плазмы N_e обычно описывается следующим кинетическим уравнением:

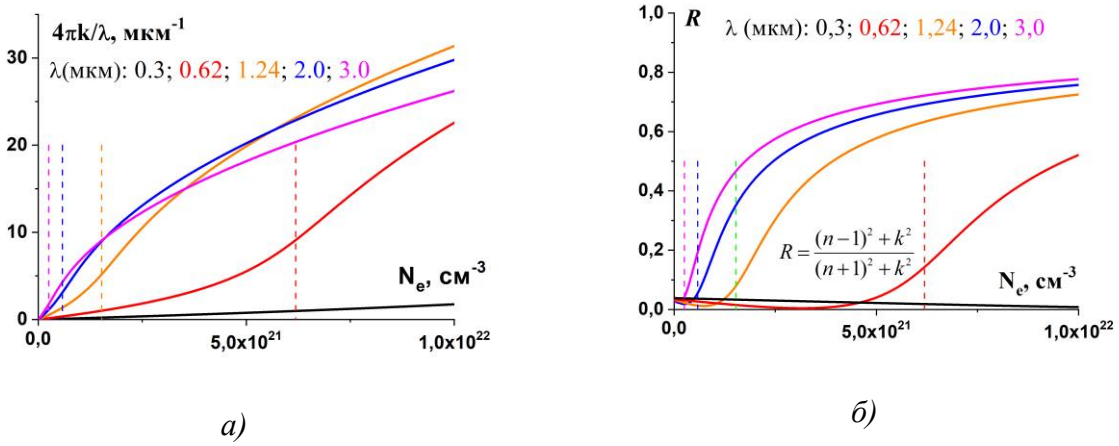
$$\frac{\partial N_e}{\partial t} = W(I) + \frac{\sigma I N_e}{E_g + E_p} - \frac{N_e}{\tau_r}, \qquad (58)$$

где $W(I)$ – скорость объемной фотоионизации, I - интенсивность излучения, σ - сечение поглощения излучения плазмой (обратное тормозное излучение), E_g и E_p – энергия ионизации и пондеромоторная энергия, τ_r – характерное время рекомбинации. Объемная скорость полевой ионизации очень нелинейно зависит от интенсивности и от числа фотонов, необходимых для преодоления энергии ионизации, поэтому при равной интенсивности она будет возрастать на порядки при уменьшении длины волны. Второй член в (*58*) описывает лавинную ионизацию с сечением, определяемым в модели Друде выражением (*59*):

$$\sigma = \frac{4\pi e^2 \tau_c}{n_0 c m_{\text{eh}} (1 + \omega_0^2 \tau_c^2)}, \qquad (59)$$

где τ_c – характерное время столкновения, ω_o – несущая частота, c – скорость света, e – заряд электрона, m_{eh} – эффективная масса электронно-дырочной пары, n_0 – линейный показатель преломления. Зависимость от длины волны этого сечения будет определяться величиной $\omega_0^2 \tau_c^2$ и для плавленого кварца с $\tau_c = 1{,}3$ фс при изменении длины волны от 0,3 мкм до 3 мкм сечение поглощения увеличится в 40 раз. Казалось бы, это прямое указание на то, что для увеличения концентрации электронов плазмы за счет их нагрева лучше использовать длинноволновое излучение. Но не стоит забывать, что для создания плотной плазмы всегда используется остросфокусированное излучение, для которого интенсивность излучения в

фокальной области (при равной энергии и длительности импульса) обратно пропорциональна квадрату размера фокальной области, то есть квадрату длины волны. Тем не менее, увеличение сечения с одной стороны, и уменьшение интенсивности с другой, при увеличении длины волны излучения не так сильно отличаются, так что оптимальный выбор длины волны может дать только полный расчет распространения импульса в среде. Обратимся к влиянию формируемой плазмы на распространение лазерного импульса. Согласно модели Друде комплексная диэлектрическая проницаемость ε среды с плотностью свободных электронов в зоне проводимости N_e может быть записана как $\varepsilon = \epsilon_0 - \frac{e^2\tau_c}{m\omega_0\varepsilon_0(1+i\omega_0\tau_c)}N_e$, где ϵ_0 — относительная диэлектрическая проницаемость среды без свободных электронов, а ε_0 — диэлектрическая проницаемость вакуума. Отсюда коэффициент поглощения и отражательная способность будут следующим образом изменяться от концентрации электронов плазмы в плавленом кварце:



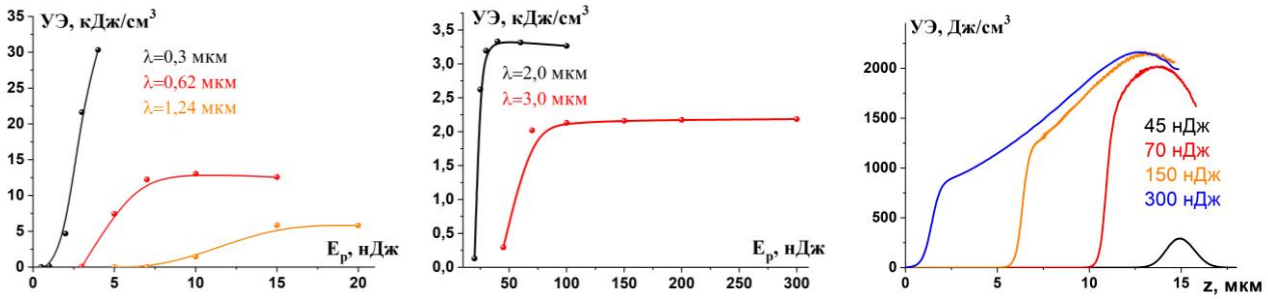
а) *б)*

Рис. 130 Коэффициент поглощения (а) и отражательная способность (б) в плавленом кварце в зависимости от концентрации электронов плазмы. Вертикальные линии отмечают значения критической концентрации плазмы для соответствующих длин волн.

Видно, что при концентрации электронов плазмы выше критической никаких кардинальных изменений не происходит. Остановимся поподробнее на приведенных зависимостях. Сразу укажем, что диапазон изменения концентрации электронов плазмы до 10^{22} см$^{-3}$ соответствует изменению удельного энерговклада ($\sim N_e \cdot (E_g + E_p)$) до примерно 20 кДж/см^3. Из ***Рис. 130 (а)*** следует, что характерная длина поглощения (скин-слой) излучения с длиной волны больше 1 мкм при плотности плазмы больше 5×10^{21}см$^{-3}$ меньше или порядка 50 нм. И это действительно так, но при распространении плоской волны. При острой фокусировке ситуация меняется кардинально: приосевая область пучка, подвергающаяся основным потерям энергии, содержит малую долю энергии всего пучка и все время подпитывается энергией из окружающей приосевую область гораздо большей части пучка. Что касается отражения от плазмы, то приведенные на ***Рис. 130 (б)*** зависимости характеризуют ситуацию с прямоугольным профилем плазмы. Расчеты для слоистой среды (плавный профиль плазменного облака) с помощью характеристической матрицы показали, что отражение от

плазменного облака в разы меньше, и опять это происходит только в приосевой области. Из проведенного анализа следует, что получение больших энерговкладов, то есть больших плотностей плазмы, возможно и для длинноволнового излучения. Но использование только длинноволнового излучения имеет два очевидных недостатка: слабая полевая ионизация и плохая локализация энерговклада ($\sim\lambda$). Можно устранить оба этих недостатка созданием затравочного плазменного облака коротковолновым импульсом небольшой энергии, но оптимизировать такое тандемное воздействие на прозрачную конденсированную среду можно только расчетом, описанным ниже.

Все расчеты, которые производились Бравым Б.Г. и анализировались совместно, выполнялись для плавленого кварца, излучение с разными длинами волн фокусировалось в объем кварца (NA=0,5), использовалось гауссово временное и поперечное распределение лазерного импульса. Параметры импульсов и условия фокусировки соответствуют экспериментальным условиям: длины волн импульсов – 1,24 мкм и 620 нм (ВГ), а длительности на полувысоте - 200 фс и 140 фс, соответственно. Расчетные параметры для плавленого кварца были выбраны следующим образом: ширина запрещенной зоны $E_g = 9$ эВ , нелинейный показатель преломления $n_2 = 3{,}2 \times 10^{-16}$ см^2/Вт, эффективное время столкновения электронов $\tau_c = 0{,}5$ фс, характерное время рекомбинации электронов $\tau_r = 150$ фс. В литературе отмечается большой разброс значения эффективного времени столкновения электронов (от 0,2 фс до 23 фс). Наилучшее согласие с экспериментальными данными получено расчетами, проведенными для значения τ_c =0,5 фс. В исследованиях строилась расчетная сетка для попутно распространяющейся пары лазерных пучков. Разница между взаимодействием встречного и попутного лазерных пучков несущественна, если длина области взаимодействия (длина перетяжки) мала по сравнению с длительностью импульса и когерентное взаимодействие между лазерными пучками отсутствует или не эффективно. Из качественных соображений видно, что в этом случае высокочастотный лазерный импульс распространяется, почти не ощущая влияния низкочастотного лазерного импульса. Условия эксперимента по тандемного воздействию лазерных импульсов предполагают, с одной стороны, достаточно малый объем взаимодействия, а с другой стороны, выбор энергии импульса ВГ ниже порога плазмообразования, при которой пространственное распределение электронной концентрации, согласно расчетам, симметрично относительно фокуса. Поэтому представленные результаты теоретических расчетов эффектов тандемного взаимодействия, полученные в попутной геометрии, не должны искажать реальную картину тандемного взаимодействия в эксперименте.



а) *б)* *в)*

Рис. 131 Зависимости удельного энерговклада в зависимости от энергии E_p остросфокусированного (NA=0,5) в объем плавленого кварца лазерного импульса с длительностью 200 фс для разных длин волн. а) длины волн 0,3; 0,6; 1,24 мкм; б) длины волн 2,0; 3,0 мкм. в) Зависимости поглощенной энергии на оси в зависимости от расстояния вдоль оси распространения лазерного излучения для разных энергий лазерного импульса с длиной волны 3 мкм и длительностью 200 фс.

Обратимся к результатам расчетов получения плазмы одиночным импульсом, которые представлены на ***Рис. 131 (а,б)***. Из рисунка видно, что с увеличением длины волны максимальное значение удельного энерговклада сильно уменьшается, и это максимальное значение достигается при все большей энергии импульса. Кроме того, для всех длин волн (кроме 0,3 мкм, для которой уже достигается близкая к максимальной для однократной ионизации концентрация), наблюдается одинаковая картина: быстрый рост поглощенной энергии с переходом в насыщение и последующим медленным спадом. Физика такого поведения становится ясной при использовании лазерного излучения с длиной волны 3 мкм (см. ***Рис. 131 (в)***). Полевая ионизация начинает проявлять себя с увеличением длины волны при все более возрастающей энергии импульса. Для 3 мкм излучения только при энергии импульса 45 нДж образуется достаточно компактное плазменное облако (см. ***Рис. 131 (в)***). При энергии 70 нДж поглощенная энергия (и, соответственно, концентрация) почти достигает максимального значения, а передний фронт облака начинает удаляться (приближаться) от фокальной точки ко входу в среду. При дальнейшем увеличении энергии импульса энерговклад почти не меняется, а облако возникает все при меньшей дистанции. Именно это и приводит к истощению импульса при подходе к фокусу и, тем самым, ограничивает дальнейший рост удельного энерговклада.

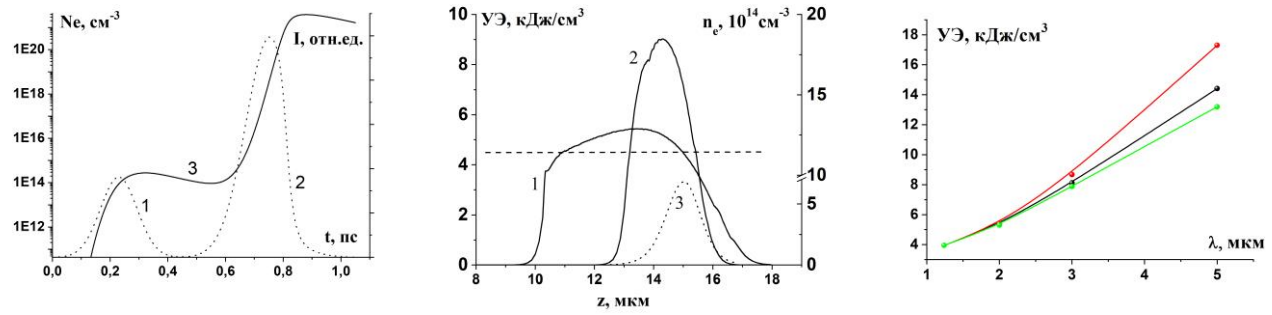
Кроме этого, в результате проведенных численных экспериментов была определена (для каждой длины волны) пороговая энергия E_{th}, при превышении которой начинается заметное образование плазмы, и, как следствие, заметное поглощение. Далее результаты расчетов для удобства сравнения с экспериментом будут представлены в зависимости от безразмерной энергии лазерного импульса E/E_{th}. Сравнение расчетного удельного энерговклада в зависимости от нормированной на пороговое значение энергии импульса второй гармоники (E/E_{th}) с экспериментальной зависимостью подтверждает адекватность расчетной модели. Небольшие различия в абсолютных значениях и характере этих зависимостей, возможно, могли быть связаны с ошибкой определения объема плазмы в эксперименте и неравномерностью поглощения. При тандемном воздействии первый, более коротковолновый импульс, создает плазму за счет

полевой ионизации (хотя для излучения с длиной волны λ=0,62 мкм при длительности 140 фс заметный вклад дает и лавина), а последующий, более длинноволновой импульс, за счет эффективного нагрева на порядки увеличивает концентрацию электронов плазмы.

Такое воздействие проиллюстрировано на ***Рис. 132 (а)***, на котором показана эволюция концентрации электронов во времени при воздействии импульса второй гармоники с энергией $0.2 \cdot E_{th}$ и с задержкой (от пика до пика) 525 фс ИК импльса с энергией $0.65 \cdot E_{th}$. Из ***Рис. 132 (а)*** видно, что во временной области от момента достижения максимальной концентрации электронов плазмы, создаваемой коротковолновым импульсом ВГ, до начала лавины, инициируемой ИК лазерным импульсов, проходит 225 фс. Уменьшение задержки до 300 фс приводит к тому, что электронная лавина начинает развиваться с максимальной электронной концентрации, создаваемой коротковолновым импульсом ВГ.

Это демонстрирует ***Рис. 128***, на котором показано пропускание ИК импульса в зависимости от задержки между ВГ и ИК импульсами при фиксированных значениях энергии этих импульсов ($E_{ВГ}=0.2 \cdot E_{th}$ and $E_{ИК}=0.65 \cdot E_{th}$). На рисунке также приведены расчетная зависимость (сплошная кривая и экспериментальные точки с их погрешностью). Задержка по времени 300 фс дает максимальное поглощение, а значит и максимально достигаемую концентрацию электронов. При задержках меньше 300 фс расчеты не проводились, так как используемая расчетная модель не позволяет учитывать одновременное воздействие импульсов излучения с разными длинами волн.

Помимо геометрических размеров плазменного облака и достигаемого удельного энерговклада ключевой интерес представляет определение электронной концентрации плазмы. Ссылаясь на ***Рис. 132 (б)***, прокомментируем полученную в расчете концентрацию электронов плазмы. Максимальная концентрация электронов во время импульса ВГ достигает значения $6{,}83 \times 10^{14}$ см$^{-3}$, где вклад полевой ионизации $n_{PI}=2{,}82 \times 10^{14}$ см$^{-3}$, лавинной ионизации $n_{AI}=7{,}56 \times 10^{14}$ см$^{-3}$, а поправка на рекомбинацию дает $n_R= 3{,}55 \times 10^{14}$ см$^{-3}$. Поскольку поглощаемая энергия расходуется только на образование электронов в зоне проводимости, УЭ из-за отсутствия других каналов потерь энергии составляет $E_{abs}/V = (n_{PI} + n_{AI}) \times E_g = 1{,}5$ кДж/см^3 . При воздействии ИК лазерных импульсов концентрация электронов плазмы близка к $3{,}82 \times 10^{21}$ см$^{-3}$, где $n_{PI} = 2{,}2 \times 10^{14}$ см$^{-3}$, $n_{AI}=5{,}3 \times 10^{21}$ см$^{-3}$, $n_R=1{,}48 \times 10^{21}$ см$^{-3}$. В результате $E_{abs}/V=9$ кДж/см^3. Расчетное значение электронной концентрации примерно в 3,5 раза выше критического для ИК-импульса ($1{,}5 \times 10^{21}$ см$^{-3}$), что также находит подтверждение в литературе [21]. Из приведенных значений следует, что плотность электронов, создаваемая лазерным импульсом, уменьшается за счет рекомбинации примерно на 30%.



а) *б)* *в)*

Рис. 132 (а) Эволюция концентрации электронов плазмы (3) при тандемном воздействии ВГ(1) и ИК(2) импульса. Задержка между импульсами 525фс, энергия ВГ– 0,2 E_{th} , энергия ИК импульса – 0,65E_{th}; (б) Расчетный удельный энерговклад (УЭ) в зависимости от расстояния z вдоль оси распространения лазерного излучения: 1 – при воздействии ИК лазерного импульса с энергией E=2E_{th}; 2 – при тандемном воздействии импульса ВГ с энергией 0,2E_{th} и ИК лазерного импульса с энергией 0,65E_{th}; 3 – соответствует области плазмообразования, создаваемой импульсом ВГ (правая ось). Пунктирной линией показано значение УЭ, достаточное для образования микромодификации; (в) Зависимость величины УЭ от длины волны ИК импульса при тандемном воздействии на сапфир. Параметры затравочного импульса:620нм, E=E_{th}. Энергия ИК импульса E=0,8E_{th}, длительность 100 фс (красный), 200 фс (черный) и 400 фс(зеленый).

В расчетах максимальный удельный энерговклад, достигаемый при возбуждении только ИК лазерным импульсом, составляет около 5,5 кДж/см^3 для энергий лазерного импульса, вдвое превышающих пороговое значение. Зависимость УЭ вдоль оси распространения лазерного излучения представлена кривой 1 на ***Рис. 132 (б)*** (фокальная область соответствует $z = 15$ мкм). Хорошо видно, что поглощение начинается значительно раньше положения фокуса, что приводит к ограничению достигаемого УЭ. В случае тандемного взаимодействия достигается другой результат (см. кривую 2 на ***Рис. 132 (б)***). При гораздо меньшей энергии ИК лазерного импульса (0,65E_{th}) он не может сам по себе создать плазму со значительной электронной концентрацией и поэтому практически без потерь поступает в затравочное плазменное «облако», создаваемое коротковолновым импульсов ВГ (см. кривую 3 на ***Рис. 132 (б)***).

Далее были проведены численные расчеты для того, чтобы установить влияние геометрии затравочного облака для двух пар импульсов 0,3 мкм/1,24 мкм и 0,62 мкм /1,24 мкм. Лазерные импульсы с длиной волны 0,62 мкм и 0,3 мкм с энергиями равными E_{th} создают плазменное облако с примерно одинаковой концентрацией, но поперечное сечение облака от лазерного импульса с длиной волны 0,62 мкм почти в два раза больше. Именно из-за этого плотность поглощенной энергии для пары импульсов 0,62 мкм и 1,24 мкм в 1,5 раза меньше по сравнению с парой 0,3 мкм и 1,24 мкм (при равной энергии ИК-импульсов). Действительно, при распространении остро сфокусированного лазерного импульса приосевая область пучка, которая и несет основные потери энергии на образование плазмы, содержит лишь малую часть энергии всего пучка и подпитывается энергией из его периферии. Чем больше затравочное плазменное облако, тем больше энергии от периферии пучка тратится на развитие плазмы и тем меньше плотность поглощенной энергии в приосевой области. На наш взгляд, именно подпитка приосевой части пучка от периферии позволяет преодолевать приосевые области с закритической концентрацией плазмы (для излучения с длиной волны 1,24 мкм $n_{cr} = 1{,}5 \cdot 10^{21}$ см$^{-3}$).

Рассмотрим теперь влияние длины волны ИК лазерного импульса и его длительности на УЭ при тандемном воздействии. Как и ранее затравочный импульс (0,62 мкм) с длительностью 150 фс и с фиксированной энергией (E_{th}), а энергия ИК лазерного импульса – 80% от пороговой энергии (зависит от длины волны). Длительность ИК импульса была взята 200 фс. Для того, чтобы расширить диапазон изменения длины волны ИК импульса расчеты были проведены для сапфира. Рассчитанные плотности поглощенной энергии от длины волны ИК импульса показаны на ***Рис. 132 (в)***. Отметим, что расчетные значения плотности поглощенной энергии усреднялись по объему взаимодействия, что соответствует экспериментальной ситуации. Эти значения примерно в два раза меньше, чем максимальные значения удельного энерговклада. Следует отметить, что такие же расчеты для плавленого кварца (в более узком спектральном интервале) демонстрируют аналогичную зависимость.

На ***Рис. 132 (в)*** показано также влияние длительности ИК лазерного импульса на УЭ: длительность 100 фс – красный цвет, 200 фс – черный и 400 фс - зеленый. Плотность поглощенной энергии для импульсов с длиной волны 1,24 мкм и длительностью от 100 до 400 фс практически одинаковы. В то время как с увеличением длины волны до 5 мкм значения удельного энерговклада для указанных длительностей импульса при фиксированной энергии инфракрасного излучения все сильнее различаются.

Рост удельного энерговклада при увеличении длины волны ИК импульса (см. ***Рис. 132 (в)***) объясняется следующим образом. Воспользуемся известным кинетическим уравнением для концентрации плазмы N, создаваемой лазерным излучением. Это уравнение можно упростить до $dN/dt = \sigma \times N \times I/(E_g + E_p)$, где σ – сечение обратного тормозного излучения, I - интенсивность лазерного излучения, E_g - потенциал ионизации, а E_p - пондеромоторная энергия. Такое упрощение возможно, потому что в случае тандемного воздействия ИК лазерный импульс воздействует на затравочное облако плазмы в основном только через лавину, а рекомбинация, хотя и имеет место, но на результат влияет не сильно. После интегрирования этого уравнения можно получить следующее выражение $N = N_0 \times exp[\sigma \times E/(E_g + E_p)]$, где E - плотность энергии лазерного излучения, N_0 - начальная концентрация электронов, создаваемая затравочным импульсом и имеющая одинаковое значение для различных ИК импульсов, так как энергия затравочного импульса остается постоянной. Таким образом, концентрация электронов плазмы и удельный энерговклад в результате воздействия ИК лазерного импульса будет определяться в основном произведением σ и E. При использовании идентичной оптики для фокусировки лазерного излучения внутрь диэлектрика плотность энергии излучения в непосредственной близости от фокальной зоны будет обратно пропорциональна квадрату длины волны. Сечение обратного тормозного излучения в рассматриваемом диапазоне длин волн прямо пропорционально длине волны. Остается отметить, что пороговое значение энергии и, следовательно, энергии излучения ИК импульса увеличивается более чем в десять раз при увеличении длины волны с 1,24 мкм до 3,5 мкм для плавленого кварца и примерно в 25 раз при увеличении длины волны с 1,24 мкм до 5 мкм для сапфира. В результате, произведение $\sigma \times E$

возрастает с увеличением длины волны, что в свою очередь приводит к соответствующему росту концентрации электронов плазмы и УЭ. Изменение влияния длительности ИК импульса на плотность поглощенной энергии при изменении длины волны ИК импульса связано с различным вкладом пондеромоторной энергии $E_p \sim I \times \lambda^2$. При уменьшении длительности импульса и сохранении его энергии возрастает интенсивность излучения и вклад пондеромоторной энергии. Но из-за λ^2 на длине волны 5 мкм этот вклад относительно большой, а на длине волны 1,24 мкм вклад становится незначительным. Таким образом, при тандемном воздействии и использовании более длинноволнового ИК импульса предпочтительнее иметь ИК импульс с более короткой длительностью. Рост (хоть и медленный) энерговклада с длиной волны ИК импульса связан с тем, что с увеличением длины волны полевая ионизация становится все менее и менее вероятной, и ИК импульс увеличивает концентрацию затравочного облака только за счет лавинной ионизации, тем самым приближаясь по размерам к размеру затравочного облака. То есть ИК импульсу не надо тратить энергию на создание широких плазменных крыльев.

Таким образом, основным результатом проведенного численного моделирования является прогнозирование увеличения энерговклада при тандемном воздействии в объем плавленого кварца до 9 кДж/см^3 при увеличении длины волны ИК импульса до 3,5 мкм и увеличение энерговклада в сапфире до 14 кДж/см^3 при увеличении длины волны ИК импульса до 5 мкм. Однако, важно отметить, что подобное увеличение возможно только при монотонном изменении порога плазмообразования с увеличением длины волны воздействующего лазерного излучения, что как будет показано далее не реализуется в реальных экспериментальных условиях.

4.7.3.3. Диагностика лазерно-индуцированных микромодификаций и оценка достигаемых давлений при тандемном воздействии двухцветной парой остросфокусированных фемтосекундных лазерным импульсов на вещество

После детального изучения механизма образования микроплазмы и влияния параметров лазерного излучения на величину энерговклада в вещество, экспериментальная схема была изменена со встречной на соосную и была проведена серия экспериментов по получению и изучению дефектов в объеме материала, наводимых парой остросфокусированных фемтосекундных импульсов. Для получения дефектов в качестве фокусирующей линзы использовалась линза CAY033 (NA=0,4; f=3,3 мм). Двухцветное воздействие фемтосекундных импульсов на вещество предполагает использовать энергии в обоих импульсах ниже порога плазмообразования, поэтому в эксперименте энергия греющего импульса (линейная поляризация) составляла 0,8 E_{th}, а энергия затравочного импульса варьировалась от 0,3 E_{th} до 1 E_{th}, для исследования соответствующей зависимости размера модификации. Фокус выставлялся на глубину 50 мкм внутрь плавленого кварца. Данная величина была выбрана в целях дальнейшего исследования модификаций с помощью оптического микроскопа с 100-кратным увеличением. Экспериментальные результаты подтвердили теоретически предсказанную зависимость размера модификации от энергии греющего импульса.

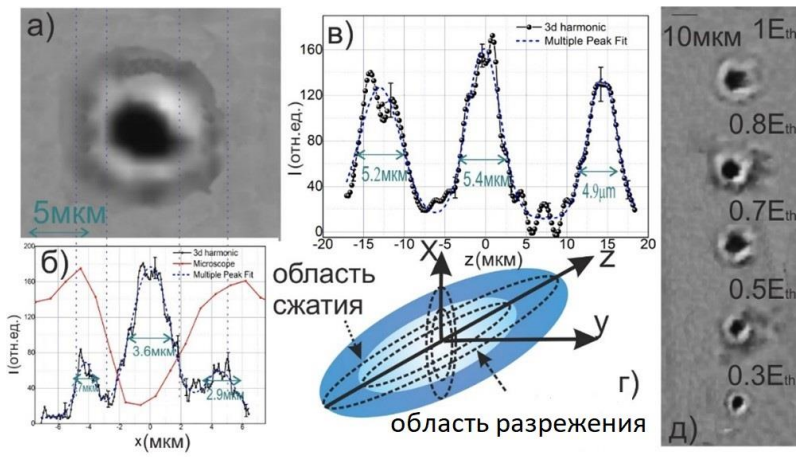


Рис. 133 (а) Изображение модификации в плавленом кварце в 100X оптическом микроскопе, наведенной с использованием в качестве затравочного импульса излучение с параметрами 620нм, 150фс, 0,3Eth и в качестве греющего импульса – 1240нм, 200фс, 0,9Eth. (б) поперечный и (с) продольный профили дефекта, полученные методом регистрации сигнала ТГ (черная), и с помощью оптического микроскопа(красная). (д) Схематическое изображение полученных модификаций. (е) Изображение модификаций на оптическом микроскопе, полученных при разных энергиях греющего импульса. Темная область (коэффициент отражения меньше, чем у чистого материала) – область разряженной плотности, светлая область (коэффициент отражения больше, чем у чистого материала) – уплотненная оболочка.

В диссертации был разработан метод диагностики процессов взаимодействия лазерного излучения с веществом, основанный на процессе несинхронной генерации третьей гармоники (см. ***4.4.4***). В этом случае при фиксированном положении фокусирующей и коллимирующей линзы передвигался образец, тем самым производилось сканирование образовавшейся микромодификации вдоль одной из координат. В результате получался профиль микромодификации, который представлен на ***Рис. 133***. Дефект имеет форму эллипсоида, длинная полуось которого расположена вдоль оси пучка. Метод ГТГ позволяет определить наличие как центральной области микромодификации, так и внешнего кольца, созданного ударной волной. Данные, полученные по ТГ, согласуются с данными, полученными с оптического микроскопа.

Из ***Рис. 133*** видно, что сигнал ТГ уменьшается с уменьшением энергии в затравочном импульсе и становиться неотличимым от уровня шума при значениях энергии коротковолнового импульса меньших 0,1 E_{th}. Увеличение же энергии в затравочном импульсе от 0,3 E_{th} до 1 E_{th} и соответственно увеличение энерговклада от 1 кДж/см^3 до 4 кДж/см^3 ведет к увеличению размера (диаметра внешней окружности уплотненной оболочки и разряженного ядра) лазерно-индуцированного дефекта от 3 мкм до 8 мкм. Улучшение качества пучка, и применение всех ранее определенных способов увеличения энерговклада (использование эллиптически или циркулярно поляризованного греющего импульса, а также сдвиг длины волны затравочного импульса в ультрафиолетовую диапазон, а длину волны греющего импульса в дальний ИК диапазон) может позволить еще уменьшить размер дефекта. Выполненные эксперименты демонстрируют, что размер лазерно-индуцированного дефекта в случае тандемного воздействия в 1,3 раза меньше, чем созданный в одноимпульсном режиме с длинной волны излучения 620 нм.

Структурные изменения в материале, а именно создание объемной микромодификации материала, происходит из-за сильного выталкивания вещества из плазменного объема – микровзрыва. Как уже было отмечено, лазерно-индуцированный дефект в плавленом кварце

представляет собой разреженное ядро и окружающую его уплотненную оболочку. Давление в ударной волне после микровзрыва будет определять соотношение объемов разреженной области и всего дефекта. Давление (0,1-1ТПа) [388], инициирующее разлет вещества образуется из-за сильного увеличения температуры (до 10^6 К за счет поглощения электронами энергии греющего импульса и передачи ее в кристаллическую решетку на пикосекундном временной масштабе) при постоянном объеме. Из ранних работ известно [389], что для сжатия объема плавленого кварца на 50% необходимо давление ~35 ГПа. Скорость возрастания давления определяется модулем Юнга для материала и коэффициентом объемного теплового расширения. Оцененное снизу значение скорости возрастания давления с температурой – 2×10^5 Па/К, рассчитанное для взятых при комнатной температуре характеристик материала. Исходя из этих оценок давление внутри материала при температуре 10^6 К составляет 200 ГПа. Объем вытесненной области у дефекта, представленного на ***Рис. 133 (а)***, составляет 1/12 объема всего дефекта, из чего следует, что давление в ударной волне составляло 12 ГПа. Зависимость размеров оболочки (всего дефекта) и ядра, измеренных методикой ГТГ, от энергий в затравочном и греющем импульсе представлены на ***Рис. 134 (а)***.

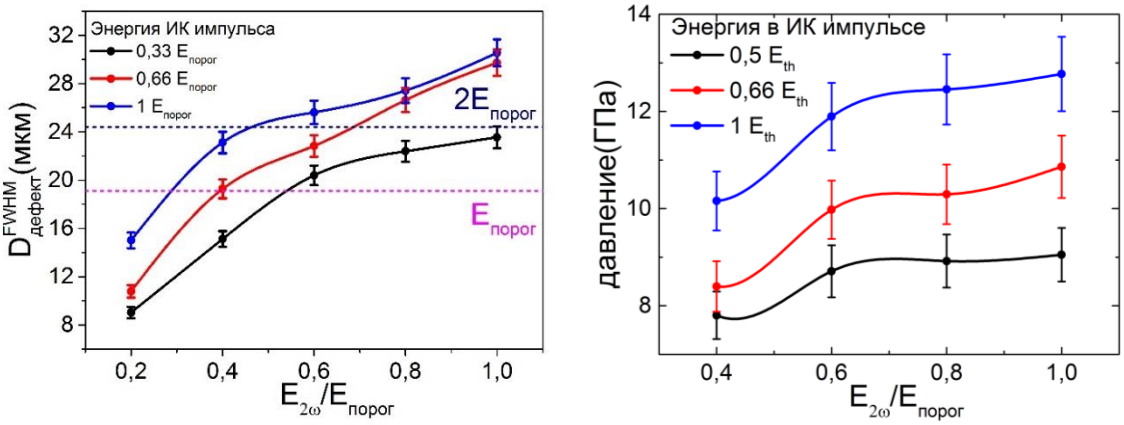
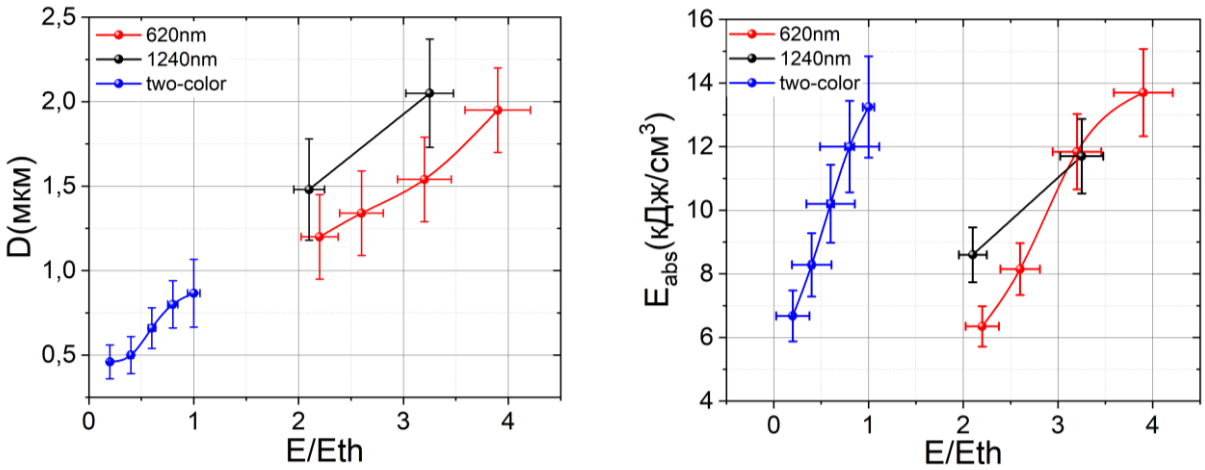


Рис. 134 (а) Диаметр дефекта (уплотненной оболочки) в зависимости от энергии в затравочном импульсе(620нм) при фиксированной энергии в греющем импульсе(1240нм). Размер дефекта получен методом ГТГ. (б) Зависимость давления в ударной волне от энергии в затравочном импульсе(620нм) при фиксированной энергии в греющем импульсе.

Как и ожидалось, с уменьшением энергии в затравочном импульсе размер дефекта уменьшается, что свидетельствует об увеличении локализации лазерного воздействия. Увеличение давления с уменьшением энергии в затравочном импульсе является следствием более эффективного энерговклада в среду, что в свою очередь приводит к созданию меньших дефектов, однако с бóльшим относительным объемом разряженной области. Незначительный рост (на 25±5 %) размера дефекта и увеличение давления в ударной волне (***Рис. 133 (б)***) с увеличением энергии от 0,33 E_{th} до 1 E_{th} в греющем импульсе с ростом энергии свидетельствуют о том, что греющий импульс влияет на энерговклад, не изменяя размера дефекта. Таким образом, в экспериментах подтвердилось, что ключевую роль в определении размера дефекта играет затравочный импульс, а увеличение энергии в греющем импульсе увеличивает энерговклад в объем материала, за счет более эффективной лавинной ионизации среды.

В диссертации (см. ***п. 4.4.3***) было показано, что микроплазма, возникающая на пороге плазмообразования, имеет размеры порядка 0,5 мкм, однако концентрация электронов и, как следствие, энерговклад в таком случае слишком малы для создания необратимой модификации материала. Для того, чтобы добиться образования микромодификации в объеме конденсированной среды необходимо добиться значений энерговклада выше порогового. Как показывает ***Рис. 135 (а)*** минимально регистрируемые микромодификации создавались при энерговкладе, соответствующему уровню порядка 6 кДж/см^3, причем эта величина не зависит от способа создания микромодификации и длины волны. После оптимизации режима тандемного лазерного воздействия с применением методики ГТГ в качестве обратной связи удалось добиться субмикронных размеров формируемых микромодификаций.

На ***Рис. 135 (а)*** представлено сравнение модификаций, полученных при одноимпульсном воздействии (черные и красные точки) и в тандемном режиме для пары импульсов 620 нм и 1240 нм (синие точки). Значения получены с помощью методики генерации третьей гармоники. Энергия греющего импульса была около 0,4E_{th}. Как видно из рисунка, тандемная методика позволяет получить наименьший размер модификации, который примерно соответствует пороговой области плазмообразования. В случае одноимпульсного воздействия за счет лучшей локализации энергии лазерного импульса второй гармоники образующиеся модификации имеют меньший размер при сопоставимых энерговкладах. В случае тандемного воздействия за счет того, что необходимый для создания микромодификации энерговклад достигается при значительно меньших энергиях достигается большая локальность воздействия, и, как результат, микромодификация имеет меньший размер.



а) *б)*

Рис. 135 а) Зависимость диаметра модификации (зоны разряжения) от энергии воздействующего импульса в случае одноимпульсного (черные и красные точки – длина волны 620 и 1240 нм соответственно) и тандемного воздействии парой импульсов 620/1240 нм (синие точки). Для фокусировки использовалась асферическая линза с NA = 0,55. б) Зависимость энерговклада, соответствующего созданным модификациям на рисунке а).

4.7.3.4. Влияние состояния поляризации греющего ИК импульса на энерговклад в объем конденсированной среды при двухцветном лазерном воздействии

Важным отличием линейной и круговой/эллиптической поляризации лазерного излучения при генерации плазмы является кинетическая энергия свободных электронов, остающаяся после воздействия интенсивного лазерного поля на вещество. В поле линейно поляризованного лазерного излучения свободные электроны остаются с низкой кинетической энергией, поскольку они испытывают попеременное ускорение и торможение лазерным полем в течение каждого оптического цикла поля лазерного импульса. Напротив, в поле циркулярно поляризованной лазерной волны электроны находятся всегда в процесс ускорения, то есть увеличения своей кинетической энергии. Кинетическая энергия электрона, ионизовавшегося (перешедшего в непрерывный энергетический спектр) в момент времени t_0 (взаимодействия электрона зарядом e и массой m_e с электромагнитной волной со степенью поляризации ε, частотой ω_0, фазой несущей относительно огибающей Θ и интенсивностью I), может быть представлена в следующем виде [384]:

$$E_{kin} = 2U_p \cos^2(\pi t_0/T)[1 - (1 - \varepsilon^2)\cos^2(\omega_0 t_0 + \Theta)], \qquad (60)$$

где $U_p = \frac{e^2}{c\varepsilon_0 m_e} \times \frac{I}{2\omega_0}$ – пондеромоторная энергия электрона

Видно, что в эллиптически поляризованном свете ($0 < \varepsilon < 1$) электрон приобретает большую кинетическую энергию (почти в 3 раза при использовании электромагнитной волны круговой поляризации), чем в линейно поляризованном свете ($\varepsilon = 0$). Таким образом, увеличение эффективности передачи энергии от лазерного импульса в материал теоретически предсказывалось при сравнении величины энерговклада в среду при тандемном воздействии затравочного импульса и следующего за ним греющего импульса с поляризациями $\varepsilon = 0$ и $\varepsilon = 0{,}6$, что было проверено экспериментально для различных материалов.

Для определения порогов оптического пробоя были проведены эксперименты по нелинейному пропусканию основного излучения хром-форстеритового лазера при различных состояниях поляризации – линейной и эллиптической. ***Рис. 136*** иллюстрирует, что порог плазмообразования для греющего ИК импульса при поляризации со степенью эллиптичности 0,6 на 40% больше, чем для линейной поляризации в объеме плавленого кварца. Данный результат согласуется с теоретическими данными, объясняющими увеличение эффективности многофотонной ионизации с ростом степени поляризации лазерного излучения влиянием правил отбора на полевую ионизацию [195].

Увеличение порога многофотонной ионизации в одноимпульсном режиме позволяет использовать поляризованное излучение в качестве греющего импульса при больших энергиях без ионизации материала отдельно этим импульсом, что позволяет разгонять электроны до больших кинетических энергий и тем самым увеличить скорость нагрева электронов и, соответственно, энерговклад в среду.

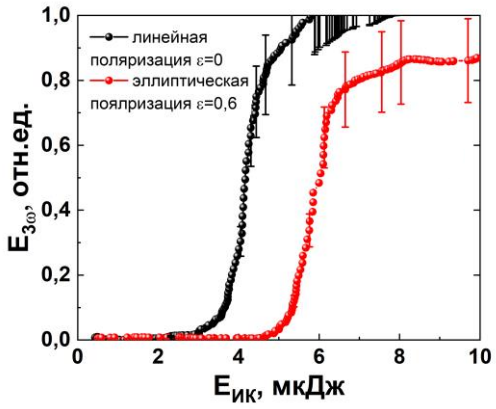
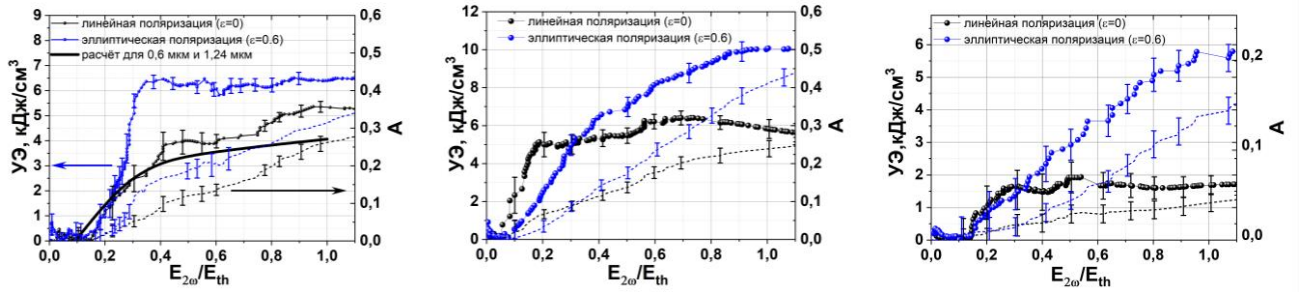


Рис. 136 Порог плазмообразования, регистрируемый по сигналу третьей гармоники, генерируемой остросфокусированным ИК лазерным излучением в объеме плавленого кварца. Черная линия соответствует линейно поляризованному ИК лазерному импульсу, красная линия соответствует эллиптически поляризованному ИК лазерному излучения.

Была проведена экспериментальная проверка влияния поляризации греющего импульса на энерговклад. Измерение нелинейного пропускания греющего лазерного импульса показало, что использование эллиптически поляризованного ИК лазерного импульса при тандемном воздействии приводит к увеличению энерговклада в объем образца (см. ***Рис. 137***). Зависимости, представленные на ***Рис. 137***, демонстрируют, что в случае эллиптически поляризованного греющего импульса такое же значение удельного энерговклада ИК лазерного импульса было достигнуто с меньшей энергией затравочного импульса ВГ по сравнению с линейно поляризованным ИК лазерным импульсом. Это утверждение справедливо для различных значений энергии греющего импульса, кроме малых значений $E < 0{,}4E_{th}$(ИК). В этом случае энергии греющего импульса недостаточно для эффективного нагрева электронов. Таким образом, состояние поляризации греющего импульса влияет на доставку энергии в объем конденсированной среды. Этот эффект, как уже обсуждалось ранее, связан с увеличением скорости нагрева затравочных электронов плазмы за счет более эффективного пондеромоторного действия греющего импульса. В результате, использование эллиптически поляризованного ИК лазерного излучения при двухцветном тандемном воздействии на плавленый кварц позволяет достичь энерговклада до 6 кДж·см$^{-3}$ (см. ***Рис. 137 (а)***).

Следует отметить, что при двухцветном фемтосекундном лазерном возбуждении в плавленом и кристаллическом кварце ИК лазерный импульс поглощается по-разному для линейной и эллиптической поляризации греющего лазерного импульса (см. ***Рис. 137 (б)***). Для плавленого кварца рост удельного энерговклада несколько различается для линейного и эллиптически поляризованного ИК лазерного излучения, что в результате приводит к большим значениям достигаемого удельного энерговклада. В образце кристаллического кварца зависимости удельного энерговклада для линейно и эллиптически поляризованных ИК лазерных импульсов пересекаются при энергии импульса ВГ в три раза меньшей пороговой. Ситуация меняется, когда энергия импульса ВГ превышает 0,3E_{th}(ВГ) и становится значительным нагрев затравочных электронов в поле эллиптически поляризованного греющего лазерного импульса, что увеличивает удельный энерговклад по сравнению с линейно поляризованным греющим

лазерным импульсом. Кроме того, разная концентрация примесных электронов в исследуемых образцах приводит к иным каналам перераспределения лазерной энергии, что становится причиной изменения достигаемых значений удельного энерговклада.



а) *б)* *в)*

Рис. 137 Зависимость удельного энерговклада УЭ (точки) и поглощенной энергии ИК импульса А (пунктирная линия) от энергии импульса ВГ, нормированной на ее пороговое значение, при тандемном воздействии на объем (а) плавленого кварца, (б) кристаллического кварца, (в) воды. Энергия эллиптически- (синяя кривая) и линейно- (черная кривая) поляризованного ИК импульса $0{,}8E_{th}$. Сплошная линия для а) демонстрирует выполненный расчет для остросфокусированной пары лазерных импульсов 0,62 мкм и 1,24 мкм.

Таким образом, был зарегистрирован и исследован новый эффект увеличения энерговклада в среду, связанный с изменением степени поляризации греющего импульса при тандемном воздействии двухцветной парой остросфокусированных фемтосекундных лазерных импульсов на объем прозрачной конденсированной среды. Для плавленого кварца значение поглощенной энергии увеличилось в 1,5 раза при изменении степени поляризации греющего импульса с $\varepsilon = 0$ до $\varepsilon = 0{,}6$. Данный эффект был проверен на материалах, обладающих различным внутренним строением – плавленый кварц, кристаллический кварц и дистиллированная вода. Зависимости поглощенной энергии в зависимости от падающей энергии второй гармоники имеют разные качественные зависимости, однако во всех случаях эллиптически поляризованный свет позволяет осуществлять более эффективное вложение лазерной энергии в объем материала (см. ***Рис. 137***).

4.7.3.5. Воздействие двухцветной парой 1,76 мкм и 0,62 мкм на диэлектрик

Для исследования дополнительных возможностей увеличения УЭ были проведены эксперименты с излучением параметрического усилителя. Излучение сигнальной волны (длина волны 1760 нм) использовалось в качестве греющего импульса. На ***Рис. 138*** изображена зависимость сигнала ТГ, генерируемого греющим импульсом, а также его поглощения от задержки между импульсами. Эти зависимости имеют схожую же форму, что и для пары импульсов 620 нм и 1240 нм (см. ***Рис. 128***).

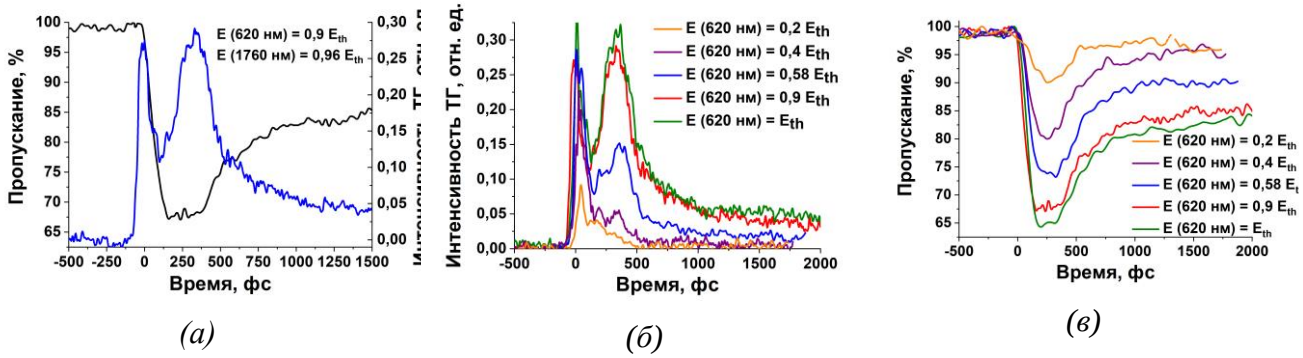


Рис. 138 (а) Зависимость пропускания (черная кривая) и сигнала ТГ (синяя кривая) греющего канала от задержки между импульсами. Греющий импульс: длина волны 1760 нм, энергия 0,96E_{th}; затравочный импульс: длина волны 620 нм, энергия 0,96E_{th}.Зависимость сигнала ТГ (б) и пропускания (в) греющего канала от временной задержки между затравочным и греющим импульсами при разных энергиях затравочного импульса (620 нм). Энергия греющего импульса (1760 нм) E = E_{th}.

Для получения максимальной электронной концентрации плазмы и УЭ в работе оптимизировалась энергия каждого импульса. ***Рис. 138*** иллюстрирует изменение сигнала ТГ и пропускания от энергии затравочного импульса. Оба сигнала существенно зависят от энергии затравочного импульса, причем в случае сигнала ТГ меняется не только амплитуда, но и форма сигнала. Например, при энергии затравочного импульса порядка 0,2 – 0,4E_{th} второй пик в зависимости от задержки не возникает, что связано с малой электронной концентрацией, создаваемой в микрообъеме вещества (***Рис. 138 (б)***). Максимальное значение поглощения в таком случае также уменьшается до значений около 20 – 30% (***Рис. 138 (в)***). Исходя из полученных данных, была определена оптимальная задержка между импульсами (около 250 фс) и энергия затравочного импульса, которая близка к пороговой. Сильная зависимость поглощения от энергии затравочного импульса связана с необходимостью создания достаточной начальной концентрации электронов, которая впоследствии разгоняется электронной лавиной. Отметим, что оптимальная задержка не зависит от энергии взаимодействующих импульсов.

Проведенные эксперименты показали, что от энергии греющего импульса поглощение зависит в меньшей степени (***Рис. 139***). Энергия греющего импульса может находиться в диапазоне 0,4 – 1 E_{th}, что снимает ограничения на энергию греющего импульса.

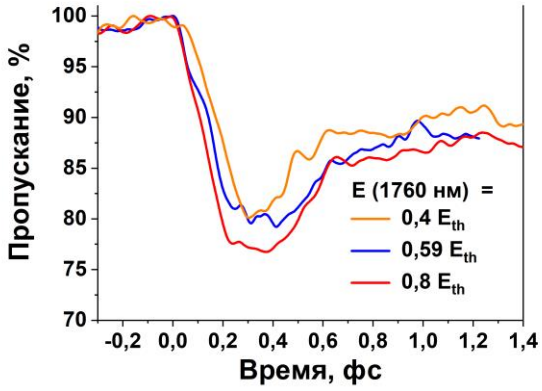


Рис. 139 Зависимость пропускания греющего канала от временной задержки между затравочным и греющим импульсами при разных энергиях греющего импульса (1760 нм). Энергия затравочного импульса (620 нм) E = 0,8E_{th}.

Особый интерес для исследования представляло сравнение объемного энерговклада в случае воздействия парой 620нм /1240 нм и 620 нм/1760 нм. В работе [354] было показано, что увеличение сечения лавинной ионизации с длиной волны приводит к понижению порога пробоя даже в случае одноимпульсного воздействия. В таком случае, порог модификации в среднем ИК может быть равным порогу в видимом диапазоне.

На ***Рис. 140 (а)*** приведена зависимость поглощения от энергии затравочного импульса для двух пар взаимодействующих импульсов 620/1240 нм и 620/1760 нм. Видно, что при одинаковом отношении E/E_{th} для затравочного импульса поглощение выше для длинноволнового излучения. Например, для $E/E_{th} = 0,8$ поглощение для импульса с длиной волны 1,24 мкм составляет 22%, а для 1,76 мкм 33%. Если учесть изменение критической концентрации с длиной волны, то грубая оценка электронной концентрации дает значение $1,2x10^{20}$ $см^{-3}$ (случай 620/1760) и $1,6x10^{20}$ $см^{-3}$ (случай 620/1240), следовательно энерговклад в случае пары 620/1240 нм будет выше, чем в случае воздействия 620/1760 нм. Оценка энерговклада производилась по поглощенной энергии и объему области воздействия, который в данном случае определяется перетяжкой затравочного импульса. На ***Рис. 140 (б)*** показана зависимость УЭ от энергии затравочного импульса в окрестности порога плазмообразования для греющего импульса. Как видно из рисунка больший энерговклад достигается для пары 620/1240 нм, однако плотность энергии греющего канала также выше в случае воздействия импульсом 1240 нм, чем 1760 нм. Связано это с изменением порога плазмообразования с длиной волны. Как показано в нашей работе [354] и подробно описано в пункте ***4.6.2.1***, максимальный порог плазмообразования при одноимпульсном воздействии имеет излучение с длиной волны 1240 нм. Поэтому максимальная энергия без размытия области воздействия может быть вложена именно на этой длине волны.

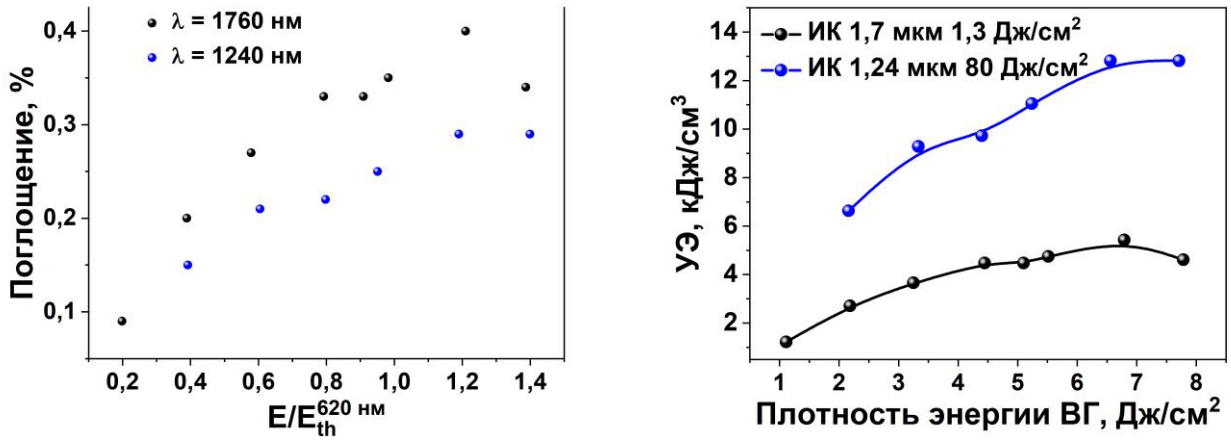


Рис. 140 Зависимость максимального поглощения греющего лазерного импульса (а) и объемного энерговклада (б) от энергии затравочного излучения (620 нм). Энергия греющего импульса $E = E_{th}$ (1760 нм – черная кривая) и $E = 0,96E_{th}$ (1240 нм – синяя кривая).

Теоретически УЭ для пары импульсов 620/1240 нм и 620/1760 нм рассчитывался на основе скоростных уравнений [39]. Сечение ионизации для первого импульса рассчитывалось на основе теории Келдыша [221], а влияние электронной лавины учитывалось по теории Друде. Модель учитывала также рекомбинацию электронов плазмы по каналу захвата их в ловушки.

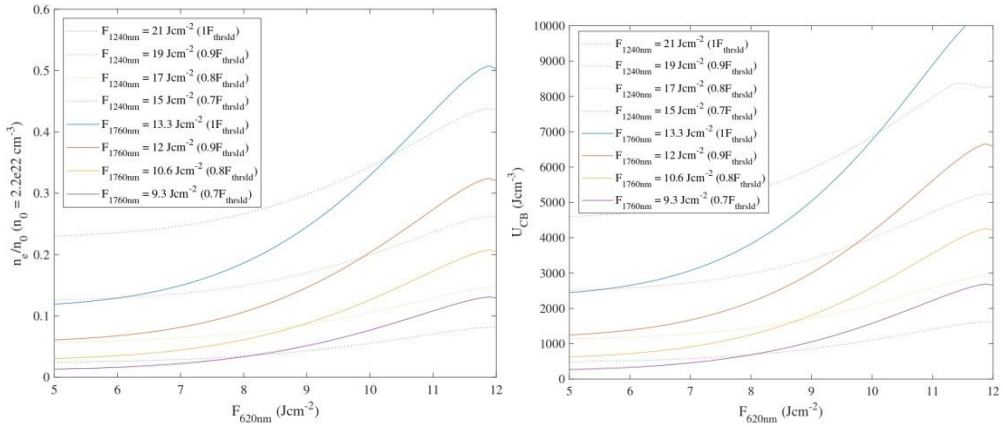


Рис. 141 Расчетные значения электронной концентрации и объемного энерговклада, достигаемого при воздействии парой импульсов 620/1240 нм и 620/1760 нм для разных плотностей энергии взаимодействующих импульсов.

На ***Рис. 141*** приведена зависимость электронной концентрации и плотности энергии в электронной подсистеме для случаев 620/1240 нм (сплошные линии) и 620/1760 нм (пунктирные линии). Задержка между импульсами была выбрана таким образом, чтобы не учитывать ионизацию фотонами разных энергий, т.е. 400 фс для 620/1760 и 480фс для 620+1240. Как видно, из приведенных расчетов при одинаковом отношении E/E_{th} в диапазоне плотностей энергии 5 - 10 Дж/см^2 (аналогичных экспериментальным) более высокая электронная концентрация и соответственно энерговклад достигается для излучения с длиной волны 1240 нм. Если же взять примерно равные значения плотностей энергии для греющего излучения (например, 13,3 Дж/см^2 = E_{th} для 1760 нм и 15 Дж/см^2 = 0,7E_{th} для 1240 нм), то более эффективным окажется длинноволновый ИК импульс (1760 нм), что, вероятно, свидетельствует об эффективном вкладе процессов нагрева электронов плазмы. Таким образом, пока плотность энергии греющего импульса ниже примерно 13 – 14 Дж/см^2 (порога плазмообразования для излучения с длиной волны 1,76 мкм), длинноволновый импульс позволяет получить больший энерговклад за счет большей пондеромоторной энергии. Когда плотность энергии греющего импульса превышает это значение, энерговклад для ИК импульса (1,76 мкм) начинает падать из-за размытия зоны воздействия, а для импульса с длиной 1,24 мкм продолжает расти, так как этот импульс все еще находится ниже порога плазмообразования. За счет большего порога в одноимпульсном режиме, импульс с длиной волны 1,24 мкм позволяет вложить больше энергии при плотностях энергии в диапазоне 15 – 20 Дж/см^2. Отметим, что расчеты показывают, что ИК импульс начинает эффективнее работать при больших энергиях затравочного импульса (область 10 – 12 Дж/см^2).

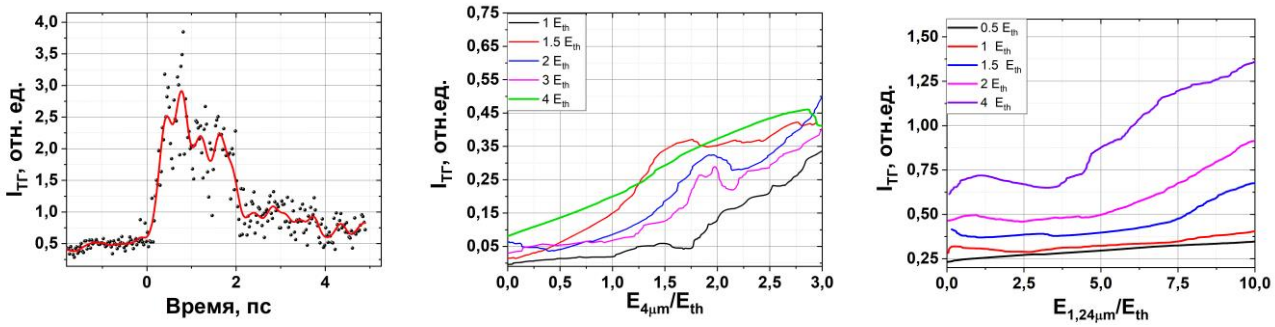
Так как в области длин волн 1,6 – 4 мкм даже небольшой концентрации затравочных электронов в зоне проводимости достаточно для развития лавины, для развития метода тандемного воздействия необходимо использовать импульсы, которые сами не способны эффективно возбуждать электроны из валентной зоны. Этого можно добиться, используя длины волн в окрестности 5 мкм или выше, более длинные импульсы, а также излучение с циркулярной поляризацией. Так как генерация затравочных электронов в основном идет за счет туннельной ионизации, чья скорость определяется величиной поля, то для импульсов бóльшей длительности

вероятность ионизации будет меньше и, как следствие, лавина при одноимпульсном воздействии будет подавлена.

4.7.3.6. Воздействие двухцветной парой 4,6 мкм и 1,24 мкм на полупроводник

Далее концепция двухцветного тандемного лазерного воздействия была применена для повышения объемного энерговклада и повышения управляемости в создании лазерно-индуцированного дефекта в объеме полупроводника на примере кремния. Для этого в диссертации была использована пара остросфокусированных лазерных импульсов на длинах волн 1,24 и 4,6 мкм. Для совмещения воздействующих импульсов по времени импульс на длине волны 1,24 мкм проходил ~ 35 м оптической задержки, чтобы компенсировать длину оптического тракта в лазерной системе Fe:ZnSe (излучение на 1,24 мкм используется для накачки параметрического усилителя среднего ИК-диапазона, излучение которого используется в FeZnSe лазере в качестве инжекции). Грубое сведение импульсов по времени производилось по быстрому оптическому детектору, точная подстройка осуществлялась по генерации суммарной частоты в нелинейно-оптическом кристалле (оптический путь импульса на 1,24 мкм относительно импульса на 4,6 мкм мог изменяться с помощью автоматизированной линии задержки). Энергия каждого из каналов независимо изменялась с помощью полуволновой пластинки и поляризатора с одновременным контролем энергии с помощью калиброванных детекторов. Совмещение импульсов в пространстве осуществлялось на дихроичном зеркале, пропускающем излучение с длиной волны 4,6 мкм и отражающем излучение на длине волны 1,24 мкм. Фокусировка в объем полупроводникового материала осуществлялась отражательным объективом с NA=0,5. Пространственное сведение перетяжек обоих пучков контролировалось по переносу изображения области взаимодействия на матрицу ПЗС камеры.

В эксперименте изменялась временная задержка между импульсами и отдельно энергия затравочного и силового каналов, при этом измерялась третья гармоника излучения на длине волны 4,6 мкм (ее интенсивность монотонно зависит от электронной концентрации) и поглощение на 4,6 мкм (см. ***Рис. 142***). В эксперименте удалось установить, что оптимальная задержка между лазерными импульсами составляет порядка 250 фс, что соответствует их частичному перекрытию во времени, однако при полном временном перекрытии наблюдается незначительное (~5-10%) уменьшение электронной концентрации. Вероятно, данный эффект вызван эффективной генерацией плазмы, в том числе и в предфокальной области, что уменьшает локализацию (аналогично воздействию импульсов ближнего ИК-диапазона на диэлектрик).



а) *б)* *в)*

Рис. 142 Зависимости интенсивности третьей гармоники излучения среднего ИК-диапазона (4,6 мкм) в кремнии: а) от задержки между импульсами на длине волны 1,24 и 4,6 мкм (отрицательные задержки отвечают случаю, когда импульс среднего ИК-диапазона приходит раньше импульса на длине волны 1,24 мкм), энергия импульса ближнего ИК (1,24 мкм) составляла 0,5 от порогового значения (~150 нДж), энергия импульса среднего ИК-диапазона (4,6 мкм) 0,9 от порогового значения (~100 нДж); б) от энергии импульса среднего ИК-диапазона (4,6 мкм); с) от энергии импульса ближнего ИК-диапазона (1,24 мкм).

Продемонстрировано, что с точки зрения создания облака затравочных электронов оптимальным является диапазон энергий 0,5–2E_{th} (~150 нДж) хром-форстеритового (1,24 мкм) лазерного импульса (где E_{th}- порог плазмообразования для излучения ближнего ИК-диапазона). При больших энергиях лазерного импульса начинается ее делокализация в предфокальной области. При энергии затравочного импульса выше 2E_{th}, рост энерговклада наблюдается лишь для небольших (до 3E_{th}, 9мкДж) энергий импульсов среднего ИК-диапазона. При больших энергиях затравочного (хром-форстеритового) лазерного импульса наблюдается уменьшение энерговклада (уменьшение поглощения) ~10% (см. ***Рис. 142***).

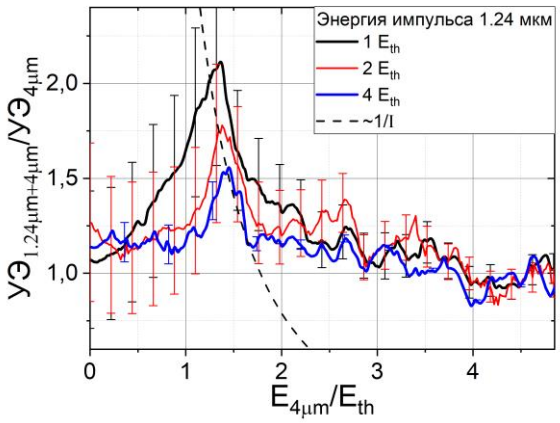


Рис. 143 Увеличение энерговклада при тандемном воздействии парой лазерных импульсов 1,24 мкм и 4,6 мкм по отношению к одноимпульсному воздействию для 4,6 мкм в зависимости от нормированной на пороговое значение энергии греющего канала на длине волны 4,6 мкм.

Максимальный рост энерговклада при двухцветном воздействии на кремний составил ~ 2 раз (до ~8 кДж/см^3) по сравнению с одноимпульсным воздействием остросфокусированного излучения в среднем ИК-диапазоне 4,6 мкм (см. ***Рис. 143***). Он наблюдается при энергиях ниже пороговых как для излучения ближнего ИК, так и для среднего ИК-диапазона (порог плазмообразования ~100 нДж). С ростом энергии выигрыш в энерговкладе пропадает (см. ***Рис.***

142 (б,в) – в области малых энергий, при больших энергиях все определяется энергией греющего лазерного импульса среднего ИК-диапазона).

4.7.3.7. Выводы по исследованию двухцветного воздействия на объем прозрачной конденсированной среды

В диссертации было проведено детальное исследование по увеличению эффективности передачи энергии в объем материала в тандемной методике, полностью дополняющее описанные выше экспериментальные и теоретические работы. Подпороговая энергия греющего импульса и минимальная энергия затравочного импульса (30% от пороговой) была выбрана как оптимальное соотношение энергий импульсов, участвующих в тандемной методике. Также был разработан универсальный экспериментальный способ определения оптимальной задержки между импульсами (в эксперименты по модификации объема плавленого кварца с использование 1240 нм 200 фс в качестве греющего импульса и 620 нм, 140 фс в качестве затравочного оптимальная задержка составляла 140 фс, что согласуется с результатами, полученными в работе [378]). Была проведена серия экспериментов для изучения влияния поляризации греющего импульса на эффективность тандемного воздействия на объем диэлектрика. Увеличение порога многофотонной ионизации в одноимпульсном режиме [390] позволяет использовать поляризованное излучение в качестве греющего импульса при больших энергиях без ионизации материала отдельно этим импульсом, что позволяет при использовании импульса с данной поляризацией в качестве греющего импульса разгонять электроны до больших кинетических энергий и тем самым позволяет увеличить скорость лавинной ионизации и соответственно увеличить энерговклад в среду [384,390,391]. Зарегистрированный эффект увеличения эффективности передачи энергии при тандемном воздействии двух фемтосекундных импульсов служит подтверждением предположенного ранее механизма работы двухцветного воздействия: затравочный импульс ионизует первичную плазму путем многофотонной ионизации, ИК лазерный импульс через нагрев затравочных электронов создает пробой в микрообъеме. В эксперименте было показано, что использование эллиптически поляризованного света позволяет достичь значений удельного энерговклада ~10 кДж/см^3. Факт достижения в эксперименте пороговых значений энерговклада без использования острофокусирующей оптикой и энергиями ниже (2 мкДж) в импульсах является прорывным шагом в лазерной микрообработке объема вещества.

В диссертации для описания процессов, возникающих при соосном взаимодействии пары остросфокусированных фемтосекундных лазерных импульсов, один из которых коротковолновый (УФ или вторая гармоника драйвера ВГ), а второй длинноволновый (ИК), использовалась модель, основанная на нелинейном уравнении Шредингера и скоростных уравнениях для эволюции электронной концентрации плазмы. Процессы лазерного энерговклада и окончательного распределения поглощенной энергии в значительной степени регулируется нелинейными эффектами (самофокусировка, полевая ионизация, электронная лавина, самофокусировка и т. д.). Эти эффекты приводят к быстрому формированию локализованных в

малом объеме электронов плазмы, которая может сильно влиять на лазерное излучение. Вследствие этого пространственно-временная динамика распространения лазерного излучения и связанного с появляющейся плазмой поглощения чрезвычайно сложна. Для численного моделирования этих процессов было разработано несколько моделей, среди которых модель на основе параксиального приближения для огибающей амплитуды лазерного поля (нелинейное уравнение Шредингера) является наиболее известной и наиболее широко используемой [48,392,393]. Хотя эта модель является важным шагом для понимания физической основы лазерно-индуцированной модификации оптических свойств материала, для сильно нелинейных режимов (NA>0,3-0,5) она может дать только качественную картину лазерного поглощения энергии. Количественный анализ и прогнозирование поглощения лазерного излучения в таких условиях может обеспечить модель, основанная на полном наборе уравнений Максвелла, дополненных уравнениями гидродинамического типа для свободных электронов плазмы [373].

Несмотря на качественную оценку используемой теоретической модели, экспериментальные результаты, полученные в данной диссертации, были подтверждены разработанной теоретической моделью тандемного воздействия на широкозонный диэлектрик. Теоретическая модель позволила впервые рассчитать увеличение энерговклада при изменении длины волны от 1 мкм до 5 мкм греющего импульса до 14 кДж/см^3 при использовании длины волны затравочного излучения 0,62 мкм. Формирование плазмы и остаточной микромодификации в прозрачном диэлектрике под влиянием двухцветного поля фемтосекундных импульсов теоретически обсуждалось в работе [393], где расчет выполнялся для тандемных импульсов с различными задержками, различными комбинациями длин волн, но с фиксированными энергией и длительностью импульсов. Из приведенных выше результатов следует, что максимальная концентрация электронов достигается с использованием пары импульсов с длинами волн 1064 нм и 267 нм, что подтверждает развиваемую в диссертации концепцию. Развиваемый теоретический подход позволил впервые выяснить влияние длительности греющего импульса на энерговклад в широком диапазоне длин волн. В результате обнаружено, что для греющего излучения ближнего ИК-диапазона (1,24 мкм) энерговклад практически одинаковый для импульсов разной длительности. Однако при приближении к 5 мкм диапазону длин волн греющего импульса возникает заметная разница в удельном энерговкладе. Проведенные экспериментальные исследования показали, что нагрев электронов импульсами среднего ИК-диапазона происходит чрезвычайно эффективно, а в качестве затравочных электронов могут выступать примеси. В таком случае реализация тандемной методики будет затруднена, так как область воздействия будет значительно увеличена. Таким образом, наиболее походящим излучением для нагрева электронов будет излучение ближнего ИК-диапазона (900 – 1200 нм), где порог плазмообразования максимален.

Вторым этапом экспериментальных исследований, проведенных в диссертации, было изучение устойчивых модификаций, наведенных с использованием двухцветной методики воздействия на объем материала. Если процесс абляции рассмотрен в литературе достаточно

подробно от процесса ионизации материала до структурных перестроек в материале – дефектов [366], то модификации в объеме материала рассмотрены не так детально и теоретически, и экспериментально. Был предложен новый, не имеющий мировых аналогов подход к изучению и созданию микромодификаций в объеме широкозонных диэлектриков (на примере плавленого и кристаллического кварца). Была разработана не имеющая аналогов прецизионная методика создания микроплазмы по схеме тандемного взаимодействия в объеме конденсированной среды соосных остросфокусированных (NA=0,4;0,5) двухцветных (излучение с длинами волн 0,62 мкм и 1,24 мкм) фемтосекундных лазерных импульсов с диагностикой процесса по сигналу третьей гармоники в режиме реального времени. Для исследований устойчивых микромодификаций была использована линза с NA=0,4, что позволило получить дефекты тандемным воздействием при энергиях затравочного (620 нм 170 фс) и греющего импульса (1240 нм 200 фс) 30% от пороговой и 90% от пороговой соответственно. Изменение размера модификаций от 3 мкм до 8 мкм при увеличении энергии затравочного импульса совпадает с результатами, описанными в работе [379], где в качестве греющего импульса использовалось излучение с длиной волны 266 нм, а в качестве затравочного – 800 нм, и получались модификации размером порядка микрометра. Ключевым достижением разработанной методики является контроль процесса модификации материала на начальной стадии формирования объемной микроплазмы в режиме реального времени, основанный на эффекте генерации несинхронной третьей гармоники. Процесс генерации третьей гармоники (ГТГ) был использован и для регистрации остаточных неоднородностей (микромодификаций) в объеме прозрачных сред в силу зависимости эффективности ГТГ от волновой расстройки между основной волной и волной третьей гармоники и изменения нелинейной восприимчивости третьего порядка в среде [229,324]. Данный подход позволил измерить не только поперечные, но и продольные размеры создаваемых лазерно-индуцированных «тандемных» дефектов. В диссертации показана возможность уменьшения энергий воздействующих импульсов (до мкДж), необходимых для модификации материалов. Продемонстрирована методика управления размером и формой модификации, объемного структурирования прозрачного материала и контроля за процессом микрообработки в режиме реального времени. Дальнейшая оптимизация режима тандемного воздействия на диэлектрик с применением в качестве обратной связи метода ГТГ позволила достигнуть необходимый для создания микромодификации энерговклад в объеме диэлектрика при значительно меньших энергиях воздействующих импульсов, что обеспечило большую локальность воздействия и, как результат, микромодификацию с субмикронным поперечным размером. Использование третьей гармоники в сфокусированных лазерных пучках для регистрации не только остаточных микромодификаций, но и динамических неоднородностей, связанных с изменением концентрации свободных электронов, генерацией микроплазмы, ранее было предложена в [230]. Метод ГТГ позволяет определить морфологию дефекта: наличие как центральной области микромодификации, так и внешнего кольца, созданного ударной волной с разрешением порядка 1 мкм, причем не изменяя конфигурацию экспериментальной схемы.

Данные, полученные по ТГ, согласуются с данными, полученными с помощью оптического микроскопа, а также соответствуют сведениям, представленным в статьях [394,395]. Разработанная уникальная методика регистрации дефектов имеет разрешение порядка 1 мкм.

Таким образом, разработанные в рамках диссертации теоретические и экспериментальные подходы, являются новыми, позволяют сформировать новый физический взгляд на проблему формирования лазерно-индуцированной модификации в объеме прозрачного материала. Кроме того, разработанный подход к локализованному мультиспектральному воздействию на объем вещества может быть расширен на газовые среды, что в условиях роста энерговклада может открыть доступ к генерации четных оптических гармоник, ранее регистрируемых только с использованием остросфокусированного лазерного излучения ближнего ИК-диапазона [315].

§4.8. Время-разрешенная диагностика когерентных фононов как индикатора лазерно-индуцированных быстрых фазовых переходов в конденсированных средах

Сверхбыстрое управление свойствами материала через неравновесные состояния — это новый метод управления структурными [396], магнитными [397] и электрическими [398] свойствами материалов, которые могут быть недоступны в равновесных условиях. Определение шкалы времени, на которой одна фаза пропадает и появляется новая фаза вещества, представляет фундаментальный интерес для понимания физических основ таких переходных процессов, а также важно для потенциальных приложений. Однако, поскольку эти переходы происходят через неравновесные состояния [311], параметры, которые характеризуют конкретную фазу вещества и отмечают, когда происходит переход, трудно идентифицировать.

Например, при структурном переходе положение ионов внутри кристалла определяется взаимодействием между ионами и электронами, причем ионы находятся в минимумах результирующей поверхности потенциальной энергии решетки. Потенциал решетки определяет через свою кривизну и фононный спектр твердого тела, то есть отклик на внешние возмущения. В большинстве случаев при структурном фазовом переходе в твердом теле изменяется симметрия потенциала решетки. Это изменяет как ионные позиции, так и фононный спектр. В равновесии эти изменения сопутствуют друг другу, однако в неравновесных условиях потенциал решетки может измениться до того, как ионы достигнут своих новых позиций. В такой ситуации фотоиндуцированное изменение потенциала кристаллической решетки вещества определяет начало фазового перехода.

Когерентные оптические фононы – стоячие волны синфазных колебаний атомов в макроскопическом пространственном диапазоне. Они представляют собой уединенные волны деформации или сдвига, баллистически распространяющиеся в твердых телах. Когерентные фононы, возбужденные ультракороткими лазерными импульсами, ранее наблюдались в диэлектриках, полупроводниках и металлах [31,399–404]. Механизмы их генерации различны и сильно зависят от материала и конкретной фононной моды (ее симметрии).

Считается, что когда твердое тело прозрачно для падающего светового импульса или когда возбуждение светом носит нерезонансный характер, когерентные оптические фононы генерируются исключительно посредством импульсного вынужденного комбинационного рассеяния света ВВКР (ISRS) [399]. Фемтосекундный лазерный импульс имеет достаточно широкий спектр, чтобы содержать множество пар фотонов, энергии которых различаются на энергию фононов. Результирующие колебания являются гармонической функцией времени. Амплитуда фотоиндуцированных колебаний может зависеть от поляризации падающего света в соответствии с правилом отбора комбинационного рассеяния света.

В случае поглощающего материала или резонансного фотовозбуждения в результате лазерного воздействия происходит перераспределение заряда внутри твердого тела. Это возмущает потенциал решетки и создает движущую силу, действующую на ионы. Отклик ионов на движущую силу определяется нормальными модами потенциала, которые выражаются как суперпозиция фононных мод [405]. Если характерное время возникновения движущей силы мало по сравнению с периодом фонона, то инициируются когерентные движения решетки или когерентные фононы. В зависимости от характера электрон-фононного взаимодействия в твердом теле было предложено три таких механизма возбуждения когерентных фононов: резонансный ВВКР (ISRS) [399], механизм смещения (DECP) [406] и нестационарное экранирование обедненного поля TDFS [407]. В модели возбуждения когерентных фононов со смещением (DECP) фотовозбуждение резко сдвигает минимум колебательного потенциала.

Механизм ВВКР (ISRS) был впервые предложен в 70-х годах и успешно применялся для объяснения когерентной (сфазированной) генерации фононов в прозрачных кристаллах и жидкостях [408–410]. DECP был впервые предложен в 1992 г. [406] для объяснения наблюдений в некоторых непрозрачных материалах, таких как висмут (Bi), сурьма (Sb), теллурид (Te) и др., которые, на первый взгляд, не совпадали с ВВКР (ISRS) [411].

Обе теории основаны на одном и том же общем уравнении движения фононов:

$$\frac{d^2Q}{dt^2} + 2\gamma\frac{dQ}{dt} + \omega_0^2 Q = \frac{F}{m}, \qquad (61)$$

описывающем зависящее от времени нормальную моду фононов Q, атома с массой m, где ω_0 – частота фонона, γ – феноменологический фактор затухания, а F – движущая сила, вызванная лазерным импульсом. Основное различие между этими двумя теоретическими подходами заключается в том, что для ВВКР (ISRS) сила представляется в виде дельта-функции, если длительность импульса намного короче, чем период колебаний, а для DECP механизма сила подобна функции Хэвисайда за счет сдвига потенциала в возбужденном состоянии. В рамках ВВКР (ISRS) движущая сила $F(t)$ может быть записана в виде:

$$F(t) = \frac{1}{2}N\left(\frac{\partial\alpha}{\partial Q}\right)E^2, \qquad (62)$$

где N — плотность осцилляторов, α — тензор поляризуемости среды, E — напряженность электрического поля лазерного импульса. Полученное колебание Q является синусоидальным колебанием ($Q \sim Q_0 \times sin(\omega_0 t)$), которое начинается из положения равновесия [412].

В рамках механизма DECP причиной осцилляций является изменение квазиравновесной координаты ядер $Q_0(t)$ от положения равновесия $Q_0 = 0$, вызванное лазерным импульсом. Этот сдвиг обусловлен лазерно-индуцированными электронами ($n(t)$ - электронная концентрация). В приближении линейной зависимости сдвига от концентрации электронов: $Q_0(t) = kn(t)$, движущая сила выражается как:

$$F(t) = \omega_0^2 Q_0(t) = \omega_0^2 \kappa n(t), \quad (63)$$

$$\frac{dn(t)}{dt} = \rho E_p g(t) - \beta n(t), \quad (64)$$

где E_p и $g(t)$ — энергия и нормированная функция временного отклика оптического импульса, соответственно, ρ — константа пропорциональности концентрации электронов, β — скорости релаксации. Осцилляции имеют зависимость $cos(\omega_0 t)$ в механизме DECP. Механизм DECP был изначально предложен для описания механизма генерации фононов в непрозрачных материалах. В процессе DECP положения равновесия атомов существенно изменяются из-за лазерно-индуцированной высокой плотности электронов. Затем электронная подсистема релаксирует в квазиравновесное состояние за времена короче, чем требуется для возврата решетки/ядра к равновесию. DECP требует значительно большего поглощения импульса накачки, чтобы возбудить электронную подсистему, чем ВВКР (ISRS), и, следовательно, амплитуда фононов в нулевой момент времени в DECP пропорциональна максимальной концентрации возбужденных электронов. Позже Гарретт и Мерлин [413] модифицировали теорию и постулировали что DECP — это всего лишь частный случай ВВКР (ISRS). В другом теоретическом исследовании [405], Стивенс и Мерлин продемонстрировали, что существуют два отдельных тензора, отвечающих за вынужденное комбинационное рассеяние, один отвечает за индуцированное фононами модуляцию нелинейной поляризуемости среды, а другой за зависимость амплитуды когерентного фонона от интенсивности лазерного излучения. Они имеют одну и ту же действительную часть, связанную с импульсной генерацией фононов, но различную мнимую часть [405]. DECP обычно отвечает за генерацию фононов в металлах, полуметаллах и полупроводников с узкой запрещенной зоной и связанных с межатомными смещением при сильной ионизации [414]. В прозрачных материалах, ВВКР (ISRS) и DECP — идентичные механизмы, а в поглощающей среде, т. е. в непрозрачных материалах, где преобладает мнимая часть, механизм когерентной генерации фононов является DECP.

В большинстве случаев для детектирования когерентных фононов используется методика зондирования пробным импульсом с регистрацией его энергии, прошедшей через образец [415]. При малой интенсивности возбуждающего лазерного излучения сигнал пробного импульса будет содержать осцилляции с постоянной частотой, соответствующей частоте возбуждаемой фононной моды.

Важным отличием исследований, выполненных в рамках данной диссертационной работы, является то, что процесс широкополосного лазерного возбуждения когерентных фононов изучается в условиях экстремального ввода энергии в объем конденсированной среды, что реализуется при экстремальной для твердого тела интенсивности фемтосекундного лазерного излучения более 1 ТВт/см^2, превышающей порог формирования плазмы в среде. В этом случае к процессу возбуждения когерентных фононов добавляются еще эффективные процессы переноса лазерной энергии в кристаллическую решетку через электроны плазмы [416]. Формирование плазмы способствует эффективному локальному нагреву среды до температур в несколько сотен градусов [417], что может приводить к сильному изменению частоты комбинационно активных мод в кристаллах вблизи фазовых переходов, что в свою очередь может дать информацию о динамической структурной перестройке материала, установив особенности формирования новых фаз вещества.

Генерация когерентных фононов приводит к модуляции во времени кубической нелинейной восприимчивости среды $\chi^{(3)}(t) = \chi_0^{(3)} + \left(\partial\chi^{(3)}/\partial Q\right) \cdot Q(t)$, поэтому эффективность нелинейно-оптических процессов, работающих на нелинейности третьего порядка, например, процесса генерации третьей гармоники (ГТГ), также должна модулироваться во времени при возбуждении когерентных фононов в среде. Таким образом, в рамках данной главы диссертационной работы для изучения процессов возбуждения и релаксации когерентных фононов в режиме формирования лазерно-индуцированной плазмы в объеме кристаллических диэлектриков и полупроводников использовался нелинейно-оптический метод зондирования объема среды с временным разрешением на базе процесса генерации третьей гармоники, который успешно использовался в исследованиях динамики лазерной плазмы в конденсированных средах. Сигнал третьей гармоники лазерного импульса более чувствителен к изменению структуры вещества (ионизации среды, колебаниям ионов) по сравнению с сигналом пропускания лазерного импульса.

Выбор объектов исследования мотивировался возможностью наблюдения в лабораторных условиях легко достижимых лазерно-индуцированных новых фаз вещества и соответствующих фазовых переходов. Процедура проведения время-разрешенного эксперимента во всех образцах была схожа. Для определения энергий возбуждающего (силового) и пробного (невозмущающего) импульсов в каждом конкретном образце измерялся порог плазмообразования с помощью методики нелинейного пропускания и метода ГТГ.

4.8.1. Влияние лазерной плазмы на процессы энергопереноса и генерации когерентных фононов во фториде магния и кремнии

4.8.1.1. Восстановление давления, достигаемого при воздействии ультракоротких лазерных импульсов ближнего ИК-диапазона на фторид магния

Так как спектр фононных колебаний непосредственно зависит от структуры вещества, то необходимо представлять какие давления могут достигаться при лазерном воздействии на

образец, и, тем самым, определить достижимые в системе фазовые переходы. Для определения достигаемого лазерно-индуцированного давления в объеме фторида магния использовалась время-разрешенная теневая фотография. В рамках этой методики в качестве зондирующего импульса выступала вторая гармоника излучения хром-форстеритовой лазерной системы (620 нм), сгенерированная в кристалле BBO I типа. Как и в случае зондирования третьей гармоникой накачивающий импульс остро фокусируется в объем образца, однако пробный импульс предварительно рассеивается на диффузионной пластине и направляется противоположно силовому. В результате фокусирующая линза собирает сигнал из перетяжки на матрице ПЗС-камеры. Пробный импульс, проходя через область воздействия, испытывает рефракцию на изменениях показателя преломления, наведенных в образце при распространении лазерно-индуцированной ударной волны, которые на теневых фотографиях выглядят как темные области. За счет того, что давление и скорость ударной волны однозначно связаны уравнением ударной адиабаты, то зная скорость ударной волны в начальный момент времени (рассчитывая исходя из нескольких теневых фотографий, снятых для разных временных задержек) можно оценить давление на фронте ударной волны. Экспериментально были получены теневые фотографии (см. ***Рис. 144 (в)***) для разных энергий (пороговая энергия образования плазмы около 1 мкДж). На теневых фотографиях ударная волна выглядит как расходящаяся сферическая волна (см. ***Рис. 144 (а)***). Энергия лазерного излучения изменялась от 1 мкДж до 14 мкДж. Аппроксимируя зависимость диаметра ударной волны от времени (см. вставку на ***Рис. 144 (а)***) экспоненциально затухающей функцией, была получена зависимость скорости ударной волны от энергии. Затем с помощью ударной адиабаты восстанавливались давления для разных энергий лазерного излучения. В экспериментах достигалось давление выше 50 ГПа с временем затухания ~ 10 нс (на движущемся фронте ударной волны). Начальная скорость ударной волны в таких условиях составляет около 12 км/с (для импульса накачки с энергией 4 мкДж).

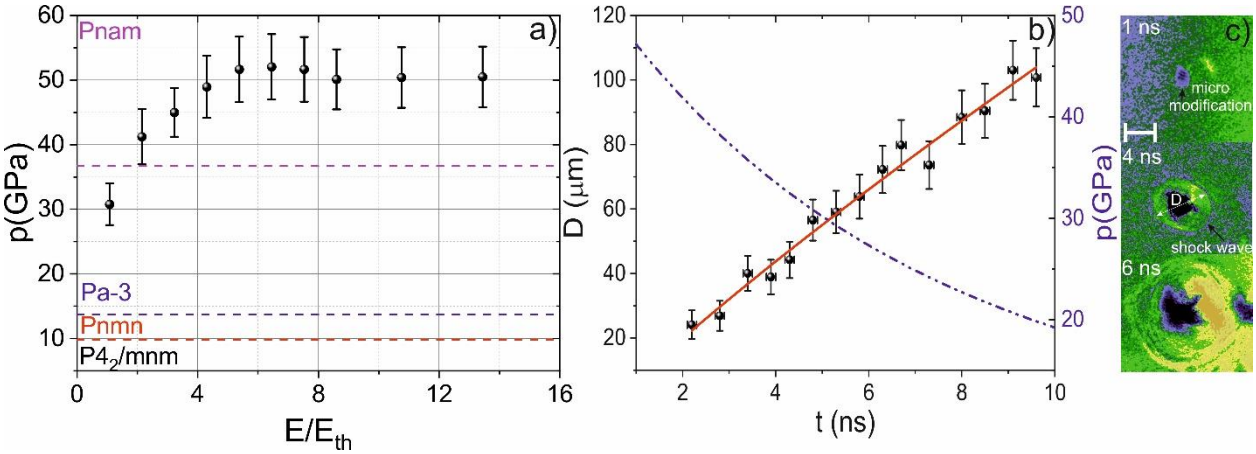


Рис. 144 а) Зависимость давления на фронте ударной волны от энергии лазерного импульса, нормированной на пороговую энергию плазмообразования (1 мкДж). Цветные пунктирные линии показывают давления, при которых наблюдается фазовый переход в стационарном случае. На вставке представлен пример зависимости диаметра ударной волны от времени; б) Пример эволюции диаметра ударной волны, зарегистрированной в экспериментах по теневой фотографии, и давления на фронте ударной волны; с) Пример теневых фотографий лазерно-индуцированной ударной волны.

Согласно фазовой диаграмме MgF_2 [418], достигнутые в экспериментах давления превышают пороговые значения для низкотемпературных фазовых переходов в MgF_2 (*Pnam*, *Pa-*

3, Pnmn) в стационарных условиях. Эти фазовые переходы характеризуются изменением симметрии решетки за счет уменьшения межатомных расстояний. В этих условиях межатомный потенциал резко меняется, определяя новые положения атомов.

Представленное на ***Рис. 144*** пороговое давление определяется в стационарных условиях, когда новая фаза может существовать бесконечно во времени. Однако распространение ударной волны вызывает сверхбыстрое (с характерным временем ~пс) изменение давления, и достигнутые давления не могут служить надежным индикатором фазового перехода. Более того, в динамическом случае фазовый переход является метастабильным и может быть обратимым, возвращаясь в исходное состояние после прохождения ударной волны. Если новая фаза существует, она должна влиять на макроскопические свойства среды. Для проверки возможности создания фазовых переходов под действием лазерного излучения был восстановлен фононный спектр MgF_2, определяемый симметрией решетки.

4.8.1.2. Численное моделирование фононного спектра во фториде магния методом молекулярной динамики

Изменение фононного спектра дает информацию о том, что произошла перестройка кристаллической решетки, однако не является прямым измерением. Для того, чтобы соотнести полученные частоты фононного спектра с новыми фазами было проведено численное моделирование методом молекулярной динамики. Для моделирования использовался пакет программ LAMMPS. В расчетах использовался потенциал для фторидов, представленный в статье [419], который может использоваться вплоть до давлений 130 ГПа. Однако в численном эксперименте наблюдалось разрушение сетки при давлениях выше 100 ГПа. В рамках моделирования создавалась одна суперячейка фторида магния размером 1000x1000x1000 атомов. К каждой границе прикладывалось внешнее постоянное давление. Моделирование проводилось в npT- ансамбле (ансамбль, в котором поддерживается постоянным количество частиц, давление и температура). Перед началом моделирования система переводилось в термодинамическое равновесие при комнатной температуре. Так как фазовый переход не осуществляется в системе с идеальными периодическими граничными условиями, то было удалено 100 атомов, случайно распределенных в ячейке моделирования, которые служили в качестве центров затравки новой фазы. Расчет фононного (колебательно-вращательного) спектра осуществлялся следующим образом. Для 10^6 шагов (шаг по времени 0,1 фс) рассчитывалась автокорреляционная функция скорости $\langle v(0)|v(t)\rangle$, после чего производилось Фурье преобразование автокорреляционной функции. Спектр, полученный таким образом, является колебательно-вращательным спектром исследуемого вещества, поскольку $I(\omega) = {}^{1}/_{2\pi} \int \langle v(0)|v(t)\rangle e^{i\omega t} dt$. В рамках проделанных работ было проведено моделирование с шагом 10 ГПа по давлению. Полученные таким образом фононные спектры хорошо соответствуют табличным данным. Развитый теоретический подход позволил рассчитать мгновенное значение дипольного момента (d) и его проекции в декартовых координатах (d_x, d_y, d_z). Для этого к измерению автокорреляционной функции был добавлен

заряд каждого атома. Для установления того, является ли полученная мода ИК или комбинационно (КР) активной, используются развитые в статистической механике подходы, в основе которых лежит быстрое преобразование Фурье (БПФ) от $d, d_x^2 + d_y^2, d_x \times d_y$ и d_z. Если в d есть ненулевая составляющая, то мода ИК активна, а если $d_x^2 + d_y^2$и d_z или $d_x \times d_y$ не равны нулю, то мода КР активна.

При нормальных условиях MgF_2 находится в структуре тетрагонального типа рутила с пространственной группой P42/mnm, которая совпадает с TiO_2 и SiO_2 [418]. При 9,1 ГПа он превращается в орторомбическую фазу типа $CaCl_2$ с пространственной группой Pnnm [420]. В кристалле MgF_2 фазовый переход при комнатной температуре происходит при нагрузке статическим давлением [418]. При дальнейшем сжатии MgF_2 переходит в модифицированную фторидную структуру (тип PdF_2, пространственная группа Pa-3) при 14 ГПа, а затем в структуру котуннита (тип α-$PbCl_2$, пространственная группа Pnam) при 35 ГПа. Структура решетки MgF_2 представлена на ***Рис. 145***. Важно отметить, что при высоком давлении фазовый переход должен происходить каскадно, как это показано для фазовых переходов, индуцированных ударной волной в Si: α-алмаз→β-Sn→Imma→простая гексагональная решетка. Возможные пути движения атомов при фазовых переходах отмечены на ***Рис. 145***.

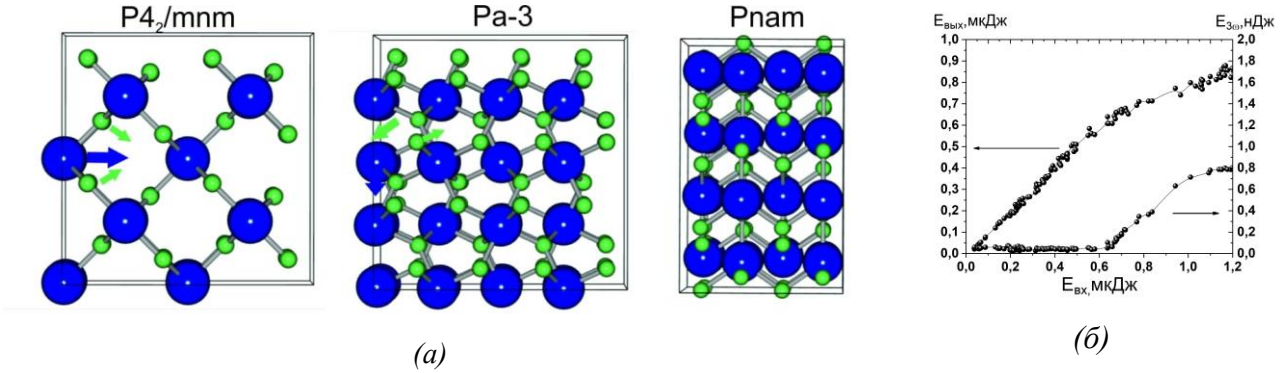


Рис. 145 (а) Атомы располагаются внутри решетки MgF_2 в разных фазах. Стрелками показаны смещения атомов при фазовых переходах. Mg изображен как синяя сфера, а F - как зеленая. (б) Зависимость прошедшей энергии лазерного импульса $E_{вых}$ и энергии его третьей гармоники $E_{3\omega}$ от энергии лазерного излучения E в кристалле фторида магния.

4.8.1.3. Динамика когерентных фононов при воздействии ультракоротких лазерных импульсов ближнего ИК-диапазона на фторид магния

Для того, чтобы восстановить динамику лазерно-индуцированных фазовых переходов использовалась время-разрешённая методика генерации третьей гармоники. Схема эксперимента приведена на ***Рис. 146***. Порог формирования плазмы, определенный по порогу генерации третьей гармоники лазерного излучения, составил E_1=0,6 мкДж (см. ***Рис. 145 (б)***), Для экспериментов с временным разрешением энергия возбуждающего импульса выбиралась 1 мкДж, энергия пробного импульса была ниже порога формирования плазмы 0,1 мкДж.

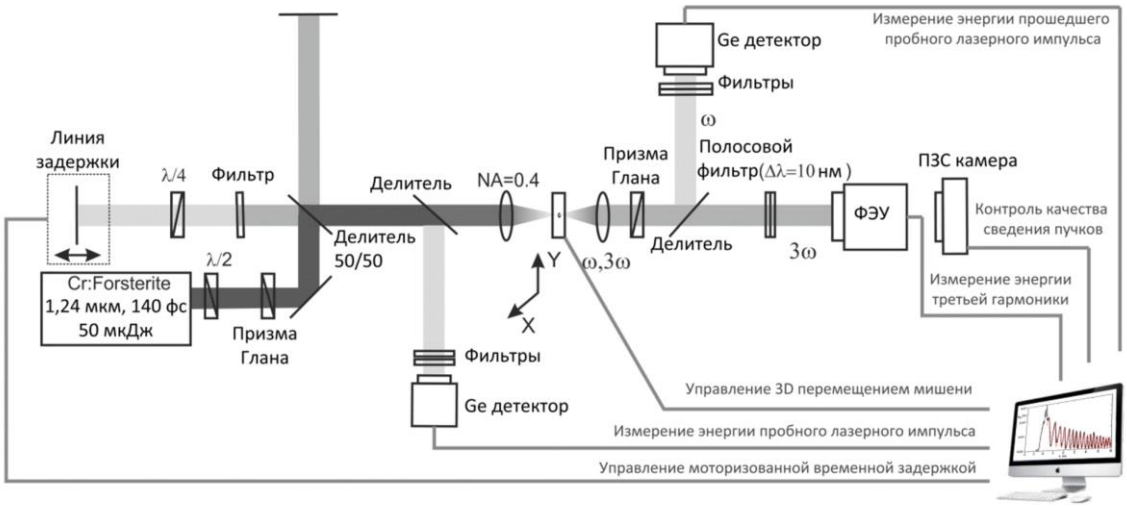


Рис. 146 Схема экспериментальной установки для нелинейно-оптического зондирования пробным импульсом. Энергии возбуждающего импульса варьируется с помощью полуволновой пластины и призмы Глана, в интерферометре Майкельсона излучение делиться на два импульса, с варьируемой задержкой между ними. После чего фокусируется в образец с помощью асферической линзы CAY 033(f=3cm, NA=0,4). Прошедшее излучение и сигнал третьей гармоники регистрируются на фотодетекторе и ФЭУ соответственно.

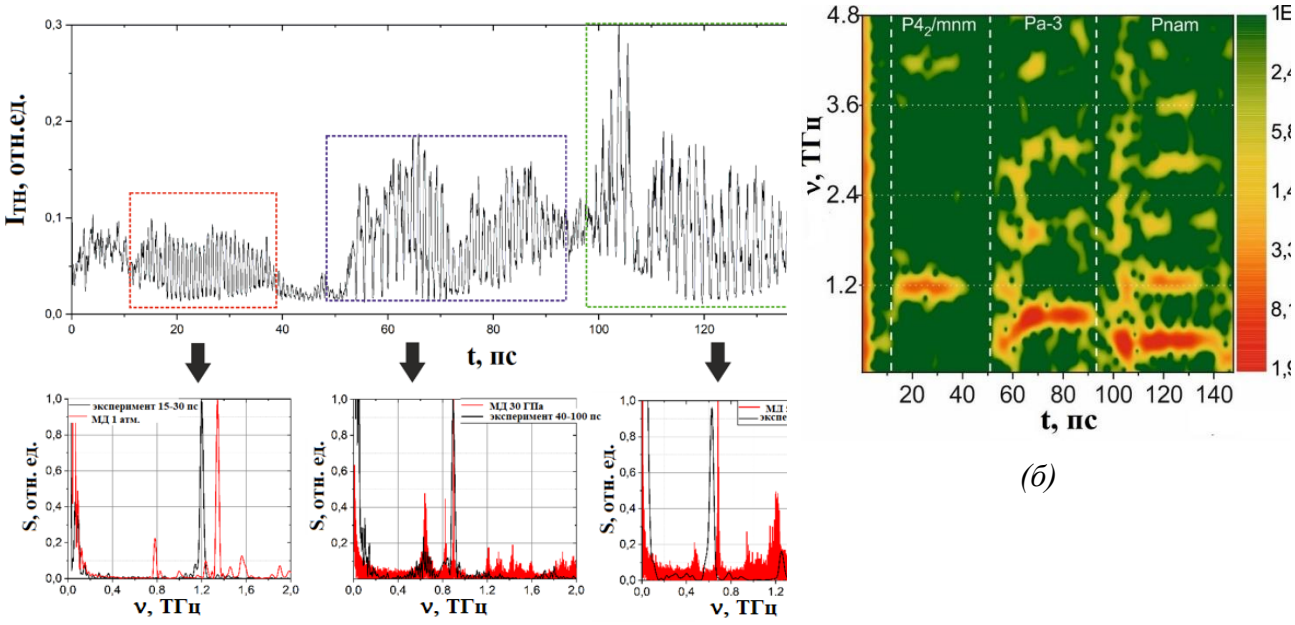
Для исследования динамики лазерно-индуцированной плазмы и процессов переноса энергии в объеме кристалла использовалась схема интерферометра Майкельсона, в которой возбуждающий и пробный импульсы с ортогональными поляризациями остро фокусировались в объем образца с помощью линзы Thorlabs A240TM (*NA*~0,5; измеренные значения диаметра и длины перетяжки в среде соответствуют 3 мкм и 20 мкм). В эксперименте регистрировались энергии возбуждающего импульса, прошедшего через образец пробного импульса, и третьей гармоники, генерируемой пробным импульсом в области зондирования. Излучение пробного импульса и его третьей гармоники выделялось с использованием призмы Глана. Энергия третьей гармоники пробного импульса, выделяемая полосовым фильтром (λ=410±5 нм), измерялась с помощью ФЭУ. Лазерное излучение распространялось вдоль оси Z образца.

В момент сведения импульсов по времени генерация плазмы внутри образца приводит к синхронному увеличению сигнала третьей гармоники и уменьшению нелинейного пропускания пробного импульса. Для восстановления фононного спектра регистрировалась зависимость сигнала третьей гармоники (ТГ) от временной задержки между возбуждающим и пробным лазерными импульсами (см. ***Рис. 147 (а)***). Фононы, возбуждаемые при смещении ионов в решетке, приводят к модуляции восприимчивости третьего порядка $\chi^{(3)}$ [43]. По сравнению с экспериментами по генерации фононов в Sb_2 [405] пиковые плотности энергии (~10^4 Дж/см^2) и интенсивности (~10^{13} Вт/см^2) в проведенных в рамках диссертации экспериментах примерно на 4 порядка выше, что приводит к генерации неравновесной электронной плазмы. Ввиду такого режима взаимодействия лазерного излучения с веществом, энергия лазерного импульса не может напрямую передаваться в решетку, а фононы генерируются с задержкой ~ 10 пс. В результате лазерно-индуцированная плазма действует как широкополосное возбуждение (близкое к дельта-функции) для когерентных фононов. Задержка генерации когерентных фононов соответствует

характерному времени электрон-фононного взаимодействия. Для стационарного случая его можно оценить как $\frac{1}{\tau_k} \approx \frac{|\xi|^2 m_c \theta k}{\pi \rho c_s^2 \hbar^3}$, где ξ – постоянная потенциала деформации, m_c – эффективная масса электрона, $\theta = k_b T$ (T – температура кристаллической решетки, k_b – постоянная Больцмана), k – волновой вектор электронов в плазмы, ρ — плотность MgF_2, c_s — скорость звука. Для оценки были использованы следующие параметры $|\xi| \sim 11$ эВ (порядок ширины запрещенной зоны), $m_c \sim 0{,}5\, m_e$, где m_e - масса электрона, T=300 K, ρ=3,15 г/см^3, c_s =3,5 км/с, волновой вектор электронов оценивался из кинетической энергии, которая составляла порядка 4 эВ. При таких параметрах время переноса энергии от электронов к фононам можно было бы оценить как 6 пс.

Также имеется ненулевая составляющая интенсивности третьей гармоники во времени; это может быть вызвано такими процессами, как генерация ударной волны (увеличение плотности на фронте ударной волны приведет к изменению $\chi^{(3)}$ и генерации третьей гармоники) и образование микромодификаций (уменьшение плотности в центре приведет к изменению в $\chi^{(3)}$ и генерации третьей гармоники). Ударная волна уйдет из области лазерного воздействия (радиус ~2 мкм) примерно через 150 пс, что соответствует исчезновению когерентных фононов.

Регистрировалось изменение сигнала третьей гармоники от временной задержки между накачивающим и пробным лазерными импульсами. Данная зависимость представлена на ***Рис. 147 (а)***. В этой зависимости четко проявляются три области (10–40 пс), (50-90 пс) и (100-140 пс). Был произведен спектральный анализ данных сигналов. В первой области выделяется сигнал на частоте 1,2 ТГц, который с увеличением временной задержки изменяет свою частоту сначала на 0,9 ТГц (вторая область), а затем до 0,65 ТГц (третья область). Кроме того, в спектре начинают появляться и дополнительные спектральные компоненты.



(а) *(б)*

Рис. 147. Зависимость сигнала третьей гармоники от временной задержки между возбуждающим и зондирующим лазерными импульсами. Снизу черными линиями показаны спектры данного сигнала во временных окнах, отмеченных цветным пунктиром). Красными линиями показаны фононные спектры (умноженные на функцию ν^{-3}), полученные в результатах численного моделирования для давлений 1 атм., 30 и 50 ГПа. (б) Тепловая карта спектра фононных

колебаний, полученного как Фурье преобразование временной зависимости сигнала третьей гармоники со скользящим временным окном.

Резкое изменение спектра связано с изменением симметрии решетки. Если расстояние между атомами изменяется монотонно, частота фононной моды будет изменяться аналогичным образом. Наоборот, получаем «скачок» частоты. Скачок мог быть результатом только фазового перехода, приводящего к изменению симметрии решетки, определяющей разрешенные фононные моды. Однако из-за ограничений метода (зарегистрированный спектр лежит в диапазоне до 4 ТГц) сам по себе спектр не дает прямой информации о фазовых переходах и достигаемых давлениях.

Отметим, что спектр полученных мод ограничен 4 ТГц. Это обусловлено механизмом генерации, а именно механизмом смещения для возбуждения ТГц фононов (DECP) [406]. При таком подходе смещение атомов Q имеет обратную квадратичную зависимость от фононной частоты (ω) $Q{\sim}1/\nu^2$. С другой стороны, $\left(\frac{\partial\chi^{(3)}}{\partial Q}\right)$тензор имеет корневую зависимость от фононной частоты $\left(\frac{\partial\chi^{(3)}}{\partial Q}\right){\sim}\sqrt{\nu}$ [421]. Таким образом, эффективность генерации третьей гармоники имеет обратную кубическую зависимость от частоты $\eta_{3\omega}{\sim}\nu^{-3}$.

Таким образом, фононный спектр, полученный методом молекулярной динамики (МД), был нормирован на функцию ν^{-3}. Интересно, что в рамках альтернативного подхода, описывающего генерацию фононов – внутриимпульсного вынужденного комбинационного рассеяния (ISRS) [399], смещение атомов обратно пропорционально частоте $Q{\sim}1/\nu$, но эксперименты подтверждают обратную кубическую зависимость, которая соответствует механизму смещения для возбуждения фононов (DECP). Сравнение результатов численного моделирования фононного спектра (учитывая, что интенсивность сигнала третьей гармоники обратно пропорциональна кубу частоты колебаний, что соответствует наиболее близкому совпадению теории и эксперимента) с экспериментальными данными позволяет оценить достигнутые давления и выделить фазы MgF_2 при лазерном воздействии (см. ***Рис. 147***). Первая область (10-40 пс) соответствует фазе *P42/mnm* и атмосферному давлению, вторая область (50–90 пс) – фазе *Pa-3* (30 ГПа), третья область (100–140 пс) – фазе *Pnam* (50 ГПа) соответственно. Таким образом, можно утверждать, что изменение характерных мод фононных колебаний, наблюдаемое экспериментально при фемтосекундном лазерном воздействии, обусловлено перестройкой кристаллической решетки.

На временах примерно до 40 пс кристаллическая решетка по-прежнему соответствует невозмущенной среде. Затем амплитуда фононных колебаний уменьшается практически до нуля. Далее амплитуда ТГ увеличивается, а основная частота смещается с 1,2 до 0,9 ТГц. В качестве визуальной аналогии процесса можно представить двумерный массив нелинейных связанных осцилляторов. После приложения внешней силы они начнут колебаться на собственных частотах. Затем часть осцилляторов резко меняет собственные частоты; кроме того, увеличивается доля осцилляторов на новой частоте (из-за фазового перехода). При таком

процессе амплитуда колебаний уменьшится, так как энергия не может рассеяться через короткий промежуток времени, вновь возникнут колебания на новой частоте. Характерное время возникновения генерации фононов на «новой» частоте должно соответствовать времени фонон-фононного рассеяния, что составляет ~10 пс. Аналогичный процесс происходит при сдвиге частоты от 0,9 до 0,65 ТГц. Таким образом, можно утверждать, что через ~50 пс после лазерно-плазменного возбуждения фононов происходит фазовый переход *P42/mnm → Pa-3*. Смещение атомов при фазовом переходе представлено на ***Рис. 147 (а)***. Эта фаза является метастабильной и существует порядка 50 пс, после чего происходит фазовый переход *Pa-3 → Pnam*. Последняя фаза существует порядка 50 пс, после чего кристаллическая решетка окончательно разрушается (формируется микромодификация) и соответственно исчезает сигнал третьей гармоники. Увеличение энергии лазерного импульса (до 4 мкДж) приводит к более быстрому разрушению материала и уменьшению числа наблюдаемых фаз.

Интересно, что характерные для фазы *Pnmn* частоты не наблюдались в фононном спектре. Возможно, это связано с относительно узким диапазоном давлений, в котором эта фаза стабильна (см. ***Рис. 144***). Восстановленный по МД спектр соответствует фононной плотности состояний MgF_2. Этот спектр указывает на все возможные моды колебаний атома (каждая со своей частотой), и некоторые из них нельзя было допустить из-за нулевых компонент тензора $\left(\frac{\partial \chi^{(3)}}{\partial Q}\right)$. МД также может давать информацию о комбинационной и ИК-активности полученных мод. На ***Рис. 147 (а)*** ИК и комбинационная активность фононов специально отмечена. В эксперименте могли наблюдать только комбинационно-активные фононные моды. Анализ диагональных составляющих наблюдаемых мод показывает, что, вероятно, мода 1,2 ТГц (10-40 пс) - это A_{1g} (диагональные компоненты рамановского тензора a,a,b); 0,9 ТГц (40-100пс) — это B_{1g} мода, а 0,65 ТГц (100-140 пс) – это E_g мода. Выполненное численное моделирование проводилось при температуре 300 К и не учитывало возможное повышение давления, вызванное лазерным нагревом решетки. Тем не менее наблюдается хорошее совпадение модельных и экспериментальных данных. Это может быть связано с низкими скоростями термодиффузии (время термодиффузии ~1-10 мкс); при этом высокая температура наблюдается только в области микромодификации и не влияет на фазовые переходы.

Применяя для анализа временного сигнала ТГ Фурье-анализ со скользящим временным окном, можно более наглядно визуализировать временную динамику фазовых переходов. Так, на ***Рис. 147 (б)*** лучше видно переходные процессы при фазовом переходе P42/mnm → Pa-3, который сопровождается плавным увеличением частоты, а также плавное уменьшение частоты при временных задержках более 140 пс, предшествующих образованию микромодификации. Также стоит отметить, что в остальных случаях спектр фононных колебаний изменяется скачкообразно. При временной задержке 10 пс это, вероятно, вызвано характерными временами передачи энергии из электронной в фононную подсистему (время электрон-фононной релаксации), так как генерация фононов в диэлектриках имеет лазерно-плазменный механизм. При фазовых

переходах скачкообразное изменение спектра, вероятно, вызвано тем, что при фазовых переходах меняется симметрия системы и при «новой» кристаллической решетке «старые» колебания становятся невозможными, что приводит к перераспределению энергии между фононными модами. Видимое увеличение амплитуды сигнала во временной зависимости при этом вызвано тем, что при более высоком давлении фононные колебания имеют более низкую частоту - следовательно, сигнал третьей гармоники возрастет.

Если же обратиться к результатам численного моделирования, то можно отметить следующие характерные моменты. С ростом давления увеличивается число возможных фононных мод в относительно высокочастотной (1–2 ТГц) области. Это, вероятно, вызвано уменьшением расстояний между атомами. Также низкочастотная ярко выраженная мода в районе 1 ТГц уменьшает свою частоту с ростом давления, причем фазовые переходы (в окрестности 15 и 35 ГПа) приводят к «раздвоению» низкочастотных мод на две. За счет увеличения модового состава интенсивность отдельных мод падает. Также стоит отметить, что в области более 2 ТГц фононный спектр носит почти непрерывный характер.

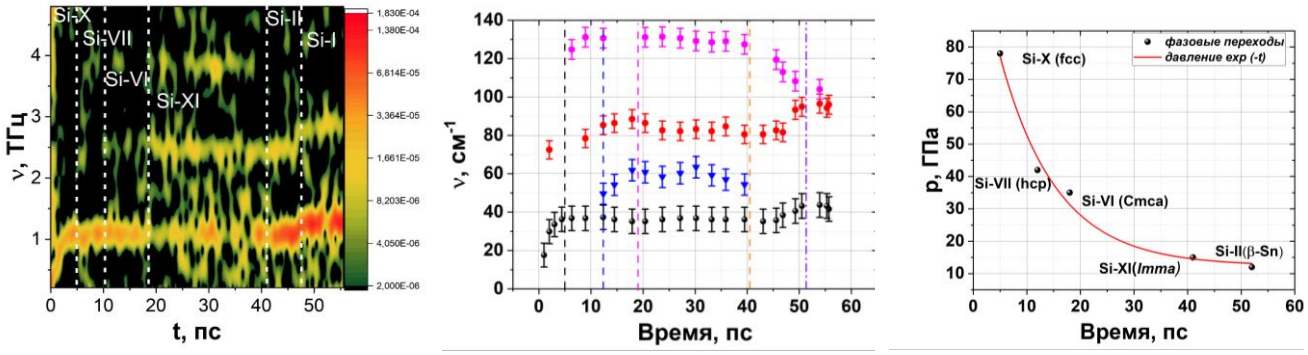
Отметим, что методика зондирования с помощью третьей гармоники может служить эффективным инструментом для время-разрешенной диагностики фазовых переходов в прозрачных диэлектриках. Хотя сама по себе она не дает полной информации о фазовом переходе, а только служит его индикатором. В сочетании с численным моделированием - например, с использованием метода молекулярной динамики - данный способ может быть использован, чтобы полностью охарактеризовать нестационарные фазы вещества с суб-пс временным разрешением. За счет того, что при фемтосекундном лазерном воздействии в веществе могут быть достигнуты давления вплоть до сотен ТПа, данный метод имеет хорошие перспективы для применений в физике конденсированного состояния. Единственным ограничением является то, что вещество должно быть прозрачно как для основного излучения, так и для третьей гармоники. В данной же работе, используя предложенный метод, была восстановлена динамика лазерно-плазменных фазовых переходов во фториде магния. А именно было показано, что в MgF_2 существуют каскад пикосекундных фазовых переходов P42/mnm → Pa-3 → Pnam; переход между фазами имеет характерные времена 5-10 пс, а время жизни фазы составляет порядка 40-60 пс; за 140 пс наблюдается полное разрушение решетки и когерентные фононы пропадают.

Подводя итог данному подразделу, можно сделать заключение, что процессы возбуждения и релаксации когерентных фононов в кристаллических средах в режиме формирования плазмы носят общий характер, как для диэлектриков, так и для полупроводников. Формируемая в микрообъеме кристаллических сред лазерно-индуцированная плазма оказывает существенное влияние на процессы возбуждения и релаксации когерентных фононов. Передача энергии от электронной подсистемы в атомную происходит в течение времени термализации плазмы, также на этих временных масштабах происходит генерация ударных волн и возбуждение когерентных фононов. Зависимость амплитуды фононных колебаний от их частоты

соответствует механизму DECP, однако в нашем случае возбуждение когерентных фононов происходит на гораздо больших временных масштабах (более 5 пс). В рамках классической интерпретации данного механизма причиной возбуждения когерентных фононов указывается смещение атомов в решетке под воздействием плазмы. В рассматриваемом в диссертационной работе случае, вероятно, источником затравки фононов служат ударные волны, также смещающие положение атомов в кристаллической решетке и инициирующей фазовые переходы. Данное предположение подтверждает тот факт, что в экспериментах наблюдаются резкие скачки в частотах, характерные зависимости амплитуды когерентных фононов от частоты, а также относительно длинные времена существования когерентных фононов (более 5 пс).

4.8.1.4. *Пикосекундная динамика релаксации кристаллической решетки кремния, регистрируемая с помощью время-разрешенной спектроскопии когерентных терагерцевых фононов*

Эксперименты по исследованию динамики когерентных фононов в кремнии проводились в схеме аналогичной той, что применялась для анализа динамики когерентных фононов в прозрачных диэлектриках. Лазерное излучения среднего ИК-диапазона ($\lambda_\omega = 4{,}6$ мкм) остро (NA=0,5) фокусировалось в объем монокристалла кремния. Генерируемый из объема сигнал третьей гармоники ($\lambda_{3\omega} = 1{,}52$ мкм) собирался с помощью асферической линзы (NA=0,5) и регистрировался с помощью высокочувствительного детектора. Фурье анализ со скользящим временным окном полученной временной зависимости третьей гармоники, предоставляет информацию об эволюции частот фононов в кремнии при возбуждении лазерными импульсами среднего ИК-диапазона (см. ***Рис. 148 (а)***).



(а) *(б)* *(в)*

Рис. 148 (а) «Тепловая карта» изменения частот когерентных фононов в кремнии в зависимости от задержки между возбуждающим и пробным импульсами. (б) Динамика изменения частот когерентных фононов в кремнии при воздействии фемтосекундного лазерного излучения среднего ИК-диапазона (4,6 мкм). (в) Зависимость давления, при котором может происходить фазовый переход, от задержки между возбуждающим и зондирующим лазерными импульсами. Красной линией отмечено экспоненциальное затухание давления.

Исходя из ***Рис. 148 (а)*** можно выделить диапазон частот когерентных фононов с наибольшей амплитудой модуляции сигнала третьей гармоники, а именно ~38 см$^{-1}$, ~ 80 см$^{-1}$ и ~130 см$^{-1}$. Причем частоты фононов изменяются с течением времени, как это представлено на ***Рис. 148 (б)***. В отличие от фторида магния, частоты когерентных фононов в кремнии гораздо

сложнее относить к тем или иным полиморфным фазам. Это вызвано, во-первых, наличием большого (больше двенадцати [292]) количества фаз в кремнии, наблюдаемых при высоких давлениях, а также тем, что многие частоты (например, $\nu = 130\ \text{см}^{-1}$) характерны сразу для нескольких фаз. Кроме того, частоты фононных колебаний сильно зависят от температуры решетки. Однако, даже в таком нетривиальном случае можно сделать анализ индуцированных давлений в кремнии. С фундаментальной точки зрения динамика фазовых переходов, индуцированных фемтосекундными лазерными импульсами в условиях высокого энерговклада в полупроводниках имеет мало отличий по сравнению с динамкой, регистрируемой в прозрачных диэлектриках. За время, характерное для электрон-фононных взаимодействий (порядка 100–300 фс в кремнии), энергия передается от электронной подсистемы в ионный остов, это приводит к генерации ударных волн, на фронте которых наблюдаются фазовые переходы [280,281]. Также на временных масштабах электрон-фононных взаимодействий генерируются когерентные фононы, изменение характерных частот которых может служить индикатором фазовых переходов.

Исходя из динамики изменения частот когерентных фононов можно определить характерные времена изменения фононного спектра – на ***Рис. 148 (б)*** эти моменты времени отмечены вертикальными линиями. Проще всего идентифицировать фазовый переход из фазы Imma в β-Sn, он характеризуется плавным исчезновением фононов на частоте 130 см$^{-1}$, а также увеличением фононной частоты с 80 см$^{-1}$, характерной для Imma фазы [422], до 100 см$^{-1}$ – характерной для β-Sn фазы [423]. Похожий скачок частот при изменении давления был отмечен в работе [424]. Также можно отметить, что частоты в области 30 см$^{-1}$ характерны для fcc фазы, как это продемонстрировано в [422]. В этой же работе показано, что частоты порядка 70 см$^{-1}$ характерны для кубической фазы.

Однако для идентификации новых фаз в кремнии можно не привязываться к конкретным частотам, а обратить внимание на временные задержки, при которых наблюдаются характерные изменения в регистрируемом по сигналу третьей гармоники фононном спектре. За счет того, что давление, характерное для возникновения фазового перехода в кремнии, относительно хорошо определено (по крайней мере для стационарных условий), а давление на фронте ударной волны затухает экспоненциально, то можно построить график, где оси абсцисс соответствуют временные задержки, при которых происходят фазовые переходы, а по оси ординат располагаются давления, при которых должны происходить фазовые переходы. Если точки на этом графике будут образовывать экспоненциальную зависимость (затухание давление), то изменение фазы восстановлено верно. На ***Рис. 148 (в)*** представлен именно такой график – из него видно, что все точки с хорошей точностью соответствуют экспоненциальному затуханию давления. Таким образом, можно сделать вывод, что ударная волна, индуцированная лазерным импульсом в кремнии, приводит к каскаду фазовых переходов, причем они происходят на спадающем профиле давления.

Выводы по главе 4

Таким образом, предложены и реализованы *новые подходы к управляемому локализованному воздействию остросфокусированного фемтосекундного лазерного излучения с интенсивностью выше 1 ТВт/см^2* на объём прозрачных конденсированных сред, включая диэлектрики и полупроводники, что в сочетании с разработанными методами диагностики плазмы и эволюции лазерно-индуцированного экстремального состояния вещества позволяет создавать *динамические и стационарные лазерно-индуцированные фазовые переходы*.

1. Экспериментально установлено, что взаимодействие остросфокусированного (NA=0,5) линейно-поляризованного высокоинтенсивного (более 1 ТВт/см^2) фемтосекундного низкоэнергетичного (~мкДж) лазерного излучения, перестраиваемого по длине волны в диапазоне 0,6-5 мкм, с прозрачной конденсированной средой (на примере плавленого кварца и фторида магния) приводит к нелинейному поглощению энергии лазерного излучения, порог по возникновению которого (порог плазмообразоования) немонотонно зависит от длины волны воздействующего лазерного излучения, а экстремумы в этой зависимости определяются балансом между скоростями полевой ионизации и нагрева электронов в поле лазерного излучения.
2. Проведённые измерения зависимости порога плазмообразования и создания модификации от длины волны лазерного излучения в режиме однократного воздействия позволяют установить, что модификация плавленого кварца возникает только при энергии порядка 1,5–2 пороговых энергий плазмообразования и связана с достижением энерговклада порядка 2 кДж/см^3.
3. Экспериментально обосновано применение методики генерации несинхронной третьей гармоники для определения объема плазмообразования. На основе разработанного алгоритма восстановления определены продольные и поперечные размеры микроплазмы для разных фокусировок и длин волн возбуждающего излучения. Показано, что область плазмообразования совпадает с размерами перетяжки только при энергии порядка 2–3 пороговых энергий плазмообразования.
4. Предложен и реализован оптико-акустический метод восстановления трехмерного профиля энерговклада и распределения электронной концентрации при воздействии высокоинтенсивных (до 10^{14} Вт/см^2) лазерных импульсов на воду. Разрешение метода по концентрации электронов составило ~$3\cdot10^{18}$ см$^{-3}$, а по энерговкладу ~15 Дж/см^3.
5. Экспериментально определены зависимости объемного энерговклада в конденсированную среду (на примере плавленого кварца) от падающей энергии и длины волны (0,6–2 мкм) воздействующего лазерного излучения при фиксированных параметрах фокусировки. Обнаружено, что максимальный энерговклад достигается для коротковолнового излучения (620 нм), что связано с лучшей пространственной локализацией. При увеличении падающей

энергии энерговклад выходит на насыщение, а затем медленно спадает, оставаясь при этом выше порога образования модификации (около 2 кДж/см^3 для плавленого кварца).

6. Впервые показано, что использование *двухцветной пары* фемтосекундных лазерных импульсов позволяет *управлять* объемным энерговкладом при острой фокусировке (NA=0,5) фемтосекундного излучения в объем конденсированной среды. Использование коротковолнового излучения с энергией кванта, близкой к ширине запрещённой зоны материала, пространственно ограничивает область генерации затравочных электронов плазмы, увеличение средней энергии и концентрации которых происходит в поле длинноволнового излучения с энергией кванта много меньшей ширины запрещённой зоны материала. Установлено также, что изменение степени поляризации и длины волны греющего лазерного импульса может обеспечить дополнительное управление объёмным энерговкладом.
7. Предложены и экспериментально обоснованы различные подходы по *увеличению энерговклада при фокусировке фемтосекундного лазерного излучения в объем полупроводника (кремния)*. Показано, что изменение длительности лазерного импульса ближнего ИК-диапазона (λ=1,24 мкм) позволяет уменьшить влияние лазерно–индуцированной плазмы на процесс распространения лазерного импульса и повысить энерговклад до ~0,7 кДж/см^3 достигаемый при длительности импульса 0,8 пс, а многофотонное (N>4) поглощение остросфокусированного (NA=0,86) фемтосекундного (τ=160 фс) лазерного излучения среднего ИК-диапазона (λ=4,6 мкм) позволяет достичь величины объёмного энерговклада более 5 кДж/см^3, что приводит к созданию объёмной микромодификации в режиме однократного воздействия. Теоретически продемонстрировано, что достижение таких значений объёмного энерговклада обеспечивается процессами эффективного нагрева электронов в поле интенсивного лазерного излучения среднего ИК-диапазона, которые в свою очередь приводят к созданию микроплазмы высокоэнергетичных электронов (~ 4 эВ) с сверхкритической концентрацией ($n_e^{max} = 8{,}1 \times 10^{21}\text{см}^{-3} \gg n_{cr}(4{,}6\ \text{мкм}) = 10^{20}\text{см}^{-3}$). Эти результаты стали основой для развития ИК микрообработки материалов с большими показателя преломления, так как создание модификаций в объеме полупроводника в таком случае не требует сложных схем твердотельной иммерсии или пространственно-временного чирпирования.
8. Проведено сравнение особенностей взаимодействия остросфокусированных (NA=0.85) низкоэнергетичных (~мкДж) лазерных импульсов различной длительности (от 0,1–0,2 фс до 1,2 пс) ближнего (1,24 мкм) и среднего (4,6 мкм) ИК диапазонов с объёмом прозрачного диэлектрика (на примере фторида магния) и полупроводника (на примере кремния). Выявлено, что при таком изменении длины волны воздействующего лазерного излучения на диэлектрик существенным является изменение механизмов ионизации. В то время как скорость полевой ионизация плавно уменьшается с длиной волны, механизм нагрева электронов в зоне проводимости переходит от одночастичного (прямое и электрон-фотон-

фононное поглощение) к многочастичному обратнотормозному поглощению. На практике такое изменение механизма нагрева приводит к слабой зависимости порога плазмообразования от длительности воздействующих лазерных импульсов в случае импульсов среднего ИК-диапазона (4,6 мкм) и значительному изменению в случае ближнего ИК-диапазона (1,24 мкм).

9. Экспериментально продемонстрировано, что острая фокусировка (NA=0,5) двухцветной пары (1,24 мкм и 4,6 мкм) фемтосекундных низкоэнергетичных (~ мкДж) лазерных импульсов в объём кремния позволяет повысить объёмный энерговклад в ~2 раза относительно одноимпульсного воздействия излучением среднего ИК-диапазона и достичь значений ~7–8 кДж/см^3. Максимальное значение объёмного энерговклада достигается при энергиях воздействующих фемтосекундных импульсов, близких к порогу плазмообразования.
10. Установлено, что термализация плазмы, созданной при острой фокусировке (NA=0,5;0,85) фемтосекундного лазерного излучения с интенсивностью (~10^{12}–10^{13} Вт/см^2) ближнего/среднего ИК-диапазона в объём диэлектрика/полупроводника, приводит к генерации *когерентных фононов*, скачкообразное изменение спектра которых может свидетельствовать о наличии каскада быстрых *фазовых переходов*. Зависимость амплитуды фононных колебаний от их частоты соответствует механизму смещения (DECP), однако в отличие от его классической интерпретации возбуждение когерентных фононов происходит на гораздо больших временных масштабах (больше времени жизни плазмы), так как источником генерации фононов служат ударные волны, смещающие положение атомов в кристаллической решетке и инициирующие *фазовые переходы*.

Заключение

Основные результаты, полученные в рамках настоящей диссертации, можно сформулировать следующим образом.

1. Использование *групповых синхронизмов* взаимодействующих импульсов в нелинейных кристаллах (дидейтероарсената цезия, трибората лития), чирпированных импульсов накачки, а также явления *филаментации* лазерных пучков в условиях расходящегося волнового фронта излучения накачки, позволило реализовать генерацию *мощных* (до 20 МВт) фемтосекундных суперконтинуумов в ближнем ИК-диапазоне со спектральной шириной до 450 нм, которые были использованы при создании высокостабильных источников затравочного излучения параметрических усилителей света.
2. Разработаны подходы и реализованы схемы *эффективной* (до 10%) генерации фемтосекундного лазерного излучения ближнего ИК-диапазона (λ=1,24 мкм) мультигигаваттной пиковой и ваттной средней мощностью на основе кристалла хром-форстерита и последующего его э*ффективного* (1-10%) преобразования в длинноволновое фемтосекундное излучение (~1-8 мкм) в схемах параметрического усиления на базе неоксидных нелинейно-оптических кристаллов (тиогаллата серебра, тиогаллата лития).
3. Предложены и реализованы новые схемы генерации *мощного фемтосекундного лазерного излучения среднего ИК-диапазона* (4-5 мкм) на основе семейства халькогенидных сред с управляемыми спектролюминесцентными свойствами при их накачке высокоэнергичными (до 50 мДж) мощными (~МВт) лазерными наносекундными импульсами в 3-мкм диапазоне длин волн с плотностью энергии ~1 Дж/см^2. Разработанный подход позволил создать *уникальную* фемтосекундную лазерную систему, работающую на этом принципе в среднем ИК-диапазоне и генерирующую импульсы с пиковой мощностью более 20 ГВт.
4. Экспериментально показано, что бинарная газовая смесь, состоящая из инертного и молекулярного газов, является *перспективной нелинейно-оптической средой,* нелинейными и дисперсионными свойствами которой можно независимо *управлять* за счёт изменения парциального давления соответствующего газа в смеси и наличия спектрально близкой полосы поглощения, способствующей повышению эффективности нелинейно-оптических преобразований фемтосекундного лазерного излучения среднего ИК-диапазона (λ=4,6 мкм). Реализована генерация гармоник основного излучения лазерной системы на кристалле Fe:ZnSe (λ=4,6 мкм, τ=160 фс, I=1.8·10^{13} Вт/см^2) в Xe-CO_2 газовой смеси (p_{Xe}=45 атм, p_{CO2}=1 атм) с эффективностью 1% в третью (λ=1,53 мкм), 0,3% в пятую (λ=0,92 мкм) и суммарно 0,5% в высокие оптические гармоники вплоть до 11-ой. Осуществлено равномерное расширение коротковолнового (< 4 мкм) и длинноволнового (> 5 мкм) крыльев спектра мощного (>10 ГВт) ИК импульса в газовой

смеси Kr-O_2 высокого давления (p_{Kr}=20 атм, p_{O2}=10 атм) с последующей компрессией фемтосекундных 4 мкм лазерных импульсов до длительности 62 фс, что близко к четырём оптическим циклам поля, при пиковой мощности более 30 ГВт.

5. Предложены, обоснованы и реализованы эффективные (1-10%) нелинейные методы управления спектрально-временными свойствами мощного фемтосекундного лазерного излучения ближнего (λ=1,24 мкм) и среднего (λ=4,6 мкм) ИК диапазонов в конденсированных и плотных газовых средах, позволившие создать *новые источники* когерентного излучения ультракороткой длительности в широком диапазоне длин волн (от УФ до ТГц).
6. Предложены и экспериментально обоснованы подходы по *управлению энерговкладом при фокусировке фемтосекундного лазерного излучения в объем полупроводника* на примере монокристалла кремния. Показано, что увеличение длительности (от 0,1 пс до 0,8 пс) лазерного импульса ближнего ИК-диапазона (λ=1,24 мкм) позволяет уменьшить влияние лазерно–индуцированной плазмы на процесс распространения лазерного импульса и повысить энерговклад до ~0,7 кДж/см^3, а многофотонное поглощение остросфокусированного (NA=0,86) фемтосекундного (τ=160 фс) лазерного излучения среднего ИК-диапазона (λ=4,6 мкм) позволяет достичь величины объёмного энерговклада более 5 кДж/см^3, что обеспечивает объёмную микромодификацию кремния в режиме однократного воздействия.
7. Предложены и реализованы *новые подходы к управлению энерговкладом при воздействии остросфокусированного фемтосекундного лазерного излучения с интенсивностью более 1 ТВт/см^2* на объём диэлектрических и полупроводниковых сред в области их прозрачности, что в сочетании с разработанными методами диагностики плазмы и эволюции лазерно-индуцированного экстремального состояния вещества с использованием нелинейно-оптического метода микроскопии на основе процесса генерации третьей гармоники позволяет создавать и регистрировать *динамические и стационарные лазерно-индуцированные фазовые переходы.*

Таким образом, в диссертации изучены и разработаны новые методы генерации мультигигаваттных, синхронизированных по времени, фемтосекундных лазерных импульсов ближнего и среднего ИК диапазонов, что в сочетании с предложенными *нелинейными* методами управления спектрально-временными свойствами этого излучения демонстрирует создание *широкодиапазонных фемтосекундных ИК лазерных источников нового поколения.* Генерируемое ими когерентное и перестраиваемое от УФ до ТГц диапазона излучение ультракороткой длительности может быть полезно для применения в области нелинейной оптики и физики взаимодействия излучения с веществом. Исследованные эффекты экстремального воздействия лазерного излучения на

объём прозрачной конденсированной среды могут лечь в основу создания лазерно-индуцированных фаз вещества и методов объёмного микроструктурирования диэлектрических и полупроводниковых материалов, что важно для развития элементной базы современной ИК фотоники.

Публикации автора по теме диссертации

Статьи в рецензируемых научных журналах, индексируемых в базах данных Web of Science, Scopus и RSCI

1. *Румянцев Б.В., Пушкин А.В., Сулейманова Д.З., Жидовцев Н.А., Потёмкин Ф.В.* Генерация перестраиваемого мощного малопериодного терагерцового излучения в органических кристаллах при накачке мультигигаваттными чирпированными лазерными импульсами ближнего ИК-диапазона на длине волны 1.24 мкм // Письма в Журнал экспериментальной и теоретической физики. — 2023. — Т.117. — С. 571–579. IF (РИНЦ)= 1.142 (Вклад автора 0.8)
2. *Mareev E.I., Obydennov N.G., Potemkin F.V.* Dynamics of the Femtosecond Mid-IR Laser Pulse Impact on a Bulk Silicon // Photonics. — 2023. — V.10. — P. 380. JIF =2.536 (Вклад автора 0.8)
3. *Lvov K.V., Potemkin F.V., Stremoukhov S.Y.* Extension of the multiple rate equation model for conduction band dynamics under near- and mid-IR femtosecond excitation of dielectrics and semiconductors // Materials Today Communications. — 2023. — P. 105594. JIF =3.662 (Вклад автора 0.2)
4. *Pushkin A.V., Potemkin F.V.* High-gain broadband laser amplification of mid-IR pulses in Fe:CdSe crystal at 5 μm with mJ output energy and multigigawatt peak power // Optics Letters – 2022. – V.47. – P. 5762–5765. JIF= 3.56 (Вклад автора 0.6)
5. *Румянцев Б.В., Михеев К.Е., Пушкин А.В., Потёмкин Ф.В.* Влияние длины и давления газовой струи на процесс генерации оптических гармоник фемтосекундным излучением лазерной системы на кристалле Fe:ZnSe с длиной волны 4,5 мкм // Письма в Журнал экспериментальной и теоретической физики – 2022. – Т.116. – С. 659–666. IF (РИНЦ)= 1.142 = 1.142 (Вклад автора 0.6)
6. *Румянцев Б.В., Михеев К.Е., Пушкин А.В., Мигаль Е.А., Стремоухов С.Ю., Потёмкин Ф.В.* Генерация оптических гармоник при взаимодействии высокоинтенсивного (до 10^{14} Вт/см^2) фемтосекундного лазерного излучения среднего ИК-диапазона лазерной системы на кристалле Fe:ZnSe с плотной ламинарной газовой струей // Письма в Журнал экспериментальной и теоретической физики – 2022. – Т.115. – С. 431–436. JIF = 1.142 (Вклад автора 0.6)
7. *Пушкин А.В., Потёмкин Ф.В.* Особенности получения мощных (до 1 МВт, 100 мДж) 3-мкм наносекундных лазерных импульсов в эрбиевых кристаллах в частотном режиме // Письма в Журнал экспериментальной и теоретической физики – 2022. – Т.116. – С. 508-516. JIF = 1.142 (Вклад автора 0.6)
8. *Mareev E.I., Potemkin F.V.* Dynamics of ultrafast phase transitions in MgF_2 triggered by laser-induced THz coherent phonons // Scientific Reports – 2022. – V.12. – P. 6621. JIF = 4.996 (Вклад автора 0.8)

9. *Mareev E.I., Pushkin A.V., Migal E.A., Lvov K.V., Stremoukhov S.Yu., Potemkin F.V.* Single-shot femtosecond bulk micromachining of silicon with mid-IR tightly focused beams // Scientific Reports – 2022. – V.12. – P. 7517. JIF= 4.996 (Вклад автора 0.8)
10. *Migal E.A., Pushkin A.V., Minaev N.G., Bravy B.G., Potemkin F.V.* Control of spectral shift, broadening, and pulse compression during mid-IR self-guiding in high-pressure gases and their mixtures // Optics Letters – 2022. – V.47. – P. 985-988. JIF= 3.56 (Вклад автора 0.8)
11. *Mareev E.I., Potemkin F.V.* Dynamics of Ultrafast Phase Transitions in (001) Si on the Shock-Wave Front // International Journal of Molecular Sciences – 2022. – V.23. – P. 2115. JIF= 6.208 (Вклад автора 0.6)
12. *Pushkin A.V., Migal E.A., Suleimanova D.Z., Mareev E.I., Potemkin F.V.* High-Power Solid-State Near- and Mid-IR Ultrafast Laser Sources for Strong-Field Science // Photonics – 2022. – V.9. – P. 90. JIF= 2.536 (Вклад автора 0.6)
13. *Pushkin A.V., Slovinsky I.A., Shakirov A.A., Shavelev A.A., Potemkin F.V.* Diode-side-pumped watt-level high-energy Q-switched mid-IR Er:YLF laser // Optics Letters – 2021. – V.46. – P. 5465-5468. JIF= 3.56 (Вклад автора 0.6)
14. *Lvov K.V., Stremoukhov S.Yu., Potemkin F.V.* The role of external focusing in spectral enrichment under mid-IR laser filamentation in dielectrics // Journal of Optics – 2021. – V.23. – P. 065502. JIF= 2.077 (Вклад автора 0.4)
15. *Rumiantsev B.V., Mareev E.I., Bychkov A.S., Karabutov A.A., Cherepetskaya E.B., Makarov V.A., Potemkin F. V.* Three-dimensional hybrid optoacoustic imaging of the laser-induced plasma and deposited energy density under optical breakdown in water // Applied Physics Letters – 2021. – V.118. – P. 011109. JIF= 3.971 (Вклад автора 0.6)
16. *Uehara H., Tsunai T., Han B., Goya K., Yasuhara R., Potemkin F., Kawanaka J., Tokita S.* 40 kHz, 20 ns acousto-optically Q-switched 4 μm Fe:ZnSe laser pumped by a fluoride fiber laser // Optics Letters – 2020. – V.45. – P. 2788-2791. JIF= 3.560 (Вклад автора 0.6)
17. *Mareev E.I., Rumiantsev B.V., Migal E.A., Bychkov A.S., Karabutov A.A., Cherepetskaya E.B., Makarov V.A., Potemkin F.V.* A comprehensive approach to the characterization of the deposited energy density during laser–matter interactions in liquids and solids // Measurement Science and Technology – 2020. – V.31. – P. 085204. JIF= 2.398 (Вклад автора 0.6)
18. *Migal E.A., Balabanov S.S., Savin D.V., Ikonnikov V.B., Gavrishchuk E.M., Potemkin F.V.* Amplification properties of polycrystalline Fe:ZnSe crystals for high power femtosecond mid-IR laser systems // Optical Materials – 2020. – V.111. – P. 110640. JIF= 3.754 (Вклад автора 0.8)
19. *Mareev E.I., Lvov K.V., Rumiantsev B.V., Migal E.A., Novikov I.D., Stremoukhov S.Yu., Potemkin F.V.* Effect of pulse duration on the energy delivery under nonlinear propagation of tightly focused

Cr:forsterite laser radiation in bulk silicon // Laser Physics Letters – 2020. – V.17. – P. 015402. JIF= 1.704 (Вклад автора 0.6)

20. *Pushkin A.V., Migal E.A., Tokita S., Korostelin Yu.V., Potemkin F.V.* Femtosecond graphene mode-locked Fe:ZnSe laser at 4.4 μm // Optics Letters – 2020. – V.45. – P. 738-741. JIF= 3.56 (Вклад автора 0.6)
21. *Migal E.A., Stremoukhov S.Yu., Potemkin F.V.* Ionization-free resonantly enhanced low-order harmonic generation in a dense gas mixture by a mid-IR laser field // Physical Review A – 2020. – V.101. – P. 021401. JIF= 2.971 (Вклад автора 0.5)
22. *Пушкин А.В., Словинский И.А., Потемкин Ф.В.* Мегаваттный импульсно-периодический эрбиевый 3-мкм лазер с компенсацией сильной тепловой линзы // Письма в Журнал экспериментальной и теоретической физики – 2020. – Т. 112– С.508–515. IF (РИНЦ) = 1.142 (Вклад автора 0.6)
23. *Migal E., Mareev E., Smetanina E., Duchateau G., Potemkin F.* Role of wavelength in photocarrier absorption and plasma formation threshold under excitation of dielectrics by high-intensity laser field tunable from visible to mid-IR // Scientific Reports – 2020. – V. 10 – P.14007. JIF= 4.996 (Вклад автора 0.6)
24. *Мареев Е.И., Румянцев Б.В., Потемкин Ф.В.* Исследование параметров лазерно-индуцированных ударных волн для задач лазерной ударной обработки кремния // Письма в журнал экспериментальной и теоретической физики – 2020. – Т. 112– С. 780–786. IF (РИНЦ) = 1.142 (Вклад автора 0.8)
25. *Migal E., Pushkin A., Bravy B., Gordienko V., Minaev N., Sirotkin A., Potemkin F.* 3.5-mJ 150-fs Fe:ZnSe hybrid mid-IR femtosecond laser at 4.4 μm for driving extreme nonlinear optics // Optics Letters – 2019. – V. 44– P. 2550–2553. JIF= 3.56 (Вклад автора 0.8)
26. *Mareev E.I., Potemkin F.V., Migal E.A., Minaev N.V., Gordienko V.M.* Controlled nonlinearity and the lasing effect under femtosecond filamentation in dense and supercritical Xe // Laser Physics Letters – 2019. – V. 16 – P. 035401. JIF= 1.704 (Вклад автора 0.2)
27. *Migal E.A., Potemkin F.V., Gordienko V.M.* Efficient strong-field low-order harmonic generation in xenon microplasma by a tightly focused Cr:Forsterite laser // Laser Physics Letters – 2019. – V. 16 – P. 045401. JIF= 1.704 (Вклад автора 0.2)
28. *Pushkin A.V., Mazur M.M., Sirotkin A.A., Firsov V.V., Potemkin F.V.* Powerful 3-μm lasers acousto-optically Q-switched with KYW and KGW crystals // Optics Letters – 2019. – V. 44 – P. 4837-4840. JIF= 3.56 (Вклад автора 0.6)
29. *Mareev E.I., Migal E.A., Potemkin F.V.* Ultrafast third harmonic generation imaging of microplasma at the threshold of laser-induced plasma formation in solids // Applied Physics Letters – 2019. – V. 114 – P. 031106. JIF= 3.816 (Вклад автора 0.8)

30. *Lvov K.V., Stremoukhov S.Yu., Migal E.A., Potemkin F.V.* Asymmetric temporal splitting of laser pulse and broad supercontinuum generation under femtosecond filamentation in YAG crystal // Laser Physics Letters – 2018. – V. 15 – P. 085402. JIF= 1.704 (Вклад автора 0.4)
31. *Pushkin A.V., Bychkov A.S., Karabutov A.A., Potemkin F.V.* Cavitation and shock waves emission on the rigid boundary of water under mid-IR nanosecond laser pulse excitation // Laser Physics Letters – 2018. – V. 15 – P. 065401. JIF= 1.704 (Вклад автора 0.6)
32. *Pushkin A.V., Migal E.A., Uehara H., Goya K., Tokita S., Frolov M.P., Korostelin Yu.V., Kozlovsky V.I., Skasyrsky Ya.K., Potemkin F.V.* Compact, highly efficient, 21-W continuous-wave mid-infrared Fe:ZnSe coherent source, pumped by an Er:ZBLAN fiber laser // Optics Letters – 2018. – V. 43 – P. 5941-5944. JIF= 3.56 (Вклад автора 0.6)
33. *Мигаль Е.А., Потёмкин Ф.В.* Широкополосное параметрическое усиление в ближнем ИК-диапазоне (2–2.5 мкм) в условиях дисперсионных аномалий перестроечных характеристик с накачкой хром-форстеритовым лазером // Письма в Журнал экспериментальной и теоретической физики. – 2018. – Т. 107 – С. 301–305. IF (РИНЦ) = 1.142 (Вклад автора 0.6)
34. *Potemkin F.V., Mareev E.I., Smetanina E.O.* Influence of wave-front curvature on supercontinuum energy during filamentation of femtosecond laser pulses in water // Physical Review A– 2018. – V. 97. – P. 033801. JIF= 2.971 (Вклад автора 0.8)
35. *Мареев Е.И., Мигаль Е.А., Потёмкин Ф.В.* Диагностика энерговклада при острой фокусировке фемтосекундного лазерного излучения в объём прозрачного диэлектрика в реальном времени по сигналу третьей гармоники // Письма в Журнал экспериментальной и теоретической физики. – 2018. – Т. 107– С. 422–425. IF (РИНЦ) = 1.142 (Вклад автора 0.8)
36. *Potemkin F.V., Mareev E.I., Rumiantsev B.V., Bychkov A.S., Karabutov A.A., Cherepetskaya E.B., Makarov V.A.* Two-dimensional photoacoustic imaging of femtosecond filament in water // Laser Physics Letters. – 2018. – V. 15. – P. 075403-075403. JIF= 1.704 (Вклад автора 0.6)
37. *Potemkin F., Mareev E., Bezsudnova Y., Platonenko V., Bravy B., Gordienko V.* Controlled energy deposition and void-like modification inside transparent solids by two-color tightly focused femtosecond laser pulses // Applied Physics Letters. – 2017. – V. 110 – P. 163903. JIF= 3.971 (Вклад автора 0.6)
38. *Potemkin F.V., Mareev E.I., Bezsudnova Y.I., Platonenko V.T., Bravy B.G., Gordienko V.M.* Enhancing nonlinear energy deposition into transparent solids with an elliptically polarized and mid-IR heating laser pulse under two-color femtosecond impact // Laser Physics Letters. – 2017. – V. 14 – P. 065403. JIF= 1.704 (Вклад автора 0.6)
39. *Frolov M.P., Gordienko V.M., Korostelin Y.V., Kozlovsky V.I., Podmar'kov Y.P., Potemkin F.V, Skasyrsky Y. K.*, Fe^{2+}-doped CdSe single crystal: growth, spectroscopic and laser properties, potential

use as a 6 μm broadband amplifier // Laser Physics Letters – 2017. – V. 14 – P. 025001. JIF= 1.704 (Вклад автора 0.2)

40. *Migal E.A., Potemkin F.V., Gordienko V.M.* Highly efficient optical parametric amplifier tunable from near- to mid-IR for driving extreme nonlinear optics in solids // Optics Letters – 2017. – V. 42 – P. 5218–5221. JIF= 3.56 (Вклад автора 0.6)
41. *Potemkin F.V., Migal E.A., Podshivalov A.A., Gordienko V.M.* Broadband femtosecond parametric amplification in KTA close to mid-IR transparency cutoff // Journal of Optics – 2016. – V. 18 – P. 095502. JIF= 2.077 (Вклад автора 0.6)
42. *Mareev E., Bagratashvili V., Minaev N., Potemkin F., Gordienko V.* Generation of an adjustable multi-octave supercontinuum under near-IR filamentation in gaseous, supercritical, and liquid carbon dioxide // Optics Letters – 2016. – V. 41 – P. 5760-5763. JIF= 3.56 (Вклад автора 0.2)
43. *Бравый Б.Г., Гордиенко В.М., Козловский В.И., Коростелин Ю.В., Потёмкин Ф.В., Подмарьков Ю.П., Подшивалов А.А., Платоненко В.Т., Фирсов В.В., Фролов М.П.* Мощная фемтосекундная лазерная система среднего ИК-диапазона (4-5 мкм) с использованием широкополосного усилителя на кристалле Fe^{2+}:ZnSe // Известия Российской академии наук. Серия физическая. – 2016. – Т. 80. – С. 489–494. IF (РИНЦ) = 0.564 (Вклад автора 0.6)
44. *Potemkin F.V, Migal E.A., Pushkin A.V., Sirotkin A.A., Kozlovsky V.I., Korostelin Y.V, Podmar'kov Y.P., Firsov V.V, Frolov M.P., Gordienko V.M.* Mid-IR (4 – 5 μm) femtosecond multipass amplification of optical parametric seed pulse up to gigawatt level in Fe2+:ZnSe with optical pumping by solid-state 3-μm laser // Laser Physics Letters . – 2016. – V. 13. – P. 125101. JIF= 1.704 (Вклад автора 0.6)
45. *Potemkin F.V., Bravy B.G., Bezsudnova Y.I., Mareev E.I., Starostin V.M., Platonenko V.T., Gordienko V.M.* Overcritical plasma ignition and diagnostics from oncoming interaction of two color low energy tightly focused femtosecond laser pulses inside fused silica // Laser Physics Letters. – 2016. – V. 13. – P. 045402. JIF= 1.704 (Вклад автора 0.8)
46. *Potemkin F.V., Bravy B.G., Kozlovsky V.I., Korostelin Y.V, Migal E.A., Podmar'kov Y.P., Podshivalov A.A., Platonenko V.T., Firsov V.V., Frolov M.P., Gordienko V.M.* Toward a sub-terawatt mid-IR (4–5 μm) femtosecond hybrid laser system based on parametric seed pulse generation and amplification in Fe^{2+}:ZnSe // Laser Physics Letters – 2016. – V. 13. – P. 015401. JIF= 1.704 (Вклад автора 0.8)
47. *Potemkin F.V., Mareev E.I.* Dynamics of multiple bubbles, excited by a femtosecond filament in water // Laser Physics Letters – 2015. – V. 12. – P. 015405. JIF= 1.704 (Вклад автора 0.8)
48. *Potemkin F.V., Mareev E.I, Podshivalov A.A., Gordienko V.M.* Highly extended high density filaments in tight focusing geometry in water: From femtoseconds to microseconds // New Journal of Physics – 2015. – V. 17. – P. 053010. JIF= 3.717 (Вклад автора 0.8)

49. *Gordienko V.M., Potemkin F.V., Pushkin A.V., Sirotkin A.A., Firsov V.V.* Powerful 3μm YSGG:Cr : Er and YSGG: Cr :Yb : Ho Q-Switched Lasers Operating in the Repetition-Rate Mode // Journal of Russian Laser Research – 2015. – V. 36. – P. 570–576. JIF= 0.81 (Вклад автора 0.4)
50. *Подшивалов А.А., Потёмкин Ф.В., Сидоров-Бирюков Д.А.* Генерация мощных фемтосекундных суперконтинуумов в ближней ИК области спектра с использованием широкополосного параметрического преобразования частоты в кристаллах LBO и DCDA с накачкой излучением с λ = 620 нм // Квантовая электроника. – 2014. – Т. 44. – С. 824-828. IF (РИНЦ)= 1.194 (Вклад автора 0.6)
51. *Potemkin F.V., Mareev E.I., Podshivalov A.A., Gordienko V.M.,* Laser control of filament-induced shock wave in water // Laser Physics Letters – 2014. – V. 11. – P. 106001. JIF= 1.704 (Вклад автора 0.8)
52. *Потёмкин Ф.В., Мареев Е.И., Михеев П.М., Ходаковский Н.Г.*, Резонансное лазерно-плазменное возбуждение когерентных терагерцевых фононов в объеме фторсодержащих кристаллов под действием интенсивного фемтосекундного лазерного излучения // Квантовая электроника. — 2013. — Т. 43. — С. 735–739. IF (РИНЦ)= 1.194 (Вклад автора 0.8)
53. *Potemkin F.V., Mareev E.I., Mikheev P.M., Khodakovskij N.G.* Resonant laser-plasma excitation of coherent THz phonons under extreme conditions of femtosecond plasma formation in a bulk of fluorine-containing crystals // Laser Physics Letters – 2013. – V. 10. – P. 076003. JIF = 1.704 (Вклад автора 0.8)
54. *Potemkin F.V., Mikheev P.M.* Efficient generation of coherent THz phonons with a strong change in frequency excited by femtosecond laser plasma formed in a bulk of quartz // European Physical Journal D – 2012. – V. 66. – P. 248. JIF= 1.611 (Вклад автора 0.8)

Учебно-методические пособия

55. *Потёмкин Ф.В., Пушкин А.В.* Динамика и усиление твердотельной МОРА-системы на основе Cr:Yb:Ho:YSGG. – М.: Физический факультет МГУ, 2017. – 20 с. (Вклад автора 0.8)
56. *Потёмкин Ф.В., Мигаль Е.А.* Измерение огибающей интенсивности и спектральной фазы импульсов ближнего ИК-диапазона методом широкополосного оптического стробирования с разрешением по частоте в процессе генерации второй гармоники. – М.: Физический факультет МГУ, 2017. – 21 с. (Вклад автора 0.8)

Патент

57. *Потёмкин Ф.В., Мареев Е.И., Безсуднова Ю.И.*; Федеральное государственное бюджетное образовательное учреждение высшего образования "Московский государственный университет имени М.В. Ломоносова" (МГУ). Способ формирования дефектов в объеме образца диэлектрика лазерным излучением. Патент № 2671150 РФ, B23K 26/02. № 2017130865; Регист.31.08.2017; Опубл. 29.10.2018. (Вклад автора 0.8)

58. *Rumiantsev B.V., Mikheev K.E., Migal E.A., Stremoukhov S.Yu., Potemkin F.V.,* Low-order harmonics generation driven by femtosecond mid-IR Fe: ZnSe laser system // IEEE Proceedings of International Conference Laser Optics (ICLO-2022). – 2022 – P. 1.
59. *Potemkin F.V.* Mid-infrared (3–5 um) ultrafast Fe:ZnSe laser sources for driving extreme nonlinear optics // 2021 IEEE Photonics Conference (IPC). –2021. – P.1-2.
60. *Mareev E.I., Migal E.A., Potemkin F.V.* The effect of chirp and wavelength for ultrafast bulk modification of solids with tightly focused laser pulses // Proceedings SPIE. – 2021. – V. 11910. – P. 119100F.
61. *Mareev E.I., Potemkin F.V., Migal E.A., Minaev N.V., Gordienko V.M.* Flexible control of nonlinear processes under femtosecond filamentation using adjustable high-pressure gases and supercritical fluids // Proceedings Nonlinear Optics and Applications XI. –2019. – V. 11026. – P. 1102604.
62. *Rumiantsev B.V., Mareev E.I., Bychkov A.S., Makarov V.A., Karabutov A.A., Cherepetskaya E.B., Potemkin F.V.* Photoacoustic and optical imaging of the femtosecond filament in water // Proceedings Nonlinear Optics and Applications XI. –2019. – V. 11026. – P. 1102606.
63. *Migal E.A., Mareev E.I., Smetanina E.O., Duchateau G., Potemkin F.V.* Role of deposited energy density and impact ionization in the process of femtosecond laser-matter interaction with solids: scaling from visible to mid-ir wavelength // Proceedings Nonlinear Optics and Applications XI. –2019. – V. 11026. – P. 110260V.
64. *Potemkin F.V., Mareev E.I., Rumiantsev B.V., Bychkov A.S., Karabutov A.A., Cherepetskaya E.B., Makarov V.A.* Semi-analytical modelling of the forward and inverse problems in photoacoustic tomography of a femtosecond laser filament in water accounting for refraction and acoustic attenuation // Journal of Physics: Conference Series. – 2018. – V. 1141 – P. 012060.
65. *Migal E.A., Potemkin F.V.* Degenerate optical parametric amplifier driven by Cr: Forsterite laser // IEEE Proceedings of International Conference Laser Optics (ICLO-2018). – 2018 – P. 3.
66. *Potemkin F.V., Frolov M.P., Gordienko V.M.* Solid-state powerful femtosecond mid-ir laser sources based on Fe^{2+}doped chalcogenides: advances and prospects // IEEE Proceedings of International Conference Laser Optics (ICLO-2018). – 2018 – P. 33.
67. *Potemkin F.V., Mareev E.I., Rumiantsev B.V., Bychkov A.S., Cherepetskaya E.B., Karabutov A.A., Makarov V.A.* Two-dimensional photoacoustic imaging of femtosecond filament in water // IEEE Proceedings of International Conference Laser Optics (ICLO-2018). – 2018 – P. 315.
68. *Potemkin F.V, Migal E.A., Pushkin A.V., Bravy B.G., Sirotkin A.A., Kozlovsky V.I., Korostelin Y.V, Podmar'kov Y.P., Firsov V.V, Frolov M.P., Gordienko V.M.* Gigawatt mid-IR (4-5 μm) femtosecond amplifier of OPA seed pulse in monocrystalline Fe^{2+}:ZnSe optically pumped by solid-state 3 μm laser

// Proceedings SPIE. of High-Power, High-Energy, and High-Intensity Laser Technology III. – 2017. – V. 10238 – P. 102380L.

69. *Potemkin F.V., Mareev E.I., Podshivalov A.A., Gordienko V.M.* Superfilamentation in water with tight focusing laser beams // OSA Technical Digest of CLEO. – 2015. – P. FTu4D.5.
70. *Potemkin F.V., Mareev E.I., Podshivalov A.A., Gordienko V.M.* Whole life-cycle of superfilament in water: from femtoseconds up to microseconds // Proceedings of the 3rd International Conference on Photonics, Optics and Laser Technology. – 2015 – V. 2. – P. 122–127.

Благодарности

Автор благодарит к.ф.-м.н. А.А. Подшивалова за всестороннюю поддержку на всех этапах работы, за переданный богатейший профессиональный опыт в экспериментальной физике, который помог быстрее достичь результатов и двигал вперед к цели на всем исследовательском пути.

Безусловно, автор выражает благодарность заведующему кафедры общей физики и волновых процессов д.ф.-м.н. В.А. Макарову за широкий спектр предоставленных возможностей и за поддержку на всем протяжении выполнения диссертационного исследования.

Автор выражает искреннюю благодарность и признательность своему первому научному руководителю П.М. Михееву, благодаря которому началось знакомство с экспериментальной наукой и который научил всему, что касается автоматизации сложнейшего лазерного эксперимента. Автор также благодарит руководителя лаборатории сверхсильных световых полей д.ф.-м.н. профессора В.М. Гордиенко за помощь в развитии научных интересов и за плодотворное обсуждение различных научных вопросов, ставших основой настоящей диссертационной работы.

Автор благодарен коллективу кафедры общей физики и волновых процессов, а именно своим старшим коллегам Ю.В. Пономареву, А.В. Андрееву, М.С. Джиджоеву, В.Т. Платоненко, А.Б. Савельеву-Трофимову, В.П. Кандидову, С.А. Магницкому и др. за то, что сформировали правильное и честное отношение к занятию наукой.

Автор выражает отдельную благодарность с.н.с. НИИ ядерной физики МГУ В.В. Фирсову за помощь в создании нестандартных механических и оптических узлов, которые являлись основой большинства экспериментальных схем.

Автор считает своим приятным долгом выразить благодарность также:

бывшим и нынешним сотрудникам и аспирантам лаборатории – А.В. Пушкину, Е.И. Марееву, Б.В. Румянцеву, Е.А. Мигаль, Д.З. Сулеймановой, И.А. Кудинову, Р.В. Волкову; сотруднику физического факультета МГУ д.ф.-м.н. профессору Л.А. Голованю; сотруднику ИПХФ РАН зав. лабораторией Б.Г. Бравому; сотрудникам НИЦ «Курчатовский институт» д.ф.-м.н. В.Н. Корчуганову, Э.М. Пашаеву; сотрудникам ФИАН Ю.П. Подмарькову, д.ф.-м.н. В.И. Козловскому, М.П. Фролову, Я.К. Скасырскому, Ю.В. Коростелину; сотруднику Центра фотохимии РАН А.А. Иванову, ИОФ РАН д.ф.-м.н. А.А. Сироткину, А.И. Загуменному; ген. директору ООО «ИЦНТ» В.Г. Полушкину; сотрудникам ИХВВ РАН д.ф.-м.н. Е.М. Гаврищуку и С.Н. Балабанову, а также к.ф.-м.н. Е.О. Сметаниной, всем своим бывшим и нынешним студентам, – без разнообразной помощи которых работа над диссертацией вряд ли была бы возможна.

Диссертационная работа также не могла бы быть завершена без поддержки со стороны семьи, родителей и близких родственников, которым автор выражает особую благодарность.

Список литературы

1. Крюков П.Г. Лазеры ультракоротких импульсов // Квантовая электроника. 2001. Т. 31, № 2. С. 95–119.
2. Мощные пико- и фемтосекундные лазерные системы; вещество в сверхсильных световых полях / под ред. Ахманова С.А. Москва: ВИНИТИ, 1991. Т. 4. 244 р.
3. Гаранин С.Г., Гарнов С.В., Сергеев А.М., Хазанов Е.А. Мощные лазеры для физики высоких плотностей энергии // Академия наук и атомная отрасль, Научные сессии Общего собрания членов РАН и Общих собраний отделений РАН. Декабрь 2020 г.. Москва: Российская академия наук, 2021. С. 62–81.
4. Korzhimanov A. V et al. Horizons of petawatt laser technology // Physics–Uspekhi. 2011. Vol. 54, № 1. P. 9–28.
5. Kruer W.L. Laser plasma interactions with intensities from 10^12–10^21 W/cm^2 // Phys Plasmas. 2003. Vol. 10, № 5. P. 2087.
6. Hilz P. et al. Isolated proton bunch acceleration by a petawatt laser pulse // Nature Communications. 2018. Vol. 9, № 1. P. 1–9.
7. Andreev A.V., Gordienko V.M., Savel'ev A.B. Nuclear processes in a high-temperature plasma produced by an ultrashort laser pulse // Quantum Electron. 2001. Vol. 31, № 11. P. 941.
8. Umstadter D. Review of physics and applications of relativistic plasmas driven by ultra-intense lasers // Phys Plasmas. 2001. Vol. 8, № 5. P. 1774.
9. Guo T. et al. Generation of hard x rays by ultrafast terawatt lasers // Review of Scientific Instruments. 2001. Vol. 72, № 1. P. 41.
10. Akhmanov S.A. et al. Generation and amplification of subpicosecond ultraviolet radiation pulses in excimer lasers // Soviet Journal of Quantum Electronics. 1986. Vol. 16, № 10. P. 1291–1292.
11. Gordienko V.M., Savel'ev A.B. Femtosecond plasma in dense nanostructured targets: new approaches and prospects // Uspekhi Fizicheskih Nauk. 1999. Vol. 169, № 1. P. 78.
12. Zvorykin V.D. et al. GARPUN-MTW: A hybrid Ti:Sapphire/KrF laser facility for simultaneous amplification of subpicosecond/nanosecond pulses relevant to fast-ignition ICF concept // Laser and Particle Beams. 2007. Vol. 25, № 3. P. 435–451.
13. Биглов З.А., Гордиенко В.М. Мощные пикосекундные системы десятимикронного диапазона // Итоги Науки и Техники, Современные проблемы лазерной физики. 1991. Т. 4. С. 84–125.
14. Woodbury D. et al. Laser wakefield acceleration with mid-IR laser pulses // Opt Lett. 2018. Vol. 43, № 5. P. 1131.
15. Popmintchev T. et al. Bright coherent ultrahigh harmonics in the keV x-ray regime from mid-infrared femtosecond lasers. // Science. 2012. Vol. 336, № 6086. P. 1287–1291.
16. Fedorov V.Y., Tzortzakis S. Extreme THz fields from two-color filamentation of midinfrared laser pulses // Phys Rev A. 2018. Vol. 97, № 6. P. 6–11.

17. Mitrofanov A.V. et al. Mid-infrared laser filaments in the atmosphere // Sci Rep. 2015. Vol. 5. P. 8368.
18. Кандидов В.П., Шленов С.А., Косарева О.Г. Филаментация мощного фемтосекундного лазерного излучения // Квантовая электроника. 2009. Т. 39. С. 205-228.
19. Dubietis A., Tamošauskas G., Garejev N. Comparative study of multioctave supercontinuum generation in fused silica, YAG, and LiF in the range of anomalous group velocity dispersion // JOSA B. 2017. Vol. 34, № 1. P. 88–94.
20. Basov N.G. et al. Efficient pulsed first-overtone CO laser operating within the spectral range of 2.5-4.2 μm // IEEE J Quantum Electron. 2000. Vol. 36, № 7. P. 810–823.
21. Ionin A.A. Electric discharge CO lasers // Gas Lasers. 2016. P. 201–237.
22. Haberberger D. et al. Fifteen terawatt picosecond CO2 laser system // Optics Express. 2010. Vol. 18, № 17. P. 17865–17875.
23. Gordienko V.M., Platonenko V.T. Regenerative amplification of picosecond 10-μm pulses in a high-pressure optically pumped CO2 laser // Quantum Elec. 2010. Vol. 40, № 12. P. 1118.
24. Lagatsky A.A. et al. 2 μm solid-state laser mode-locked by single-layer graphene // Appl Phys Lett. 2013. Vol. 102, № 1. P. 013113.
25. Akimov V.A. et al. Vapour growth of II-VI single crystals doped by transition metals for mid-infrared lasers // physica status solidi (c). WILEY-VCH Verlag, 2006. Vol. 3, № 4. P. 1213–1216.
26. Ovchinnikov A. v. et al. Generation of 0.9-mJ THz pulses in DSTMS pumped by a Cr:Mg_2SiO_4 laser // Optics Letters. 2014. Vol. 39, № 23. P. 6632–6635.
27. Zhang X.C., Shkurinov A., Zhang Y. Extreme terahertz science // Nature Photonics. 2017. Vol. 11, № 1. P. 16–18.
28. Zhang B. et al. 1.4-mJ High Energy Terahertz Radiation from Lithium Niobates // Laser Photon Rev. 2021. Vol. 15, № 3. P. 2000295.
29. Garnov S.V., Shcherbakov I.A. Laser methods for generating megavolt terahertz pulses // Uspekhi Fizicheskih Nauk. 2011. Vol. 181, № 1. P. 97.
30. Hong W. et al. Few-cycle attosecond pulses with stabilized-carrier-envelope phase in the presence of a strong terahertz field // Opt Express. 2009. Vol. 17, № 7. P. 5139–5146.
31. Ахманов С.А., Выслоух В.А., Чиркин А.С. Оптика фемтосекундных лазерных импульсов. М.: Наука. Гл. ред. физ. -мат. лит., 1988. 1–312 p.
32. Райнтжес Дж. Нелинейные оптические параметрические процессы в жидкостях и газах. М.:Мир, 1987. 510 p.
33. Akhmanov S.A. Khokhlov's method in the theory of nonlinear waves // Uspekhi Fizicheskih Nauk. 1986. Vol. 149, № 7. P. 361–390.
34. Luther-Davies B. et al. Matter in ultrastrong laser fields // Soviet Journal of Quantum Electronics. 1992. Vol. 22, № 4. P. 289–325.
35. Фортов В.Е. Экстремальные состояния вещества на Земле и в космосе // УФН. 2009. Т. 179, № 6. С. 653–687.

36. Фортов В.Е. Физика высоких плотностей. Москва: Физматлит, 2013. 505 p.
37. Manenkov A.A., Prokhorov A.M. Laser-induced damage in solids // Soviet Physics - Uspekhi. 1986. Vol. 29, № 1. P. 104–122.
38. Arnold D., Cartier E. Theory of laser-induced free-electron heating and impact ionization in wide-band-gap solids // Phys Rev B. American Physical Society, 1992. Vol. 46, № 23. P. 15102.
39. Rethfeld B. Unified Model for the Free-Electron Avalanche in Laser-Irradiated Dielectrics // Phys Rev Lett. 2004. Vol. 92, № 18. P. 187401.
40. Garnov S. V et al. Dynamics of plasma production and development in gases and transparent solids irradiated by high-intensity, tightly focused picosecond laser pulses // Quantum Elec. 2003. Vol. 33, № 9. P. 758.
41. Lenzner M. et al. Femtosecond Optical Breakdown in Dielectrics // Phys Rev Lett. 1998. Vol. 80, № 18. P. 4076–4079.
42. Gattass R.R., Mazur E. Femtosecond laser micromachining in transparent materials // Nat Photonics. 2008. Vol. 2. P. 219.
43. Potemkin F.V., Mikheev P.M. Efficient generation of coherent THz phonons with a strong change in frequency excited by femtosecond laser plasma formed in a bulk of quartz // The European Physical Journal D. 2012. Vol. 66, № 9. P. 248.
44. Potemkin F. V et al. Controlled energy deposition and void-like modification inside transparent solids by two-color tightly focused femtosecond laser pulses // Appl Phys Lett. 2017. Vol. 110, № 16. P. 163903.
45. Lim K. et al. Transition from linear- to nonlinear-focusing regime in filamentation // Sci Rep. 2014. Vol. 4. P. 07217.
46. Gordienko V.M. et al. Plasma channel formation and micromodification of KDP crystal by tightly focused Cr:forsterite femtosecond laser radiation // SPIE Proc. 2006. Vol. 6161. P. 616105.
47. Potemkin F.V. et al. Highly extended high density filaments in tight focusing geometry in water: From femtoseconds to microseconds // New J Phys. 2015. Vol. 17. P. 053010
48. Potemkin F.V. v et al. Overcritical plasma ignition and diagnostics from oncoming interaction of two color low energy tightly focused femtosecond laser pulses inside fused silica // Laser Phys Lett. 2016. Vol. 13, № 4. P. 045402.
49. Petrov V. Frequency down-conversion of solid-state laser sources to the mid-infrared spectral range using non-oxide nonlinear crystals // Prog Quantum Electron. 2015. Vol. 42. P. 1–106.
50. Seas A., Alfano R.R., Petričević V. Slope efficiency measurements of a chromium-doped forsterite laser // Opt Lett. 1991. Vol. 16, № 11. P. 811–813.
51. Seas A., Alfano R.R., Petricevic V. Effective Gain Measurements in Chromium-Doped Forsterite // Advanced Solid State Lasers. 1990. P. CL6.
52. Gordienko V.M. et al. Femtosecond Cr4+:forsterite laser pumped by ytterbium-doped fibre laser and its noise characteristics // Quantum Elec. 2002. Vol. 32, № 6. P. 511.

53. В.М. Гордиенко. Твердотельная фемтосекундная лазерная система на Cr:forsterite: перспективы использования в фундаментальных исследованиях и в создании критических фемтотехнологий. Препринт физического факультета №13/2000, МГУ, М., 2000.
54. Gordienko V.M. et al. Generation of superintense femtosecond pulses by the Cr:forsterite laser system // Laser Phys. 2006. Vol. 16, № 3. P. 427–435.
55. Agranat M.B. et al. Terawatt femtosecond Cr : forsterite laser system // Quantum Elec. 2004. Vol. 34, № 6. P. 506.
56. Gordienko V.M., Mikheev P.M., Potemkin F.V. Generation of coherent terahertz phonons by sharp focusing of a femtosecond laser beam in the bulk of crystalline insulators in a regime of plasma formation // JETP Lett. 2010. Vol. 92, № 8. P. 553–558.
57. Mareev E.I., Migal E.A., Potemkin F.V. Ultrafast third harmonic generation imaging of microplasma at the threshold of laser-induced plasma formation in solids // Appl Phys Lett. 2019. Vol. 114, № 3. P. 031106
58. Potemkin F.V. et al. Resonance laser-plasma excitation of coherent terahertz phonons in the bulk of fluorine-bearing crystals under high-intensity femtosecond laser irradiation // Quantum Elec. 2013. Vol. 43, № 8. P. 735–739.
59. Xu L. et al. Optimization of a multi-TW few-cycle 1.7-μm source based on Type-I BBO dual-chirped optical parametric amplification // Optics Express. 2020. Vol. 28, № 10. P. 15138–15147.
60. Fu Y. et al. TW-scale mid-infrared pulses near 3.3 μ m directly generated by dual-chirped optical parametric amplification // Appl Phys Lett. 2018. Vol. 112, № 24. P. 241105.
61. Andriukaitis G. et al. 90 GW peak power few-cycle mid-infrared pulses from an optical parametric amplifier. // Opt Lett. 2011. Vol. 36, № 15. P. 2755–2757.
62. Koç A. et al. Multi-millijoule, few-cycle 5 μm OPCPA at 1 kHz repetition rate // Optics Letters. 2020. Vol. 45, № 21. P. 5998–6001.
63. Gordienko V.M., Mikheev P.M., Pryalkin V.I. Efficient parametric generation of femtosecond IR radiation in a system utilising the properties of group-velocity matching // Quantum Elec. 1999. Vol. 29, № 7. P. 596–600.
64. Gordienko V.M. et al. Efficient parametric oscillation in the 8—10-μm range upon pumping by a femtosecond Cr:forsterite laser // Quantum Elec. 2006. Vol. 36, № 2. P. 114–116.
65. Pogorelsky I. v et al. Extending laser plasma accelerators into the mid-IR spectral domain with a next-generation ultra-fast CO 2 laser // Plasma Phys Control Fusion. 2016. Vol. 58, № 3. P. 034003.
66. Dubietis A., Jonušauskas G., Piskarskas A. Powerful femtosecond pulse generation by chirped and stretched pulse parametric amplification in BBO crystal // Opt Commun. Vol. 88, № 4–6. P. 437–440.
67. Piskarskas A.P., Stabinis A.P., Pyragaite V. Ultrabroad Bandwidth of Optical Parametric Amplifiers // IEEE J Quantum Electron. 2010. Vol. 46, № 7. P. 1031–1038.

68. Fedorov V.V. et al. 3.77-5.05-μm tunable solid-state lasers based on Fe2-doped ZnSe crystals operating at low and room temperatures // IEEE J Quantum Electron. 2006. Vol. 42, № 9. P. 907–917.
69. Sorokina I.T. et al. Broadly tunable compact continuous-wave Cr^2+:ZnS laser // Opt Lett. 2002. Vol. 27, № 12. P. 1040.
70. Mirov S. et al. Frontiers of mid-IR lasers based on transition metal doped chalcogenides // IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics. 2018. Vol. 24, № 5. P. 1601829.
71. Vasilyev S. et al. Progress in Cr and Fe doped ZnS/Se mid-IR CW and femtosecond lasers // SPIE. 2017. Vol. 10193, № 8. P. 131–139.
72. Vasilyev S. et al. Ultrafast middle-IR lasers and amplifiers based on polycrystalline Cr:ZnS and Cr:ZnSe // Optical Materials Express. 2017. Vol. 7, № 7. P. 2636–2650.
73. Franken P.A. et al. Generation of Optical Harmonics // Phys Rev Lett. 1961. Vol. 7, № 4. P. 118.
74. Won M. et al. Visible to mid IR: A library of multispectral diagnostic imaging // Coord Chem Rev. 2021. Vol. 426. P. 213608.
75. Фортов В.Е. Мощные ударные волны и экстремальные состояния вещества // УФН. 2007. Vol. 177, № 4. P. 347–368.
76. Batani K. et al. Recent progress in matter in extreme states created by laser // Matter and Radiation at Extremes. 2021. Vol. 7, № 1. P. 013001.
77. Lindroth E. et al. Challenges and opportunities in attosecond and XFEL science // Nature Reviews Physics. 2019. Vol. 1, № 2. P. 107–111.
78. Hargrove L.E., Fork R.L., Pollack M.A. Locking of He–Ne laser modes induced by synchronous intracavity modulation // Appl Phys Lett. 2004. Vol. 5, № 1. P. 4.
79. Chudoba C. et al. All-solid-state Cr:forsterite laser generating 14-fs pulses at 1.3 μm // Opt Lett. 2001. Vol. 26, № 5. P. 292.
80. Chambaret J.P. et al. Generation of 25-TW, 32-fs pulses at 10 Hz // Opt Lett. 1996. Vol. 21, № 23. P. 1921.
81. Yamakawa K. et al. 100-TW sub-20-fs Ti:sapphire laser system operating at a 10-Hz repetition rate // Opt Lett. 1998. Vol. 23, № 18. P. 1468.
82. Rullière C., Jonusauskas G., Oberlé J. 54-fs, 1-GW, 1-kHz pulse amplification in Cr:forsterite // Optics Letters. 1998. Vol. 23, № 24. P. 1918–1920.
83. Mirov S.B. et al. Progress in Mid-IR Lasers Based on Cr and Fe-Doped II-VI Chalcogenides // IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics. 2015. Vol. 21, № 1. P. 292–310.
84. Sorokin E., Tolstik N., Sorokina I.T. 1 Watt femtosecond mid-IR Cr:ZnS laser // SPIE. 2013. Vol. 8599. P. 230–236.
85. Vasilyev S. et al. Middle-IR frequency comb based on Cr:ZnS laser // Opt Express. 2019. Vol. 27, № 24. P. 35079–35087.
86. Vasilyev S. et al. Multi-Watt mid-IR femtosecond polycrystalline Cr2+:ZnS and Cr2+:ZnSe laser amplifiers with the spectrum spanning 2.0–2.6 μm // Opt Express. 2016. Vol. 24, № 2. P. 1616.

87. Migal E. et al. 3.5-mJ 150-fs Fe:ZnSe hybrid mid-IR femtosecond laser at 4.4 μm for driving extreme nonlinear optics // Opt Lett. 2019. Vol. 44, № 10. P. 2550-2553
88. Pushkin A.V. et al. Femtosecond graphene mode-locked Fe:ZnSe laser at 4.4 μm // Opt Lett. 2020. Vol. 45, № 3. P.738-741
89. Slobodchikov E., Chieffo L.R., Wall K.F. High peak power ultrafast Cr:ZnSe oscillator and power amplifier // Proc. SPIE. 2016. Vol. 9726. P. 972603.
90. Wu Y. et al. Generation of few-cycle multi-millijoule 2.5 μm pulses from a single-stage Cr2+:ZnSe amplifier // Sci Rep. 2020. Vol. 10. P. 7775.
91. Leshchenko V.E. et al. High-power few-cycle Cr:ZnSe mid-infrared source for attosecond soft x-ray physics // Optica. 2020. Vol. 7, № 8. P. 981–988.
92. Bravy B.G. et al. Sub-picosecond petawatt class N2O laser system: mid-IR non-linear optics and new possibilities for high-energy physics // SPIE. 2007. Vol. 6735. P. 174–183.
93. Polyanskiy M.N. et al. High-Peak-Power Long-Wave Infrared Lasers with CO2 Amplifiers // Photonics. 2021. Vol. 8, № 4. P. 101.
94. Joshi C. et al. Multi-atmosphere picosecond CO2 amplifier optically pumped at 4.3 um // Applied Optics. 2019. Vol. 58, № 21. P. 5756–5763.
95. Pogorelsky I. v. et al. Post-compression of long-wave infrared 2 picosecond sub-terawatt pulses in bulk materials // Optics Express. 2021. Vol. 29, № 20. P. 31714–31725.
96. Zvorykin V.D. et al. Experimental capabilities of the GARPUN MTW Ti : sapphire – KrF laser facility for investigating the interaction of subpicosecond UV pulses with targets // Quantum Elec. 2017. Vol. 47, № 4. P. 319–326.
97. He H. et al. 520-μJ mid-infrared femtosecond laser at 2.8 μm by 1-kHz KTA optical parametric amplifier // Appl Phys B. 2018. Vol. 124, № 2. P. 1–5.
98. Lu F. et al. Generation of sub-two-cycle CEP-stable optical pulses at 3.5 um from a KTA-based optical parametric amplifier with multiple-plate compression // Optics Letters. 2018. Vol. 43, № 11. P. 2720–2723.
99. Brida D. et al. Generation of broadband mid-infrared pulses from an optical parametric amplifier // Opt Express. 2007. Vol. 15, № 23. P. 15035.
100. Brida D. et al. Two-optical-cycle pulses in the mid-infrared from an optical parametric amplifier // Optics Letters. 2008. Vol. 33, № 24. P. 2901–2903.
101. Lanin A.A., Fedotov A.B., Zheltikov A.M. Ultrabroadband XFROG of few-cycle mid-infrared pulses by four-wave mixing in a gas // JOSA B. 2014. Vol. 31, № 8. P. 1901–1905.
102. Kozich V., Moguilevski A., Heyne K. High energy femtosecond OPA pumped by 1030 nm Yb:KGW laser. // Opt Commun. 2012. Vol. 285, № 21–22. P. 4515–4518.
103. Heiner Z. et al. Efficient generation of few-cycle pulses beyond 10 μm from an optical parametric amplifier pumped by a 1-μm laser system // Scientific Reports. 2022. Vol. 12. P. 5082.
104. Yelisseyev A. et al. Optical transitions due to native defects in nonlinear optical crystals LiGaS2 // J Appl Phys. 2012. Vol. 111, № 11. P. 113507.

105. Petrov V. et al. Barium nonlinear optical crystals for the mid-IR: characterization and some applications // JOSA B. 2021. Vol. 38, № 8. P. B46–B58.
106. Mero M., Heiner Z., Petrov V. Efficient, sub-4-cycle, 1-μm-pumped optical parametric amplifier at 10 μm based on BaGa4S7 // Optics Letters. 2020. Vol. 45, № 20. P. 5692–5695.
107. Fu Y., Midorikawa K., Takahashi E.J. A high-energy mid-infrared to THz laser // Frontiers in Optics / Laser Science (2018), paper LTu4F.3. Optica Publishing Group, 2018. Vol. Part F115-LS 2018. P. LTu4F.3.
108. Konyashchenko A. v, Losev L.L., Tenyakov S.Y. Second Stokes component generation in the SRS of chirped laser pulses // Quantum Elec. 2011. Vol. 41, № 5. P. 459–464.
109. Kompanets V. et al. Mid-infrared 10-uJ-level sub-picosecond pulse generation via stimulated Raman scattering in a gas-filled revolver fiber // Optical Materials Express. 2020. Vol. 10, № 12. P. 3081–3089.
110. Kinyaevskiy I.O. et al. Frequency down-conversion of a chirped Ti:sapphire laser pulse with BaWO4 Raman shifter and second-order nonlinear crystal // Laser Phys Lett. 2022. Vol. 19, № 9. P. 095403.
111. Petrov V., Rotermund F. Application of the solid solution CdxHg1–xGa2S4 as a nonlinear optical crystal // Optics Letters. 2002. Vol. 27, № 19. P. 1705–1707.
112. Rotermund F. et al. Mercury thiogallate mid-infrared femtosecond optical parametric generator pumped at 1 . 25 m m by a Cr : forsterite regenerative amplifier // Applied Physics B. 2000. Vol. 25, № 10. P. 746–748.
113. Backus S. et al. High power ultrafast lasers // Review of Scientific Instruments. 1998. Vol. 69, № 3. P. 1207.
114. Evans J.M. et al. Kilohertz Cr:forsterite regenerative amplifier // Optics Letters. 1998. Vol. 23, № 21. P. 1692–1694.
115. Noack F. et al. Femtosecond regenerative amplification in Cr:forsterite // Applied Optics. 1999. Vol. 38, № 15. P. 3294–3297.
116. Togashi T. et al. High-peak-power femtosecond Cr:forsterite laser system // Applied Physics B. 2014. Vol. 68, № 2. P. 169–175.
117. Noack F., Zhavoronkov N., Petrov V. Powerful and tunable operation of a 1–2-kHz repetition-rate gain-switched Cr:forsterite laser and its frequency doubling // Applied Optics. 1999. Vol. 38, № 15. P. 3285–3293.
118. Yanovsky V., Felix C., Mourou G. Why ring regenerative amplification (regen)? // Applied Physics B. 2014. Vol. 74, № 1. P. s181–s183.
119. Bradler M., Baum P., Riedle E. Femtosecond continuum generation in bulk laser host materials with sub-μJ pump pulses // Applied Physics B. 2009. Vol. 97, № 3. P. 561–574.
120. Zheltikov A.M. Microstructure optical fibers for a new generation of fiber-optic sources and converters of light pulses // Physics-Uspekhi. 2007. Vol. 50, № 7. P. 705–727.

121. Dudley J.M., Genty G., Coen S. Supercontinuum generation in photonic crystal fiber // Rev Mod Phys. 2006. Vol. 78, № 4. P. 1135.
122. Brabec T., Krausz F. Intense few-cycle laser fields: Frontiers of nonlinear optics // Rev Mod Phys. 2000. Vol. 72, № 2. P. 545.
123. Goulielmakis E. et al. Single-Cycle Nonlinear Optics // Science. 2008. Vol. 320, № 5883. P. 1614–1617.
124. Wang T.-J. et al. Ultrabroadband near-infrared pulse generation by noncollinear OPA with angular dispersion compensation // Applied Physics B. 2009. Vol. 100, № 1. P. 207–214.
125. Gaydardzhiev A. et al. Ultrabroadband operation of a femtosecond optical parametric generator based on BiB_3O_6 in the near-IR // Optics Express. 2008. Vol. 16, № 4. P. 2363–2373.
126. Noack F. et al. Efficient 1 kHz femtosecond optical parametric amplification in BiB_3O_6 pumped at 800 nm // Optics Express. 2006. Vol. 14, № 22. P. 10621–10626.
127. Wilhelm T., Piel J., Riedle E. Sub-20-fs pulses tunable across the visible from a blue-pumped single-pass noncollinear parametric converter // Opt Lett. 1997. Vol. 22, № 19. P. 1494.
128. Kobayashi T., Baltuska A. Sub-5 fs pulse generation from a noncollinear optical parametric amplifier // Meas. Sci. Technol. 2002. Vol. 13. P. 1671.
129. Shirakawa A. et al. Sub-5-fs visible pulse generation by pulse-front-matched noncollinear optical parametric amplification // Appl Phys Lett. 1999. Vol. 74, № 16. P. 2268.
130. Arisholm G. General analysis of group velocity effects in collinear optical parametric amplifiers and generators // Optics Express. 2007. Vol. 15, № 10. P. 6513–6527.
131. Limpert J. et al. Ultra-broad bandwidth parametric amplification at degeneracy // Opt Express. 2005. Vol. 13, № 19. P. 7386.
132. Лукашев А.А., Магницкий С.А., Прялкин В.И. Дисперсия групповых синхронизмов в нелинейнооптических преобразователях частоты сверкоротких световых импульсов // Известия РАН. Серия Физическая. 1995. Т. 59, № 12. С. 123–129.
133. Orlov S.N., Pestryakov E. v, Polivanov Y.N. Optical parametric amplification with a bandwidth exceeding an octave // Quantum Elec. 2004. Vol. 34, № 5. P. 477–481.
134. Campillo A.J., Hyer R.C., Shapiro S.L. Picosecond infrared-continuum generation by three-photon parametric amplification in $LiNbO_3$ // Optics Letters. 1979. Vol. 4, № 11. P. 357–359.
135. Wolter B. et al. Strong-Field Physics with Mid-IR Fields // Phys Rev X. 2015. Vol. 5, № 2. P. 021034.
136. Rothhardt J. et al. Absorption-limited and phase-matched high harmonic generation in the tight focusing regime // New J Phys. 2014. Vol. 16, № 3. P. 033022.
137. Zhu X., Wang Z. Non-dipole effects on high-order harmonic generation towards the long wavelength region // Opt Commun. 2016. Vol. 365. P. 125–132.
138. Dormidonov A.E. et al. Giantically blue-shifted visible light in femtosecond mid-IR filament in fluorides // Optics Express. 2015. Vol. 23, № 22. P. 29202–29210.

139. Chen Y. et al. Generation of high beam quality, high-energy and broadband tunable mid-infrared pulse from a KTA optical parametric amplifier // Opt Commun. 2016. Vol. 365. P. 7–13.
140. Petrov V., Rotermund F., Noack F. Generation of high-power femtosecond light pulses at 1 kHz in the mid-infrared spectral range between 3 and 12 μm by second-order nonlinear processes in // J. Opt. A: Pure Appli. Opt. 2001. Vol. 3. P. R1.
141. Simon-Boisson C. et al. 7 μm, ultrafast, sub-millijoule-level mid-infrared optical parametric chirped pulse amplifier pumped at 2 μm // Optica. 2016. Vol. 3, № 2. P. 147–150.
142. Malevich P. et al. Broadband mid-infrared pulses from potassium titanyl arsenate / zinc germanium phosphate optical parametric amplifier pumped by Tm , Ho-fiber-seeded Ho:YAG chirped-pulse amplifier // Opt Lett. 2016. Vol. 41, № 5. P. 930–933.
143. Liang H. et al. High-energy mid-infrared sub-cycle pulse synthesis from a parametric amplifier // Nature Communications. 2017. Vol. 8, № 1. P. 1–9.
144. Fenimore D.L. et al. Infrared corrected Sellmeier coefficients for potassium titanyl arsenate // Journal of the Optical Society of America B. 1995. Vol. 12, № 5. P. 794.
145. Potemkin F.V. et al. Broadband femtosecond parametric amplification in KTA close to mid-IR transparency cutoff // Journal of Optics. 2016. Vol. 18, № 9. P. 095502.
146. Rotermund F., Petrov V. Femtosecond Noncollinear Optical Parametric Amplification in the Mid-Infrared Range with 1.25 μm Pumping // Jpn J Appl Phys. 2001. Vol. 40, № 5R. P. 3195.
147. Rotermund F., Petrov V. Mid-infrared femtosecond optical parametric generator pumped by a Cr: forsterite regenerative amplifier at 1.25 μm. Conference on Lasers and Electro-Optics, S. Brueck, R. Fields, M. Fejer, and F. Leonberger, eds., OSA Technical Digest (Optica Publishing Group, 2000). P. CWS4.
148. Isaenko L. et al. Growth and properties of LiGaX2 (X = S, Se, Te) single crystals for nonlinear optical applications in the mid-IR // Crystal Research and Technology. 2003. Vol. 38, № 35. P. 379–387.
149. Morimoto T. et al. Generation of a carrier-envelope-phase-stable femtosecond pulse at 10 μm by direct down-conversion from a Ti:sapphire laser pulse // Applied Physics Express. 2017. Vol. 10, № 12. P. 122701.
150. Penwell S.B., Whaley-Mayda L., Tokmakoff A. Single-stage MHz mid-IR OPA using $LiGaS_2$ and a fiber laser pump source // Opt Lett. 2018. Vol. 43, № 6, P. 1363-1366
151. Migal E.A., Potemkin F.V. Generation of Broadband Near-Infrared (2–2.5 μm) Radiation from an Optical Parametric Amplifier Driven by a Cr:Forsterite Laser Near Dispersion Anomalies of Tuning Curves // JETP Lett. 2018. Vol. 107, № 5. P. 285–288
152. Sorokin E., Naumov S., Sorokina I.T. Ultrabroadband infrared solid-state lasers // IEEE Journal on Selected Topics in Quantum Electronics. 2005. Vol. 11, № 3. P. 690–712.
153. Skinner S.L. et al. Next-generation mid-infrared sources // Journal of Optics. 2017. Vol. 19, № 12. P. 123001.

154. Law S., Podolskiy V., Wasserman D. Towards nano-scale photonics with micro-scale photons: The opportunities and challenges of mid-infrared plasmonics // Nanophotonics. 2013. Vol. 2, № 2. P. 103–130.
155. Belkin M.A. et al. Terahertz quantum-cascade-laser source based on intracavity difference-frequency generation // Nature Photonics. 2007. Vol. 1, № 5. P. 288–292.
156. Zhang W. et al. Prospects for the future of narrow bandgap materials // Semicond Sci Technol. 1993. Vol. 8, № 1S. P. S1.
157. Feng K. et al. Localized surface phonon polariton resonances in polar gallium nitride // Appl Phys Lett. 2015. Vol. 107, № 8. P. 081108.
158. Kaminskii A.A. Laser crystals and ceramics: recent advances // Laser Photon Rev. 2007. Vol. 1, № 2. P. 93–177.
159. Sorokina I.T. Cr2+-doped II-VI materials for lasers and nonlinear optics // Opt Mater. 2004. Vol. 26, № 4. P. 395–412.
160. Mirov S. et al. Progress in Cr2+ and Fe2+ doped mid-IR laser materials // Laser Photon Rev. 2010. Vol. 4, № 1. P. 21–41.
161. Mirov S. et al. High Average Power Fe : ZnSe and Cr : ZnSe Mid-IR Solid State Lasers // OSA Technical Digest (online), 2015. P. AW4A.1
162. Evans J.W. et al. Optical spectroscopy and modeling of Fe2+ ions in zinc selenide // J Lumin. 2017. Vol. 188. P. 541–550.
163. Frolov M.P. et al. Study of a 2-J pulsed Fe:ZnSe 4-μm laser // Laser Phys Lett. 2013. Vol. 10, № 12. P. 125001.
164. Fedorov V. V. et al. 3.77-5.05-um tunable solid-state lasers based on Fe2+-doped ZnSe crystals operating at low and room temperatures // IEEE J Quantum Electron. 2006. Vol. 42, № 9. P. 907–917.
165. DeLoach L.D. et al. Transition metal-doped zinc chalcogenides: Spectroscopy and laser demonstration of a new class of gain media // IEEE J Quantum Electron. 1996. Vol. 32, № 6. P. 885–895.
166. Adams J.J. et al. 4.0–4.5-μm lasing of Fe:ZnSe below 180 K, a new mid-infrared laser material // Optics Letters. 1999. Vol. 24, № 23. P. 1720–1722.
167. Myoung N. et al. Temperature and concentration quenching of mid-IR photoluminescence in iron doped ZnSe and ZnS laser crystals // J Lumin. 2012. Vol. 132, № 3. P. 600–606.
168. Velikanov S.D. et al. Investigation of Fe:ZnSe laser in pulsed and repetitively pulsed regimes // Quantum Elec. 2015. Vol. 45, № 1. P. 1–7.
169. Frolov M.P. et al. Efficient 10-J pulsed Fe : ZnSe Laser at 4100 nm // Laser Optics (LO), 2016 International Conference. 2015. Vol. 247. P. 4100.
170. Kozlovsky V.I. et al. Room-temperature tunable mid-infrared lasers on transition-metal doped II-VI compound crystals grown from vapor phase // Phys Status Solidi B. 2010. Vol. 247, № 6. P. 1553–1556.

171. Myoung N. et al. Energy scaling of 4.3 μm room temperature Fe:ZnSe laser. // Opt Lett. 2011. Vol. 36, № 1. P. 94–96.
172. Firsov K.N. et al. Increasing the radiation energy of ZnSe : Fe 2+ laser at room temperature // Laser Phys Lett. 2014. Vol. 11, № 8. P. 085001.
173. Булаев В.Д. и др. Электроразрядный импульсно-периодический HF-лазер с большой энергией излучения // Квант. электрон. 2010. Т. 40, № 7. С. 615–618.
174. Velikanov S.D. et al. Repetitively pulsed Fe : ZnSe laser with an average output power of 20 W at room temperature of the polycrystalline active element. // Kvantovaya Elektronika. 2017. Vol. 47, № 4. P. 303–307.
175. Великанов С.Д. и др. Исследование работы Fe : ZnSe-лазера в импульсном и импульсно-периодическом режимах // Квантовая электроника. 2015. Т. 45, №1. С. 1–7.
176. Voronov A.A. et al. Laser parameters of a Fe:ZnSe crystal in the 85-255-K temperature range // Kvantovaya Elektronika. 2005. Vol. 35, № 9. P. 809–812.
177. Frolov M.P. et al. High-energy thermoelectrically cooled Fe:ZnSe laser tunable over 3.75–4.82 μm // Optics Letters. 2018. Vol. 43, № 3. P. 623–626.
178. Karki K. et al. High energy (0.8 J) mechanically Q-switched 2.94 um Er:YAG laser // Optics Express. 2021. Vol. 29, № 3. P. 4287–4295.
179. Martyshkin D. et al. Q-switched and gain-switched Fe:ZnSe lasers tunable over 3.60-5.15 um // Optics Express. 2019. Vol. 27, № 10. P. 13934–13941.
180. Potemkin F.V. et al. Powerful mid-IR femtosecond laser system(4–5 mm) with broad-band amplification in Fe2+:ZnSe crystal // Abstract of XI Conference on Lasers and Laser InformationTechnologies (ILLA-2014), September29– October 3, 2014, Shatura, Moscow Region, Russia.
181. Potemkin F. v. et al. Toward a sub-terawatt mid-IR (4-5 μm) femtosecond hybrid laser system based on parametric seed pulse generation and amplification in Fe2+:ZnSe // Laser Phys Lett. 2016. Vol. 13, № 1. P. 015401
182. Potemkin F.V. et al. Mid-IR (4-5 μm) femtosecond multipass amplification of optical parametric seed pulse up to gigawatt level in Fe2+:ZnSe with optical pumping by a solid-state 3 μm laser // Laser Phys Lett. 2016. Vol. 13, № 12. P. 125403
183. Moskalev I. et al. 140 W Cr:ZnSe laser system // Opt Express. 2016. Vol. 24, № 18. P. 21090.
184. Martyshkin D.V. et al. High Average Power (35 W) Pulsed Fe:ZnSe laser tunable over 3.8-4.2 μm // CLEO. 2015. P. SF1F.2.
185. Firsov K.N. et al. Room-temperature laser on a ZnSe : Fe 2+ polycrystal with undoped faces, excited by an electrodischarge HF laser // Laser Phys Lett. 2016. Vol. 13, № 5. P. 055002.
186. Firsov K.N. et al. Characteristics of a polycrystalline ZnSe:Fe 2+ laser at room temperature // Proceedings of SPIE. 2015. Vol. 9810. P. 98101R.
187. Dormidonov A.E. et al. High-efficiency room-temperature ZnSe:Fe2+ laser with a high pulsed radiation energy // Applied Physics B. 2016. Vol. 122, № 8. P. 1–7.

188. Великанов С.Д. и др. Лазер на кристалле ZnSe:Fe2+ с накачкой излучением нецепного электроразрядного HF-лазера при комнатной температуре // Квант. электрон. 2014. Т. 44, № 2. С. 141–144.
189. Firsov K.N. et al. Laser on single-crystal ZnSe:Fe 2+ with high pulse radiation energy at room temperature // Laser Phys Lett. 2016. Vol. 13, № 1. P. 015002.
190. Meister J. et al. Influence of the water content in dental enamel and dentin on ablation with erbium YAG and erbium YSGG lasers // SPIE. 2006. Vol. 11, № 3. P. 034030.
191. Shakirov A.A. et al. Diode-side-pumped watt-level high-energy Q-switched mid-IR Er:YLF laser // Optics Letters. 2021. Vol. 46, № 21. P. 5465–5468.
192. Robinson M., Devor D.P. Thermal switching of laser emission of Er3+ at 2.69 um and Tm3+ at 1.86 um in mixed crystals of CaF2:ErF3:TmF3 // Appl. Phys. Lett. 1967. Vol. 10. P. 167.
193. Zhekov V.I. et al. Mechanism of a population inversion between the 4I11/2 and 4I13/2 levels of the Er3 + ion in Y3Al5O12 crystals // Soviet journal of quantum electronics. 1980. Vol. 10, № 4. P. 428–430.
194. Pollnau M. et al. Power dependence of upconversion luminescence in lanthanide and transition-metal-ion systems // Phys Rev B. 2000. Vol. 61, № 5. P. 3337.
195. Mazur M.M., Mazur L.I., Pozhar V.E. Specific directions of ultrasound propagation in double potassium tungstates for light modulation // Ultrasonics. 2017. Vol. 73. P. 231–235.
196. Zavartsev Y.D. et al. Q -switching in a Cr 3+ :Yb 3+ :Ho 3+ :YSGG crystal laser based on the 5 I 6 — 5 I 7 (λ=2.92μm) transition // Quantum Elec. 1999. Vol. 29, № 4. P. 295–297.
197. Mochalov I. v. Laser and nonlinear properties of the potassium gadolinium tungstate laser crystal KGd(WO4)2:Nd3+-(KGW:Nd) // SPIE. 1997. Vol. 36, № 6. P. 1660–1669.
198. Mazur M.M. et al. Elastic and photo-elastic characteristics of laser crystals potassium rare-earth tungstates KRE(WO4)2, where RE = Y, Yb, Gd and Lu // Ultrasonics. 2014. Vol. 54, № 5. P. 1311–1317.
199. Sirotkin A.A., Mazur M.M. Ho:YAG laser with acousto-optical Q-switch based on KYW crystal // Proceedings - International Conference Laser Optics 2018, ICLO 2018. 2018. P. 46.
200. Myoung N. et al. Mid-IR spectroscopy of Fe:ZnSe quantum dots // Opt Express. 2016. Vol. 24, № 5. P. 5366.
201. Potemkin F.V. et al. Gigawatt mid-IR (4-5 μm) femtosecond hybrid Fe^{2+}:ZnSe laser system // Proceedings of SPIE. 2017. Vol. 10238.
202. Planchon T.A. et al. 3D Modeling of amplification processes in CPA laser amplifiers // Applied Physics B. 2005. Vol. 80, № 6. P. 661–667.
203. Smolski V.O. et al. High-energy Q-switched 120 mJ Ho:YAG lasers at 500 Hz repetition rate // SPIE Proc. 2022. Vol. 12092. P. 9–12.
204. Svelto Orazio., Hanna D.C. (David C.). Principles of lasers. Springer, 2010. P. 620.

205. Itatani J. et al. Suppression of the amplified spontaneous emission in chirped-pulse-amplification lasers by clean high-energy seed-pulse injection // Opt Commun. 1998. Vol. 148, № 1–3. P. 70–74.
206. Frolov M.P. et al. Fe2+-doped CdSe single crystal: growth, spectroscopic and laser properties, potential use as a 6 μm broadband amplifier // Laser Phys Lett. 2017. Vol. 14, № 2. P. 025001.
207. Huang C. et al. Growth and characterization of mid-far infrared optical material CdSe crystal // Optical Materials Express. 2018. Vol. 8, № 7. P. 1796–1805.
208. Schweinsberg A. et al. Ultrafast mid-infrared high harmonic and supercontinuum generation with n_2 characterization in zinc selenide // Optics Express. 2019. Vol. 27, № 3. P. 2867–2885.
209. Huang S.W. et al. High-energy pulse synthesis with sub-cycle waveform control for strong-field physics // Nature Photonics. 2011. Vol. 5, № 8. P. 475–479.
210. Kaminskii A. A. Laser with Combined Active Medium // JETP Lett. 1968. Vol. 7, № 8. P. 260.
211. Aikawa S. et al. Mid-infrared tunable pulsed laser based on Cr2+-doped II–VI chalcogenide // J Cryst Growth. 2021. Vol. 575. P. 126341.
212. Аскарьян Г.А. Воздействие градиента поля интенсивного электромагнитного луча на электроны и атомы // Журнал экспериментальной и теоретической физики. 1962. Т. 42, № 6. С. 1567–1570.
213. Пилипецкий Н.Ф., Рустамов А.Р. Наблюдение самофокусировки света в жидкостях // Письма в журнал экспериментальной и теоретической физики // Письма в ЖЭТФ. 1965. Т. 2, №2. С. 88–90.
214. Marburger J.H. Self-focusing: Theory // Prog Quantum Electron. 1975. Vol. 4, № PART 1. P. 35–110.
215. Беспалов В.И., Таланов В.И. О нитевидной структуре пучков света в нелинейных жидкостях // Письма в ЖЭТФ. 1966. Т. 3, №12. С. 471-476.
216. Chin S.L. et al. Polarization rotation due to femtosecond filamentation in an atomic gas // Optics Letters. 2010. Vol. 35, № 17. P. 2904–2906.
217. Fedotov A.B. et al. Saturation of third-harmonic generation in a plasma of self-induced optical breakdown due to the self-action of 80-fs light pulses // Opt Commun. 1997. Vol. 133, № 1–6. P. 587–595.
218. Hochstrasser R.M., Cook D.J. Intense terahertz pulses by four-wave rectification in air // Optics Letters. 2000. Vol. 25, № 16. P. 1210–1212.
219. Кандидов В.П. и др. Состояние исследований по филаментации мощных субнаносекундных лазерных импульсов в газах // Оптика атмосферы и океана. 1997. Т. 10, №12. С. 1539.
220. Nibbering E.T.J. et al. Determination of the inertial contribution to the nonlinear refractive index of air, N2, and O2 by use of unfocused high-intensity femtosecond laser pulses // JOSA B. 1997. Vol. 14, № 3. P. 650–660.

221. Keldysh V. Ionization in the field of a strong electromagnetic wave // Soviet Physics Jetp. 1965. Vol. 20, № 5. P. 1307.
222. Ахманов С.А. и др. Нестационарные нелинейные оптические эффекты и формирование сверхкоротких световых импульсов // Письма в ЖЭТФ. 1968. Т.7, №7. С. 238–242.
223. Voronin A.A., Zheltikov A.M. The generalized Sellmeier equation for air // Sci Rep. 2017. Vol. 7. P. 46111.
224. Börzsönyi Á. et al. Measurement of pressure dependent nonlinear refractive index of inert gases // Optics Express. 2010. Vol. 18, № 25. P. 25847–25854.
225. Boyd R.W. Nonlinear optics. 2nd ed. Academic Press, 2003.
226. Couairon A. et al. Filamentation and damage in fused silica induced by tightly focused femtosecond laser pulses // Phys Rev B. 2005. Vol. 71, № 12. P. 125435.
227. Gordienko V.M. et al. Second harmonic generation of femtosecond radiation from a Cr:forsterite laser in a nonlinear-optical crystal at the plasma-formation threshold // Quantum Electronics. 2007. Vol. 37, № 11. P. 1033.
228. Mikheev P.M.M., Potemkin F.V. v. Generation of the third harmonic of near IR femtosecond laser radiation tightly focused into the bulk of a transparent dielectric in the regime of plasma formation // Moscow University Physics Bulletin. 2011. Vol. 66, № 1. P. 19–24.
229. Gordienko V.M. et al. THG in dielectrics using low-energy tightly-focused IR femtosecond laser: third-order nonlinearity measurements and the evolution of laser-induced plasma // Journal of Russian Laser Research. 2009. Vol. 30, № 6. P. 599–608.
230. Gordienko V.M., Potemkin F.V., Mikheev P.M. Evolution of a femtosecond laser-induced plasma and energy transfer processes in a SiO2 microvolume detected by the third harmonic generation technique // JETP Lett. 2009. Vol. 90, № 4. P. 263–267
231. Migal E.A., Potemkin F. v, Gordienko V.M. Efficient strong-field low-order harmonic generation in xenon microplasma by a tightly focused Cr:Forsterite laser // Laser Phys Lett. 2019. Vol. 16, № 4. P. 045401.
232. Lambert G. et al. Spatial properties of odd and even low order harmonics generated in gas // Scientific Reports. 2015. Vol. 5, № 1. P. 1–10.
233. Théberge F. et al. Third harmonic beam profile generated in atmospheric air using femtosecond laser pulses // Opt Commun. 2005. Vol. 245, № 1–6. P. 399–405.
234. Yang H. et al. Third-order harmonic generation by self-guided femtosecond pulses in air // Phys Rev E. 2003. Vol. 67, № 1. P. 015401.
235. Kung A.H., Young J.F., Harris S.E. Generation of 1182-Å radiation in phase-matched mixtures of inert gases // Appl Phys Lett. 2003. Vol. 22, № 6. P. 301.
236. Misoguti L. et al. Nonlinear wave-mixing processes in the extreme ultraviolet // Phys Rev A. 2005. Vol. 72, № 5. P. 063803.

237. Bideau-Mehu A. et al. Measurement of refractive indices of neon, argon, krypton and xenon in the 253.7-140.4 nm wavelength range. Dispersion relations and estimated oscillator strengths of the resonance lines // J Quant Spectrosc Radiat Transf. 1981. Vol. 25, № 5. P. 395–402.
238. Chizhov P. et al. Broadband in-line terahertz 2D imaging: comparative study with time-of-flight, cross-correlation, and Fourier transform data processing // JOSA B. 2018. Vol. 35, № 5. P. 1159–1164.
239. D'arco A. et al. THz Pulsed Imaging in Biomedical Applications // Condensed Matter. 2020. Vol. 5, № 2. P. 25.
240. Fleischer S. et al. Molecular orientation and alignment by intense single-cycle THz pulses // Phys Rev Lett. 2011. Vol. 107, № 16. P. 163603.
241. Afanasiev D. et al. Ultrafast control of magnetic interactions via light-driven phonons // Nature Materials. 2021. Vol. 20, № 5. P. 607–611.
242. Cocker T.L. et al. Nanoscale terahertz scanning probe microscopy // Nature Photonics. 2021. Vol. 15, № 8. P. 558–569.
243. Plankl M. et al. Subcycle contact-free nanoscopy of ultrafast interlayer transport in atomically thin heterostructures // Nature Photonics. 2021. Vol. 15, № 8. P. 594–600.
244. Nanni E.A. et al. Terahertz-driven linear electron acceleration // Nature Communications. 2015. Vol. 6, № 1. P. 1–8.
245. Tang H. et al. Stable and Scalable Multistage Terahertz-Driven Particle Accelerator // Phys Rev Lett. 2021. Vol. 127, № 7. P. 074801.
246. Il'ina I. v., Sitnikov D.S., Agranat M.B. State-of-the-Art of Studies of the Effect of Terahertz Radiation on Living Biological Systems // High Temperature. 2018. Vol. 56, № 5. P. 789–810.
247. Chai X. et al. Giant self-induced transparency of intense few-cycle terahertz pulses in n-doped silicon // Optics Letters. 2017. Vol. 42, № 23. P. 4889–4892.
248. Jelic V. et al. Ultrafast terahertz control of extreme tunnel currents through single atoms on a silicon surface // Nature Physics. Vol. 13, № 6. P. 591–598.
249. Vicario C. et al. High efficiency THz generation in DSTMS, DAST and OH1 pumped by Cr:forsterite laser // Opt Express. 2015. Vol. 23, № 4. P. 4573.
250. Clerici M. et al. Wavelength scaling of terahertz generation by gas ionization. // Phys Rev Lett. 2013. Vol. 110, № 25. P. 253901.
251. Shibuya K. et al. Characteristics of nonlinear terahertz-wave radiation generated by mid-infrared femtosecond pulse laser excitation // Applied Physics Express. 2021. Vol. 14, № 9. P. 092004.
252. Gollner C. et al. Highly efficient THz generation by optical rectification of mid-IR pulses in DAST // APL Photonics. 2021. Vol. 6, № 4. P. 046105.
253. Zhao H. et al. Efficient broadband terahertz generation from organic crystal BNA using near infrared pump // Appl Phys Lett. 2019. Vol. 114, № 24. P. 241101.
254. Li J. et al. Limitation of THz conversion efficiency in DSTMS pumped by intense femtosecond pulses // Optics Express. 2021. Vol. 29, № 14. P. 22494–22503.

255. Jazbinsek M., Mutter L., Günter P. Photonic applications with the organic nonlinear optical crystal DAST // IEEE Journal on Selected Topics in Quantum Electronics. 2008. Vol. 14, № 5. P. 1298–1311.
256. Cunningham P.D. et al. Optical properties of DAST in the THz range // Optics Express. 2010. Vol. 18, № 23. P. 23620–23625.
257. Pan F. et al. Crystal growth and characterization of the organic salt 4-N, N-dimethylamino-4′-N-methyl-stilbazolium tosylate (dast) // Advanced Materials. 1996. Vol. 8, № 7. P. 592–595.
258. Kartashov D. et al. Mid-infrared laser filamentation in molecular gases. // Opt Lett. 2013. Vol. 38, № 16. P. 3194–3197.
259. Dubietis A. et al. Ultrafast supercontinuum generation in bulk condensed media // Lithuanian Journal of Physics. 2017. Vol. 57, № 3. P. 113–157.
260. Silva F. et al. Multi-octave supercontinuum generation from mid-infrared filamentation in a bulk crystal. // Nat Commun. 2012. Vol. 3. P. 807.
261. M.Azhar. Tunable nonlinear fiber optics using dense noble gases. Max Planck Institute, 2013.
262. Imran T., Figueira G. Efficient white-light continuum generation in transparent solid media using ∼250 fs, 1053 nm laser pulses // AIP Conf Proc. 2010. Vol. 1228, № 1. P. 370.
263. Shim B. et al. Three-octave-spanning supercontinuum generation and sub-two-cycle self-compression of mid-infrared filaments in dielectrics // Optics Letters. 2015. Vol. 40, № 6. P. 1069–1072.
264. Dharmadhikari A.K. et al. Highly efficient white light generation from barium fluoride // Optics Express. 2004. Vol. 12, № 4. P. 695–700.
265. Gražulevičiūtė I. et al. Supercontinuum generation in YAG and sapphire with picosecond laser pulses // Lithuanian Journal of Physics. 2015. Vol. 55, № 2. P. 110–116.
266. Wirth A. et al. Synthesized light transients // Science. 2011. Vol. 334, № 6053. P. 195–200.
267. Hauri C.P. et al. Generation of intense, carrier-envelope phase-locked few-cycle laser pulses through filamentation // Appl Phys B. 2004. Vol. 79, № 6. P. 673–677.
268. Balciunas T. et al. A strong-field driver in the single-cycle regime based on self-compression in a kagome fibre // Nature Communications. 2015. Vol. 6, № 1. P. 6117.
269. Kartashov D. et al. White light generation over three octaves by femtosecond filament at 39 μm in argon // Opt Lett. 2012. Vol. 37, № 16. P. 3456.
270. Bergé L., Rolle J., Köhler C. Enhanced self-compression of mid-infrared laser filaments in argon // Phys Rev A. 2013. Vol. 88, № 2. P. 023816.
271. Couairon A., Mysyrowicz A. Femtosecond filamentation in transparent media // Phys Rep. 2007. Vol. 441. P. 47.
272. Uryupina D. et al. 3D Raman bullet formed under filamentation of femtosecond laser pulses in air and nitrogen // Appl Phys B. 2013. Vol. 110, № 1. P. 123–130.
273. Milchberg H.M. et al. The extreme nonlinear optics of gases and femtosecond optical filamentationa) // Phys Plasmas. 2014. Vol. 21, № 10. P. 100901.

274. Milchberg H.M., Wahlstrand J.K., Zahedpour S. Measurement of the nonlinear refractive index of air constituents at mid-infrared wavelengths // Optics Letters. 2015. Vol. 40, № 24. P. 5794–5797.
275. Pigeon J.J. et al. Resonant nonlinear refraction of 4.3-μm light in CO_2 gas // Phys Rev A. 2019. Vol. 100, № 1. P. 011803.
276. Baltuška A. et al. Extreme Raman red shift: ultrafast multimode nonlinear space-time dynamics, pulse compression, and broadly tunable frequency conversion // Optica. 2020. Vol. 7, № 10. P. 1349–1354.
277. Альтшулер Л.В. Результаты и перспективы экспериментальных исследований экстремальных состояний вещества // УФН. 1990. Vol. 89. P. 189–192.
278. McMillan P.F. New materials from high-pressure experiments // Nature Materials. 2002. Vol. 1, № 1. P. 19–25.
279. Vailionis A. et al. Evidence of superdense aluminium synthesized by ultrafast microexplosion. // Nat Commun. 2011. Vol. 2. P. 445.
280. Mareev E.I., Potemkin F.V. Dynamics of Ultrafast Phase Transitions in (001) Si on the Shock-Wave Front // International Journal of Molecular Sciences. 2022. Vol. 23, № 4. P. 2115.
281. Mareev E., Potemkin F. Dynamics of ultrafast phase transitions in MgF_2 triggered by laser-induced THz coherent phonons // Scientific Reports. 2022. Vol. 12, P. 6621.
282. Drake R.P. High-energy-density physics // Phys Today. 2010. Vol. 63, № 6. P. 28.
283. Зельдович Я.Б., Райзер Ю.П. Физика ударных волн и высокотемпературных гидродинамических явлений. М.:Наука, 1996. 686 p.
284. Weir C.E. et al. Infrared Studies in the 1- to 15-Micron Region to 30,000 Atmospheres // J Res Natl Bur Stand A Phys Chem. 1959. Vol. 63A, № 1. P. 55.
285. Tateno S. et al. The structure of iron in earth's inner core // Science. 2010. Vol. 330, № 6002. P. 359–361.
286. Mizeikis V., Vailionis A., Gamaly E.G., Yang W., Rode A.V., Juodkazis S. Synthesis of super-dense phase of aluminum under extreme pressure and temperature conditions created by femtosecond laser pulses in sapphire // SPIE Proceedings. 2012. Vol. 8249. P. 82490A.
287. Akahama Y. et al. Evidence of a fcc-hcp transition in aluminum at multimegabar pressure // Phys Rev Lett. 2006. Vol. 96, № 4. P. 045505.
288. Boettger J., Trickey S. High-precision calculation of the equation of state and crystallographic phase stability for aluminum // Phys Rev B. 1996. Vol. 53, № 6. P. 3007.
289. Daisenberger D. et al. High-pressure x-ray scattering and computer simulation studies of density-induced polyamorphism in silicon // Phys Rev B. 2007. Vol. 75, № 22. P. 224118.
290. Mujica A., Pickard C.J., Needs R.J. Low-energy tetrahedral polymorphs of carbon, silicon, and germanium // Phys Rev B. 2015. Vol. 91, № 21. P. 1–13.
291. Wang J.T. et al. Kinetic origin of divergent decompression pathways in silicon and germanium // Phys Rev Lett. 2013. Vol. 110, № 16. P. 1–5.

292. Wippermann S. et al. Novel silicon phases and nanostructures for solar energy conversion // Appl Phys Rev. 2016. Vol. 3, № 4. P. 040807.
293. Hanfland M. et al. Crystal structure of the high-pressure phase silicon vi // Phys Rev Lett. 1999. Vol. 82, № 6. P. 1197–1200.
294. Zeng Z. et al. Phase transitions in metastable phases of silicon // J Appl Phys. 2014. Vol. 115, № 10. P. 103514.
295. Turneaure S.J., Gupta Y.M. Inelastic deformation and phase transformation of shock compressed silicon single crystals // Appl Phys Lett. 2007. Vol. 91, № 20. P. 6–9.
296. Erhart P., Albe K. Analytical potential for atomistic simulations of silicon, carbon, and silicon carbide // Phys Rev B. 2005. Vol. 71, № 3. P. 1–14.
297. Dianov E.M., Kononenko V. v., Konov V. v. Delocalization of femtosecond radiation in silicon // Optics Letters. 2012. Vol. 37, № 16. P. 3369–3371.
298. Mouskeftaras A. et al. Self-limited underdense microplasmas in bulk silicon induced by ultrashort laser pulses // Appl Phys Lett. 2014. Vol. 105, № 19. P. 191103.
299. Mori M. et al. Tailoring thermoelectric properties of nanostructured crystal silicon fabricated by infrared femtosecond laser direct writing // Physica Status Solidi A. 2015. Vol. 212, № 4. P. 715–721.
300. Shimotsuma Y. et al. Nanostructuring in indirect band-gap semiconductor using ir femtosecond double pulses // Journal of Laser Micro Nanoengineering. 2016. Vol. 11, № 1. P. 35–41.
301. Turnali A. et al. Femtosecond laser written waveguides deep inside silicon // Optics Letters. 2017. Vol. 42, № 15. P. 3028–3031.
302. Chanal M. et al. Crossing the threshold of ultrafast laser writing in bulk silicon // Nature Communications. 2017. Vol. 8, № 1. P. 1–6.
303. Marcinkevičius a. et al. Effect of refractive index-mismatch on laser microfabrication in silica glass // Appl Phys A. 2003. Vol. 76, № 2. P. 257–260.
304. Zavedeev E. v. et al. Delocalization of femtosecond laser radiation in crystalline Si in the mid-IR range // Laser Physics. 2016. Vol. 26, № 1. P. 016101.
305. Manenkov A.A. Fundamental mechanisms of laser-induced damage in optical materials: today's state of understanding and problems // Optical Engineering. 2014. Vol. 53, № 1. P. 010901.
306. Klimentov S.M. et al. The role of plasma in ablation of materials by ultrashort laser pulses // Kvantovaya Elektronika. 2001. Vol. 31, № 5. P. 378–382.
307. Kononenko V.V., Konov V.I. Fs Laser Induced Reversible and Irreversible Processes in Transparent Bulk Material // Springer Series in Materials Science. 2014. Vol. 195. P. 247–268.
308. Varkentina N. et al. Absorption of a single 500 fs laser pulse at the surface of fused silica: Energy balance and ablation efficiency // J Appl Phys. 2013. Vol. 114, № 17. P. 173105.
309. Tien A.-C. et al. Short-Pulse Laser Damage in Transparent Materials as a Function of Pulse Duration // Phys Rev Lett. 1999. Vol. 82, № 19. P. 3883.

310. Smith W.L., Bechtel J.H., Bloembergen N. Dielectric-breakdown threshold and nonlinear-refractive-index measurements with picosecond laser pulses // Phys Rev B. 1975. Vol. 12, № 2. P. 706.
311. Sundaram S.K., Mazur E. Inducing and probing non-thermal transitions in semiconductors using femtosecond laser pulses // Nat Mater. 2002. Vol. 1, № 4. P. 217–224.
312. Schaffer C.B., Brodeur A., Mazur E. Laser-induced breakdown and damage in bulk transparent materials induced by tightly focused femtosecond laser pulses // Meas Sci Technol. 2001. Vol. 12, № 11. P. 1784.
313. Malinauskas M. et al. Ultrafast laser processing of materials: from science to industry // Light: Science & Applications. 2016. Vol. 5, № 8. P. e16133–e16133.
314. Gopal A. et al. Accurate retrieval of pulse-splitting dynamics of a femtosecond filament in water by time-resolved shadowgraphy // Optics Letters. 2009. Vol. 34, № 19. P. 3020–3022.
315. Bukin V. V et al. Formation and development dynamics of femtosecond laser microplasma in gases // Quantum Elec. 2006. Vol. 36, № 7. P. 638–645.
316. Brajdic M. et al. In situ measurement of plasma and shock wave properties inside laser-drilled metal holes // Meas Sci Technol. 2008. Vol. 19, № 10. P. 105703.
317. Gupta S.D. et al. A first principles lattice dynamics and Raman spectra of the ferroelastic rutile to $CaCl_2$ phase transition in SnO_2 at high pressure // Journal of Raman Spectroscopy. 2013. Vol. 44, № 6. P. 926–933.
318. Talebpour A., Petit S., Chin S.L. Re-focusing during the propagation of a focused femtosecond Ti:Sapphire laser pulse in air // Opt Commun. 1999. Vol. 171, № 4–6. P. 285–290.
319. Rumiantsev B. et al. Photoacoustic and optical imaging of the femtosecond filament in water // Proc. SPIE. 2019. Vol. 11026. P. 1102606
320. Nguyen N.T. et al. Optical breakdown versus filamentation in fused silica by use of femtosecond infrared laser pulses // Opt Lett. 2003. Vol. 28, № 17. P. 1591.
321. Dubietis A. et al. Measurement and calculation of nonlinear absorption associated with femtosecond filaments in water // Applied Physics B 2006 84:3. Springer, 2006. Vol. 84, № 3. P. 439–446.
322. Potemkin F.V., Mareev E.I., Smetanina E.O. Influence of wave-front curvature on supercontinuum energy during filamentation of femtosecond laser pulses in water // Phys Rev A. 2018. Vol. 97, № 3. P. 033801
323. Débarre D. et al. Imaging lipid bodies in cells and tissues using third-harmonic generation microscopy // Nature Methods. 2005. Vol. 3, № 1. P. 47–53.
324. Squier J.A., Müller M. Third-harmonic generation imaging of laser-induced breakdown in glass. // Appl Opt. 1999. Vol. 38, № 27. P. 5789.
325. Bautista G. et al. Third-harmonic generation imaging of three-dimensional microstructures fabricated by photopolymerization // Optics Express. 2016. Vol. 24, № 9. P. 9353–9358.

326. Zheltikov A.M. et al. Third-harmonic generation in focused beams as a method of 3D microscopy of a laser-produced plasma // Opt Spectrosc. 2001. Vol. 90, № 5. P. 778.
327. Puerto D. et al. Dynamics of plasma formation, relaxation, and topography modification induced by femtosecond laser pulses in crystalline and amorphous dielectrics // JOSA B. 2010. Vol. 27, № 5. P. 1065–1076.
328. Mareev E.I., Migal E.A., Potemkin F. V. Real-Time Monitoring of the Energy Deposition under the Tight Focusing of Femtosecond Laser Radiation into a Bulk Transparent Dielectric Based on Third Harmonic Signal // JETP Lett. 2018. Vol. 107, № 7. P. 402–405.
329. Lyamshev L.M. Optoacoustic sources of sound // Uspekhi Fizicheskih Nauk. Uspekhi Fizicheskikh Nauk (UFN) Journal, 1981. Vol. 135, № 12. P. 637.
330. В.Э.Гусев, А.А. Карабутов. Лазерная оптоакустика. Москва: Наука, 1991. 304 p.
331. Potemkin F.V. et al. Laser control of filament-induced shock wave in water // Laser Phys Lett. 2014. Vol. 11, № 10. P. 106001.
332. Mareev E.I., Rumiantsev B.V., Potemkin F.V. Study of the Parameters of Laser-Induced Shock Waves for Laser Shock Peening of Silicon // JETP Lett. 2020. Vol. 112, № 11. P. 739–744.
333. Kudryashov S.I. et al. Acoustic monitoring of microplasma formation and filamentation of tightly focused femtosecond laser pulses in silica glass // Appl Phys Lett. 2008. Vol. 92, № 10. P. 3–5.
334. Pushkarev D. et al. Transverse structure and energy deposition by a subTW femtosecond laser in air: from single filament to superfilament // New J Phys. 2019. Vol. 21, № 3. P. 033027.
335. Kudryashov S.I., Lyon K., Allen S.D. Photoacoustic study of relaxation dynamics in multibubble systems in laser-superheated water // Phys Rev E. 2006. Vol. 73, № 5. P. 055301.
336. Kudryashov S.I. et al. Dynamics of laser-induced surface phase explosion in silicon // Appl Phys Lett. 2011. Vol. 98, № 25. P. 254102.
337. Kudryashov S. et al. Electronic and vibrational processes in absorbing liquids in femtosecond laser sub- and filamentation regimes: ultrasonic and optical characterization // Laser Phys Lett. 2020. Vol. 17, № 10. P. 105302.
338. Kudryashov S.I. et al. Filamentation of an Ultrashort Laser Pulse in a Medium with Artificial Nonlinearity // JETP Letters. 2019. Vol. 109, № 7. P. 432–436.
339. Kudryashov S.I., Lyon K., Allen S.D. Nanosecond near-spinodal homogeneous boiling of water superheated by a pulsed C O2 laser // Phys Rev E. 2007. Vol. 75, № 3. P. 036313.
340. Paul S. et al. Nanosecond-laser plasma-assisted ultradeep microdrilling of optically opaque and transparent solids // J Appl Phys. 2007. Vol. 101, № 4. P. 043106.
341. Potemkin F. v. et al. Two-dimensional photoacoustic imaging of femtosecond filament in water // Laser Phys Lett. 2018. Vol. 15, № 7. P. 075403
342. Rumiantsev B. v. et al. Three-dimensional hybrid optoacoustic imaging of the laser-induced plasma and deposited energy density under optical breakdown in water // Appl Phys Lett. 2021. Vol. 118, № 1. P. 011109

343. Mareev E. et al. Single-shot femtosecond bulk micromachining of silicon with mid-IR tightly focused beams // Scientific Reports. 2022. Vol. 12, № 1. P. 1–12.
344. Ito Y. et al. Ultrafast and precision drilling of glass by selective absorption of fiber-laser pulse into femtosecond-laser-induced filament // Appl Phys Lett. 2018. Vol. 113, № 6. P. 061101.
345. Potemkin F.V. et al. Semi-analytical modelling of the forward and inverse problems in photoacoustic tomography of a femtosecond laser filament in water accounting for refraction and acoustic attenuation // Journal of Physics: Conference Series. 2018. Vol. 1141, № 1.P. 012060
346. Potemkin F.V. et al. Superfilamentation in water: From femtoseconds to microseconds // European Conference on Lasers and Electro-Optics - European Quantum Electronics Conference. 2015. paper EE_P_2.
347. Zhang J.H. et al. Phase Matching, Strong Frequency Doubling, and Outstanding Laser-Induced Damage Threshold in the Biaxial, Quaternary Diamond-like Semiconductor $Li_4CdSn_2S_7$ // Chemistry of Materials. 2020. Vol. 32, № 23. P. 10045–10054.
348. Seely J.F., Harris E.G. Heating of a Plasma by Multiphoton Inverse Bremsstrahlung // Phys Rev A. 1973. Vol. 7, № 3. P. 1064.
349. Kaiser A. et al. Microscopic processes in dielectrics under irradiation by subpicosecond laser pulses // Phys Rev B. 2000. Vol. 61, № 17. P. 11437.
350. Simanovskii D.M. et al. Midinfrared Optical Breakdown in Transparent Dielectrics // Phys Rev Lett. 2003. Vol. 91, № 10. P. 107601.
351. Gallais L. et al. Wavelength dependence of femtosecond laser-induced damage threshold of optical materials // J Appl Phys. 2015. Vol. 117, № 22. P. 223103.
352. Jia T.Q. et al. Ultraviolet-infrared femtosecond laser-induced damage in fused silica and CaF_2 crystals // Phys Rev B. 2006. Vol. 73, № 5. P. 054105–1.
353. Migal E. et al. Role of wavelength in photocarrier absorption and plasma formation threshold under excitation of dielectrics by high-intensity laser field tunable from visible to mid-IR // Sci Rep. 2020. Vol. 10, № 1. P. 14007
354. Migal E. et al. Role of deposited energy density and impact ionization in the process of femtosecond laser-matter interaction with solids: scaling from visible to mid-IR wavelength. SPIE-Intl Soc Optical Eng, 2019. Vol. 11026. P. 11026V.
355. Gallais L., Commandré M. Laser-induced damage thresholds of bulk and coating optical materials at 1030 nm, 500 fs // Applied Optics. 2014. Vol. 53, № 4. P. A186–A196.
356. Sun H. et al. Mechanisms of femtosecond laser-induced damage in magnesium fluoride // Solid State Commun. 2007. Vol. 141, № 3. P. 127–131.
357. Peng J. et al. Control of energy deposition in femtosecond laser dielectric interactions // Appl Phys Lett. 2013. Vol. 102, № 16. P. 161105.
358. Mareev E.I. et al. Effect of pulse duration on the energy delivery under nonlinear propagation of tightly focused Cr:forsterite laser radiation in bulk silicon // Laser Phys Lett. 2019. Vol. 17, № 1. P. 015402.

359. Chambonneau M. et al. Competing Nonlinear Delocalization of Light for Laser Inscription Inside Silicon with a 2-μm Picosecond Laser // Phys Rev Appl. 2019. Vol. 12, № 2. P. 024009.
360. Mareev E.I. et al. A comprehensive approach to the characterization of the deposited energy density during laser–matter interactions in liquids and solids // Meas Sci Technol. 2020. Vol. 31, № 8. P. 085204.
361. Wang A., Das A., Grojo D. Temporal-contrast imperfections as drivers for ultrafast laser modifications in bulk silicon // Phys Rev Res. 2020. Vol. 2. P. 033023.
362. Rethfeld B. Free-electron generation in laser-irradiated dielectrics // Phys Rev B. 2006. Vol. 73, № 3. P. 035101.
363. Hu Q. Dynamics of Melt-mediated Crystallization of Amorphous Silicon Films. Ph.D. Thesis, Columbia University. 2011.
364. Christensen B.H., Balling P. Modeling ultrashort-pulse laser ablation of dielectric materials // Phys Rev B. 2009. Vol. 79, № 15. P. 1–10.
365. Bulgakova N.M., Zhukov V.P., Meshcheryakov Y.P. Theoretical treatments of ultrashort pulse laser processing of transparent materials: toward understanding the volume nanograting formation and “quill” writing effect // Applied Physics B. 2013. Vol. 113, № 3. P. 437–449.
366. Shugaev M.V. et al. Fundamentals of ultrafast laser – material interaction // MRS Bulletin. 2016. Vol. 41, №12. P. 960–968.
367. Bhuyan M.K. et al. Optical beam engineering for nanoscale structuring of transparent materials. // 2015 International Conference on Microwave, Optical and Communication Engineering (ICMOCE), Bhubaneswar, India, 2015. P. 197–199.
368. Dostovalov A. v., Korolkov V.P., Babin S.A. Formation of thermochemical laser-induced periodic surface structures on Ti films by a femtosecond IR Gaussian beam: regimes, limiting factors, and optical properties // Applied Physics B. 2016. Vol. 123, № 1. P. 1–9.
369. Gregorčič P. et al. Formation of laser-induced periodic surface structures (LIPSS) on tool steel by multiple picosecond laser pulses of different polarizations // Appl Surf Sci. 2016. Vol. 387. P. 698–706.
370. Höhm S. et al. Dynamics of the formation of laser-induced periodic surface structures (LIPSS) upon femtosecond two-color double-pulse irradiation of metals, semiconductors, and dielectrics // Appl Surf Sci. 2016. Vol. 374. P. 331–338.
371. Dubov M. et al. UV femtosecond laser inscribes a 300 nm period nanostructure in a pure fused silica // Meas Sci Technol. 2007. Vol. 18, № 7. P. L15.
372. Courvoisier F., Stoian R., Couairon A. Ultrafast laser micro- and nano-processing with nondiffracting and curved beams // Opt Laser Technol. 2016. Vol. 80. P. 125–137.
373. Rubenchik A.M. et al. Interaction of doughnut-shaped laser pulses with glasses // JOSA B. 2017. Vol. 34, № 2. P. 463–471.

374. Rapp L. et al. Experimental evidence of new tetragonal polymorphs of silicon formed through ultrafast laser-induced confined microexplosion // Nature Communications. 2015. Vol. 6, № 1. P. 1–10.
375. Smith M.J. et al. Pressure-induced phase transformations during femtosecond-laser doping of silicon // J Appl Phys. 2011. Vol. 110, № 5.
376. Haberl B. et al. New insight into pressure-induced phase transitions of amorphous silicon: the role of impurities // J Appl Crystallogr. 2013. Vol. 46, № 3. P. 758–768.
377. Gamaly E.G. et al. Generation of high energy density by fs-laser-induced confined microexplosion // New J Phys. 2013. Vol. 15, № 2. P. 025018.
378. Guizard S. et al. Ultrafast Breakdown of dielectrics: Energy absorption mechanisms investigated by double pulse experiments // Appl Surf Sci. 2015. Vol. 336. P. 206–211.
379. Yu X. et al. Damage formation on fused silica illuminated with ultraviolet-infrared femtosecond pulse pairs // Proc. of SPIE. 2015. Vol. 9511. P. 95110C.
380. Yu X. et al. Near-infrared femtosecond laser machining initiated by ultraviolet multiphoton ionization // Appl Phys Lett. 2013. Vol. 102, № 10. P. 24185–24190.
381. Yu X. et al. Control of multiphoton and avalanche ionization using an ultraviolet-infrared pulse train in femtosecond laser micro/nano-machining of fused silica // SPIE Photonics West. 2014. Vol. 8968, № 1. P. 89680G.
382. Mouskeftaras A. et al. Mechanisms of femtosecond laser ablation of dielectrics revealed by double pump-probe experiment // Appl Phys A. 2013. Vol. 110, № 3. P. 709–715.
383. Yu X. et al. Fabricating nanostructures on fused silica using femtosecond infrared pulses combined with sub-nanojoule ultraviolet pulses // Opt Lett. 2014. Vol. 39, № 19. P. 5638–5640.
384. Mitryukovskiy S. et al. Plasma luminescence from femtosecond filaments in air: Evidence for impact excitation with circularly polarized light pulses // Phys Rev Lett. 2015. Vol. 114, № 6. P. 1–5.
385. Mao S.S. et al. Dynamics of femtosecond laser interactions with dielectrics // Applied Physics A. 2004. Vol. 79, № 7. P. 1695–1709.
386. Потёмкин, Фёдор Викторович. Микроплазма и энергоперенос в объеме прозрачных диэлектриков, регистрируемые с помощью генерации третьей гармоники фемтосекундного лазерного излучения : диссертация ... кандидата физико-математических наук : 01.04.21 / Потемкин Федор Викторович; [Место защиты: Моск. гос. ун-т им. М.В. Ломоносова].- Москва, 2011.- 141 с.
387. Bravy B.G., Gordienko V.M., Platonenko V.T. Kerr effect-assisted self-compression in dielectric to single-cycle pulse width and to terawatt power level in mid-IR // Opt Commun. 2015. Vol. 344. P. 7–11.
388. Gibbon P., Förster E. Short-pulse laser -plasma interactions Short-pulse laser–plasma interactions // Plasma Phys. Control. Fusion. 1996. Vol. 38, № 38. P. 769–793.

389. Glezer E.N., Mazur E. Ultrafast-laser driven micro-explosions in transparent materials // Appl Phys Lett. 1997. Vol. 71, № 7. P. 882.
390. Temnov V.V. et al. Multiphoton Ionization in Dielectrics: Comparison of Circular and Linear Polarization // Phys Rev Lett. 2006. Vol. 97, № 23. P. 237403.
391. Malinauskas M. et al. Femtosecond pulsed light polarization induced effects in direct laser writing 3D nanolithography. Proc. SPIE. 2016. Vol. 9736. P. 1–15.
392. Dostovalov A.V. et al. Quantitative characterization of energy absorption in femtosecond laser micro-modification of fused silica // Opt Express. 2015. Vol. 23, № 25. P. 32541.
393. Liao J., Gulley J.R. Time–frequency control of ultrafast plasma generation in dielectrics // Journal of the Optical Society of America B. 2014. Vol. 31, № 12. P. 2973.
394. Schaffer C.B. et al. Micromachining bulk glass by use of femtosecond laser pulses with nanojoule energy // Opt Lett. 2001. Vol. 26, № 2. P. 93.
395. Juodkazis S. et al. Structural changes in femtosecond laser. Journal of Optics. 2010. Vol. 12, № 12. P. 124007.
396. Ichikawa H. et al. Transient photoinduced 'hidden' phase in a manganite // Nature Materials. 2011. Vol. 10, № 2. P. 101–105.
397. Radu I. et al. Transient ferromagnetic-like state mediating ultrafast reversal of antiferromagnetically coupled spins // Nature. 2011. Vol. 472, № 7342. P. 205–208.
398. Fausti D. et al. Light-induced superconductivity in a stripe-ordered cuprate // Science. 2011. Vol. 331, № 6014. P. 189–191.
399. Merlin R. Generating coherent THz phonons with light pulses // Solid State Commun. 1997. Vol. 102. P. 207.
400. Мельников А.А., Мисочко О.В., Чекалин С.В. Исследование когерентных фононов в висмуте при зондировании фемтосекундными лазерными и рентгеновскими импульсами // Письма в ЖЭТФ. 2009. Т. 89, № 3. С. 148–152.
401. Ruello P., Gusev V.E. Physical mechanisms of coherent acoustic phonons generation by ultrafast laser action // Ultrasonics. 2015. Vol. 56. P. 21–35.
402. Kohmoto T. et al. Observation of coherent phonons in strontium titanate: Structural phase transition and ultrafast dynamics of the soft modes // Phys Rev B. 2006. Vol. 74, № 6. P. 064303.
403. Park H. et al. Mechanism of coherent acoustic phonon generation under nonequilibrium conditions // Phys Rev B Condens Matter Mater Phys. 2005. Vol. 72, № 10. P. 100301.
404. Neugebauer M.J. et al. Comparison of coherent phonon generation by electronic and ionic Raman scattering in LaAlO3 // Phys Rev Res. 2021. Vol. 3, № 1. P. 013126.
405. Stevens T.E., Kuhl J., Merlin R. Coherent phonon generation and the two stimulated Raman tensors // Phys Rev B. 2002. Vol. 65, № 14. P. 144304.
406. Zeiger H.J., Vidal J. Theory for displacive excitation of coherent phonons // Phys Rev B. 1992. Vol. 45, № 2. P. 768.

407. Pfeifer T. et al. Generation Mechanism for Coherent LO Phonons in Surface-Space-Charge Fields of III-V-Compounds // Applied Physics A. 1992. Vol. 55. P. 482–488.
408. von der Linde D., Laubereau A., Kaiser W. Molecular Vibrations in Liquids: Direct Measurement of the Molecular Dephasing Time; Determination of the Shape of Picosecond Light Pulses // Phys Rev Lett. 1971. Vol. 26, № 16. P. 954.
409. Alfano R.R., Shapiro S.L. Optical Phonon Lifetime Measured Directly with Picosecond Pulses // Phys Rev Lett. 1971. Vol. 26, № 20. P. 1247.
410. Shen Y.R., Bloembergen N. Theory of Stimulated Brillouin and Raman Scattering // Physical Review. 1965. Vol. 137, № 6A. P. A1787.
411. Cheng T.K. et al. Impulsive excitation of coherent phonons observed in reflection in bismuth and antimony // Appl Phys Lett. 1998. Vol. 57, № 10. P. 1004.
412. Yan Y.X., Gamble E.B., Nelson K.A. Impulsive stimulated scattering: General importance in femtosecond laser pulse interactions with matter, and spectroscopic applications // J Chem Phys. 1998. Vol. 83, № 11. P. 5391.
413. Garrett G. et al. Coherent THz Phonons Driven by Light Pulses and the Sb Problem: What is the Mechanism? // Phys Rev Lett. 1996. Vol. 77, № 17. P. 3661.
414. Benatti F. et al. Generation and detection of squeezed phonons in lattice dynamics by ultrafast optical excitations // New J Phys. 2017. Vol. 19, № 2. P. 023032.
415. Ma G. et al. Narrow-band terahertz wave generation and detection in one periodically poled lithium niobate crystal // Opt Commun. 2007. Vol. 273, № 2. P. 549.
416. Гордиенко В.М., Михеев П.М., Потемкин Ф.В. Генерация когерентных терагерцовых фононов при острой фокусировке фемтосекундного лазерного излучения в объём кристаллических диэлектриков в режиме формирования плазмы // Письма в ЖЭТФ. 2010. Т. 92, № 8. С. 553–558.
417. Гордиенко В.М. и др. Формирование микромодификаций в кристалле KDP при острой фокусировке фемтосекундного лазерного излучения видимого диапазона // Квантовая электроника. 2005. Т. 35, № 7. С. 627–632.
418. Zhang T. et al. Phase transition and thermodynamic properties of magnesium fluoride by first principles // Int J Mod Phys B. 2014. Vol. 28, № 8. P. 1450026.
419. Barreta C.D. et al. Ionic solids at elevated temperatures and high pressures: MgF_2 // J Chem Phys. 1997. Vol. 107, № 11. P. 4337–4344.
420. Haines J. et al. X-ray diffraction and theoretical studies of the high-pressure structures and phase transitions in magnesium fluoride // Phys Rev B. 2001. Vol. 64, № 13. P. 134110.
421. Penzkofer A., Laubereau A., Kaiser W. High intensity Raman interactions // Prog Quantum Electron. Pergamon, 1979. Vol. 6, № 2. P. 55–140.
422. Paul R., Hu S.X., Karasiev V. v. Crystalline phase transitions and vibrational spectra of silicon up to multiterapascal pressures // Phys Rev B. 2019. Vol. 100, № 14. P. 144101.

423. Domnich V., Gogotsi Y. Phase transformations in silicon under contact loading // Rev.Adv.Mater.Sci. 2002. Vol. 3. P. 1–36.
424. Gaál-Nagy K., Strauch D. Phonons in the β-tin, Imma, and sh phases of silicon from ab initio calculations // Phys Rev B. 2006. Vol. 73, № 1. P. 014117.