

МОСКОВСКИЙ ГОСУДАРСТВЕННЫЙ УНИВЕРСИТЕТ

имени М.В. ЛОМОНОСОВА

На правах рукописи

МИГАЛЬ ЕКАТЕРИНА АЛЕКСАНДРОВНА

**ГЕНЕРАЦИЯ ЛАЗЕРНОЙ ПЛАЗМЫ И НЕЛИНЕЙНО-ОПТИЧЕСКОЕ
ПРЕОБРАЗОВАНИЕ ЧАСТОТЫ ВЫСОКОИНТЕНСИВНОГО
ФЕМТОСЕКУНДНОГО ИЗЛУЧЕНИЯ ИК ДИАПАЗОНА В
КОНДЕНСИРОВАННЫХ И ПЛОТНЫХ ГАЗОВЫХ СРЕДАХ**

01.04.21 – Лазерная физика

АВТОРЕФЕРАТ

диссертации на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

Москва - 2022

Работа выполнена на кафедре общей физики и волновых процессов физического факультета
МГУ имени М.В.Ломоносова

- Научный руководитель** – **Потёмкин Фёдор Викторович** –
кандидат физико-математических наук, доцент
- Официальные оппоненты** – Головань Леонид Анатольевич –
доктор физико-математических наук, доцент,
профессор кафедры общей физики и
молекулярной электроники физического
факультета МГУ им. М.В. Ломоносова
- Степанов Андрей Николаевич –
доктор физико-математических наук, заведующий
лабораторией сверхсильных полей Института
прикладной физики РАН
- Компанец Виктор Олегович –
кандидат физико-математических наук, старший
научный сотрудник Института спектроскопии
РАН

Защита диссертации состоится «19» мая 2022 г. в 15 часов 00 минут на заседании диссертационного совета МГУ.01.13 Московского государственного университета имени М.В.Ломоносова по адресу: 119991, Москва, Ленинские горы, д. 1, стр. 62, корпус нелинейной оптики, аудитория им. С.А. Хохлова.

E-mail: : diss.sov.31@physics.msu.ru

С диссертацией можно ознакомиться в отделе диссертаций научной библиотеки МГУ имени М.В. Ломоносова (Ломоносовский просп., д. 27) и на сайте ИАС «ИСТИНА»:
<http://istina.msu.ru/dissertations/446965120/>.

Автореферат разослан «__» _____ 20__ г.

Ученый секретарь

диссертационного совета МГУ.01.13,

кандидат физико-математических наук

А.А. Коновко

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Актуальность темы

Работа посвящена изучению нелинейно-оптических эффектов, происходящих при взаимодействии высокоинтенсивного ($10^{12} - 10^{14}$ Вт/см²) фемтосекундного лазерного излучения ближнего и среднего инфракрасного (ИК) диапазона (1,24 – 5 мкм) с конденсированными и газовыми средами: параметрическими процессами в нелинейно-оптических кристаллах, процессам ионизации и формирования плазмы в диэлектриках и генерации оптических гармоник в газовых средах и их смесях. Работа затрагивает важный вопрос эффективной генерации излучения в среднем ИК диапазоне, который особенно остро обсуждается научным сообществом в последнее время. Создание лазерных источников в этом диапазоне стимулируется многочисленными применениями в научных и практических задачах, связанными как с особенностями отклика вещества в указанном диапазоне спектра, так и свойствами самого лазерного излучения.

В среднем ИК диапазоне прозрачны не только многие диэлектрические материалы, но также и полупроводниковые среды, благодаря их узкой запрещенной зоне. В связи с этим источники ИК излучения открывают возможности для создания микро- и наноструктур с управляемыми параметрами не только на поверхности, но и в объеме таких важных материалов, как кремний, открывая перспективы для фотоники полупроводниковых сред и современной оптоэлектроники. В то же время механизмы взаимодействия высокоинтенсивного лазерного излучения с веществом изменяются при увеличении длины волны. Переход в средний ИК диапазон для относительно длинных импульсов (порядка 200 фс) характеризуется снижением сечения полевой ионизации и увеличением роли лавинной ионизации, то есть процессов, лежащих в основе фемтосекундной микрообработки прозрачных материалов. В связи с этим для выбора параметров воздействия и достижения необходимой морфологии лазерно-индуцированных объемных модификаций требуется детальное понимание процессов взаимодействия высокоинтенсивного лазерного излучения с веществом.

Область среднего ИК диапазона характеризуется многочисленными молекулярными колебаниями, наличие которых способно значительно влиять на линейные и нелинейные свойства вещества. Непосредственное влияние области резонансов на протекание нелинейно-оптических процессов остается не до конца изученным, хотя многочисленные полосы поглощения различных соединений широко применяются для идентификации вещества по линейчатым спектрам поглощения.

Важной особенностью взаимодействия ИК излучения с веществом является квадратичное изменение многих характерных величин с длиной волны. Так критическая мощность самофокусировки для излучения на длине волны 4,4 мкм более чем на порядок

превышает аналогичное значение для длины волны 1,24 мкм, что приводит к существенно большему энерговкладу в среду. Критическая концентрация электронов снижается с длиной волны, что ставит вопрос о применимости критической концентрации, как критерия достижения порога образования микромодификации в объеме материала для разных длин волн лазерного воздействия. Важной особенностью является значительное увеличение ponderomotive энергии электрона в поле ИК излучения. В связи с этим в процессе генерации гармоник высокого порядка становится возможным достижение области вакуумного ультрафиолетового диапазона, находящегося в водяном окне прозрачности, что особенно важно для спектроскопии и структурной визуализации различных биологических систем, в первую очередь, белков.

Значительное изменение как свойств среды, так и характера взаимодействия лазерного излучения с веществом приводит к особенностям протекания нелинейно-оптических процессов, появлению новых эффектов, ранее не наблюдавшихся в видимом и ближнем ИК диапазонах и сказывается на эффективности преобразования в другие диапазоны длин волн. Изменение многочисленных параметров взаимодействия лазерного излучения с веществом требует детальных исследований, основанных в первую очередь на новых эффективных лазерных источниках среднего ИК диапазона. Несмотря на значительное число работ, в данной области остается ряд открытых вопросов, что делает данную тематику не полностью разработанной, а проводимые исследования актуальными и востребованными.

Целью настоящей работы являлось исследование процессов плазмообразования и нелинейно-оптического преобразования частоты высокоинтенсивного излучения ИК диапазона в конденсированных и газовых средах. В работе решались следующие **задачи**:

1. Создание фемтосекундного источника излучения ближнего и среднего ИК диапазона с управляемыми параметрами: перестройкой в диапазоне длин волн 1,6 – 5 мкм, длительностью импульса 100 – 200 фс, выходной энергией порядка 10 – 20 мкДж и возможностью усиления до миллиджоульного уровня на фиксированной длине волны.

2. Исследование процессов ионизации при воздействии острогофокусированного ($NA > 0,2$) высокоинтенсивного (до 10^{13} Вт/см²) фемтосекундного излучения в объем прозрачных диэлектриков в диапазоне длин волн от видимого (0,62 мкм) до среднего ИК (5 мкм) диапазона.

3. Исследование возможностей повышения эффективности преобразования высокоинтенсивного (10^{13} - 10^{14} Вт/см²) лазерного излучения ближнего и среднего ИК диапазона в видимую и УФ область спектра в плотных газовых средах в процессе генерации оптических гармоник.

Научная новизна

1. Впервые экспериментально реализован фемтосекундный оптический параметрический усилитель в ближнем и среднем ИК диапазонах в условиях аномалий перестроечных кривых, сформированных в кристаллах ВВО и КТА при накачке излучением хром-форстеритового лазера. Вблизи указанных аномалий возможна эффективная генерация широкополосного излучения в окрестности 2,3 мкм и 3,8 мкм.

2. Впервые продемонстрирована возможность управления спектральной яркостью суперконтинуума в диапазоне 1,6 – 2 мкм сгенерированного в процессе филаментации фемтосекундного излучения хром-форстеритового лазера в кристалле Nd:YAG в условиях формирования нескольких (2-3) нелинейных фокусов за счет изменения chirpирования импульса накачки.

3. Разработан и реализован фемтосекундный параметрический усилитель среднего ИК диапазона с накачкой хром-форстеритовым лазером на основе трех кристаллов AGS длиной 2 мм с рекордной эффективностью преобразования 10%. Диапазон перестройки составил 1,6 – 2 мкм и 3,5 – 5,5 мкм с энергией более 20 мкДж во всем диапазоне длин волн и длительностью импульса порядка длительности импульса накачки.

4. Впервые исследована зависимость порога плазмообразования в широком диапазоне длин волн от видимого (620 нм) до среднего ИК (5 мкм) при острой фокусировке ($NA \sim 0,5$) фемтосекундного излучения в диэлектрики (SiO_2 , MgF_2). Показано, что порог плазмообразования имеет немонотонную зависимость, что связано с изменением механизмов ионизации.

5. Получена генерация третьей и пятой гармоник хром-форстеритового излучения в ксеноне с эффективностью 10^{-3} и $4,4 \times 10^{-4}$ соответственно в режиме сверхсильного поля ($10^{14} - 10^{15}$ Вт/см²) при острой фокусировке ($NA \sim 0,1$) в ксенон.

6. Впервые исследовано влияние молекулярных резонансов на режимы преобразования высокоинтенсивного (10^{13} Вт/см²) ИК излучения в газовых средах в излучение гармоник. Показано, что наличие уширенных перекрывающихся резонансных линий приводит к существенному изменению профиля показателя преломления, что позволяет добиться условий фазового согласования на всей длине взаимодействия.

Научная и практическая значимость

Разработанный оптический параметрический усилитель ближнего и среднего ИК диапазона с накачкой излучением хром-форстеритовым лазером является источником перестраиваемых высокоинтенсивных лазерных импульсов в перспективном диапазоне длин волн 1,6 – 5 мкм. Фемтосекундная длительность импульсов в сочетании с микроджоульным уровнем энергии позволяет использовать его как независимый лазерный источник для

решения задач нелинейной-оптики и исследования физики взаимодействия ИК излучения с веществом.

Определение механизмов генерации микроплазмы в различных спектральных диапазонах (в том числе в среднем ИК) в диэлектриках важно для создания лазерных компонент с высокой лучевой прочностью и стойкостью с заданными характеристиками отражения/пропускания, групповой задержки и т.д. Понимание процессов нагрева электронов в зоне проводимости необходимо для оптимизации объемного энерговклада в среду. Развитие методик повышения энергоэффективности объемного микроstructuring, например на основе двуцветного воздействия, неразрывно связано со знанием механизмов ионизации и нагрева в среднем ИК диапазоне.

Дальнейшее применение резонансных и синтезированных сред как метода достижения условий фазового синхронизма особенно перспективно для излучения высоких гармоник, эффективность генерации которых существенно снижается при использовании длинноволновых источников накачки. Применение этого метода для лазерных источников, длина волны которых расположена вдали от молекулярных резонансов газов, может быть основано на использовании синтезированных сред, состоящих из коллоидного раствора наночастиц. Излучение гармоник низкого порядка может быть также использовано для диагностики режима взаимодействия лазерного излучения с веществом и создания схем многоволнового смещения для повышения эффективности генерации гармоник высокого порядка.

Методология диссертационного исследования

Основная часть работы посвящена экспериментальным исследованиям, которые были подкреплены аналитическими расчетами и численным моделированием. Генерация перестраиваемого фемтосекундного излучения ближнего и среднего ИК диапазона (глава 1) происходила в процессе прямого параметрического усиления. Для диагностики спектрально-временных свойств генерируемого излучения использовалась методика оптического стробирования с разрешением по частоте. Для численного моделирования процесса параметрического усиления использовалась система уравнений для медленно меняющихся амплитуд, решение которой производилось методом прогонки. Для определения энергии, соответствующей порогу плазмообразования (глава 2) использовалась методика нелинейного пропускания и генерации несинхронной третьей гармоники. Размер пучка для определения порога измерялся с помощью метода переноса изображения. Для анализа результатов экспериментов использовалась численная модель на основе одного скоростного уравнения для эволюции электронной плотности. В главе 3 измерялась эффективность генерации оптических гармоник в зависимости от давления в кювете. Расчеты были выполнены на основе аналитической модели генерации гармоник в параксиальном приближении для гауссовых

пучков. Более подробное описание каждого метода приводится в соответствующем разделе диссертационной работы.

Защищаемые положения

1. Генерация широкополосного излучения при параметрическом усилении возможна в условиях аномалий перестроечных кривых вдали от вырожденного режима и условий неколлинеарного фазового синхронизма в кристаллах ВВО I-ого и КТА II-ого типов синхронизма с накачкой второй гармоникой и основным излучением фемтосекундного хром-форстеритового лазера в окрестности 2,3 и 3,8 мкм соответственно.

2. Генерация излучения ближнего (1,6 – 2 мкм) и среднего ИК диапазона (3,5 – 5,5 мкм) с длительностью импульса порядка 150 фс возможна с максимальной эффективностью 10% в трехкаскадном параметрическом усилителе на основе кристаллов AGS при оптимальном отрицательном чирпировании хром-форстеритового импульса накачки до 260 фс и интенсивности 100 ГВт/см².

3. Порог плазмообразования, достигаемый при острой фокусировке ($NA \sim 0,5$) линейно поляризованного высокоинтенсивного ($\sim 10^{13}$ Вт/см²) фемтосекундного излучения длительностью порядка 150 – 200 фс в объем прозрачных диэлектриков (SiO₂, MgF₂), зависит от длины волны в диапазоне 0,3 – 5 мкм немонотонно. Основную роль в изменении порога в области 0,3 – 1,24 мкм играет уменьшение сечения полевой ионизации, а на длинах волн более 1,24 мкм – изменение эффективности нагрева электрона в зоне проводимости.

4. Управление давлением и составом газовой среды Xe-CO₂ позволяет повысить эффективность преобразования высокоинтенсивного ($\sim 10^{13}$ Вт/см²) фемтосекундного (~ 150 фс) излучения среднего ИК диапазона (4,45 мкм) в третью и пятую гармоники в 25 и 10 раз по сравнению с чистым Xe до 1% и 0,3% соответственно.

Достоверность результатов подтверждается повторяемостью экспериментальных данных, а также их совпадением с результатами численного моделирования. Все представленные результаты прошли рецензирование при публикации в высокорейтинговых журналах, были неоднократно доложены на российских и зарубежных конференциях.

Апробация работы и публикации

Результаты исследований, вошедшие в работу, опубликованы в 15 печатных работах, в том числе в 6 научных статьях, опубликованных в журналах Scopus, WoS, RSCI, а также в Перечне изданий МГУ, докладывались на следующих научных конференциях: международная конференция по лазерам и квантовой электронике CLEO Europe & EQEC 2017 (Мюнхен, Германия, 2017), 18-я международная конференция «Оптика лазеров-2018» (Санкт-Петербург, Россия, 2018), 7-я международная летняя школа «Trends and new developments in Laser Technology 2018» (Дрезден, Германия, 2018), международная конференция по сверхбыстрым оптическим процессам «UltrafastLight-2018» (Москва, Россия, 2018),

международная конференция SPIE Optics + Optoelectronics (Прага, Чехия, 2019), международная конференция по лазерам и квантовой электронике CLEO Europe & EQEC 2019 (Мюнхен, Германия, 2019), международная конференция по сверхбыстрым оптическим процессам «UltrafastLight-2019» (Москва, Россия, 2019), 19-я международная конференция «Оптика лазеров-2020» (Санкт-Петербург, Россия, 2020), международная конференция по сверхбыстрым оптическим процессам «UltrafastLight-2020» (Москва, Россия, 2020).

Личный вклад автора

Все изложенные в работе оригинальные результаты получены автором лично, либо при его непосредственном участии. Автором осуществлялось создание и настройка экспериментальных схем, проведение экспериментов, обработка, анализ и интерпретация экспериментальных результатов, разработка и написание численных моделей.

Структура и объем диссертации

Диссертация состоит из введения, трех глав, заключения, благодарностей и списка литературы. Работа изложена на 136 страницах, включает 46 рисунков, 2 таблицы и список литературы с общим числом ссылок 196.

СОДЕРЖАНИЕ ДИССЕРТАЦИИ

Во *введении* обсуждается актуальность темы диссертационной работы, формулируются цели исследования, защищаемые положения, обсуждается научная новизна и практическая ценность полученных результатов, а также приводится краткое содержание диссертационной работы.

Первая глава диссертационной работы посвящена созданию оригинального фемтосекундного оптического параметрического усилителя ближнего и среднего ИК диапазона (1,65 – 5,5 мкм) с накачкой хром-форстеритовой лазерной системой.

В *параграфе 1.1* дается подробный обзор современных лазерных и параметрических источников излучения фемтосекундной длительности в среднем ИК диапазоне с выходной энергией более 1 мкДж, работающих на низкой частоте повторения (порядка 10 Гц). Обсуждаются перспективы использования длинноволновых ($> 0,8$ мкм) фемтосекундных лазеров в качестве накачки для параметрических усилителей.

В *параграфе 1.2* кратко описывается фемтосекундная лазерная система на хром-форстерите, выступающая в экспериментах в качестве лазера накачки для параметрического усилителя.

Параграф 1.3 посвящен экспериментальным методикам измерения спектра и длительности излучения ближнего и среднего ИК диапазона, а также описанию численной модели процесса трехволнового смешения. Дается описание разработанной экспериментальной схемы метода оптического стробирования с разрешением по частоте (FROG) на основе процесса генерации второй гармоники и суммарной частоты. Приводятся

основные уравнения, используемые в численной модели при оптимизации и анализе результатов по параметрическому усилению. На основе оценки спектральной ширины фазового синхронизма и параметра качества кристалла устанавливается, что наиболее перспективными коммерчески доступными кристаллами для преобразования излучения хром-форстеритового лазера (1,24 мкм, 170 фс, до 2,5 мДж) в область среднего ИК диапазона (1,65 – 5,5 мкм) являются кристаллы КТА, АГС и LGS.

В *параграфе 1.4* содержится оригинальная часть диссертационной работы, связанная с созданием параметрического усилителя в выбранных нелинейно-оптических кристаллах с накачкой излучением хром-форстеритового лазера.

Экспериментально установлено, что в кристалле КТА II типа синхронизма длиной 5 мм вырезанного в плоскости XZ реализуется специфический режим генерации импульсов в окрестности длинноволновой границы поглощения кристалла, приводящий к увеличению эффективности генерации при перестройке в длинноволновую часть спектра (в окрестность 3,7 – 3,8 мкм), но ограничивающий перестройку длиной волны 4,0 мкм. Зависимость выходной энергии от длины волны приведена на рис. 1.

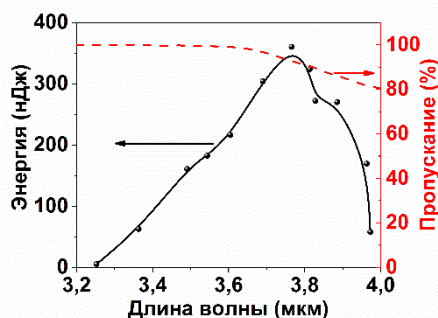


Рис. 1 Зависимость выходной энергии холостой волны параметрического усилителя на основе кристалла КТА с накачкой излучением хром-форстеритового лазера. Красная пунктирная кривая – коэффициент пропускания кристалла КТА.

Такая зависимость выходной энергии от длины волны не характерна для параметрических усилителей, где энергия ИК-импульсов плавно спадает с увеличением длины волны согласно соотношению Мэнли-Роу. Данный экспериментальный факт объясняется особенностью дисперсионных зависимостей кристалла вблизи его длинноволновой границы поглощения. Как следует из спектра пропускания кристалла КТА, его длинноволновая граница пропускания расположена в окрестности 4 – 5 мкм. Наличие широкой полосы поглощения на длинах волн, превышающих 4 мкм, приводит к характерному убыванию показателя преломления с длиной волны. Такая зависимость приводит к довольно слабой зависимости групповой скорости от длины волны в диапазоне 1 – 4 мкм и, возможности согласования групповых скоростей накачки, расположенной в ближнем ИК диапазоне, и ИК излучения холостой волны, чьи групповые скорости в параметрических усилителях среднего ИК диапазона, как правило, имеют наибольшую разницу. Благодаря близости групповых

скоростей, увеличивается как ширина синхронизма, так и эффективность преобразования. На длине волны 3,8 мкм были получены импульсы с шириной спектра до 350 нм, что соответствует спектрально ограниченному импульсу длительностью 65 фс.

Эффект увеличения ширины фазового синхронизма, а также эффективности параметрического усилителя при перестройке холостой волны в область линейного поглощения кристалла наблюдается для кристалла КТА и при накачке второй гармоникой хром-форстеритового лазера (620 нм), а также для других нелинейно-оптических кристаллов. В работе описываются эксперименты, проведенные с кристаллом ВВО I типа синхронизма длиной 6 мм, в котором были получены импульсы с шириной спектра до 450 нм на длине волны 2,25 мкм с накачкой второй гармоникой хром-форстеритового лазера (620 нм). Таким образом, эффективная генерация широкополосного излучения в ближнем и среднем ИК диапазоне возможна не только в области вырожденного режима или при использовании неколлинеарной геометрии, но и в области аномалий перестроечных кривых. В окрестности этих участков доступна как генерация широкого спектра, так и высокая эффективность преобразования от коммерчески доступных лазерных источников, что важно для создания простых и компактных источников излучения в ближнем и среднем ИК диапазоне.

Для получения перестройки до 5 мкм был реализован параметрический усилитель на основе кристалла АГС длиной 2 мм I типа синхронизма. Важность генерации излучения в области 4-5 мкм обусловлена возможностью использования таких импульсов в качестве затравочного излучения для лазерной системы на основе Fe:ZnSe и исследования влияния молекулярных резонансов CO₂ на протекание нелинейно-оптических процессов (генерацию оптических гармоник), описанных в главе 3 данной работы.

Выходные характеристики трехкаскадного параметрического усилителя на основе кристаллов АГС приведены на рис. 2. Длина волны сильной и холостой волны могла перестраиваться в диапазоне 1,6 – 2 мкм и 3,4 – 5,6 мкм соответственно. Перестройка в области длин, менее 1,6 мкм и превышающих 5,6 мкм ограничена спектральными особенностями используемых дихроичных зеркал, а в области 2,1 – 3,6 мкм – спектральной яркостью суперконтинуума, выступающего в качестве затравочного излучения для первого каскада параметрического усилителя. Ширина спектра выходных импульсов составляла 180 – 210 нм в зависимости от длины волны генерации, что соответствует спектрально-ограниченной длительности порядка 130 – 180 фс.

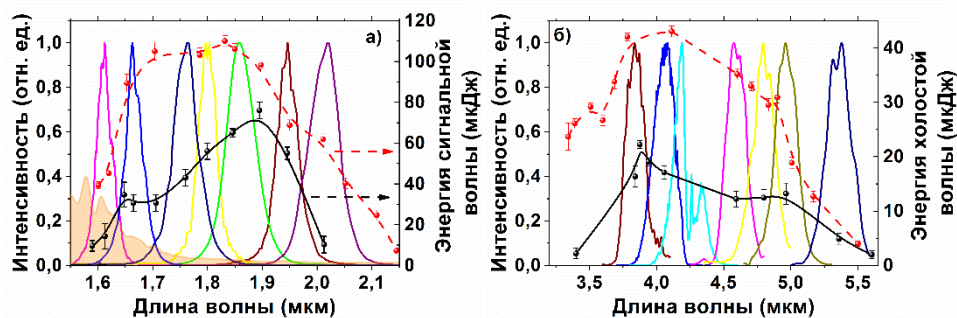


Рис. 2 Зависимость выходной энергии трёхкаскадного параметрического усилителя от длины волны в случае спектрально-ограниченного импульса накачки длительностью 170 фс (черная кривая) и отрицательно chirпированного импульса накачки длительностью 260 фс (красная пунктирная кривая), а также спектры сигнальной (а) и холостой (б) волн. Заштрихованный спектр на рис. а) – спектр затравочного излучения (суперконтинуума).

В работе была обнаружена существенная зависимость выходной энергии параметрического усилителя от длительности импульса лазера накачки. Наиболее эффективно генерация происходила при отрицательно chirпированном импульсе длительностью 260 фс. На рис. 2 красной пунктирной кривой изображена зависимость выходной энергии от длины волны при оптимальном отрицательном chirпировании. Максимальная выходная энергия для холостой волны наблюдалась на длине волны 4,1 мкм и составляла 43 мкДж. Соответствующая энергия сигнальной волны составила 110 мкДж.

Основным фактором, влияющим на эффективность преобразования, является изменение спектральной яркости суперконтинуума при chirпировании импульса накачки. При изменении длительности импульса накачки меняется пиковая мощность излучения. Как следствие, изменяется длина самофокусировки и расстояние между нелинейными фокусами (рефокусировками). Изменение расстояния между нелинейными фокусами приводит к изменению разности фаз для одних и тех же спектральных компонент суперконтинуума, сгенерированных в окрестности первого и второго (или последующих) нелинейных фокусов, что, в свою очередь, вызывает сдвиг спектрального максимума, как результата конструктивной интерференции. В результате, максимум может быть тонко подстроен под полосу усиления параметрического усилителя. Влияние спектральной яркости суперконтинуума на эффективность параметрического усилителя было также подтверждено в численном моделировании.

Благодаря фемтосекундной длительности выходных импульсов и микроджоульному уровню энергии в широком диапазоне длин волн (1,6 – 2,1 мкм и 3,5 – 5 мкм) описанный трехкаскадный параметрический усилитель в дальнейшем использовался как независимый источник излучения в ближнем и среднем ИК диапазонах для проведения различных исследований, описанных в главе 2 и 3.

Вторая глава диссертационной работы посвящена исследованию процессов ионизации при взаимодействии острогофокусированного ($NA \sim 0,5$) высокоинтенсивного ($\sim 10^{13}$ Вт/см²) перестраиваемого излучения с объемом прозрачных диэлектриков (SiO₂, MgF₂).

В *параграфе 2.1* приводится литературный обзор имеющихся теоретических моделей, описывающих механизмы ионизации твердых тел, и экспериментальные данные изменения порога пробоя в различных спектральных диапазонах (от видимого УФ до среднего ИК).

В *параграфе 2.2* описываются экспериментальная схема, методика измерения порога плазмообразования, а также численные методы, используемые для анализа результатов. Для исследований использовалось основное излучение и вторая гармоника лазерной системы на хром-форстерите, а также сигнальная и холостая волны созданного параметрического усилителя на основе кристаллов AGS, которые остро фокусировались ($NA \sim 0,5$) в объем прозрачных диэлектриков. В эксперименте измерялась зависимость порога плазмообразования от длины волны. Для интерпретации результатов использовалась простейшая модель эволюции электронной плотности на основе одного скоростного уравнения.

В *параграфе 2.3* демонстрируются результаты экспериментов по измерению зависимости порога плазмообразования в объеме прозрачных диэлектриков SiO₂, MgF₂ от длины волны. Показывается, что эта зависимость является не монотонной и в ней можно выделить три характерных области. Порог плазмообразования возрастает при увеличении длины волны от видимого до ближнего ИК диапазона (обозначено на рис. 3, как область I), а при дальнейшем увеличении длины волны начинает падать (область II). Область 2 простирается до 2 мкм в SiO₂ и вплоть до 4 мкм в MgF₂. Однако затем на длинах волн, превышающих 4 мкм, в MgF₂ наблюдается рост порога плазмообразования (область III).

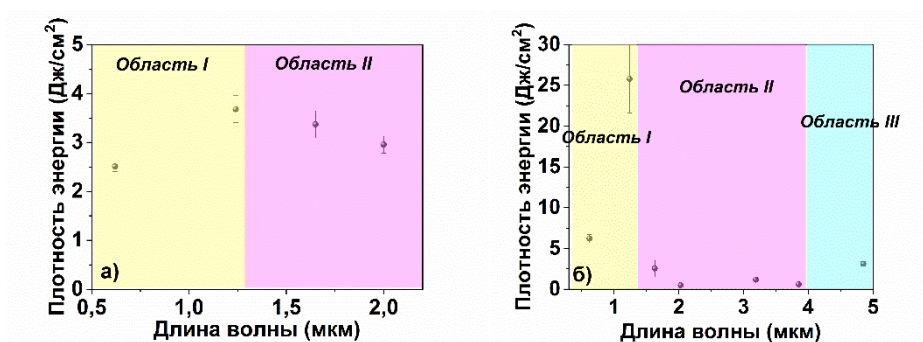


Рис. 3 Зависимость порога плазмообразования от длины волны в SiO₂ (а) и MgF₂ (б).

Для объяснения полученных результатов был произведён расчет зависимости максимальной достигаемой концентрации электронов для разных длин волн в случае только полевой ионизации, а также с учетом вклада лавинной ионизации. В случае учёта только полевой ионизации максимально достижимая концентрация электронов быстро снижается с увеличением длины волны (рис. 4), так как скорость полевой ионизации уменьшается с длиной волны. Учёт вклада лавинной ионизации приводит к появлению минимума в зависимости

максимальной электронной концентрации от длины волны. Электронная концентрация снижается в области длин волн от 300 нм до ~900 нм в SiO_2 и ~1 мкм в MgF_2 , а, затем, начинает расти. Из сравнения с кривой, учитывающей только процесс полевой ионизации, можно сказать, что в коротковолновой области до 1 мкм доминирующий вклад в формирование электронной плотности вносит полевая (многофотонная) ионизация, а вклад лавины незначителен. При увеличении длины волны (более 1 мкм) лавинная ионизация становится доминирующей, так как ее сечение значительно увеличивается. Образование минимума, таким образом, связано с областью, где сечение полевой ионизации уже достаточно снизилось, а лавина еще недостаточно развита.

В случае MgF_2 проведены расчеты вплоть до 5 мкм. Было обнаружено, что в окрестности 3 мкм достигается максимум электронной концентрации. Снижение электронной концентрации на больших длинах волн связано с отсутствием достаточного числа затравочных электронов. Обнаружено, что частота столкновений определяет не только точное значение достигаемой электронной концентрации в среднем ИК диапазоне, но и ее поведение в зависимости от длины волны, а именно точное положение максимума электронной концентрации.

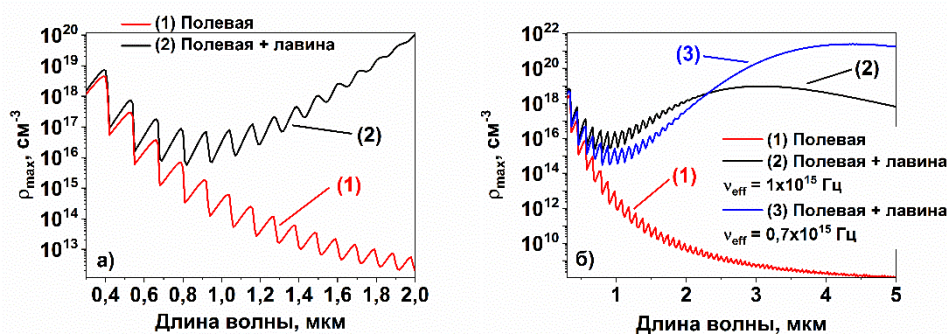


Рис. 4 Расчетная зависимость максимально достижимой концентрации электронов от длины волны в SiO_2 (а) и MgF_2 (б) для лазерных импульсов с длительностью 170 фс и интенсивностью 10^{13} Вт/см^2 при учете только полевой ионизации (кривая (1)) и полевой и лавинной ионизации (кривая (2) для SiO_2 при частоте столкновений $0,6 \times 10^{15} \text{ Гц}$, кривые (2) и (3) для MgF_2 при частоте столкновений $1 \times 10^{15} \text{ Гц}$ и $0,7 \times 10^{15} \text{ Гц}$ соответственно)

Понимание механизмов ионизации в объеме твердых тел в широком диапазоне длин волн особенно важно для развития новых методов прецизионной микрообработки (например, методики тандемного воздействия), развития элементной базы для лазерных источников среднего ИК диапазона, а также понимания процессов, происходящих при генерации высоких гармоник.

Третья глава диссертационной работы посвящена изучению процесса генерации оптических гармоник в плотных газовых средах и их смесях.

В *параграфе 3.1* дается обзор литературы, посвященный процессу генерации гармоник в газах в различных режимах. Для повышения эффективности генерации гармоник в газовых средах и поиска оптимальных условий генерации в рамках диссертационной работы предлагается управление условиями фазового согласования за счет изменения давления однокомпонентной среды, а также создание сред с «синтезированными» свойствами за счет изменения состава и подбора оптимального парциального давления многокомпонентной среды.

В *параграфе 3.2* на примере третьей гармоники рассматриваются зависимости эффективности генерации от условий фокусировки с теоретической точки зрения. Показано, что применение острой фокусировки ($NA \sim 0,1$) в сочетании с оптимальным значением фазовой расстройки, полученной за счет большего давления газа и/или в условиях генерации плазмы при существенно большей интенсивности накачки может позволить получить эффективность преобразованию сравнимую с режимом мягкой фокусировки ($NA < 0,01$).

Параграф 3.3 посвящен описанию экспериментальной установки. Для исследований использовалось излучение хром-форстеритового лазера и параметрического усилителя, созданного в главе 1. Для проведения экспериментов в среднем ИК диапазоне излучение холостой волны выступало в качестве затравочного для мощной лазерной системы на основе активной среды Fe:ZnSe, позволяющей получить до 3,5 мДж на длине волны 4,45 мкм при длительности импульса 150 фс. Для экспериментов был выбран ксенон, обладающий наибольшим нелинейным показателем преломления, и CO₂, демонстрирующий множество вращательных переходов в окрестности 4,3 мкм.

В *параграфе 3.4* демонстрируются результаты экспериментов по генерации третьей (ТГ) и пятой (ПГ) гармоник в ксеноне излучением хром-форстеритового лазера в режиме острой фокусировки $NA \sim 0,1$. Приводятся зависимости выхода гармоник от давления в кювете. Обнаружено, что эта зависимость имеет ярко выраженный максимум, зависящий от интенсивности излучения накачки. Максимальная эффективность преобразования составляет $1,1 \times 10^{-3}$ и $4,4 \times 10^{-4}$ для ТГ и ПГ соответственно и достигается для 8 и 5 атм при вакуумной интенсивности $3,3 \times 10^{15}$ Вт/см². Результаты экспериментов проанализированы на основе аналитического выражения для эффективности генерации гармоник, полученном в параксиальном приближении для гауссовых пучков. Для расчета фазовой расстройки учитывались вклады дисперсии среды и генерации плазмы. Согласно результатам расчетов, образование максимума в зависимости эффективности генерации от давления соответствует достижению оптимального значения фазовой расстройки. В отсутствие генерации плазмы (при малых интенсивностях) для достижения максимальной эффективности преобразования необходимо более высокое давление порядка 14 и 7 атм для ТГ и ПГ, соответственно, так как необходимая фазовая расстройка может быть обеспечена исключительно дисперсией среды.

При больших интенсивностях генерируемая плазма также вносит дополнительный вклад в фазовую расстройку, что позволяет снизить дисперсионный вклад путем уменьшения давления.

В параграфе 3.5 описываются дополнительные возможности оптимизации условий фазового согласования за счет использования смесей газов, один из которых содержит резонансы с широким спектром излучения накачки. Эксперименты проводились с использованием смеси Хе-СО₂ и излучением среднего ИК диапазона (4,45 мкм). Кювета заполнялась 45 – 50 атм ксенона и небольшим количеством СО₂ (до 2 атм). Добавление углекислого газа приводило к значительному росту эффективности преобразования. Эффективность генерации ТГ и ПГ увеличивался в 25 и 10 раз соответственно при парциальном давлении СО₂ 1 - 1,5 атм. В такой смеси наблюдалась генерация оптических гармоник вплоть до 11-ой.

Для определения механизма влияния СО₂ на эффективность генерации были проведены измерения эффективности генерации в зависимости от парциального давления СО₂ в смеси и в чистом СО₂. На рис. 5 приведена зависимость выхода гармоник от давления СО₂. Как видно из рисунка эффективность генерации в чистом СО₂ оказывается существенно ниже, чем в смеси, а гармоники более высокого порядка не наблюдаются. По сравнению с чистым газом максимум эффективности генерации ТГ и ПГ сдвигается с малых давлений около 0,5 атм в область 1 атм. Таким образом, изменение количества углекислого газа в смеси позволяет эффективно управлять условиями фазового согласования, что было также подтверждено расчетами на основе аналитической модели.

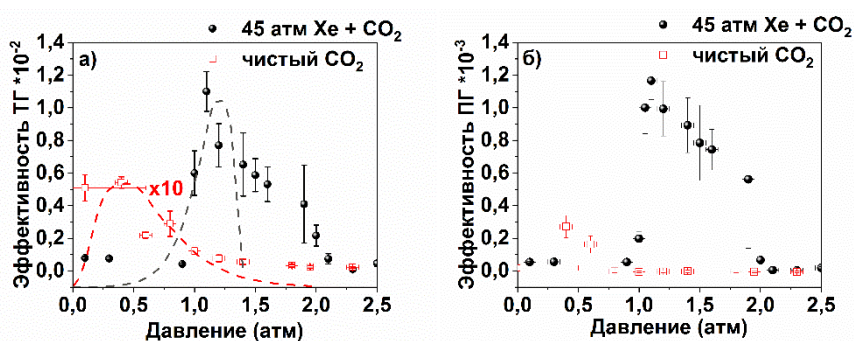


Рис. 5 Зависимость эффективности генерации третьей (а), пятой (б), гармоник от парциального давления СО₂ (черные круглые точки) в смеси и чистом газе (красные выколотые квадраты). В случае чистого СО₂ эффективность преобразования увеличена в 10 раз для наглядности. Штрих-пунктир: расчетные зависимости эффективности генерации.

Описанные результаты по генерации гармоник низкого порядка могут быть использованы для диагностики взаимодействия лазерного излучения с веществом, а также повышения эффективности процесса генерации высоких гармоник за счет эффективного управления дисперсией среды в различных диапазонах длин волн, а также использования схем много волнового смещения, например, $\omega + q\omega$, где q – номер гармоники.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Таким образом, в работе рассмотрены методы генерации фемтосекундного излучения ближнего (1,65 – 2 мкм) и среднего ИК (3,5 – 5,5 мкм) диапазона и описаны оригинальные результаты по исследованию взаимодействия полученного излучения с диэлектрическими и плотными газовыми средами. Основные результаты работы могут быть сформулированы следующим образом:

1. Угловая перестройка кристаллов ВВО I типа взаимодействия и КТА II типа взаимодействия с накачкой второй гармоникой и основным излучением хром-форстеритового лазера в область аномалий перестроечных кривых приводит к увеличению эффективности генерации и спектральной ширины фазового синхронизма. Импульсы с шириной спектра 450 нм и 350 нм получены в однокаскадной схеме параметрического усилителя на длине волны 2,3 мкм и 3,8 мкм при интенсивности накачки 40 ГВт/см² и 100 ГВт/см² соответственно.

2. Отрицательное чирпирование хром-форстеритового импульса накачки до 260 фс способствует увеличению эффективности генерации трехкаскадного параметрического усилителя на кристаллах AGS до рекордных 3% для диапазона длин волн 4 – 5 мкм при сохранении выходной длительности импульсов порядка 150 фс благодаря увеличению спектральной яркости суперконтинуума и групповой длины взаимодействия.

3. Порог плазмообразования, достигаемый при острой фокусировке ($NA \sim 0,5$) фемтосекундного излучения в объём прозрачных диэлектриков (SiO_2 , MgF_2), зависит от длины волны немонотонно, достигая максимального значения в ближнем ИК диапазоне (в окрестности 1,24 мкм) и, затем, снижаясь до 2 мкм в SiO_2 и ~ 4 мкм в MgF_2 . Изменение порога происходит в связи с изменением сечения полевой и лавинной ионизации. В области длин волн, превышающих 4 мкм, в MgF_2 порог плазмообразования растёт в виду изменения эффективности нагрева электрона в зоне проводимости.

4. Управление давлением и составом газовых сред позволяет повысить эффективность преобразования высокоинтенсивного фемтосекундного излучения в гармоники за счёт оптимизации величины фазовой расстройки. Благодаря выбору оптимального давления ксенона получена эффективность преобразования $1,1 \times 10^{-3}$ и $4,4 \times 10^{-4}$ для третьей (413 нм) и пятой (248 нм) гармоник излучения хром-форстеритового лазера и 5×10^{-4} и 1×10^{-4} для третьей (1,5 мкм) и пятой (0,9 мкм) гармоник излучения Fe:ZnSe лазера. Введение дополнительных сред, резонансно взаимодействующих с излучением накачки, существенно изменяет профиль дисперсии, позволяя добиться условий фазового согласования на всей длине взаимодействия. В таком случае эффективность генерации третьей и пятой гармоник излучения Fe:ZnSe лазера может быть увеличена до 10^{-2} и 10^{-3} соответственно.

СПИСОК ПУБЛИКАЦИЙ ПО ТЕМЕ ДИССЕРТАЦИИ

Основные результаты диссертационной работы отражены в следующих работах. Вклад автора во все научные труды составляет 0,4. Научные статьи, опубликованные в журналах Scopus, WoS, RSCI, а также в Перечне изданий МГУ:

1. 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. – Т. 18. – №. 9. – С. 095502., IF = 2.402
2. 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. – Т. 42. – №. 24. – С. 5218-5221., IF = 3.776
3. Мигаль Е. А., Потемкин Ф. В. Широкополосное параметрическое усиление в ближнем ИК-диапазоне (2–2.5 мкм) в условиях дисперсионных аномалий перестроенных характеристик с накачкой хром-форстеритовым лазером // *Письма в Журнал экспериментальной и теоретической физики*. – 2018. – Т. 107. – №. 5. – С. 301-305., IF = 1.532
4. 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. – Т. 10. – №. 1. – С. 1-10., IF = 4.379
5. 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. — no. 16. — P. 045401., IF = 2.016
6. Migal E. A., Stremoukhov S. Y., 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 - Atomic, Molecular, and Optical Physics*. — 2020. — Vol. 101. — P. 021401–1–021401–4., IF = 3.989

Иные научные труды соискателя:

1. Migal E. A., Mareev E. I., Smetanina E. O., Duchateau G., and Potemkin F. V. Role of deposited energy density and impact ionization in the process of femtosecond laser-matter interaction in solids: scaling from visible to mid-IR wavelength // *Nonlinear Optics and Applications XI*. — SPIE, 2019. — P. 110260V–1–110260V–6.
2. Migal E., Potemkin F., Gordienko V. Efficient femtosecond mid-IR (4–5 μm) AGS OPA pumped by Cr: Forsterite laser // *The European Conference on Lasers and Electro-Optics – Optical Society of America*, 2017, June 25-29 2017, Munich, Germany – C. CF_P_25.
3. Migal E.A., Mareev E.I., Duchateau G., Smetanina E.O., Potemkin F.V. Wavelength scaling of deposited energy density under femtosecond microstructuring in bulk fused silica // *UltrafastLight-2018 Book of abstracts*, October 1-5 2018, Moscow, Russia, p. 76 – 77.

4. Migal E. A., Mareev, E. I., Smetanina, E. O., Duchateau, G., Potemkin, F. V. Wavelength and energy scaling of deposited energy density during microstructuring of transparent materials //2019 Conference on Lasers and Electro-Optics Europe & European Quantum Electronics Conference (CLEO/Europe-EQEC). – IEEE, 2019, June 23-27 2019, Munich, Germany – C. 1-1.
5. Migal E. A., Potemkin F. V., Gordienko V. M. Pressure optimization of strong field low order harmonics generated in xenon microplasma in tight focusing regime //European Quantum Electronics Conference. – Optical Society of America, 2019, June 23-27 2019, Munich, Germany – C. ee_p_14.
6. Migal E.A., Mareev E.I., Smetanina E.O., Duchateau G., Potemkin F.V. Control of absorbed energy density and electron concentration via two color femtosecond excitation of solids //UltrafastLight-2019 Book of abstracts, September 30 - October 4 2019, Moscow, Russia, p. 90.
7. Migal E.A., Mareev E.I., Smetanina E.O., Potemkin F.V. Role of wavelength in photocarrier absorption under excitation of dielectrics by high-intensity laser field tunable from visible to mid-IR //UltrafastLight-2020 Book of abstracts, September 28 - October 2 2020, Moscow, Russia, p. 88.
8. Migal E.A., Stremoukhov S.Yu, Potemkin F.V. Pushing harmonics generation efficiency by resonant phase matching in mid-IR // UltrafastLight-2020 Book of abstracts, September 28 - October 2 2020, Moscow, Russia, p. 230-231.
9. Migal E. A., Stremoukhov S. Y., Potemkin F. V. Optical harmonic generation in the vicinity of molecular resonances by mid-IR laser field //2020 International Conference Laser Optics (ICLO). – IEEE, 2020., November 2-6 2020, Saint-Petersburg, Russia – C. 1-1.

Основная цитируемая литература:

1. Ахманов С.А., Выслоух В.А., Чиркин А.С. Оптика фемтосекундных лазерных импульсов. М., Наука, 1988.
2. Гурздян Г.Г., Дмитриев В.Г., Никогосян Д.Н. Нелинейно-оптические кристаллы. Свойства и применение в квантовой электронике. М.: Радио и связь, 1991. 160 p.
3. Petrov V. Frequency down-conversion of solid-state laser sources to the mid-infrared spectral range using non-oxide nonlinear crystals // Prog. Quantum Electron. Elsevier, 2015. Vol. 42. P. 1–106.
4. Birmontas A., Piskarskas A., Stabinis A. Dispersion anomalies of tuning characteristics and spectrum of an optical parametric oscillator // Sov. J. Quantum Electron. 1983. Vol. 13, № 9. P. 1243–1245.
5. Golubtsov I.S., Kandidov V.P., Kosareva O.G. Initial phase modulation of a high-power femtosecond laser pulse as a tool for controlling the pulse filamentation and generation of a supercontinuum in air // Kvantovaya Elektron. 2003. Vol. 33, № 6. P. 525–531.
6. Келдыш Л.В. Ионизация в поле сильной электромагнитной волны // Журнал экспериментальной и теоретической физики. 1965. Vol. 47, № 5. P. 1945–1958.

7. Kaiser A., Rethfeld B. Microscopic processes in dielectrics under irradiation by subpicosecond laser pulses // Phys. Rev. B - Condens. Matter Mater. Phys. 2000.
8. Manenkov A.A. Fundamental mechanisms of laser-induced damage in optical materials: today's state of understanding and problems // Opt. Eng. SPIE-Intl Soc Optical Eng, 2014. Vol. 53, № 1. P. 010901.
9. Boyd R.W., Masters B.R. Nonlinear Optics, Third Edition // J. Biomed. Opt. 2009.
10. Архипкин В., Попов А. Нелинейная оптика и преобразование света в газах // УФН. 1987. Vol. 153. P. 423–468.
11. Райнтжес Д. Нелинейные оптические параметрические процессы в жидкостях и газах: Пер. с англ. М.: Мир, 1987. 512 р.